

RECENTS PROGRES EN GENIE DES PROCEDES

No.61

Volume 12 - 1998

Traceurs et méthodes de traçage

RECENTS PROGRES EN GENIE DES PROCEDES

Une collection dédiée aux Congrès tenus en France dans le domaine du Génie des Procédés

Directeurs de la collection:

Georges Grévillet et Alain Storck
Laboratoire des Sciences du Génie Chimique- CNRS
Ecole Nationale Supérieure des Industries Chimiques
Nancy, France

Editeur:

Société Française de Génie des Procédés
(Membre de la Fédération Européenne de Génie Chimique)
1, rue Grandville BP 451, 54001 Nancy cedex, France

Diffuseur:

Technique et Documentation-Lavoisier
14, rue de Provigny 94236 Cachan cedex, France

La collection est référencée dans les bases de données bibliographiques:
Pascal-CNRS et Chemical Abstracts Service (CAS)

Derniers numéros parus:

Volume-année	N°	Titre	
Volume 9-1995	43	Boues industrielles: traitements, valorisation	160 p
	44	Les procédés d'épuration des effluents et déchets des industries biologiques et alimentaires	172 p
Volume 10-1996	45	Les procédés de broyage	240 p
	46	Des microphénomènes aux microtechnologies	192 p
	47	Eaux résiduaires: traitements biologiques et physicochimiques	182 p
	48	Qualité du métal liquide en liaison avec son élaboration	104 p
	49	Simulation-Optimisation -Commande	482 p
Volume 11-1997	50	Les applications des théories du chaos en Sciences pour l'Ingénieur	276 p
	51	Mixing 97: Recent Advances in Mixing	450 p
	52	Mixing 97: Multiphase Systems	350 p
	53	Phénomènes de transfert	382 p
	54	Génération des solides et traitement des solides divisés	190 p
	55	Physico-chimie et thermodynamique des procédés	200 p
	56	Simulation des procédés et automatique	290 p
	57	Génie de la réaction en microbiologie et biochimie	160 p
	58	Procédés en conditions extrêmes	124 p
	59	La friture: maîtrise du procédé et de la qualité des produits	160 p
Volume 12-1998	60	Métrologie	308 p

Traceurs et méthodes de traçage

Coordonnateurs

Jean Pierre Leclerc et Georges Grévilot

Laboratoire des Sciences du Génie Chimique

CNRS-ENSIC-INPL

Nancy

1998

Textes des communications présentées à:

"Traceurs et méthodes de traçage"
Nancy, 3 et 4 novembre 1998

ISBN 2-910239-00-4 (collection)
ISBN 2-910239-35-7 (N°61)

Copyright © 1998 SFGP, Nancy

AVANT-PROPOS

Le 1er Février 1994, lors d'un séminaire organisé par le groupe Génie de la Réaction Chimique au Laboratoire des Sciences du Génie Chimique de Nancy, le Professeur Jacques Villermaux commençait sa conférence par un transparent provocateur : «la D.T.S. concept du passé ou de l'avenir ?». Beaucoup avait un peu trop vite relégué la notion de D.T.S. à un concept créé en 1953 par Danckwerts et pour lequel on avait fait le tour de la question. Cette question dont la réponse paraissait un peu trop évidente aux yeux de tout le monde était loin d'être anodine. En effet, c'était oublier un peu trop rapidement, les nombreuses extensions possibles de cette méthode et d'une façon plus générale, les applications du traçage. Les techniques de traçage ne sont pas considérées comme un domaine de recherche en soi, ce qui explique qu'il n'y a jamais eu de congrès sur ce thème à ce jour. Pourtant, qui n'a pas été un jour amené à effectuer des traçages, choisir un traceur, un détecteur, traiter les données obtenues et les interpréter ?

L'organisation d'un congrès sur ce thème apparaissait nécessaire pour combler ce vide. Les communications de ce premier congrès sur «les traceurs et les méthodes de traçage» organisé à Nancy les 3 et 4 Novembre 1998 montrent sans ambiguïté les surprenantes possibilités d'utilisations et d'exploitations de cette méthode.

Ainsi l'utilisation des codes de calcul de la mécanique des fluides, présentés il y a quelques années comme la solution universelle, pour modéliser les écoulements complexes sans expérimentation, se conçoit difficilement aujourd'hui sans traçage et sans calcul intermédiaire des D.T.S.

Les limites d'application des traçages semblent infinies comme en témoigne la diversité des sujets abordés lors de ce congrès. De l'étude du dragage du Port de Zeebrugge à la mesure ponctuelle des débits, ce congrès touche aussi bien les spécialistes des procédés, de l'environnement, de la sidérurgie, d'hydrologie... Il permet aux chercheurs et aux industriels d'horizons différents d'échanger leurs connaissances tant d'un point de vue théorique que technique.

Un peu trop vite reléguée au rang de méthodologie simpliste, la maîtrise du traçage semble promise à un bel avenir et sera certainement dans les années futures considérée comme une spécialité de pointe à part entière.

Jean-Pierre Leclerc

Georges Grevillot

SOMMAIRE

L'APPLICATION DES RADIOTRACEURS DANS LES UNITES INDUSTRIELLES. BILAN ET PERSPECTIVE J. Thereska -----	1
RECENTS DEVELOPPEMENTS EN METHODOLOGIE DU TRACAGE RADIOACTIF V. Blet, Ph. Berne, Ch. Chaussy, F. Tola, X. Vitart -----	9
VELOCIMETRIE 3D A EMISSION DE RAYONS γ : RECENTS PROGRES DANS LE TRACAGE NON DESTRUCTIF DES MOUVEMENTS GRANULAIRES F. Larachi, J. Chaouki -----	17
DEVELOPPEMENT D'UN DETECTEUR TEMPS REEL DE PARTICULES FLUORESCENTES. APPLICATION A LA CARACTERISATION DES TRANSFERTS DE POLLUANTS C. Prevost, J. Vendel, A. Seigneur -----	23
SYNTHESE ET PROPRIETES PHOTOPHYSIQUES DE NOUVEAUX ROTORS MOLECULAIRES FLUORESCENTS DERIVES DE COUMARINES. COMPORTEMENT AU SEIN DE SYSTEMES BIOLOGIQUES C. Geoffroy-Chapotot, M.L. Viriot, S. Muller, M.C. Carre -----	31
LE TRACAGE PAR VOIE NUMERIQUE : PRINCIPE, POTENTIALITES ET LIMITES A. Line, M. Roustan -----	37
MECANISMES DE MALAXAGE DANS UN MALAXEUR BIPALE A MOUVEMENT PLANETAIRE : SIMULATION NUMERIQUE 3D ET ETUDE EXPERIMENTALE PAR TRACAGE FLUORIMETRIQUE P. Tanguy, F. Bertrand, F. Thibault, F. Fages, M. Lamotte, E. Giraud, M.H. Fages -----	43
DEVELOPPEMENT D'UN OUTIL DE CALCUL APPLIQUE A LA CARACTERISATION D'UNE VENTILATION PAR TRACAGE ET BASE SUR L'APPROCHE SYSTEMIQUE S. Drecourt, J.C. Laborde, S. Domenech, P. Floquet, C. Laquerbe, D. Viguier -----	49
UTILISATION D'UN TRACEUR FLUORESCENT POUR CARACTERISER LA TURBULENCE E. Gaudin, J.E. Wesfreid -----	57
GAZEIFICATION SOUTERRAINE DU CHARBON : ETUDE DE LA CROISSANCE DE LA CAVITE LORS DE L'ESSAI A GRANDE PROFONDEUR D'EL TREMEDAL A. Brasseur, J.P. Pirard, A. Coeme, P. Pirlot, M. Mostade -----	63
ETUDE ET OPTIMISATION DES TRAVAUX DE DRAGAGE. MISE EN EVIDENCE DU RECYCLAGE DES PRODUITS DE DRAGAGE. LE CAS DU PORT DE ZEEBRUGGE. P. Brisset, A. Caillot, R. Hoslin, A. Poggi, B. Malherbe -----	69

DETERMINATION DE BASSINS D'ALIMENTATION DE SOURCES KARSTIQUES PAR MULTI-TRACAGES L. Le Bideau, O. Gerbaux-Francois-----	75
TRACAGES DANS L'INDUSTRIE SIDERURGIQUE R. Nicolle, J.M. Steiler, M. Wanin-----	81
DEUX EXEMPLES DE CARACTERISATION DE PROCEDE DE COULEE CONTINUE DE L'ACIER PAR TRACAGE A L'OR ¹⁹⁸ AU. P. Gauje, H. Tavernier-----	91
LES MESURES DE DTS POUR L'EXTRAPOLATION DE PROCEDES INDUSTRIELS DE RAFFINAGE J. Bayle, J.M. Schweitzer, J.C. Viguie, C. Boyer, J.P. Burzynski, J.P. Euzen-----	97
CARACTERISATION, PAR TRAJECTOGRAPHIE TRIDIMEN- SIONNELLE, DU MELANGE DANS UN REACTEUR AGITE OUVERT P. Pitiot, L. Falk, H. Vivier-----	103
ETUDE PAR TRACAGES RADIOACTIFS DE LA MIGRATION DE METAUX TOXIQUES DANS DES DECHETS SIDERURGIQUES C. Andre, T. Charentus, X. Vitart, M. Jauzein, O. Dechelette-----	109
MODELISATION DE L'HYDRODYNAMIQUE DE DECANTEURS PRIMAIRES ET SECONDAIRES DE STATIONS D'EPURATION DES EAUX USEES PAR BOUES ACTIVEES M.N. Pons, N. Roche, O. Potier, C. Prost-----	115
MESURES DE DISTRIBUTIONS DE TEMPS DE SEJOUR PAR TRACAGE RADIOACTIF DANS DES REACTEURS INDUSTRIELS D'INFILTRATION CHIMIQUE EN PHASE GAZEUSE E. Sion, Ph. Jouannard, L. Lanvin, V. Blet, Ch. Chaussy, Ph. Berne-----	121
APPORT DE LA γ -CAMERA A L'ETUDE D'UN REACTEUR AGITE TRIPHASIQUE DE LABORATOIRE V. Blet, P. Berne, M. Forissier, O. Ladet, I. Pitault, D. Schweich-----	127
DIVERSES APPLICATIONS DE TRACEURS FLUORESCENTS POUR LES SYSTEMES LIES A L'EAU POTABLE OU AU MILIEU NATUREL O. Gerbaux-Francois-----	135
ETUDE PAR SPECTROSCOPIE DE FLUORESCENCE DE COPOLYMERES AMPHIPHILES EN MILIEU AQUEUX C. Frochot, M.L. Viriot, A. Brembilla, P. Lochon-----	141
TECHNIQUE DE FLUORESCENCE APPLIQUEE A LA CARACTERISATION DES MECANISMES DE TRANSFERTS HYDRIQUES DANS UN MILIEU POREUX TRIPHASIQUE : DETERMINATION D'UNE PALETTE COLORIMETRIQUE POUR L'ESTIMATION DES GRADIENTS DE SATURATION F. Gandola, N.E. Abriak, R. Haverkamp, J. Touma-----	147
TRACEUR FLUORESCENT APPLIQUE A LA CARACTERISATION D'UNE INFILTRATION MULTIDIRECTIONNELLE DANS UN MILIEU POREUX : MISE AU POINT D'UNE TECHNIQUE DE VISUALISATION ET DE TRAITEMENT DES IMAGES F. Gandola, N.E. Abriak, R. Haverkamp, J. Touma-----	153
VISUALISATION DES ECOULEMENTS DES MATERIAUX GRANULAIRES PAR FLUORESCENCE S. Khati, N.E. Abriak-----	159

LE COLORANT U.V. : UN TRACEUR PARTICULIEREMENT BIEN ADAPTE A LA DETERMINATION DE DISTRIBUTIONS DE TEMPS DE SEJOUR DANS DES REACTEURS INDUSTRIELS DE GRANDE DIMENSION H. Muhr, J.P. Leclerc, R. David, J.M. Bossoutrot, F. Garcia -----	165
DETECTION DU VIEILLISSEMENT DES MEMBRANES D'OSMOSE INVERSE PAR UNE TECHNIQUE DE TRACAGE PAR DES IONS E. Roth, B. Fabre, A. Accary, G. Thomas-----	171
ETUDE DE L'ECOULEMENT DES MATERIAUX GRANULAIRES : EFFET DE PAROI N.E. Abriak-----	177
ETUDE DU COMPORTEMENT HYDRODYNAMIQUE D'UN FLUIDE DANS UN ECHANGEUR EN GRAPHITE A AILETTES SPIRALES INTERNES S. Bessenet, J.P. Leclerc, V. Renaudin, J.M. Hornut -----	183
CHOIX DE TRACEURS POUR LA DETERMINATION DES TEMPS DE SEJOUR DES FARINES DANS LES CONDITIONNEURS J. Mabit, Y. Riou, B. Novales, J. Legrand-----	189
EXPERIENCES DE DISPERSION EN MILIEUX POREUX PERIODIQUES BIDIMENSIONNELS S. Didierjean, A. Souadnia, C. Moyne, H.P. Amaral-Souto -----	195
METHODE DE DETERMINATION DE L'ETAT DE SEGREGATION DANS UN ECOULEMENT TUBULAIRE F. Lempereur, L. Falk -----	201
EVALUATION DES TAUX DE RENOUVELLEMENT DE L'EAU DANS DES GRAVIERES PAR TRACAGES - INTERPRETATION ET MODELISATION O. Gerbaux-Francois, D. Getto, P. Saint-Bonnet, L. Benabdessalam -----	207
LA DISPERSION AXIALE PAR LA VOIE DE LA MECANIQUE DES FLUIDES NUMERIQUE A. Cockx, Z. Do-Quang, A. Line, M. Roustan -----	213
ETUDE DES ECOULEMENTS INTERMITTENTS GAZ-SOLIDE PAR UNE METHODE DE SUIVI DES STRUCTURES SOLIDES Y. Meline, C. Lanos, R. Bouard -----	219
CARACTERISATION D'ECOULEMENT DANS UN MELANGEUR PAR TRACAGES ET MODELISATION G. Beaudoin, Ph. Berne -----	225
MESURE DU DEBIT D'UNE SOURCE NON PONCTUELLE DE GAZ PAR UNE TECHNIQUE DE TRACAGE ATMOSPHERIQUE Ph. Berne, A. Tregoures -----	231
LE TRACAGE NUMERIQUE : PREDICTION DE LA DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR (DTS) PAR LES OUTILS DE LA MECANIQUE DES FLUIDES NUMERIQUE Z. Do-Quang, A. Cockx, M. Roustan, A. Line -----	237
MODELISATION GLOBALE D'UN REACTEUR A PLASMA D'INDUCTION PAR UNE METHODE DE TRACEURS C. Doudou, C. Trassy, C. Jallut-----	243

UTILISATION DU LOGICIEL "D.T.S." A DES FINS PEDAGOGIQUES : MODELISATION DE L'HYDRODYNAMIQUE D'UN LIT FLUIDISE CONTINU C. Torrez, C. Andre -----	249
TECHNIQUE EXPERIMENTALE DE LA DETERMINATION DES CHAMPS DE VITESSE DES MATERIAUX GRANULAIRES : MODIFICATION DU MODELE THEORIQUE DE MULLINS N.E. Abriak -----	255
APPLICATION OF TRACERS FOR VERIFICATION OF MATHEMATICAL MODELS OF MIXING IN INDUSTRIAL CRYSTALLIZERS A. Borissova -----	261
ETUDE EXPERIMENTALE DE L'ECOULEMENT DE POUDRES EN FOUR TOURNANT M. Debacq, D. Ablitzer, J.L. Houzelot, S. Boutin, D. Hartmann -----	267
CONFRONTATION EXPERIMENTALE DE TROIS METHODES DE TRACAGE POUR LA DETERMINATION DU TEMPS DE CIRCULATION AXIALE MOYEN D'UN AGITATEUR HELICOÏDAL G. Delaplace, N. Belaubre, J.C. Leuliet, J.Y. Dieulot -----	273
NUCLEAR METHODS APPLIED TO EVALUATION OF GOLD CONCENTRATION PROCESS L. Petryka, L. Furman, A. Ochonski, K. Przewlocki, Z. Stegowski -----	279
TRACAGE EN MILIEU DIPHASIQUE (LIQUIDE AQUEUX / LIQUIDE ORGANIQUE) SUR UN ENSEMBLE REACTIONNEL COMPOSE DE DEUX REACTEURS AGITES EN SERIE, SUIVI D'UN DECANTEUR I. Sallets, S. Cloots -----	285
INTERET DE LA TECHNIQUE DE TRACAGE EN REACTEUR FERME AU LIQUIDE POUR CARACTERISER L'HYDRODYNAMIQUE DES CONTACTEURS POLYPHASIQUES GAZ-LIQUIDE-SOLIDE G. Hebrard, M. Roustan, D. Bastoul -----	291
TRACER APPLICATION IN DEHYDRATION AND CALCINATION IN INDUSTRIAL PRODUCTION OF PIGMENTS J. Thyn, T. Cechak, R. Zitny -----	297
EVALUATION PAR TRACAGES DES DISTRIBUTIONS DES TEMPS DE SEJOUR DE L'EAU DANS DES RESERVOIRS DE CHLORATION D'USINES DE TRAITEMENT DES EAUX P. Burghoffer, O. Gerbaux-Francois, O. Chataigner, J. Cavard -----	303
VENTILATION D'UNE AIRE INDUSTRIELLE. MODELISATION PAR DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR (DTS) F. Bonthoux, G. Aubertin, J.M. Dessagne, J.C. Serieys -----	309
COMPLEMENTARITE DES TECHNIQUES DE TRACAGES GAZEUX ET PARTICULAIRE APPLIQUEES A LA CARACTERISATION DES TRANSFERTS D'AEROCONTAMINANTS S. Drecourt, N. Dupoux, J.C. Laborde, J. Lacan -----	317
EXPLORATION DE L'HYDRODYNAMIQUE D'UN BIOFILTRE DE NITRIFICATION TERTIAIRE EN GRANDEUR REELLE F. Seguret, Y. Racault, M. Sardin -----	323

HYDRODYNAMIQUE DANS UN DECANTEUR DE STATION D'EPURATION : UTILISATION DES TRACEURS RADIOACTIFS ET MODELISATION Z. Do-Quang, P. Chatellier, J.M. Audic -----	331
CONDITIONS D'ECOULEMENT INSATURE M. Mohammedi, A. Lakel, C. Dagot, M. Baudu -----	337
MODELISATION DES ECOULEMENTS RUISSELANTS SANS PRESSION EN REGIMES PERMANENT ET PULSE PERIODIQUE DANS LES SYSTEMES FILTRANTS D'ASSAINISSEMENT AUTONOME A. Lakel, M. Mohammedi, C. Dagot, M. Baudu -----	343
APPORT DU TRACAGE GAZEUX POUR L'ETUDE DE LA CIRCULATION DES GAZ EN CAS D'INCENDIE DANS UN LOCAL VENTILE E. Espi, Ph. Berne, P. Duverneuil -----	349
MODELISATION HYDRODYNAMIQUE D'UN DIGESTEUR ANAEROBIE A LIT FLUIDISE V. Otton, J.F. Beteau, A. Cheruy, M.N. Pons, J.Y. Hihn, F. Delpech -----	355
DETERMINATION DES COURBES DTS DANS LES REACTEURS DE TRAITEMENT DE L'EAU DE TAILLE INDUSTRIELLE Z. Do-Quang, M. Roustan -----	361
ETUDE DE L'HYDRODYNAMIQUE D'UN REACTEUR CANAL A BOUES ACTIVEES EN REGIME VARIABLE O. Potier, M.N. Pons, N. Roche, J.P. Leclerc, L. Galdemas, Ch. Prost -----	367
ECOULEMENT, BIODEGRADATION DES POLLUANTS ET REOXYGENATION DES RIVIERES EVALUES PAR TRACAGES, D'ECHANTILLONNAGE ET ANALYSE SYSTEME G. Beaudoin -----	373
SIMULATION DES CHANGEMENTS DE TEINTE DANS UN FOUR DE FUSION DE VERRE E. Puons, S. Rattana, J.Ph. Vantard, C. Plard, N. Mechitoua, J.L. Houzelot, J. Lede -----	381
MESURE DE DEBIT DE NAPPE EN ECOULEMENT NATUREL PAR DILUTION D'UN TRACEUR FLUORESCENT N. Courtois -----	387

L'APPLICATION DES RADIOTRACEURS DANS LES UNITES INDUSTRIELLES. BILAN ET PERSPECTIVE

J. THERESKA

<> International Atomic Energy Agency
Section Applications Industrielles et de Chimie
P.O. Box 100
Wagramer Strasse
Autriche - 1400 VIENNA

1. INTRODUCTION

Il y a presque un demi siècle que les traceurs radioactifs sont utilisés pour étudier les transferts de masse dans les unités industrielles. La méthodologie s'est développée avec le temps, devenant très sélective et compétitive et quelques fois unique sur le terrain (1).

Le traceur radioactif est un traceur de choix pour les unités industrielles. Il est l'outil préféré pour le contrôle non destructif de tous types de réacteurs. Il a l'avantage d'être détecté à travers les parois dans des milieux non accessibles pour les autres traceurs. La grande sensibilité des radiotraceurs permet de n'utiliser que quelques milligrammes de traceur pour suivre le processus de transformation de quelques tonnes de matériaux.

Le vocable "radioactif" n'est pas un frein à l'utilisation de cette technologie très performante. Toutes les applications ont été, en effet, réalisées dans des conditions de sécurité parfaite dans le cadre de la législation en vigueur. Les traceurs utilisés sont caractérisés par des périodes radioactives courtes (quelques dizaines d'heures ou quelques jours) ne conduisant pas à une contamination.

Le rapport coût/avantage est excellent. Un rapport moyen de 1 à 20 est acceptable pour la plupart des applications, allant jusqu'à plusieurs milliers dans quelques problèmes spécifiques de l'industrie du pétrole (2). Ces avantages placent le traceur radioactif en tête pour l'inspection des unités industrielles in situ. Dans les chantiers industriels, les radiotraceurs représentent 95 % des traceurs utilisés.

L'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) a promu dès le début le développement de la technologie des radiotraceurs dans les pays membres. Il y a plus de 50 équipes dans les pays en voie de développement possédant une infrastructure et une technicité bien établies dans ce domaine.

L'AIEA est engagée en permanence pour faciliter le transfert de la technologie des radiotraceurs dans les pays en voie de développement et la mettre au service de l'industrie. L'AIEA continue de jouer un rôle important pour propager l'information, pour former les spécialistes et pour élaborer des normes de radioprotection. Un projet de recherche appliquée pour l'amélioration de la méthodologie et la technologie des radiotraceurs fonctionne actuellement entre 12 groupes de spécialistes en radiotraceurs des pays développés et en voie de développement. L'AIEA assiste aussi, par le biais des projets de coopération technique, les pays en voie de développement débutant dans ce domaine afin de leur permettre d'implanter les techniques des radiotraceurs dans leurs secteurs industriels prioritaires. Le but est de créer et maintenir un service rentable pour résoudre les problèmes de l'industrie de pays, utiliser efficacement les ressources naturelles et réduire la pollution industrielle de l'environnement.

2. METHODOLOGIE ET TECHNOLOGIE DES TRACEURS RADIOACTIFS

La méthodologie des traceurs consiste en la mise en oeuvre expérimentale, l'acquisition de données, le traitement et l'interprétation, tandis que la technologie est liée plutôt au matériel pour l'exécution des expériences et au stockage, dépouillement et visualisation de l'information. Il y a une amélioration significative dans la méthodologie et la technologie des traceurs radioactifs grâce à l'énorme développement de logiciels (software) et matériels (hardware).

La notion de distribution des temps de séjour (DTS) est le concept de base applicable non seulement dans les réacteurs chimiques mais, dans un sens très large, elle s'applique à tous des écoulements de matière dans les unités industrielles (3). La courbe expérimentale de la DTS fournit les données de base pour diagnostiquer le fonctionnement des processus industriels. La DTS détient toute l'information essentielle sur l'hydrodynamique des systèmes.

L'organigramme de la figure 1 présente les étapes de l'étude par radiotraceur. Il est valable pour tous les traceurs. Ce schéma se rapporte au groupe de traceurs CEA français, notamment en ce qui concerne l'utilisation des logiciels commerciaux cités, mais la méthodologie est la même pour tout le monde: on essaie de simuler et de prédimensionner une expérience (souci d'optimisation des conditions de sécurité et de la qualité de la mesure) et on l'interprète du plus simple au plus compliquée en fonction de ce qui est demandé (4).

Divers logiciels sont développés pour analyser les systèmes basés sur la DTS expérimentale (5). L'analyse la plus simple est la détermination des moments et l'ajustement avec les modèles simples de mélange parfait ou de dispersion axial. On obtient des résultats intéressants surtout pour diagnostiquer les mauvais fonctionnements.

L'analyse plus avancée est celle de l'analyse du système de "boîte noire". L'art de cette analyse est très créatif. On utilise plutôt les logiciels commerciaux. Le logiciel DTS de Progepi est parmi les plus intéressants et les plus pratiques (6).

En plus des logiciels spécifiques et sophistiqués sont mis en jeu par les ingénieurs du génie chimique et les experts de la dynamique des fluides pour créer leurs modèles mathématiques d'analyse des systèmes complexes. Les modèles dressés par l'ordinateur ont besoin d'être validés et calés par des données expérimentales, comme celles fournies par les expériences de traceur, autrement ils restent de jolies photos d'imagination pure.

La notion de distribution des temps de séjour ainsi que d'autres aspects de la méthodologie sont les mêmes pour tous les traceurs; seule la technologie est différente suivant le traceur considéré. Il faut unifier la méthodologie des traceurs en tenant compte de son aspect universel et du fait que le traceur est seulement un outil pour visualiser le processus.

3. LES DOMAINES D'APPLICATIONS

Les traceurs radioactifs sont appliqués dans tous les secteurs industriels. Pour des raisons historiques et économiques, les applications les plus importantes sont dans les domaines du pétrole, de la pétrochimie, du traitement de minerais, et du traitement de l'eau.

Ces industries sont prioritaires dans beaucoup de pays développés ou en voie de développement. En général, dans ces industries il y a des unités industrielles de grande échelle travaillant en continu. Le bénéfice réalisé en diagnostiquant les processus sans perturber le milieu est énorme.

a. Industrie pétrolière

Les traceurs radioactifs s'appliquent en routine dans les raffineries de pétrole. Le cœur de raffineries est le Réacteur de Cracking Catalytique à lits fluidisés (FCC), dont la fonction est de transformer les composants lourds en d'autres plus légers. Le traceur radioactif est un outil de diagnostic sans équivalent en terme de sensibilité, de représentativité (marquage spécifique de la phase gaz ou de la phase catalyseur) et de qualité de la mesure pour l'obtention du DTS dans ces réacteurs.

Les traceurs radioactifs sont utilisés pour la récupération secondaire et tertiaire du pétrole dans les champs pétroliers, ainsi que pour la détermination de débit de production du pétrole dans des mélanges triphasiques entre le pétrole, l'eau et l'air. La détection des fuites dans les pipe-lines est aussi bien développée.

b. Pétrochimie

Les lignes de pétrochimie sont complexes et en général en continu. La transformation de la matière première dans les unités de pétrochimie est l'objet d'études par traceurs.

c. Traitement des minerais

Les usines de traitement de minerais jouent un rôle primordial dans beaucoup de pays en voie de développement. L'enrichissement des minerais est spécifique pour les différents minerais, mais les processus de base sont le broyage, la clarification, la flottation et l'homogénéisation. Ces processus agissent en deux phases (ou trois) et il est difficile de les contrôler. Les traceurs radioactifs sont efficaces pour comprendre le mécanisme du processus et pour les optimiser. L'industrie de traitement des minerais est un consommateur important d'énergie, et donc l'optimisation des paramètres de procédé entraîne une économie conséquente.

d. L'hydrodynamique des écoulements dans les bassins du traitement des eaux usées

Il est très important de connaître l'hydrodynamique de l'écoulement dans les bassins de traitements des eaux usées. Les modèles de la dynamique des fluides composés par simulation par ordinateur peuvent être calés et validés par traceur. Cette validation est la base pour améliorer la performance des unités de purification existantes et pour optimiser le profil des autres.

4. LE PROGRAMME DE COOPERATION TECHNIQUE DE L'AIEA

Les techniques et applications majeurs des radiotraceurs que l'AIEA développe dans les pays en voie de développement sont les suivantes :

- Le diagnostic et l'analyse des processus par la DTS

La courbe expérimentale de DTS donne très rapidement des informations clés sur les caractéristiques des écoulements et les éventuels dysfonctionnements.

- La mesure des débits et la calibration des débitmètres et des pompes

Le débit d'un écoulement gazeux, liquide ou solide en régime permanent est mesuré avec une erreur de 1-2 % dans les lignes ou il n'y a pas de débitmètre installé ou bien ils ne sont pas fiables à cause de la corrosion ou de l'entartrage. Les techniques par radiotraceurs appartiennent aux standards ISO. L'analyse de diverses pompes par traceur a montré que leurs capacités sont en général 30 % plus que nécessaires.

- La détection de fuites.

La grande sensibilité des traceurs radioactifs permet de détecter avec efficacité les fuites liquides ou gazeuses dans les conduits ou des échangeurs de chaleur. La technique permet d'estimer des fuites correspondant à moins de 0.1 % du débit total.

- Mélange et homogénéisation

L'estimation du temps et du degré de l'homogénéisation des matière premières dans les malaxeurs industriels sont très importantes en vue de mieux comprendre leur fonctionnement, surtout quand il s'agit de phases différentes. Les traceurs radioactifs offrent un choix élégant et pratique pour résoudre ce problème dans tous les secteurs industriels.

- Les traceurs dans les champs pétroliers

Les traceurs radioactifs donnent une information quantitative précise pour évaluer le bilan de pétrole dans les champs pétroliers. Le pompage de l'eau est utilisé souvent pour augmenter la récupération du pétrole. Les traceurs aident pour comprendre l'écoulement de l'eau et du pétrole dans les couches pétrolifères (7).

5. LES PROJETS DE RECHERCHE COORDONNEES

Un progrès considérable est fait pour implanter les radiotraceurs en pays en voie de développement. Le bénéfice économique est déjà démontré. C'est le moment de revaloriser et promouvoir le savoir-faire et de réformer la méthodologie et la technologie des traceurs. Les groupes de spécialistes en traceurs et les industriels ont besoin pour les techniques et applications standards, pour faciliter le transfert de la technologie.

Le Projet de Recherche Cordonnée (PRC) : "La technologie des radiotraceurs pour l'étude et optimisation des unités et processus industriels" est en cours.

Le but de ce PRC est :

- a) L'amélioration de la Technologie des Traceurs Radioactifs, y compris :
 - développement de traceurs radioactifs nouveaux mieux adaptés sur le terrain,
 - amélioration des systèmes d'injections de traceurs,
 - évaluation de nouveaux et plus efficaces détecteurs de radiations.

- b) Revalorisation et normalisation des logiciels d'acquisition, de stockage et de traitement des données, y compris :
 - développement des systèmes "experts" pour le dimensionnement d'une expérience,
 - définition et détermination du "volume sensible de détection",
 - intercomparaison des logiciels pour le traitement des données,
 - utilisation des codes maillés pour la visualisation des fluides,
 - vérification et validation par traceur des modèles informatiques pour les systèmes complexes.

- c) L'édition de manuels pour les techniques et applications plus importantes permettant de résoudre les problèmes de l'industrie, y compris :
 - applications aux champs pétroliers,
 - applications aux réacteurs catalytiques à lits fluides,
 - applications aux unités de broyage, de flottation et d'homogénéisation des minerais,
 - applications aux tours de préchauffages et cyclones,
 - applications aux écoulements des phases liquides, solides et gazeuses dans les précipiteurs industriels,
 - applications à la modélisation des écoulements dans les unités de stations d'épurations (décanteur, boues activées, ...),
 - applications aux problèmes de cristallisation.

6. CONCLUSION

La coopération internationale dans ce domaine est importante. C'est le moment de perfectionner la méthodologie et la technologie des radiotraceurs, d'uniformiser les techniques et logiciels en suivant le modèle de la médecine nucléaire. La technologie des radiotraceurs peut devenir efficace seulement si les spécialistes des traceurs et les spécialistes de l'industrie travaillent ensemble.

Les spécialistes de l'industrie doivent avoir confiance dans les avantages et la sûreté des radiotraceurs. Pour créer cette confiance notamment dans le climat peu favorable au nucléaire actuel, l'échange d'informations est important. Aucun accident ne s'est produit jusqu'à présent à la suite de l'utilisation de radiotraceurs. Les avantages de cette méthode sont évidents et les applications en progrès continus. On compte plus de mille applications des radiotraceurs par an entraînant une économie de quelques dizaines de million de dollars.

L'expérience unique de la Section d'Application des Traceurs de Grenoble en recherche et développement est valable pour tous les groupes travaillant sur les traceurs radioactifs dans le monde entier.

Le travail avec le traceur est tout d'abord un travail expérimental et tous les efforts doivent être concentrés afin d'obtenir les données fiables et représentatives. Le traitement et l'interprétation des données expérimentales peuvent être réalisés avec différent degré de complexité par les experts en traceurs ou leurs collègues de l'industrie.

Le progrès en matériels et logiciels est important et rapide, créant la possibilité d'utiliser plusieurs outils pour trouver la réponse la mieux adaptée à la résolution d'un problème concret. Les données expérimentales obtenues à l'aide des traceurs sont primordiales et les résultats sont indépendants du logiciel.

Aujourd'hui la tendance est d'utiliser ou d'adapter les logiciels commerciaux (d'EXCEL aux codes des mécaniques des fluides (CFD) ou les codes Monte Carlo). L'amélioration des logiciels DTS continue à être valable pour l'analyse des cas concrets.

La DTS Progepi est un logiciel de choix pour la plupart des applications des traceurs, pour l'analyse et le diagnostic des processus industriels. Ce logiciel peut devenir un logiciel standard pour les traceurs radioactifs aussi, s'il inclut la formulation de la DTS expérimentale obtenue par traceur radioactif, et d'autres modèles simples d'écoulements que l'on rencontre dans la pratique industrielle.

La tomographie d'émission en temps réel (par traceur) est une méthode très prometteuse pour visualiser la dynamique de la matière dans les unités de processus industriels. Le diagnostic radioisotopique industriel est en train de suivre le modèle du développement du diagnostic radioisotopique médical.

Références bibliographiques :

1. Guizerix J. - Guidebook on Radioisotope Tracers in Industry, Technical Reports Series No.316, IAEA, Vienna, 1990
2. Chariton J. - Emerging New Applications of Radiotracers in Industry, IAEA, CM Report, 3-6 June 1997, p.1-10
3. Villiermaux J. - Génie de la réaction chimique. Conception et fonctionnement des réacteurs. Lavoisier Tec. et Doc., 2e ed., Paris, 1993.
4. Vitart X. - 1st RCM of CRP F2.20.30 report, 20-22 April 1998
5. Thyn J., Zitny R. - Residence Time Distribution Software Analysis, Computer Manual Series No.11, IAEA, 1996.
6. Leclerc J-P. et al. - Logiciel D.T.S. , SYSMATEC- PROGEPI, Nancy 1991
7. B. Zemel. - Tracers in oil field. Elsevier Science, New York, 1995

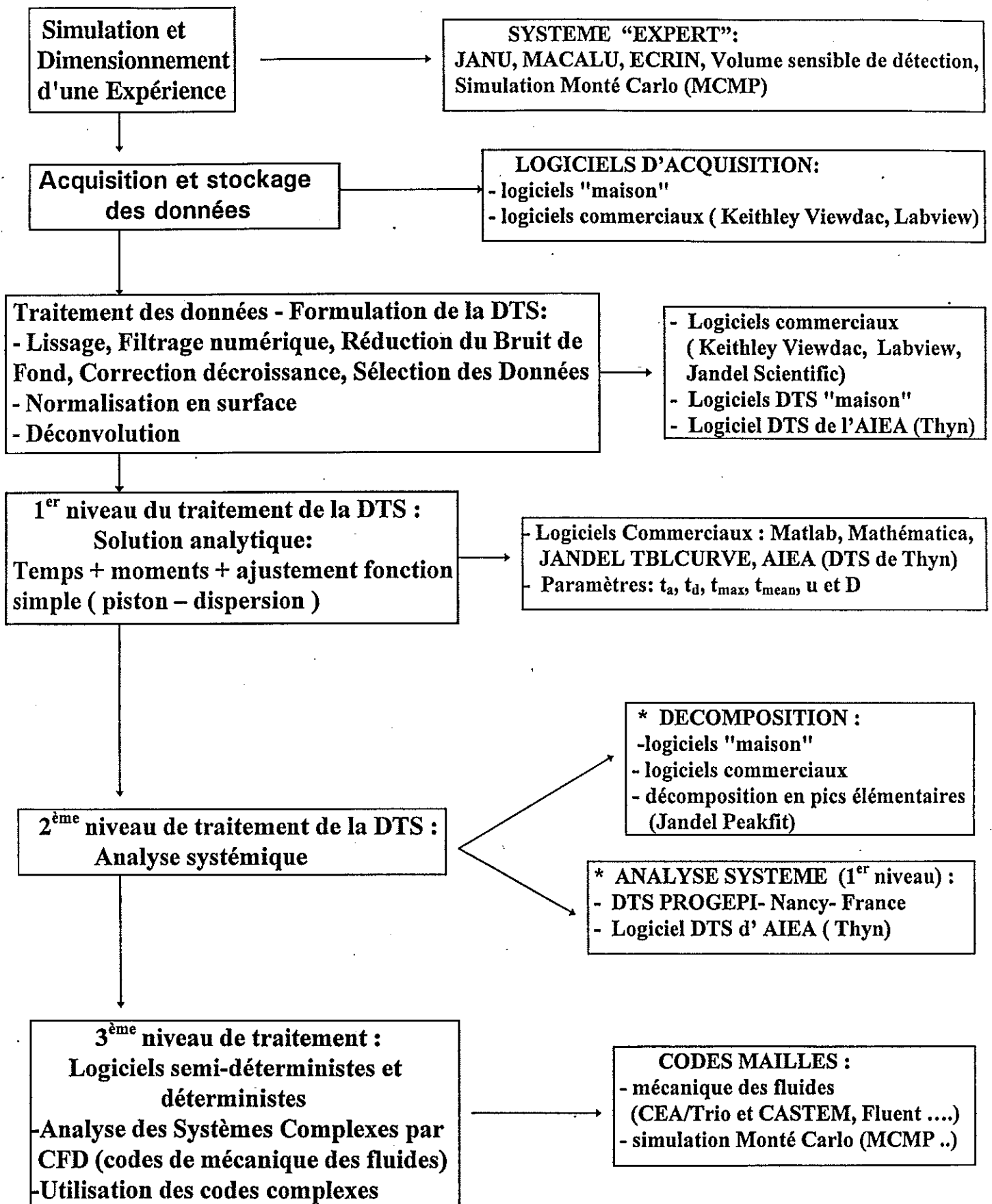


FIGURE 1 . - L'ORGANIGRAMME DES ETAPES DE L'ETUDE PAR RADIOTRACEUR

RECENTS DEVELOPPEMENTS EN METHODOLOGIE DU TRACAGE RADIOACTIF

V. BLET, Ph. BERNE, Ch. CHAUSSY, F. TOLA, X. VITART

<> CEA - DAMRI/SAR/SAT
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX 9

Résumé

L'état actuel des développements en méthodologie du traçage radioactif est présenté dans trois domaines : la modélisation de l'injection du traceur et de la chaîne de réponse nucléaire, la comparaison des approches systémique et mécanique des fluides numérique et enfin l'imagerie bidimensionnelle des flux de traceur. Des exemples illustrant ces développements sont donnés afin d'en souligner les intérêts potentiels.

I. INTRODUCTION

Parmi la large gamme de traceurs, les radioisotopes présentent des avantages uniques tels que leur spécificité, sélectivité et faible limite de détection. Les applications classiques, telles que les mesures de Distribution des Temps de Séjour, sont depuis longtemps bien maîtrisées et l'utilisation des radioisotopes s'est désormais généralisée à toutes les branches du Génie des Procédés. Cependant, les progrès scientifiques et technologiques (particulièrement en informatique) de ces dernières années suscitent de nouvelles avancées tant méthodologiques qu'au niveau de l'interprétation des expériences de traçage radioactif. Par exemple, l'usage de la tomographie (1,2) ou du suivi de particule (3) se répand de plus en plus dans le domaine du Génie Chimique. L'analyse de cette évolution nous a amené à lancer un programme de R&D basé sur trois axes fondamentaux :

- ⇒ une recherche de base sur la méthodologie du traçage, de la modélisation de l'hydrodynamique du système (traceur - phase étudiée) à celle de la réponse des détecteurs nucléaires utilisés afin d'affiner l'interprétation des expériences de traçage,
- ⇒ une recherche plus fondamentale en Génie des Procédés avec la comparaison des approches systémique et numérique et la recherche d'une certaine unification en vue de bénéficier des avantages des deux, mais aussi l'étude de systèmes particuliers (contacteurs gaz-liquide-solide, ségrégation de particules solides...)
- ⇒ le développement et l'application de techniques d'imagerie bidimensionnelle pour la visualisation des champs de concentrations en traceur.

II. METHODOLOGIE DU TRACAGE RADIOACTIF

Les principes de base d'une « bonne » expérience de traçage sont bien connus (4). Cependant, un des problèmes majeurs dans l'interprétation de ce type d'expérience

réside dans l'évaluation correcte de l'incertitude de mesure inhérente à la technique elle-même. A ce niveau, le problème peut se réduire à deux questions (si l'on excepte la question de représentativité du traceur, non traitée ici).

- Quelle est l'influence d'une plus ou moins bonne injection du traceur sur sa longueur de bon mélange ? (question d'intérêt pour tout type de traceur),
- Quelle est la déformation spécifique due à la chaîne de détection nucléaire sur le signal purement hydrodynamique ?

II.1 Longueur de bon mélange

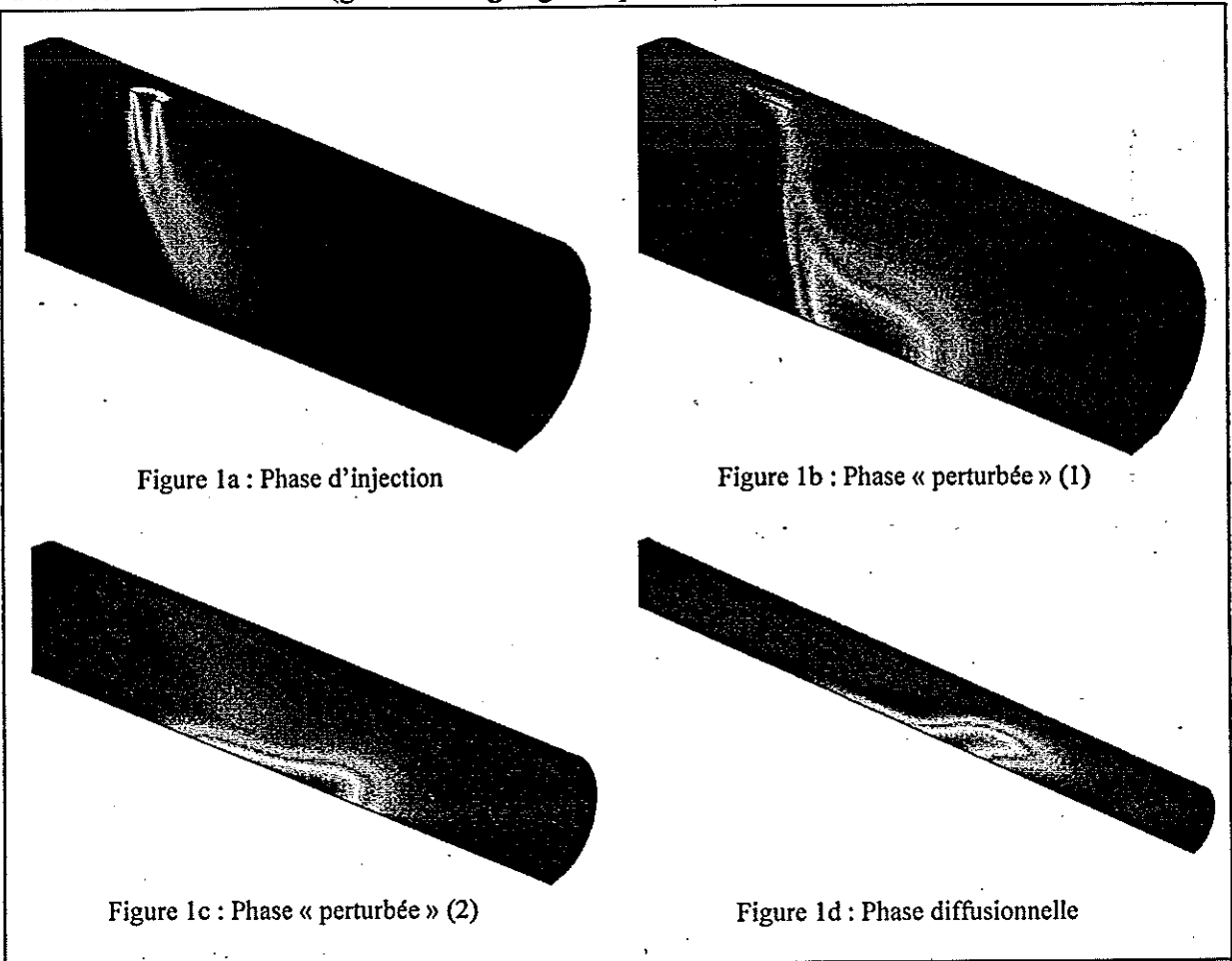
Pour être correctement interprétée, une expérience de traçage nécessite le bon mélange du traceur au sein de la phase étudiée ou, au moins, de connaître son état de mélange. Cette notion est quantifiée par la longueur de mélange, définie pour les écoulements en conduite, comme la distance à partir de laquelle la variation de $c_\infty = \int_0^\infty c(t)dt$ sur une section de la conduite, où c désigne la concentration en traceur et t le temps, est plus petite qu'une valeur choisie à l'avance (5). La Mécanique des Fluides Numérique (MFN) est un outil particulièrement indiqué pour déterminer cette longueur dans la mesure où elle peut rendre compte à la fois de l'hydrodynamique de la phase étudiée et de l'injection du traceur. Nous avons donc testé cette approche en paramétrant simplement l'injection (en localisation, débit et temps) et en utilisant CASTEM 2000, un code aux éléments finis développé par le CEA, qui permet le maillage non structuré de formes complexes. Ces choix sont dictés par le fait que les systèmes d'injection sont souvent de géométrie compliquée ou mal connue car développés par les utilisateurs. Les premiers tests ont concerné la résolution en 2D ou 3D des équations de Navier Stokes pour des écoulements turbulents de liquide newtonien incompressible. La turbulence est représentée par le modèle standard $k-\varepsilon$ et les couches limites sont décrites par une fonction de paroi logarithmique. La validation de ces calculs s'est faite par étapes successives :

- Dans un premier temps, nous avons simulé des flux turbulents (Re entre $5 \cdot 10^4$ et 10^6) en 2D. La forme et la taille du maillage ont été optimisés et les profils calculés de vitesse et de viscosité turbulente résultants sont en très bon accord avec les résultats théoriques et expérimentaux (6).

- Bien qu'il n'y ait que peu de résultats sur la longueur de bon mélange dans la littérature, la norme AFNOR (5) donne quelques formules théoriques pour différents profils de vitesse et de coefficient de diffusion turbulente et en fonction du type central ou annulaire de l'injection. Bien qu'elles sous-estiment nettement les longueurs observées expérimentalement (vraisemblablement à cause d'une modélisation trop simple de l'injection), ces longueurs de mélange théoriques sont tout à fait en accord avec celles calculées par CASTEM 2000, plus particulièrement lorsqu'un maillage 3D est utilisé.

- La dernière étape a consisté à construire un modèle réaliste d'injection d'un traceur perpendiculairement à un liquide (eau dans cet exemple) en écoulement dans une conduite cylindrique. Dans cette configuration 3D, les calculs ont été divisés selon 3 étapes ; dans la première on calcule à la fois les flux d'injection et du liquide en écoulement (figure 1a), dans la suivante, l'injection est stoppée et on calcule la propagation de la perturbation dans le fluide vecteur (figure 1b-c), enfin dans la dernière, l'écoulement du fluide et de son traceur est complètement développé (figure 1d). Nous avons testé la consistance numérique et physique des calculs mais leur

validation expérimentale reste à effectuer ainsi que l'extension de ces simulations à d'autres fluides vecteurs (gaz - mélanges gaz-liquide....)



II.2 Modélisation de la chaîne de détection nucléaire

Le prolongement naturel des calculs précédents consiste à suivre le nuage de traceur dans le fluide vecteur et à prédire ainsi son champ de concentration à chaque instant. Il est alors important de pouvoir relier ces champs aux signaux enregistrés par les détecteurs nucléaires. En fait, les traceurs radioactifs les plus communément utilisés en Génie des Procédés étant des émetteurs γ , ils subissent de multiples interactions (avec le fluide lui-même, les parois du réacteur, les différents écrans, le collimateur...) avant d'atteindre le détecteur composé d'un cristal scintillant (en NaI(Tl)) et d'un photomultiplicateur. L'importance de ces interactions dépend de l'énergie du photon émis mais aussi de la nature (densité et composition chimique) des matériaux rencontrés.

La relation reliant un signal détecté à la concentration du traceur n'est donc pas directe, le problème étant de représenter correctement l'ensemble des interactions. Pour ce faire, nous avons choisi de simuler l'ensemble des effets possibles : photoélectrique, Rayleigh, Compton, création de paires, fluorescence X, par la méthode de Monte Carlo et en accélérant les calculs soit selon des considérations géométriques de symétrie soit par la génération de photons déterministes suivant la fonction de probabilité de déviation de Klein et Nishina (7). L'accord entre l'expérience et les résultats de simulation est excellent quels que soient les milieux (eau, air), les énergies (^{137}Cs et ^{60}Co) et les géométries de détection (figure 2) sans avoir à requérir le moindre paramètre d'ajustement. A ce stade, il est maintenant possible de tester numériquement et

d'optimiser a priori le traceur et la configuration de détection en fonction des buts recherchés (par exemple un volume de détection déterminé).

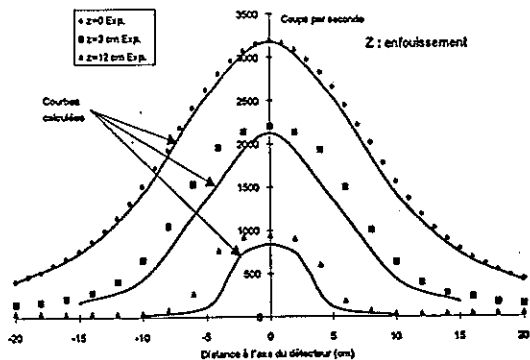


Figure 2 : Validation des simulations d'interactions photons-matière

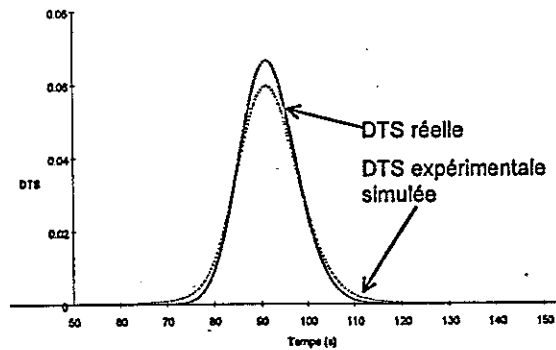


Figure 3 : Effet de la détection sur un signal réel.

D'un autre côté, il est aussi possible de corriger les signaux bruts enregistrés par les détecteurs pour accéder à l'écoulement réel de la phase étudiée. A titre d'exemple, la figure 3 montre que la distorsion d'un signal réel (simulé par un écoulement Piston-dispersion) par une sonde nucléaire peut être importante. Néanmoins, des travaux en cours indiquent que la déconvolution des signaux amont et aval, permettant d'obtenir la fonction de transfert locale dans le réacteur testé, « gomme l'effet nucléaire ».

III. RECHERCHE FONDAMENTALE EN GENIE DES PROCÉDES

III.1 Comparaison des approches systémique et numérique

A l'heure actuelle, deux méthodes peuvent être utilisées pour l'étude des systèmes complexes : soit l'analyse systémique, soit la MFN. Les avantages et limitations des deux sont bien connus : en gros, l'analyse système est simple à mettre en oeuvre au contraire de la MFN, par essence la MFN est prédictive au contraire de l'analyse système, la MFN présente des limitations lorsque l'hydrodynamique et les interactions physico-chimiques sont fortement couplées. Néanmoins, des similarités dans la description fondamentale des modèles (réacteurs agités, volumes finis où les propriétés restent constantes) nous font penser que ces approches doivent être plus complémentaires qu'antagonistes. La question posée est de déterminer s'il peut exister une dégénérescence optimale du maillage, quel que soit le type d'écoulement simulé, telle que, à ce niveau, la MFN apparaisse comme un outil de description qualitative permettant la construction d'un modèle systémique suffisamment détaillé. Les exemples suivants illustrent cette idée.

Des expériences de traçage radioactif ont été effectuées lors de l'étude d'un réacteur de cristallisation alimenté à contre-courant de gaz froid et chaud, l'interaction des deux générant des particules solides. Chaque flux gazeux a été marqué et détecté à travers les parois du réacteur par un nombre de détecteurs nucléaires suffisant pour construire un modèle système relativement détaillé (figure 4). Parallèlement, des calculs ont été conduits avec CASTEM 2000 en régime turbulent (modèle standard k- ϵ) et en 2D. Les effets thermiques, en particulier lors du changement de phase gaz-solide, ont été pris en compte mais pas le comportement spécifique du solide ; les particules sont supposées être suffisamment petites pour être entraînées par le gaz chaud. L'accord qualitatif de représentation des champs de vitesses massiques entre ces deux approches

est assez remarquable ; l'analyse système détecte les structures principales des écoulements tandis que la MFN les identifie et les localise.

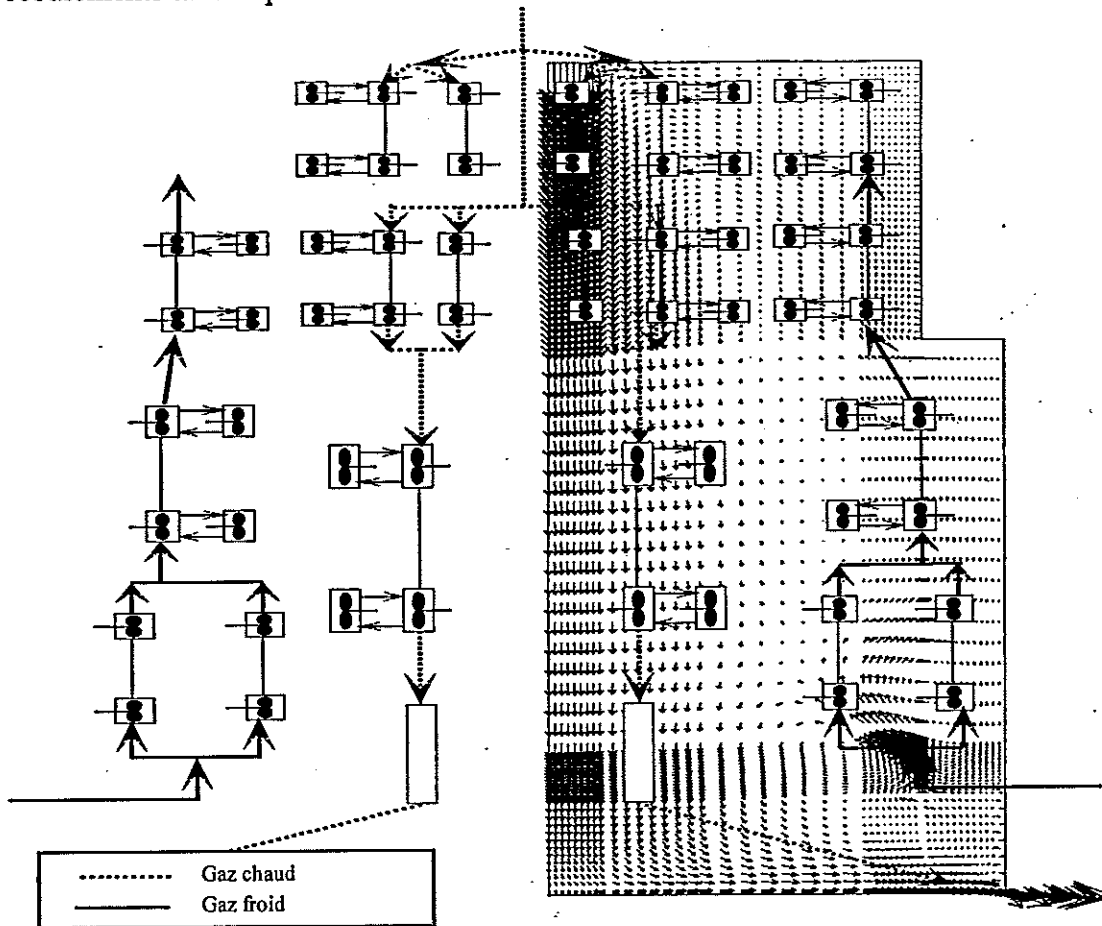


Figure 4 : Comparaison entre l'analyse système et la MFN dans le cas d'un cristalliseur.

Une seconde comparaison des approches a pu être effectuée lors de l'étude de la ventilation d'une pièce de géométrie assez simple (8). Des expériences de traçage ont été opérées avec 6 détecteurs et ont permis d'élaborer un modèle « système » décrivant assez correctement les Distributions d'Âges Internes observées expérimentalement (figure 5a). Parallèlement des calculs de MFN ont été effectués à l'aide de TRIO VF (code aux volumes finis développé par le CEA). Là encore, l'accord entre l'expérience et les deux approches numérique et systémique est assez remarquable (figure 5b).

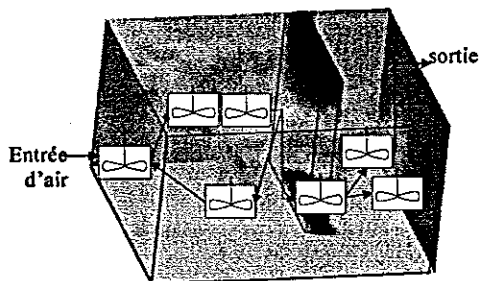


Figure 5a : Représentation des modèles

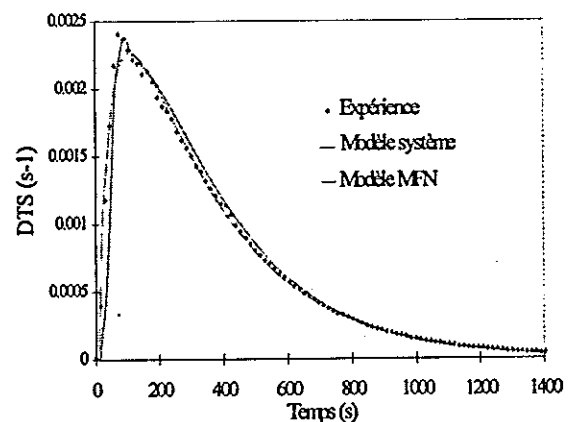


Figure 5b : Comparaison des approches

III.2 Procédés fondamentaux du génie des procédés

L'utilisation des radioisotopes permet l'étude à une échelle locale (au sens du génie des procédés) des systèmes gaz et/ou liquide et/ou solide. Les exemples ci-après illustrent cette potentialité.

Le traçage simultané des phases gazeuse et liquide a été opéré lors de l'étude d'une colonne à garnissage fonctionnant à contre courant de gaz et de liquide (9). Des détecteurs placés à différents niveaux de cette colonne ont permis non seulement de s'assurer de la quasi absence de maldistributions radiales des flux mais aussi de critiquer l'emploi des modèles diffusifs pour représenter les écoulements. Sous réserve qu'ils puissent, néanmoins, être appliqués, les figures 6a et 6b illustrent les variations des nombres de Peclet gaz (Pe_g) et liquide (Pe_l) en fonction des nombres de Reynolds correspondants (Re_g ou Re_l) obtenus pour ce contacteur particulier.

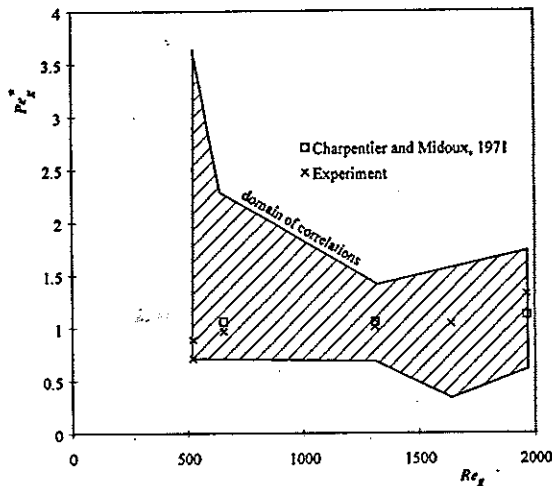


Figure 6a : Variations de Pe_g en fonction de Re_g

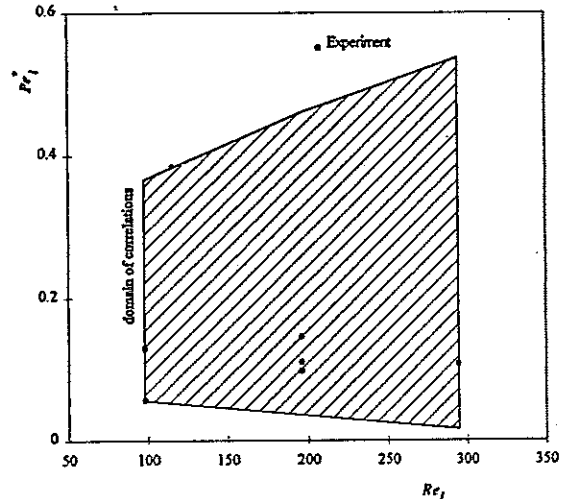


Figure 6b : Variations de Pe_l en fonction de Re_l

Un autre exemple concerne l'étude de la ségrégation de particules solides ($\rho = 1400 \text{ kg/m}^3$) dans un fluide très visqueux ($\rho = 1960 \text{ kg/m}^3$, $\eta = 1.88 \text{ Pa.s}$). Le traçage simultané des deux phases favorise l'observation soit des plus petites particules (cf. § IV) soit des plus grosses (traçage de la phase liquide). Dans ce dernier cas, des détecteurs placés à différents niveaux du conteneur ont permis de suivre l'évolution du mélange liquide-particules solides au cours du temps (figure 7).

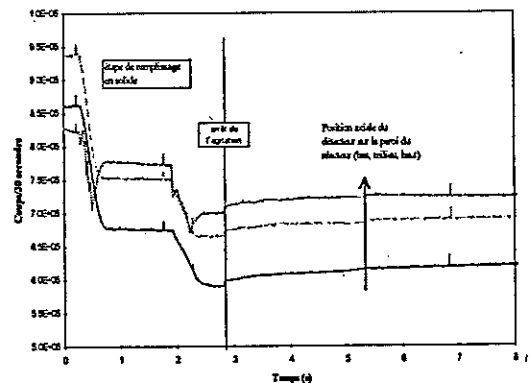


Figure 7 : Suivi de la ségrégation des particules solides dans un liquide visqueux

Des expérimentations opérées à différentes concentrations de solide prouvent que l'hétérogénéité de la ségrégation est en fait liée à la mauvaise homogénéisation des mélanges initiaux. Elles permettent aussi d'extrapoler les travaux de Richardson et Zaki (10) à ces conditions.

IV. L'IMAGERIE BIDIMENSIONNELLE

Les mesures précédentes sont, par nature, moyennées sur des volumes de détection définis par l'expérimentateur. Ce dernier a souvent besoin de mesures de concentration plus locales. La Tomographie d'Emission de Photons γ (TEP) permet de

répondre à ce besoin (2). Cette technique est, à l'heure actuelle, testée en configuration industrielle pour détecter des maldistributions de flux gazeux ou liquide.

De la même manière, la γ -caméra permet d'obtenir directement l'image 2D de la répartition du traceur, ce qui peut s'avérer particulièrement intéressant pour l'étude de certains réacteurs (11) ou pour la mesure de la vitesse de ségrégation de particules solides dans des fluides visqueux (figure 8). Néanmoins, la transformation des données brutes exprimées en « coups/seconde » en concentration par pixel nécessite, de la même manière que la TEP, une étape de modélisation des interactions photons -matière, qui peut se simplifier dans la mesure où seules les interactions photoélectriques sont prises en compte.

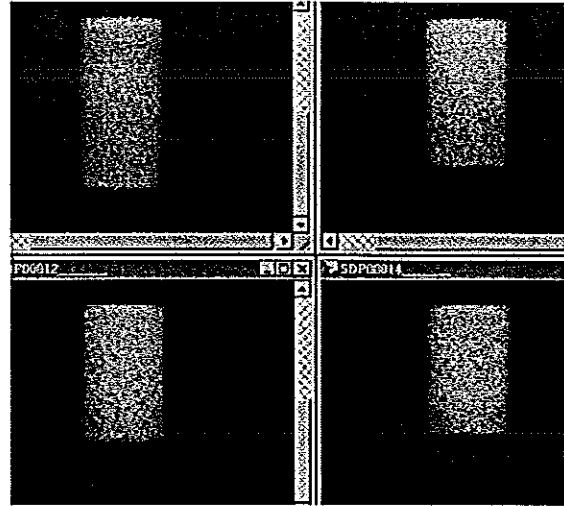


Figure 8 : Répartition 2D des particules tracées dans un liquide visqueux à différents instants (cf. § III.2)

V. CONCLUSIONS

Il est probable que l'utilisation des radiotraceurs dans les prochaines années sera de plus en plus restreinte à des applications très pointues, pour lesquelles n'existent pas d'autres techniques d'investigations. En ce sens, les enseignements donnés par ces expériences devront être aussi complets et fins que possible. C'est dans cette optique que nous concentrons nos efforts sur les trois axes de R&D présentés ici.

REFERENCES

- (1) Kumar S.B., Moslemian D. and Dudukovic M.P., Gas-holdup measurements in bubble columns using computed tomography, *AIChE J.*, **43**, 1414-1425 (1997)
- (2) Legoupil S., Tomographie d'émission γ à partir d'un nombre limité de détecteurs, appliquée à la visualisation d'écoulements, Thèse de l'Université de Caen (1997)
- (3) Kiared K., Larachi F. et Chaouki J., Velocimétrie 3D à émission de rayons γ : récents progrès dans le traçage non destructif des mouvements granulaires, ce numéro.
- (4) International Atomic Energy Agency, « Guidebook on Radioisotope Tracers in Industry, » Technical Reports Series n° 316, Vienne (1990)
- (5) AFNOR, Mesure de débit des fluides - Conduites fermées, Recueil des Normes Françaises, NF X 10-131, 7 (1983)
- (6) Benet L.V., Modélisation d'écoulements en conduite fermée. Evaluation de la longueur de bon mélange, Rapport CEA/DRN/DMT 97/613 (1997)
- (7) Tola F., Ecrin, code Monte-Carlo de simulation de la réponse d'un détecteur à un mélange de traceurs radioactifs uniformément distribués dans une conduite cylindrique, Rapport CEA/DTA/DAMRI/SAR/ 96-111/T40 (1996)
- (8) Berne Ph. et Blet V., Assessment of the systemic approach using radioactive tracers and CFD, Proceedings of Roomvent'98, Stockholm (1998)
- (9) Blet V., Berne Ph., Chaussy C., Perrin S. and Schweich D., Characterization of a packed column using radioactive tracers, submitted to *Chem. Engng Sci.*
- (10) Smith T.N., A model of settling velocity, *Chem. Engng. Sci.*, **53**, 315-323 (1998).
- (11) Blet V., Berne Ph., Forissier M., Ladet O., Pitault I. et Schweich D., Apport de la γ -caméra à l'étude d'un réacteur agité triphasique de laboratoire, ce numéro.

VELOCIMETRIE 3D A EMISSION DE RAYONS γ : RECENTS PROGRES DANS LE TRACAGE NON DESTRUCTIF DES MOUVEMENTS GRANULAIRES

F. LARACHI

<> Université LAVAL
Dpt Génie Chimique & CERPIC
Canada - Sainte-Foy G1K 7P4

J. CHAOUKI

<> Centre de Recherche BIOPRO - Dpt Génie Chimique
Ecole Polytechnique
C.P. 6079 - Succ. "Centre Ville"
Canada - MONTREAL PQ - H3C 3A7

Résumé

Nous discutons quelques applications de la vélocimétrie à émission de rayons γ (RPT) au traçage non-destructif d'une phase granulaire en géométrie tridimensionnelle de taille laboratoire. L'application de cette technique à la qualification/quantification de l'écoulement du solide est illustrée dans le cas des lits : à jet gaz-solide, fluidisé liquide, fluidisé gaz-liquide-solide, fluidisé circulant et turbulent gaz-solide. Ces cinq exemples illustrent la vaste gamme de vitesses de particules qui peut être mesurée par cette technique, de 0 à 6000 mm/s (écoulement rapide) en un centième de seconde. Les exemples traités montrent que l'exubérance de l'information expérimentale fournie par cette technique permet d'accéder à une foule de caractéristiques de l'écoulement granulaire comme les champs de turbulence, de vitesse, de contrainte de cisaillement, de coefficients de turbulence, de distributions de temps de séjour, de temps et de longueurs de circulation, de la dynamique de mélange, pour ne citer que quelques exemples.

I. INTRODUCTION

Depuis quelques années, des développements métrologiques importants dans des domaines comme la médecine nucléaire, la physique ou la mécanique des fluides ont suscité auprès de la communauté du génie chimique un intérêt grandissant dans l'innovation et l'application de techniques non-intrusives aux réacteurs chimiques polyphasiques (1,2). Les tomographies à transmission de rayons X ou de rayons γ , à émission de positons ou de neutrons sont parmi les techniques d'imagerie les plus répandues pour aller chercher des informations topographiques d'un champ d'écoulement hétérogène, ou dynamiques lorsque l'écoulement polyphasique évolue lentement. Malheureusement, lors d'écoulements rapides, les techniques précédentes sont incapables de fournir l'information vélocimétrique requise.

Dans cette communication, nous faisons le point sur les possibilités offertes par la vélocimétrie à émission de rayons γ lors du traçage non-destructif du mouvement tridimensionnel des solides particuliers dans quelques contacteurs polyphasiques granulaires notamment dans le cas des mouvements rapides. Cette technique connue sous les acronymes anglais CARPT (*computer-aided radioactive particle tracking*), ou tout simplement RPT (*radioactive particle tracking*), permet de mesurer à haute cadence et sans interférence avec l'écoulement, les coordonnées Lagrangiennes d'un mouchar

(ou espion) radioactif jouissant de propriétés semblables à celles de la phase granulaire à tracer présente dans le réacteur. La mesure est fournie par un réseau de détecteurs à scintillation qui ceinturent stratégiquement le pourtour du champ à visualiser. Le mouchard, qui se meut au gré de l'écoulement, contient un matériau radioactif dont la désintégration spontanée libère des rayons γ durs qui traversent le champ à visualiser pour stimuler les détecteurs. Le nombre de rayons γ qui frappent chaque détecteur est une fonction complexe de la position du mouchard, de l'orientation du contacteur granulaire et du détecteur dans l'angle solide sous-tendu par le traceur et la surface irradiée du détecteur.

II. TECHNIQUE DE MESURE

La technique RPT emploie des isotopes artificiels à noyaux déficients en protons qui en se désintégrant, émettent spontanément des négatons (β^-) et des rayons γ . Les négatons perdent rapidement leur énergie quand ils rencontrent des obstacles. Ce sont plutôt les rayons γ qui, possédant des énergies caractéristiques non-négligeables, peuvent traverser des distances significatives au travers de milieux denses sans être totalement atténués. La détection de ces rayons est à la base de la technique RPT. Les radio-isotopes utilisés sont produits par capture neutronique dans un réacteur nucléaire type 'Slowpoke' d'un élément cible comme ^{46}Sc , ^{198}Au , ^{99}Mo . Les caractéristiques essentielles de ces éléments sont résumées dans le Tableau 1.

Un schéma simplifié de l'arrangement des détecteurs du système RPT est montré dans la Figure 1. Une batterie de détecteurs à scintillation, ni collimatés ni blindés, est disposée stratégiquement autour du dispositif à étudier (le réacteur polyphasique en l'occurrence). Les détecteurs sont irradiés par l'émission de rayons γ d'un radio-isotope artificiel contenu dans un traceur qui évolue au gré de l'écoulement de la phase tracée dans le réacteur. Un nombre suffisant de tels événements détectés simultanément par l'ensemble des détecteurs pendant un court laps de temps permettra, moyennant une méthode de quadrature, de localiser à ce moment les coordonnées x, y, z du traceur. Seuls les rayons γ qui arrivent en ligne droite et qui sont intégralement absorbés (effet photoélectrique et diffusion Compton multiple) par les détecteurs, renseignent sur le lieu d'émission du rayonnement et donc sur l'emplacement du traceur (événements a, b). Les autres événements (c-e) sont inexploitable dans la localisation du traceur en raison de leur ambiguïté directionnelle.

Émis par le traceur (de radioactivité A) situé aux coordonnées $(x(t), y(t), z(t))$ dans le réacteur, le nombre de rayons γ utiles, C, enregistré pendant un court laps de temps, T, est relié au point d'émission par:

$$C(x(t), y(t), z(t)) = \frac{TvA\phi \int \frac{r \cdot n}{\Omega r^3} \exp(-\mu s)(1 - \exp(-\mu_D l)) d\Sigma}{1 + \tau v A \phi \int \frac{r \cdot n}{\Omega r^3} \exp(-\mu s)(1 - \exp(-\mu_D l)) d\Sigma} \quad (1)$$

où ϕ est la fraction du photopic, τ est le temps mort du système de comptage, v est le rendement par désintégration en rayons γ , Ω est l'angle solide vu par le traceur sur le détecteur, μ et μ_D sont respectivement les coefficients d'absorption linéaire totale du réacteur et du détecteur, les autres variables apparaissent dans la Figure 1. Le choix de la période d'échantillonnage n'est pas trivial, il est déterminé par un compromis entre la vitesse maximale suspectée dans l'écoulement, la statistique (Poissonienne) sur le nombre de rayons γ accumulés en T secondes, et l'énergie du rayonnement (1,2). L'inversion simultanée de l'intégrale de surface précédente pour tous les détecteurs

permet de calculer la position du traceur. La localisation n'est pas triviale, et les auteurs ont développé un modèle Monté Carlo qui permet entre autre de numériser dans un maillage dense du volume du réacteur les comptages des détecteurs pour des conditions opératoires données. Une discussion détaillée sur la méthode de reconstruction est disponible dans les références (1) et (2).

III. APPLICATIONS

La versatilité de la technique vélocimétrique sera illustrée par quelques exemples d'applications où des trajectoires Lagrangiennes du traceur seront mesurées non-destructivement dans : i) un lit à jet gaz-solide, ii) un lit fluidisé liquide, iii) un lit fluidisé triphasique, iv) un lit fluidisé circulant gaz-solide, v) puis un lit fluidisé turbulent gaz-solide. Ces trajectoires seront exploitées afin de dériver une multitude de propriétés d'écoulement granulaires intéressantes comme les distributions de temps de séjour, de circulation, de temps de mélange, de longueur de circulation, de coefficients de dispersion, de champs de vitesses et de turbulence Eulériens, etc.

III.1. Lit à jet

Le mouvement granulaire dans les lits à jet gaz-solide a fait l'objet d'une importante étude expérimentale dans des réacteurs à base conique contenant un empilement de billes de verre de 3 mm de diamètre à des hauteurs de lit et des vitesses de giclage de gaz correspondant à des fontaines développées, sous et surdéveloppées (3,4). Du ^{46}Sc , l'élément radioactif utilisé, a été mélangé sous forme Sc_2O_3 pulvérulent avec de la poudre de verre lors de la confection du traceur. Près d'un million de positions Lagrangiennes du traceur ont donc été saisies à une fréquence de 33 Hz sur plusieurs heures pour chaque type de fontaine. Pour une fontaine surdéveloppée, la Figure 2 montre le type de résultats extraits à partir de l'exploitation des trajectoires du traceur. (a) le patron de recirculation moyen des particules solides a une forme toroïdale évoluant dans le sens des aiguilles d'une montre du centre vers la paroi. Les mouvements moyens des solides sont pratiquement de type 1-D dans la zone cylindrique de l'anneau et dans le jet le joignant, ce mouvement est 2-D dans la zone conique et dans la fontaine où les mouvements radiaux peuvent être très importants. (b) La cartographie des temps de résidence par voxel montre que les particules séjournent très peu dans la fontaine. (c) Le champ Eulérien des vitesses axiales moyennes indique une nette discontinuité de vitesse à l'interface anneau-fontaine où le solide décélère de 1 m/s jusqu'à quelques cm/s. Le trait continu délimite le lieu d'inversion de vitesse axiale qui est une bonne indication de l'interface jet-anneau. Ainsi nous y voyons que le jet ne possède pas une section uniforme le long du réacteur, mais il s'élargit progressivement jusqu'à la fontaine. Toujours en représentant différemment les trajectoires mesurées, il est possible de déterminer les distributions de longueurs de circulation avec ou sans fontaine, ainsi que la distribution des temps de circulation (Figure 3a). Une autre information d'importance est la dynamique de mélange dans les trois directions : longitudinale, radiale et azimutale. Le temps de mélange est mesuré et correspond au moment où le centroïde du nuage de particules ne varie plus avec le temps (Figure 3b). Voir (1) pour plus de détails sur la génération des courbes de mélange.

III.2. Lits fluidisés liquide-solide et gaz-liquide-solide

Le déplacement de solides dans la zone développée d'un lit fluidisé liquide a été étudié pour deux types de particules : billes de verre (3 mm, masse volumique=2500 kg/m³, porosité=0.52, vitesse superficielle=6.5 cm/s) et particules hexagonale de chlorure de polyvinyle (PVC, 5.5 mm, masse volumique=1300 kg/m³, porosité=0.83,

vitesse superficielle=5.8 cm/s), une colonne en Plexiglas de 10 cm de diamètre et de l'eau (5). Comme en témoignent les profils radiaux des vitesses axiales de la Figure 4a, pour ces conditions expérimentales, les particules légères ont tendance à migrer vers le haut près de la paroi, tandis qu'elles circulent vers le bas dans la partie centrale du réacteur. Pour les billes de verre plus dense, on assiste à un comportement opposé (Figure 4a). Dans les deux cas, et comme on doit s'y attendre, il n'y a pas de déplacements advectifs radiaux. Cependant, il est instructif de noter que dans chaque cas les vitesses turbulentes axiales l'emportent sur leurs homologues radiales (Figure 4b).

Nous illustrons aussi les possibilités de la technique vélocimétrique à mesurer dans les systèmes à trois phases, par exemple un lit fluidisé gaz-liquide-solide, des propriétés turbulentes du solide comme les profils radiaux de coefficients de dispersion radiale et axiale pour différentes gammes de vitesses, différents régimes d'écoulement et diverses constitutions de la phase solide (Figure 5). Les coefficients de dispersion sont calculés comme les dérivées temporelles des déplacements quadratiques Lagrangiens moyens divisés par 2 (5). Ces coefficients augmentent en passant du régime à bulles dispersées au régime à bulles coalescées. Radialement, les coefficients de dispersion sont un facteur 10 plus faibles qu'axialement.

III.3. Lits fluidisés circulant et turbulent gaz-solide

Cette technique a permis de mesurer avec succès des champs de vitesse de solide dans des suspensions gaz-solide diluées à très haute vitesse dans la zone développée d'un lit fluidisé circulant (diamètre=82 mm, hauteur du riser=7m). Des vitesses instantanées de l'ordre de 5 à 6 m/s ont été détectées (7) pour une particule de 500 µm dopée avec du ¹⁹⁸Au et évoluant dans une suspension de silice dont les particules ont une taille de 150 µm. D'autres mesures des champs de vitesse et de turbulence du solide ont été effectuées récemment dans les lits fluidisés turbulents. Des comportements cinématiques inattendus ont été observés. Par exemple, le coefficient de dispersion longitudinale est une fonction i) quadratique de la distance dans le cœur et ii) linéaire de celle-ci dans l'anneau suggérant ainsi des cinématiques i) dispersive dans le cœur et ii) convective dans l'anneau, respectivement (8).

CONCLUSION

La RPT est une technique de mesure vélocimétrique en émergence et porteuse de beaucoup de promesses non seulement dans les procédés conventionnels du génie chimique, mais également dans d'autres domaines comme les polymères, les génies alimentaire et pharmaceutique où les écoulements hétérogènes peuvent être omniprésents. Dans cette communication, les auteurs ont tenté de montrer certaines possibilités de cette technique lors de mesures non-destructives du déplacement de particules dans quelques réacteurs comme les lits fluidisés et les lits à jet.

REFERENCES

- (1) Chaouki, J., Larachi, F., Duduković, M.P., Noninvasive monitoring of multiphase flows, Eds, Elsevier Science B.V., The Netherlands (1997)
- (2) Chaouki, J., Larachi, F., Duduković, M.P., Noninvasive tomographic and velocimetric monitoring of multiphase flows, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **36**, 4476 (1997)
- (3) Roy, D., Larachi, F., Legros, R., Chaouki, J., A study of solid behavior in spouted beds using 3-D particle tracking, *Can. J. Chem. Eng.*, **72**, 945-952 (1994)
- (4) Djeridane, T., Larachi, F., Roy, D., Chaouki, J., Legros, R., Investigation of the 3-D mean and turbulent particle velocity fields in a spouted bed, *Can. J. Chem. Eng.*, **76**, 190-195 (1998)
- (5) Kiared, K., Larachi, F., Cassanello, M., Chaouki, J., Flow structure of the solids in a 3-D liquid fluidized bed, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **36**, 4695-4704 (1997).
- (6) Kiared, K., Larachi, F., Chaouki, J., Guy, C., Particle velocity, turbulence and shear stress profiles in the fully developed region of a three-phase fluidized bed, *Chem. Eng. & Process.*, soumis (1998).

(7) Godfroy, L., Larachi, F., Chaouki, J., Kennedy, G., Position and velocity of a large particle in a gas/solid riser using the radioactive particle tracking technique, Can. J. Chem. Eng., soumis (1998).

(8) Mostoufi, N., Chaouki, J., Determination of the solids dispersivity in gas-solid fluidized beds using a radioactive particle tracking technique, session 73,48^{ème} Congrès Can. Génie chimique, London, Ontario, 4-7 octobre (1998).

Tableau 1 Propriétés des radio-isotopes utilisés par la RPT

Noyau	Préparation	SEA *	T _{1/2}	Noyau fille	Energie du γ (MeV) [†]
⁴⁶ Sc	⁴⁵ Sc(n, γ) ⁴⁶ Sc	10.	83.3 j	⁴⁶ Ti	1.12 & 0.89 (100%)
⁹⁹ Mo	⁹⁸ Mo(n, γ) ⁹⁹ Mo → ^{99m} Tc	0.13	63.7 h 6.03 h	^{99m} Tc	0.18 (8%), 0.74 (14%)
				⁹⁹ Tc	0.78 (5%), 0.14 (88%)
¹⁹⁸ Au	¹⁹⁷ Au(n, γ) ¹⁹⁸ Au	96.	2.69 j	¹⁹⁸ Hg	0.41 (96%)

†: % d'émission de rayons γ par désintégration; *section efficace d'activation, barn.

Figure 1 Schéma simplifié du dispositif de mesure RPT et périples typiques des rayons γ émis.

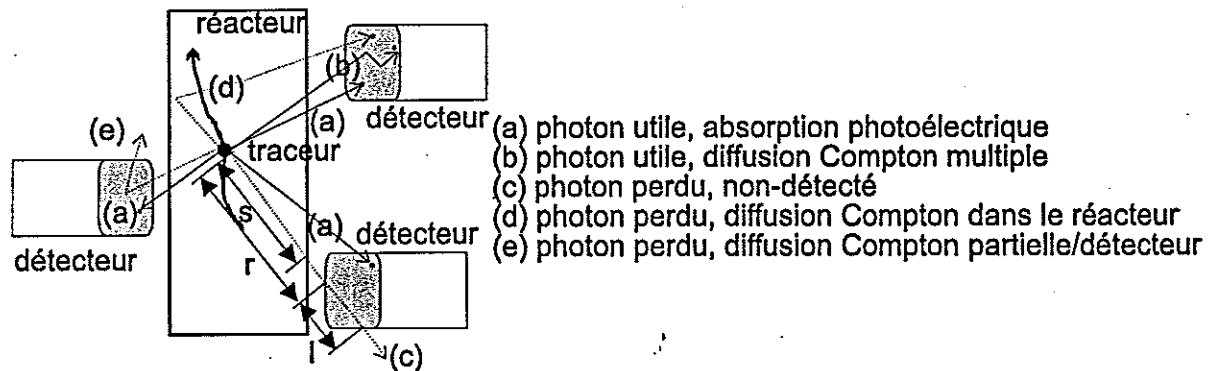


Figure 2 Champ de vitesse Eulerien moyen (a), contour des temps de résidence du tracer par voxel (b) et contour de la vitesse axiale moyenne de billes de verre de 3 mm dans un lit à jet à base conique (c), fontaine surdéveloppée.

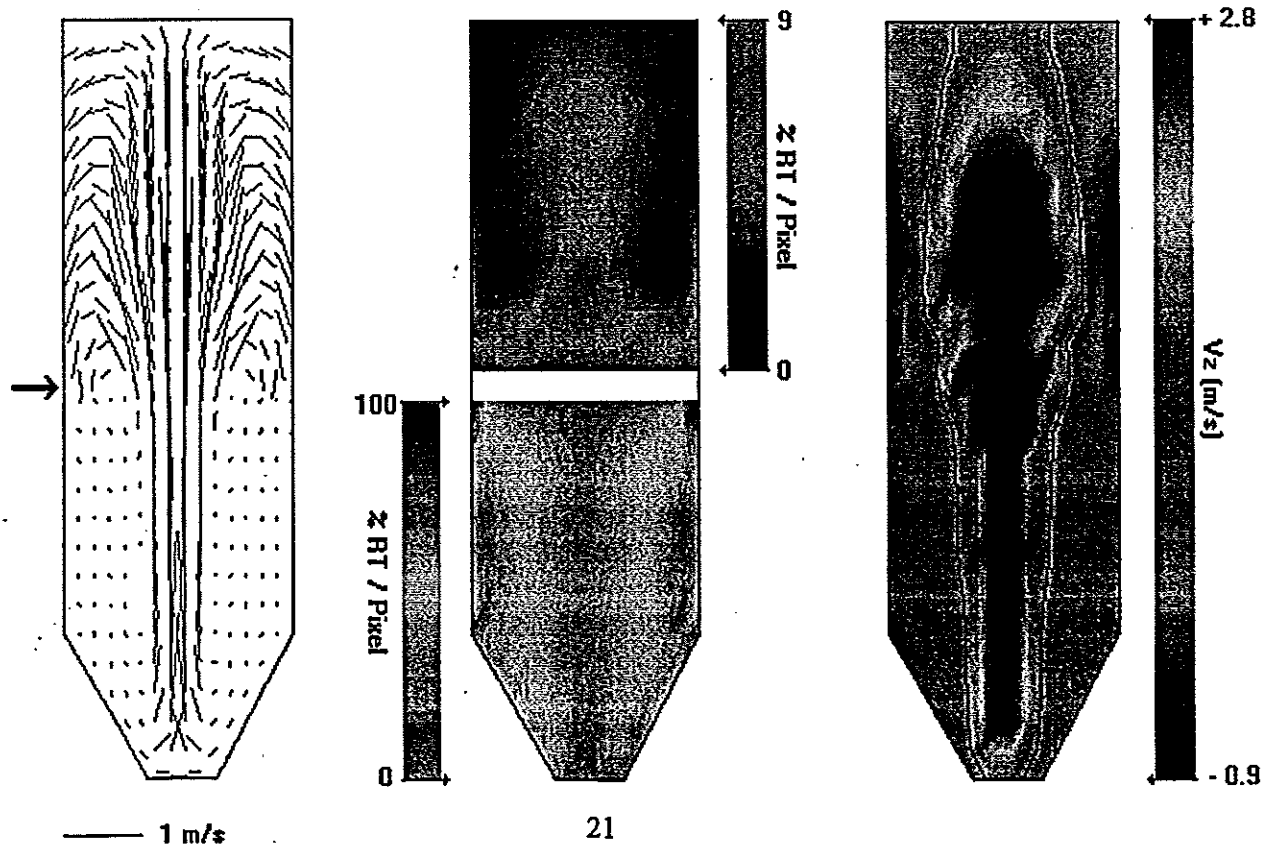


Figure 3 Distributions de longueurs de circulation avec et sans fontaine, distribution des temps de circulation (a), évolution dynamique des barycentres longitudinal, radial, azimutal d'un nuage de particule ($>10^4$) largué dans l'anneau de la zone cylindrique (b) dans un lit à jet à base conique.

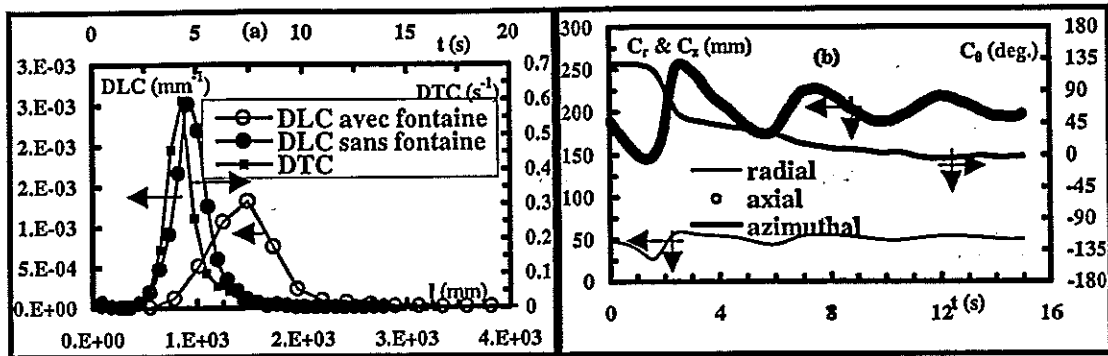


Figure 4 Profils radiaux des vitesses Eulériennes moyennes et turbulentes dans les directions radiale et axiale de billes de verre et d'hexagone de PVC dans la zone développée d'un lit fluidisé liquide.

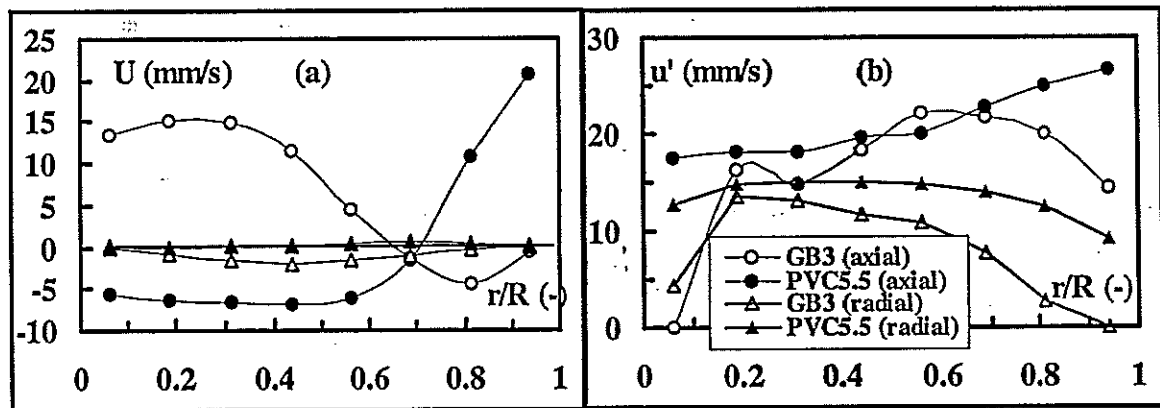
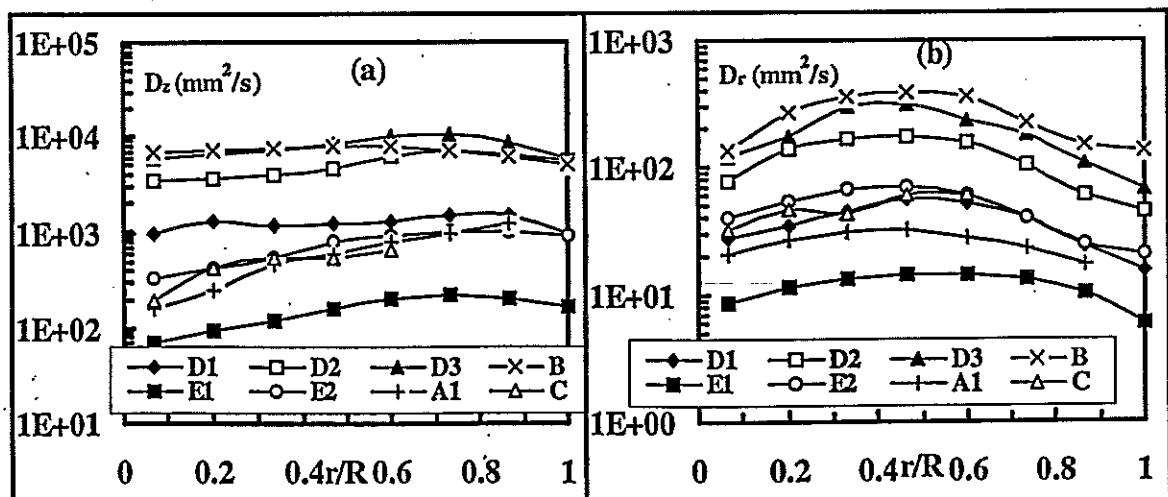


Figure 5 Profils radiaux des coefficients de dispersion axiale et radiale de billes de verre de 3 mm dans la zone développée d'un lit fluidisé triphasique pour différents régimes d'écoulement et de mélange binaires de particules. A₁, C & D₁; U_G=3.2 cm/s ; B & D₃; U_G=11 cm/s ; D₂; U_G=6.9 cm/s ; E₁; U_G=1.0 cm/s ; E₂; U_G=2.7 cm/s.



DEVELOPPEMENT D'UN DETECTEUR TEMPS REEL DE PARTICULES FLUORESCENTES. APPLICATION A LA CARACTERISATION DES TRANSFERTS DE POLLUANTS

C. PREVOST, J. VENDEL

<> IPSN - CEA Saclay

Bât. 383

91191 GIF s/YVETTE Cedex

A. SEIGNEUR

<> LETI-DTA - CEA

Dpt Electronique et Instrumentation

91191 GIF s/YVETTE Cedex

RESUME

Les compteurs optiques de particules disponibles aujourd'hui sont basés sur la diffusion de lumière par ces particules ; ils ne permettent donc leur différenciation que par la taille. Les techniques de traçage particulaire, notamment dans le domaine de la caractérisation des ventilations, requièrent des dispositifs de détection plus spécifiques.

La propriété de fluorescence dont on peut doter un aérosol liquide est mise en oeuvre dans une nouvelle technique permettant le comptage en temps réel et en continu de tels aérosols.

Les données acquises au cours de cette étude démontrent l'aptitude d'un tel dispositif pour la détection en continu et en temps réel d'aérosols fluorescents. Dans les études par traçage particulaire, cette technique de détection spécifique permet de s'affranchir de la présence des aérosols ambiants.

I. INTRODUCTION

Les aérosols marqués artificiellement par une substance fluorescente sont un puissant outil pour le suivi spécifique d'un polluant dans un milieu naturellement exempt de telles particules. La plupart des essais réalisés dans le cadre d'études d'aérocontamination, de confinement ou bien d'épuration sollicitent ces aérosols tant dans certains milieux industriels que dans des laboratoires spécialisés.

Ainsi, le suivi en temps réel du transfert de contamination d'un polluant inerte injecté en lieu et place d'une source de contamination permet d'optimiser l'emplacement de balises de détection et de déterminer le taux d'homogénéisation du polluant dans le local. L'optimisation du taux de renouvellement est alors concevable lors de la réalisation d'une cartographie de concentration de polluant à l'intérieur du local. Celle-ci décèle la présence de "zone morte", lieu d'accumulation du polluant et permet ainsi d'en prévoir l'élimination.

Cette technique de traçage particulaire peut également être mise en oeuvre lors d'études concernant, en particulier, le confinement dynamique, la validation de codes de calcul aérauliques, la modélisation d'écoulements d'air chargé en particules ou bien encore la qualification de matériel de filtration.

Le principe de la mesure de tels aérosols spécifiques autorisait jusqu'alors, uniquement une mesure intégrale en temps différé de leur concentration par le biais de prélèvements sur filtres, conditionnés ensuite pour une analyse par fluorimétrie.

La nécessité, telle qu'on l'a décrite précédemment, de suivre en temps réel la concentration d'un traceur dans l'air nous a conduit à montrer la faisabilité d'une nouvelle technique de détection d'aérosols fluorescents.

Dans cette communication, nous présentons le principe de détection que nous appliquons, le dispositif expérimental réalisé et les principaux résultats acquis au cours de notre étude.

II. PRINCIPE DE LA MESURE

L'objectif principal de notre étude réside dans la conception d'une technique de caractérisation et de comptage d'aérosols, basée sur la détection en temps réel de leur fluorescence.

Lorsqu'un aérosol liquide fluorescent intercepte un faisceau de lumière monochromatique de longueur d'onde incluse dans son spectre d'absorption, celui-ci réémet une lumière de longueur d'onde supérieure due à la fluorescence.

A éclairage constant, l'intensité de celle-ci est proportionnelle à la quantité de substance fluorescente contenue dans la particule. Il s'agit de collecter cette lumière de fluorescence par un système optique approprié sur un détecteur photosensible afin de quantifier la teneur en fluorochrome.

$$I_f = k \cdot \Phi \cdot \varepsilon \cdot I_0 \cdot Q$$

où

- I_f : intensité de fluorescence
- k : coefficient de proportionnalité
- Φ : rendement quantique de fluorescence
- ε : coefficient d'absorption molaire
- I_0 : intensité de lumière incidente
- Q : quantité de fluorophore

Les particules fluorescentes sont acheminées vers une chambre de mesure via une buse de prélèvement spécialement dimensionnée (figure 1) ; l'utilisation d'un débit d'air de gainage concentrique à l'écoulement confine l'aérosol prélevé à l'intérieur d'un jet en sortie de buse (focalisation aérodynamique). La finesse de focalisation de la lumière d'excitation permet l'éclairage au vol d'une particule.

L'utilisation d'une source laser facilite la concentration de la puissance d'excitation du faisceau en un spot lumineux étroit.

On peut estimer le volume de mesure à environ $3 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3$: la concentration maximale, détectable avec un taux de coïncidence inférieur à 5 %, ne doit pas excéder 10^5 particules/cm³.

II.1. Cellule de mesure et optique associée

La cellule de mesure est essentiellement composée :

- ↳ d'un système de prélèvement (figure 1) en laiton à faible indice de rugosité pour la surface interne, dont l'extrémité est une buse de petit diamètre ($d = 0.6 \text{ mm}$), ce qui permet d'acheminer les aérosols dans la chambre de mesure à l'intérieur d'un jet centré. Un circuit d'air de gainage permet l'amélioration du centrage aérodynamique du jet de sortie dans le même temps qu'il évite tout dépôt de gouttelettes sur les parois de l'optique collectrice.
- ↳ d'une chambre de mesure (figure 2) dont la géométrie particulière permet de collecter un maximum de la lumière fluorescente émise. Le rendement de collection de fluorescence est de l'ordre de 19 %. Cette optique collectrice a fait l'objet d'un brevet (réf. 1). Sa face postérieure, centrée sur le jet, est métallisée, ce qui permet de renvoyer la lumière émise vers l'arrière, à l'endroit d'émission où elle vient s'ajouter au flux émis vers l'avant.

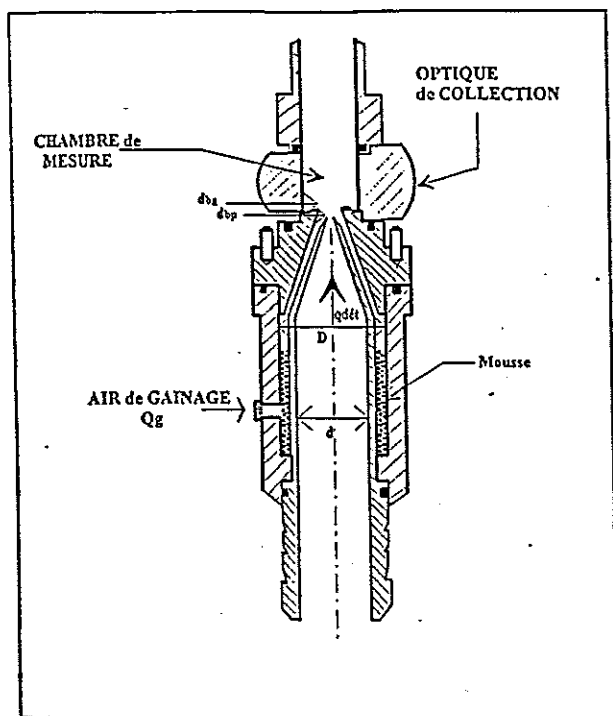


Figure 1
Système de prélèvement

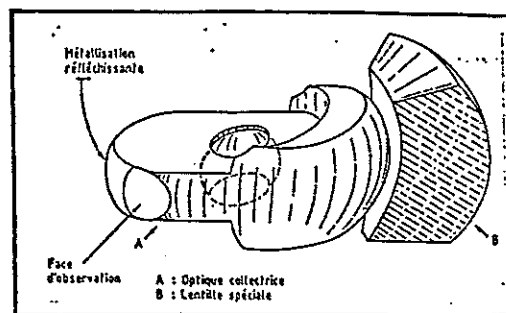


Figure 2
Chambre de mesure
(réf 2)

La lentille B capte le flux lumineux et renvoie l'ensemble sur le reste du montage optique.

Caractéristiques de la buse

$D = 10.6 \text{ mm}$

$d = 6.0 \text{ mm}$

$d_{bp} = 0.6 \text{ mm}$

$db = 2.6 \text{ mm}$

II.2. Choix du fluorophore

Le fluorophore choisi pour mener nos essais est la fluorescéine sodée ; elle est un produit de prédilection dans les études de traçage du fait, essentiellement, de sa non-toxicité aux concentrations usuelles mais aussi de sa solubilité dans l'eau et dans le glycérol, souvent mis en oeuvre lors de la production de gouttelettes calibrées.

La fluorescéine sodée est en outre, utilisée dans une méthode de mesure normalisée (NF X 44.011) pour les tests d'efficacité de filtres à air très haute efficacité.

Ce traceur possède de très bonnes qualités de fluorescence en solution dans le glycérol (rendement quantique évalué à 92 % dans les meilleures conditions) et peut aisément être détecté par toute technique fluorimétrique.

III. MONTAGE EXPERIMENTAL

Le dispositif expérimental mis en oeuvre est composé principalement de deux parties :

- > la première permet la production et l'excitation lumineuse des aérosols fluorescents,
- > la seconde consiste en la détection et le traitement des signaux.

III.1 Production de gouttelettes

Un générateur à orifice vibrant (TSI Inc, modèle 3050) assure la production des gouttelettes monodispersées de glycérol marquées à la fluorescéine sodée à des concentrations de 1 à 10 g/l. La gamme des diamètres d'aérosols produits s'étend de 1 à 10 μm (diamètre aérodynamique), soit des quantités de fluorochrome contenues par particule comprises entre 3.10^{-16} et 3.10^{-12} g/particule (soit 6.10^5 à 6.10^9 molécules/particule).

Les caractéristiques de granulométrie des aérosols test ont pu être vérifiées grâce à un analyseur de taille d'aérosols APS (Aerodynamic Particle Sizer, modèle 3310, TSI Inc).

III.2. Détection des aérosols

Source LASER

La volonté de réaliser un dispositif de mesure de grande sensibilité nous a conduit à adopter un laser en tant que source lumineuse de très grande brillance, monochromatique, de focalisation aisée et de plus, stable.

Ainsi, nous utilisons un laser à argon ionisé (Spectra Physics, Series 2000) qui émet à la longueur d'onde de 488 nm en accord avec la longueur d'onde d'absorption de la fluorescéine sodée. La puissance est volontairement limitée de 15 à 500 mW. Il fournit un faisceau en mode TEM₀₀, c'est-à-dire que son profil d'intensité est gaussien.

La figure 3 représente la distribution de l'intensité du faisceau LASER au niveau du jet d'air chargé en particules.

Focalisation du faisceau

Le dispositif de focalisation est tel que sa largeur est grande devant le diamètre des particules les plus grosses à analyser ; l'intensité d'excitation de la particule est ainsi uniforme, même pour des positions de particules légèrement fluctuantes dans la zone éclairée. La combinaison de lentilles spéciales permet au faisceau de prendre l'aspect d'une nappe lumineuse au niveau du flux des particules, dont l'épaisseur de focalisation est fine afin de n'éclairer qu'une seule particule défilante.

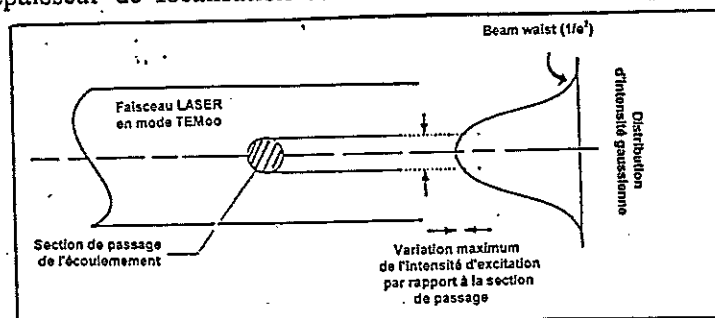


Figure 3 : Distribution de l'intensité LASER au niveau du jet en sortie de buse (réf. 4)

Détection et acquisition des données

Un photomultiplicateur (HAMAMATSU, type R928) collecte les photons de fluorescence et les convertit, selon le rendement de la photocathode et son gain, en courant électrique ; le signal en sortie de ce détecteur est directement observable sur l'une des deux voies d'un oscilloscope avant qu'il ne soit transmis à l'amplificateur (Schlumberger, type 7129) où il est mis en forme et amplifié. La sortie de l'amplificateur est reliée à la seconde voie de l'oscilloscope montée en parallèle avec la chaîne d'acquisition de données. La chaîne d'acquisition de données est constituée d'un ordinateur (PC 386) muni d'une carte interface de type ACCUSPEC NAI (CANBERRA) : le codage est effectué sur 2048 canaux.

On dispose ainsi d'un analyseur d'impulsions performant qui reconstitue le spectre des quantités de photons fluorescents détectés : il délivre des histogrammes élaborés en totalisant le nombre d'événements classés selon leur amplitude.

Ce montage permet de suivre en temps réel la détection des signaux de fluorescence émis par les particules, simultanément sur le cadran de l'oscilloscope et celui de l'ordinateur. Il est alors aisé d'ajuster correctement la focalisation du faisceau laser sur le jet des particules en jouant sur les réglages micrométriques de la cellule (déplacement XY). On optimise ainsi l'interaction faisceau LASER-flux de particules en recherchant un signal d'amplitude maximale qui offre la meilleure résolution.

IV. PRINCIPAUX RESULTATS

IV.1. Estimation du taux de rétention dans la cellule de mesure

L'une des principales étapes dans la qualification de notre dispositif est de valider la représentativité de la détection laser par rapport à un prélèvement de référence effectué en parallèle. Pour cela, nous avons estimé le taux de rétention R des gouttelettes à l'intérieur même du dispositif.

Trois séries de dix essais avec prélèvements simultanés (de référence et en aval du dispositif de détection laser) effectuées pour chaque diamètre de particules compris entre 1 et 10 μm permettent de tracer une courbe de rétention caractéristique du dispositif (figure 4) après analyse en fluorimétrie classique des filtres de prélèvement.

Les barres d'erreur associées aux résultats correspondent à une incertitude sur les résultats donnés à la probabilité de 95 %.

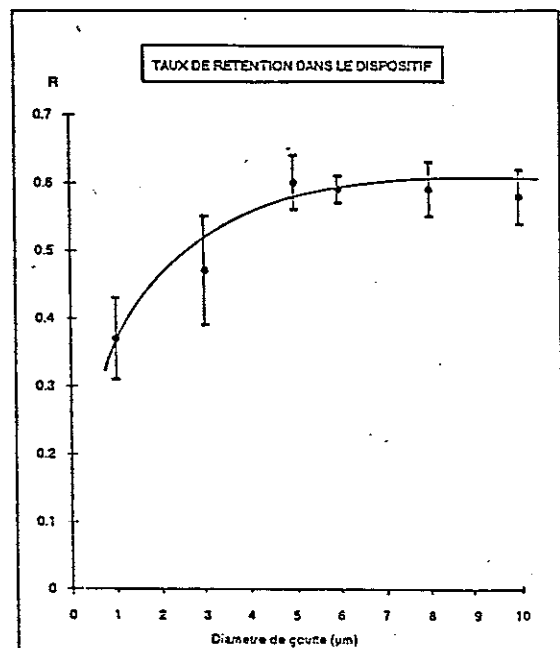
$$R = \frac{C_{\text{ref}} - C_{\text{prél}}}{C_{\text{ref}}}$$

où

C_{ref} = concentration de référence (g/L)

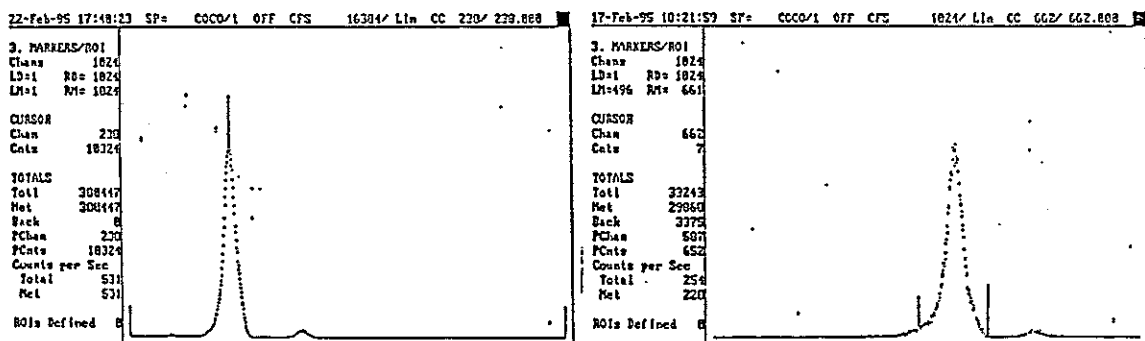
$C_{\text{prél}}$ = concentration mesurée en aval du dispositif (g/L)

Figure 4
Taux de rétention en fonction du diamètre des particules



IV.2. Analyse du signal obtenu

Le spectre caractéristique obtenu lors de la détection de particules fluorescentes est illustré par quelques résultats enregistrés lors de la détection de particules de diamètres différents (figure 5). L'échelle des abscisses est directement proportionnelle à la quantité de fluorescéine mesurée par particule décomptée donc au volume de la particule pour une concentration en fluorescéine dans le solvant (glycérol) constante. L'échelle des ordonnées totalise quant à elle le nombre de particules détectées par unité de temps.



dae = 5 μm

dae = 10 μm

Figure 5
Exemples de spectres enregistrés

Dans de bonnes conditions d'essais, c'est-à-dire une focalisation du faisceau LASER optimale sur le jet de particules et une population de gouttelettes monodispersées, l'histogramme obtenu prend une allure gaussienne, centré sur la valeur moyenne de l'intensité de fluorescence mesurée. L'intégration sous le pic permet de déterminer le nombre total de particules détectées pendant le temps d'analyse.

IV.3. Influence de différents paramètres

Plusieurs paramètres peuvent modifier l'allure des spectres enregistrés pour un diamètre de particule donné de concentration en fluorochrome fixe ; ce sont principalement :

- la puissance du faisceau LASER (donc de l'éclairement d'excitation),
- la haute tension appliquée au photomultiplicateur (PMT),
- la vitesse de passage de la particule dans le faisceau,
- l'alignement du faisceau d'excitation sur le jet de particules,
- l'homogénéité de l'intensité d'excitation,
- le centrage du flux de particules (action du débit d'air de gainage).

Les trois premiers paramètres cités agissent essentiellement sur la limite de détection du dispositif ; quant aux trois autres, ils peuvent altérer une interprétation correcte du spectre lorsqu'ils ne sont pas bien réalisés.

Des résultats montrent que les valeurs de la puissance délivrée par le laser et de la haute tension appliquée au photomultiplicateur doivent être optimisées pour maintenir la linéarité du signal de détection.

IV.4. Essais de calibration

Il est envisageable de tracer une courbe de calibration dès lors que l'on travaille avec des gouttelettes marquées à la même concentration en substance fluorescente.

Les signaux de fluorescence émis sont fonction de la masse de fluorochrome contenue par particule (figure 6). Toutefois, au-delà de certaines conditions de puissance du laser, de haute tension du PMT, de taille de gouttelettes ou bien encore de concentration en fluorescéine, nous sommes confrontés à des problèmes, soit de limite de détection, soit de saturation électronique du système. Effectivement, lorsque l'un ou l'autre de ces différents paramètres augmente, la linéarité du signal n'est maintenue que dans un certain domaine.

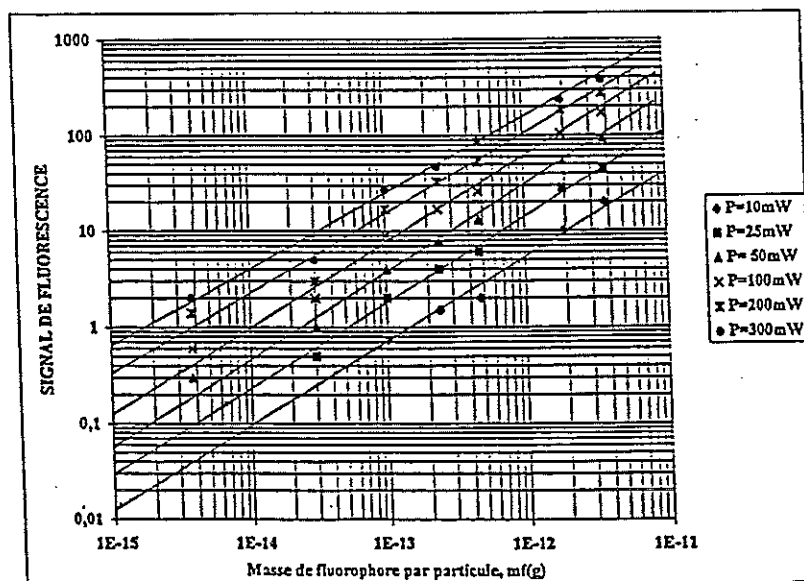


Figure 6

Signal de fluorescence en fonction du diamètre de particule

IV.5 Comparaison de résultats avec la fluorimétrie classique

Différents essais ont permis d'estimer l'efficacité de comptage de notre dispositif en comparant les résultats acquis par la détection LASER avec ceux obtenus en fluorimétrie classique lors de la mesure d'une concentration particulaire identique, pour différents diamètres de gouttelettes.

Nous obtenons des résultats tout à fait comparables entre les deux techniques puisque l'écart reste inférieur à 10 % dans tous les cas où les spectres obtenus sont exploitables (séparation du signal de fluorescence avec celui correspondant au bruit électronique).

Les durées d'analyse par la méthode de comptage laser sont réduites et ne dépendent que de la concentration particulaire présente, pour un débit constant : il est souhaitable d'attendre la détection d'un minimum de 10^4 événements au total pour atteindre une statistique de comptage satisfaisante (précision de 1 %), ce qui peut entraîner, selon la concentration mesurée, des temps de comptage inférieurs à 1 minute.

Notre dispositif permet une grande sélectivité de détection puisqu'il ne compte que les particules fluorescentes. Des spectres présentant des taux de comptage nuls sont obtenus lorsque l'on prélève directement dans l'air ambiant.

V. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'utilisation d'une source laser adaptée, associée à une optique à grand rendement de collection, permet de réaliser un dispositif de détection d'aérosols fluorescents performant pour le suivi en temps réel et en continu d'une concentration particulaire test injectée dans un local ou banc d'essai.

La technique permet, par les données acquises, d'accéder directement à des taux de comptage de particules tout en contrôlant la granulométrie des aérosols produits.

L'estimation de la totalité de la masse de fluorochrome détectée est facilitée pour l'analyse de particules monodispersées dès lors que l'on connaît le contenu de chacune d'elles.

Les limitations de cette technique sont directement liées au niveau du bruit (optique et électronique) délivré par le dispositif ainsi que les propriétés physico-chimiques du fluorophore utilisé.

La fabrication à terme d'un appareil portable, pour des mesures sur site, impose une technologie qui soit très peu encombrante et d'un poids réduit, ce qui limite essentiellement la taille de la source laser utilisée. Malgré l'existence sur le marché de lasers à argon ionisé délivrant des puissances de l'ordre de 10 à 100 mW, il serait judicieux de s'intéresser à de nouveaux colorants excitables dans le rouge qui permettraient l'utilisation de diodes laser, de très petite taille et de faible coût.

Cependant, les colorants utilisés doivent être tout à fait inoffensifs pour l'homme, ce qui restreint considérablement leur choix.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Gaucher, J.C.. Dispositif optique à rendement de collection élevée et Cytofluorimètre en faisant l'application. Brevet n°84-09676, France, 20 juin 1984.

[2] Seigneur, A.. Cytométrie en flux : conception d'un appareil et validation expérimentale. Thèse-Université de Paris-sud. Centre d'Orsay - février 1987.

[3] Berlman, I.B.. Handbook of fluorescence spectra of aromatic molecules. Academic Press (1971).

[4] Knollenberg, R.G., Veal, D.L.. Optical particle monitors, counters spectrometers : performance characterization, comparison and use. Journal of the IES, V35, pp 64-81 (1992).

SYNTHESE ET PROPRIETES PHOTOPHYSIQUES DE NOUVEAUX ROTORS MOLECULAIRES FLUORESCENTS DERIVES DE COUMARINES. COMPORTEMENT AU SEIN DE SYSTEMES BIOLOGIQUES

C. GEOFFROY-CHAPOTOT, M.L. VIRIOT

<> DCPR - ENSIC
BP 451 - 1, rue Grandville - 54001 NANCY Cedex

S. MULLER

<> LEMTA - UHP NANCY I
54511 VANDŒUVRE LES NANCY

M.C. CARRE

<> INSERM
Plateau de Brabois
54511 VANDŒUVRE LES NANCY

Résumé

Avec l'objectif de développer de nouveaux rotors moléculaires fluorescents, pouvant présenter en particulier un intérêt pour des observations de milieux biologiques par microscopie, nous avons synthétisé six dérivés de la 7-(N,N-diéthylamino)coumarine substitués en position-3 par diverses fonctions. L'étude photophysique des nouveaux fluorophores a mis en évidence une modification des caractéristiques d'émission de fluorescence en fonction des paramètres d'environnement : (i) l'augmentation de la polarité entraîne un déplacement bathochrome et (ii) l'augmentation de la viscosité conduit à un rendement quantique de fluorescence plus élevé. Ces propriétés particulières permettent des applications dans des domaines très variés, et à titre d'illustration nous présentons des applications dans des membranes biologiques modèles (liposomes de DPPC) ainsi que les résultats concernant des systèmes biologiques intacts (cellules endothéliales).

INTRODUCTION

Au cours de ces dernières décennies, où les techniques d'analyse demandent de plus en plus d'efficacité et de polyvalence, la spectroscopie de fluorescence a pris un essor considérable dans bon nombre d'applications. Le futur des sondes fluorescentes est donc très certainement lié à la synthèse de nouveaux fluorophores plus sélectifs. Pour répondre à ces critères, nous nous sommes intéressés aux rotors moléculaires fluorescents, déjà connus pour leurs caractéristiques photophysiques bien particulières, puisque leur émission de fluorescence est sensible aux modifications de l'environnement moléculaire (polarité, viscosité, température, pression, pH...) [1]. Le travail présenté s'inscrit dans cette stratégie de recherche de nouveaux rotors moléculaires fluorescents, dérivés de la 7-(N,N-dialkylamino)coumarine substitués en position-3 par des fonctions acide, ester ou amide, afin de préparer des fluorophores capables de réactions spécifiques vis-à-vis de groupements fonctionnels présents dans les organites subcellulaires [2].

I. MATERIELS ET METHODES

I.1. Description de la synthèse chimique

La condensation du 4-diéthylamino-2-hydroxybenzaldéhyde (1, Aldrich, 22,568-1) avec le glutaconate de diéthyle (2, Aldrich, D9,580-8) en milieu basique (figure 1) conduit à la formation de la 7-(N,N-diéthylamino)coumarine-3-acrylate d'éthyle (3). La double liaison exocyclique du composé (3) est ensuite soumise à une cis-dihydroxylation par le tétraoxyde d'osmium. Puis une réaction de Malaprade (oxydation du diol par NaIO₄), conduit à la formation de l'aldéhyde (4) [3].

Cet aldéhyde (4) peut également être obtenu par une réaction de formylation de Vilsmeier-Haack mettant en jeu la 7-diéthylaminocoumarine et l'oxychlorure de phosphore (POCl_3) dans du diméthylformamide [4].

Les composés finaux (6a-b) sont obtenus par une condensation de Knoevenagel, en présence de pipéridine, entre l'aldéhyde (4) et 2 éq. molaires du composé à méthylène actif (5a-b) (cyanoacétate d'éthyle ou acide cyanoacétique).

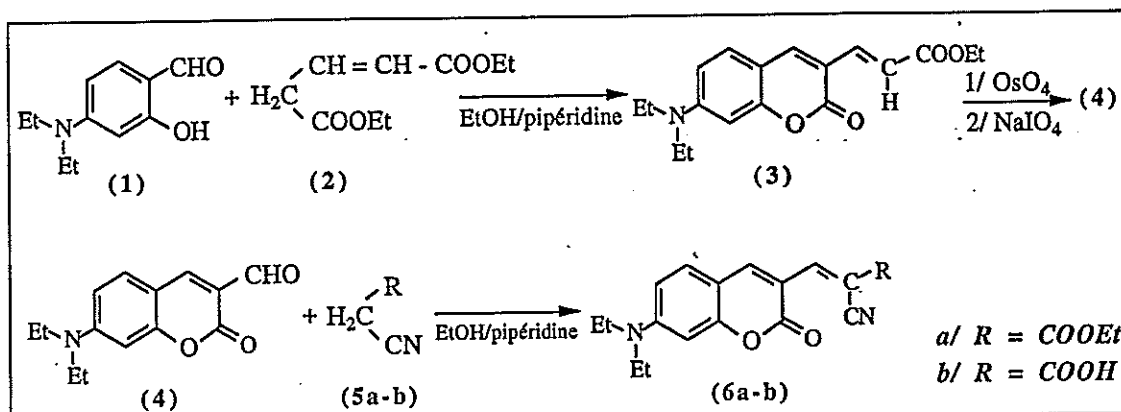


Figure 1 : Schéma de synthèse pour l'obtention des dérivés ester et acide.

La condensation de la glucosamine dans sa forme acétylée sur le rotor acide (6b), est réalisée dans le diméthylformamide à température ambiante, en utilisant une activation de la fonction carboxylique par le couple N,N'-dicyclohexylcarbodiimide (DCCI)/1-hydroxybenzotriazole (HOBT) (figure 2).

Pour obtenir le composé non acétylé (8), une hydrolyse en milieu basique du composé (7) a été réalisée dans le méthanol anhydre en présence de MeONa.

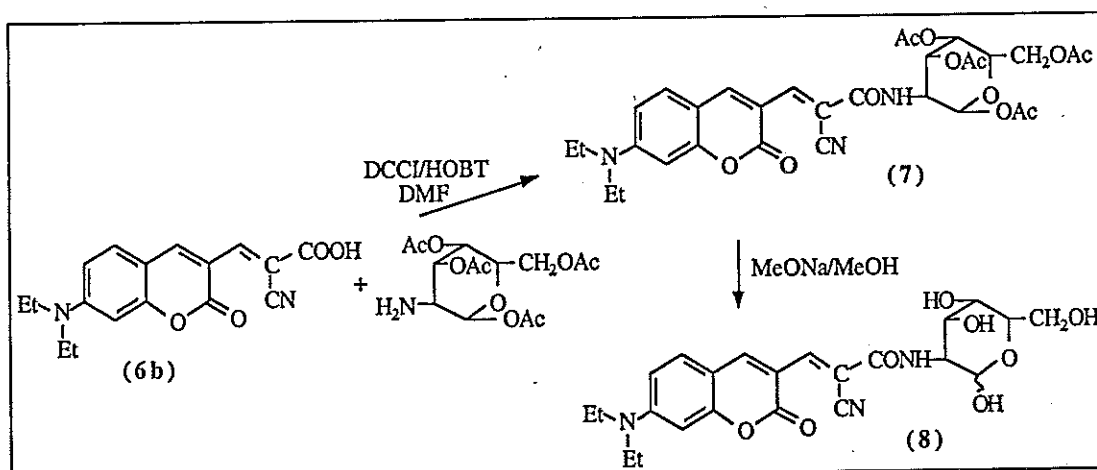


Figure 2 : Schéma de synthèse pour l'obtention des dérivés coumarine glucosamine.

I.2. Nomenclature adoptée.

Les différents composés synthétisés seront par la suite nommés :

composé (6a) rotor CNCOOEt	composé (7) rotor CNCONHGluAc
composé (6b) rotor CNCOOH	composé (8) rotor CNCONHGlu

I.3. Préparation des liposomes de DPPC

Une solution de DL- α -Dipalmitoylphosphatidylcholine (DPPC, 10^{-3} M) (Sigma, réf. P 5911) dans le chloroforme (10 mL) est évaporée sous vide pour obtenir un film mince, opaque et uniforme de lipides. Ce film est hydraté avec une solution de tampon phosphate (PBS, pH 7,4, 10 mL) sous agitation à $T > T_M$ pour conduire à une suspension trouble de liposomes multilamellaires. Cette suspension est traitée aux ultrasons (VibraCell 72408, Bioblock) pendant 3 min (la formation des SUV est suivie par la mesure de l'absorbance du mélange) pour conduire à une solution limpide de

liposomes unilamellaires de petite taille (SUV, diamètre théoriquement compris entre 250 et 500 Å). Les rotors moléculaires fluorescents (solution mère à 10^{-3} M dans l'éthanol) sont ajoutés aux préparations pour obtenir une concentration théorique finale de $5 \cdot 10^{-6}$ M (la proportion finale d'éthanol est de 5%, v/v).

I.4. Présentation du système CELLscan™

La microscopie optique à trois dimensions a été réalisée à partir d'un microscope photonique à fluorescence IX-70 Olympus, équipé du système CELLscan™, Scanalytics (Boston, USA). Le principe de ce système repose sur le déplacement du plan focal à travers l'échantillon, grâce à un système de déplacement en z, et à l'acquisition d'une série d'images 2D contenant des informations sur le plan focal et sur tous les autres plans ; les coupes horizontales, pouvant être obtenues tous les 0,25 µm. La restauration des images, par déconvolution numérique à partir de la fonction de transfert optique ou PSF du système complet (microscope/détecteur) va permettre d'obtenir une estimée 3D de l'objet. Contrairement à la technique confocale qui restitue l'image d'un plan en sélectionnant la lumière émise par les points situés sur le plan focal, la technique de déflouage utilisée sur le CELLscan™ (EPR) permet de prendre en compte la totalité de la lumière provenant de tous les plans.

II. RESULTATS ET DISCUSSION

II.1. Absorption UV-visible et fluorescence

Les spectres d'absorption UV-visible sont enregistrés sur un spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 2, tandis que les spectres de fluorescence en excitation continue sont enregistrés sur un spectrofluorimètre SPEX, Fluorolog-2. Les rendements quantiques de fluorescence ont été déterminés en utilisant comme référence une solution aqueuse de fluorescéine à 25°C, pH 10 ($\phi_f = 0,81$).

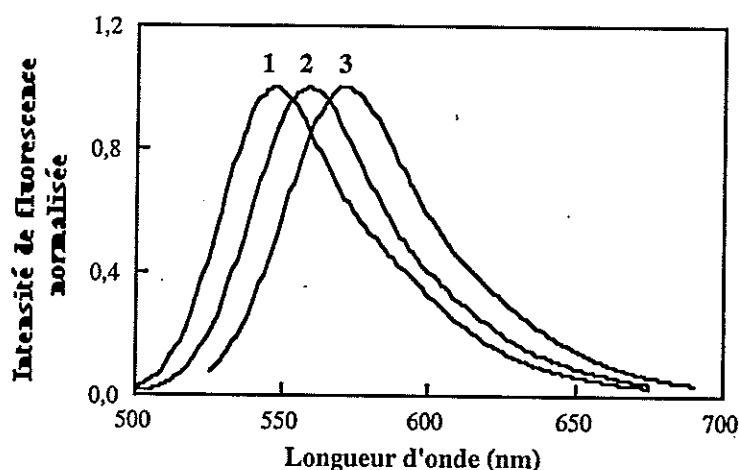


Figure 3 : Spectres d'émission de fluorescence du rotor CNCONHGlu à 25°C dans les solvants : acétate d'éthyle (1), éthanol (2) et glycérol (3).

Les composés de type coumarine sont caractérisés par l'existence de deux états excités : un état plan (état ICT à transfert de charge intramoléculaire) et un état "twisté" (état TICT) dont la désactivation, qui est essentiellement non radiative, prendrait naissance suite à une rotation partielle d'un groupement particulier de la molécule. Ainsi dans un solvant visqueux, où la rotation est empêchée, le déclin de fluorescence à partir de l'état ICT est privilégié et conduit à des rendements quantiques de fluorescence plus élevés.

L'analyse du tableau 1 permet de rendre compte de l'influence de la polarité du solvant sur le déplacement bathochromique des longueurs d'onde au maximum d'absorption UV-visible et d'émission de fluorescence (figure 3). Pour l'aspect viscosité, les augmentations de l'efficacité de fluorescence reflètent bien l'accroissement de la rigidité de l'environnement local du traceur. Ces deux observations sont en faveur de l'existence d'un chemin de désactivation non radiative.

	Solvant	Toluène	AcOEt	EtOH	MeOH	Glycérol	Eau
	$E_T(30)$	33,9	38,1	51,9	55,4	57	63,1
	η	0,55	0,441	1,074	0,547	954	0,894
Rotor							
CNCOOEt	$\lambda_a \text{ max}$	499	498	505	503	521	510
	$\lambda_f \text{ max}$	531	548	562	564	574	563
	ϕ_f	0,03	0,07	0,17	0,19	0,85	0,01
CNCOOH	$\lambda_a \text{ max}$	500	443	454	460	487	478
	$\lambda_f \text{ max}$	533	534	528	541	554	555
	ϕ_f	0,01	0,03	0,08	0,07	0,68	0,04
CNCONHGluAc	$\lambda_a \text{ max}$	478	489	496	500	514	511
	$\lambda_f \text{ max}$	534	542	559	560	569	574
	ϕ_f	0,3	0,47	0,05	0,07	0,94	0,04
CNCONHGlu	$\lambda_a \text{ max}$	476	468	476	474	506	494
	$\lambda_f \text{ max}$	541	546	558	562	570	573
	ϕ_f	0,03	0,17	0,13	0,16	0,75	0,06

Tableau 1 : Caractéristiques d'absorption UV-visible et d'émission de fluorescence des rotors dans différents solvants à 25°C ($\lambda_a \text{ max}$ et $\lambda_f \text{ max}$ sont exprimés en nm, le paramètre de Reichardt ($E_T(30)$) en kcal/mol et la viscosité (η) en cP).

II.2. Fluorescence dans des liposomes de DPPC : détection de la T_M

Dans le cas de membranes biologiques modèles, entièrement composées de lipides, une élévation de température va entraîner une transition de phase. Les chaînes de phospholipides, passent d'une conformation ordonnée (conformation des chaînes tout-trans) à une conformation désordonnée (conformation gauche) conduisant à une diminution de l'épaisseur de la double couche lipidique.

La température de transition T_M d'un phospholipide donné peut être détectée par les modifications d'environnement local de la sonde (changements de volume libre et donc de viscosité) lorsque l'on chauffe une solution de liposomes unilamellaires. Le changement de conformation du phospholipide autour de la T_M se traduit généralement par un changement de pente dans le tracé de type Arrhénius (figure 4).

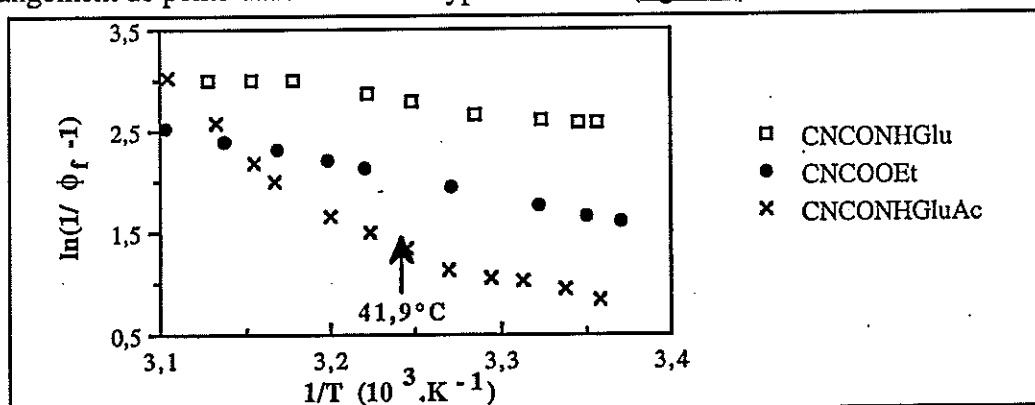


Figure 4 : Variation du rendement quantique de fluorescence en fonction de la température pour différents rotors inclus dans des SUV de DPPC.

Pour des SUV de DPPC et en utilisant comme traceurs des rotors fluorescents de type coumarine (concentration en sonde de $5 \cdot 10^{-6}$ M), on détecte une température de transition de phase de $41,9^\circ\text{C}$. Cette étude a permis de montrer que les rotors glucidiques sont capables de suivre le comportement des liposomes au regard de la température. Un résultat différent a été observé avec le rotor CNCOOEt qui ne comporte pas le cycle glucosamine en ce sens que l'on ne constate pas de changement de pente. Nous pouvons émettre l'hypothèse que le rotor CNCOOEt, ne s'incorpore pas entre les chaînes d'acide gras des phospholipides de DPPC [5].

II.3. Incorporation des traceurs fluorescents au sein de systèmes biologiques complexes
 L'étude par microscopie de fluorescence 3D, a surtout consisté à déterminer si les dérivés coumarine étaient des marqueurs spécifiques de systèmes cellulaires intacts. Le comportement des rotors est totalement différent, selon que l'on considère le composé ester CNCOOEt ou les composés glucidiques CNCONHGlu et CNCONHGluAc. La sonde acétylée est un marqueur beaucoup plus efficace que son homologue hydroxylé, et le rotor CNCOOEt semble présenter une grande affinité vis-à-vis des cellules endothéliales (figure 5).

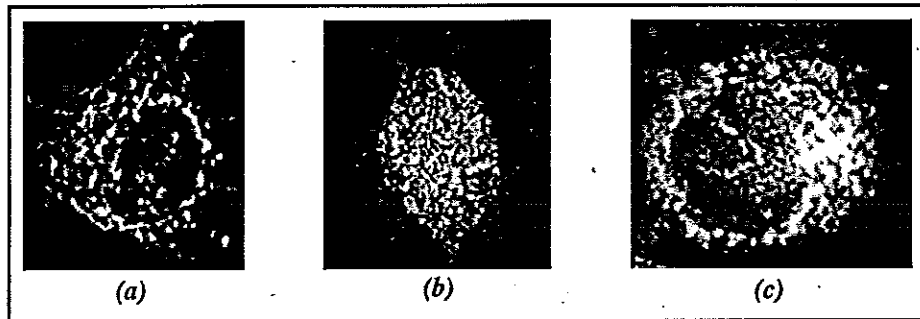


Figure 5 : Cliché de cellules endothéliales marquées avec les rotors CNCOOEt (a), CNCONHGlu (b) et CNCONHGluAc (c) pour des concentrations en sonde de 30 μ M et des temps d'incubation de 4 min (microscope à fluorescence : objectif x 100, NA 1,25, exposition 0,5 s).

Le rotor glucidique non acétylé (CNCONHGlu, image b), ne présente pas de site de localisation particulier : il semble être diffus dans tout le cytoplasme de la cellule, en raison d'une trop forte polarité qui ne lui permet pas de rester au sein d'une structure lipidique. Quant aux traceurs CNCOOEt (image a) et CNCONHGluAc (image c), ils semblent se localiser sur des sites spécifiques des cellules endothéliales.

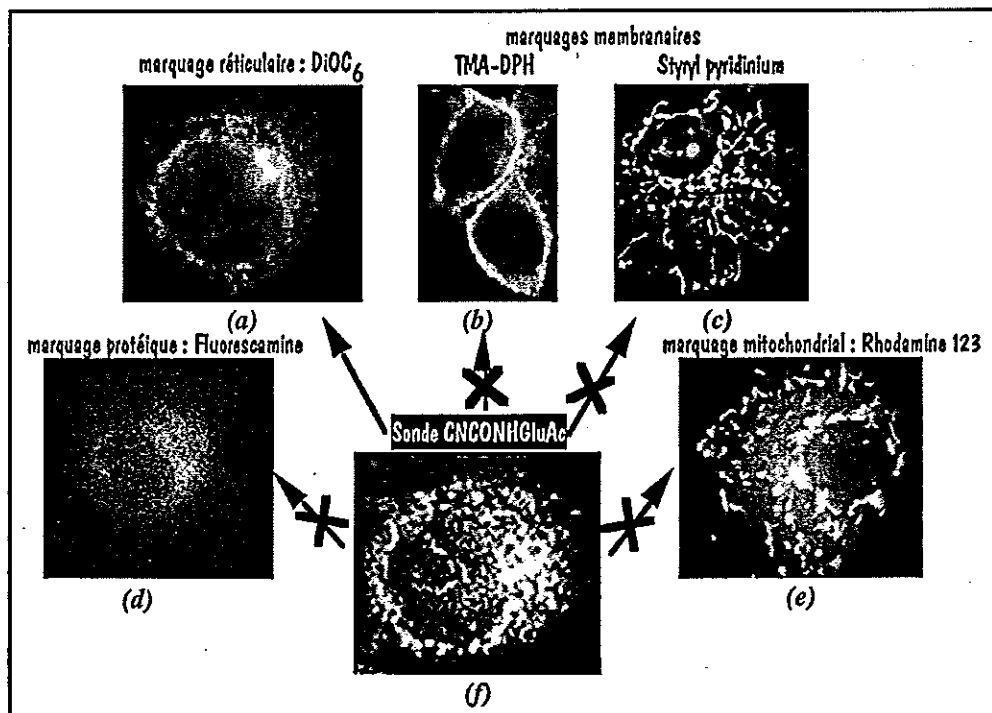


Figure 6 : Comparaison du marquage de cellules endothéliales avec la sonde CNCONHGluAc (f) à des marqueurs témoins : DiOC₆ (a), TMA-DPH (b), styrylpyridinium (c), fluorescamine (d), rhodamine 123 (e).

Une étude comparative avec différents marqueurs d'organites subcellulaires, couramment utilisés dans le domaine biologique (figure 6) conduit aux conclusions suivantes :

- Le rotor CNCOOEt ne semble pas suivre de manière stricte le marquage mitochondrial visible avec la rhodamine 123, ni le marquage réticulaire. Cependant nous avons observé pour cette sonde un marquage se rapprochant de celui obtenu avec le styrylpyridinium (marqueur membranaire).
- Le rotor CNCONHGluAc apparaît plutôt comme un marqueur spécifique du réticulum endoplasmique.

Par ailleurs, une étude plus approfondie sur le comportement du rotor CNCONHGluAc a montré que la concentration en sonde, nécessaire pour un marquage optimal est de 30 μ M, concentration qui reste raisonnable pour éviter toute formation d'agrégats et qui ne semble pas affecter la viabilité cellulaire. En effet, des tests de toxicité ont révélé que cette sonde ne modifie pas l'aspect des cellules qui conservent leurs propriétés adhésives et ne présentent pas de modification de leur métabolisme.

CONCLUSION

En tirant parti des structures chimiques des nouvelles coumarines, pouvant se comporter comme des rotors moléculaires fluorescents, nous avons étudié leurs propriétés photophysiques dans des solvants de différentes polarité et viscosité.

- Le déplacement vers le rouge des longueurs d'onde au maximum d'émission de fluorescence permet de rendre compte d'une modification de l'environnement en terme de polarité.
- L'aspect viscosité, quant à lui, est principalement mis en évidence par les augmentations de l'efficacité de l'émission de fluorescence traduisant bien l'accroissement de la rigidité de l'environnement local du traceur.

Puis nous avons montré l'intérêt de ces traceurs pour l'étude de systèmes moléculaires organisés de type liposomes, en ce sens que ces systèmes représentent des modèles de milieux biologiques. Autour de la T_M qui correspond à une modification de la structure moléculaire des vésicules, seules les sondes glucidiques révèlent un changement de pente dans le tracé de type Arrhénius, autour de 41,9°C. Cette valeur correspond bien à la température de transition de phase du DPPC.

Nous avons également étudié le comportement de ces traceurs au sein d'une monocouche de cellules endothéliales. Le rotor CNCONHGluAc semble se comporter comme un marqueur spécifique du réticulum endoplasmique. La double potentialité des rotors moléculaires à révéler des variations de polarité et de viscosité, pourra permettre de suivre les modifications métaboliques survenant dans cet organite subcellulaire. Ces études ouvrent donc la porte à une nouvelle génération de sondes fluorescentes utilisables en biologie cellulaire, et laissent aux biologistes un choix important d'outils qui devraient permettre l'approche, par une méthode relativement douce, de fonctions cellulaires difficilement accessibles par les sondes fluorescentes classiques.

REFERENCES

- [1] Damas C., Adibnejad M., Benjelloun A., Brembilla A., Carré M.C., Viriot M.L., Lochon P., Fluorescent probes for detection of amphiphilic polymer hydrophobic microdomains : a comparative study between pyrené and molecular rotors, *Colloid Polym. Sci.*, 275, 364-371 (1997)
- [2] Carré M.C., Geoffroy-Chapotot C., Adibnejad M., Berroy P., Stoltz J.F., Viriot M.L., Fluorescent molecular rotors with specific hydrophilic functions : glucosamine and inositol derivatives, *J. Fluoresc.*, 8, 53-57 (1998)
- [3] Pádmanabhan S., Peri R., Triggle D.J., Formation of chromenes and coumarine derivatives from salicylaldehydes and 2-pentenedioate : facile route to 3-formylcoumarins, *Synth. Com.*, 26, 827-831 (1996)
- [4] Harnisch H., Monomethine dyes, Bayer A.-G., Ger. Offen., P24 13 371.9, 16 Oct. 1975
- [5] Epanand R.F., Kraayenhof R., Sterck G.J., Wong Fong Sang H.W., Epanand R.M., Fluorescent probes of membrane surface properties, *Biochim. Biophys. Acta*, 1284, 191-195 (1996)

LE TRACAGE PAR VOIE NUMERIQUE : PRINCIPE, POTENTIALITES ET LIMITES

A. LINE, M. ROUSTAN <> INSA - LIPE
Complexe scientifique de Rangueil
31077 TOULOUSE Cedex

Résumé

Dans cette présentation, nous mettrons en parallèle les principes du traçage expérimental et du traçage numérique à partir de quelques expériences menées au laboratoire. Nous montrerons certaines potentialités de la mécanique des fluides numérique pour réaliser des traçages ; les simulations numériques seront confrontées à des données expérimentales. Nous discuterons des limites actuelles de cette approche et dégagerons quelques perspectives pour lever les verrous scientifiques rencontrés.

I. INTRODUCTION

Pour déterminer le temps de séjour réel des particules de fluide dans un réacteur, on utilise un marquage ou un traçage de certaines particules. Une perturbation est ainsi générée à l'entrée du réacteur sous forme d'impulsion ou d'échelon de concentration, par exemple. Le signal relatif à la concentration est analysé en sortie du réacteur. L'évolution de la concentration à la sortie résulte du transport advectif de la concentration, du transport diffusif turbulent et de la dispersion spatiale. Classiquement, le réacteur est considéré globalement comme une boîte noire à laquelle on associe une fonction de transfert couplant l'entrée à la sortie.

Pour reproduire le fonctionnement du réacteur, la mécanique des fluides numérique permet de simuler les champs locaux de vitesse moyenne, de turbulence et de concentration. Pour obtenir cette description locale, il est nécessaire d'effectuer 4 étapes de travail :

- 1) discrétiser le domaine géométrique du réacteur ou encore réaliser un maillage du domaine.
- 2) discrétiser les équations de transport. Ces équations comprennent les équations de Reynolds (de conservation de la masse et de la quantité de mouvement), et l'équation de transport de la concentration, voire de transport des grandeurs caractéristiques de la turbulence. Chaque équation aux dérivées partielles est discrétisée : on substitue ainsi au système d'équations continues un système algébrique sous forme matricielle.

- 3) choisir un modèle de turbulence. Pour l'hydrodynamique, différents modèles existent pour rendre compte de la diffusion turbulente : la solution la plus simple consiste à utiliser le concept de viscosité turbulente. La viscosité turbulente peut être calculée par un modèle algébrique (en fonction d'une échelle caractéristique de longueur du mélange turbulent), ou par des modèles de turbulence plus évolués. En général, on utilise le modèle (k,ε) où on calcule localement le niveau d'énergie cinétique de la turbulence « k » et son taux de dissipation « ε ». Pour ce qui est de la diffusion turbulente de la concentration, il s'agit de relier la diffusivité turbulente de l'espèce considérée à la diffusivité turbulente de quantité de mouvement ou viscosité turbulente. Le lien s'exprime en terme de nombre de Schmidt turbulent dont la valeur est de l'ordre de l'unité.
- 4) déterminer les conditions à la limite, voire les conditions initiales pour un calcul transitoire. Cela suppose de connaître la vitesse et la concentration aux différentes entrées, mais aussi les niveaux de turbulence correspondant au modèle de turbulence retenu pour la simulation.

Une fois ce travail réalisé, il s'agit de mettre en œuvre la mécanique des fluides numérique. Là encore, 4 étapes doivent être suivies :

- 1) validation de la simulation de l'hydrodynamique à partir d'informations expérimentales locales.
- 2) calage du nombre de Schmidt turbulent à partir d'une expérience de traçage
- 3) validation du calage à partir d'autres expériences de traçage dans des conditions de fonctionnement contrastées par rapport aux conditions de calage.
- 4) simulation de différents scénarios (modifications de la géométrie du réacteur, ...)

Il est clair que la modélisation est une simplification de la réalité. La confrontation des résultats de simulation à des informations expérimentales est essentielle. L'objectif de ce papier est de montrer les potentialités de la mécanique des fluides numérique pour analyser le comportement des réacteurs, sans prétendre que les outils disponibles puissent se substituer complètement à l'expérience mais en insistant sur la complémentarité des approches.

II. EQUATION DE TRANSPORT DE LA CONCENTRATION

Le traçage numérique s'effectue à partir du suivi de la concentration dans le réacteur. Ce suivi est basé sur la résolution de l'équation locale et instantanée de la concentration. Rappelons que cela suppose d'avoir validé au préalable le modèle hydrodynamique basé sur les équations de Reynolds couplé à un modèle de turbulence. En écoulement turbulent, les grandeurs vitesse, concentration, ... varient ! Si on réalise un grand nombre de fois la même expérience, on mesurera chaque fois une valeur différente des grandeurs. Mais si on effectue une moyenne statistique sur un grand nombre de mesures, on peut déterminer la moyenne statistique notée avec une barre. Alors, chaque mesure diffère de la moyenne par un écart ou fluctuation turbulente notée avec « ' ». Alors on écrira $c_k = \overline{C_k} + c_k'$ et $u_k = \overline{U_k} + u_k'$.

L'équation de transport de la concentration peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\frac{\partial \alpha_k \overline{C_k}}{\partial t} + \nabla \alpha_k \overline{C_k} \overline{U_k} = \alpha_k \overline{S_k} - \nabla \alpha_k \left(\overline{J_k} + \overline{c_k' u_k'} \right) + \overline{L_k}$$

(i) (ii) (iii) (iv) (v) (vi)

où α_k représente la fraction locale de phase (en monophasique cela vaut 100%), C_k la concentration d'une espèce donnée dans la phase k, U_k le vecteur vitesse dans la phase

k , S_k un terme de production ou de consommation de la concentration de l'espèce donnée dans la phase k (en cas de systèmes multiconstituants réactifs), J_k le flux diffusif moléculaire de la concentration d'une espèce donnée dans la phase k , $\overline{c'_k u'_k}$ le flux diffusif turbulent de la concentration d'une espèce donnée dans la phase k et L_k le transfert interfacial de la concentration d'une espèce donnée entre les phases.

Le premier terme du membre de gauche de l'équation, noté (i) exprime pourquoi en un point géométrique donné dans l'espace fluide, la concentration d'une espèce dans la phase k dont la fraction locale est α_k peut varier au cours du temps. Le terme (ii) apporte une explication : l'écoulement de la phase k transporte au point considéré du fluide venant du voisinage et ayant une concentration et/ou une fraction locale différente, et ce dans les 3 directions de l'espace : on peut donc voir arriver au point considéré du « nouveau » fluide. D'après le terme (iii), même sans écoulement, si il y a une réaction au point considéré, alors la concentration va varier parce que l'on produit ou consomme localement de l'espèce considérée. Suivant le terme (iv), même sans écoulement et sans réaction, la concentration peut diffuser dans le fluide d'autant mieux que la capacité du fluide à diffuser l'espèce considérée sera plus grande et d'autant plus qu'il y aura un contraste de concentration entre le voisinage et le point considéré. Le terme (v) se réfère aux fluctuations (turbulentes) de vitesse qui transportent localement les fluctuations (turbulentes) de concentration : il en résulte de proche en proche une diffusion de la concentration par les mouvements fluctuants à l'échelle locale de la turbulence, appelée diffusion turbulente, bien plus efficace que la diffusion moléculaire. Le terme (vi) exprime qu'au point considéré, la concentration dans une phase peut varier si en ce point il y a transfert de matière entre deux phases ; ce terme n'existe que dans les zones diphasiques du procédé !

Si on ne considère d'abord que le traçage dans des procédés monophasiques, le problème de modélisation porte sur le terme de diffusion turbulente $\overline{c'_k u'_k}$. Le modèle le plus simple consiste à relier ce terme de flux turbulent au gradient local de la concentration moyenne, avec une diffusivité turbulente sous la forme :

$$\overline{c'_k u'_k} = -D'_k \nabla C_k$$

Une telle expression n'a de sens que dans la phase continue. La diffusivité turbulente d'espèce est en général reliée à la viscosité turbulente par un nombre de Schmidt turbulent :

$$Sc' = \frac{\nu'}{D'}$$

Contrairement aux nombres de Schmidt moléculaires qui dans les liquides sont grands devant l'unité, le nombre de Schmidt turbulent est d'ordre 1. Ce paramètre doit être manié avec prudence !

De plus, outre toutes les simplifications de modélisation réduisant fortement la complexité réelle, le traçage numérique induit par le traitement numérique du problème une source supplémentaire de diffusion : la diffusion numérique.

III. TRAÇAGE ET DIFFUSION NUMERIQUE

Considérons un écoulement monophasique, unidirectionnel en moyenne, permanent et établi hydrodynamiquement. Le transport de la concentration s'écrit de façon simplifiée :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U_z \cdot \frac{\partial C}{\partial Z} = E_{ZL} \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} \quad \text{avec} \quad E_{ZL} = D^m + D' + D^s \quad \text{et} \quad Pe = \frac{U_z \cdot L}{E_{ZL}}$$

La dispersion axiale E_{ZL} comprend tout ce qui éloigne le réacteur réel du comportement piston : la diffusion moléculaire (D^m), la diffusion turbulente (D') et la dispersion spatiale (D^s). Ce modèle à une dimension d'espace (Z) permet d'accéder à l'évolution de la concentration en fonction du temps et donc à la distribution des temps de séjour (DTS) du réacteur. Il reste donc à résoudre cette équation pour des conditions limites données et à estimer correctement le coefficient de dispersion axiale.

Une simulation est faite pour un écoulement parfaitement piston de manière à imposer une diffusion turbulente nulle et une dispersion spatiale nulle. La longueur du piston est de 1 m et la vitesse moyenne du fluide vaut $U_z=0,1$ m/s. L'injection de traceur se fait sous la forme d'un créneau sur un temps très court et pour une concentration finie et constante C_E . La mesure de E_{ZL} numérique correspond alors à : $E_{ZL} = D^m + D^n$, où D^n représente la diffusion numérique.

En faisant varier successivement la diffusion moléculaire et la taille du maillage, on peut estimer la diffusion numérique D^n . L'évolution de la dispersion du traceur (figure 1) est suivie en fonction du temps par des sondes numériques. On en déduit le coefficient de dispersion axiale E_{ZL} . La figure 2 montre comment déterminer la diffusion numérique : il apparaît un seuil en dessous duquel il n'est pas possible de détecter la diffusion moléculaire. Ce seuil définit la diffusion numérique du maillage. En deçà de ce seuil, la dispersion axiale numérique n'a pas de sens physique. Au delà de ce seuil, la dispersion simulée reproduit bien la valeur imposée, la diffusion numérique étant négligeable.

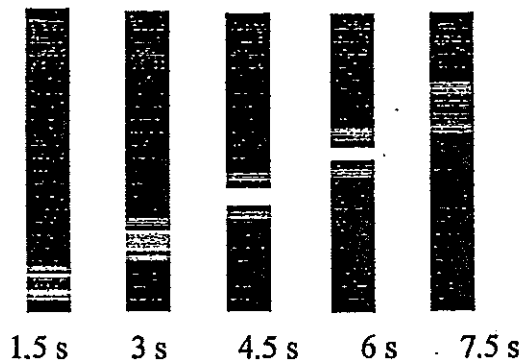


Figure 1 : Champs de concentration pour le réacteur piston

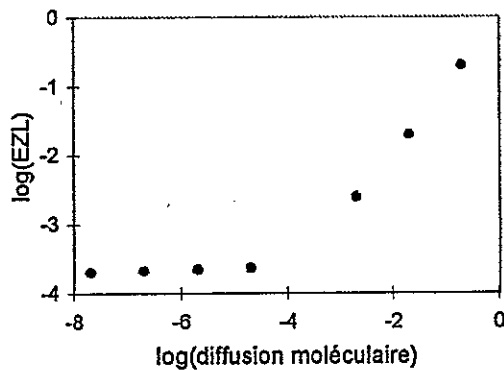


Figure 2 : Mise en évidence du seuil de diffusion numérique

IV. TRACAGE DANS DES PROCÉDES MONOPHASIQUES

Pour montrer les potentialités du traçage par la voie de la mécanique des fluides numérique, on présentera d'abord une application aux réacteurs utilisés dans la chaîne de traitement des eaux à potabiliser (bâches de chloration à l'échelle du pilote de laboratoire et à l'échelle industrielle) en confrontant la simulation numérique aux

laboratoire et à l'échelle industrielle) en confrontant la simulation numérique aux mesures de l'hydrodynamique et de DTS.

L'objectif du premier exemple est de simuler un réacteur industriel utilisé en traitement de l'eau pour la désinfection de l'eau par le chlore. Dans cette étude les traçages numériques ont permis de définir un aménagement avec des chicanes internes d'un réacteur présentant des dysfonctionnements (existence des court-circuits ou des zones mortes) ou pour augmenter le caractère piston de l'écoulement (figure 3).

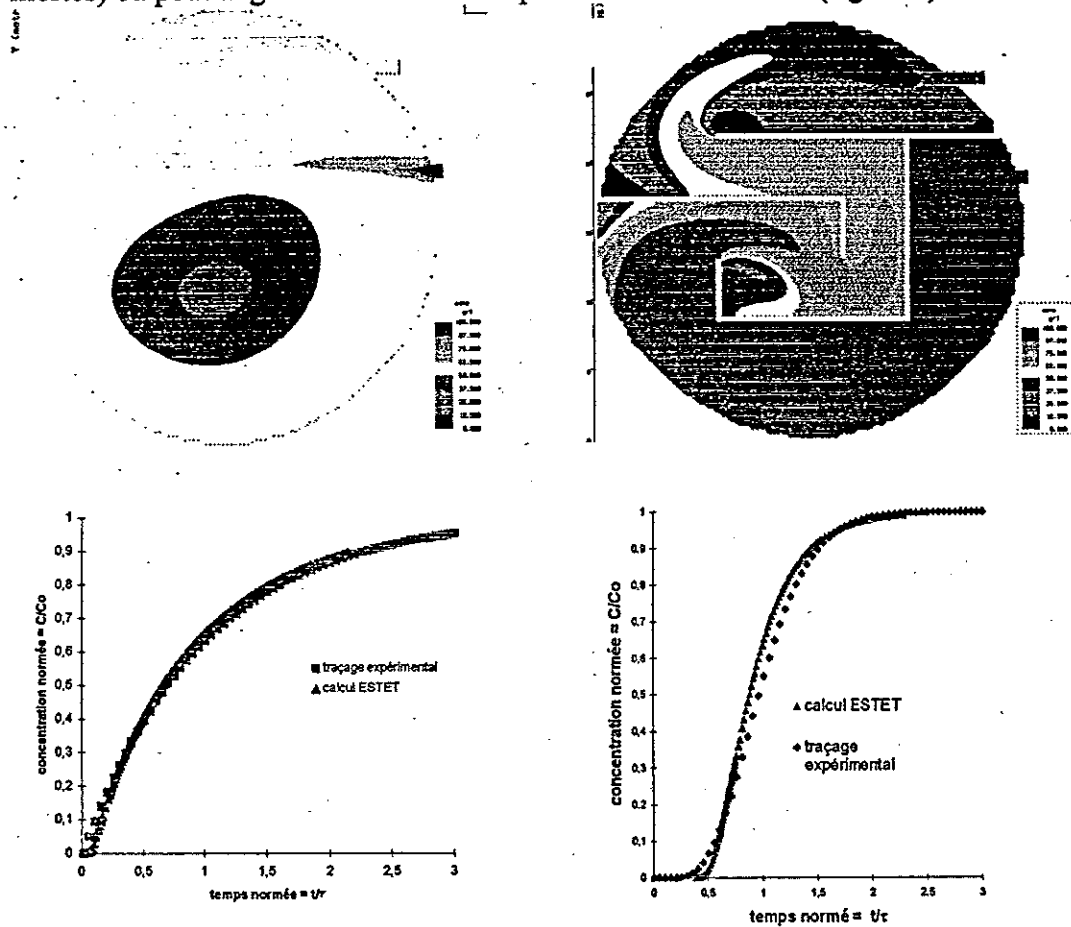


Figure 3. Distribution de la concentration de traceur au temps $t = \tau$ (réponse à un échelon) et courbes DTS simulées et expérimentales, avant (à droite) et après (à gauche aménagement)

V. TRACAGE DANS DES PROCÉDES DIPHASIQUES

On a effectué un traçage numérique analogue à un traçage expérimental dans un air-lift représenté sur la figure 4. L'évolution au cours du temps de la concentration mesurée et simulée est tracée sur la figure 5.

L'exploitation de ces résultats est synthétisée dans le tableau suivant.

	t_c (s)	Pe	V_c (m/s)	E_{ZL} (m^2/s)
Expérience	25	30	0.2	4.10^{-2}
Simulation 2D	25	57	0.2	$2,1.10^{-2}$
Simulation 3D	25	37	0.2	$3.2.10^{-2}$

On peut déterminer les coefficients de dispersion axiale ou les nombres de Péclet expérimentaux et numériques à partir du lissage de ces courbes par le modèle de Voncken. Les simulations numériques développées en 3D reproduisent bien la

dispersion dans l'air-lift, contrairement aux simulations en 2D qui sous-estiment la dispersion spatiale liée au confinement de l'écoulement dans la troisième direction.

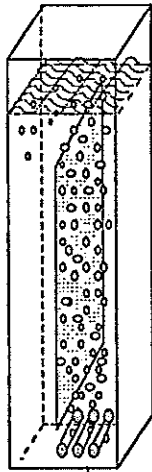


Figure 4. Pilote

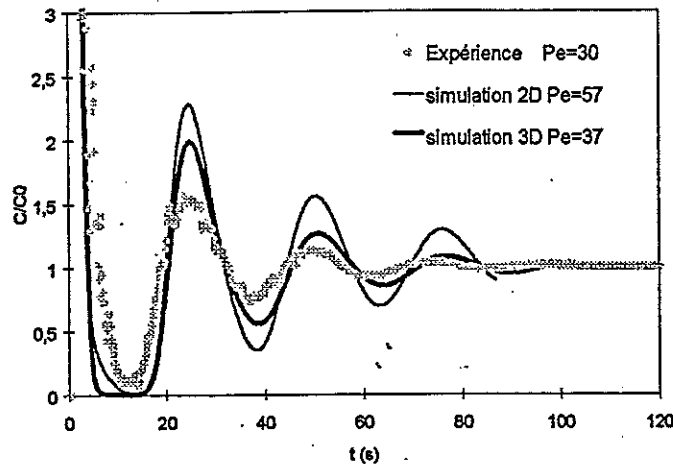


Figure 5. Evolution de la concentration au cours du temps points expérimentaux et courbes numériques

VI- CONCLUSION :

La Mécanique des Fluides Numérique permet de simuler des traçages en écoulement monophasique turbulent en géométrie complexe (plusieurs entrées, plusieurs sorties) : le problème réside dans le choix du modèle de turbulence, du nombre de Schmidt et dans le contrôle de la diffusion numérique. En écoulement diphasique, on peut aussi réaliser des traçages, dans la phase continue : le problème réside dans les modèles de transferts interfaciaux (estimation des coefficients de transfert et des diamètres de bulles). Dans les confrontations entre simulation et expérience, il ne s'agit pas de faire passer « à tout prix » les points numériques par les points expérimentaux ; il s'agit au contraire d'évaluer les potentialités de la mécanique des fluides numérique à reproduire partiellement l'expérience : cela suppose de minimiser les erreurs numériques mais surtout d'évaluer et d'améliorer la modélisation. Dans cet objectif, la mécanique des fluides numérique permet d'orienter les recherches sur les modélisations auxquelles la physique et la simulation sont le plus sensibles.

Il faut mentionner aussi les limites de la mécanique des fluides numériques pour réaliser des DTS dans certains cas d'application. Les limites peuvent provenir de la complexité de la géométrie (lits fixes, poreux, ...) ou de la complexité de la physique. En particulier, dans les réacteurs diphasiques (colonne à bulles, lit fluidisé), où la présence de la phase dispersée ne peut plus être considérée comme une perturbation de l'écoulement monophasique, l'extrapolation des modèles « classiques » établis en écoulement monophasique est pour le moins hasardeuse ! Par ailleurs, pour les réacteurs polyphasiques se pose le problème de la fermeture des transferts interfaciaux (aire interfaciale et coefficients de transfert associés de traînée, de masse ajoutée, voire de portance) : ce problème est ouvert dans le cas d'inclusions de forme complexe, dans le cas de systèmes polydispersés, dans le cas d'inclusions fluide soumises à rupture et coalescence.

Remerciements : Les auteurs remercient le CIRSEE-Lyonaise des Eaux pour sa collaboration en recherche et son soutien.

MECANISMES DE MALAXAGE DANS UN MALAXEUR BIPALE A MOUVEMENT PLANETAIRE : SIMULATION NUMERIQUE 3D ET ETUDE EXPERIMENTALE PAR TRACAGE FLUORIMETRIQUE

P. TANGUY, F. BERTRAND, F. THIBAUT

◇ RHEOTEK Inc. - 5500-311, place de Jumonville
Canada - H1M 3L8 MONTREAL

F. FAGES

◇ Université de BORDEAUX I - LCOO
251, cours de la Libération - 33405 TALENCE CEDEX

M. LAMOTTE

◇ Université de BORDEAUX I - LPTC
251, cours de la Libération - 33405 TALENCE CEDEX

E. GIRAUD, M.H. FAGES

◇ SNPE - BP 57 - 33166 SAINT MEDARD EN JALLES

On a étudié les mécanismes de malaxage dans un malaxeur bipale à mouvement planétaire. Pour la détermination des temps de mélange, deux approches ont été utilisées: la simulation numérique 3D et des mesures par traçage fluorimétrique. On montre qu'un accord raisonnable est obtenu entre ces deux approches.

I. INTRODUCTION

Le mélange de charges dans des liants polymériques visqueux en mode discontinu est une opération unitaire clé dans la fabrication des matériaux énergétiques composites. Les technologies de mélange bien adaptées à cette opération sont limitées en raison de la viscosité extrême du milieu et utilisent le plus souvent des malaxeurs à pales multiples. La présente étude a pour objet de comparer la prédiction des temps de mélange obtenus dans un malaxeur de type MPV1G (Figure 1) par simulation numérique (logiciel POLY3D de Rhéotek) aux mesures effectuées par une technique fluorimétrique. Ces mesures ont été réalisées sur des polybutadiènes à terminaison hydroxyle (PBHT) réticulés et non réticulés.

II. METHODOLOGIE

Le principe de la méthode expérimentale repose sur la détection par fluorescence en un point fixe à l'intérieur du malaxeur de la variation de concentration d'un composé traceur dont une très faible quantité est placée initialement en surface. Le dispositif optique comprend deux fibres optiques multimode: l'une conduit la lumière excitatrice focalisée à travers la paroi du malaxeur, l'autre orientée à environ 31° de l'axe de la première, capte la fluorescence émise par le composé sonde. L'intersection des volumes "vus" par les deux fibres, quelques mm³, constitue l'élément de volume sondé. Les intensités de fluorescence sont mesurées à l'aide d'un détecteur CCD. Le temps de mélange estimé d'après les courbes de variation du signal en fonction du temps est défini comme le temps au bout duquel l'intensité de fluorescence atteint la valeur moyenne minimum. Il est déterminé avec une précision correspondant à environ un tour de pale.

La simulation par ordinateur des écoulements est une autre manière d'aborder l'étude des processus de malaxage. L'écoulement dans le malaxeur est gouverné par les équations de mouvement de Navier-Stokes. Avec le logiciel POLY3D, ces équations sont résolues par la méthode des éléments finis 3D couplée à une représentation par domaine fictif des pales (méthode des éléments finis virtuels)(1). Cette approche permet de traiter la configuration évolutive du domaine d'écoulement (la topologie des pales évolue dans le temps) sans avoir à recréer un maillage à chaque pas de temps, ni utiliser de techniques de décomposition de domaines (maillages glissants ou référentiels multiples) aux propriétés de convergence inconnues. Sur le plan pratique, la méthode des éléments finis virtuels consiste à prendre en compte les parties mobiles de la géométrie au moyen de techniques d'optimisation avec contraintes. Ces parties mobiles sont approchées à l'aide de points de contrôle sur lesquels des contraintes cinématiques sont imposées puis intégrées aux équations d'échange au moyen de multiplicateurs de Lagrange et d'un algorithme d'Uzawa.

La simulation numérique des écoulements permet d'accéder directement au champ de vitesse et donc au mécanisme de dispersion dans la cuve de malaxage. En effet, un calcul de trajectoires d'éléments de fluide peut être effectué en intégrant le champ de vitesse dans le temps:

$$\underline{X}^{t+\Delta t} = \underline{X}^t + \int_t^{t+\Delta t} \underline{v} dt$$

Un algorithme de Runge-Kutta à pas variable d'ordre 4 garantit une précision d'intégration suffisante (2).

Nous présentons sur les Figures 1 et 2 (vue de haut et vue de côté) la position des points d'injection des traceurs numériques (identifiés par un tétraèdre encerclé). Ces points seront identifiés respectivement par les nombres 5000 et 3154 sur les figures présentées ultérieurement (les nombres correspondent au numéro du tétraèdre dans le maillage d'éléments finis). La position sur la Figure 2 est sensiblement identique à celle utilisée dans les travaux expérimentaux.

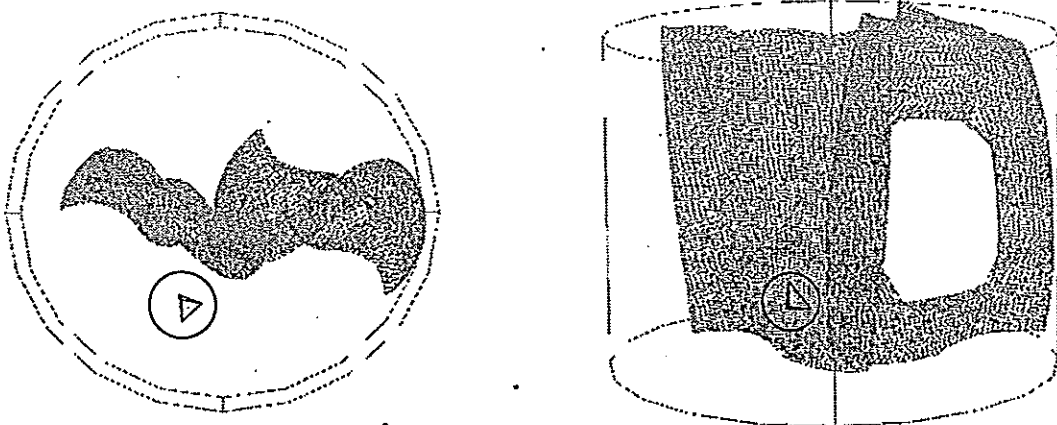


Figure 1: Point d'injection bas (tétraèdre n° 5000)

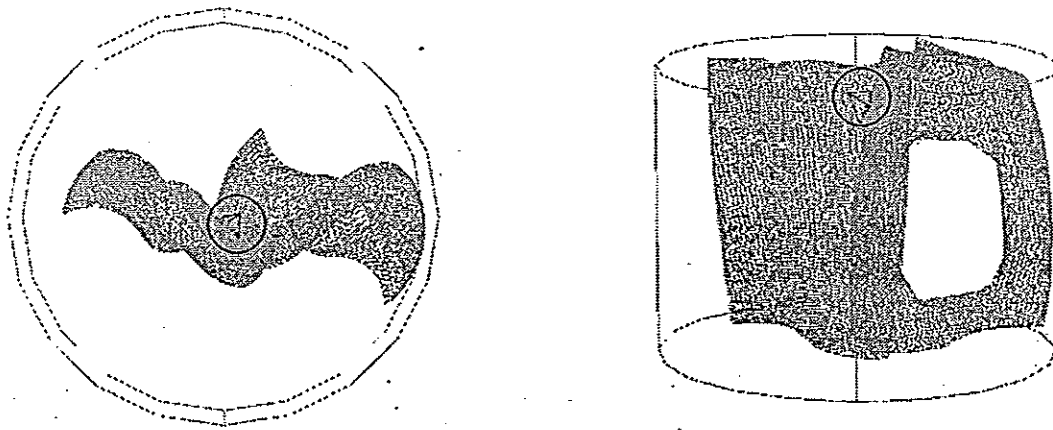


Figure 2: Point d'injection haut (tétraèdre n° 3154)

Chaque position correspond à l'injection d'un agglomérat de 1000 particules. Le parcours de ces particules est par la suite analysé individuellement et une statistique de présence dans les différents éléments finis du malaxeur est effectuée. Une distribution de concentration volumique est alors établie, l'évolution de la valeur de l'écart-type de la concentration permettant finalement de suivre le processus de dispersion et d'homogénéisation au cours du temps. Le calcul de trajectoires fournit donc deux types de résultats: d'une part, la valeur du temps de mélange à partir du point d'injection considéré, et d'autre part le mécanisme de dispersion par visualisation des trajectoires.

CONDITIONS DES SIMULATIONS

Fluide	Viscosité (Pa.s)	Masse volumique (kg/m ³)	Vitesse du carrousel (tours/min)
PBHT non réticulé	13	920	2, 3, 6, 12 et 16
PBHT réticulé	544	920	1,33 et 3

Dans le malaxeur MPV1G, les rapports de vitesse entre le carrousel et la pale lente, et entre la pale lente et la pale rapide sont de 2.

RESULTATS

Nous présentons à la Figure 3 un résultat typique de temps de mélange et le mécanisme de dispersion (suivi de 25 trajectoires) obtenus pour le PBHT non réticulé à une vitesse de carrousel de 12 tours/min. La figure contient trois courbes: deux courbes de variation temporelle de la dispersion calculée à partir des 2 points d'injection 5000 et 3154 et la courbe expérimentale obtenue par traçage fluorimétrique. Le tableau I indique le temps de mélange issu de ces différentes courbes. Le temps de mélange numérique est une moyenne effectuée à partir des deux courbes; une erreur d'incertitude lui est donc associée qui donne une indication de la gamme de temps de mélange dans le malaxeur.

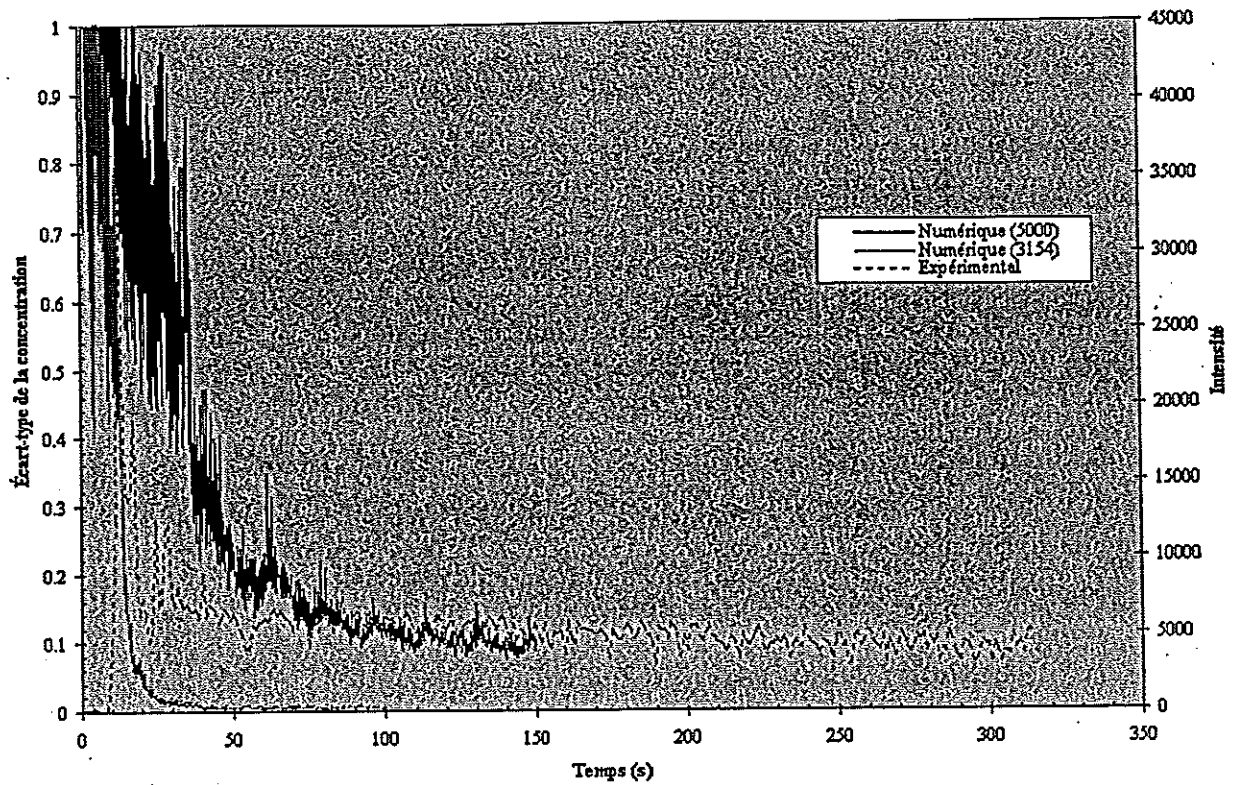


Figure 3: Mélange et dispersion pour le PBHT non réticulé à 12 tours/min

PBHT	Vitesse (tours/min)	Temps de mélange exp. (s)	Temps de mélange num. (s)	Variation du temps de mélange numérique
non réticulé	12	70	60	30

Tableau I: Temps de mélange pour le PBHT non réticulé à 12 tours/min

La Figure 4 illustre le mécanisme de dispersion après 2 tours de carrousel. On constate un excellente dispersion radiale et une amorce de pompage axial.

Nous montrons à la Figure 5 la variation du temps de mélange en fonction de la vitesse du carrousel. Nous rappelons qu'en régime laminaire, pour un fluide newtonien à température constante, le produit du temps de mélange t_m par la vitesse d'agitation N est une constante (appelée θ_m dans la littérature). Sur la Figure 5, nous pouvons voir que le logarithme du temps de mélange varie linéairement avec le logarithme de la vitesse du carrousel. La pente de la courbe numérique est de -0,93 et la pente de la courbe expérimentale de -0,76. La valeur "théorique" de la pente est de -1.

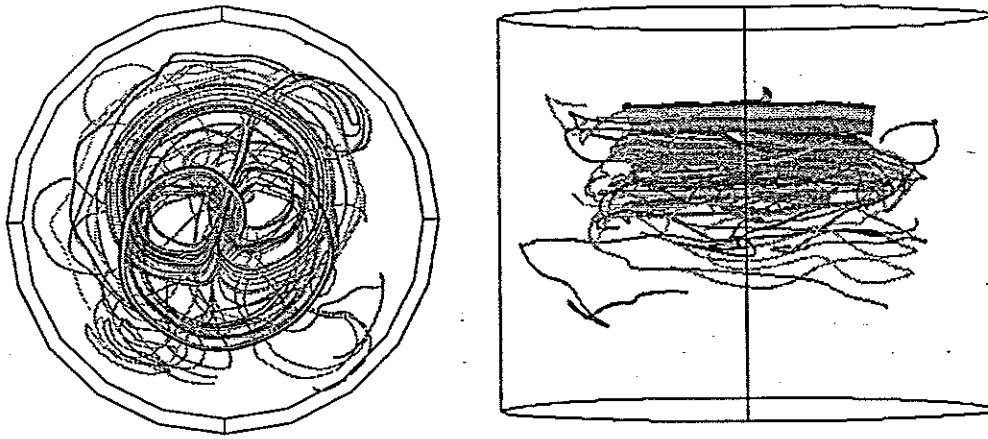


Figure 4: Mécanisme de dispersion après 2 tours de carrousel

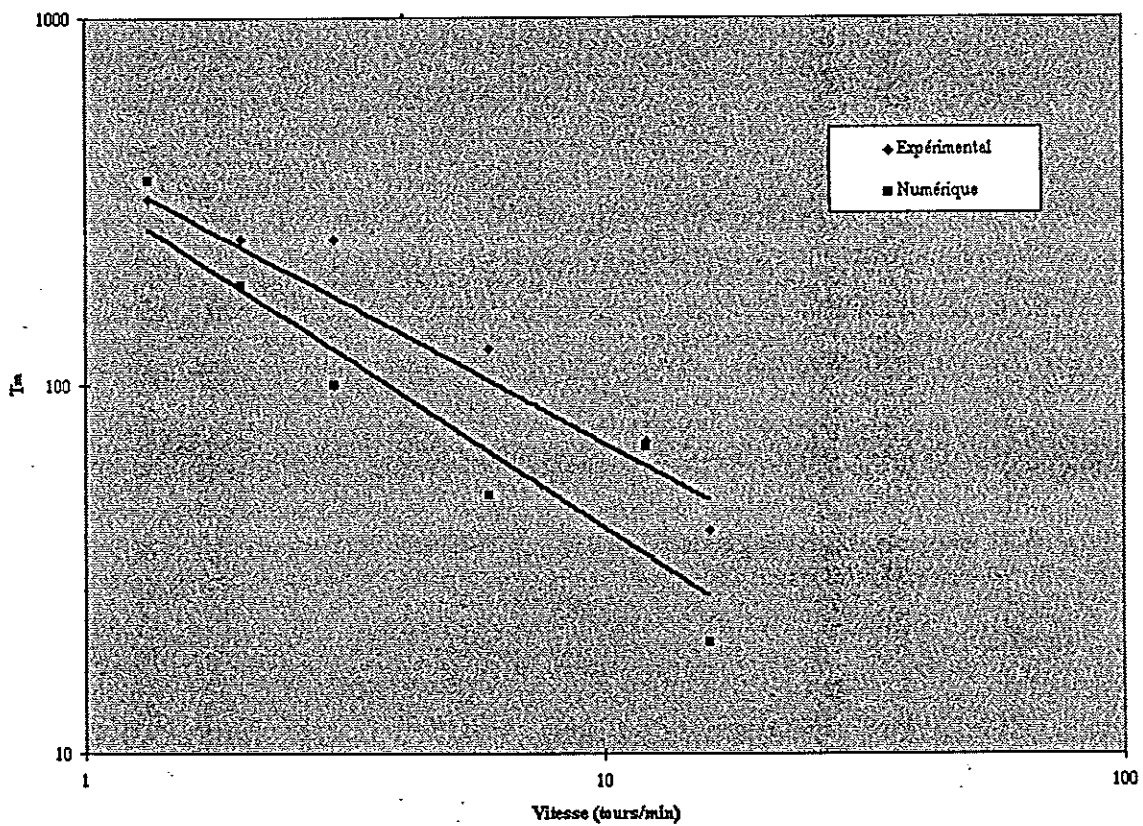


Figure 5: Variation du temps de mélange en fonction de la vitesse du carrousel

Nous montrons à la Figure 6 un histogramme des temps de malaxage numériques et expérimentaux. La valeur de la constante θ_m est de 6 numériquement et de 7 expérimentalement. Ces valeurs correspondent au nombre de tours de carrousel nécessaires pour assurer le mélange.

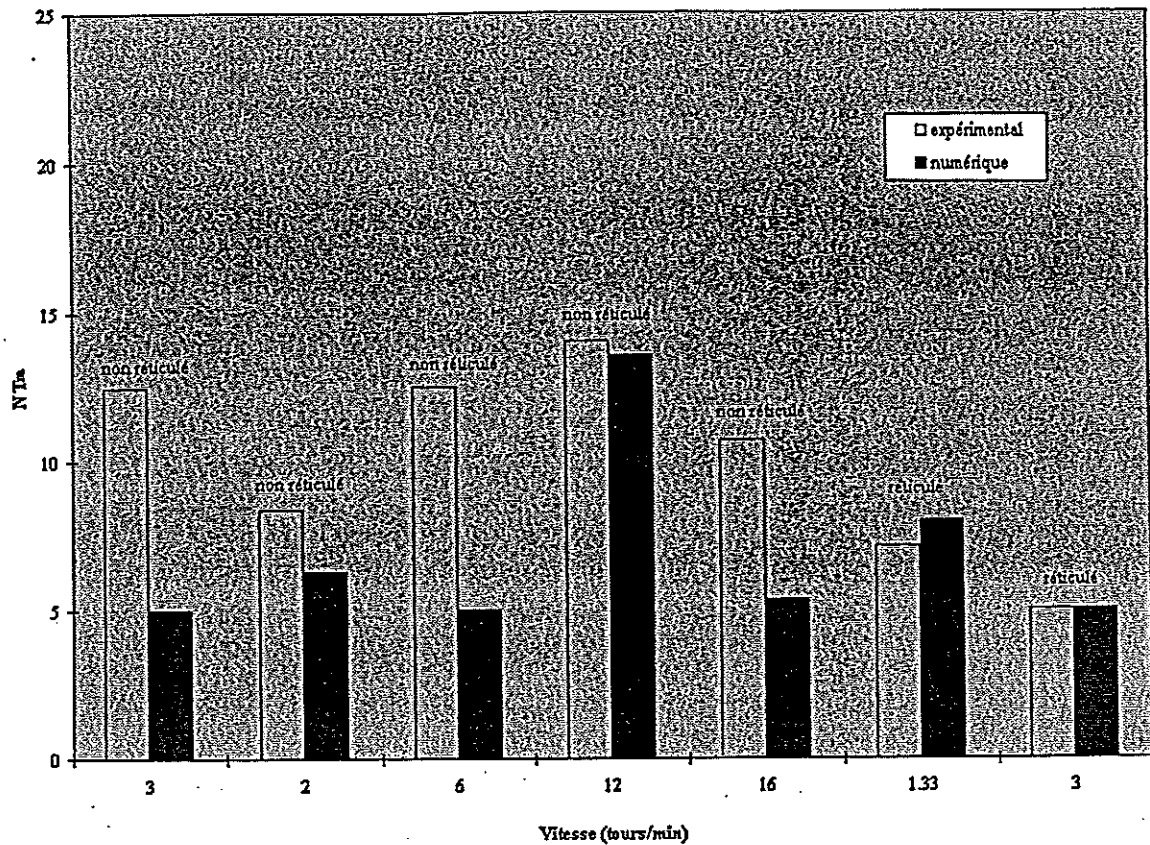


Figure 6: Histogramme des temps de mélange

CONCLUSION

On a étudié les mécanismes de malaxage dans un malaxeur bipale à mouvement planétaire numériquement et expérimentalement. La comparaison entre les deux approches montre un accord raisonnable, ce qui valide l'approche numérique dans un cas de mélange industriel d'une extrême complexité.

(1) F. Bertrand, P.A. Tanguy and F. Thibault, A 3D Fictitious Domain Method for Incompressible Fluid Flow Problems, *Int. J. Num. Meth. Fluids*, **25**, 719-736 (1997)

(2) J. de La Villéon, F. Bertrand, P.A. Tanguy, R. Labrie, J. Bousquet, and D. Leboviev, Numerical Investigation of the Mixing Efficiency of Helical Ribbons, *AIChE J.*, **44**, 972-977 (1998)

DEVELOPPEMENT D'UN OUTIL DE CALCUL APPLIQUE A LA CARACTERISATION D'UNE VENTILATION PAR TRACAGE ET BASE SUR L'APPROCHE SYSTEMIQUE

S. DRECOURT, J.C. LABORDE

<> IPSN - CEA Saclay
Bât. 383

91191 GIF s/YVETTE Cedex

S. DOMENECH, P. FLOQUET, C. LAQUERBE, D. VIGUIER

<> ENSIGC - LGC

18, chemin de la Loge

31078 TOULOUSE Cedex

RESUME

Cet article a trait au développement d'un code de calcul permettant la modélisation des écoulements et des transferts associés dans des enceintes ventilées pouvant être de grande taille et fortement encombrées. La stratégie de modélisation adoptée s'appuie sur une approche utilisée en génie des procédés, appelée "approche systémique"; elle permet la représentation d'écoulements complexes par un agencement de modèles d'écoulements idéaux, construit à partir de l'interprétation d'une courbe de distribution des temps de séjour DTS, obtenue expérimentalement par traçage gazeux. Les aspects essentiels de l'approche mise en oeuvre sont tout d'abord présentés. L'originalité du logiciel est en particulier basée sur une procédure d'évolution stochastique de la structure du modèle. Enfin, les premiers résultats relatifs à la stratégie d'évaluation du logiciel sont présentés. Ces exemples permettent de valider l'outil sur des cas élémentaires de référence.

I. INTRODUCTION

Dans l'industrie nucléaire, la ventilation est l'auxiliaire essentiel du confinement dynamique et est utilisée pour parfaire le confinement des produits radioactifs dans un bâtiment ou un local. Les contaminants sous forme de gaz ou d'aérosols se répartissent de façon non homogène, en raison des problèmes de mélange induits par des écoulements tourbillonnaires. La connaissance de la distribution de ces contaminants dans l'enceinte s'avère nécessaire à la maîtrise des risques. La caractérisation des écoulements responsables de leur répartition constitue donc une étape incontournable.

Plusieurs approches peuvent être envisagées en vue de la modélisation des écoulements dans des enceintes ventilées. L'approche empirique, non prédictive, consiste à réaliser des études expérimentales sur des maquettes de petite taille ou sur les installations elles-mêmes. L'approche locale ou différentielle consiste à résoudre les équations de continuité en tout point du local, couplées éventuellement à un modèle de turbulence. Cette approche est difficilement envisageable dans notre cas, car les locaux rencontrés dans l'industrie nucléaire sont généralement de grande dimension et fortement encombrés. L'approche retenue, appelée "approche systémique", est basée sur la théorie de la Distribution des Temps de Séjour (DTS) (1). L'information nécessaire à une modélisation basée sur cette approche est contenue dans la courbe expérimentale de DTS, qui permet de modéliser l'écoulement réel présent dans l'enceinte par association et combinaison de modèles d'écoulements idéaux. A l'heure actuelle, il n'existe aucune procédure de construction assistée par ordinateur de ces modèles: ces derniers sont imaginés de manière intuitive par

l'utilisateur et leurs paramètres sont obtenus à l'aide d'une procédure d'identification par minimisation de l'écart entre la réponse expérimentale et la réponse simulée par le modèle. En revanche, le logiciel présenté se propose de déterminer la structure optimale de l'agencement des modèles idéaux, ainsi que les paramètres opératoires associés.

II. POSITION DU PROBLEME

Nous situons principalement le problème au niveau d'un local isolé. Le local possède un système de ventilation générale, composé d'un réseau de soufflage et d'extraction. Des infiltrations ou des fuites peuvent se produire. Le système de ventilation induit diverses zones d'écoulements au sein de l'enceinte. Le problème est alors le suivant : il s'agit de prédire où et en quelle quantité un contaminant sera transféré, à la suite d'un dégagement en un point source identifié ; en particulier, quelle quantité sera inhalée par les travailleurs ou transférée près des balises de radioprotection disposées dans l'enceinte.

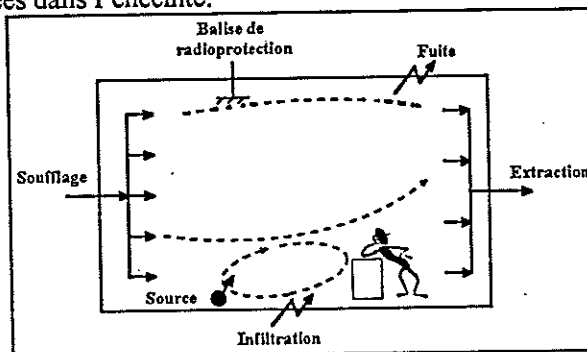


Figure 1 : Schématisation du problème dans un local ventilé

II.1 Principes généraux de l'approche

Les courbes de DTS, nécessaires à la modélisation, sont déterminées expérimentalement au moyen de traceurs. Les plus couramment utilisés sont des traceurs gazeux du type hélium ou hexafluorure de soufre. On applique à l'aide du traceur un certain signal à l'entrée du local et on examine sa réponse à la sortie. La DTS, pour diverses perturbations en concentration à l'entrée du système, se déduit directement de la concentration de traceur à la sortie. Par exemple, dans le cas d'une impulsion de type Dirac, où $C_1(t)$ est la réponse et $E(t)$ la distribution de temps de séjour, on a :

$$E(t) = \frac{C_1(t)}{\int_0^{\infty} C_1(t).dt}$$

Le principe de la méthode est alors de construire une structure constituée de combinaisons de modèles d'écoulement idéaux qui sont l'écoulement piston TUB, l'écoulement parfaitement mélangé RAC, le by-pass et le recyclage. Chaque modèle élémentaire est caractérisé par ses propres paramètres, comme le temps de séjour ou le volume. L'ajustement de la structure est réalisé à partir de la comparaison entre la réponse expérimentale et la réponse du modèle au stimulus imposé.

II.2 Stratégie générale

La stratégie de résolution adoptée est une approche découplée de l'identification structurelle du modèle et de ses paramètres de fonctionnement, l'évolution de la structure n'étant réalisée qu'une fois les paramètres optimaux de cette structure établis. Deux procédures spécifiques sont ainsi mises en oeuvre pour chacune des deux étapes de l'identification : le problème maître réalise l'évolution de la structure du modèle qui va être proposée au problème esclave, en vue de l'identification de ses paramètres (cf. figure 2).

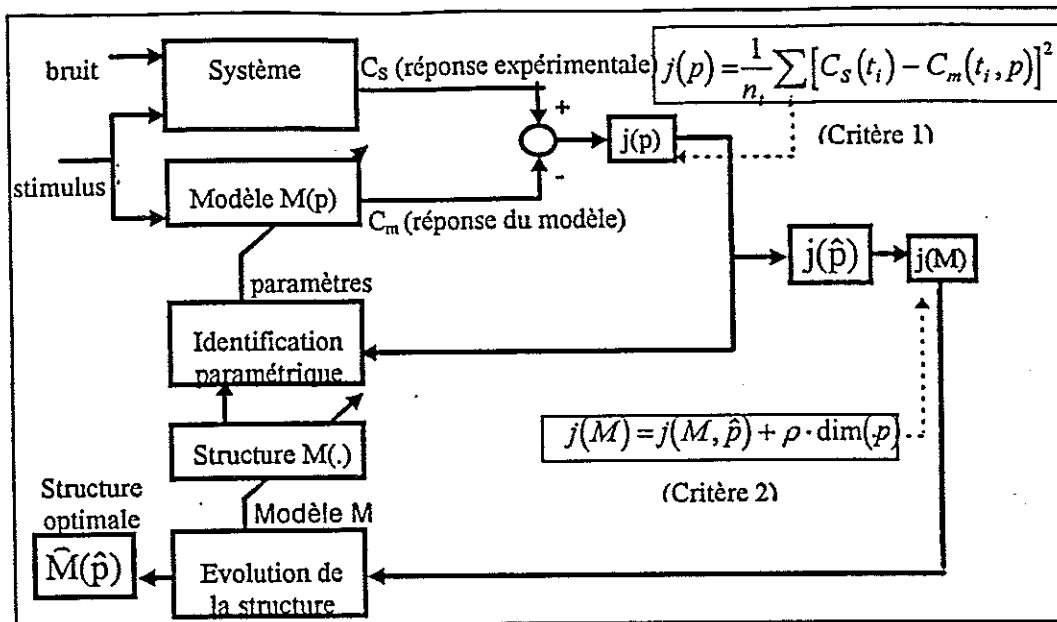


Figure 2 : Identification de modèles à structure variable

III STRUCTURE DU LOGICIEL

III.1. Module d'identification paramétrique

Ce module correspond au problème esclave d'identification de paramètres pour un modèle à structure figée. Il permet de minimiser la fonction objectif $j(p)$, en optimisant l'ensemble des paramètres du modèle (volumes dans les modèles élémentaires, débits dans les branches) :

$$j(p) = \frac{1}{n_t} \sum_i [C_s(t_i) - C_m(t_i, p)]^2$$

où : n_t : nombre de points d'échantillonnage
 C_s : réponse expérimentale
 C_m : réponse du modèle
 p : vecteur des paramètres du modèle
 t_i : temps

Le problème se présente sous la forme d'un problème de minimisation d'un critère non linéaire, sous contraintes de bornes et contraintes linéaires par rapport aux paramètres. La méthode d'optimisation mise en oeuvre est la méthode de programmation linéaire la plus efficace et la plus utilisée à l'heure actuelle : la méthode de *programmation quadratique successive* (2).

III.2. Module d'identification structurelle

Les méthodes de programmation mathématique déterministes, à base d'algorithmiques stricts, n'ont pas été retenues dans notre cas en raison de l'importance du caractère combinatoire. Les méthodes stochastiques, fondées quant à elles sur des règles d'évolution probabilistes, offrent une grande liberté d'évolution structurelle, sans avoir besoin d'introduire de connaissance a priori sur la structure réelle de la solution et en s'affranchissant de la définition exacte de l'espace de recherche. De plus, elles ne nécessitent pas d'hypothèses sur les propriétés mathématiques du problème, en particulier sur la différentiabilité de la fonction objectif, ce qui est très appréciable dans le cas de problèmes non convexes. Cela permet notamment de s'extraire de minima locaux. Il faut toutefois noter que le but n'est pas de déterminer « le modèle unique » correspondant à la solution optimale, mais un modèle aussi simple que possible représentant au mieux les phénomènes d'écoulement dans l'enceinte.

Les deux méthodes proposées pour l'identification structurelle, le Recuit Simulé et les Algorithmes Génétiques, s'appuient sur un codage spécifique des solutions potentielles au problème considéré, et le font évoluer selon des mécanismes stochastiques propres à chaque méthode. Par la suite, seule la méthode du Recuit Simulé est présentée, car c'est la seule qui a fait l'objet jusqu'à présent de tests de validation.

L'algorithme du Recuit Simulé mime le recuit physique de solides. La technique consiste à atteindre, par une baisse contrôlée de la température d'un matériau préalablement chauffé, un état solide cristallisé stable, correspondant à un minimum absolu de l'énergie. Si la vitesse de refroidissement est trop rapide, ou si la température initiale n'est pas suffisamment haute, le solide n'atteint pas l'équilibre thermique à chaque température ; on aboutit alors à un état métastable correspondant à un minimum local d'énergie. L'équilibre thermique à une température donnée est caractérisé par une fonction de distribution de Boltzmann des états énergétiques : une transition peut subvenir d'un niveau énergétique bas vers un niveau plus haut, mais la probabilité est d'autant plus faible que la température est basse. Ce sont ces transitions qui sont supposées être responsables des mécanismes permettant d'atteindre un état final d'énergie minimale au lieu de rester bloqué dans un état métastable.

Metropolis et Kirkpatrick (3) ont proposé des algorithmes pour traiter, par analogies à ces mécanismes, des problèmes d'optimisation pour la recherche de configurations optimales. Partant d'un agencement de modèles idéaux $M(.)$ donné, correspondant à une température T particulière, de nouvelles structures $M'(.)$ sont générées de manière stochastique. Chaque nouvelle configuration est acceptée si $j(M') \leq j(M)$; si elle a pour effet d'augmenter le critère, on l'accepte avec une probabilité $p = \exp[-\Delta j / T]$, où Δj est la variation du critère résultant de la transformation effectuée ; c'est la règle de Metropolis. A une température élevée, cette probabilité est proche de l'unité, c'est-à-dire que la plupart des transitions vont être permises. Elle diminue puis tend vers 0 lorsque la température décroît. Un recuit adéquat produit l'état énergétique le plus bas, tandis qu'un refroidissement rapide génère une structure de plus haute énergie. Le paramètre « température », qui a la dimension du critère, apparaît ainsi comme un paramètre de contrôle primordial.

L'algorithme d'optimisation par Recuit Simulé est présenté figure 3 et commenté ci-après.

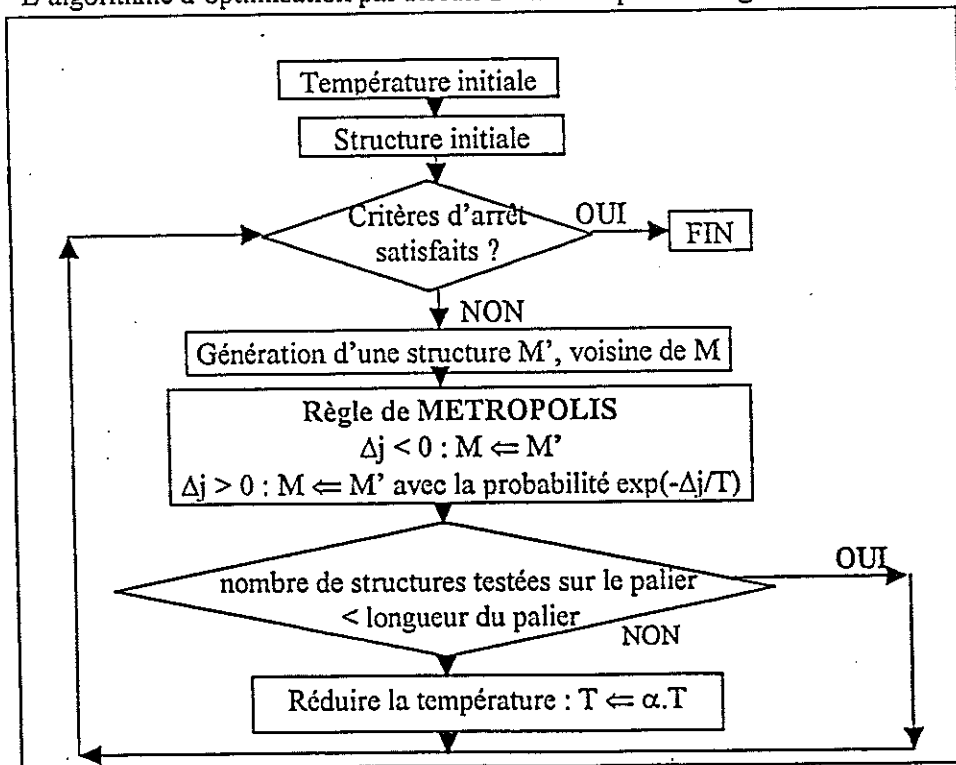


Figure 3 : Organigramme général de l'algorithme du Recuit Simulé

Le critère $j(M)$ retenu pour évaluer la qualité de la solution est composé de deux termes :

$$j(M) = j(M, \hat{p}) + \rho \cdot \dim(p)$$

- $j(M, \hat{p})$ correspond au critère d'erreur quadratique fourni par la boucle esclave pour le jeu de paramètres optimal \hat{p} de la structure M considérée,
- le terme $\rho \cdot \dim(p)$ correspond à un terme de pénalisation, proportionnel à la dimension du vecteur des paramètres de la structure M et donc à la complexité même du modèle. Le choix du facteur de pénalisation ρ est capital, car il permet d'obtenir le modèle le plus simple mais aussi le plus représentatif de l'écoulement dans l'enceinte étudiée.

♦ Dans le schéma de recuit retenu, la température décroît suivant un schéma géométrique :
 $T_{i+1} = \alpha \cdot T_i$ et $\alpha \in [0,1]$

De plus, on définit une longueur de palier de température correspondant au nombre de configurations qui vont être testées avant d'appliquer la règle de décroissance. Un paramètre délicat à fixer est la température initiale T_0 : elle est en effet spécifique à chaque cas traité. Il est souvent convenable de prendre pour valeur de T_0 un ordre de grandeur du critère de la structure initiale. Le codage des structures est abordé plus loin. Notons toutefois que la génération de structures voisines est réalisée par tirages aléatoires de la perturbation à appliquer (ajout ou suppression d'un module élémentaire) et du choix de la position de la perturbation au sein même de la structure en cours.

♦ Une structure initiale peut être générée aléatoirement, ou donnée par l'utilisateur.

♦ Les conditions d'arrêt de la procédure sont multiples :

- le critère est inférieur ou égal à une valeur de convergence donnée par l'utilisateur,
- la température minimale est atteinte,
- le nombre maximal de structures testées ou de paliers de température est atteint,
- un état stationnaire est atteint (non évolution du critère sur les n paliers de température précédents).

♦ Le codage des structures :

Tout modèle est décrit par un graphe orienté reliant les noeuds d'un réseau constitué de branches, association linéaire de modules d'écoulements idéaux.

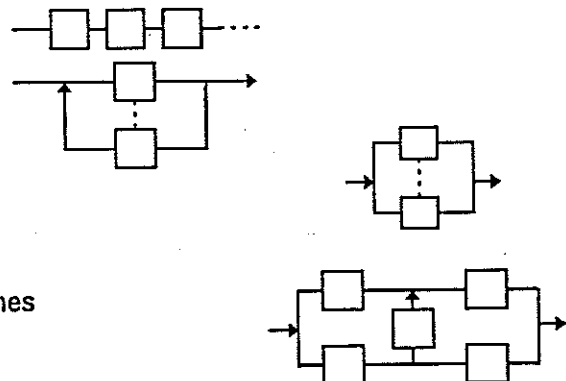
Le codage, pour lequel nous ne donnons que le principe, repose sur la décomposition successive de tout schéma en blocs élémentaires selon une hiérarchie bien déterminée. Les différents blocs intervenant dans la décomposition sont :

• cascade

• boucle de recyclage

• distribution en parallèle

• distribution intermédiaire entre 2 branches



Chaque bloc peut être composé à son tour, soit par un module d'écoulement élémentaire, soit par un autre bloc ou bien une combinaison de ceux-ci. La décomposition est effectuée de manière hiérarchique afin d'assurer son unicité. Le processus de décomposition est répété jusqu'à l'obtention de l'ensemble des modules d'écoulements élémentaires. Des règles de réorganisation des structures sont prises en compte afin d'assurer la discernabilité des structures.

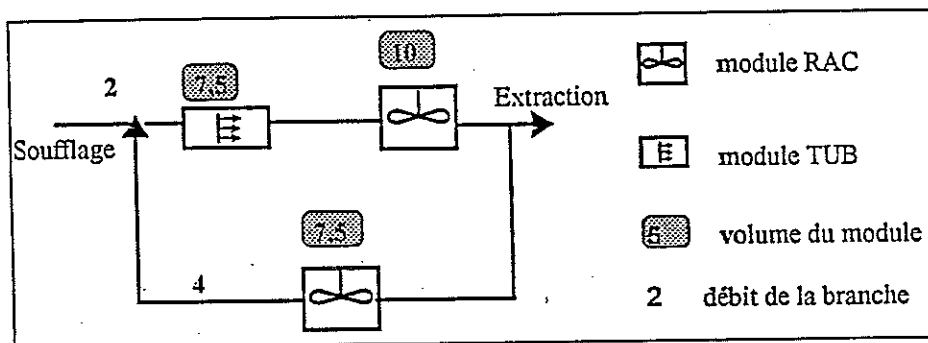
IV - EVALUATION NUMERIQUE DU LOGICIEL

L'évaluation du logiciel est actuellement menée selon deux axes. Une étude numérique a tout d'abord été envisagée à partir d'un cas théorique, c'est-à-dire à partir d'une courbe expérimentale correspondant à un modèle dont la structure et les paramètres (débits et volumes) sont connus. Elle doit permettre de juger la stabilité du logiciel, c'est-à-dire sa capacité à retrouver le modèle exact.

Une étude expérimentale, actuellement en cours, à partir d'une courbe expérimentale obtenue sur une installation du laboratoire où il est possible de configurer précisément le système de ventilation, est également nécessaire pour évaluer la pertinence des résultats du logiciel par rapport aux écoulements réels présents dans l'enceinte.

L'étude numérique a été réalisée sur plusieurs types de configurations, à partir de la courbe expérimentale obtenue par simulation d'un modèle fictif tel que celui présenté figure 4. La présence d'un bruit fictif a été simulée par l'ajout d'une variable aléatoire à la réponse expérimentale : le bruit suit une loi de distribution gaussienne caractérisée par un écart-type de 1% ; les courbes obtenues par traçage présentent en effet souvent un bruit de mesure à prendre en compte.

Remarque : les unités des différentes grandeurs (débits, volumes, temps) sont arbitraires.



Des résultats ont été obtenus en réalisant les identifications structurelles avec le schéma de Recuit ($T_0 = 0.01$, $\alpha = 0.7$, 10 structures par palier), avec un mélangeur parfait pour modèle initial, et le facteur de pénalisation $\rho = 10^{-5}$. Dix essais ont été effectués avec un même paramétrage du logiciel pour prendre en compte le caractère aléatoire.

La structure exacte est retrouvée entre trois et cinq fois sur dix, selon le type de stimulus appliqué à l'entrée du système ; ce résultat est satisfaisant, compte tenu du faible nombre de structures testées et du temps de calcul compris entre deux et six heures (sur station DEC Alpha 8 400). Notons par ailleurs que beaucoup d'essais ont permis d'obtenir des modèles ajustant convenablement la courbe expérimentale.

La figure 5 permet de mettre en évidence les diminutions globales du pourcentage de structures testées acceptées et du pourcentage de dégradations du critère acceptées par chaque palier au cours d'un calcul pour lequel la structure exacte a été retrouvée. Le schéma de Recuit choisi a en effet permis d'élargir l'espace de recherche au début de l'identification en acceptant la plupart des structures testées, puis de le restreindre par la suite dès que des structures de critères plus faibles sont rencontrées.

L'évolution des différents critères intervenant au cours du même calcul est représentée figure 6. Elle met en évidence le rejet de nombreuses structures à partir du 9^{ème} palier. Enfin, pour le cas présenté, le calcul s'est arrêté au bout de 150 structures, le critère n'ayant pas évolué sur les deux

paliers précédents.

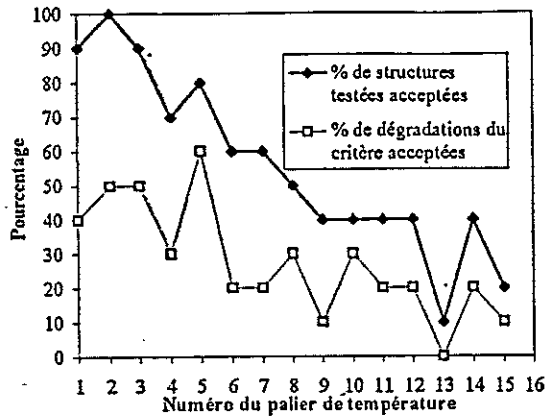


Figure 5 : Evolution de la règle de Metropolis

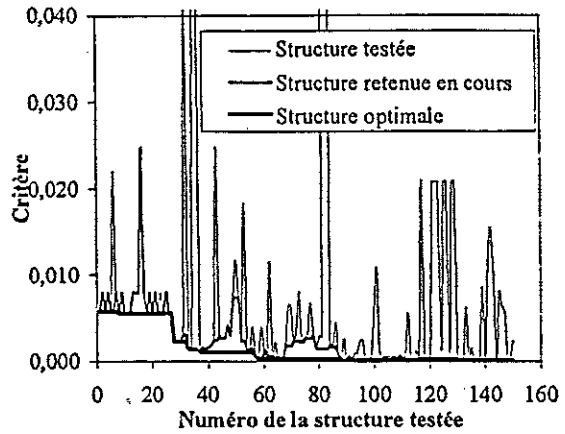


Figure 6 : Evolution des différents critères

V. CONCLUSION

Cet article montre les fonctionnalités et l'originalité d'un outil de calcul dédié à la caractérisation des écoulements par l'approche systémique.

Les procédures d'évolution de la structure du modèle mises en oeuvre et en cours de qualification doivent permettre une meilleure résolution du problème aux experts en ventilation.

REFERENCES

- (1) Olander L., Dessagne J.M., Bonthoux F. and Leclerc J.P., A study of general ventilation and exhaust ventilation in industrial premises using residence times theory, *Environmental Progress*, Vol. 14 n°3, 159, 163 (1995)
- (2) Powell M.J.D., A tolerant algorithm for linearly constrained optimization calculation, DAMTP Report NA17, University of Cambridge (1988)
- (3) Kirkpatrick S., Gellat C.D. and Vecchi M.P., Optimization by simulated annealing, *Science*, n°220, 671-680 (1983)

UTILISATION D'UN TRACEUR FLUORESCENT POUR CARACTERISER LA TURBULENCE

E. GAUDIN, J.E. WESFREID



ESPCI - LPMMH
10, rue Vauquelin
75231 PARIS Cedex 5

Abstract

Il est reconnu maintenant que la présence de structures cohérentes peut influencer les propriétés statistiques des champs de vitesse et de concentration. Nous analysons l'influence des tourbillons longitudinaux de Görtler sur les propriétés de mélange d'un scalaire passif. Nous calculons les fonctions de structures spatiales de la concentration sans l'aide de l'hypothèse de Taylor.

I. INTRODUCTION

La caractérisation des écoulements turbulents a été faite avec succès par Kolmogorov (1) pour les fonctions de corrélation de bas ordre de la vitesse. Cependant pour les moments d'ordre supérieur à 4, l'accord entre les mesures expérimentales et la prédiction théorique de Kolmogorov n'existe plus. L'intermittence, responsable de ces déviations, a été prise en compte dans de nombreux modèles, y compris par Kolmogorov (2). Les hypothèses sur lesquelles est basée la théorie de Kolmogorov (K41) sont : l'homogénéité, l'isotropie aux petites échelles et, à grand nombre de Reynolds Re , l'existence d'une zone inertielle dans laquelle l'énergie serait transférée à un taux constant ϵ , à partir de l'échelle d'injection L jusqu'à celle de la dissipation η . Ces deux échelles sont reliées entre elles par la relation $\eta \sim L Re^{-3/4}$. On peut aussi définir par dimension l'échelle de Kolmogorov en fonction de la dissipation d'énergie et de la viscosité du fluide ν par $\eta \sim (\nu^3/\epsilon)^{1/4}$.

Cependant il est difficile d'accéder aux fonctions de corrélation d'ordre élevés. Cela demande de grands nombres de points afin d'obtenir une convergence statistique correcte des moments. L'étude du champ de vitesse turbulent est également délicate à, car il est difficile d'obtenir des écoulements à grands nombres de Reynolds dans de petites installations(3).

L'avantage de l'étude de la turbulence en présence de structures cohérentes réside dans la connaissance de ces structures. Nous utilisons l'instabilité de Görtler comme moteur de la turbulence. C'est une instabilité qui a été bien étudiée (4, 5). Elle est utilisée, au delà du seuil d'instabilité dans de nombreuses applications, comme dans les mélangeurs chimiques passifs ou bien comme générateur de chaos lagrangien (6).

Il est un autre avantage à utiliser un traceur passif pour étudier la turbulence. Le comportement anormal du scalaire est observable à plus faible nombre de Reynolds(7)

et pour des fonctions de corrélations d'ordre plus bas(8). De récents développements mathématiques (9, 10) ont permis d'ouvrir de nouveaux champs d'investigation pour la caractérisation de la turbulence. La température est souvent utilisée pour simuler le traceur passif, cependant sa passivité est difficile à obtenir expérimentalement. L'utilisation de la fluoresceïne permet de se rapprocher des simulations lagrangiennes (11).

L'écoulement turbulent d'un fluide de viscosité ν , est décrit par l'équation de Naviers-Stockes

$$\partial_t v + v \cdot \nabla v = \nu \Delta v,$$

qui est accompagnée dans le cas d'un fluide incompressible par :

$$\nabla \cdot v = 0.$$

Les fluctuations d'un scalaire θ , de diffusivité κ , dans un écoulement turbulent suivent l'équation de convection diffusion :

$$\partial_t \theta + v \cdot \nabla \theta = \kappa \Delta \theta, \quad (1)$$

En plus du nombre de Reynolds $Re = UL/\nu$, nous avons à considérer le nombre de Schmidt $Sc = \nu/\kappa$ qui est dans notre cas de l'ordre de 2000.

II. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les expériences se font dans un tunnel hydrodynamique de section 10x5 cm. Ce tunnel permet un contrôle précis de la vitesse du fluide. Il peut fonctionner en circuit fermé pour les mesures de vitesse ou en circuit ouvert pour les mesures de concentration. Les mesures de vitesse sont faites par vélocimétrie doppler laser. Nous utilisons un laser Argon-ion de 80 mW sur la raie d'absorption du colorant pour les mesures de concentration. Le traceur utilisé est de la fluoresceïne disodium, qui absorbe sur 480 nm et réémet sur 515 nm. La lumière fluorescée est recueillie par une caméra linéaire de très haute sensibilité (2048 SL, Lord Ingénierie). Nous alignons la barrette de 2048 pixels sur le faisceau laser. Pour éviter la diffusion directe du laser par les particules présentes dans l'écoulement, nous filtrons le signal réémis (filtre Corion). La concentration est donc acquise simultanément en 2048 points de l'espace, ce qui nous évite d'utiliser l'hypothèse de flot gélé de Taylor. Cette hypothèse induit de légers changements statistiques (12).

Les caractéristiques de l'écoulement sont les suivantes : un nombre de Reynolds extérieur $Re \sim 14000$ et un taux de turbulence de l'ordre de 10%. Suivant le type de mesures nous pouvons injecter le colorant en nappe ou en volume de façon homogène. Chaque pixel couvre une étendue latérale de 30 μm , ce qui permet une très bonne résolution des échelles dissipatives.

III. LES FONCTIONS DE STRUCTURE

Suivant les hypothèses de la théorie qui décrit la turbulence, il est des quantités qui ne dépendent pas de la géométrie de l'écoulement, ni de l'échelle intégrale, là où est injectée l'énergie. Ces sont les fonctions de corrélation à plusieurs points, ou fonctions de structures, définies par K41 pour la vitesse comme :

$$\langle (v(x+r) - v(x))^n \rangle \sim r^{\zeta_n}, \quad \langle (v(x+r) - v(x))^3 \rangle = -\frac{4}{5} \epsilon r.$$

La fonction d'ordre trois joue un rôle particulier car son équation est directement dérivée de Naviers-Stockes. Dans le cadre de turbulence homogène et isotrope $\zeta_n = n/3 +$

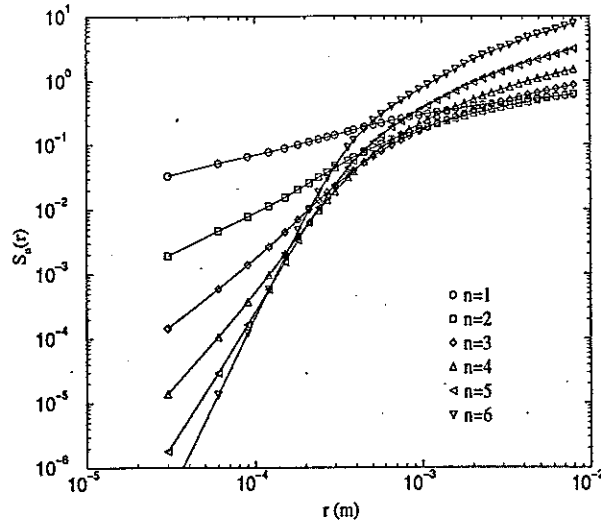


Figure 1: Fonctions de structure transversales à l'écoulement, parallèles au gradient de concentration, pour les ordres $n = 1, 2, 3, 4, 5, 6$.

$\tau_n/3$, où les τ_n définissent les effets de l'intermittence. On peut de la même façon définir les incréments du scalaire θ par :

$$S_n(r) = \langle (\theta(x+r) - \theta(x))^n \rangle$$

La fonction d'ordre 2 est directement reliée à la fonction d'autocorrélation de θ ainsi qu'au spectre d'énergie par le théorème de Wiener. Il faut noter que dans le cas homogène et isotrope les fonctions d'ordre impaires sont nulles pour le scalaire. Suivant la théorie K41, elles possèdent, dans le domaine inertiel, les propriétés suivantes :

$$S_n(r) \sim r^{\zeta'_n},$$

qui sont calquées sur celles des fonctions de vitesse, avec des exposants ζ'_n qui suivraient le comportement de ζ_n . D'après le caractère d'auto-similarité de la turbulence, on s'attend à un comportement linéaire des exposant ζ'_n . Mais ce n'est pas le cas expérimentalement et de nouvelles simulations numériques ont montré qu'en présence d'un gradient de concentration on devait observer un comportement différent avec notamment des fonctions de structure d'ordre impaires non nulles.

IV. RESULTATS EXPÉRIMENTAUX

Dans un cas anisotrope, comme celui de notre expérience, en présence d'un gradient moyen de concentration g l'équation (1) se transforme alors en :

$$\partial_t \theta + v \cdot \nabla \theta = \kappa \Delta \theta - g \cdot v.$$

Le gradient devient donc un terme de forçage pour les fluctuations du scalaire. Dans ce cas, suivant K41, on doit s'attendre à ce que S_3 se comporte comme $r^{5/3}$ dans la direction du gradient. Numériquement, de nombreuses expériences ont montré un comportement en r^1 , donc fortement anormal. La figure 1 montre les fonctions de structure calculées jusqu'à l'ordre $n = 6$ pour des mesures spatiales transversales. Ce sont donc des mesures transversales à la direction de l'écoulement moyen et parallèles à celle du gradient. On peut clairement définir différents régimes suivant la distance de séparation r . La première

partie est la partie diffusive, avec des exposants évoluant linéairement avec l'ordre n de la fonction de structure.

A partir de $600 \mu m$, c'est à dire au delà de l'échelle de Kolmogorov, se trouve le régime inertiel avec des exposants variant de façon non linéaire avec n . La valeur de ces exposants est montrée dans le tableau 1.

n	1	2	3	4	5	6
domaine dissipatif	0.723	1.49	2.30	3.1	3.8	4.55
domaine inertiel	0.386	0.67	0.87	1.03	1.14	1.23

Table 1: Exposants des fonctions de structures transversales

On peut noter la différence importante qui existe entre la zone inertielle et la zone dissipative, cf. figure 2. La région de chevauchement des deux zones est clairement définie, ce qui permet une détermination nette des deux régimes. Le comportement et la valeur des exposants mesurés sont en accord avec d'autres expériences (7). La valeur de l'exposant ζ'_2 indique que le spectre d'énergie correspondant est de la forme $E(k) \sim k^{5/3}$. Lors de mesures longitudinales utilisant l'hypothèse de Taylor il se comporte comme $k^{1.37}$. La tendance non linéaire dans le domaine inertiel montre un dépendance des ζ'_n qui laisse supposer qu'il faut aussi considérer les fluctuations du champ de dissipation du scalaire.

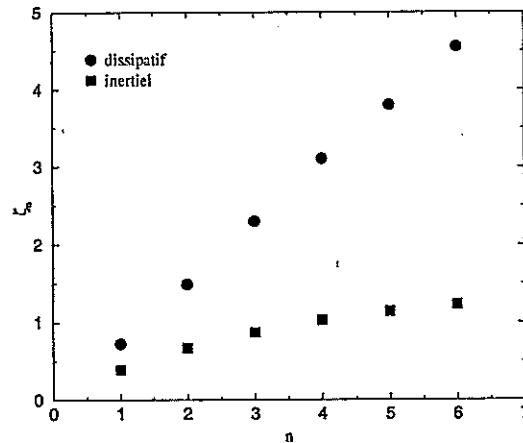


Figure 2: Exposants des fonctions de structures transversales à l'écoulement, parallèles au gradient de concentration

V. CONCLUSION

Ces nouveaux résultats expérimentaux confirment les derniers développements numériques et théoriques concernant le scalaire passif advecté par un écoulement turbulent. Ils ont l'avantage de ne pas utiliser l'hypothèse de Taylor et d'avoir une très bonne résolution spatiale. Ils sont cohérents avec les études spectrales. Nos mesures ne permettent pas de calculer des ordres beaucoup plus élevés, afin de voir si les exposants saturent pour $n \rightarrow \infty$, mais elles montrent le comportement clairement non-linéaire des exposants, ainsi que la valeur anormale de ζ'_3 .

REFERENCES

- (1) Kolmogorov A., The local structure of turbulence in incompressible viscous fluid for very large Reynolds number, Dokl. Akad. Nauk. SSSR, 30:301-305, (1941)
- (2) Kolmogorov A., A refinement of previous hypotheses concerning the local structure of turbulence in a viscous incompressible fluid at high Reynolds number, J. Fluid Mech., 13:82, (1962)
- (3) Anselmet F., Gagne Y., Hopfinger E., High order velocity structure functions in turbulent shear flows, J. Fluid Mech., 140:63-89, (1984)
- (4) Petitjeans P., Etude expérimentale de l'instabilité de couche limite sur une paroi concave, PhD thesis, Université Paris 6, (1992)
- (5) Aider J. L., Etude des tourbillons de Görtler et de leur influence sur le transport d'un scalaire passif en régime laminaire et turbulent, PhD thesis, Université Paris 6, (1996)
- (6) Peerhossaini H., Bahri F., On the spectral distribution of the modes in nonlinear görtler instability, Exp. thermal fluid Sci., 16(3):195, (1998)
- (7) Tong C., Warhaft Z., On passive scalar derivative statistics in grid turbulence, Phys. Fluids, 6(6):2165-2176, (1994)
- (8) Schraiman B., Siggia E., Symmetry and scaling of turbulent mixing, cond-mat 9604024, (1996)
- (9) Gawedzki K., Kupianien A., Anomalous scaling of the passive scalar, Phys. Rev. Lett., 75(21):3834, (1995)
- (10) Bernard D., Gawedzki K., Kupianien A., Anomalous scaling in the n-point functions of a passive scalar, Phys. Rev. E, 54:2564, (1996)
- (11) Schraiman B., Siggia E., Lagrangian path integrals and fluctuations in random flow, Phys. Rev. E, 49(4):2912-2927, (1994)
- (12) Chilla F., Pinton J. F., Labbe R., On the influence of a large-scale coherent vortex on the turbulent cascade, Europhys. Lett., 35(4):271, (1996)

GAZEIFICATION SOUTERRAINE DU CHARBON : ETUDE DE LA CROISSANCE DE LA CAVITE LORS DE L'ESSAI A GRANDE PROFONDEUR D'EL TREMEDAL

A. BRASSEUR, J.P. PIRARD

<> Université de LIEGE
Laboratoire de Génie Chimique - B 6a
B - 4000 LIEGE

A. COEME, P. PIRLOT, M. MOSTADE

<> INSTITUTION POUR LE DEVELOPPEMENT
DE LA GAZEIFICATION SOUTERRAINE
(I.D.G.S.) - rue du Chéra, 200
B - 4000 LIEGE

RÉSUMÉ

Lors des essais de gazéification souterraine du charbon menés à Alcorisa, une série de tests de traçage à l'hélium a été effectuée pour suivre l'évolution de la cavité souterraine. Le volume de la cavité augmente progressivement avec la quantité cumulée d'oxygène injecté. Des modèles basés sur un échange de matière entre le fluide en écoulement et une zone morte ont été utilisés pour simuler les écoulements.

I. INTRODUCTION

Un procédé de démonstration de gazéification souterraine du charbon est en cours de développement sur le site d'El Tremedal à Alcorisa (province de Téruel) en Espagne, depuis 1991. Ce projet est supporté financièrement par la Commission des Communautés Européennes et par des Institutions espagnoles, belges et britanniques dans le cadre du programme THERMIE (1). Le principal objectif de ce projet est de démontrer la faisabilité technique de la gazéification souterraine à une profondeur de l'ordre de 600 mètres. Ceci représente une augmentation significative de la profondeur par rapport aux essais antérieurs réalisés avec succès aux États-Unis. Le dispositif expérimental comporte deux puits verticaux. Le premier par lequel l'agent gazéifiant est injecté est dévié et se prolonge par un chenal horizontal foré en pleine veine. Ce chenal le long duquel se produit la gazéification est connecté au second puits par lequel les gaz sont récupérés. Les données relatives à la géologie du site, au forage, à l'équipement des puits et aux installations de surface sont présentées par ailleurs (2).

La chronologie des opérations comprend une première phase de gazéification du 21 au 29 juillet 1997 et une deuxième phase de gazéification du 1 au 5 octobre 1997. Une description détaillée des phases de gazéification est présentée par ailleurs (3).

L'objectif de cette étude est de suivre l'évolution de la cavité souterraine au cours du processus de gazéification et de décrire l'hydrodynamique des écoulements gazeux par plusieurs modèles classiques en génie chimique.

II. EXPÉRIMENTATION

L'hélium a été choisi comme traceur pour les essais de gazéification parce qu'il est détecté avec précision par spectrométrie de masse dans des mélanges gazeux complexes et qu'il peut être considéré comme chimiquement inerte. Seize injections de traceur suivant une impulsion de Dirac ont été réalisées au cours des deux phases de gazéification. Les réponses sont considérées comme valables lorsque les conditions opératoires du procédé sont suffisamment constantes pour considérer que le régime d'écoulement est à l'état stationnaire.

III. MODÉLISATION

Afin de simuler les écoulements dans le gazogène, plusieurs modèles classiques du génie chimique ont été ajustés. Après une étude préliminaire, deux modèles ont été sélectionnés pour les ajustements : le modèle à cuves en série couplées avec des zones poreuses (Modèle CSP) et le modèle à cuves en série couplée avec des zones stagnantes (Modèle CSS). En effet, l'écoulement du fluide en mouvement ne peut être simulé par le modèle d'écoulement piston dont le paramètre caractéristique est le nombre de Peclet, Pe . Pour les petits Pe ($Pe < 5$), la loi de Fick n'est pas applicable (4). Le modèle CSP est composé d'une succession de réacteurs à cuves en série échangeant de la matière avec des zones poreuses adjacentes dans lesquels l'échange de matière suit la loi de la diffusion. Les trois paramètres de modèle sont : ε , la fraction de volume occupé par le fluide en écoulement, J , le nombre de cuves en séries et D , le paramètre adimensionnel de diffusion dans la zone poreuse. Dans le modèle CSS, le fluide en écoulement est représenté par une succession de cuves parfaitement mélangées en série. La théorie du film est appliquée pour simuler le transfert de matière entre la fraction du volume stagnant et la fraction de volume en écoulement. Les trois paramètres du modèle sont ε , J et N , le nombre d'unités de transfert. Les fonctions de transfert dans le domaine de Laplace sont données par ailleurs (5).

Les deux modèles sélectionnés sont des modèles à trois paramètres. Dans des travaux antérieurs (5-6), on a considéré que ce type de modèles représentait le meilleur compromis entre un bon ajustement et une signification physique des paramètres.

Pour estimer les paramètres, on a utilisé la formule de Parseval qui exprime l'égalité des erreurs dans le domaine temporel et dans le domaine de Fourier. Par conséquent, il est possible d'estimer correctement les paramètres du modèle en minimisant les erreurs dans le domaine de Fourier (7-9).

IV. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Le tableau I donne les conditions opératoires lors de chaque essai de traçage. Les corrections sur les temps de séjour dans les puits et les conduites ont été effectuées en supposant un écoulement piston. Le tableau II présente les principaux résultats expérimentaux. Le temps de séjour moyen \bar{t} , augmente de manière quasi continue en fonction de la quantité cumulée d'oxygène injecté N_{O_2} . Pendant la première phase de gazéification (juillet), le temps de séjour moyen augmente et se stabilise ensuite à une valeur égale à 2200 s. Pour la seconde phase de gazéification (octobre), le temps de séjour moyen initial est du même ordre de grandeur que le temps de séjour moyen final

de la première phase de gazéification. Ensuite, il augmente et se stabilise à nouveau jusqu'à la fin de la phase.

Tableau I Conditions opératoires lors des essais de traçage

Test	Injection		Conditions de fonctionnement						
	Date	Heure	F_{e,O_2} kmol/h	F_{e,N_2} kmol/h	F_e kmol/h	T_R K	P_R MPa	r_P	r_{Ar}
1	22/07/97	04:40	2.0	5.4	28.2	997	4.97	5.2	0.90
2	22/07/97	12:42	2.0	5.4	28.3	1000	5.07	6.1	0.93
3	24/07/97	05:00	5.8	10.0	33.7	1011	4.79	5.2	0.80
4	24/07/97	10:16	6.7	11.1	36.3	1001	4.99	4.2	0.61
5	24/07/97	21:23	6.7	11.1	45.2	978	4.98	5.0	0.74
6	28/07/97	11:25	7.6	12.2	32.0	945	5.31	5.5	0.64
7	29/07/97	02:23	7.6	12.2	25.7	928	5.26	5.0	0.45
8 ^a	01/10/97	07:05	0.0	17.9	25.2	780	4.22	1.0	0.90
9	02/10/97	13:37	20.8	15.2	135.9	1026	4.76	7.0	1.25
10	02/10/97	17:44	22.3	17.1	124.1	1016	4.70	6.5	1.10
11	02/10/97	22:15	22.1	16.7	87.0	1018	4.62	5.7	0.92
12	03/10/97	07:55	22.3	17.3	70.8	1012	4.87	4.5	0.66
13	03/10/97	19:05	26.8	1.4	42.2	996	4.63	3.7	0.62
14	04/10/97	03:58	31.3	14.5	69.7	985	4.96	3.3	0.67
15	04/10/97	15:06	13.6	18.1	67.6	982	5.56	10.1 ^b	1.08
16	04/10/97	22:28	16.8	10.0	73.5	950	6.12	8.6	0.59

^a Essai de traçage réalisés lors des test de communication à l'azote précédant la deuxième phase de gazéification.

^b Cette valeur est surestimée en raison d'une chute de pression dans le réacteur.

Tableau II Résultats expérimentaux

Test	N_{O_2} kmol	\bar{t}_s s	$V_{R,e}$ m^3	$V_{R,s}$ m^3
1	33	240	2	3
2	49	540	4	7
3	160	540	10	10
4	234	1260	21	32
5	274	1440	27	37
6	917	2230	45	42
7	1038	2220	42	48
8	1109	2289	16	25
9	1468	2040	150	101
10	1554	2220	165	115
11	1633	2820	187	124
12	1869	3300	171	156
13	2109	3860	176	203
14	2347	3920	178	171
15	2639	4879	283 ^c	130
16	2778	4269	217	175

^c Cette valeur est surestimée en raison d'une chute de pression dans le réacteur et n'est pas représentée à la Figure 1. Voir Tableau 1.

Le volume du réacteur V_R est relié au temps de séjour moyen du traceur dans le gazogène \bar{t}_s et au débit volumique du gaz F' par l'équation $V_R = F' \cdot \bar{t}_s$. Pour chaque essai, le débit volumique gazeux F' est calculé à partir du débit molaire total, de la pression P_R et de la température T_R dans le gazogène. La pression P_R est considérée comme constante et est définie comme la moyenne arithmétique entre les pressions à l'entrée et à la sortie estimées à partir des pressions mesurées en tête de puits. La température T_R est estimée à partir de la composition du gaz produit et de l'équilibre de la réaction shift. Le débit volumique gazeux dans le gazogène peut être estimé soit par les débits molaires d'entrée ($F_{e,O_2} + F_{e,N_2}$), soit par le débit molaire de sortie (F_s). Cette estimation conduit à des difficultés dans les deux cas. Le débit d'entrée a été corrigé en tenant compte des bilans de matière dans le réacteur et de la quantité d'eau provenant du charbon calculée à partir des conditions d'équilibre. Cette quantité d'eau ne représente pas la totalité des entrées d'eau qui comprend également les entrées d'eau au voisinage du puits de production provenant du charbon et du toit de sable argileux. Le facteur de correction calculée est r_p . Le débit de sortie a été corrigé en tenant compte des pertes de gaz. Ces pertes sont calculées à partir du bilan de matière de l'argon. Ce bilan permet de calculer le taux de récupération r_{Ar} des gaz et de l'eau (3).

Les volume du réacteur $V_{R,e}$ et $V_{R,s}$ ont été calculés respectivement sur la base des débits volumiques gazeux à l'entrée et à la sortie du réacteur en fonction de la quantité cumulée d'oxygène injecté (Figure 1). On observe une évolution similaire du temps de séjour moyen : une augmentation suivie d'une stabilisation jusqu'à la fin de chaque phase de gazéification. Ceci pourrait résulter de l'effondrement du toit de la veine de charbon. En effet, la zone affectée par la gazéification s'accroît jusqu'à atteindre le toit de la veine de charbon. A ce moment, il est possible qu'une partie du toit de sable argileux s'effondre et que d'importantes entrées d'eau se produisent réduisant le volume accessible.

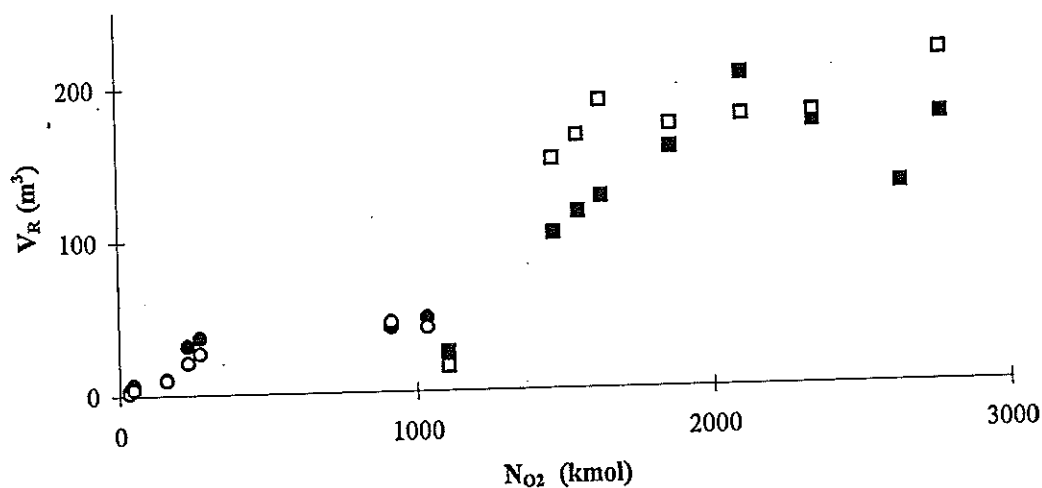


Figure 1. Volume du réacteur en fonction de la quantité cumulée d'oxygène injectée N_{O_2} , ○ : $V_{R,e}$ et ● : $V_{R,s}$ pour la phase de gazéification en juillet, □ : $V_{R,e}$ et ■ : $V_{R,s}$ pour la phase de gazéification en octobre.

Trois modèles ont été testés pour chaque phase de gazéification : le modèle de cuves en série (modèle CS), le modèle CSP et le modèle CSS. Le tableau III donne l'estimation des paramètres. Bien que l'ajustement du modèle CS soit relativement mauvais (le maximum de la courbe expérimentale est toujours plus haut que le maximum donné par le modèle théorique), il permet de conclure que le mélange des gaz dans le réacteur est très bon car le nombre de cuves en série est très petit ($J \sim 2$). Ce résultat corrobore un modèle de croissance de la cavité développé par ailleurs (10-12). Ce dernier associe l'écoulement du fluide à travers les éboulis et les cendres avec les réactions chimiques à la paroi de charbon. Il conduit au développement d'une cavité en forme de poire centrée sur le point d'injection. La forme de la cavité résulte de la distribution quasi-radiale du fluide réactionnel autour du point d'injection, ce qui correspond à un excellent mélange du gaz dans le réacteur. Les modèles CSP et CSS sont des modèles de cuves en série échangeant de la matière avec des zones mortes soit par diffusion, soit par transfert de matière. Ces deux modèles ajustent beaucoup mieux les résultats expérimentaux. Sur la base de la somme des carrés des résidus, le modèle CSP est préféré au modèle CSS. Les résultats de l'ajustement du modèle CSP donne comme estimation des paramètres : un petit nombre de cuves en série ($J \sim 3$), une fraction élevée de volume occupé par le fluide en écoulement ($\varepsilon \sim 0,8$) et un paramètre adimensionnel de diffusion dans la zone poreuse relativement constant ($D \sim 0,83$). Ce résultat confirme l'excellent mélange du fluide dans le gazogène ainsi que la part dominante de la fraction de volume occupé par le fluide en écoulement.

Table III Résultats des ajustements paramétriques.

Test	Modèle CS	Modèle CSP			Modèle CSS		
	J	J	ε	D	J	ε	N
1	2.4	2.6	0.94	0.48	2.5	0.94	0.06
2	2.5	3.4	0.77	0.86	3.3	0.81	0.38
3	2.4	2.5	0.95	0.36	2.5	0.95	0.04
4	2.6	3.3	0.82	1.15	3.2	0.86	0.37
5	3.0	3.7	0.86	0.80	3.7	0.88	0.22
6	1.4	1.9	0.67	0.84	2.8	0.34	6.44
7	2.0	^d	-	-	-	-	-
8	2.3	4.9	0.52	1.06	4.6	0.62	0.99
9	1.8	1.9	0.95	1.45	3.6	0.40	3.10
10	1.7	-	-	-	-	-	-
11	1.9	2.2	0.84	0.59	2.2	0.87	1.80
12	2.3	5.5	0.37	1.60	4.9	0.51	2.00
13	2.2	2.3	0.97	0.30	3.2	0.61	2.30
14	2.1	2.5	0.87	0.79	2.6	0.83	0.32
15	2.6	3.5	0.80	0.75	3.5	0.84	0.28
16	1.7	-	-	-	-	-	-

^d La routine d'estimation des paramètres n'a pas convergé.

VI. CONCLUSIONS

L'utilisation de la méthode des traceurs pour caractériser le gazogène souterrain d'El Tremedal conduit aux conclusions suivantes :

- la technique du signal-réponse est bien adaptée pour l'étude de la distribution des écoulements dans un gazogène souterrain. L'injection d'un traceur dans le débit

- d'injection est aisée et la détection de l'hélium dans le débit de récupération peut être réalisée en ligne par spectrométrie de masse avec l'ensemble des composés gazeux. Cette technique est parfaitement intégrée à l'ensemble du procédé de gazéification,
- le programme développé permet le calcul des moments de la courbe de réponse, l'estimation des paramètres de modèles théoriques dans le domaine de Fourier ainsi que la conduite des essais de traçage en fonction de l'évolution du gazogène,
 - les résultats des essais de traçage montre la relation entre la croissance de la cavité et la quantité cumulée d'oxygène injecté. Lors de chaque phase de gazéification, on a observé une croissance du volume du gazogène en fonction du temps suivie d'une stabilisation. Ceci pourrait résulter de l'effondrement du toit de la veine de charbon. L'entrée croissante de quantité importante d'eau dans le gazogène pourrait également expliquer la stabilisation du volume du gazogène au cours du temps (3),
 - le modèle qui s'ajuste le mieux est le modèle à cuves en série échangeant de la matière par diffusion avec une zone morte avec un très petit nombre de cuves en série (J~3). Ce résultat corrobore la conception généralement admise du processus de gazéification souterraine : le gazogène est très proche d'un réacteur à cuve parfaitement mélangé, la zone où le charbon est affecté étant peu profonde.

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient le Ministère de la Région Wallonne, Direction Générale des Technologies, de la Recherche et de l'Énergie pour son support financier.

RÉFÉRENCES

- (1) Bailey A.C., Bartlett F., Boswinkel H.H., Bruining J., Chandelle V., Del Amor G., Garstang J.H., Hewel-Bundemann H., Hewing G., Krabiell K., Ledent P., Li T.K., Mostade M., Pottier J., Witte P., The Future Development of Underground Coal Gasification in Europe, A Comprehensive Report to CEC, Brussels (1989).
- (2) Fiévez P., Gonzalez Lago J.M., Goode A., Green M., Mostade M., Obis A., Drilling, Well Completion and Engineering Activities in Preparation of the first Underground Coal Gasification in the Framework of a european Community Collaboration, Alcorisa, Spain, Proc. 14th Annual Int. Pittsburg Coal Conference, Taijan, Shanxi, China, 23-27 sept., 1997
- (3) Chappell B., Mostade M., The El Tremedal Underground Coal Gasification Field Test in Spain-First Trial at Great Depth and High Pressure, 15th Annual Int. Pittsburgh Coal Conference, Pittsburgh, PA, 14-18 sept. 1998
- (4) Schweich D. in : Disorder and Mixing, Eds : E. Guyon, J.P. Nodal, Y. Pomeau et al., Kluwer Academic Publisher, Dordrecht (1988)
- (5) Debelle B., Malmendier M., Mostade M., Pirard J.-P., *Fuel*, 71, 95 (1992)
- (6) Pirard J.-P., Mostade M., Debelle B. Malmendier M., Proc. Int. Underground Coal Gasification Symposium, 9-11 oct., 1989, Delft, Pays-Bas, p. 375
- (7) Brigham E., The Fast Fourier Transform, Prentice-Hall, Englewood Cliffs (1974)
- (8) Bard Y., Nonlinear Parameter Estimation, Academic Press, New-York (1974)
- (9) Cooley J., Tukey J., *Math. Comput.*, 19, 297 (1965)
- (10) Coëme A., Pirard J.P., Mostade M., *In Situ*, 17, 83 (1993)
- (11) Mathy B., Pirlot P., Pirard J.P., Coëme A., Mostade M., De Ro P., *In Situ*, 18, 399 (1994)
- (12) Pirlot P., Pirard J.P., Coëme A., Mostade M., *In Situ*, 22, 141 (1998)

ETUDE ET OPTIMISATION DES TRAVAUX DE DRAGAGE. MISE EN EVIDENCE DU RECYCLAGE DES PRODUITS DE DRAGAGE. LE CAS DU PORT DE ZEEBRUGGE.

P. BRISSET, A. CAILLOT, R. HOSLIN, A. POGGI

<> CEA - DAMRI - Sce Application Radioéléments
BP 52
91193 GIF sur YVETTE CEDEX

B. MALHERBE

<> HAECON
Deinsesteenweg 110
B - 9031 DRONGEN

Résumé :

Les techniques nucléaires sont des procédés éprouvés utilisés par la plupart des grands ports modernes . Dans le cadre de l'optimisation des travaux de dragage , ces techniques sont employées à trois niveaux :

- détermination, au moyen de jauges de turbidité, de la profondeur limite de navigabilité dans les chenaux de navigation et les bassins portuaires envasés (méthode HAD)
- étude au moyen de traceurs radioactifs du devenir à des échelles de temps et d'espace moyennes (quelques jours et quelques km) des produits de dragage rejetés en mer.
- étude du recyclage des produits de dragage . Une méthodologie originale dans le domaine a été mise en œuvre dans le cas du port de Zeebrugge. Quelques kilogrammes de sédiments fins ont été marqués par 2 radioéléments de 45 et 73 jours de période puis injectés sur les sites de rejets en flot et en jusant . Durant chaque expérience , plus de 200 prélèvements ont été effectués sur 66 stations réparties tout au long de la côte belge (surface de 1300 km²) et analysés par spectrométrie gamma. Ces expériences ont prouvé le recyclage des produits de dragage vers la zone côtière. L'intégration de ces résultats expérimentaux dans un modèle numérique a permis de quantifier ce recyclage qui peut atteindre 80% pour le port de Zeebrugge.

I. L'UTILISATION DES JAUGES DE TURBIDITE POUR MESURER LA PROFONDEUR LIMITE DE NAVIGABILITE DANS LES CHENAUZ ENVASES.

La vase déposée dans les chenaux de navigation et les bassins portuaires provoque une importante diminution des profondeurs . Les profondeurs sont habituellement mesurées au moyen d'echo-sondeurs à double fréquence (33 et 210 KHz). Cette méthode est mal adaptée aux fonds vaseux et ne permet de déterminer que le toit de vase (écho 210 KHz) et plus bas un fond dit " dur " (Fig. 1). L'état physique des couches sédimentaires situées entre ces 2 limites est inconnu . Elles doivent donc être draguées périodiquement entraînant des travaux importants (par an : 200 Mm³ aux USA , 40 Mm³ en France , 30 Mm³ en Belgique à un coût moyen de 2 US\$ par m³) .

Des études en laboratoire (1), (2), (3) sur le comportement rhéologique des vases, en modèle physique et en bassin de carène ont montré que les navires pouvaient naviguer sans problème dans des couches de vase de rigidité inférieure à 5 ou 7 N/m² (Fig.2). Cette valeur peut être corrélée à une densité de l'ordre de 1.2 .

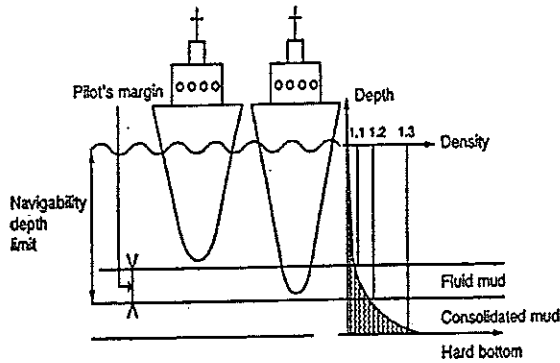


FIG. 1. Definition of the navigability depth limit in a muddy channel

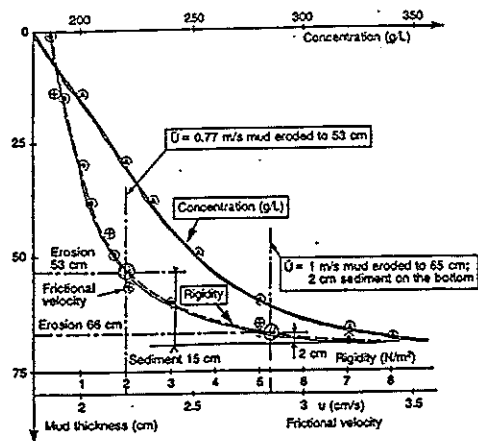


FIG. 2. Currents erosion condition of a mud deposit with a vertical profile of concentration [1].

Pour localiser cette couche, il est nécessaire de mesurer le profil vertical de densité du dépôt de sédiments. Des mesures sont ainsi menées systématiquement par les services hydrographiques des ports avec des jauges de turbidité à transmission ou à diffusion de rayons gamma (4) (Fig.3 et Fig.4).

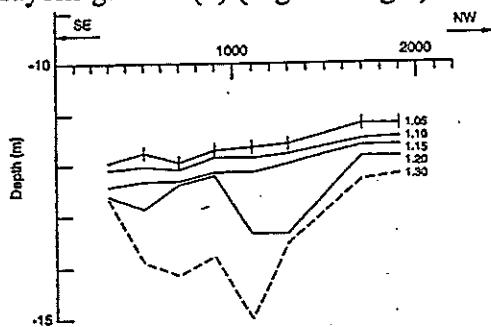


FIG. 3. Isodensity curves plotted on a profile [2].

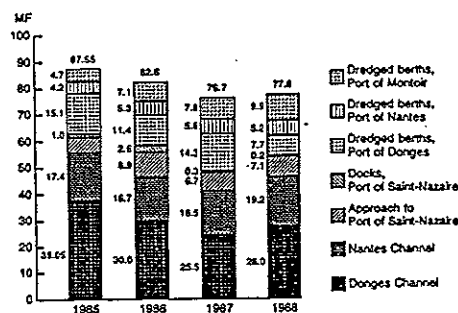


FIG. 4. Financial balance (in millions of francs) of cumulative maintenance and investment operations for channels and dredged berths [4].

Le principe et la technologie de ces systèmes de mesure sont bien connus (5), (6), (7). Leur intérêt réside dans l'association de la jauge au couple intelligent treuil-ordinateur qui permet de piloter la jauge dans les couches sédimentaires entre les densités 1.02 et 1.3. Un capteur de pression associé à la mesure nucléaire permet de connaître à tout moment avec précision (± 10 cm) la profondeur où a lieu la mesure de densité.

Devant la concurrence entre les ports et l'absolue nécessité de diminuer les coûts de maintenance, l'hydrographie traditionnelle a besoin d'être complétée par des mesures de densité. La méthode HAD (Hydrographie Assistée par Densimétrie) a permis depuis plusieurs années de réaliser d'importantes économies par la limitation des quantités de sédiment draguées et par l'optimisation des travaux de dragage. La limitation des quantités rejetées est également intéressante pour l'environnement du fait de la contamination des sédiments par des polluants d'origine minérale ou organique.

II. L'UTILISATION DES TRACEURS RADIOACTIFS

II.1. Les rejets de produits de dragage

La méthode a été décrite (8), (9) et utilisée très souvent et ne sera donc pas présentée ici. Néanmoins il convient de rappeler que l'utilisation de techniques de traceurs dans le domaine nécessite une grande attention envers les conditions initiales. Le traceur doit être mélangé à une masse importante de matériau à rejeter en concertation avec les exploitants.

Les travaux de dragage et de rejets des produits par des dragues aspiratrices en marche réalisés dans l'estuaire de la Seine ou en Belgique, dans des zones soumises à d'importants courants de marée (0.5 à 1 m/s) conduisent aux mêmes observations :

- dispersion des particules sur des surfaces importantes (Fig.5) de forme elliptique (2500 à 4000m de long sur 250 à 500m de large). Les particules en suspension augmentent la turbidité naturelle d'un facteur 2 à 3 pendant une demi-marée .
- le clapage provoque un courant de densité qui entraîne les particules les plus grossières vers le fond (75 % de la masse rejetée) alors que les plus fines sont emportées par les courants sur plusieurs km . Les sédiments fins (< 40µm) appartenant à la fraction déposée sont remis en suspension dans les 2 jours suivant le rejet . Ces matériaux délités par l'opération de pompage , ont perdu leur cohésion et sont donc transportables aisément par les courants . Ils deviennent donc disponibles pour retourner à leur point d'origine : le recyclage

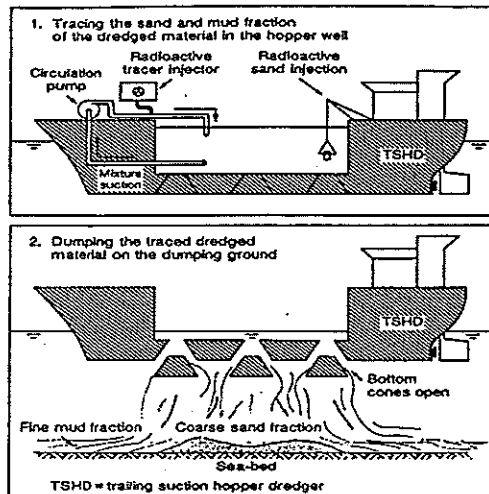


FIG. 5. Injection of tracer in dumping test [10].

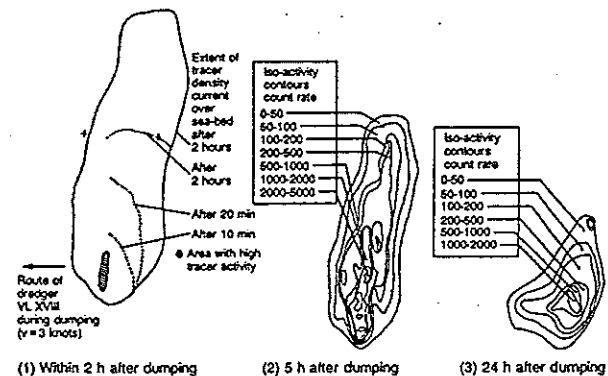


FIG. 6. Results of dumping tracer test on dumping ground [10].

II.2. Le recyclage des produits de dragage

Les programmes de recherche précédents ont montré que l'efficacité globale des travaux de dragage était conditionnée principalement par l'efficacité des clapages sur site, c'est-à-dire par la fraction des sédiments restant à long terme sur le site de rejet et par le recyclage des particules fines vers les zones draguées. Des expériences in-situ aux moyens de traceurs radioactifs ont permis de quantifier ce recyclage. Une première expérience (sur le site de rejet S1) a permis de mieux comprendre le mécanisme du recyclage et a montré une forte ségrégation granulométrique entre les particules.

Les études ont été menées à travers 3 différentes approches :

- une analyse morphologique pour déterminer les variations dans les volumes déposés
- une détermination de la composition des fonds par prise d'échantillons et mesure de la radioactivité naturelle
- les expériences de traçage proprement dites

II.2.1. La méthode

La méthode implique de pouvoir distinguer les traceurs du bruit de fond naturel pendant plusieurs mois. Les principaux critères de choix des traceurs ont donc été les suivants:

- le traceur doit se fixer de manière irréversible sur les particules naturelles
- il ne doit pas altérer leurs propriétés hydrodynamiques
- il doit pouvoir être détecté de manière quantitative à très bas niveau
- il ne doit pas avoir d'impact sur l'environnement
- sa période doit être compatible avec la durée de l'étude

Les traceurs choisis (Hafnium 181 et Terbium 160) sont mesurés par spectrométrie gamma bas bruit de fond sur des échantillons de sédiments superficiels . Quatre expériences à grande échelle ont eu lieu . Plus de 200 échantillons ont été prélevés sur 66 stations réparties tout le long de la côte Belge et analysés lors de chaque expérience .

II.2.2. Le programme de recherche .

Le programme de traçages proposé consiste en 6 injections de traceurs de recyclage répartis sur une période de 3 ans (1992 à 1994) .

- expérience n°1 : injection sur le site " ZB-Oost" (Hafnium, distance à la côte \pm 2.8 km) et S2 (Terbium; distance à la côte \pm 12.5 km) le 12 avril 1992.

- expérience n°2 :injection sur le flanc nord du banc de sable Akkaert (Hafnium, distance à la côte \pm 21 km) et près du chenal de jusant entre S1 et S2 (Terbium, distance à la côte \pm 15 km) en janvier 1993.

- expérience n°3 : injection près de Negenvaam (Hafnium, distance à la côte \pm 17 km) et sur le flanc nord du banc Thornton (Terbium, distance à la côte \pm 30 km) .

Après l'injection les échantillons sont prélevés à intervalle régulier dans la zone d'étude (entre Terneuzen et Nieuport) et analysés .

II.2.3. Principaux résultats

Les expériences de terrain ont permis d'obtenir des données sur la dispersion des sédiments marquées et sur la variation temporelle de leur concentration . Elles ont montré que les particules migrent sur le fond à l'intérieur d'une couche de faible concentration de 0.5m d'épaisseur environ . Ces particules se déposent principalement dans une zone étroite le long de la côte belge d'au plus 10 km de largeur s'étendant de Terneuzen à Nieuport (Fig.9 et 10) .

Ces expériences prouvent donc que les particules marquées sont recyclées vers la zone côtière et que la vase semble piégée dans un tourbillon hydraulique (du moins pour la durée des expériences soit de l'ordre de 4 mois) .

Les traceurs ont été trouvés dans les ports de Zeebrugge, Blankenberge , Ostende, Nieuport, Breskens et Terneuzen ainsi que dans les trois principaux chenaux d'accès au port de Zeebrugge: Scheur West , Scheur Oost et Pas van het Zand .

Ces expériences de traceurs de recirculation corroborent les hypothèses de circulation des sédiments dans la zone : cette zone est caractérisée par un faible taux d'échange des sédiments avec le reste de la mer du Nord et une migration vers l'amont dans l'estuaire de l'Escaut (Western Scheldt). Cette migration peut également être interprétée comme un échange de sédiments .

Le processus de recyclage est très rapide . Le retour en côte des particules peut se faire en moins de 2 jours , en fonction du point d'injection et des conditions hydrométéorologiques . La concentration en traceurs évolue en fonction du temps vers une valeur stable (Fig.7) . Les deux traceurs sont recyclés à des degrés divers en fonction de la position du point d'injection. Un paramètre clé est la distance à la côte : plus le point de rejet est loin de la côte , plus les concentrations en traceurs sont faibles . Des barrières naturelles peuvent également ralentir le processus de recyclage .

Après le pic de concentration initial , en l'absence d'effet de tempête , les concentrations dans les ports de Zeebrugge et Ostende demeurent sensiblement constantes pendant la période d'observation .

L'activité détectée décroît faiblement en dépit des travaux de dragage (Fig.8) . Les tempêtes , en revanche , causent une rapide dilution des traceurs .

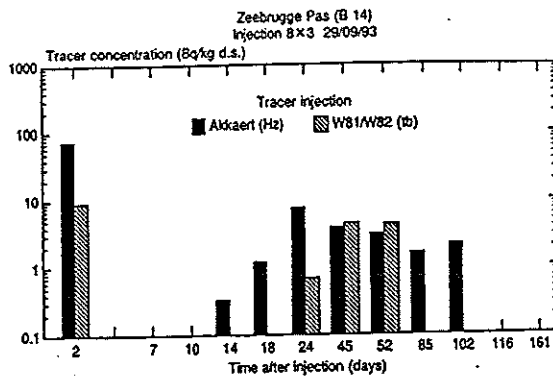


FIG. 7. Time evolution of tracer concentration near the harbour of Zeebrugge.

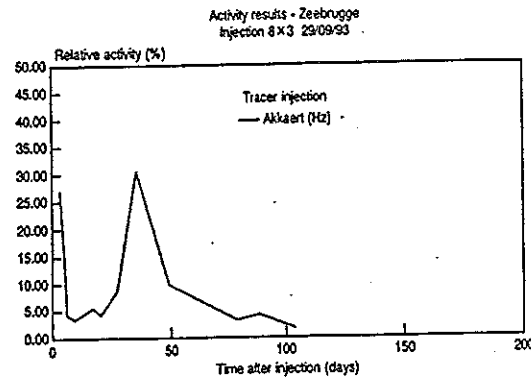


FIG. 8. Time evolution of relative activity at the harbour of Zeebrugge.

Dans le port d'Ostende , le niveau d'activité observé lors de la deuxième campagne est notablement inférieur en particulier à celui observé lors de la première campagne . Ceci peut être du à un éloignement du point d'injection et donc à une répartition du traceur sur une plus grande surface . Ces observations sont une bonne indication que le système est pratiquement fermé et que c'est toujours le même stock sédimentaire qui est déposé, transporté et "recirculé" , à la fois par les processus naturels et par les travaux de dragage. Les deux traceurs peuvent être trouvés aussi rapidement dans toute la zone d'étude . Même rejetés loin au large, il reviennent en côte en 2 jours environ . Les concentrations élevées observées en particulier dans le chenal de navigation Scheur-Zand après 2 jours montrent que le transport des traceurs se fait vraisemblablement vers la côte par les chenaux . L'action de la houle doit également être prise en compte .

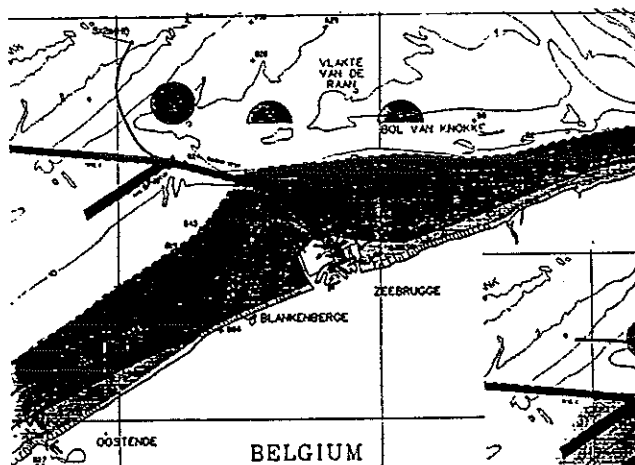
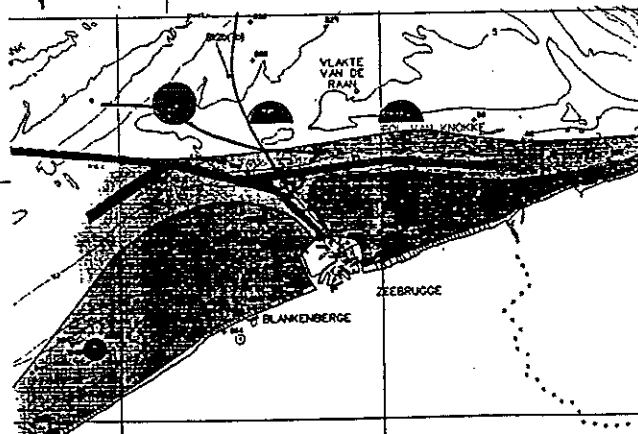


Fig. 9. Tb-tracer dispersion map, 24 days after injection.
Scale 1/400,000. Dumping sites are numbered 1 to 5.



II.2.4. Utilisation pratique des résultats

La zone côtière (de 5 à 20 km de large) apparaît comme un cul de sac pour les sédiments fins . Les produits de dragage rejetés dans cette zone seront recyclés vers la côte . Un rejet en dehors de cette zone , soit à plus de 25 km au large de Zeebrugge, sera nécessaire pour éliminer le risque de recyclage . Les études ont montré que la limitation du recyclage par le choix d'un bon site de rejet était le meilleur moyen d'optimiser l'efficacité du dragage .

III. CONCLUSIONS

La grande capacité des dragues modernes et les dimensions des travaux maritimes conduisent à la mobilisation de grandes quantités de matériaux dont les effets sur l'environnement ne peuvent être négligés . La plus grande partie des matériaux rejetés sont délités , très mobiles et donc susceptibles d'être transportés rapidement sur de grandes distances . La technique des traceurs radioactifs permet une analyse fine de ces problèmes , toujours plus importants sur les plans économique et écologique.

Les modèles mathématiques sont intéressants mais encore mal adaptés du fait de l'insuffisance des connaissances sur les processus physiques, chimiques, hydrologiques et sédimentologiques mis en jeu dans les travaux de dragage . Les techniques nucléaires bien utilisées et associées aux méthodes classiques permettent d'importantes économies sur les travaux de dragage et une limitation de leurs effets sur l'environnement .

REFERENCES

- (1) Migniot C. Tassement et rhéologie des vases, La Houille Blanche 1/1989; 2/1989
- (2) De Meyer C.P. , Malherbe B. , Optimisation of maintenance dredging operations in maritime and estuarine areas , Terra et Aqua n° 35 , dec 1987, pp 25 à 40
- (3) Brossard C, Caillot A, Gallene B, Granboulan J, Migniot C. , Monadier P. ; Sécurité de la navigation dans les chenaux envasés . Congrès mondial . Association Internationale des ports et chenaux navigables . Osaka. 1989 section SQII.1
- (4) Brossard C., Gallene B., Helard J.P.,Lannuzel G. ; Technical improvements and maintenance economics for the maritime channels of the Loire estuary
- (5) Caillot A. , Meyer G., Chambellan D., Tanguy J.C; a new nuclear density gauge to measure directly high turbidities in muddy areas
- (6) Meyer G., Chambellan D.,Caillot A., Migniot C. ; Utilisation des jauges nucléaires de densité pour étudier et mesurer au laboratoire et in situ la concentration et la formation des dépôts de vase . Symposium Isotope Hydrology 1983, Vienna, IAEA
- (7) Caillot A.? Meyer G. ; Des jauges nucléaires pour améliorer le gestion des dragages d'entretien dans les ouvrages portuaires envasés. Solid-liquid flow vol 2
- (8) Caillot A. Bed load transport . Guidebook on nuclear techniques un hydrology, 1983
- (9) Tola F., Caillot A., Courtois G. ; Study of the evolution of dredged materials discharges by means of radioactive tracers . Coastal engineering 1984, Houston,Texas Vol 2
- (10) Malherbe B. a case study of dumping of dredged material in open areas , 1991, Terra et Aqua 45

DETERMINATION DE BASSINS D'ALIMENTATION DE SOURCES KARSTIQUES PAR MULTI-TRACAGES

L. LEBIDEAU <> SOGREAH INGENIERIE
25, rue du Pont des Halles
94666 RUNGIS CEDEX

O. GERBAUX-FRANCOIS <> CEA - DAMRI/SAR/SAT
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE

Résumé

Les sources de l'est de Tarn-et-Garonne font l'objet d'études préliminaires à la définition de périmètres de protection. Afin de préciser la détermination des contours des bassins versants d'alimentation de ces sources, des techniques de multi-tracages en milieu souterrain ont été appliquées. Des traceurs fluorescents et chimiques ont été injectés en huit points permettant la visualisation des relations hydrauliques souterraines, le calcul des temps de transfert et la détermination des taux de restitution aux sources. Les tracages en milieu souterrain constituent un outil indispensable à la définition des périmètres de protection. Ils simulent, en outre, des situations de pollution et permettent d'en quantifier les impacts chimiques sur les ressources.

I. INTRODUCTION

L'est du département de Tarn-et-Garonne est alimenté par huit captages principaux d'eau souterraine, localisés dans un rayon de 20 kilomètres autour de Caylus et Saint Antonin-Noble-Val (Figure 2). Ce sont principalement des captages de sources naturelles.

Dans le cadre de la mise en place des périmètres de protection, conformément à la réglementation, des investigations d'ordre hydrogéologique ont été menées par SOGREAH (1), sur ces huit points d'eau.

Il s'agissait donc de connaître :

1. le fonctionnement des ressources en fonction du temps (réponses face aux événements pluviométriques),
2. de déterminer les bassins versants d'alimentation,
3. de déterminer les sources de pollution présentes sur ces bassins.

La caractérisation du fonctionnement des huit ressources a été réalisée grâce, entre autres, à l'emploi de stations de mesures automatiques, installées sur chacun des points, permettant l'enregistrement en continu du niveau d'eau (ou du débit), de la température et de la conductivité. Ces enregistrements ont permis le calcul des volumes d'exhaures de chacun des points, la détermination des retards de réponse du niveau d'eau face à des pluies importantes, et par conséquent, une première approche de la taille du bassin versant. Les retards s'évaluent, en effet, entre quelques heures et plusieurs jours pour les plus grands bassins d'alimentation.

La détermination plus précise de la taille et des contours de chacun des bassins versants d'alimentation nécessite l'emploi de méthodes d'observations directes, en l'occurrence la technique des traçages. Cette méthode, mise en œuvre par le CEA de Grenoble (2), a fourni des données directement utilisables dans le cadre de la mise en place de périmètres de protection et de la simulation d'accidents de pollution.

Nous présentons ci-après les principaux résultats acquis dans le cadre de l'utilisation de traceurs en milieu souterrain, ceci pour les trois sources principales de la zone d'étude, à savoir la source de Saint-Géry, la source de Livron, la source de la Gourgue et la source de Thourières.

II. CONTEXTE HYDROGEOLOGIQUE

Les sources étudiées constituent les résurgences naturelles d'un système aquifère karstique multicouche, très étendu, et contenu entre et dans les formations géologiques suivantes :

- les marnes gris-bleutées du Toarcien (jurassique inférieur : Lias), épaisses de 50 mètres constituent le substratum imperméable de l'aquifère,
- les calcaires oolithiques de l'Aalénien et du Bajocien (jurassiques moyen : Dogger),
- les calcaires lithographiques durs du Bathonien (Dogger),
- les calcaires à polypiers et calcaires en plaquettes du Callovien et de l'Oxfordien (Dogger),
- les calcaires lithographiques du Kimméridgien inférieur (Dogger)

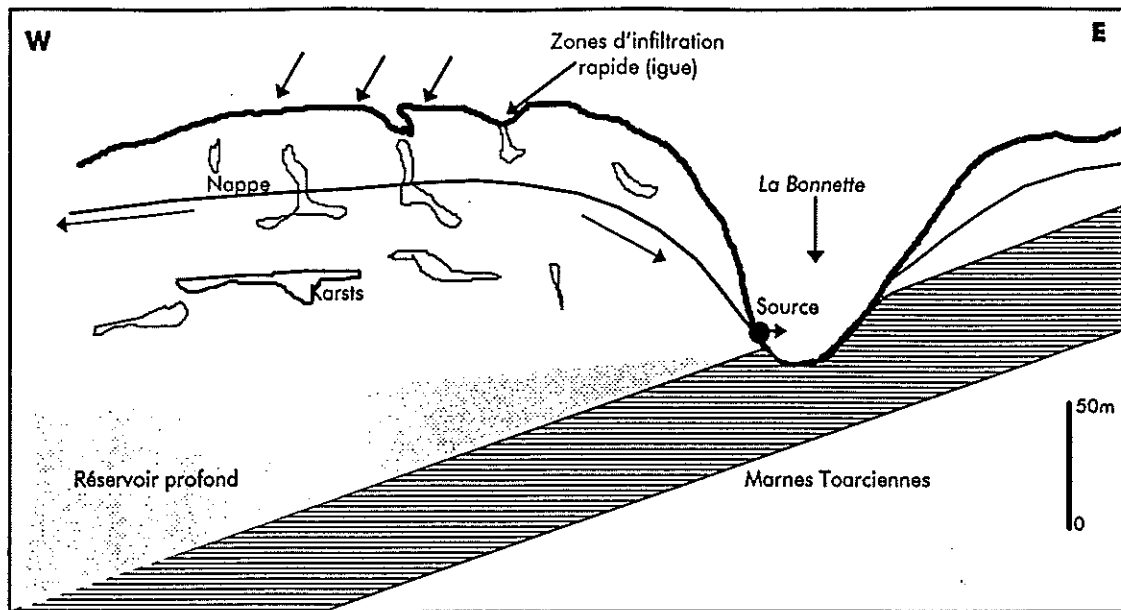
Les formations calcaires du Dogger constituent le réservoir aquifère de la nappe étudiée. Cette nappe est en majorité libre, c'est à dire en relation directe avec la surface.

Les eaux réalimentant la nappe proviennent de la pluie, qui s'infiltrant au niveau de l'impluvium, à travers les horizons pédologiques de surface, viennent percoler vers la nappe. Celle-ci s'écoule des plateaux vers les vallées où lorsqu'elle butte sur les marnes imperméables du Toarcien donne lieu à des résurgences le long de la Bonnette (Figure 2), objets de cette étude.

Le réservoir est dit karstique en raison du développement de nombreuses cavités (fissures, grottes, avens,...) dans les calcaires (Figure 1). Ces cavités sont dues à la fracturation tectonique ainsi qu'à la dissolution par les eaux de pluies chargées en CO₂.

La présence de cavités (avens ou « igue » en patois local, gouffre, dolines,...) à la surface constitue des sources de pollution potentielles si des produits dangereux y sont déversés, mais représente également un moyen d'accès facile pour l'injection des traceurs.

Figure 1 - Système karstique de la zone d'étude



Les opérations de traçages ont dû être faites en même temps pour l'ensemble des sources étudiées.

Cependant, la présence de plusieurs sources localisées dans une zone relativement restreinte constitue un problème dans le cadre d'injection de traceurs ; pour un point d'injection donné, la source constituant le point de sortie n'est pas connue. Des risques de croisement des traceurs entre plusieurs points d'injection sont attendus. Il est donc nécessaire d'injecter plusieurs traceurs simultanément.

III. MISE EN ŒUVRE DES INJECTIONS

Huit injections simultanées ont été réalisées pour l'étude des quatre résurgences (Tableau 1 et Figure 2). Trois traceurs fluorescents ont été utilisés ainsi que deux traceurs chimiques, la compatibilité de ces produits avec l'alimentation en eau potable a été vérifiée auparavant. Chaque produit a été poussé vers la nappe par l'adjonction de plusieurs m³ d'eau. La quantité de produit injecté a été déterminée en fonction de la distance entre les points d'injection et les points de sortie supposés ainsi qu'en fonction du débit moyen d'exhaure des sources au moment de l'injection. La concentration d'injection doit être suffisamment forte pour pouvoir être détectée ultérieurement, ceci malgré les phénomènes de dilution dans la nappe, et elle ne doit pas être trop importante pour ne pas colorer ou modifier la chimie des eaux des sources.

Les sources ont été équipées de préleveurs automatiques, dans un premier temps, afin d'obtenir des pas de temps de prélèvement de 4 heures au maximum. Après quelques jours, les prélèvements ont été réalisés manuellement à raison d'un échantillon par jour, ceci sur une période d'un mois.

Tableau 1 - Description des injections

Lieu d'injection	Traceurs	Poussée
Igue de « Cartayrou »	Fluoresceïne (3 kg)	6 m ³ d'eau
Igue de « Rastibel »	Chlorure de lithium (60 kg)	3 m ³ d'eau
Trou de « Cammas »	Iodure de sodium (12 kg)	6 m ³ d'eau
Trou de « Jeanbert »	Amino G acid (5 kg)	2 m ³ d'eau
Aven de « Guilhaumet »	Fluoresceïne (3 kg)	2 m ³ d'eau
Aven de « Saint Geniès »	Rhodamine WT (4,8 kg)	2 m ³ d'eau
Doline de « Guillau »	Chlorure de lithium (50 kg)	2 m ³ d'eau
Doline de « le Sol »	Amino G acid (2,2 kg)	2 m ³ d'eau

IV. RESULTATS

Les analyses des traceurs fluorescents sont réalisées par des fluorimètres autorisant des concentrations minimales de 1.10^{-10} kg/l à 5.10^{-9} kg/l. Les analyses des traceurs chimiques se font par spectrophotométrie d'absorption atomique (limite : 1.10^{-8} à 2.10^{-8} kg/l).

Aucun croisement de traceurs n'a été constaté, mais seulement quatre injections sont ressorties dans trois des quatre sources étudiées (Tableau 2). Aucune restitution n'a été observée à la source de saint Géry qui se situe pourtant face à l'injection de Cartayrou.

Les temps de restitutions oscillent entre 60 heures et 115 heures. Le taux de restitution a pu être calculé grâce à la connaissance du débit des sources, l'intégration des concentrations mesurées avec le débit permet de calculer le volume total du traceur restitué.

Pour la plupart des sources, le taux de restitution est relativement faible. Celui-ci donne une indication sur la récupération des eaux souterraines par les sources ; la majeure partie des écoulements ne transite pas vers les sources mais reste piégée dans le réservoir souterrain profond (Figure 1), dont on peut présumer de sa grande importance. Dans le cas de la source de Livron, le réservoir souterrain semble plus faible, ceci signifie également que cette source est très vulnérable à une pollution provenant de certaines igues (Cartayrou).

Les petites sources diffuses, présentes le long de la Bonnette ou de l'Aveyron (Figure 2), peuvent constituer des points de sortie pour certaines injections telles que « Jeanbert » ou « le Sol ». Ces sources n'ont pas pu être équipées de préleveurs automatiques. De la même façon, la source du Cande (possédant des débits d'exhaures importants et un bassin versant très étendu) peut constituer l'exutoire naturel des injections de « Rastibel » et « Cammas ».

Tableau 2 - Restitution des traceurs

Points d'injection	Points de sortie	Temps (heures)	Taux de restitution
Igue de « Cartayrou »	Livron	115	27 %
Igue de « Rastibel »	Aucun	--	--
Trou de « Cammas »	Aucun	--	--
Trou de « Jeanbert »	Aucun	--	--
Aven de « Guilhaumet »	La Gourgue	60	5 %
Aven de « Saint Geniès »	Thouriès	67	6,2 %
Doline de « Guillau »	Thouriès	67	9,5 %
Doline de « le Sol »	Aucun	--	--

V. CONCLUSIONS

L'emploi de plusieurs traceurs simultanés, dans le cadre de la recherche de bassins d'alimentation souterrain, s'avère être une méthode efficace :

- elle limite les risques de croisement des traceurs,
- elle permet un gain de temps considérable par rapport à l'utilisation d'un seul traceur,
- le traçage souterrain fournit des informations précieuses sur les temps de transfert entre des sources potentielles de pollution et des ressources en eau potable,
- il permet également de quantifier le taux de restitution d'une pollution et donc de définir le degré de vulnérabilité de la source. Son utilisation dans le cadre de la définition de périmètres de protection s'avère souvent indispensable.

Dans le cas de l'étude des sources du département de Tarn-et-Garonne, les traçages ont permis la détermination d'une partie des limites des bassins versants des sources étudiées. Ainsi le bassin versant de la source de Livron, contre toute attente, est particulièrement développé vers le nord mais très peu vers l'ouest. Ces investigations couplées, aux autres méthodes hydrogéologiques, permettent de fournir à l'hydrogéologue agréé l'ensemble des informations nécessaires à la définition des périmètres de protection des sources.

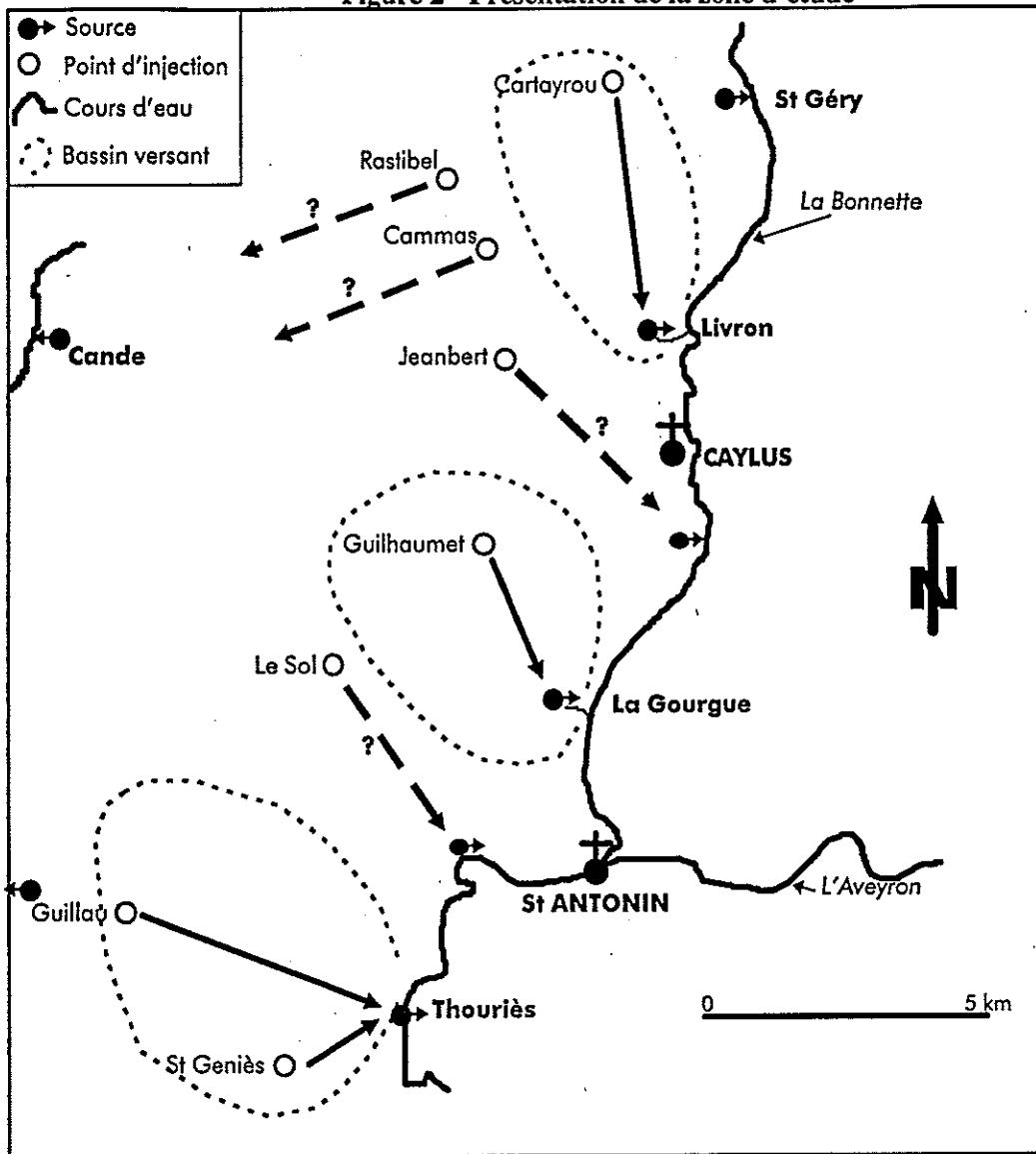
Bibliographie :

Cette étude a été réalisée pour le Conseil Général de Tarn-et-Garonne représenté par la SEMATEG, avec le concours financier de l'agence de l'eau Adour-Garonne et de la région Midi-Pyrénées.

(1) **SOGREAH** : « Etudes préalables à la définition des périmètres de protection des sources karstiques de l'est du département de Tarn-et-Garonne », rapport 100384.R4, juin 1997

(2) **C.E.A./ DAMRI** : « Compte rendu des essais de traçages des sources de l'est du département de Tarn-et-Garonne », rapport SAT/97.14, janvier 1997.

Figure 2 - Présentation de la zone d'étude



TRACAGES DANS LA SIDERURGIE

R. NICOLLE, J.M. STEILER, M. WANIN

<> IRSID - Groupe USINOR
Voie Romaine
57210 MAIZIERES LES METZ

1. Introduction

Les traçages sont l'une des techniques utilisées pour caractériser le fonctionnement des réacteurs (1,2). Depuis plus de 30 ans, de nombreux traçages ont été réalisés, notamment dans les domaines du haut fourneau (3), de l'aciérie et des fours.

Pour ces réacteurs de grande taille, il a fallu mettre au point des technologies particulières d'introduction, de détection et d'interprétation qui sont présentées dans ce qui suit.

On peut ainsi non seulement caractériser, à partir de la distribution des temps de séjour et de sa modélisation, la fonction de transfert du réacteur indispensable à une bonne conduite de celui-ci, mais aussi les phénomènes internes au réacteur et les recyclages internes.

2. Traçages et conduite des réacteurs : la boîte noire

L'utilisation la plus immédiate des techniques de traçage consiste à déterminer la fonction de transfert du réacteur. Les applications en sont immédiates: automatisation de la marche, réglage des apports de matières et d'énergie au cours du temps afin de maintenir un point de fonctionnement stable. La fonction de transfert correspond à la réponse du réacteur à une impulsion.

Dans le cas du haut fourneau, réacteur d'un volume de plusieurs milliers de m³ (Fig 1), les temps caractéristiques de réponse sont de l'ordre de 10 heures. La fonction de transfert du haut fourneau a été déterminée en imprégnant une couche de matières de ¹⁴⁰La (Fig 2) lors de son enfournement. La courbe de DTS est caractérisée par son temps de latence (correspondant à un écoulement piston) et une décroissance quasi exponentielle (correspondant à une série de p réacteurs brassés)(Fig 3).

Cette modélisation constitue la base du modèle dynamique de conduite du haut fourneau, qui permet d'assurer une qualité constante de la production (composition et température de la fonte). Elle recoupe bien les variations de composition du métal produit lorsque l'on réalise un échelon sur les entrées de matières (Fig 4).

La fonction de transfert du réacteur est la signature du réacteur et de la nature des échanges qui s'y réalisent (co- ou contre courant, brassé, dispersif); elle conditionne donc son efficacité métallurgique et l'avancement des réactions auquel on peut s'attendre; les traçages, tels que celui par ⁹⁸Au réalisé lors de la mise au point des procédés de prétraitement de la fonte, contribuent à la définition de la configuration du réacteur.

3. Traçages et localisation des phénomènes dans le réacteur

De manière plus originale, les traceurs radioactifs sont utilisés pour caractériser les phénomènes internes dans les réacteurs.

3.1. Détermination des Isothermes

Ainsi, nous avons développé une capsule comportant un bouchon fusible à différentes températures et remplie de ¹³³Xe. Le gaz est libéré à la température de fusion du bouchon. Les capsules sont introduites dans le réacteur en un point précis et accompagnent les matières solides dans leur mouvement à travers l'appareil et dans leur échauffement progressif (Fig 5).

Cette technique a été appliquée à la détermination de la position des isothermes dans le haut fourneau:

- ⇒ en modifiant la nature du bouchon de la capsule, on peut mesurer 4 isothermes différentes (800°C, 1060°C, 1145°C et 1260°C)
- ⇒ en faisant varier l'activité du traceur dans le domaine 0-100mCi, on peut mesurer simultanément la position de l'isotherme en 4 points du rayon du réacteur.

3.2. Descente des matières

La technique de la capsule xénon a été appliquée à la mesure de la vitesse locale de descente des matières solides dans le haut fourneau. On introduit simultanément 2 capsules fondant à la même température à 2 hauteurs différentes dans l'appareil; la différence de temps de séjour entre les 2 capsules correspond au temps de transit entre les 2 niveaux et peut donc être traduite en vitesse locale de descente des charges. L'accord entre cette mesure et celle réalisée par profilométrie mécanique, est très satisfaisant (Fig 6).

3.3. Vitesse de fusion des ferrailles

Une autre application de cette technique concerne la vitesse de fusion des ferrailles au convertisseur. L'introduction de ferrailles massives froides dans l'acier liquide entraîne, dans une première étape, la solidification de l'acier à la surface de la ferraille, puis l'échauffement de celle-ci et enfin, sa carburation et sa fusion progressive. Il est donc difficile de connaître, à priori, la durée de fusion des ferrailles et donc de régler le procédé avec précision. Dans ce cas, une capsule fondant à 1500°C (en acier) est introduite au coeur de la ferraille massive. La libération du xénon, détectée dans le gaz du réacteur indique la fusion de la zone entourant la capsule. On a pu ainsi valider les modèles de fusion à partir des données industrielles.

4. Flux internes de matière

4.1. Accumulations dans un réacteur

Il est aussi possible d'utiliser les traçages pour évaluer les accumulations de certains éléments introduits dans les réacteurs.

Un exemple particulièrement important pour le haut fourneau est celui des alcalins (4), introduits sous formes d'oxydes solides, qui sont vaporisés dans la zone à haute température de l'appareil et qui se recondensent soit sur les matières solides, soit sur les parois du réacteur dans la zone supérieure plus froide. Leur accumulation peut entraîner de très graves perturbations de marche (Fig 7). Ces alcalins ne peuvent être éliminés que par le laitier dont la température, la composition (en particulier la basicité) déterminent la capacité d'évacuation.

Des traçages ont été réalisés par arrosage d'une couche de coke lors de son enfournement par du potassium ⁴²K (de période 12,4h) (Fig 8).

Les courbes de DTS du lanthane et du potassium sont très différentes. Le lanthane est évacué dans le laitier dès qu'il atteint le creuset du haut fourneau, tandis que la courbe de DTS du potassium, beaucoup plus étalée dans le temps témoigne de l'intensité des recirculations de cet élément.

La masse d'alcalins en recirculation est égale au produit de leur débit d'entrée par le temps de séjour moyen. On constate qu'une augmentation de la basicité, conformément à ce que prévoit la thermodynamique, réduit la solubilité des alcalins dans le laitier et augmente l'étalement de la courbe de DTS dans le temps (Fig 9). La quantité d'alcalins en recirculation dans le réacteur augmente avec la basicité du laitier et passe de 6 tonnes à près de 9 tonnes dans les conditions usuelles de variation industrielles de la basicité du laitier. La meilleure connaissance du comportement de ces éléments recyclants a permis d'éviter des incidents graves de marche des outils (blocages par ex) et d'assurer une marche stable par l'élimination continue des alcalins.

4.2. Reflux de gaz dans les fours

Les fours de recuit de l'acier comprennent, en particulier, une zone de traitement à haute température et une zone de refroidissement séparées par une cloison (Fig 10).

La circulation globale de gaz s'effectue, pour des raisons compréhensibles, à contre courant de celle de la bande. Toutefois, le refroidissement met en jeu des quantités de gaz bien supérieures à la consommation du four puisque le gaz est aspiré à travers des échangeurs de chaleur et ressoufflé à la surface de la bande.

La dépression générée par l'aspiration du gaz dans la chambre de refroidissement ainsi que les entraînements du gaz par la bande, favorisent un reflux du gaz de la zone chaude vers les étages de refroidissement.

Pour caractériser l'ampleur de ce reflux, nous avons injecté de l'hélium ou de l'argon dans la zone laboratoire et détecté celui-ci, à l'aide d'un spectromètre de masse dans chacun des 3 étages du refroidissement. Le traçage réalisé, soit sous forme d'un échelon, soit sous forme d'une impulsion, permet de déterminer l'intensité des échanges de gaz entre les diverses sections du four (Fig 11).

Le four a été modélisé par une série de réacteurs mélangés correspondant aux 3 étages de refroidissement, chaque étage étant ensuite divisé en 2 réacteurs homogènes correspondant aux zones situées de part et d'autre de la bande .

Il y a bon accord entre la modélisation et les mesures de concentration des traceurs dans chacun des étages.

5. Conclusions

Nous avons voulu montrer la diversité des applications des techniques de traçages pour la caractérisation et la modélisation de réacteurs de grande taille.

L'utilisation de traceurs radioactifs, enfournés en quantités très faibles de manière à respecter les normes de radioprotection, permet de caractériser, sans perturbation, le fonctionnement de l'appareil.

Les applications sont très diverses:

- détermination de la fonction de transfert pour la conduite dynamique
- détermination des phénomènes internes: cartes thermiques, écoulement des matières (solides, liquides et gaz), profils de solidification
- détermination des flux de matières et de gaz (reflux, accumulations) dont certains ont un impact important sur la performance thermique et chimique des outils
- et bien sûr, traçage des débits et des fuites.

Cette présentation a été centrée principalement sur le haut fourneau car on peut ainsi illustrer les très nombreuses possibilités des techniques de traçage. D'autres applications haut fourneau ont été développées:

- caractérisation des écoulements de fonte et de laitier dans le creuset du haut fourneau (5),
- écoulement des gaz à l'intérieur du haut fourneau (3),
- accumulations de zinc dans le haut fourneau (3).

Ces techniques ont, en outre, été appliquées à la plupart des autres réacteurs industriels :

- réacteurs de prétraitement de la fonte,
- régénération de l'acide au décapage (10),
- coulée continue (9), aciérie électrique, répartiteur (9),
- fours, galvanisation (7,8).

Elle est de plus, appliquée aux simulations sur maquettes pour la validation des modèles (mécanique des fluides, dimensionnement des réacteurs, suivi de particules) et aux essais de mesure de cinétiques au laboratoire (amélioration de la résolution temporelle).

REMERCIEMENTS

Les auteurs tiennent à associer tous ceux qui, au fil des années, ont contribué à ces travaux sur le traçage, sur les sites industriels et à l'IRSID, par leur participation aux essais ou aux modélisations, en particulier: MME P.GAUJE - JM.LIBRALESSO - B.METZ - H.BIAUSSER - D.SERT - MJ.VENTURINI - C.THIRION - D.FLAMION - P.HENRY - J ARNOULT - B.LOUIS - J.CLAIRE - Z.ZERMOUT - S. FIORELLI - A.GAGGIOLI

Bibliographie

- (1) O.LEVENSPIEL
Chemical Reaction Engineering J.Wiley Ed., 1962
- (2) NAUMAN.B.
Residence Time Distribution and Mixing
Chem.Eng. Com 1981, vol8, pp3-131
- (3) JM.LIBRALESSO, R.NICOLLE, JM.STEILER, M.WANIN The use of radioactive tracers in the blast furnace AIME Washington 1986 Ironmaking proceedings vol 45 pp 565-575
- (4) JM.STEILER, R.NICOLLE, B.METZ, M.WANIN, C.THIRION, D.FLAMION
Investigation on potassium build up in the blast furnace AIME 1984 Ironmaking proceedings 43 pp 427-438
- (5) P.GAUJE, R.NICOLLE, JM.STEILER, MJ.VENTURINI, JM.LIBRALESSO
Ecoulements des liquides dans le creuset du haut fourneau
in Symposium Mc Master n°19 1991 Hamilton Raceway control for optimum BF performance
pp 79-96
in CIT Rev de Métallurgie mars 1992 pp 251-260
- (6) R.NICOLLE in
Le livre de l'acier Technique & Documentation Lavoisier pp 755-768
- (7) C.BINET F.AJERSCH
Application of mixing models to evaluate the transport of aluminium in a continuous galvanizing bath
Galvatech'98 648-653
- (8) A.GAGGIOLI, G.ZANDER, C.DEUTSCH, P.FATREZ, A.LEROUGE
Leak detection on a hot dipped galvanizing line
Galvatech'98 734-738
- (9) P.GAUJE, H.TAVERNIER
Deux exemples de caractérisation du procédé de coulée continue de l'acier par traçage à l'or ⁹⁸Au
1er congrès français Traceurs et méthodes de traçage Nancy 3&4 novembre 1998
- (10) P.GAUJE O.MARSIGNY JC.ARPOASI Communication personnelle

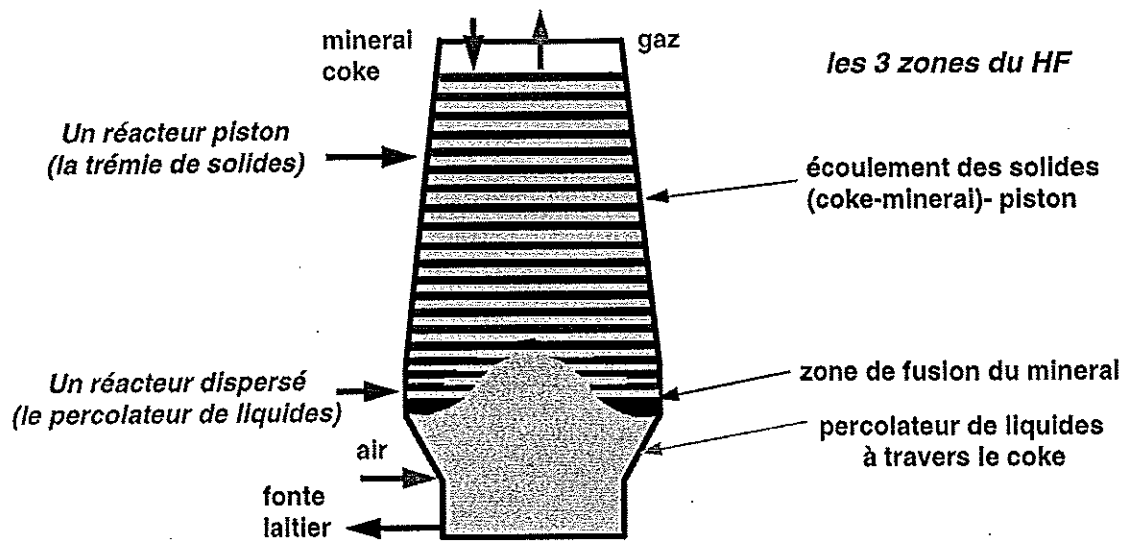


Figure 1: Schéma de fonctionnement du haut fourneau

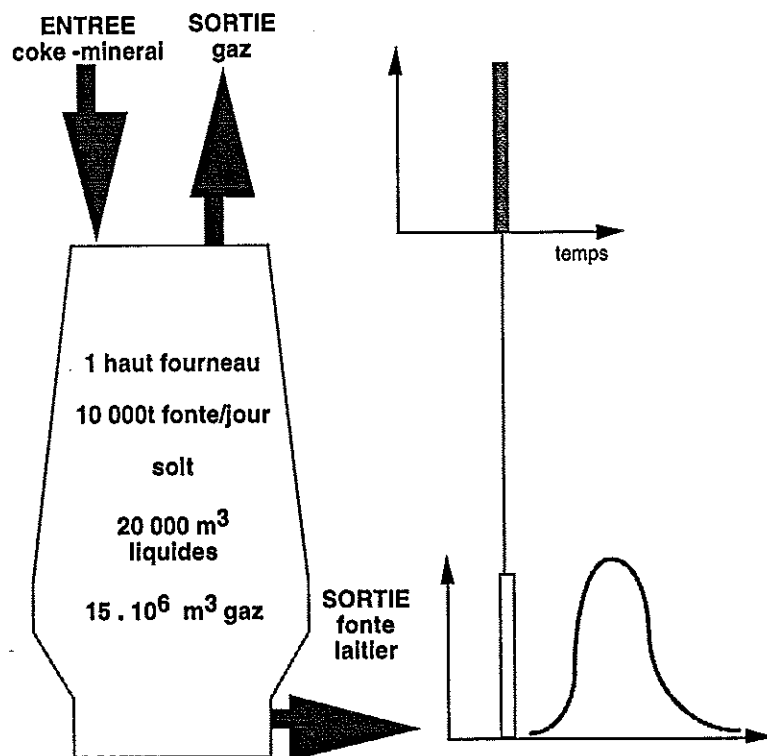


Figure 2: Principe des traçages

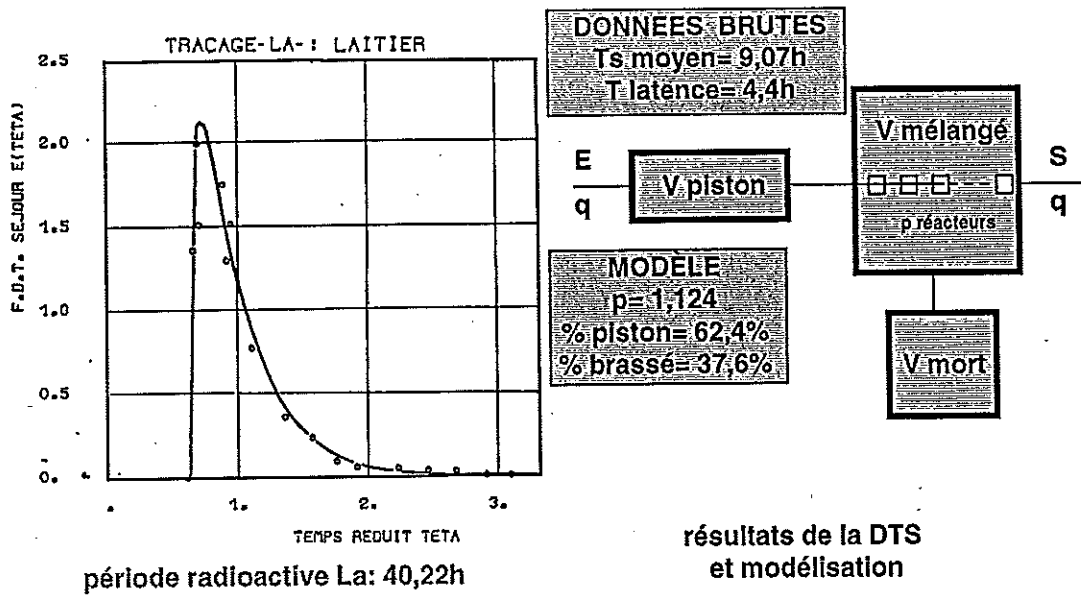
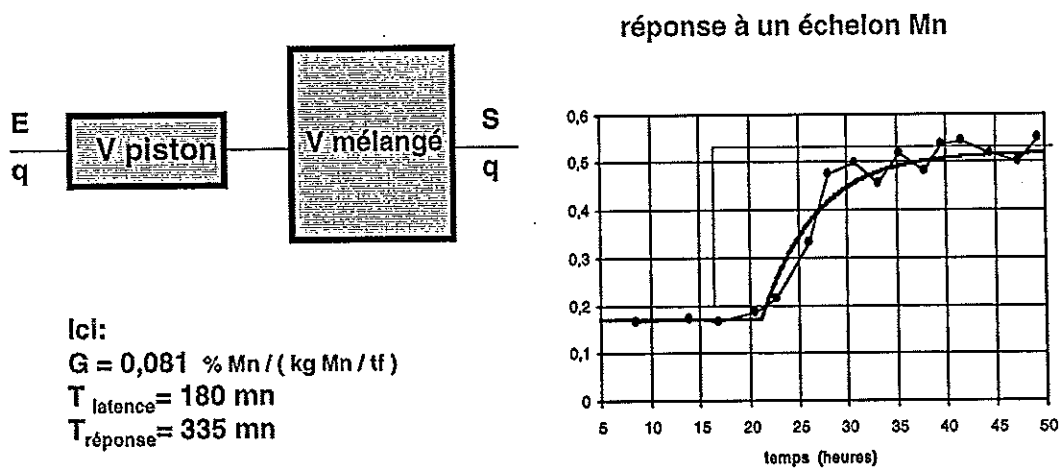


Figure 3: Détermination de la fonction de transfert par traçages



La représentation du HF par un réacteur piston et un réacteur parfaitement brassé est en bon accord avec les résultats des traçages

Figure 4: Conduite dynamique du haut fourneau: réponse à un échelon

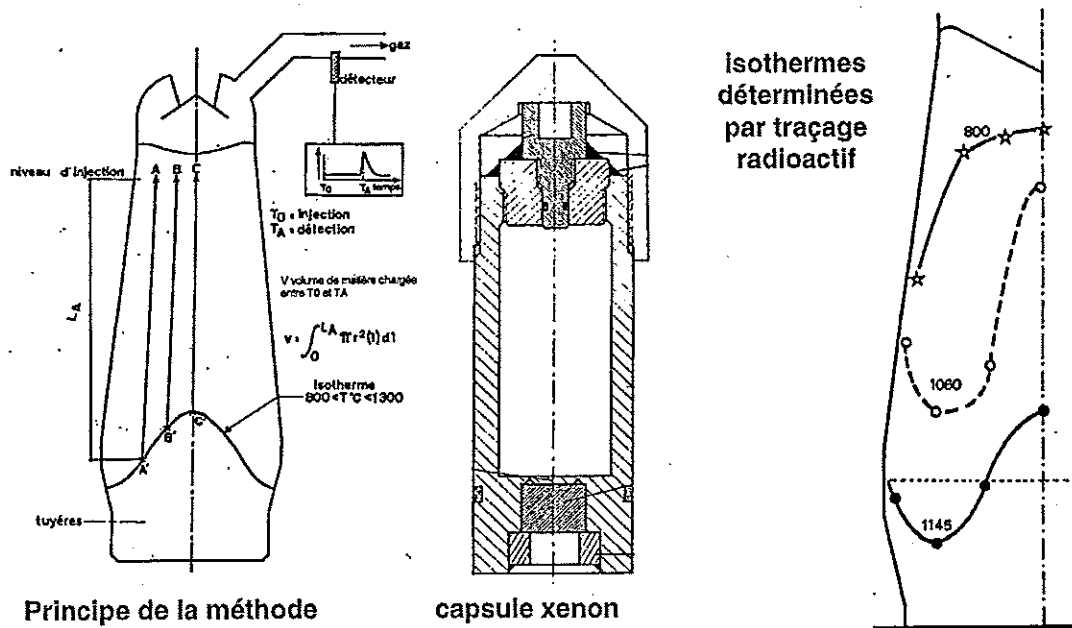


Figure 5: Carte thermique du haut fourneau par traçage radioactif

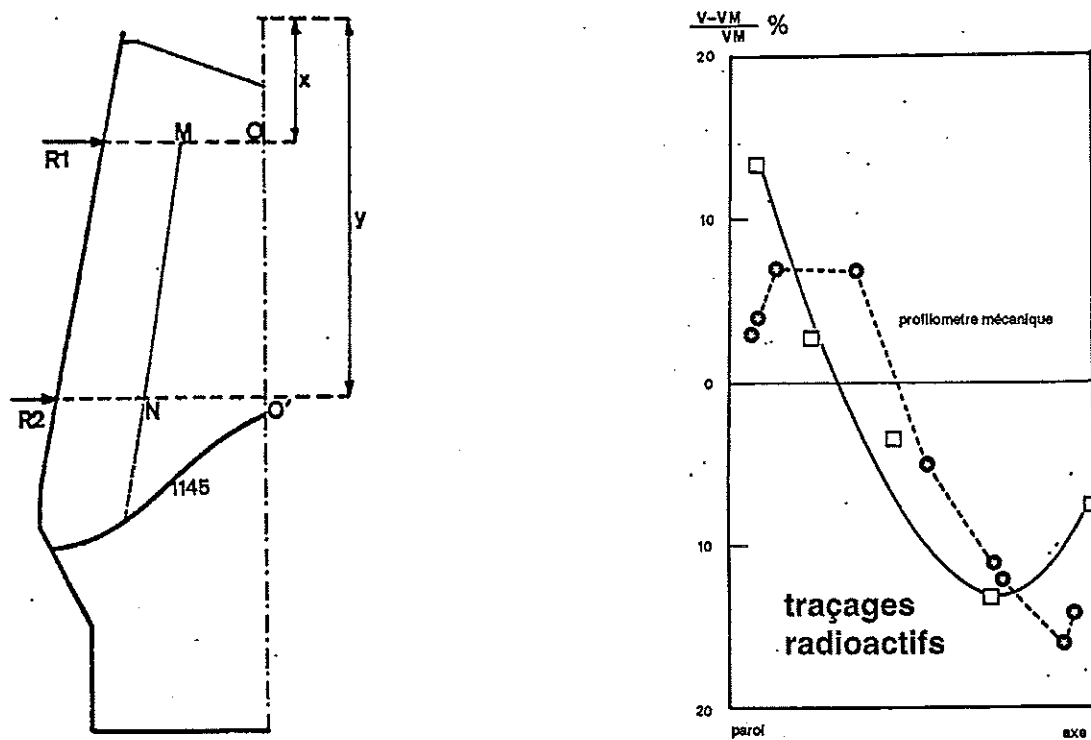


Figure 6: Principe de mesure de la vitesse de descente des matières
Variation sur le rayon du réacteur - Comparaison avec les résultats de mesures mécaniques

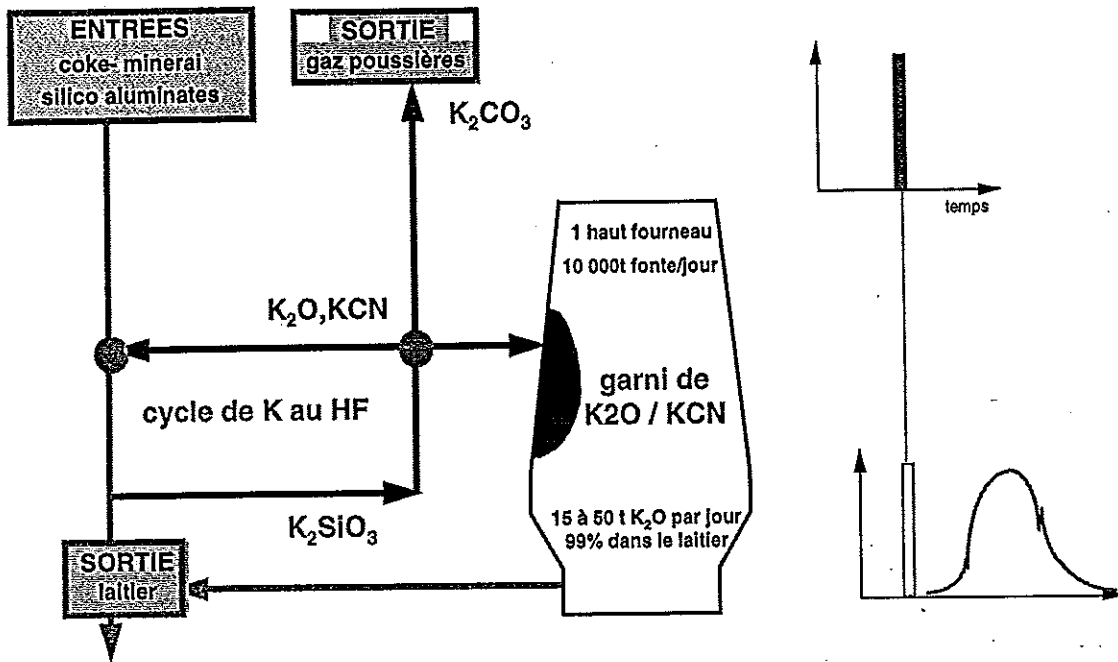
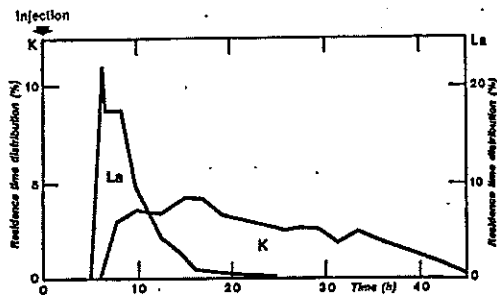
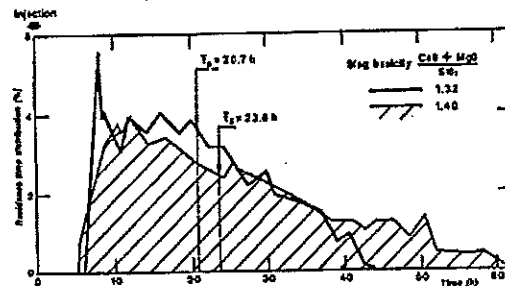


Figure 7: Recirculation des alcalins au HF



DTS comparées
d'un élèment ne s'accumulant pas La
d'un élèment qui s'accumule K



Influence de la basicité du laitier
sur les accumulations de K

Figure 8: DTS des alcalins dans le HF- influence de la basicité du laitier

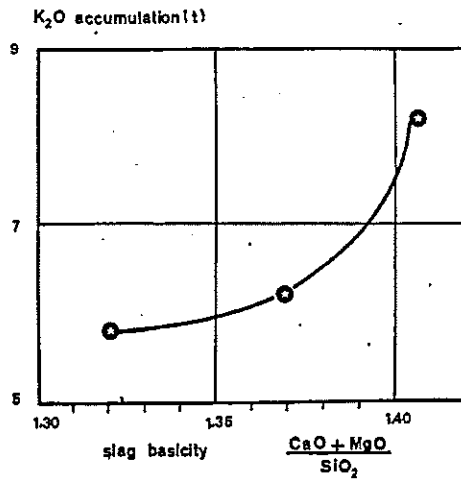


Figure 9: Influence de la basicité du laitier sur les accumulations d'alcalins

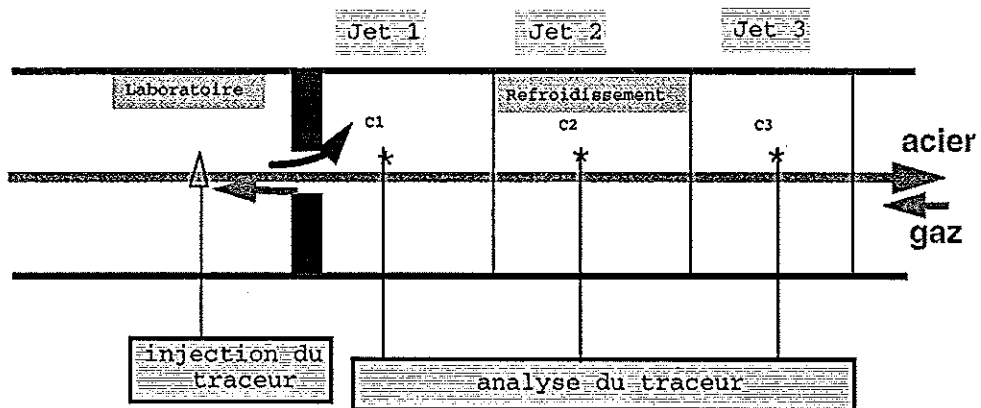


Figure 10: Flux de gaz dans les fours de recuit

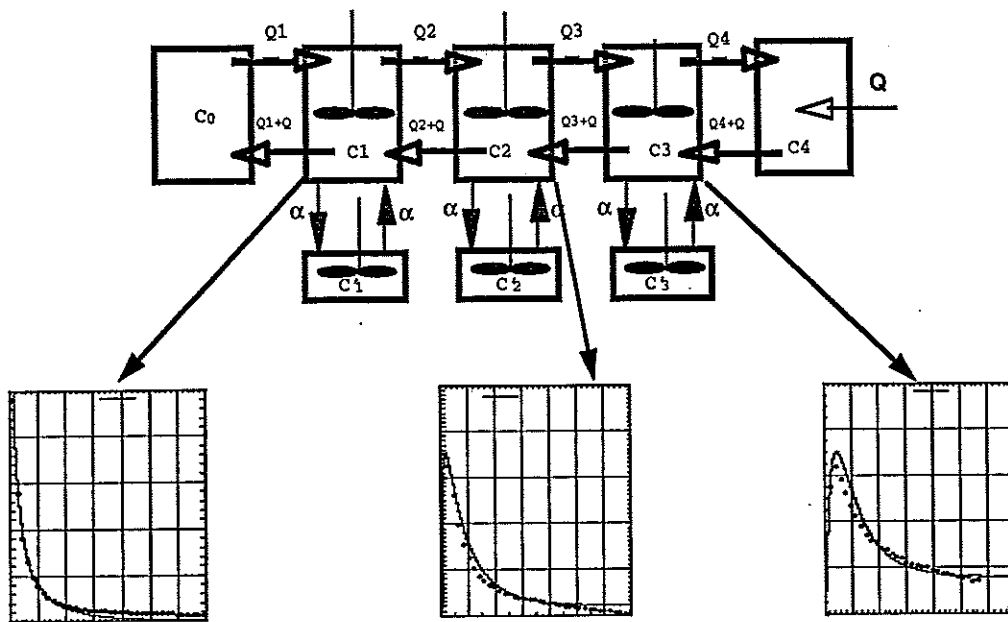


Figure 11: DTS des gaz dans les fours de recuit

DEUX EXEMPLES DE CARACTERISATION DE PROCEDE DE COULEE CONTINUE DE L'ACIER PAR TRACAGE A L'OR ¹⁹⁸AU

P. GAUJE - H. TAVERNIER

<>

IRSID

Département MCA

BP 30320

Voie Romaine

57283 MAIZIERES LES METZ CEDEX

Résumé

L'Irsid a développé plusieurs techniques de traçages radioactifs appliquées à l'étude des procédés sidérurgiques. Nous présentons ici deux types d'essais utilisant l'or ¹⁹⁸Au comme traceur de l'acier liquide en coulée continue. Le premier pour l'étude des flux en répartiteur, le second pour la mesure de l'épaisseur solidifiée en lingotière. Une maîtrise rigoureuse de la radioprotection et le couplage avec des modèles numériques ou physiques font de ces techniques un moyen puissant de compréhension des phénomènes mis en jeu dans ce procédé industriel.

I INTRODUCTION

Les techniques de traçage radioactif sont utilisées depuis très longtemps à l'Irsid pour des études très diverses en sidérurgie, génie chimique ou métallurgie. Au cours de ces dernières années nous les avons essentiellement mises en œuvre à l'aciérie (1) et au haut-fourneau pour étudier le comportement du métal liquide à différents moments de son élaboration, en fonctionnement industriel réel.

Nous présentons ici deux applications à la machine de coulée continue, la première vise la détermination de la fonction de transfert du répartiteur, la seconde permet l'étude de la solidification en lingotière.

Dans les deux cas nous utilisons l'or ¹⁹⁸Au qui est un bon traceur de l'acier liquide. Sa période (2,7 jours) permet sa mise en œuvre en quantités notables sans occasionner de contamination durable des produits et de l'environnement. Son rayonnement gamma a une énergie suffisamment élevée pour être aisément détectable.

II CONTEXTE INDUSTRIEL

Le principe de base de la coulée continue (2), représenté sur le schéma de la figure 1, est de former, à l'aide d'une lingotière sans fond, une croûte de métal solide suffisamment résistante pour contenir le métal liquide et être extraite à vitesse constante, puis de faire croître cette peau jusqu'à solidification complète du produit.

Les principaux éléments constitutifs d'une machine de coulée continue sont les suivants :

- Le répartiteur est un récipient placé entre la poche amenant le métal liquide de l'aciérie et les lingotières. Ses principales fonctions sont de permettre l'alimentation simultanée de plusieurs lingotières et la coulée sans arrêt de machine de plusieurs poches consécutives.

- La lingotière de longueur inférieure à 1 m, dont les parois en cuivre sont refroidies par circulation intense d'eau, est l'élément essentiel de la machine. Elle permet la mise en forme du produit coulé et la formation de la peau solide. Afin d'éviter le collage de la peau contre les parois, la lingotière est animée d'un mouvement d'oscillation verticale de faible amplitude et un lubrifiant est introduit.

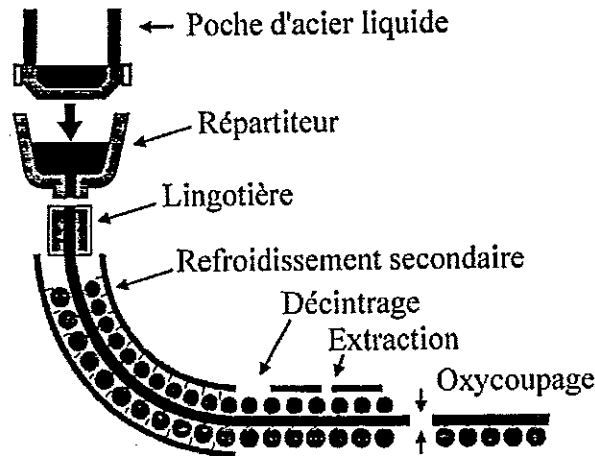


Figure 1 : schéma de principe d'une machine de coulée continue

- Le refroidissement secondaire est la partie de la machine que traverse le produit lorsqu'il est extrait de la lingotière. Il est constitué, d'une part, d'un système mécanique de soutien et de guidage par rouleaux du produit, et d'autre part, d'un système de refroidissement par aspersion d'eau permettant la maîtrise de la température de surface du produit jusqu'à sa complète solidification.
- L'extracteur, formé de rouleaux motorisés, assure la descente à vitesse constante du produit dans la machine. Pour une machine donnée, la vitesse d'extraction (ou vitesse de coulée) est choisie en fonction du format coulé, de la nuance d'acier à solidifier et des caractéristiques géométriques de l'installation. A titre d'exemple, les vitesses pratiquées industriellement en coulée continue de brames varient de 0,5 à 2,5 m/min.

III TRACAGE DES ECOULEMENTS DU METAL EN REPARTITEUR

En plus de ses fonctions de répartition du métal liquide entre les lignes de coulée et de volume tampon lors des changements de poche, le répartiteur a un rôle métallurgique de décantation des inclusions non métalliques contenues dans le bain. De manière à limiter la teneur en inclusions du métal produit, les aciéristes cherchent à allonger le temps de court circuit et le temps de séjour moyen du métal dans le répartiteur et à réduire le volume mort thermiquement défavorable.

L'objectif du type de traçage que nous présentons ici est la mesure de la distribution des temps de séjour du métal dans le répartiteur en conditions réelles de fonctionnement, ce qui permet d'apprécier l'amélioration obtenue pour la décantation des inclusions lors d'une modification de l'appareil et de mesurer les durées de transition en répartiteur lors des changements de poche.

On injecte le traceur en amont du répartiteur en faisant en sorte d'approcher autant que possible un pic de Dirac, pour la mesure de la DTS en régime permanent, ou dilué de manière homogène dans le contenu d'une poche afin de générer un échelon de concentration pour l'étude des régimes transitoires intervenant lors des changements de poche.

Pour la mesure de la DTS en régime permanent, le fil d'or activé (typiquement 3 à 7 GBq pour 15 à 50 tonnes d'acier en répartiteur) est enfermé dans une capsule de laiton fixée à l'extrémité d'une canne coulissant dans un guide. On cherche à garantir ainsi un positionnement répétable du traceur dans le jet "poche-répartiteur" à sa sortie du tube de protection et sa fusion instantanée à cet endroit (figure 2). Des essais réalisés avec des porteurs en aluminium ou en acier ont montré que le cuivre est un bon compromis.

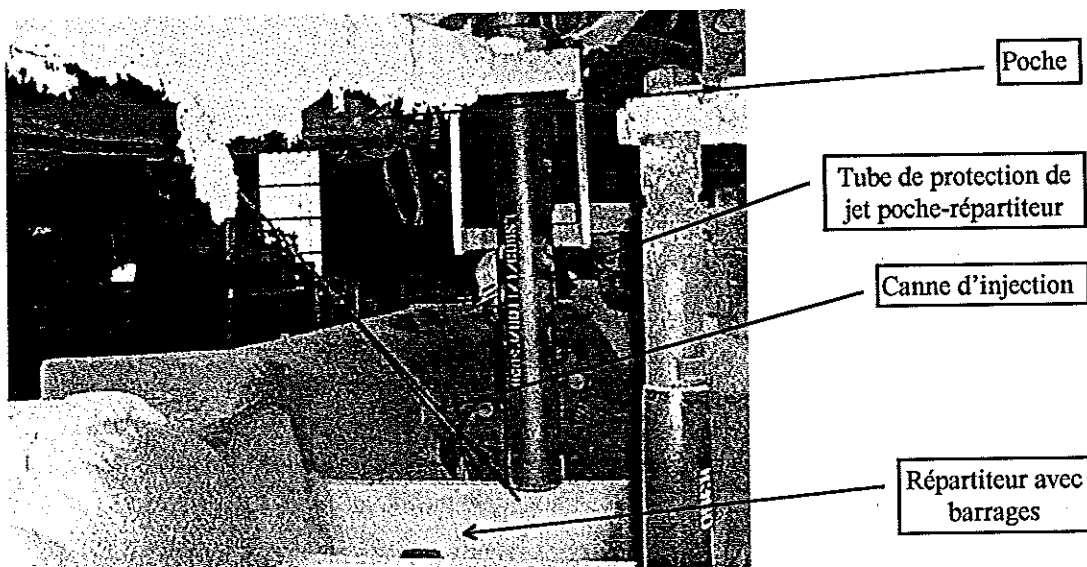


Figure 2 : Introduction en répartiteur, essai à blanc.

Pour l'étude des régimes transitoires, nous introduisons le traceur (typiquement 4 à 10 GBq d'or ^{198}Au pour 45 à 100 tonnes d'acier en poche) dans la poche d'alimentation avant une opération de brassage métallurgique qui précède la coulée, on garantit ainsi l'homogénéisation de la concentration en traceur dans tout le contenu de la poche. La détection est assurée en continu au moyen de sondes à scintillation (BGO) placées dans des chemises refroidies à l'air comprimé ou à l'argon placées en sortie de répartiteur, juste au dessus des lingotières (figure 3). Il y a autant de détecteurs que de lignes de coulée (1 à 4).

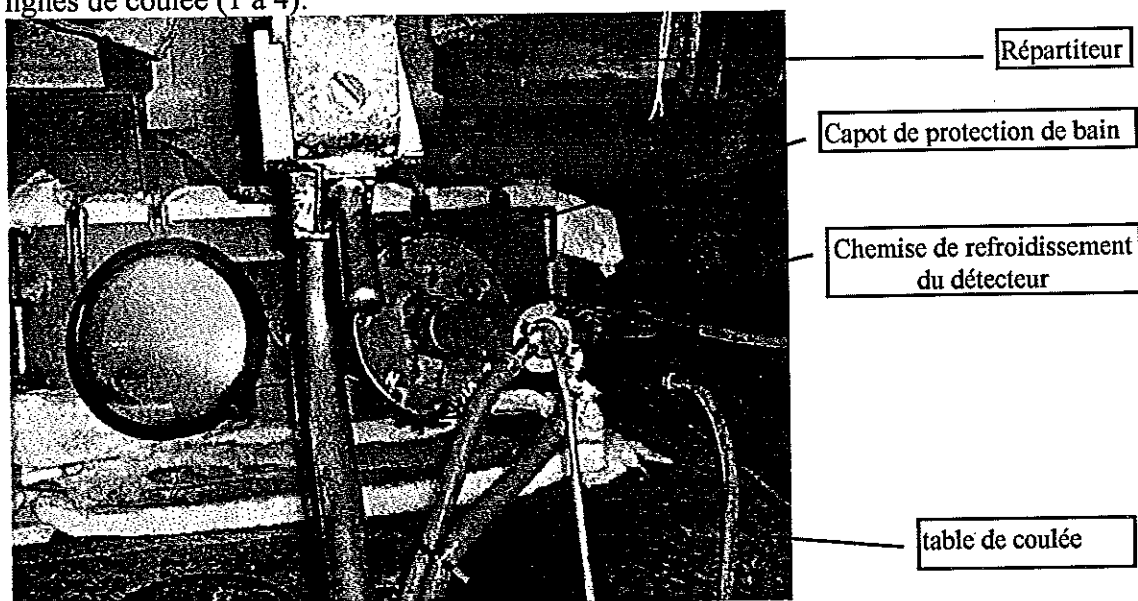


Figure 3 : Exemple d'installation d'un détecteur en sortie de répartiteur

Les signaux sont transmis à une électronique analogique classique puis à un système multi-échelle multivoies sur PC. Après correction de bruit de fond et normalisation, on obtient directement la DTS recherchée (3). Les figures 3 et 4 montrent deux exemples de résultats d'essais.

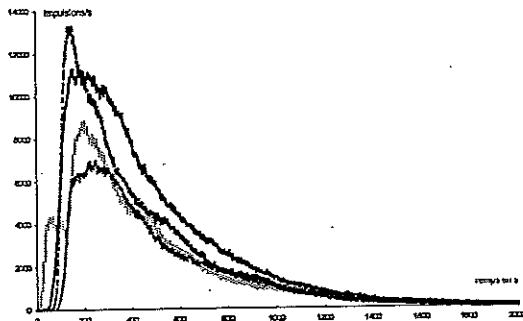


Figure 3 : Fonction de transfert en régime permanent sur un répartiteur à 4 lignes

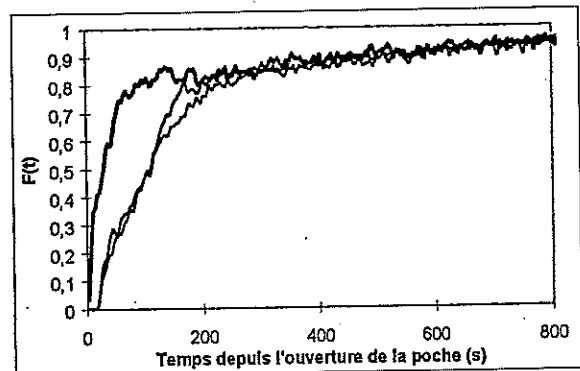


Figure 4 : Courbes de transition au changement de poche sur un répartiteur à 3 lignes de coulée

Les traçages radioactifs en milieu industriels sont des essais coûteux. Pour les études systématiques comprenant un grand nombre de configurations, on les utilise en liaison avec des essais sur maquettes hydrauliques et des modélisations numériques. Dans ce contexte, les traçages sont utilisés pour vérifier le bon calage des autres moyens d'étude. La figure 5 ci-dessous montre un exemple de comparaison de DTS sur répartiteur réel et sur maquette.

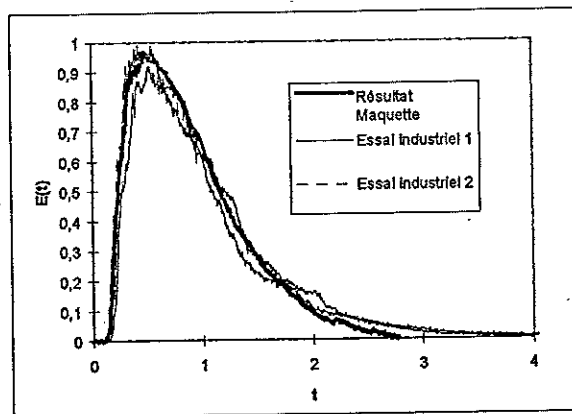


Figure 5 : comparaison de DTS sur répartiteur réel à une ligne et sur maquette

IV MESURE DE L'ÉPAISSEUR SOLIDIFIÉE EN LINGOTIÈRE

L'épaisseur de la peau solide en sortie de lingotière est une caractéristique essentielle du fonctionnement de la machine. Une peau plus épaisse que nécessaire traduit un potentiel de gain de productivité, une peau trop mince ou irrégulière fait courir un risque de percée. Le type de traçage que nous présentons ici vise à fournir une mesure de l'épaisseur solidifiée et de sa régularité. C'est un essai lourd mais fort utile lors de la

validation d'un nouveau type de lingotière, en complément de l'utilisation de modèles thermiques.

Le traceur (typiquement 30 GBq d'or ^{198}Au) est injecté dans les jets de métal en sortie de la busette d'alimentation de la lingotière étudiée, de manière analogue à l'injection en répartiteur décrite précédemment. Les forts courants générés par ces jets permettent la dispersion homogène du traceur dans la totalité du bain liquide, au moins au niveau de la lingotière. La peau solide n'est, par contre, pas contaminée. Après solidification complète du produit, la zone correspondant à l'essai est découpée en plaquettes suivant les sections et génératrices qu'on veut étudier. Les clichés autoradiographiques obtenus à partir de ces plaquettes permettent une mesure directe de l'épaisseur solidifiée, par comparaison entre le profil extérieur des plaquettes et la transition entre les zones impressionnées et non impressionnées du film (figure 6). La précision de mesure est de l'ordre 0,5 mm.

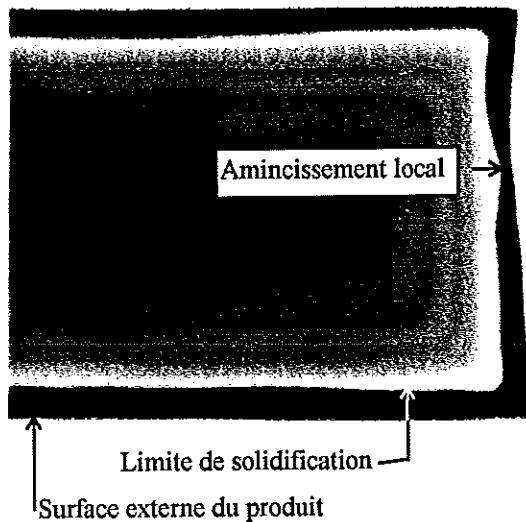


Figure 6 : exemple de visualisation d'épaisseur solidifiée dans l'angle d'une brame d'épaisseur 190 mm, par autoradiographie.

On obtient ainsi un grand nombre de mesures locales de l'épaisseur solidifiée sur tout le périmètre de la lingotière, on peut les utiliser pour étudier l'influence des différents paramètres de coulée. La figure 7 montre, par exemple, l'effet d'une variation de vitesse.

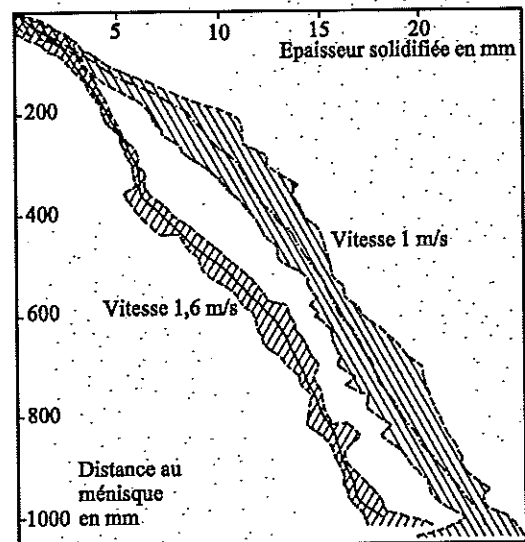


Figure 7 : exemple de variation de l'épaisseur solidifiée (moyennes et dispersion) en fonction de la vitesse de coulée.

V RADIOPROTECTION

La pérennité de ce genre d'essais reste suspendue à une maîtrise rigoureuse de la radioprotection, protection des travailleurs et de l'environnement. Nous avons mis à profit notre très longue expérience sur ce sujet pour affiner toujours davantage la prise en compte de cet aspect, au niveau de la conception des essais, de leur réalisation, et de la communication aux personnels des sites.

Chaque campagne fait l'objet d'un protocole d'emploi du traceur adapté aux caractéristiques particulières du site, validé par la CIREA et discuté avec les responsables du site et les personnels concernés.

Sur le plan de la protection des travailleurs, la principale difficulté survient au moment de l'introduction du traceur, le débit de dose à proximité peut atteindre 5 mSv pendant quelques secondes. Les membres de l'équipe IRSID sont classés DATR et portent des dosimètres, les travailleurs du site sont tenus éloignés, de manière à limiter le débit de dose auquel ils sont soumis à une valeur inférieure à 2,5 µSv/h. A l'issue d'une campagne d'essais, la dose cumulée par chaque membre de l'équipe est de l'ordre de 250 µSv. Cette valeur est faible au regard des activités manipulées (37 GBq/campagne), nous l'obtenons grâce à l'emploi aussi fréquent que possible de montages de protection et en étudiant soigneusement les enchaînements de gestes lors des manipulations.

Sur le plan de la protection de l'environnement, le point essentiel est la maîtrise de la contamination: L'or se concentre uniquement dans l'acier coulé, les équipements et les réfractaires ne sont pas contaminés. A la sortie de la machine les produits sont triés et ceux qui sont concernés par l'essai (quelques dizaines de tonnes) sont isolés et conservés pour décroissance. La brièveté de la période de l'or ¹⁹⁸Au permet d'obtenir cette décroissance en un temps raisonnable, de l'ordre du mois. Tous les sites du groupe Usinor sont équipés de barrières de contrôle de la non contamination radioactive des matières premières qui sont utilisées pour valider la sortie de ces produits.

VI CONCLUSIONS

Les traçages radioactifs demeurent un outil puissant pour l'étude des procédés mettant en œuvre l'acier liquide. Ils constituent souvent le seul moyen d'obtenir des informations fiables sur le fonctionnement interne d'un appareil, sans y apporter de perturbation notable. La lourdeur de leur mise en œuvre en milieu industriel en restreint l'usage mais cet inconvénient peut être limité par un couplage avec des modèles numériques ou des maquettes hydrauliques.

Une bonne maîtrise de la radioprotection permet de continuer d'envisager leur application habituelle à l'optimisation des outils et des procédés sidérurgiques.

REFERENCES

- (1) J.C. Arpoasi, P.Gaujé, M. Wanin, J.Welfringer Utilisation de traceurs radioactifs ou activables en aciérie, journées de spectrométrie gamma et X (BNM) 12-14/10/93
- (2) Jean.Pierre.Birat, Michel Larrecq communication interne Irsid 11/93
- (3) H.Tavernier, C.Pussé, M.Barbier, P.Mouton rapport interne IRSID 04/98

LES MESURES DE DTS POUR L'EXTRAPOLATION DE PROCÉDES INDUSTRIELS DE RAFFINAGE

J. BAYLE, J.M. SCHWEITZER, J.C. VIGUIE, C. BOYER, J.P. BURZYNSKI,
J.P. EUZEN

◁ IFP - CEDI René Navarre
BP 3
69390 VERNAISON

Résumé

Pendant l'étape de développement de procédés de raffinage, les traceurs servent pour quantifier l'hydrodynamique des maquettes ou des pilotes. Trois exemples illustrent l'utilisation de méthodes de traçage en milieux polyphasiques. En craquage catalytique en lit fluidisé la répartition du gaz dans les cyclones est analysée grâce à un traçage par de l'hélium. En purification continue des xylènes par adsorption en lit fixe, des sondes optiques noyées dans le lit mesurent simultanément les variations d'indice de réfraction dues au traceur pour caractériser l'écoulement du liquide. Dans un réacteur de synthèse Fischer Tropsch, la dispersion axiale du liquide est obtenue grâce aux variations de densité liées à l'injection d'un traceur de densité différente. Ces exemples montrent intérêt et limites des méthodes de traçage et de DTS dans le cadre de l'extrapolation de procédés.

I. INTRODUCTION

Le raffinage des produits pétroliers a pour objectif de transformer des pétroles bruts en carburants, combustibles ou bases pour la pétrochimie. Ce marché évolue en permanence en quantité et en qualité. Comme, par ailleurs, l'industrie du raffinage du pétrole est caractérisée par de grandes capacités de traitement (souvent quelques millions de t/an) l'amélioration continue des procédés existants est tout aussi importante que la mise au point de nouveaux procédés. A côté des progrès de nature chimique, le développement de procédés s'appuie aussi sur des études plutôt physiques, hydrodynamiques ou technologiques. Comprendre et quantifier le comportement des phases en jeu est alors indispensable pour concevoir et valider des modèles ou pour établir les règles de calcul et de dimensionnement des unités industrielles. A ce stade, les méthodes de visualisation et de traçage permettent d'obtenir des informations expérimentales précieuses (1).

Dans ce contexte d'extrapolation de procédés pétroliers, trois exemples sont présentés pour illustrer différents modes d'utilisation des traceurs. Ils correspondent à des types de milieux polyphasiques très souvent mis en oeuvre : gaz/solide (procédé R2R), liquide/solide en lit fixe (procédé ELUXYL) ou gaz/liquide/solide en lit bouillonnant (synthèse Fischer Tropsch). Dans chacun de ces cas, le procédé, les conditions expérimentales et les résultats sont précisés. La discussion conduit à dégager l'intérêt et les limites des méthodes examinées.

II. ESSAIS DE TRAçAGE

II.1. Milieu gaz-solide : Le procédé R2R de craquage catalytique

Le procédé R2R

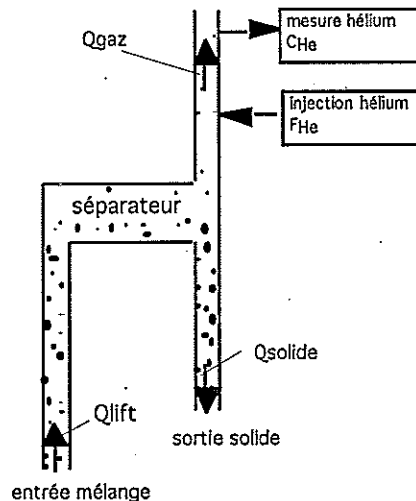
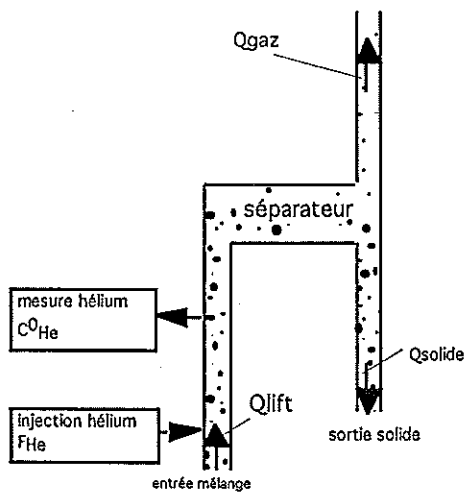
Le procédé de craquage catalytique permet de convertir les coupes lourdes pétrolières en essence et gaz légers valorisables. La demande en carburants conduit à des unités industrielles de grande capacité (environ 2 Mt/an) et à une recherche permanente pour améliorer l'opérabilité, la qualité des essences et la sélectivité en produits à haute valeur ajoutée (2, 3).

Dans ce procédé, le temps de contact très bref entre le catalyseur en poudre fine et la charge vaporisée joue un rôle déterminant sur la qualité des produits. Il est donc indispensable d'assurer une séparation rapide et efficace des phases. Cette séparation gaz-solide s'effectue à l'aide de séparateurs balistiques dans lesquels la force centrifuge plaque les particules contre la paroi externe. Deux paramètres importants caractérisent le fonctionnement du séparateur :

- la quantité de solide entraînée dans la sortie gaz, nommée efficacité de collecte solide du séparateur
- la quantité de gaz entraînée dans la sortie solide, nommée underflow.

Les essais de traçage ont été réalisés dans une maquette froide de quelques décimètres de côté en présence d'air et de particules de catalyseur réel ($\bar{d}_p \cong 70\mu m$).

• L'efficacité de collecte solide, qui varie entre 80 et 100%, est alors évaluée par prélèvement isocinétique dans la "sortie gaz" du séparateur.



• L'underflow, qui peut aller de 0 à 100%, est plus délicat à mesurer puisqu'il s'agit de quantifier la répartition du flux gazeux entre les deux sorties possibles du séparateur, la "sortie gaz" et la "sortie solide".

Une première méthode consiste à exploiter les données de pertes de charge mesurées indépendamment dans ces deux sorties ; elles permettent de calculer la valeur de l'underflow si la présence de solides dans la "sortie gaz" ne les perturbe pas de manière trop significative. Cette approximation n'est valide que lorsque l'efficacité de collecte est supérieure à 95%.

Une deuxième méthode consiste à utiliser un gaz inerte, par exemple l'hélium, afin de tracer le gaz injecté dans le séparateur.

Le traçage du gaz par l'hélium.

Dans le montage expérimental, un débit continu d'hélium, contrôlé par débitmètre, peut être injecté en deux positions différentes :

- en amont du séparateur gaz-solide, auquel cas l'hélium est dilué par l'air de convoyage du lift (injection type A),
- en aval de la sortie gaz du séparateur gaz-solide, avec dilution par l'air provenant de la sortie gaz du séparateur (injection type B).

Des échantillons de gaz prélevés par seringue en amont et en aval du séparateur sont ensuite analysés grâce à un catharomètre portable (MTI équipé d'une colonne à tamis moléculaire utilisant l'argon comme vecteur). Ce catharomètre est réétalonné quotidiennement à l'aide d'une bouteille étalon de 2000 ppm en volume d'hélium.

Les essais s'effectuent en deux temps comme schématisé sur les figures 1 et 2 :

- injection de type A : L'hélium est d'abord injecté en amont du séparateur (débit d'hélium injecté F_{He} d'environ $0,1 \text{ Nm}^3/\text{h}$) dans l'air de convoyage (débit Q_{lift} de l'ordre de $200 \text{ Nm}^3/\text{h}$). La mesure de la teneur en hélium c_{He}^0 de l'air qui entre dans le séparateur

permet de calculer le débit en air du lift : $Q_{lift} = \frac{F_{He}}{c_{He}^0}$

- injection de type B : Dans un deuxième temps, le même débit d'hélium est injecté en aval de la sortie gaz du séparateur gaz-solide. La concentration mesurée c_{He} est alors

proportionnelle au débit de gaz Q_{gaz} provenant de la sortie gaz du séparateur : $Q_{gaz} = \frac{F_{He}}{c_{He}}$

L'underflow U se déduit alors simplement : $U = 100 * \left(\frac{c_{He} - c_{He}^0}{c_{He}} \right)$

Les résultats

Les valeurs de vitesses superficielles de gaz dans le lift (VSG) obtenues par cette méthode de traçage et celles qui sont calculées à partir d'une sonde annubar placée en amont du séparateur sont en bon accord ($\pm 5\%$), que le courant de gaz soit, ou non, chargé de particules (fig. 3). La présence de particules solides ne perturbe pas les mesures faites en amont du séparateur, ce qui prouve que l'adsorption d'hélium sur les particules est négligeable. De même, les valeurs d'underflow calculées à partir du traçage ou à partir des pertes de charge se recoupent correctement ($\pm 10\%$) sur une large plage (fig. 4).

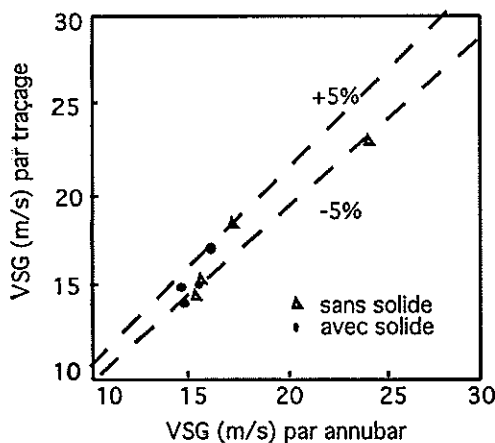


Figure 3 : Comparaison des vitesses

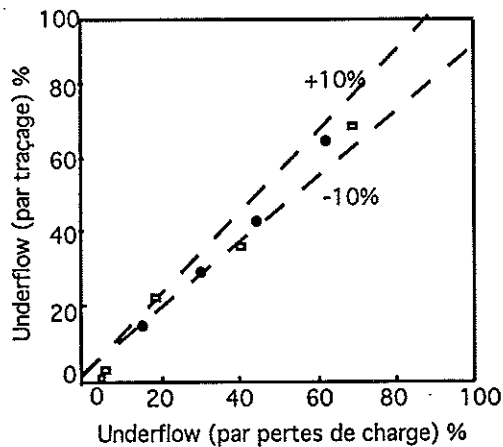


Fig. 4 : Comparaison des underflow"

En conclusion, ces essais montrent que l'hélium peut être utilisé comme traceur en présence de particules de catalyseur de craquage catalytique. Ce traçage à l'hélium permet de déterminer facilement la répartition du gaz entre les deux sorties d'un séparateur.

II.2. Milieu liquide-solide : Le procédé ELUXYL de séparation des xylènes

Le procédé

Le procédé ELUXYL permet d'isoler le paraxylène des coupes pétrolières riches en hydrocarbures aromatiques en C8 par adsorption sur tamis moléculaire. Les unités industrielles actuelles permettent d'obtenir du paraxylène à plus de 99% de pureté (4).

Pour optimiser le rendement et la sélectivité de la séparation, l'efficacité du mélange du flux principal avec des flux secondaires et la répartition homogène du flux principal sur de grandes sections de réacteur (parfois plus de 7 m de diamètre) sont primordiales.

Les essais

Des essais ont donc été conduits pour caractériser l'écoulement en plusieurs points d'un même plan pour différentes sections du lit de catalyseur et en déduire la qualité de la distribution ou du mélange des fluides. Différentes maquettes froides sont alors mises en oeuvre pour simuler les lits de l'unité industrielle. Le comportement hydrodynamique des fluides réels dans les conditions opératoires industrielles est simulé : le fluide principal est remplacé par de l'heptane et les fluides secondaires par de l'hexane. L'hexane sert aussi de traceur.

Le traçage du liquide par l'hexane (indice de réfraction)

Des sondes de type fibre optique sont noyées dans le lit pour mesurer l'indice de réfraction *in situ*. Ces sondes possèdent à leur extrémité une cavité traversée par l'écoulement. Cette cavité est délimitée par une paroi en TiO₂ et une paroi en silice. Une onde incidente de lumière blanche transmise à travers une fibre optique vient se réfléchir successivement sur ces deux parois. L'onde résultant de la superposition de ces deux ondes réfléchies est caractérisée par un spectre de type sinusoïdal correspondant aux franges d'interférence. Il existe pour les minima d'amplitude une relation linéaire entre la longueur d'onde λ , l'épaisseur de la cavité d et l'indice de réfraction n , soit $n = \frac{3\lambda}{d}$. Par

rapport aux prélèvements habituels, en ligne ou non, pour mesurer l'indice de réfraction par réfractométrie différentielle, ces sondes permettent des déterminations *in situ* en N points distincts de façon simultanée. Elles exigent par contre un étalonnage rigoureux pour que la reproductibilité entre les différentes sondes soit parfaite.

On injecte, de façon classique, une impulsion de traceur en amont de l'entrée puis on suit au cours du temps la variation de la concentration au niveau des différents points de mesure. L'indice de l'hexane qui sert de référence est mesuré au niveau de l'injection. La précision sur la concentration en traceur est de $\pm 1\%$.

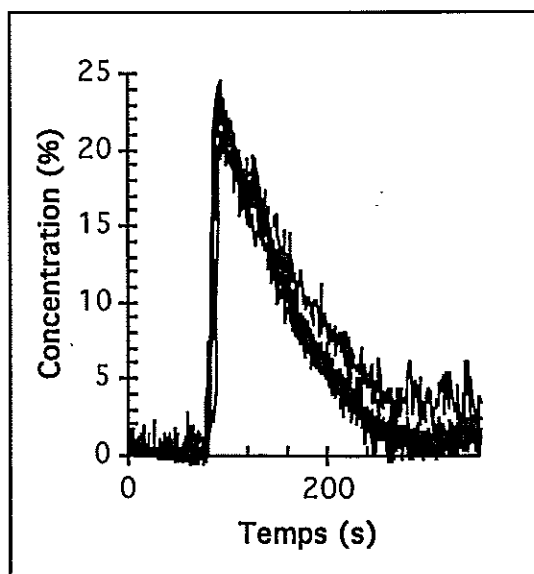


Figure 5 : Distribution des fluides

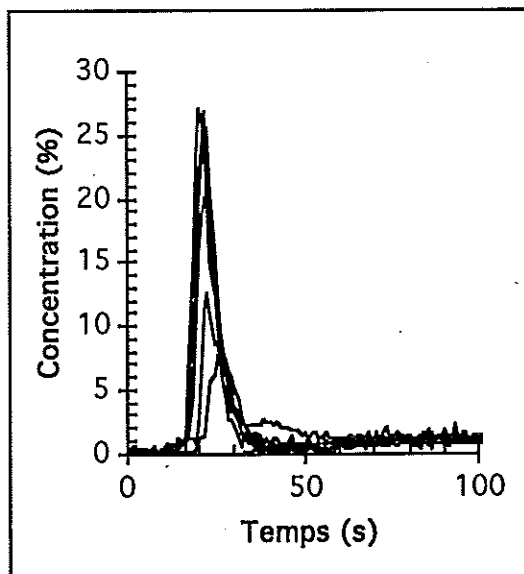


Figure 6 : Mélange des fluides

Les résultats

En maquette, lors du traçage de l'écoulement principal, les concentrations sont mesurées simultanément en 7 points d'une même section de 1.6 m^2 . Au delà d'une exploitation classique des courbes de DTS, l'excellente superposition de ces courbes permet de conclure en faveur d'une distribution réussie de l'écoulement principal (fig. 5).

Pour déterminer l'efficacité de mélange du fluide secondaire avec l'écoulement principal, une impulsion d'hexane est injectée à travers l'un des circuits secondaires. Les concentrations sont alors mesurées en continu pour 7 points d'une même section du lit à l'aval du plateau de mélange des fluides (figure 6). On compare l'aire de chaque courbe à l'aire correspondant à la concentration idéale que l'on obtiendrait avec un mélange parfait. Si l'écart entre les aires est supérieur à 10% le plateau testé n'est pas considéré comme assez efficace en terme de mélange du fluide secondaire avec l'écoulement principal.

Finalement, cette détermination continue et simultanée de plusieurs réponses locales à une injection impulsionnelle permet un diagnostic précis d'une efficacité de mélange ou d'une répartition d'un écoulement liquide.

II.3. Milieu gaz-liquide-solide : La synthèse Fischer Tropsch

Le procédé

Le procédé de conversion du gaz naturel en distillats moyens (essence et gazole) s'appuie sur la réaction de synthèse de Fischer Tropsch qui a lieu en présence de catalyseur en poudre ($\bar{d}_p \approx 50 \text{ } \mu\text{m}$). L'exothermicité très élevée de cette réaction conduit à proposer des réacteurs en lit bouillonnant triphasique de grande taille. Les gradients thermiques sont alors maîtrisés grâce au brassage intense du mélange liquide-solide provoquée par l'injection de gaz. Le slurry (liquide + solide) est présent dans la colonne, mais alimentation et soutirage sont négligeables dans un premier temps. La dispersion du traceur peut alors être modélisée, par une loi de dispersion pure :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} - \frac{\partial C}{\partial t^*} = 0 \text{ avec } Z = \frac{z}{L} \text{ et } t^* = \frac{t D_{ax}}{L^2}$$

C étant la concentration en traceur, z la cote dans la colonne de hauteur L et D_{ax} le coefficient de dispersion axiale du liquide. La résolution de cette équation (assortie des conditions aux limites) permet de calculer, pour chaque valeur de D_{ax} , l'évolution de la concentration en traceur en fonction du temps à n'importe quel niveau dans la colonne.

Les essais de traçage

Les essais sont réalisés en maquette (0,15 m de diamètre, 3 m de hauteur) en présence d'heptane, d'azote et de catalyseur en conditions ambiantes (fig. 7). Le liquide ne circule pas à travers la colonne mais le gaz est introduit à la base et engendre une forte turbulence.

Le traçage du liquide par l'isohexadécane (densité)

Le traceur utilisé est de l'isohexadécane à cause de sa densité nettement supérieure à celle de l'heptane. Il est injecté en haut de la colonne (0,4 litre en 2 s) ; des échantillons sont prélevés en haut et en bas de la colonne toutes les cinq secondes. Après décantation du solide, la concentration du traceur est calculée à partir de la densité du liquide surnageant. Comme la quantité de traceur injecté est cent fois plus faible que le volume total de liquide de la colonne, la variation de densité du liquide n'affecte pas sensiblement le comportement du milieu.

Les résultats

Le coefficient de dispersion axiale est ajusté pour représenter les résultats expérimentaux de la prise d'échantillon du haut de colonne puis validé par les résultats de celle du bas (exemple figure 8).

Des essais ont été réalisés pour différentes vitesses superficielles de gaz (0,6 cm/s à 20 cm/s) et différentes concentrations de solide (0% à 30%). En absence de solide, les

coefficients de dispersion axiale confirment les résultats de la littérature. En présence de solide, la précision reste acceptable jusque vers 20% de solide. Au delà, les variations de concentration du solide du haut en bas de la colonne modifient l'hydrodynamique locale et ne permettent plus de supposer que le coefficient de dispersion axiale reste invariable dans tout le réacteur. Des mesures plus fines sont alors souhaitables.

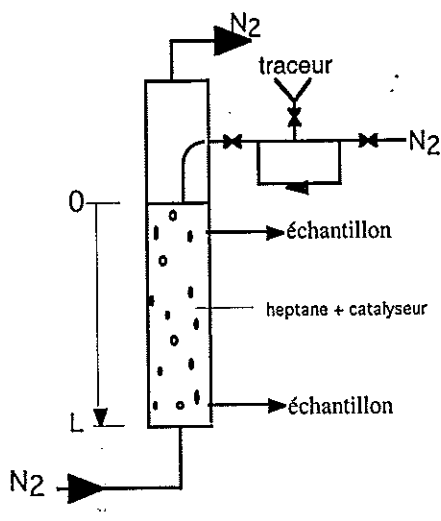


Figure 7 : Maquette en lit bouillonnant

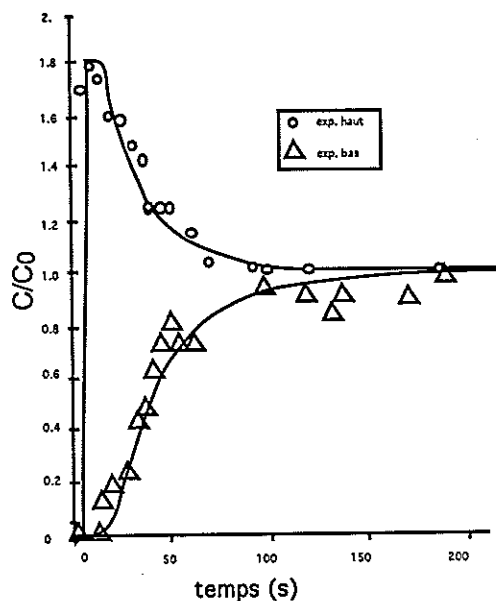


Figure 8 : Evolution des concentrations

En définitive, la méthode mise en oeuvre est simple mais efficace pour rendre compte du comportement du liquide dans ce milieu triphasique en lit bouillonnant.

III. CONCLUSIONS

Les trois exemples présentés dans le contexte du raffinage pétrolier correspondent à des procédés importants où la connaissance des processus de mélange, de séparation ou d'écoulement et leur représentation quantitative est nécessaire pour l'extrapolation. Les milieux et les objectifs de ces exemples sont différents mais des expériences de traçage assez simples ont chaque fois pu faire progresser la compréhension, la modélisation et l'optimisation des procédés. Les limites résultent de la difficulté des mesures directes dans ces milieux polyphasiques. Pourtant, à défaut de méthodes de mesures idéales (en particulier sensibles, fiables, continues, parfois locales mais non intrusives, ...), des compromis réalistes acceptables peuvent être choisis et donner des renseignements précieux pour l'extrapolation. La transposition de ces mesures dans les unités industrielles est souvent délicate mais toujours souhaitable pour optimiser toujours davantage leur dimensionnement et leur fonctionnement.

RÉFÉRENCES

- (1) Euzen J.-P., Trambouze, P., Wauquier J.-P. Méthodologie de l'extrapolation des procédés chimiques Ed. Technip (1993).
- (2) Leprince P. Le raffinage du pétrole . Tome 3 Procédés de transformation Ed. Technip (1998).
- (3) Heinrich G., Gauthier T. & Del Pozo M. R2R, A Suite of Technologies for Residue Catalytic Cracking, Upgrading Heavy Ends with IFP, Ed. IFP (1997).
- (4) Wauquier J.-P. Le raffinage du pétrole . Tome 2 Procédés de séparation Ed. Technip (1998).

CARACTERISATION, PAR TRAJECTOGRAPHIE TRIDIMENSIONNELLE, DU MELANGE DANS UN REACTEUR AGITE OUVERT

P. PITIOT, L. FALK, H. VIVIER

<> LSGC-ENSIC - CNRS
BP 451
1, rue Grandville
54001 NANCY CEDEX

Résumé: La présente étude a pour but de décrire une nouvelle méthode de caractérisation des écoulements : la trajectographie. Déjà utilisée et validée pour des systèmes fermés, la trajectographie est ici étendue aux systèmes ouverts. Ce suivi original d'une particule nous permet d'affiner les résultats obtenus de manière classique par la Distribution des Temps de Séjour ; en effet, avec la trajectoire de la particule-traceur du fluide, nous avons accès à une information locale, qui nous permet, par exemple, de distinguer des zones particulières dans une cuve agitée.

I INTRODUCTION

De nombreuses méthodes de caractérisation des écoulements et du mélange dans un réacteur sont désormais à la disposition des chercheurs et ingénieurs. Certaines sont assez faciles à mettre en œuvre et donnent des résultats pouvant être rapidement exploités, telles que la Distribution des Temps de Séjour (DTS) ; s'appliquant aux systèmes ouverts, il s'agit de procéder à une injection d'un traceur à l'entrée du système étudié et d'en suivre la réponse en sortie. Le résultat se présente sous la forme d'une distribution, objet simple à manipuler. Cependant, si on est capable, après l'analyse de cette distribution, de déterminer l'existence et l'importance de zones particulières, telles qu'un court-circuit ou un volume mort, il est impossible de les localiser dans le système, car l'information reste globale. Des méthodes complémentaires—la Distribution des Ages Internes, dans le cas de la DTS—seront nécessaires.

D'autres techniques d'investigation concernent la détermination du champ de vitesse, voire de concentration, au sein de l'écoulement, telles que le suivi de particules (1,2) -Particle Image Velocimetry (PIV), Particle Tracking Velocimetry (PTV)- ou l'Anémométrie Doppler-Laser (3,4). De mise en œuvre assez lourde, ces méthodes autorisent une caractérisation spatiale très fine de l'écoulement, mais restent difficiles à exploiter pour l'ingénieur de procédés. Pour de nombreuses géométries industrielles, ces méthodes ne sont d'ailleurs pas utilisables.

Entre ces deux approches, notre laboratoire a cherché à développer une méthode de traçage simple, mais donnant des informations locales : la trajectographie (5). Il s'agit ici de suivre les déplacements d'une petite particule, supposée traceur parfait passif du fluide, sur un grand temps d'observation et de reconstituer la trajectoire de

celle-ci. La présente étude porte sur l'application de la **trajectographie tridimensionnelle aux systèmes ouverts**.

Dans cet article, nous décrivons d'abord la mise en œuvre de la méthode trajectographique dans le cas d'un réacteur parfaitement agité ouvert. Ensuite, nous validerons notre suivi de particule en comparant la Distribution des Temps de Séjour de la particule dans la cuve avec la Distribution des Temps de Séjour réalisée plus classiquement par une injection de traceur. Cette validation effectuée, nous évoquerons la Distribution de Longueur de Trajectoires développée par Villermaux (6) et appliquerons ce concept à nos expériences. Enfin, nous présenterons des résultats tels que des cartes de temps de séjour ou de fréquence de visite par la particule, afin de mettre en exergue l'aspect local atteint par la trajectographie.

II DESCRIPTION DE LA METHODE

S'inspirant des travaux de Scofield (7), Wittmer (5) a mis au point un système de visualisation en trois dimensions. Après des améliorations, notre traceur actuel est une petite particule de 1.8 mm de diamètre, ayant une masse volumique proche de celle de l'eau (moins d'un pour-cent d'écart). Cette particule est fabriquée selon un procédé de micro-encapsulation (8,9), avec un solvant (de l'eau), un non-solvant (de l'huile de paraffine) et un polymère (de la gélatine alimentaire). Ce polymère, teinté en blanc grâce à de l'oxyde de titane nanométrique, constitue la particule et joue le rôle d'une membrane perméable aux petites molécules. Ainsi, notre particule adapte elle-même sa masse volumique à celle du fluide environnant.

Cette particule évolue dans une cuve agitée cylindrique, à fond plat, de 20 litres (diamètre $T=294$ mm et de hauteur $H=291$ mm) en plexiglas, équipée de quatre chicanes. Elle est placée à l'intérieur d'un aquarium cubique en verre rempli d'eau qui permet une atténuation des distorsions optiques. Cependant, les phénomènes de réfraction dus à ces différents milieux (air, verre, eau, plexiglas et eau) sont pris en compte. Le fluide est agité par une turbine Rushton en configuration standard (diamètre $D=T/3$; hauteur $C=T/3$).

En système ouvert, l'arrivée du fluide est située derrière une chicane, à la hauteur du mobile, comme le montre la Figure 1. La sortie est placée près de la chicane située à 270° (sens horaire) de la chicane précédente, à un centimètre de la surface libre du fluide. Le diamètre des tuyaux d'arrivée et de sortie est de 8 mm et la circulation du fluide est assurée par soutirage en

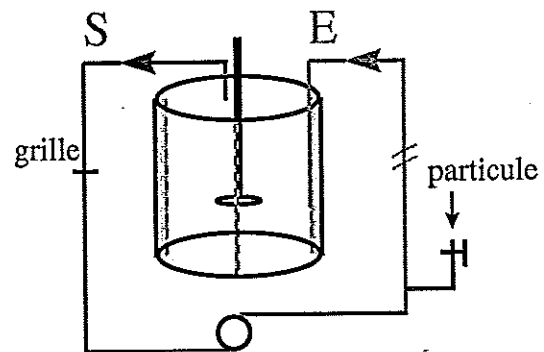


Figure 1-Configuration du système ouvert.

sortie et recyclage vers l'entrée grâce à une pompe péristaltique à un débit d'environ 2 l/min.

D'un point de vue trajectographique, les mouvements de la particule sont filmés par deux caméras placées orthogonalement entre elles (Figure 2), afin d'avoir ensuite accès aux trois coordonnées de la particule dans l'espace.

A raison de 25 images monochromes (en niveaux de gris) toutes les 2 secondes, les caméras sont synchronisées grâce à un système électronique. Ensuite, un « encodeur » transforme une vue en composante rouge et l'autre vue en composante verte, la composante bleue restant vide.

Cette opération donne une identité à chaque vue prise au même instant « t », ce qui permet alors de les ajouter pour former une image « couleur » sur laquelle deux traces de la particule sont visibles : l'une rouge, l'autre verte. Sans cette solution, il aurait fallu utiliser deux supports d'images (un pour chaque vue) et une synchronisation mécanique ou électronique plus coûteuse et moins fiable. Toutefois, notons que certaines interférences entre le vert et le rouge altèrent parfois l'image-couleur.

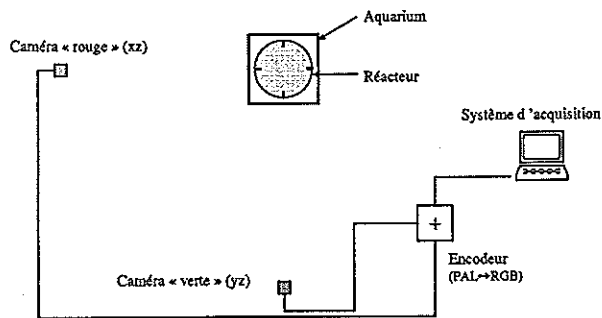


Figure 2-Système expérimental de trajectographie.

Les images-couleur sont alors numérisées et compressées en temps réel, grâce à une carte d'acquisition à pixels carrés, et enregistrées sur un disque de 4 Go. Cette capacité et le choix du taux de compression autorisent l'acquisition d'un peu plus de 30000 images, soient 40 minutes de suivi de la particule à la fréquence d'acquisition choisie.

Cette durée est à mettre en relation avec le temps de séjour moyen d'un élément de fluide dans le réacteur. Avec le débit choisi et le volume du réacteur, le temps de séjour moyen avoisine les dix minutes. Si notre réacteur se comporte comme un Réacteur Parfaitement Agité (RPA), la Distribution des Temps de Séjour devrait être une exponentielle décroissante, ce qui signifie qu'il faut attendre 5 fois le temps de séjour moyen pour avoir 99% d'un traceur chimique sortis ; à 4 fois le temps de séjour moyen, déjà 98% sont sortis du réacteur. Avec 40 minutes d'acquisition, nous pouvons espérer recueillir les agrégats de fluide qui séjournent le plus longtemps dans le réacteur.

Les images-couleur enregistrées pour chaque expérience sont ensuite traitées pour obtenir les coordonnées de la particule sur chaque vue. Le traitement d'images se compose de :

1. La soustraction d'une image de fond, préalablement enregistrée, à chaque image courante, pour ôter les objets fixes communs (chicanes, arbre d'agitation, fond du réacteur)
2. La décomposition de l'image résultante en composantes rouge, verte (et bleue), redonnant ainsi les images en niveaux de gris (opération inverse de celle réalisée par l'encodeur électronique)
3. Le seuillage de chaque image en niveaux de gris donne une image « binaire », dans laquelle figure la trace de la particule parmi d'autres objets parasites
4. La labellisation de chaque objet de l'image binaire obtenue, pour différencier les objets présents sur l'image
5. La détermination du centre de gravité des objets recensés.

Vient alors, pour chaque instant, le tri des objets repérés pour garder seulement la particule et la construction progressive de la trajectoire. Les coordonnées obtenues sont propres au repère de l'image (en pixel) ; il nous faut maintenant reconstituer chacun des deux rayons optiques liant la particule aux caméras. En prenant en compte la position exacte des caméras par rapport au réacteur et les phénomènes de réfraction, nous parvenons à la trajectoire, à savoir les trois coordonnées de la particule en fonction du temps dans un repère lié au réacteur.

III HYDRODYNAMIQUE DU SYSTEME : DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR ET DISTRIBUTION DES LONGUEURS DE TRAJECTOIRES

III.1 DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR

Les résultats présentés concernent 75 expériences effectuées dans des conditions identiques : turbine Rushton placée à la hauteur $C=T/3$, fréquence de rotation $N=120$ tr/min, débit d'alimentation $Q=1.9 \text{ l.min}^{-1}$ environ.

Par injection de quelques millilitres d'une solution concentrée de permanganate de potassium et de chlorure de sodium, nous déterminons la Distribution des Temps de Séjour (DTS) de notre système. Pour un RPA, le temps de séjour moyen τ s'exprime par $\tau=V/Q$, qui donne ici $\tau \approx 10.7$ min.

De la DTS moléculaire, nous obtenons $\tau_{\text{exo}}=11.1$ min et la distribution suit assez bien l'exponentielle du RPA

$$E(t) = \frac{\exp(-t/\tau)}{\tau}, \text{ comme le montre la}$$

linéarisation de la distribution (Figure 3).

Sur le même graphique (Figure 3) est reportée la linéarisation de la DTS obtenue par trajectographie : elle se confond avec les deux autres. Le temps de séjour moyen est très proche de celui déterminé par DTS moléculaire (0.5% d'écart).

Nous pouvons conclure que notre particule est un bon traceur du fluide au vu de la DTS qu'elle engendre.

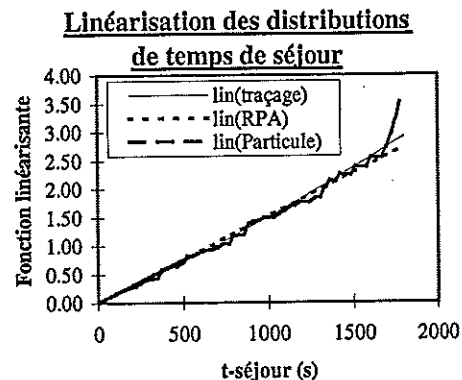


Figure 3-Distributions des Temps de Séjour linéarisées.

III.2 DISTRIBUTION DE LONGUEUR DE TRAJECTOIRES

Villermaux (6) a émis l'idée que le temps de trajet d'un traceur du fluide n'était pas le seul critère caractéristique de l'écoulement, mais que la longueur de ce trajet pouvait également jouer un rôle. La notion de Temps de Séjour ne suffit pas à évaluer la probabilité de rencontre (en vue d'une réaction chimique) de deux éléments de fluide : leur trajectoire est aussi à considérer. Il a défini un nouveau concept : la Distribution de Longueur de Trajectoires (DLT). Etabli pour un système ouvert, le principe est le suivant : dans un système ouvert à DTS donnée, deux éléments de fluide qui ont le même temps de séjour peuvent suivre des chemins différents, traverser des zones plus ou moins rapidement et parcourir alors des chemins de longueur différents. Villermaux définit un indice de macromélange M , comme le rapport de la longueur de trajectoire moyenne et d'une dimension caractéristique du système (T par exemple) : $M=l_{\text{moy}}/L_{\text{caractéristique}}$. Suivant cette idée, deux cas extrêmes peuvent être définis :

- le cas du réacteur piston parfait : la longueur du trajet est égale à la longueur du réacteur et $M=1$.
- le cas du réacteur parfaitement agité : les éléments de fluide parcourent des distances variables (faibles ou élevées), si bien que la longueur moyenne peut être grande : M est élevé.

Indiquons en remarque que, expérimentalement, il est assez simple d'obtenir la DTS d'un système pour la simple raison que le temps défile. Au contraire, l'obtention de la DLT nécessite de suivre le parcours de très nombreux éléments de fluide ou de faire un

grand nombre d'expériences, afin de représenter au mieux toutes les trajectoires possibles.

La trajectographie a été imaginée principalement pour déterminer expérimentalement la DLT.

Nos expériences conduisent à une longueur moyenne de trajectoire d'environ 70.6 m, ce qui, en prenant le diamètre de la cuve (T=294 mm) comme longueur caractéristique, conduit à un indice de macromélange de 240, valeur relativement forte.

La Figure 4 représente la linéarisation de la DLT obtenue par trajectographie en suivant une loi de Poisson identique à la DTS d'un RPA, dans laquelle les temps sont remplacés par des longueurs :

$$d(l) = \frac{\exp(-l/\lambda)}{\lambda}$$

Linéarisation de la Distribution de Longueur de Trajectoire

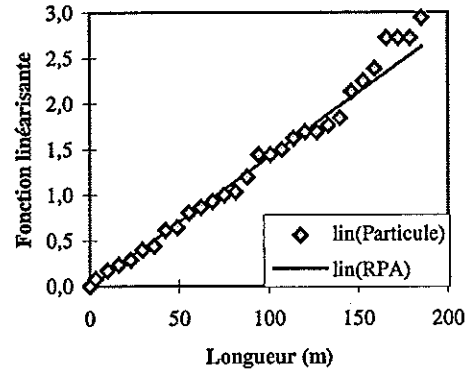


Figure 4-Distribution de Longueur de Trajectoire linéarisée.

Le bon ajustement entre la DLT et une expression similaire à celle utilisée pour la DTS peut être expliquée par l'homogénéité relative du champ de vitesse dans le réacteur, qui lie Temps de Séjour et Longueur de Trajectoire. Sur la Figure 5 apparaît la loi linéaire, à partir des valeurs expérimentales, entre temps de séjour et chemin parcouru. La vitesse moyenne, donnée par la pente de cette droite, s'élève à 0.108 m.s⁻¹.

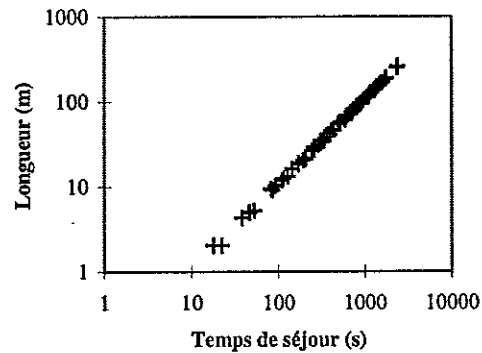


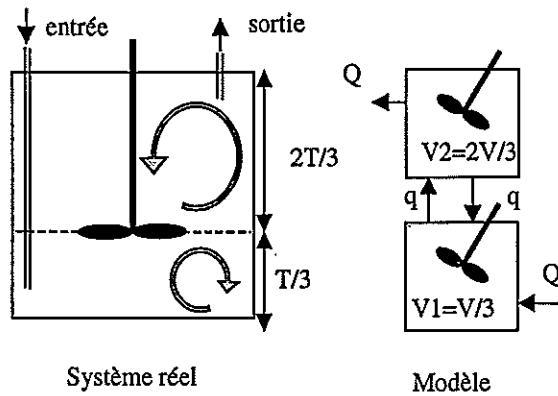
Figure 5-Relation entre Longueur de Trajectoire et Temps de Séjour.

III.3 APPORTS DE LA METHODE TRAJECTOGRAPHIQUE

La méthode trajectographique apporte de nombreuses informations complémentaires sur la nature des écoulements internes que nous ne présenterons pas ici (10) : carte de vitesse d'écoulement, localisation de zones particulières par les sections de Poincaré, détermination de temps de circulation, etc...

Nous illustrons simplement ici la complémentarité de la trajectographie pour l'élaboration de modèles d'écoulement. La structure de l'écoulement généré par la turbine Rushton fait apparaître deux zones distinctes composées chacune par une boucle de recirculation et séparées par le plan de décharge de la turbine. On peut proposer un modèle d'écoulement basé sur deux RPA de volume V1 et V2, échangeant un débit $q=\alpha.Q$. La DTS d'un tel système est celle d'un système dynamique du 2^{ème} ordre, qui tend vers la DTS du RPA simple si $q \gg Q$.

On définit par τ_1 et τ_2 les temps de séjour instantanés d'un élément de fluide entrant respectivement dans le RPA 1 et le RPA 2, soit $\tau_i = V_i / (1 + \alpha) \cdot Q$. Une même particule de fluide peut, durant la traversée du système, revenir plusieurs fois dans la même zone avant de ressortir et l'on peut définir $\langle \tau_1 \rangle$ et $\langle \tau_2 \rangle$,



les temps moyens passés dans le RPA 1 et le RPA 2. On montre que $\langle \tau_1 \rangle$ et $\langle \tau_2 \rangle$ sont les espérances mathématiques de séjour et que:

$$A = \left(\frac{1}{1 + \alpha} \right) \left(1 + \sum_{i=1}^{\infty} (1 + i) \left(\frac{\alpha}{1 + \alpha} \right)^i \right)$$

soit $\langle \tau_1 \rangle = (1 + \alpha) \tau_1 = V_1 / Q$ et $\langle \tau_2 \rangle = (1 + \alpha) \tau_2 = V_2 / Q$

Dans le cas des expériences présentées, on a $\langle \tau_1 \rangle = 7.13$ mn et $\langle \tau_2 \rangle = 3.56$ mn. De l'analyse des trajectoires on détermine $\tau_1 = 5.40$ s et $\tau_2 = 2.56$ s. On déduit donc des relations précédentes que $q = 150$ litres/mn soit $\alpha = 80$.

Ceci illustre la capacité de la méthode trajectographique à :

- d'une part, à détecter et localiser des zones particulières dans l'écoulement
- d'autre part, à permettre l'élaboration de modèles de zones plus ou moins complexes et pour lesquels il est possible de déterminer le volume des zones et la valeur des débits d'échanges.

REFERENCES

- (1) Bakker A., Myers K.J., Ward R.W., Lee C.K., The laminar and turbulent flow pattern of a pitched blade turbine, *Trans IChemE*, 74, A, 485-491 (1996)
- (2) Veber P., Dahl J., Hermansson R., Study of the phenomena affecting the accuracy of a video-based Particle Tracking Velocimetry technique, *Exp. in Fluids*, 22, 482-488 (1997)
- (3) Wu H., Patterson G.K., Laser Doppler Measurements of Turbulent-Flow Parameters in a Stirred Mixer, *Chem. Eng. Sci.*, 44, 2207 (1989)
- (4) Schäfer M., Höfken M., Durst F., Detailed LDV measurements for visualization of the flow field within a stirred-tank reactor equipped with a Rushton turbine, *Trans IChemE*, 75, A, 729-736 (1997)
- (5) Wittmer S., Caractérisation du mélange par trajectographie tridimensionnelle, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 1996
- (6) Villermaux J., Trajectory Length Distribution (DLT), a novel concept to characterize mixing in flow systems, *Chem. Eng. Sci.*, 51, 10, 1939-1946 (1996)
- (7) Scofield D.F., Martin C.J., Mixing Time Distributions and Period Doubling in Stirred Tanks, Annual Meeting AIChE (Chicago, USA), Nov. 11-16 (1990)
- (8) Plasari E., Grisoni Ph., Villermaux J., Influence of process parameters on the precipitation of organic nanoparticles by drowning-out, *Trans IChemE*, 75, A, 237-244 (1997)
- (9) Willaert R.G., Baron G.V., Microencapsulation of living cells; *Rev. in Chem. Eng.*, 12, n°1 et 2, 85-88, 96-99, 155-167 (1996)
- (10) Wittmer S., Falk L., Pitiot P., H. Vivier, Characterization of stirred vessels hydrodynamics by three dimensional trajectography", *Canadian Journal of Chemical Engineering*, vol 76, N°3, 600-610 (1998).

ETUDE PAR TRACAGES RADIOACTIFS DE LA MIGRATION DE METAUX TOXIQUES DANS DES DECHETS SIDERURGIQUES

C. ANDRE, T. CHARENTUS, X. VITART

<> CEA - DAMRI/SAR/SAT

17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX 9

M. JAUZEIN

<> Centre de Pédologie Biologique
BP 5 - 17, rue Notre Dame des Pauvres
54501 VANDŒUVRE LES NANCY

O. DECHELETTE

<> IRSID
Voie Romaine
57210 MAIZIERES LES METZ

Résumé

Les déchets sidérurgiques mis en crassiers peuvent constituer une source de pollution de l'environnement en raison des métaux toxiques qu'ils contiennent. Cette nuisance peut toutefois être supprimée par un choix judicieux de leur dépôt en couches alternées permettant d'immobiliser les métaux, les déchets se « neutralisant » l'un l'autre en quelque sorte.

Une méthodologie utilisant des traceurs radioactifs en colonnes de laboratoire, mise au point au sein de la Section des Applications des Traceurs, a permis de vérifier la validité de ce choix pour 3 métaux : le cadmium, le zinc et le chrome dans deux types de déchets sidérurgiques : un laitier et une boue de haut fourneau.

I. INTRODUCTION

Les essais présentés dans cette étude ont permis d'apporter une réponse au problème que se posent les industriels de la sidérurgie concernant les risques de pollution de l'environnement dont peuvent être à l'origine les poussières d'aciérie lorsqu'elles sont déposées en crassiers (1). En effet, les métaux toxiques qu'elles contiennent peuvent être lixiviés par les eaux de pluie et de ce fait contaminer les nappes phréatiques. Toutefois, un dépôt alterné judicieusement choisi de divers types de déchets de propriétés chimiques différentes permet de freiner le transport des différents toxiques vers l'environnement.

Afin de vérifier ces hypothèses une étude a été faite en colonnes de laboratoire : la migration de 3 métaux toxiques (cadmium, zinc et chrome) dans des colonnes de déchet sidérurgique sélectionné en fonction de la nature de chaque métal, a été étudiée en utilisant des isotopes radioactifs de ces métaux émetteurs de rayonnements gamma (^{115m}Cd : $T_{1/2} = 44$ j, $E = 0,94$ MeV ; ^{65}Zn : $T_{1/2} = 245$ j, $E = 1,11$ MeV et ^{51}Cr : $T_{1/2} = 28$ j, $E = 0,32$ MeV). La méthode a consisté à suivre, par balayage le long de la colonne d'une sonde gamma collimatée, le déplacement de chacun de ces métaux au cours de l'éluion par une solution d'alimentation appropriée.

Cette publication présente la technique utilisée, les résultats obtenus ainsi que les simulations réalisées avec le code de calcul IMPACT (2) qui ont permis de vérifier la validité des hypothèses avancées en ce qui concerne les mécanismes d'interaction métal-déchet neutralisant.

II. MATERIEL ET METHODE

II.1. Dispositif expérimental

Le montage comprend une colonne en verre PHARMACIA de type C26 ($\phi_{int.} = 25$ mm, $H = 400$ mm) remplie du déchet neutralisant à étudier et alimentée en continu en solution au moyen d'une pompe péristaltique GILSON Minipuls 2. Une boucle d'injection Rhéodyne basse pression de 1,1 ml est placée à l'entrée de la colonne.

La colonne est elle-même montée sur une crémaillère qui permet de la déplacer verticalement devant un détecteur de rayonnement gamma (cristal NaI $\phi = 25$ mm, $H = 38$ mm) collimaté par un cylindre en plomb d'épaisseur de fente 0,5 mm (ce qui permet une résolution du même ordre de grandeur) et relié à une chaîne de comptage NOVELEC de type SE 1620. Les effluents sont recueillis en sortie de colonne par un collecteur de fractions PHARMACIA Frac 100. Le pH et le potentiel rédox des fractions collectées sont mesurés au moyen d'un pH-mètre TACUSSEL PHN81. Un schéma du montage expérimental est donné *figure 1*.

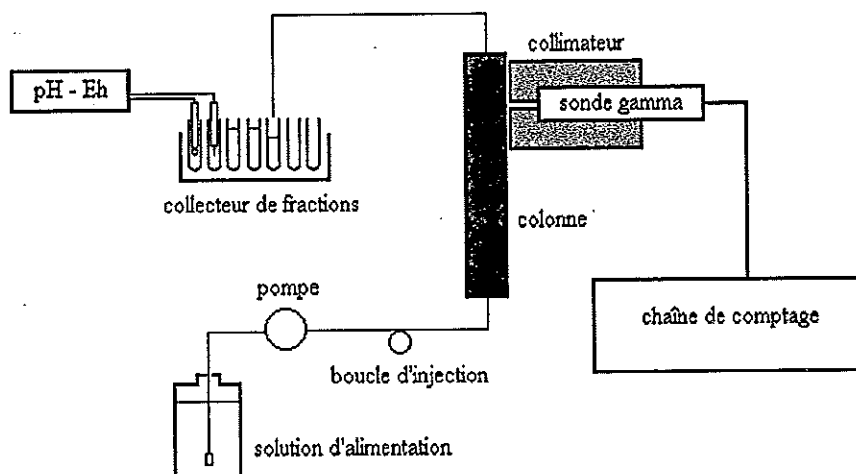


Figure 1 : Schéma du montage expérimental

II.2. Réalisation des essais

Trois colonnes ont été remplies de déchets neutralisants (deux de laitier, une de boue de haut fourneau) pour étudier respectivement la migration du cadmium, du zinc et du chrome.

Suite à des essais préliminaires en bacs, le débit de percolation a été fixé à 0,5 Vp/h (Vp représentant le volume poreux de la colonne, soit respectivement 84, 87 et 134 ml mesurés par injection d'eau tritiée) afin de respecter la cinétique d'interaction métal-déchet neutralisant. Après injection d'un petit volume (1,1 ml) d'une solution contenant un traceur radioactif du métal, des profils gamma ont été réalisés sur chaque colonne à différentes étapes de l'élution.

Par ailleurs, des analyses de pH, Eh et radioactivité ont été faites sur les fractions collectées en sortie de colonnes.

Le tableau ci-après présente les compositions des solutions utilisées :

Tableau I : Composition des solutions d'alimentation des colonnes

	Laitier		Boue
pH	7,2	pH	11,9
NaCl	$23,1 \cdot 10^{-3}$ M	NaCl	$2,0 \cdot 10^{-3}$ M
KCl	$5,1 \cdot 10^{-3}$ M	KCl	$5,0 \cdot 10^{-3}$ M
CaSO ₄	$2,5 \cdot 10^{-3}$ M	Na ₂ SO ₄	$1,0 \cdot 10^{-3}$ M
		Alcalinité	36 meq/l
		Ca ⁽¹⁾	$21,5 \cdot 10^{-3}$ M

(1) La reconstitution de cette teneur a nécessité l'utilisation d'une colonne de chaux, ceci afin d'éviter la précipitation de calcite.

Le tableau II précise les formes radioactives et chimiques des traceurs injectés et reprend l'ensemble des séquences d'alimentation pour les 3 colonnes :

Tableau II : Conditions d'injection et d'alimentation des colonnes.

	Colonne cadmium	Colonne zinc	Colonne chrome
Nature du déchet neutralisant	laitier	laitier	boue de haut fourneau
Radio-isotope utilisé	^{115m} Cd	⁶⁵ Zn	⁵¹ Cr
Forme chimique de la solution injectée	CdCl ₂ (dans HCl 0,1 M)	ZnCl ₂ (dans HCl 0,1 M)	Na ₂ CrO ₄ (dans H ₂ O)
Concentration injectée	$2,3 \cdot 10^{-2}$ M	$1,5 \cdot 10^{-2}$ M	$1,9 \cdot 10^{-2}$ M
Alimentation	solution tableau I (15 Vp)	solution tableau I (23 Vp)	solution tableau I (60 Vp)

III. RESULTATS ET DISCUSSION

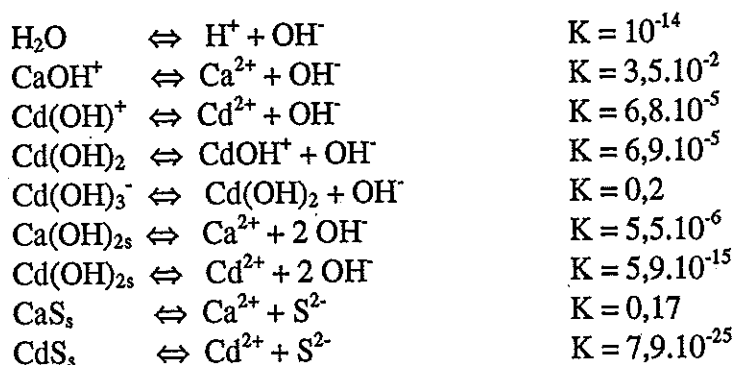
III.1. Traçages cadmium et zinc

Les profils gammamétriques ont montré que le cadmium et le zinc ont été immobilisés dans les 2 premiers cm en entrée de colonnes. Ce phénomène a été confirmé par l'absence de radioactivité dans les effluents collectés. Un exemple du profil obtenu en cadmium après 15 Vp d'élution est donné *figure 2*.

Une modélisation du phénomène a pu être faite à l'aide du code de calcul IMPACT. Ce code couple un modèle géochimique de calcul de spéciations et un modèle d'écoulement hydrodynamique (3).

Les analyses physico-chimiques du laitier, composé majoritairement de chaux (60,3 %) et contenant du soufre (0,43 %), ainsi que l'observation d'un dépôt jaune en entrée de colonne cadmium, et noir en entrée de colonne zinc, ont conduit à émettre l'hypothèse de précipitation de sulfures (CdS_s et ZnS_s) dans les 2 colonnes.

En raison de l'importante teneur du laitier en chaux et de ses propriétés réductrices (Eh en sortie de colonne = - 150 mV, pH = 12), une modélisation de l'injection du cadmium avec le code IMPACT a donc été réalisée en supposant que le soufre se trouvait sous forme de sulfure de calcium et en prenant en compte les réactions suivantes :



Les résultats de la modélisation ont confirmé la précipitation totale en entrée de colonne, sous forme de sulfure de cadmium (CdS_s), du cadmium injecté. La *figure 3* présente une comparaison des résultats expérimentaux et de la simulation obtenue après 15 Vp d'éluion. Le bon accord entre les 2 histogrammes conforte l'hypothèse avancée. Un résultat identique a été obtenu avec le zinc pour lequel le modèle prévoit une précipitation totale du zinc injecté sous forme de ZnS_s , qui est immobilisé en tête de colonne.

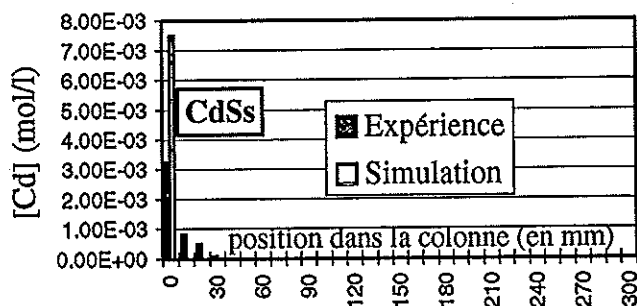


Figure 2 : Modélisation des résultats cadmium (colonne laitier).

III.2. Traçage chrome

Les profils réalisés au cours de l'éluion, présentés *figure 3*, mettent en évidence les phénomènes suivants :

- une migration du chrome injecté dans la colonne avec une vitesse 25 plus faible que celle d'un bon traceur de l'eau (HTO) pendant les 40 premiers Vp,
- la présence d'un plateau de chrome dans la portion de colonne balayée par la solution injectée,
- l'accumulation, à partir de 60 Vp, de la majeure partie du chrome en milieu de colonne, associée à la présence d'une traînée blanche à cet endroit,

Remarque : Du fait d'une mise à l'air accidentelle de l'entrée de la colonne en début d'essai, ce minéral blanc qui s'est déplacé pendant l'éluion pour s'immobiliser ensuite en milieu de colonne a été imputé à une formation de calcite par réaction du CO_2 atmosphérique et du calcium contenu dans la solution d'alimentation,

- l'apparition du chrome 51 dans les effluents en sortie de colonne à partir de 25 Vp d'éluion, qui correspondent au retard estimé à partir des vitesses de déplacement du pic au début de l'essai.

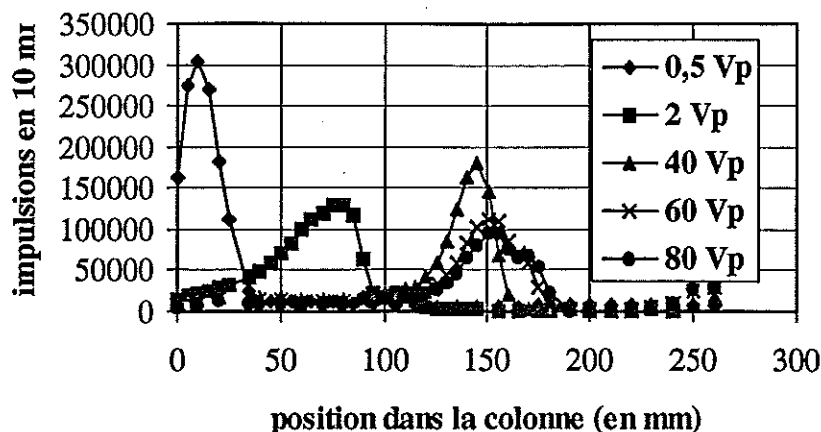


Figure 3 : Evolution des profils chrome (colonne boue de haut fourneau).

Globalement, après 60 Vp d'élution, le chrome se répartit de la façon suivante :

- 30 % sont fixés sur le premier tiers de la colonne sous forme de palier,
- 60 % sont fixés en milieu de colonne,
- 10 % se retrouvent dans les effluents.

A partir de ces observations, 3 mécanismes différents pourraient expliquer le comportement du chrome dans la colonne :

- une adsorption réversible sur la boue, qui induit un simple retard du chrome et sa sortie à partir de 25 Vp (mécanisme 1),
- une précipitation par un minéral présent en quantité limitée dans la colonne, qui se traduirait par le plateau et qui n'a pu immobiliser qu'une partie du chrome injecté (mécanisme 2),
- une adsorption spécifique et irréversible sur un minéral dont la présence en milieu de colonne serait liée à la mise à l'air accidentelle (mécanisme 3).

Une modélisation de l'injection de chrome a été réalisée avec le code IMPACT sur la base de ces 3 mécanismes (3). Les résultats, présentés *figure 4*, sont assez cohérents avec les résultats expérimentaux.

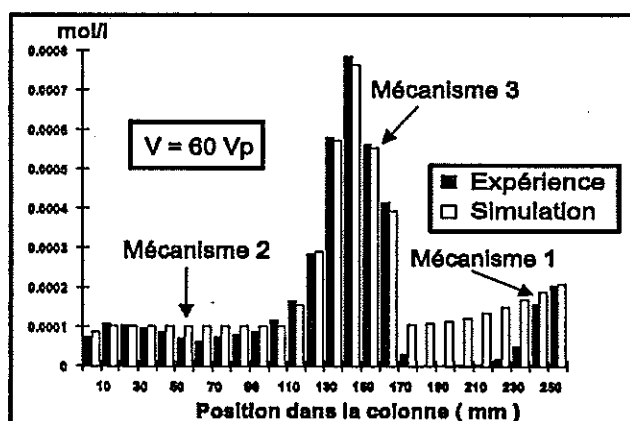


Figure 4 : Modélisation du transport du chrome (colonne boue).

Les valeurs du pH et du potentiel rédox mesurées en sortie de colonne (pH = 11,9 et Eh = 190 mV), correspondent au domaine de stabilité des chromates (4). Une étude bibliographique ainsi que l'analyse chimique de la boue (composée de 21,1 %

d'oxydes de fer) permettent d'étayer les hypothèses faites : SCHROEDER (5) signale l'adsorption-désorption des chromates sur les oxydes de fer, STOLLENWERK (6), mentionne également ce phénomène. La teneur en baryum de la boue (259 ppm), dont les chromates sont très peu solubles ($P_s = 1,1 \cdot 10^{-10}$), permettrait peut-être d'expliquer la précipitation partielle du chrome (7).

IV. CONCLUSION

La méthodologie non destructive utilisée s'est révélée simple à mettre en œuvre et riche en informations. Elle a permis d'apporter une réponse aux questions des industriels de la sidérurgie et de dégager les points suivants :

- les laitiers constituent une barrière efficace à la migration du cadmium et du zinc présents dans les boues,
- la boue n'immobilise que partiellement le chrome provenant des laitiers ; un complément d'étude serait nécessaire pour mieux comprendre les mécanismes d'interaction mis en jeu et optimiser les conditions de rétention.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) JECKO G. et RAGUIN J., Simulation au laboratoire des interactions entre l'eau de pluie et les crassiers sidérurgiques, *Eau et Industrie*, 57, 50-62 (1981).
- (2) JAUZEIN M., ANDRÉ C., MARGRITA R., SARDIN M. et SCHWEICH D. A flexible computer code for modelling transport in porous media : IMPACT, *Geoderma*, Special issue, vol.44, N°2-3, Elsevier (1989).
- (3) JAUZEIN M., Méthodologie d'étude du transport transitoire de solutés dans les milieux poreux, Thèse INPL, Nancy, 29 novembre 1988.
- (4) RICHARD F.C. and BOURG A.C.M., Aqueous geochemistry of chromium : a review, Note technique BRGM 88 3E 025 (1988).
- (5) SCHROEDER D.C. and LEE G.F., Potential transformations of chromium in natural waters, *Water, Air and Soil Pollution*, 4, 355-65.
- (6) STOLLENWERK K.G. and GROVE D.B, Adsorption and desorption of hexavalent chromium in an alluvial aquifer, *J. Environ. Qual.*, 12, 2, 177-86, (1983).
- (8) TEVISSSEN E., Méthodologie d'étude et modélisation du transport de solutés en milieux poreux naturels : application à la migration du chrome dans la nappe alluviale du Drac (Isère), Thèse INPL, Nancy, 17 septembre 1993.

MODELISATION DE L'HYDRODYNAMIQUE DE DECANTEURS PRIMAIRES ET SECONDAIRES DE STATIONS D'EPURATION DES EAUX USEES PAR BOUES ACTIVEES

M.N. PONS, N. ROCHE, O. POTIER, C. PROST

<> LSGC-ENSIC-INPL
BP 451 - 1, rue Grandville
54001 NANCY CEDEX

Résumé:

Des opérations de traçage ont été réalisées sur des décanteurs et clarificateurs de stations de traitement des eaux usées en vue d'en modéliser le comportement hydrodynamique. Les modèles bidimensionnels proposés s'appuient sur les résultats de ces expériences et sur la géométrie des ouvrages.

I. INTRODUCTION

Dans une station d'épuration d'eaux usées les décanteurs et clarificateurs sont des unités importantes dont le fonctionnement dépend beaucoup du régime hydraulique qui les affecte, en particulier dans le cas de variations brutales du débit (cas des orages). Les décanteurs primaires permettent une diminution rapide de la pollution insoluble à l'entrée de la station alors que les clarificateurs assurent la séparation entre la biomasse épuratrice et l'eau épurée après l'étage biologique.

Dans le cadre d'un projet visant à la modélisation du comportement de stations d'épuration par boues activées en réponse à des fluctuations en débit et en charge polluante, il a été nécessaire de réaliser une caractérisation de l'hydrodynamique de ces ouvrages. Bien qu'il s'agisse de systèmes biphasiques, la caractérisation a porté uniquement sur la phase liquide à l'aide de traçages au chlorure de lithium. Ce traceur a été choisi du fait de sa très faible adsorption sur les particules solides, de son seuil de détection très bas, de sa non toxicité et de sa quasi absence dans les eaux résiduaires urbaines.

L'analyse des distributions de temps de séjour, couplée à un examen de la géométrie et de la taille des ouvrages, a conduit à développer des modèles bidimensionnels de complexité moyenne, qui peuvent être facilement intégrés dans un outil de simulation globale des stations d'épuration, prenant en compte non seulement l'hydrodynamique, mais aussi les réactions biologiques et les phénomènes de sédimentation.

II. MATERIELS ET METHODES

Ce travail a été réalisé sur quatre décanteurs différents se trouvant sur deux stations d'épuration en exploitation. Trois décanteurs primaires ont été étudiés, un du type circulaire à pont tournant (ouvrage DC) et deux du type lamellaire (ouvrages DL1 et DL2). Le clarificateur (ouvrage C) est de type circulaire.

La station de Nancy-Maxéville, d'une capacité de 350 000 eq, traite les eaux de la Communauté Urbaine du Grand Nancy. En 1995 la station comportait trois décanteurs circulaires (DC) ayant chacun un volume de 3900 m³ (Figure 1). Ces ouvrages sont maintenant remplacés par quatre décanteurs lamellaires (DL1): chaque décanteur a un volume d'environ 1000 m³ et est précédé d'un dessableur (180 m³) et d'un deshuileur (225 m³). Il est composé de deux lignes parallèles de sept modules lamellaires hexagonaux inclinés à 60° (Figure 2). Le clarificateur (décanteur secondaire) (Figure 3) a un volume de 5 000 m³ et un diamètre de 42 m. Il comporte deux bras tournants (≈ 0.02 rpm) équipés chacun de sept suceurs.

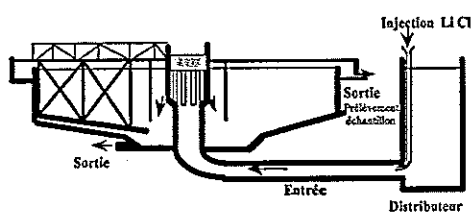


Figure 1: Ancien décanteur circulaire (DC) de Nancy-Maxéville

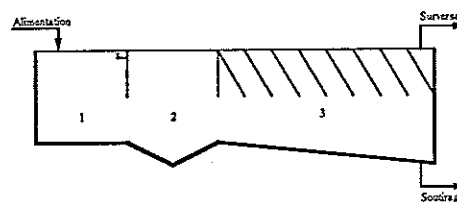


Figure 2: Décanteur lamellaire (DL1) de Nancy-Maxéville: 1 = dessableur, 2 = deshuileur, 3 = zone lamellaire

La station de Strasbourg, d'une capacité de 1 million eq. hab. comporte 15 décanteurs lamellaires ayant chacun un volume d'environ 1 000 m³. Chaque décanteur est composé de deux lignes parallèles de 14 modules lamellaires (Figure 4).

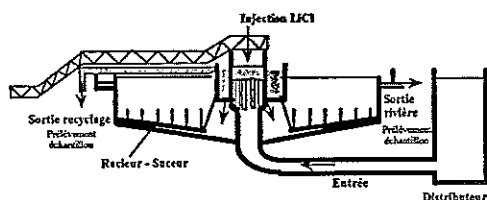


Figure 3: Clarificateur circulaire (C) de Nancy-Maxéville

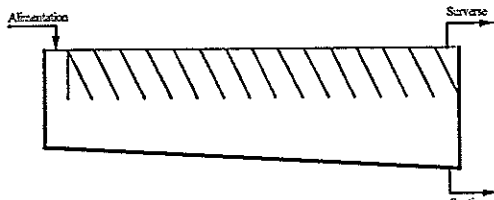


Figure 4: Décanteur lamellaire (DL2) de Strasbourg.

Des quantités *ad hoc* de chlorure de lithium sont dissoutes dans de l'eau et rapidement injectées dans les ouvrages (environ 10kg de LiCl par expérience). La durée de l'injection est inférieure à 1% du temps de séjour moyen dans le système. Elle peut être considérée comme de type impulsionnel. Des échantillons sont prélevés en différents endroits et filtrés. La concentration en lithium de ces échantillons est déterminée par absorption atomique. Dans les conditions d'analyse utilisées, la réponse de l'appareil est linéaire dans la gamme 0 - 4 mg/l, avec une sensibilité de 1% et une limite de détection de 0.012 mg Li/l. La concentration en matière en suspension dans le clarificateur a été mesurée à l'aide d'une sonde PBI (Ponselle Mesure).

L'analyse initiale des résultats de traçage a été effectuée à partir d'un logiciel permettant de calculer numériquement par une technique de Transformée de Fourier Rapide, les courbes de distribution de temps de séjour pour une fonction de transfert donnée, dans le domaine de Laplace (1). Le simulateur complet est écrit en Fortran.

III. RESULTATS

III.1. Ouvrages circulaires

La Figure 4 présente le résultat du traçage du décanteur circulaire DC. Le premier pic correspond à un phénomène de court-circuit. Le premier modèle proposé comporte deux branches en parallèle. La branche supérieure, alimentée par 14% du débit total, est composée de sept réacteurs parfaitement agités en série, qui représente 2% du volume total.

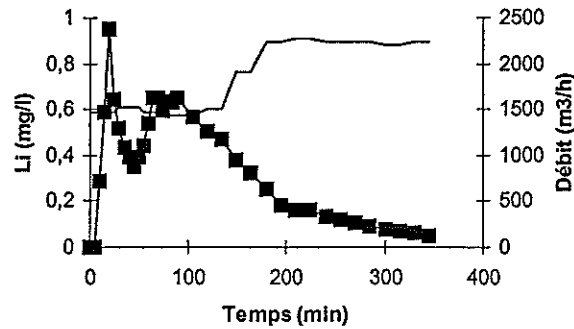


Figure 4: Traçage de DC (—) débit, (■) [Li] à la sortie

La branche inférieure est composée d'un réacteur parfaitement agité qui occupe 66% du volume et qui correspond à la zone de recirculation à l'entrée du décanteur proposée par Abdel-Gawad et Mc Corquodale (2). Il est suivi d'une cascade de sept réacteurs parfaitement agités. Pour compléter ce modèle et afin de pouvoir tenir compte des phénomènes de sédimentation se produisant dans la zone inférieure, chaque petit réacteur de cette branche est divisé en trois couches de volume égal (Figure 6a).

La Figure 5 présente le résultat du traçage du clarificateur C. Ces courbes sont plus délicates à interpréter parce qu'il y a une certaine imprécision sur le débit de recyclage et qu'il y a plusieurs sorties. Un court-circuit important est observé au niveau du recyclage. Il est suivi de deux maxima, à 30 et 55 min, avec un épaulement sur le pic à 55 min. Le court-circuit est due à la succion rapide du fluide entrant par les suceurs centraux. Au déversoir, trois pics peuvent être observés: à 25, 40 et 80 min. Le pic à 25 min correspond au traceur se trouvant près du déversoir et juste sous la surface du liquide. Cela est confirmé par l'examen de prélèvements effectués le long d'un rayon (Figure 5b). A partir de 60 min on observe une faible ségrégation selon la hauteur sur des prélèvements réalisés entre 1 et 3m de la surface (Figure 5c). Ces observations sont à comparer au profil axial de matières en suspension (Tableau 1). Pendant cette période la concentration en matières en suspension à l'entrée du clarificateur était de 3 g/l et celle du recyclage de 7 g/l.

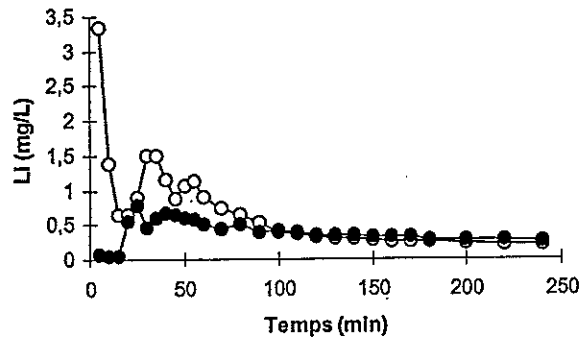
Profondeur (m)	1	2	3	4
Matières en Suspension (g/l)	0.3	0.3	2.2	9

Tableau 1: Matières en suspension en fonction de la profondeur

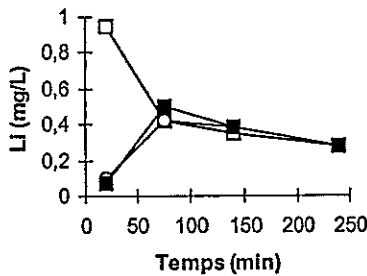
L'ensemble de ces observations a conduit à proposer le modèle présenté dans la Figure 6b. Le clarificateur est divisé en deux zones, une zone de sédimentation proprement dite et une zone de clarification. Chaque zone est divisée radialement en sept couronnes qui correspondent aux suceurs physiques. Les couronnes sont alimentées à partir d'une zone d'alimentation situées entre celles de clarification et de sédimentation. Le phénomène de sédimentation peut se produire en fait dans ces deux dernières zones, pour permettre de simuler d'éventuelles remontées de boues, suite à un choc hydraulique par exemple. Les

débites d'alimentation des couronnes vers le haut augmentent lorsque l'on va du centre vers l'extérieur du clarificateur. Par contre les débits qui alimentent les couronnes vers le bas diminuent lorsque l'on s'éloigne du centre. Cela permet de rendre compte des phénomènes antagonistes observés expérimentalement.

a



b



c

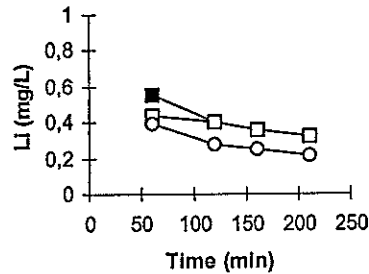
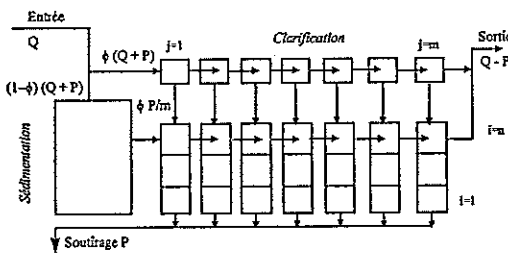


Figure 5: Traçage du clarificateur C: a: (●) déversoir, (○) recyclage; b: distance au centre (□) 21 m, (○) 11.5 m, (●) 1 m; c: hauteur (■) 1 m, (□) 2m, (○) 3m

a



b

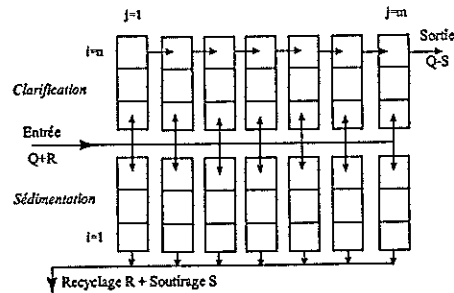


Figure 6: Représentations schématiques des modèles des ouvrages circulaires (a) décanteur primaire, (b) clarificateur

La Figure 7 montre la simulation du traçage du clarificateur pour deux répartitions différentes des débits. Dans la Figure 7b une équirépartition a été supposée pour la zone de clarification et pour la zone de sédimentation (14% vers le haut et 14% vers le bas pour chaque couronne). La Figure 7a a été obtenue pour les répartitions suivantes: 2%, 5%, 8%, 12%, 18%, 25% et 30% dans la zone de clarification, 35%, 27%, 15%, 6%, 6%, 6% et 5% pour la zone de sédimentation. Ces dernières répartitions permettent un accord convenable avec l'expérience, même si on ne parvient pas à représenter les

fluctuations observées au niveau de la surverse et du recyclage. Le retour du traceur au niveau de l'alimentation provient du recyclage des boues activées dans l'aérateur.

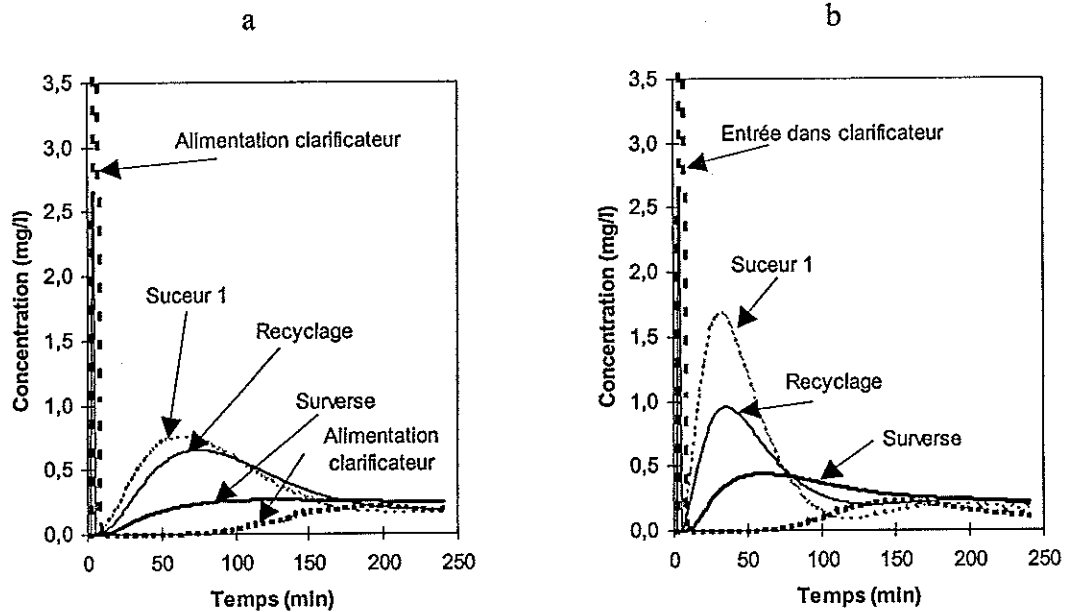


Figure 7: Simulation de l'opération de traçage dans le clarificateur C: a: Équirépartition des débits; b: Non-équirépartition des débits (détails dans le texte)

III.2. Ouvrages lamellaires

La Figure 8 présente les résultats des traçages effectués sur les ouvrages lamellaires. Les courbes sont similaires. Le modèle proposé pour chaque branche comporte une zone de sédimentation et une zone de clarification. Chaque zone est divisée en modules, en accord avec la réalité physique. Le débit est équiréparti. Le modèle du DL2 est présenté dans la Figure 9. Chacun des sept modules supérieurs comporte trois couches, parfaitement mélangées du point de vue du liquide, alors que les modules inférieurs comportent trois couches. Le modèle du DL1 est bâti de façon semblable, avec 14 modules de quatre couches pour la zone de clarification et 14 modules de deux couches pour la zone de sédimentation. La différence du nombre de couches dans la partie supérieure tient en particulier compte d'une hauteur différente des modules lamellaires dans les deux ouvrages.

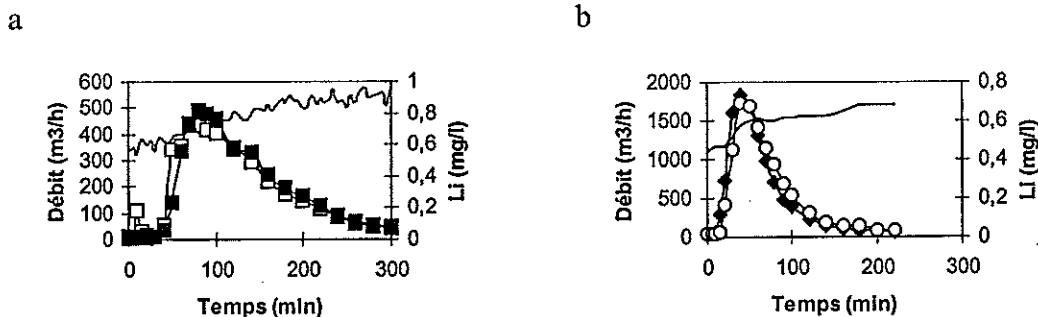


Figure 8: Traçages des ouvrages lamellaires: a: DL1 (—) débit, (■) et (□) sorties des branches parallèles; b: DL2 (—) débit, (◆) et (○) sortie des branches parallèles

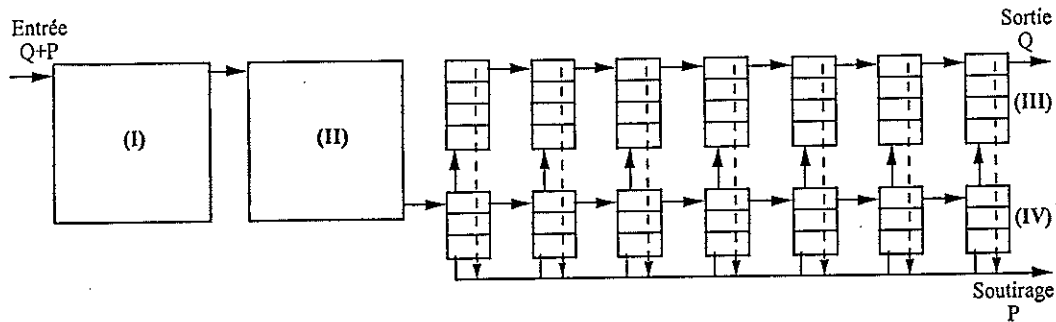
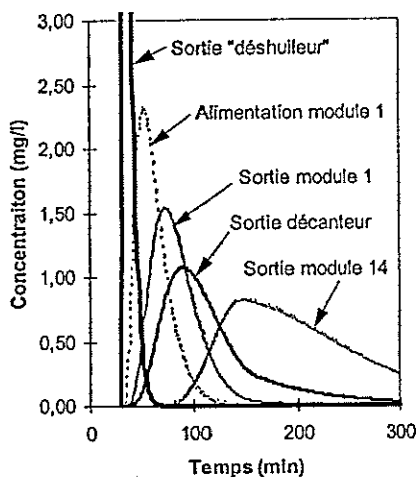


Figure 9: Modèle général des décanteurs lamellaires: (I) dessableur, (II) déshuileur, (III) zone de clarification, (IV) zone de sédimentation. Les nombres de couches dépendent de l'ouvrage modélisé

La Figure 10 présente les résultats des simulations des traçages obtenues pour les deux ouvrages. Il est difficile de retrouver exactement les résultats expérimentaux en raison des incertitudes sur la géométrie exacte des ouvrages ainsi que sur la répartition des débits. Les modèles ne tiennent pas compte en particulier de l'alimentation répartie de la goulotte de collecte à partir des différents modules. Cependant les tendances sont conformes aux résultats expérimentaux avec un étalement plus important observé sur le décanteur DL1 que sur le décanteur DL2.

a



b

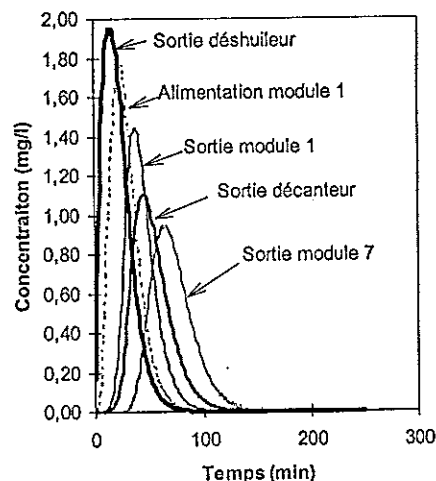


Figure 10: Simulation des traçages sur les décanteurs lamellaires DL1 (a) et DL2 (b)

IV. CONCLUSIONS

Des modèles bidimensionnels de complexité moyenne ont été établis en considérant à la fois le résultat d'opérations de traçage de la phase liquide d'unités de séparation liquide-solide et leur géométrie. Les résultats obtenus sont encourageants mais peuvent être améliorés en systématisant la détermination des paramètres des modèles sur d'autres ouvrages. Néanmoins ces modèles permettent déjà de simuler le fonctionnement global des ouvrages existants.

V. REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient la Communauté Urbaine de Nancy et la Communauté Urbaine de Strasbourg pour leur aide, ainsi que tous les bénévoles ayant participé aux expériences.

VI. REFERENCES

- (1) Roche N., Bendounan R., Prost C, Revue des Sciences de l'Eau, 7 153-167 (1994)
- (2) Abdel-Gawad S., Mc Corquodale J.A., Can. J. Civil Eng., 11, 299-307 (1984)

MESURES DE DISTRIBUTIONS DE TEMPS DE SEJOUR PAR TRACAGE RADIOACTIF DANS DES REACTEURS INDUSTRIELS D'INFILTRATION CHIMIQUE EN PHASE GAZEUSE

E. SION, Ph. JOUANNARD, L. LANVIN

<> MESSIER BUGATTI
7, av. du Bel Air
69627 VILLEURBANNE

V. BLET, Ch. CHAUSSY, Ph. BERNE

<> CEA - DAMRI/SAR/SAT
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX 9

RESUME

On décrit une campagne de mesure des Distributions des Temps de Séjour dans des réacteurs d'infiltration chimique en phase gazeuse, par traçage radioactif. Les résultats et leur interprétation conduisent à un diagnostic du procédé, qui doit permettre d'en améliorer les performances.

I. INTRODUCTION

La Société MESSIER-BUGATTI/Division CARBONE INDUSTRIE dispose d'un réacteur pilote de grande taille dans lequel sont entreprises des campagnes expérimentales destinées à développer un de ses procédés. Avant d'établir des extrapolations à partir du réacteur pilote, il est nécessaire d'acquérir des connaissances sur l'hydrodynamique de ce réacteur ainsi que des réacteurs industriels de série. A cet effet, des calculs numériques par éléments finis ont été réalisés. Cependant, la complexité de ces écoulements imposait de recourir également à une méthode expérimentale afin de vérifier ces calculs : la mesure de la Distribution des Temps de Séjour (DTS). On présente ici cette campagne de mesures ainsi que son interprétation.

II EXPERIENCES

II.1. Contraintes - Choix et caractéristiques du traceur

La dynamique du procédé est très rapide (le temps de séjour dans le réacteur pilote est estimé à quelques secondes seulement). De plus, il était très fortement souhaitable de ne pas perturber le procédé lors de la mesure de la DTS.

Cet ensemble de raisons nous a conduit à retenir le traçage radioactif au moyen d'un émetteur γ . Cette méthode présente en effet l'avantage d'une très bonne résolution temporelle (de l'ordre de 10 ms) et de permettre une détection à travers les parois du réacteur ou de sa tuyauterie. De plus, sa grande sensibilité permet de travailler avec de très faibles quantités de traceur, et ainsi de pratiquer les mesures sur un réacteur en production.

Le traceur retenu a été l'argon 41 (^{41}Ar), choisi sur des critères d'énergie, de période radioactive, de facilité d'approvisionnement et de très faible radiotoxicité. Cet isotope est obtenu par irradiation d'argon pur dans un réacteur nucléaire.

Ses caractéristiques principales sont les suivantes :

- période de décroissance radioactive : 110 minutes (ce qui garantit sa disparition dans un délai raisonnable),
- énergie de l'émission γ : 1,29 MeV.

La dose utilisée pour chaque expérience était de 370 MBq, contenue dans une ampoule de quartz de 10 cm³.

Compte tenu des informations recherchées, le traçage a été pratiqué sur le réacteur pilote et sur un réacteur industriel de série.

II.2. Protocole d'injection - Système de mesures

L'ampoule de quartz est placée dans un dispositif d'injection gainé de plomb, où elle est brisée. Une grille métallique permet de recueillir les morceaux de quartz. Le mélange gazeux radioactif est alors pressurisé par de l'azote, sous une pression de quelques bars, de sorte que l'ouverture de ce système libère de façon quasi instantanée le traceur dans l'unité.

Les détecteurs sont de type « détecteur à scintillation », dont la partie sensible au rayonnement γ est un cristal d'iodure de sodium NaI(Tl) 1"1/2-2". Chaque réacteur a été muni de deux détecteurs de ce type, un sur la canalisation d'entrée du gaz et un en sortie. Les signaux sont envoyés sur une centrale de mesure, comportant :

- un ensemble d'analyse de 12 voies (amplification et discrimination d'énergie),
- un ensemble d'acquisition numérique,
- un PC assurant la gestion de l'acquisition et la mémorisation des données.

Les acquisitions ont été réalisées de manière simultanée sur les deux détecteurs, selon les séquences suivantes :

- séquence rapide : acquisition toutes les 10 ms pendant 30 secondes,
 - séquence moyenne : acquisition toutes les 100 ms pendant 5 minutes,
 - séquence lente : acquisition toutes les 5 s pendant 45 minutes,
- avec chaque fois un temps intercomptage nul.

Ce système de traçage radioactif permettrait donc le suivi simultané de douze voies, avec une résolution temporelle de 10 ms. A notre connaissance, aucun autre système de traçage gazeux n'offre de performances comparables.

Les résultats bruts sont des courbes de nombres de coups par seconde en fonction du temps, qu'il reste à traiter et à dépouiller.

II.3. Traitement de l'information

Les courbes enregistrées par les détecteurs sont d'abord corrigées de la décroissance radioactive du traceur (phénomène qui peut s'avérer non négligeable avec un traceur de courte période comme l'argon 41). Ces courbes sont ensuite filtrées numériquement pour éliminer le bruit de fond dû à la statistique de comptage. Enfin les lignes de base en sont soustraites.

Ces signaux sont ensuite ajustés, au sens des moindres carrés, par l'algorithme de minimisation non linéaire de Levenberg-Marquardt, avec des fonctions analytiques judicieusement choisies. En l'occurrence, nous avons retenu des fonctions du type piston-dispersion (1) :

$$y(t) = \frac{1}{2} a_i \sqrt{\frac{P_i}{\pi \tau_i t}} \exp\left(-\frac{P_i (\tau_i - t)^2}{4 \tau_i t}\right) \quad (1)$$

où a_i , P_i et τ_i désignent respectivement l'aire de la fonction, le nombre de Péclet et le temps de passage moyen associés à l'écoulement modélisé. Cette fonction est solution de l'équation de convection/diffusion régissant le transfert du traceur dans des conditions dites « ouvertes à la diffusion ». Elle présente l'avantage de pouvoir être associée à l'écoulement d'un filet fluide particulier.

III. RESULTATS

Les signaux des détecteurs placés en entrée des réacteurs (non représentés ici) montrent sans ambiguïté que l'injection de traceur est assimilable à une fonction de Dirac. La normation des signaux obtenus en sortie donne donc la réponse impulsionnelle des réacteurs (qui n'est pas *stricto sensu* une DTS, puisque les conditions opératoires, en température et en pression, font que le débit volumique n'est pas conservatif, (1)). La figure 1 montre les résultats obtenus sur le réacteur pilote et sur un réacteur industriel de série :

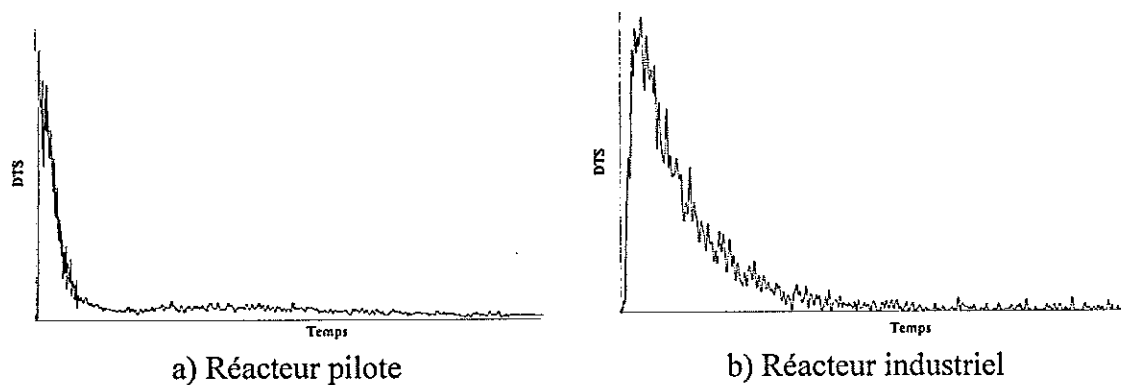


Figure 1 : Réponses impulsionnelles des réacteurs

La forme de ces courbes indique, d'ores et déjà, que les deux réacteurs ont un comportement hydrodynamique très différent, avec en particulier l'existence d'une recirculation marquée dans le réacteur pilote, probablement due à l'existence de zones stagnantes. Ces disparités sont attribuées à des différences de géométrie interne, mais aussi à des différences de chargement. L'ajustement de la réponse du réacteur industriel a demandé la somme de quatre fonctions piston-dispersion, dont la dernière représente la queue de la réponse impulsionnelle, ou encore la contribution des zones stagnantes. Dans la mesure où l'on pourrait négliger les effets de variation du débit volumique, le rapport de l'aire de cette fonction à l'aire totale serait une estimation du débit de recirculation.

IV. DISCUSSION

Nous avons alors cherché à bâtir un modèle de type système, en nous fixant les principes suivants :

- que ce modèle reste simple, avec un nombre minimal de paramètres,
- qu'il conserve une signification physique,
- qu'il soit suffisamment général pour pouvoir décrire les deux réacteurs tracés.

L'examen des courbes expérimentales nous suggère le modèle de la figure 2, dont l'interprétation physique pourrait être la suivante :

- la branche indiquée s modélise l'écoulement du gaz traceur dans le volume accessible des pièces internes (chargement et appareillage du réacteur),
- la branche 1 décrit le courant de court-circuit,
- la branche 2 représente l'écoulement d'ensemble du flux gazeux dans le réacteur,
- la branche 3 enfin reproduit le courant de recirculation induit par la présence de zones stagnantes.

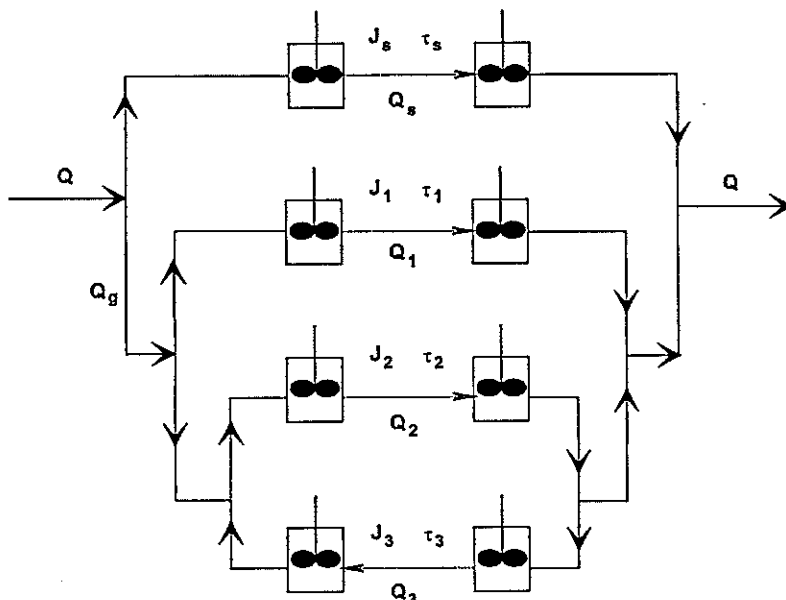


Figure 2 : Modèle système proposé

La figure 3 montre que ce modèle relativement simple permet, après optimisation des paramètres, de reproduire les courbes de réponse impulsionnelle expérimentales.

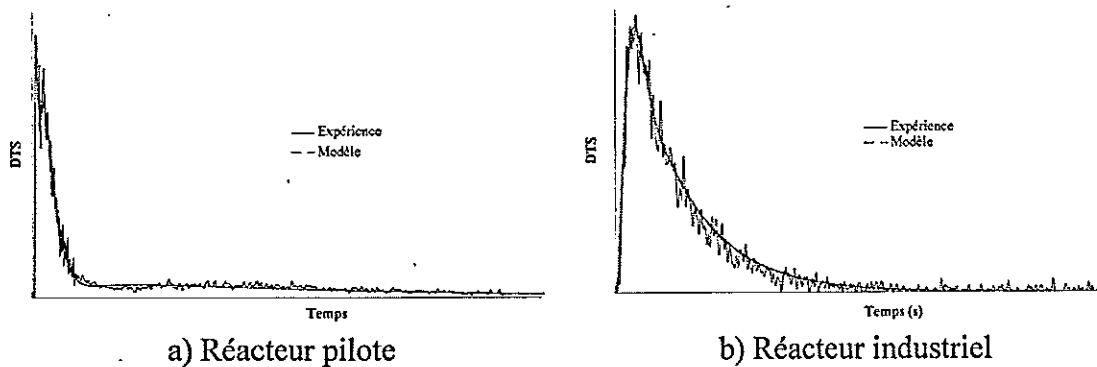


Figure 3 : Réponses impulsionnelles des réacteurs

Les valeurs optimales des paramètres du modèle ne peuvent pas être prises comme des mesures des volumes et des débits des différentes branches, du fait que le débit volumique n'est pas conservatif. On peut cependant considérer qu'elles sont représentatives de l'importance de chaque branche ; sous cette réserve, elles confirment bien l'existence de zones stagnantes dans le réacteur pilote.

V. CONCLUSION

A l'issue de cette campagne d'essais, le réacteur pilote a été arrêté et il a été possible d'en examiner l'état interne. Les observations pratiquées à cette occasion ont entièrement corroboré les conclusions tirées des traçages gazeux et leur interprétation.

Une nouvelle campagne de traçage permettra prochainement de valider les modifications apportées sur la géométrie interne du four pilote.

Ces expérimentations ont montré que le traçage radioactif permet le diagnostic efficace des réacteurs en production, grâce, entre autres, à une excellente résolution temporelle.

REFERENCES

- (1) Villermaux J., Génie de la réaction chimique - Conception et fonctionnement des réacteurs, Ed. Technique et Documentation Lavoisier, (1985)

APPORT DE LA γ -CAMERA A L'ETUDE D'UN REACTEUR AGITE TRIPHASIQUE DE LABORATOIRE

V. BLET, P. BERNE

◇ CEA/DAMRI/SAT
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX 9
◇ CPE LYON - LGPC
BP 2077 - 43, bld du 11 Nov. 1918
69616 VILLEURBANNE CEDEX

M. FORISSIER, O. LADET, I. PITAULT, D. SCHWEICH

◇ CPE LYON - LGPC
BP 2077 - 43, bld du 11 Nov. 1918
69616 VILLEURBANNE CEDEX

RESUME :

Des mesures de dispersion du gaz dans un réacteur de laboratoire (type Mahoney-Robinson) considéré comme parfaitement agité continu et mettant en contact trois phases (gaz-liquide-solide) ont été réalisées à l'aide d'une γ -caméra. Le traceur gazeux radioactif utilisé est le ^{133}Xe . L'étude qualitative des résultats a permis de mettre en évidence le mauvais fonctionnement de l'agitateur qui accumule le gaz au centre du réacteur et qui est peu efficace pour assurer un passage forcé du gaz dans le panier et la partie externe. Elle a aussi montré la pertinence de la γ -caméra pour la caractérisation de petits réacteurs de laboratoire.

I. INTRODUCTION

Le réacteur de Robinson et Mahoney (figure 1) est préconisé depuis de nombreuses années dans l'étude de laboratoire de réactions catalytiques triphasiques gaz-liquide-solide (1,2). Il est considéré comme un réacteur parfaitement agité continu vis-à-vis des phases gazeuse et liquide. Pour le type de réactions que nous voulons étudier (hydrodésulfuration des gazoles)(3,4), seul le liquide doit être en contact avec le catalyseur. Le gaz n'intervient dans la réaction que sous forme dissoute. Ce réacteur est donc attrayant pour déterminer des paramètres cinétiques, si les transferts gaz-liquide et liquide-solide peuvent être considérés comme non limitants (5,6) et s'il se comporte comme un réacteur agité continu idéal.

Les mesures de distribution de temps de séjour du gaz et du liquide et les mesures par oxygéométrie du transfert gaz-liquide sont insuffisantes pour caractériser la répartition locale des phases dans le réacteur. D'autres techniques ont donc été recherchées dans ce but.

Parmi les différentes méthodes déjà utilisées en génie chimique, l'utilisation de traceurs radioactifs pour mesurer les temps de séjour dans les réacteurs des unités en fonctionnement est bien développée (7,8,9). Les isotopes radioactifs présentent de multiples avantages comme la sélectivité de la phase marquée et la spécificité de la radiation et peuvent être détectés à travers une paroi métallique. Le développement de la tomographie et de l'imagerie industrielles (10,11) donne de nombreux exemples concernant les écoulements internes aux réacteurs. Cependant, les études peuvent être longues et les images obtenues ne sont que des valeurs intégrées en espace et en temps.

L'utilisation d'une γ -caméra comme détecteur du rayonnement γ émis de l'intérieur du réacteur par un traceur nous a semblé plus adaptée pour visualiser et

ultérieurement quantifier la répartition locale des phases. Cette méthode a déjà été utilisée pour l'étude des lits fluidisés (10) et des trajectoires d'objets dans un réacteur de mélange (9).

L'étude que nous présentons concerne le traçage de la phase gaz du réacteur Mahoney-Robinson par le ^{133}Xe . Elle a pour but de comprendre les effets de la vitesse de rotation de l'agitateur sur la distribution des bulles de gaz dans le réacteur. Le ^{133}Xe a été choisi pour ses caractéristiques radioactives (énergie, période). La phase liquide est l'eau dont la distribution dans le réacteur pourra être déduite des mesures précédentes. Pour des raisons de radioprotection, le réacteur n'a pas pu être étudié en mode ouvert, qui est son utilisation normale, mais uniquement en mode fermé.

II. DONNEES EXPERIMENTALES

II.1. Maquette du réacteur

Le réacteur de laboratoire vendu par Parr, conçu pour fonctionner jusqu'à 180 bars de pression et 450°C, est en acier inoxydable d'une épaisseur de 6 mm (Figure 1). Il est possible de réaliser les mesures directement sur le réacteur en acier inoxydable mais, une copie conforme du réacteur a été réalisée en polymétacrylate de méthyl pour les raisons suivantes : permettre des observations visuelles des écoulements pendant les mesures, obtenir suffisamment de sensibilité sans recourir à des émissions de fortes énergies afin d'obtenir une résolution spatiale suffisante. Dans cette maquette, seule l'utilisation de l'eau en tant que liquide et de l'air pour le gaz est possible à température ambiante et à pression atmosphérique. La répartition volumique des phases fluides est la suivante : 2/3 pour le liquide et 1/3 pour le gaz (cf. Figure 1).

Le catalyseur est maintenu dans un panier cylindrique entre deux grilles en acier inoxydable. Les fils des grilles ont 0,3 mm de diamètre et on dénombre 8 mailles par cm. Les mêmes grilles ont été utilisées pour les mesures en maquette. Trois vis en acier inoxydable de 6,8 mm de diamètre maintiennent le haut et la bas du panier. Le catalyseur est simulé dans la maquette par des petits cylindres de 1 mm de diamètre et de 5 mm de long en plastique.

L'agitateur en acier inoxydable a été utilisé pour les mesures dans la maquette (Figure 2). Les trois pales de l'agitateur sont incurvées vers le centre pour générer un flux de liquide à travers le panier de catalyseur. Le liquide situé au dessus du panier est entraîné vers le bas et celui au dessous du panier est entraîné vers le haut. L'axe de l'agitateur est creux. Par rotation, une dépression est créée au centre des pales, le ciel gazeux est alors aspiré par le trou de l'axe et sort par les 3 trous situés entre les pales.

La rotation de l'agitateur est assurée par un moteur équipé d'un variateur de

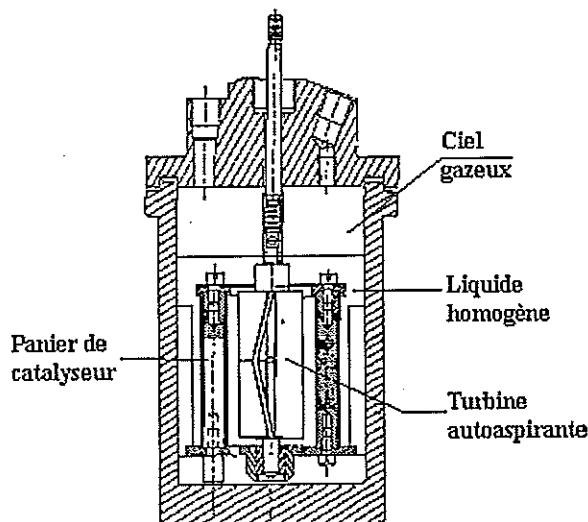


Figure 1 : Schéma du réacteur Mahoney-Robinson



Figure 2 : Agitateur creux à trois pales.

vitesse allant de 0 à 2000 tr/min.

Le couvercle du réacteur est maintenu par six vis métalliques.

Les seules pièces métalliques qui ont été conservées dans la maquette sont l'agitateur, la grille du panier, les vis de maintien du panier et celles du couvercle. Toutes les autres pièces : cuve, couvercle, haut et bas du panier, contre-pales,.. sont en polyméthacrylate de méthyl.

Pour l'introduction du gaz radioactif dans la maquette, deux connecteurs ont été fixés sur le couvercle : le premier équipé d'un septum pour l'injection du gaz et le second pour créer une dépression.

II.2. La γ -caméra

La caméra de type DSX est commercialisée par Sopha Medical Vision.

Le collimateur en plomb a une dimension totale 540*400mm. Les canaux sont de forme alvéolaire de 53 mm de long, avec une distance de 2,6 mm entre les faces opposées. L'épaisseur du plomb entre chaque alvéole est de 0,2 mm.

Le détecteur (cristal de NaI(Tl)) et les 96 photomultiplicateurs sont derrière le collimateur.

La résolution spatiale décroît proportionnellement avec la distance entre l'émetteur et le collimateur (de 2,8 mm lorsqu'ils sont en contact à 8,2 mm lorsqu'ils sont séparés de 100mm). La résolution est optimale autour de 140 keV.

La détection du rayonnement γ consiste à dénombrer les photons d'origine photoélectrique arrivant sur le cristal de NaI, par unité de temps. Pratiquement, cette détection s'opère sur une fenêtre énergétique englobant à $\pm 10\%$ le pic photoélectrique du traceur (compris donc entre 73 et 82keV dans notre cas).

II.3. L'émetteur gazeux

L'émetteur gaz qui a été choisi est le ^{133}Xe . Sa période de demi-vie radioactive est de 5,2 jours. Son énergie d'émission de rayons γ est de 81 keV. Le volume de Xe marqué introduit dans le réacteur est de 2,5 ml. L'injection du gaz radioactif est le temps 0 des mesures.

La solubilité de xénon dans l'eau est de 0,108 à 20°C (coefficient de Bunsen) (12). Par calcul, il a été trouvé qu'à l'équilibre des phases xénon-eau, 15,7% du Xe se solubilise dans l'eau et 84,3% reste dans la phase gazeuse.

II.4. Montage

La maquette en polyméthacrylate de méthyl est posée sur un support comportant une fenêtre en plastique sur laquelle est centré le fond de la maquette. Lors des différentes expériences, le moteur, le support et le réacteur sont solidaires.

Le plan du collimateur de la caméra est soit placé parallèlement à l'axe du réacteur (vues de « profil », caméra verticale), soit perpendiculairement sous le réacteur (vues de « dessous », caméra horizontale). Dans ce dernier cas, le support est posé directement sur la caméra, les mesures étant effectuées au travers de la plaque en plastique.

II.5. Acquisition et traitement des données

La durée d'acquisition des données a été choisie de façon à collecter suffisamment de photons et ainsi obtenir une bonne précision sur les valeurs de pixel. Avec les concentrations utilisées, la durée nécessaire est de l'ordre de 5 min. Le nombre

total de coups reçus varie entre $1,1 \cdot 10^6$ et $2,5 \cdot 10^6$ soit entre 1000 et 3000 coups par pixel.

Le programme d'acquisition lié à la caméra permet d'obtenir une matrice de données dont la taille est au maximum de $512 \cdot 512$ où 1 pixel représente $1,15 \text{ mm}^2$ de l'objet étudié. La taille du réacteur étant faible devant celle de la caméra, il a été possible de réduire les fichiers de données à une matrice $110 \cdot 110$ traitable par un tableur classique.

II.6. Expériences

Les différentes expériences sont résumées dans le tableau suivant. Après l'injection du Xe et avant la première acquisition de données, le mélange est homogénéisé pendant 10 s. Les expériences réalisées le deuxième jour à vitesse nulle n'ont servi qu'à vérifier la cohérence de nos résultats.

Jour	Heure	Vitesse de rotation de l'agitateur (tr/min)	Position de la caméra	Temps depuis l'injection du Xe (min)	Durée d'acquisition (s)	Nombre de coups total reçus par la caméra
1	14.57	0	verticale	0	303	1429000
1	15.07	1750	verticale	10	317	1364000
1	15.18	0	horizontale	21	462	1104000
1	15.27	1750	horizontale	30	455	1158000
2	07.34	0	horizontale	997	1355	2105000
2	08.04	1000	horizontale	1027	1384	2141000
2	08.35	0	verticale	1058	714	2486000
2	08.57	1000	verticale	1080	747	2478000

III. RESULTATS

III.1. Correction des images

La période de demi-vie radioactive du Xe étant de 5,2 jours, il est nécessaire de corriger les matrices de données d'acquisition par la formule suivante :

$$n_c = n_m \exp(kt_V) / kt_A$$

avec k : constante de demi-vie ($=9,178 \cdot 10^{-5} \text{ min}^{-1}$), n_m : nombre de coups mesuré pour un pixel, n_c : nombre de coups corrigé pour un pixel, t_A : durée d'acquisition en minutes, t_V : temps depuis l'injection du Xe en minutes.

III.2. Images corrigées

Les images obtenues pour les trois vitesses d'agitation et les deux positions de la caméra sont données dans la figure 3.

Pour les vues de profil, à vitesse de rotation nulle, on observe de fortes intensités dans le ciel gazeux et de très faibles intensités dans le liquide. Quand la vitesse de rotation augmente, l'intensité du ciel gazeux diminue et celle de la zone liquide augmente mais de façon moindre. Pour les vues de dessous, l'intensité globale détectée augmente avec la vitesse de rotation.

Dans un premier temps, pour quantifier ces observations, le nombre moyen de photons détectés en une minute par pixel a été calculé sur toute la partie d'une image où ont été détectés des rayonnements, sans tenir compte de la dimension géométrique du réacteur, et ceci pour chaque image. Ce nombre de coups moyen par pixel décroît de 7,2% quand la vitesse d'agitation augmente pour les vues de profil et il croît de 12,8% pour les vues de dessous (Figure 4). De plus, le nombre de coups moyen par pixel des vues de profil est supérieur à celui des vues de dessous pour 0 et 1000 tr/min. Pour 1750 tr/min, ils sont égaux.

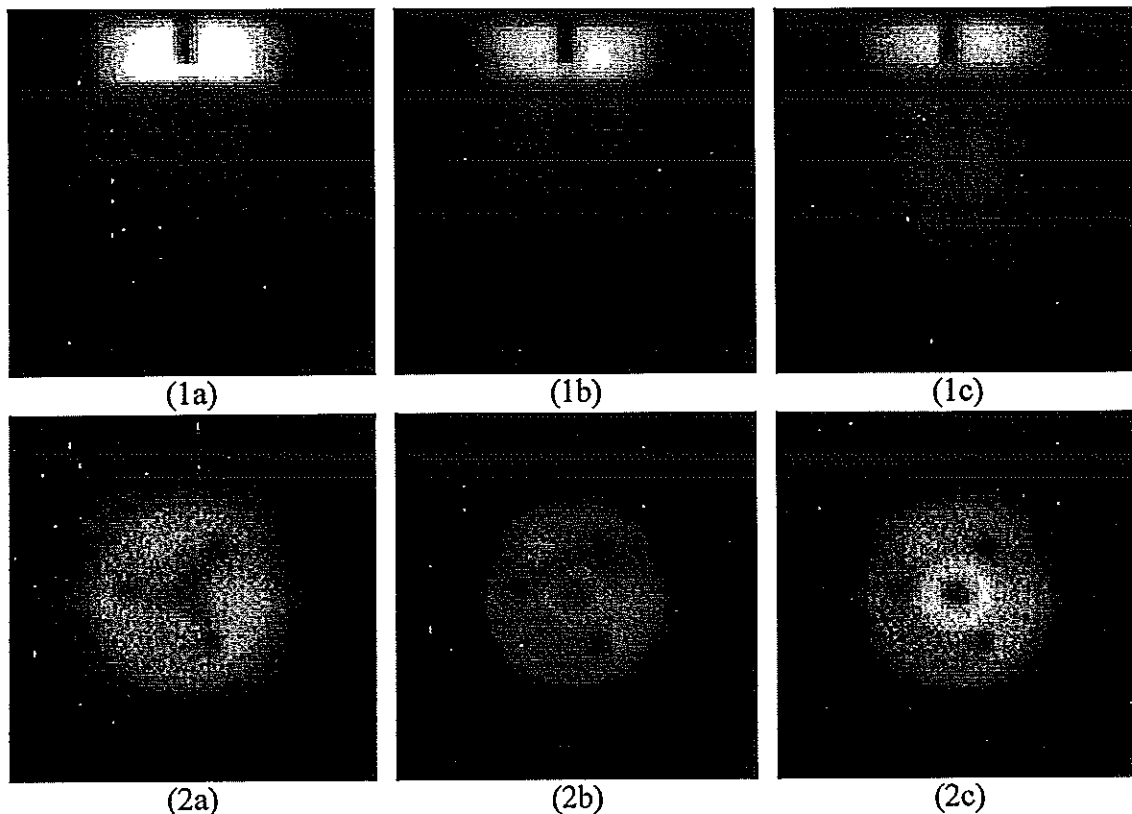


Figure 3: Images corrigées de la décroissance radioactive de profil et de dessous à différentes vitesses de rotation de l'agitateur. (1 : profil (en coups/min) ; 2 : dessous (en coups/min)) ((a) : agitateur arrêté ; (b) : 1000 tr/min ; (c) : 1750 tr/min)

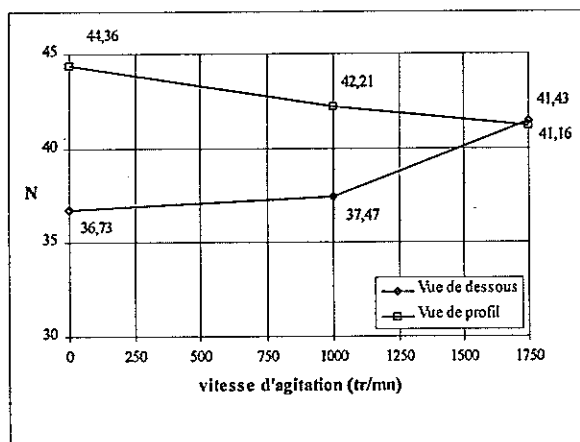


Figure 4: Nombre de coups moyen par pixel en fonction de la vitesse de rotation de l'agitateur pour les vues de dessous et de profil.

varie significativement en fonction de la vitesse d'agitation pour les images de profil et de dessous (Figures 5 et 6).

IV. DISCUSSION

L'absorption des rayonnements (régie par la loi de Beer-Lambert) diffère suivant les zones traversées car les coefficients d'atténuation dépendent de la matière traversée ($\mu=0,207 \text{ cm}^{-1}$ pour le polyméthacrylate de méthyl, $\mu=0,184 \text{ cm}^{-1}$ pour l'eau, $\mu=4,519 \text{ cm}^{-1}$ pour l'acier, et μ négligeable pour le gaz).

Pour les vues de profil, les émissions γ du ciel gazeux ne sont atténuées que par

la paroi du réacteur et par la bride externe ; ce qui explique les fortes intensités du ciel gazeux observées. Les émissions du liquide ou des bulles de gaz sont atténuées par la paroi et tous les internes. Les vues de dessous ayant été prises par dessous le réacteur, le ciel gazeux est vu à travers l'eau, les internes et le fond du réacteur.

IV.1. Analyse des images de profil

Sans agitation, la partie liquide est émettrice (Figure 5). Cela est dû à la solubilité du xénon dans l'eau. Dans les conditions normales de pression et de température, 15,7% du xénon est dissous dans l'eau. A 1000 tr/min et 1750 tr/min, l'intensité du signal augmente dans la zone liquide ; la fraction moyenne du volume de xénon dispersé dans le liquide augmente donc avec la vitesse d'agitation.

L'intensité du ciel diminue nettement avec la vitesse d'agitation. Le pic d'intensité à vitesse nulle au niveau du pixel 74 est dû à une zone de faible atténuation. En effet, la bride assurant la fermeture du réacteur s'arrête environ au pixel 76 et l'eau au pixel 71. Donc, dans la zone 71-76, l'atténuation est uniquement due à la paroi de la maquette. La diminution de l'intensité dans cette zone à 1750 tr/min montre que l'atténuation du signal augmente nettement et met en évidence l'augmentation de la hauteur de l'eau. Ce phénomène est moins marqué à 1000 tr/min.

IV.2. Analyse des images de dessous

Le coefficient d'atténuation de l'acier étant très supérieur à celui de l'eau et du polyméthacrylate de méthyl, il est possible de voir les vis du panier et l'agitateur (Figures 3-2) et, de ce fait, de pouvoir localiser précisément la position du panier et des internes (Figure 6).

On constate que le signal augmente dans la zone de l'agitateur à 1000 et 1750 tr/min, alors qu'il est constant quelle que soit la vitesse d'agitation dans le panier et à l'extérieur du panier. Donc, la vitesse d'agitation ne semble pas avoir d'incidence sur la dispersion du gaz dans le liquide à l'intérieur et dans la partie externe du panier. Les faibles intensités dans la zone de l'axe sont dues au fait que les émissions provenant de derrière l'axe sont très atténuées. La forte accumulation du gaz dans la zone de l'agitateur s'explique par la formation d'un vortex qui n'est pas favorable au transfert gaz/liquide.

Globalement, les images observées ont une dimension supérieure à la dimension physique du réacteur et elles ne sont pas nettes. Ceci peut s'expliquer par deux

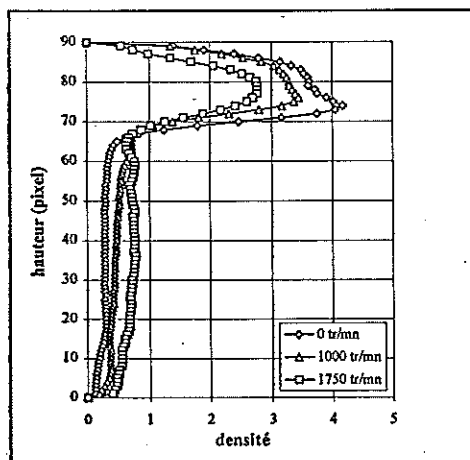


Figure 5 : Densité de coups en fonction de la hauteur pour les vues de profil.

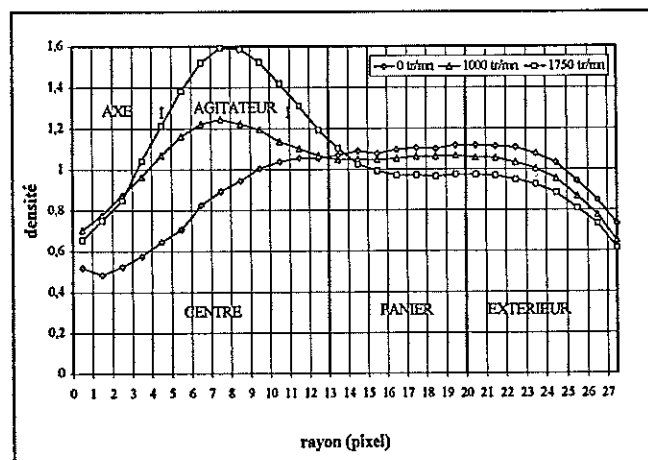


Figure 6 : Densité de coups en fonction du rayon pour les vues de dessous.

phénomènes : certains rayons γ détectés ont subi des interactions de type Compton et le collimateur de la caméra a une dimension telle que son pouvoir séparateur est limité. Ceci est sûrement la cause de la baisse de l'intensité pour les pixels compris entre 24 et 27 (Figure 6).

V. CONCLUSION

Malgré la petite taille du réacteur (63 mm de diamètre et 119 mm de hauteur), sa caractérisation par le traçage de la phase gazeuse au ^{133}Xe avec une γ -caméra permet d'obtenir des résultats qualitatifs intéressants. Les images brutes ne permettent pas de déterminer la répartition des phases de façon quantitative, mais elle donnent des indications quant à la dispersion du gaz dans certaines zones par rapport aux autres. En effet, dans ce cas d'étude, il est possible de conclure que l'agitateur accumule du gaz surtout au centre du réacteur, mais qu'il est peu efficace pour assurer un passage forcé du gaz dans le panier et dans la partie externe.

Pour obtenir des résultats quantitatifs, la modélisation du système est nécessaire. Sous réserve que l'on se soit effectivement affranchi du rayonnement diffusé, la prise en compte des effets d'atténuations, dus aux différents matériaux en présence, et d'angle solide, liés à la géométrie du collimateur utilisé avec la γ -caméra, doit rendre compte du flou sur les images et de la décroissance du signal dans la partie externe du réacteur.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) Mahoney J.A., Robinson K.K., Myers E.C., Catalyst evaluation with the gradientless reactor, *Chemtech*, 8, 12, 758-763 (1978)
- (2) Mahoney J.A., Laboratory reactors for mixed phase catalytic studies, NATO, Adv. Study Inst. Serie, Serie E, Vol 51, 487-513 (1981)
- (3) Gray M.R., Ayasse A.R., Chan E.W., Veljkovic M., Kinetics of hydrodesulfurization of thiophenic and sulfid sulfur in athabasca bitumen, *Energy and Fuels*, 9, 500-506 (1995)
- (4) Vanrysselberghe V., Froment G.F., Hydrodesulfurization of dibenzothiophene on a Co-Mo/Al₂O₃ catalyst: reaction network and kinetics, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 35, 3311-3318 (1996)
- (5) Weekman V.W., Laboratory reactor and their limitations, *AIChE Journal*, 20, 833-840 (1974)
- (6) Tajbl D.G., Simons J.B., Carberry J.J., Heterogeneous catalysis in a continuous stirred tank reactor, *Ind. Eng. Chem. Fund.* 5, 2, 171-175 (1966)
- (7) Thyn J., Radioisotope techniques for process optimisation, *Isotopen praxis*, 25 (4) 145-152 (1989)
- (8) Blet V., Berne Ph., Tola F., Vitart X., Les applications du traçage radioactif, 1^{er} Congrès Français sur les Traceurs et Méthodes de Traçage, Nancy (1998)
- (9) Kolar Z.I., Utility of radiotracer methodology in scientific research of industrial relevancy, *Isotopenpraxis* 26, 9, 419-424 (1990)
- (10) Bernard J.R., Desbats L., Turlier P., Gamma ray imaging og industrial fluidized bed, *Front. Ind. Process Tomogr.*, 197-206, Proc. Eng. Found. Conf. (1995)
- (11) Jonkers G., Van den Bergen E.A., Vermont P.A., Industrial applications of gamma systeme-1. Qualitative studies, *Appl. Radiat. Isot.*, 41, 1023-1031 (1990)
- (12) *Gas encyclopedia*, Elsevier ed., 1145 (1976)

DIVERSES APPLICATIONS DE TRACEURS FLUORESCENTS POUR LES SYSTEMES LIES A L'EAU POTABLE OU AU MILIEU NATUREL

O. GERBAUX-FRANCOIS

◁ CEA - DAMRI/SAR/SAT
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE

Résumé

Lorsque des opérations de traçages sont envisagées pour étudier des systèmes relatifs à l'écoulement des eaux potables, ou au milieu naturel, les traceurs fluorescents sont en priorité sélectionnés du fait de la bonne maîtrise de mise en œuvre et de suivi acquise depuis des années, mais également par leur aspect non toxique reconnu. Les limites d'applications de traceurs fluorescents sont le plus souvent liées au milieu étudié qui les rend non conservatifs. Toutefois, le couplage avec un traceur chimique conservatif permet parfois d'évaluer la dégradation et de la corriger ainsi afin d'exploiter les traçages fluorescents. Nous présentons dans cette communication diverses applications de traceurs fluorescents ayant chacune d'elles un caractère innovant que ce soit dans la mise en œuvre des traceurs que dans l'interprétation des traçages.

I. INTRODUCTION

Lorsque des opérations de traçages sont envisagées pour étudier des systèmes relatifs à l'écoulement des eaux potables ou susceptibles de l'être, ou en milieu naturel, les traceurs fluorescents sont en priorité sélectionnés du fait de la bonne maîtrise de mise en œuvre et de suivi acquise depuis des années, mais également par leur aspect non toxique reconnu (leur seuil de détection permet l'utilisation de faible quantité de traceurs afin d'obtenir des concentrations maximales en traceur de l'ordre de 10^{-7} kg/l).

Les applications de traceurs fluorescents sont le plus souvent limitées lorsque le milieu étudié rend ces traceurs non conservatifs, comme la dégradation du traceur à la lumière (systèmes hydrologiques tels que rivières, lacs, ...), ou par le chlore (système de distribution des eaux potables), et dans le cas où les traçages ont pour objectifs de déterminer des paramètres quantitativement (Distributions des Temps de Séjour, D.T.S., paramètres hydrodispersifs, ...) et non simplement qualitativement (relation hydraulique entre deux systèmes par exemple).

Toutefois, le couplage avec un traceur chimique conservatif permet parfois d'évaluer la dégradation et de la corriger ainsi afin d'exploiter les traçages fluorescents.

Nous présentons ci-après diverses applications de traceurs fluorescents ayant chacune d'elles un caractère innovant que ce soit dans la mise en œuvre des traceurs que dans l'interprétation des traçages. L'objectif ici n'est pas la description des systèmes étudiés ni la présentation des résultats expérimentaux de traçages, mais plutôt de montrer la diversité des applications des traceurs fluorescents pour les systèmes liés à l'eau potable ou au milieu naturel tout en soulignant leurs originalités.

II. DIVERSES APPLICATIONS

II.1 Etude de la dispersion en rivière - Système d'alerte

Les opérations de traçages décrites ci-après, concernant l'étude des distributions des temps de séjour en rivière, se distinguent d'une part par la méthodologie (il existe très peu de données expérimentales décrivant les D.T.S. à différents régimes d'écoulement), et d'autre part par l'interprétation des résultats (système prévisionnel basé sur des abaques pour en faciliter l'emploi, mais également à partir de solution analytique de type piston-dispersion, pour laquelle les paramètres sont déduits d'une loi empirique élaborée à partir des données de terrain).

Des expériences de traçages (1) ont été effectuées sur la Doller (Haut-Rhin) pour l'établissement d'un système d'alerte en cas de pollution accidentelle, axé spécifiquement sur une utilisation facile plutôt que basé sur des modèles numériques. La rhodamine Wt a été sélectionnée comme traceur fluorescent et a été injectée instantanément pour simuler une fonction d'entrée de Dirac. Les concentrations en traceur ont été mesurées après prélèvements à différentes sections en aval de l'injection, au cours du temps.

Ces expériences ont été réalisées pour trois régimes d'écoulement différents, représentatifs des débits d'étiage, moyen et de crue afin de maîtriser au mieux la composante variabilité du régime d'écoulement dans l'interprétation des résultats.

L'interprétation des données expérimentales a permis tout d'abord de déterminer les distributions des temps de séjour de l'eau ainsi que les concentrations maximales, ceci en fonction soit de la distance au point d'injection soit du régime d'écoulement (valeurs des débits).

A partir de ces résultats, la première approche de prédiction est basée sur une méthode d'interpolation illustrée par une série d'abaques, afin d'estimer les temps de transit et le maximum de concentrations le long du cours d'eau, pour un débit donné et/ou un point d'injection fixé. Si la source de pollution n'est pas localisée, mais si les concentrations de polluant sont enregistrées à l'aval de cette source, la méthode permet d'estimer l'origine de cette pollution.

La seconde approche consiste à interpréter les données expérimentales selon la théorie de dispersion en rivière (classiquement, il s'agit d'écoulement de type piston-dispersion), permettant de déterminer aisément des coefficients de dispersion et vitesses moyennes d'écoulement. Afin de prédire les distributions des concentrations dans la rivière, des relations empiriques entre les coefficients de dispersion et les vitesses moyennes, avec les distances au point d'injection et les débits d'écoulement sont établies.

II.2 Etude par traçage des circulations créées par des lignes de bullage sur un lac

Les opérations de traçages référencées ci-après se situent dans le cadre de la validation d'un dispositif expérimental de brassage artificiel des eaux de surface de la retenue de Grangent (Loire) (2). Le brassage est assuré par un ensemble de quatre lignes de bullage déposées sur l'isobathe -13 m et ce système est destiné à homogénéiser les couches de surface sur cette hauteur. L'objectif de ces traçages, décrit ci-dessous, met ici en avant l'originalité de l'application des traceurs fluorescents en hydrologie.

En complément du suivi scientifique, mené par EDF, de la qualité de l'eau basé sur un réseau de mesures permettant de vérifier l'efficacité du dispositif, une campagne de traçage des masses d'eau à la fluorescéine a été réalisée, avec pour objectifs de décrire les phénomènes mis en jeu, de vérifier le mélange des couches de surface et de déterminer l'ampleur de la zone influencée par ce dispositif, aussi bien longitudinalement que transversalement.

Le traceur fluorescent a été injecté le long des lignes de bullage pratiquement instantanément, et le panache a été suivi in-situ au cours du temps par navigation et en certains points fixes de la retenue de part et d'autre des lignes de bullage.

Les courbes de restitution de la fluorescéine dans le temps et dans l'espace ont permis de mieux comprendre les circulations induites par les systèmes de bullage dans les masses d'eau avoisinantes (description qualitative et quantitative de certaines cellules de circulation).

II.3 Mesure de débit par dilution en conduite de distribution d'eau potable chlorée

La mesure de débit en conduite par dilution est assez répandue et nécessite au préalable de s'assurer que le tronçon étudié satisfasse la condition minimum de longueur de bon mélange. En effet une telle mesure n'est réalisable que si le traceur injecté se répartit de façon homogène en tout point d'une section amont de la conduite, ce qui se réalise physiquement au delà d'une certaine distance entre le point d'injection et de mesure, appelée longueur de bon mélange.

Les opérations de traçages (3) ici mentionnées ont été réalisées sur une conduite d'amenée d'eau de l'usine de distribution de Montreuil sous Bois (93), ne possédant pas une longueur suffisante pour satisfaire le critère de bon mélange mais comportant des éléments tels que pompe, divergent, ... favorisant le bon mélange. De telles conditions permettent, à partir de traçages, d'effectuer les mesures de débits par dilution à l'aide de traceur conservatif. Les traceurs fluorescents sélectionnés ont été la rhodamine Wt et la fluorescéine, et la méthode utilisée a été l'injection en continu à débit constant d'une solution mère de concentration connue C_0 , et observation du palier de concentration C_1 en trois points de la section de mesure.

Sur de telles installations de distribution d'eau potable, la présence de chlore dans l'eau exclut a priori l'utilisation de traceurs fluorescents, dégradés partiellement par les ions hypochlorites. Des expériences en laboratoire, pour évaluer la cinétique de dégradation de la rhodamine Wt par le chlore, ont montré que la réaction de dégradation est très rapide est irréversible (4). Afin de pallier la non conservation des traceurs fluorescents, une méthodologie permettant de corriger les concentrations mesurées de la dégradation par le chlore a été proposée et validée par l'emploi conjugué d'un traceur chimique conservatif. Le principe utilisé consiste à maîtriser les temps de contacts des solutions

fluorescentes avec le chlore que ce soit pour la solution de référence injectée de concentration C_0 , que pour C_1 , la concentration mesurée au droit de la section de mesure.

Les résultats expérimentaux ont montré que la méthode de mesure de débit par dilution sur de telles installations, ne répondant pas au critère de longueur de bon mélange, est satisfaisante avec le traceur chimique (nécessitant une mesure en laboratoire), et prometteuse pour les traceurs fluorescents tels que la rhodamine Wt (mesure in-situ). Une fois la méthode à l'aide de traceur fluorescent entièrement validée, il sera alors possible de mesurer avec précision les débits sur de telles conduites.

II.4 Etude du comportement hydraulique de réservoir de post - chloration d'usine de traitement des eaux et l'interprétation systémique des résultats des traçages

Lors de la mise en oeuvre d'expériences de traçage chimique, les mesures de concentration en traceur sont effectuées en différé en laboratoire sur des échantillons d'eau prélevés. L'une des difficultés rencontrées est d'adapter la fréquence de mesure ainsi que sa durée pour obtenir un échantillonnage adéquat pour chaque essai de traçage.

L'utilisation du traceur fluorescent non conservatif permet de piloter l'opération de traçage par visualisation immédiate des fonctions de restitution du traceur fluorescent utilisé. L'usage en parallèle d'un traceur chimique conservatif permet une interprétation de ces résultats expérimentaux selon diverses approches.

Plusieurs traçages ont été réalisés dans les usines de traitement d'eau de Méry-sur-Oise et Neuilly-sur-Marne situées en banlieue parisienne (5, 6, 7), afin d'obtenir une connaissance fiable des temps de séjour de l'eau des réservoirs de chloration.

Ces traçages ont mis en oeuvre simultanément la fluorescéine pour le pilotage in-situ des différents essais, et le lithium pour accéder à des mesures quantitatives. Ils ont permis une caractérisation hydraulique selon le débit, le niveau d'eau et le réglage des vannes. L'objectif de ces traçages est l'évaluation des distributions des temps de séjour pour des conditions de fonctionnement hydraulique variées et la confrontation des résultats expérimentaux aux résultats de modélisation systémique, qui est une représentation hydraulique des réservoirs.

Les résultats des traçages ont été analysés par deux approches différentes :

- l'approche dite " conventionnelle " par décomposition de fonctions élémentaires (de type piston - dispersion), résultat de l'opération de déconvolution entre les différents signaux d'entrée et de sortie considérés,
- l'approche dite " systémique " par modélisation selon des arrangements de réacteurs idéaux (réacteur parfaitement agité, réacteur piston ...).

Les deux démarches s'attachent à interpréter les distributions des temps de séjour en fournissant des résultats complémentaires. Les paramètres de la représentation hydraulique à l'aide de modèle systémique ont été calés pour obtenir les mêmes caractéristiques temporelles que par l'approche conventionnelle. On obtient ainsi un modèle représentatif de l'écoulement qui distingue le flux principal, le court - circuit et le volume mort.

III. CONCLUSION

Les traceurs fluorescents sont largement utilisés pour les systèmes liés à l'eau potable ou au milieu naturel depuis des décennies. D'un emploi et d'une mesure aisés, comme le prouve leur utilisation par les spéléologues, ils deviennent incontournables voir indispensables pour l'étude de systèmes spécifiques à cause des contraintes mises en jeu, comme la non toxicité, la mesure in-situ, la facilité de mise en oeuvre,

Nous avons cité différentes applications de traceurs fluorescents à caractère innovant à la fois dans leur mise en oeuvre (traceur "pilote"), leur mesure (correction de la dégradation par le chlore), l'interprétation des résultats des traçages (comparaison d'une approche conventionnelle avec une approche systémique), et surtout l'information dérivant de telles opérations de traçages (validation d'un système artificiel de brassage des eaux de surface d'un lac, élaboration d'un système d'alerte de pollution accidentelle en rivière, ...).

REFERENCES

- (1) François O., Calmels P., Merheb F., Field tracer tests for the simulation of pollutant dispersion in the Doller river (France). in : Tracer Hydrology 97, 121-125. Ed : Kranjc A., A.A. Balkema (1997)
- (2) Salençon M.J., Brassage artificiel des eaux de la retenue de Grangent, Etude par traçages des circulations créées par les lignes de bullage en 1997. Rapport EDF-DER 1998, HE-31/98/04
- (3) François O. Calmels P., Getto D., Saint-Bonnet P., Mesure de débit en conduite de distribution d'eau potable chlorée par dilution d'un traceur. Rapport CEA-DAMRI 1997, DAMRI/SAR/SAT/RAP/97.08/OF/CR
- (4) Chifflet H., Etude de la dégradation de la rhodamine par les ions hypochlorites présents dans l'eau des rivières, Rapport CEA-DAMRI 1996, DAMRI/SAR/SAT/NT/96.04/HC/CR
- (5) François O. Calmels P., Getto D., Saint-Bonnet P., Etude par traçages des modalités de transfert de l'eau dans le réservoir CD de l'usine de Méry-sur-Oise. Rapport CEA-DAMRI 1996, DAMRI/SAR/SAT/RAP/96.23/OF/CR
- (6) Calmels P., Getto D., François O., Etude par traçages des modalités de transfert de l'eau dans les réservoirs R4, puis R2, R1 et R3 de l'usine de Neuilly sur Marne. Rapport CEA-DAMRI 1995, DAMRI/SAR/SAT/RAP/95.29/PC/CR
- (7) Calmels P., Getto D., François O., Etude par traçages des modalités de transfert de l'eau dans les réservoirs R4, puis R2, R1 et R3 de l'usine de Neuilly sur Marne. Rapport CEA-DAMRI 1996, DAMRI/SAR/SAT/RAP/96.04/PC/CR

REMERCIEMENTS

Les opérations de traçages mentionnées dans cet article ont été réalisées par le CEA/DAMRI-SAR-SAT, en collaboration avec différents partenaires d'études, et nos remerciements s'adressent tout particulièrement à BURGEAP, le Conseil Général du Haut-Rhin, la Générale des Eaux, le Syndicat des Eaux d'Ile de France et E.D.F.

ETUDE PAR SPECTROSCOPIE DE FLUORESCENCE DE COPOLYMERES AMPHIPHILES EN MILIEU AQUEUX

C. FROCHOT, M.L. VIRIOT

<> DCPR - ENSIC
BP 451 - 1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

A. BREMBILLA, P. LOCHON

<> LCPM - ENSIC
BP 451 - 1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

Résumé

Des copolymères ont été synthétisés par copolymérisation radicalaire du bromure de 3-hexadécyl-1-vinylimidazolium et de la 1-vinyl-2-pyrrolidinone, à différentes compositions. Les structures moléculaires ont été déterminées par RMN ¹³C. En milieu aqueux ces copolymères s'auto-associent pour former des microdomaines hydrophobes qui sont analysés par spectrofluorimétrie, en utilisant comme traceurs fluorescents soit le pyrène, soit un rotor moléculaire. Les observations sont plus particulièrement discutées en corrélant la structure moléculaire du copolymère à la microcohésion des microdomaines hydrophobes évaluée par les modifications de l'efficacité d'émission de fluorescence du rotor moléculaire.

I. INTRODUCTION

De par leur tendance à s'agréger en milieu aqueux, en raison des interactions à la fois intra- et/ou intermoléculaires des chaînes alkyles, les polymères amphiphiles offrent des propriétés intéressantes, pouvant trouver des applications dans de nombreux domaines (récupération du pétrole, domaine biomédical, etc.). Néanmoins, les propriétés physico-chimiques de ces polymères dépendent fortement de la nature chimique des deux parties hydrophiles et hydrophobes (respectivement cationique, anionique, non ionique... et aliphatique, cyclique, aromatique...) et surtout de leur arrangement respectif dans la chaîne macromoléculaire (1).

Afin d'établir une relation entre la structure moléculaire et le comportement de ces polymères en milieu aqueux, nous avons synthétisé une série de copolymères statistiques à base de bromure de 3-hexadécyl-1-vinylimidazolium (motif cationique) et d'un monomère espaceur hydrophile tel que la 1-vinyl-2-pyrrolidinone (motif non ionique) à différentes compositions et à faibles taux de conversion (inférieurs à 10%). L'étude du mode d'agrégation de ces copolymères est faite à l'aide de la spectroscopie de fluorescence qui s'avère être une technique bien adaptée pour obtenir des informations sur le changement de conformation des macromolécules en solution (2).

Ces études sont réalisées en utilisant deux traceurs fluorescents, le pyrène et un rotor moléculaire noté DMAC (1,1-dicyano-(4'-(N,N-diméthylamino)phényl)-1,3-butadiène). En particulier, les données liées à la viscosité au voisinage du traceur qui sont fournies par le rendement quantique d'émission de fluorescence du rotor moléculaire seront discutées en fonction de la structure moléculaire des copolymères et de leur capacité de repliement.

II. PARTIE EXPERIMENTALE

II.1. Matériels

La synthèse du bromure de 1-hexadécyl-1-vinylimidazolium (C16Vim) a déjà été décrite (3). La 1-vinyl-2-pyrrolidinone (NVP) (Aldrich) a été purifiée par distillation sur paroi froide.

II.2. Méthodes

Absorption UV-visible et Fluorescence

Les solutions mères de polymère sont préparées par dissolution dans une solution aqueuse additionnée de 1-propanol (1-propanol/eau, 3/97, v/v).

Les spectres d'absorption sont enregistrés sur un appareil Perkin Elmer (Lambda 2).

Les spectres d'émission de fluorescence sont enregistrés sur un appareil SPEX Fluorolog-2, équipé d'une cellule thermostatée dont la température est fixée à 30°C.

Avec le pyrène ($1,1 \cdot 10^{-6}$ M dans la solution finale), les échantillons sont excités à 332 nm (largeur de fente = 0,5 mm, soit $\Delta\lambda_{1/2} = 2$ nm) et le spectre d'émission de fluorescence du monomère présente les pics de vibration caractéristiques : $\lambda_1 = 372$ nm (I_1) et $\lambda_3 = 383$ nm (I_3) ; la valeur du rapport I_1/I_3 est une indication de la polarité. A cette concentration de pyrène, l'excimère n'est pas observé.

Avec le rotor DMAC ($3,3 \cdot 10^{-6}$ M dans la solution finale), la longueur d'onde d'excitation à 511 nm (largeur de fente = 1,5 mm, soit $\Delta\lambda_{1/2} = 5,64$ nm) entraîne la présence d'une seule bande de fluorescence, qui est enregistrée dans la zone de longueurs d'onde allant de 500 à 600 nm (4). La longueur d'onde d'émission de fluorescence à son maximum est une indication de la polarité de l'environnement du traceur alors que la valeur du rendement quantique de fluorescence est une indication de la cohésion locale.

Caractérisation des copolymères

Les compositions des copolymères sont déterminées par RMN ^{13}C (appareil Bruker AC-200P) en utilisant le CDCl_3 comme solvant.

III. RESULTATS ET DISCUSSION

III.1. Composition des copolymères C16Vim/NVP

Les spectres RMN ^{13}C des copolymères présentent un pic à 176 ppm caractéristique du groupe carbonyle du motif NVP. L'aire du pic de résonance (notée $A_{\text{C=O}}$) est comparée à l'aire totale des pics (A_t) correspondant aux atomes de carbone aliphatiques des 2 motifs. FA et 1 - FA désignent respectivement les fractions molaires des motifs C16Vim et NVP. FA est calculé à partir des valeurs $A_{\text{C=O}}$ et A_t en accord avec l'équation suivante :

$$\frac{A_t}{A_{\text{C=O}}} = \frac{5(1-\text{FA}) + 18\text{FA}}{1-\text{FA}}$$

III.2. Etude de la polarité avec le pyrène comme traceur fluorescent

La figure 1 montre pour le pyrène les variations du rapport I_1/I_3 en fonction de la concentration pour les différents copolymères. La décroissance de I_1/I_3 s'étend sur un domaine de concentration de plus d'une unité (échelle logarithmique). I_1/I_3 décroît de la valeur la plus élevée (1,89 dans un mélange 1-propanol/eau, 3/97, v/v ; valeur intégrant la fonction d'appareil) avec une augmentation de la concentration pour atteindre un plateau. La valeur plateau, qui caractérise la polarité au voisinage du traceur (microdomaine hydrophobe), dépend de la composition du copolymère. Cette polarité décroît lorsque FA croît, FA étant égal à la proportion de motifs imidazolium (C16Vim) dans le copolymère. La plus faible valeur du rapport I_1/I_3 est observée pour l'homopolymère (FA = 1) contenant uniquement des motifs imidazolium. Pour chaque courbe, il est possible de déterminer la concentration C_m , qui correspond au début de la formation des microdomaines hydrophobes détecté par le traceur. Comme prévu, il n'y a pas de variation du rapport I_1/I_3 pour la poly(1-vinyl-2-pyrrolidinone) (FA = 0).

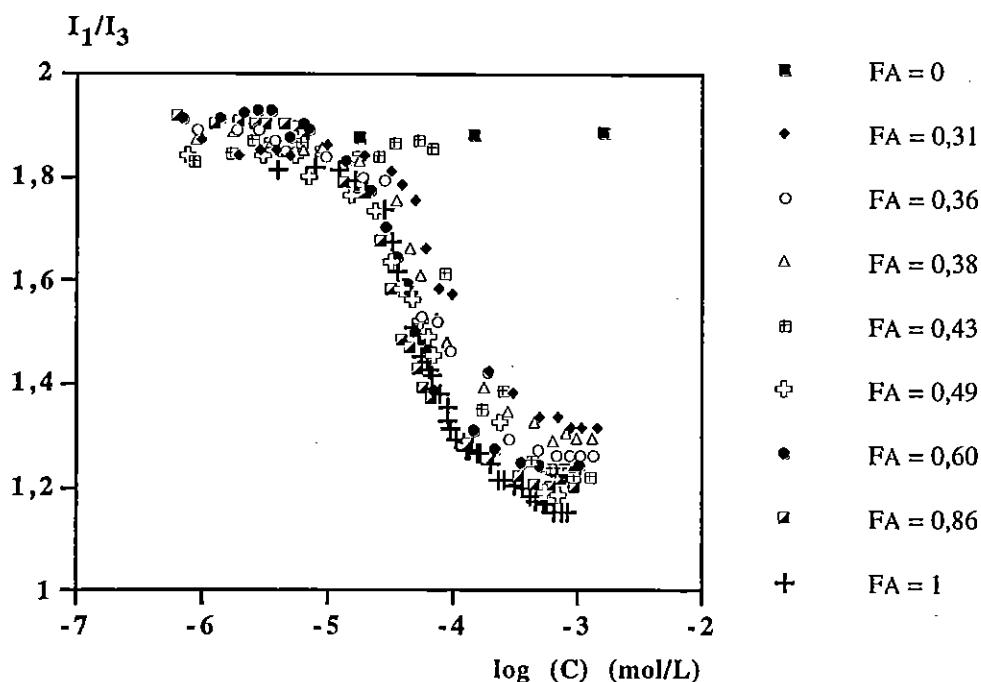


Figure 1 : Variation du rapport I_1/I_3 pour le pyrène en fonction de la concentration des copolymères.

Il est également intéressant de déterminer la constante d'association K du traceur pyrène pour les microdomaines (5), cette valeur donne une première indication sur la capacité des microdomaines à incorporer des composés hydrophobes. La constante d'association K croît avec la proportion de motifs C16Vim dans le copolymère et le tracé de la figure 2, K versus FA, montre une variation linéaire : $K = 64000 \text{ FA}$ ($r^2 = 0,93$).

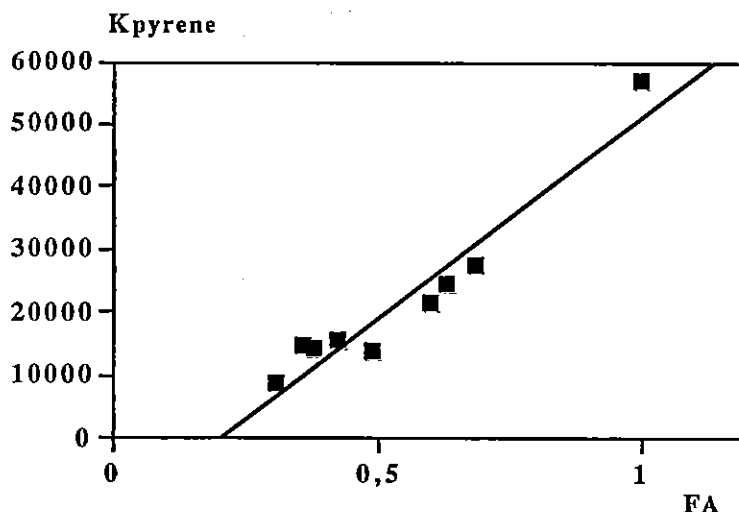


Figure 2 : Variation de la constante K en fonction de la fraction molaire FA.

III.3. Etude de la polarité avec le rotor DMAC comme traceur fluorescent

La figure 3 met en évidence, pour le rotor DMAC, le déplacement hypsochromique de la longueur d'onde de fluorescence à son maximum d'émission en fonction de la concentration pour les différents copolymères. $\bar{\nu}$ croît d'environ 16970 cm^{-1} (valeur dans la solution 1-propanol/eau, 3/97, v/v) vers un plateau final, dont la valeur dépend du nombre de motifs C16Vim (donné par FA). Comme prévu, $\bar{\nu}$ (valeur plateau) croît avec FA et la plus grande déviation est observée pour l'homopolymère (FA = 1), alors qu'aucune variation n'est observée pour la poly(1-vinyl-2-pyrrolidinone) (FA = 0).

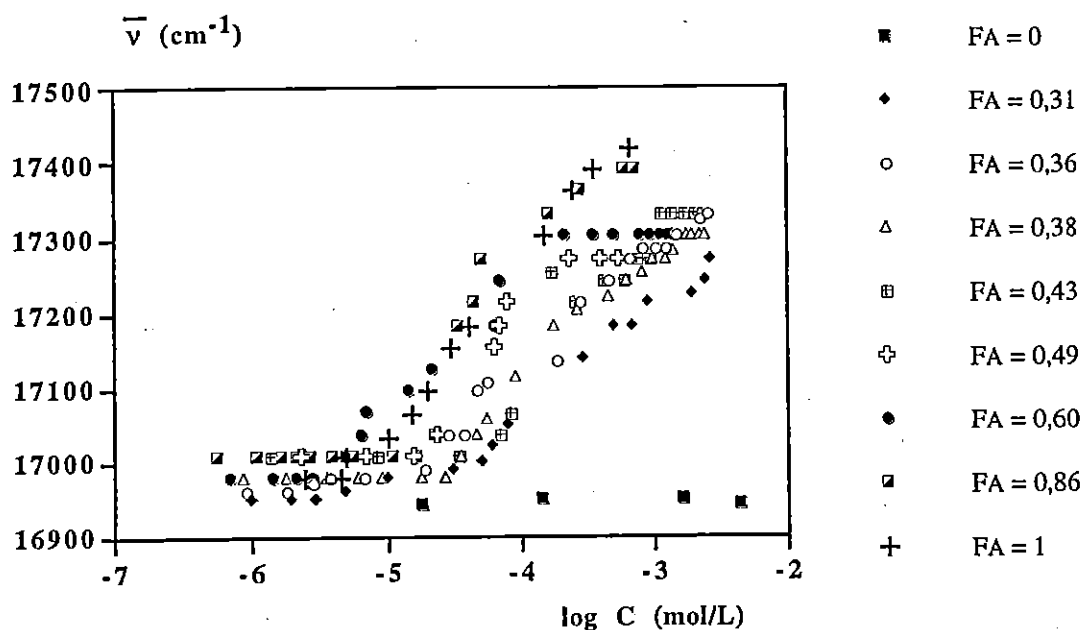


Figure 3 : Variation de la longueur d'onde d'émission de fluorescence à son maximum pour le rotor DMAC (exprimée en nombre d'onde) en fonction de la concentration des copolymères.

III.4. Étude de la cohésion avec le rotor DMAC comme traceur fluorescent

Le rapport Φ_f/Φ_{f_0} (où Φ_f et Φ_{f_0} représentent respectivement les rendements quantiques de fluorescence avec et sans polymère) renseigne sur la cohésion locale. Généralement, l'augmentation de la viscosité locale entraîne une diminution du volume libre avec une restriction de la libre rotation du rotor moléculaire, qui se traduit par une diminution des processus non radiatifs au profit des processus radiatifs.

La figure 4, qui traduit la variation du rapport Φ_f/Φ_{f_0} en fonction de la concentration des copolymères, montre que pour tous les copolymères et l'homopolymère (FA = 1), le rendement quantique de fluorescence augmente fortement à partir d'une concentration C_m pour atteindre une valeur plateau (pas de variation pour la poly(1-vinyl-2-pyrrolidinone), FA = 0).

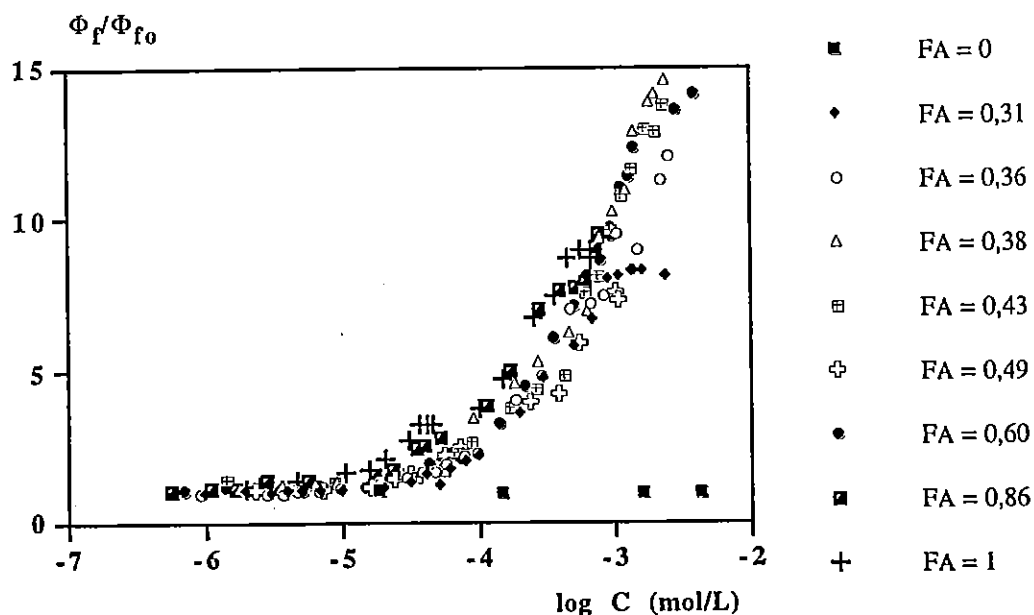


Figure 4 : Variation du rapport Φ_f/Φ_{f_0} pour le rotor DMAC en fonction de la concentration des copolymères.

III.5. Corrélation entre la structure moléculaire et la microcohésion des copolymères

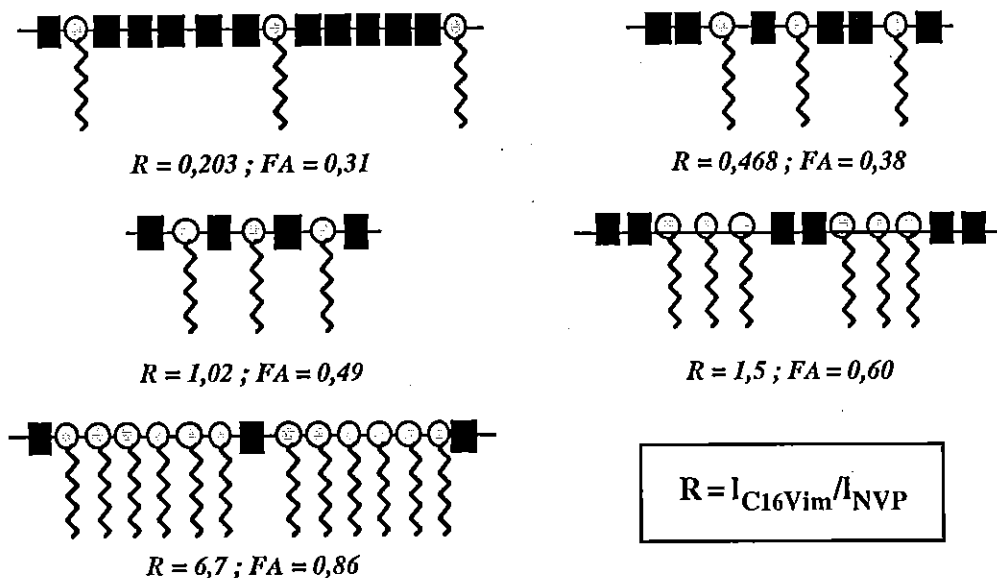
La probabilité de trouver des séquences particulières (*i.e.* triades) à faible taux de conversion (< 10%) donne des indications sur les arrangements respectifs des entités C16Vim et NVP dans la chaîne principale de la macromolécule. Cependant, une meilleure image de la séquence de distribution est donnée par la longueur moyenne de C16Vim et NVP respectivement (modèle à effet terminal) (6) :

$$l_{\text{C16Vim}} = 1 + r_{\text{C16Vim}} x \quad \text{et} \quad l_{\text{NVP}} = 1 + (r_{\text{C16Vim}} / x)$$

$$\text{avec } r_{\text{C16Vim}} = 0,5 \quad \text{et} \quad x = \frac{f_{\text{C16Vim}}}{1 - f_{\text{C16Vim}}}$$

où f_{C16Vim} représente la fraction molaire en C16Vim dans le milieu réactionnel.

En prenant la valeur de : $R = l_{\text{C16Vim}} / l_{\text{NVP}}$, il est possible de représenter schématiquement la chaîne principale des différents copolymères.



A faible taux de motifs C16Vim ($FA = 0,31$), la structure la plus plausible pour le copolymère correspond à une séquence contenant 5 NVP par unité C16Vim ; pour ce copolymère, la faible microcohésion de l'environnement du traceur définie par le rapport Φ_r / Φ_{f_0} traduit le fait que la macromolécule ne peut pas adopter une structure très organisée (figure 5).

Au contraire quand $R = l_{\text{C16Vim}} / l_{\text{NVP}}$ augmente et devient proche de 1 (pour par exemple $FA = 0,5$), des diades C16Vim-NVP deviennent nettement prépondérantes (ce résultat est en accord avec la tendance d'alternance prédite pour les faibles taux de conversion) ; ce qui conduit à une plus forte cohésion pour les microdomaines formés (figure 5).

Quand la séquence en motifs C16Vim augmente encore ($R = 6,7$), le rapport Φ_r / Φ_{f_0} décroît, traduisant une moindre compacité pour les microdomaines formés en accord avec de précédentes observations. En effet, une proportion élevée de longues chaînes alkyles accolées les unes aux autres est en défaveur d'un arrangement très compact pour les microdomaines formés.

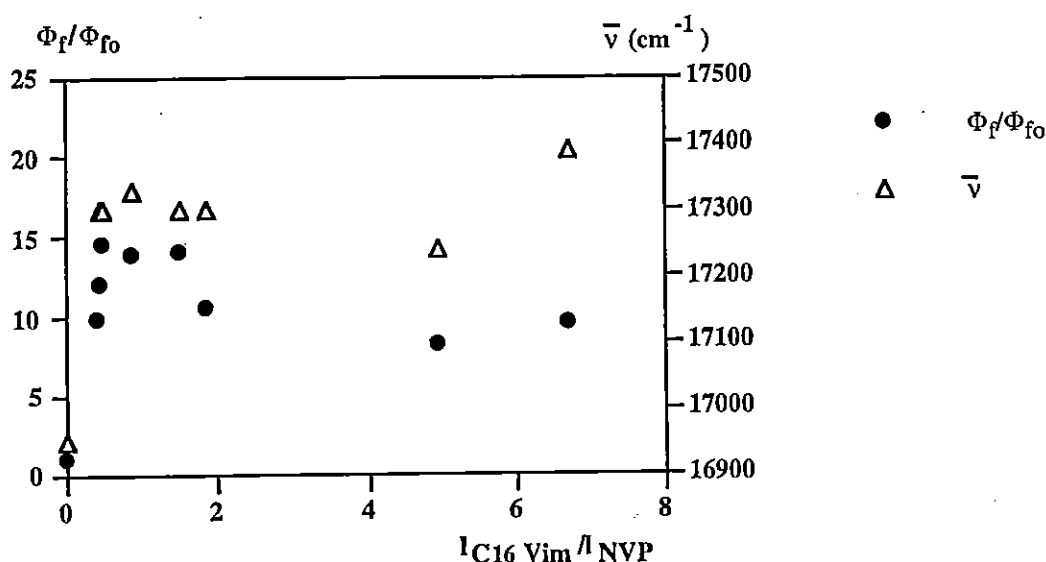


Figure 5 : Variations du rapport Φ_f/Φ_{fo} et de $\bar{\nu}$ (valeurs plateau) pour le rotor DMAC en fonction du paramètre I_{C16Vim}/I_{NVP} .

Effectivement, le profil de la courbe Φ_f/Φ_{fo} versus I_{C16Vim}/I_{NVP} est identique à celui observé pour les variations de Φ_f/Φ_{fo} versus \bar{L} , où \bar{L} est un paramètre caractérisant l'hydrophobie de copolymères de bromures de poly(méthylvinylpyridinium-co-hexadécylvinylpyridinium) (7). Pour ce dernier exemple, des études par cryo-MET ont mis en évidence une structure en collier de perles pour le copolymère qui présente le maximum de compacité révélé par fluorescence (copolymère contenant environ 70% de motifs hydrophiles).

IV. CONCLUSION

Les observations de cette étude renforcent les potentialités des rotors moléculaires fluorescents comme traceurs pour d'une part caractériser les microdomaines hydrophobes formés par une série de copolymères en solution aqueuse et d'autre part relier les propriétés d'association à leur structure chimique. Les informations concernent non seulement les aspects polarité de l'environnement local du traceur, mais également l'aspect viscosité locale indicatif de la cohésion du polymère. Dans le cas étudié, les structures les plus compactes correspondent à des copolymères présentant une forte tendance à l'alternance des motifs le long de la chaîne macromoléculaire.

REFERENCES

- (1) Anton P., Köberle P., Laschewsky A., Recent developments in the field of micellar polymers, *Makromol. Chem.*, 194, 1-27 (1993)
- (2) Benjelloun A., Brembilla A., Lochon P., Adibnejad M., Viriot M.L., Carré M.C., Detection of hydrophobic microdomains in aqueous solutions of amphiphilic polymers using fluorescent molecular rotors, *Polymer*, 37, 879-883 (1996)
- (3) Benjelloun A., Damas C., Brembilla A., Lochon P., N-alkyl-3-vinylpyridinium salts : homopolymerization of the hexadecyl derivative and behaviour study of the polymer in aqueous media, *Polym. Bull.*, 33, 513-520 (1994)
- (4) Damas C., Adibnejad M., Benjelloun A., Brembilla A., Carré M.C., Viriot M.L., Lochon P., Fluorescent probes for detection of amphiphilic polymer hydrophobic microdomains : a comparative study between pyrene and molecular rotors, *Colloid. Polym. Sci.*, 275, 364-371 (1997)
- (5) Binana-Limbelé W., Zana R., Fluorescence probing of microdomains in aqueous solutions of polysoaps.2 : study of the size of the microdomains, *Macromolecules*, 23, 2731-2739 (1990)
- (6) Damas C., Baggio S., Brembilla A., Lochon P., Microstructure study of new amphiphilic copolymers from N-alkyl-1-vinylimidazolium salts, *Eur. Polym. J.*, 33, 1219-1224 (1997)
- (7) Benjelloun A., Dorion C., Brembilla A., Viriot M.L., Adrian M., Amphiphilic copolymers in aqueous medium : characterization of the hydrophobic microdomains, *Macromol. Symp.*, 127, 165-171 (1998)

TECHNIQUE DE FLUORESCENCE APPLIQUEE A LA CARACTERISATION DES MECANISMES DE TRANSFERTS HYDRIQUES DANS UN MILIEU POREUX TRIPHASIQUE : DETERMINATION D'UNE PALETTE COLORIMETRIQUE POUR L'ESTIMATION DES GRADIENTS DE SATURATION

F. GANDOLA, N.E. ABRIAK

<> Ecole des Mines - BP 838 - 941, rue Ch. Bourseul
59508 DOUAI Cedex

R. HAVERKAMP, J. TOUMA

<> LETHE - INPG
BP 53 - 38041 GRENOBLE Cedex

Résumé

La méthode présentée ici repose sur la visualisation des phénomènes d'infiltration dans un milieu poreux par technique de fluorescence en mode de représentation « vraie » couleur. On montre que l'utilisation d'une solution à base de fluorescéine, avec des conditions d'éclairage et de prise d'images appropriées, permet d'établir une forte corrélation entre couleur et degré de saturation. Conjointement, une technique de segmentation des images basée sur la réduction du nombre de couleurs représentatives du phénomène étudié est proposée pour la quantification des gradients de saturation au sein de la zone infiltrée.

I. POSITION DU PROBLEME

La technique de visualisation dans un plan vertical des phénomènes de transfert d'eau dans un milieu poreux non saturé reposant sur l'utilisation simultanée d'une solution de fluorescéine et de filtres (bleus au niveau de l'éclairage et orange au niveau de la prise d'images), a permis de mettre au point une technique d'analyse d'image basée sur la binarisation de cette dernière et ainsi, d'accéder à une caractérisation géométrique globale de la zone infiltrée (1). Néanmoins, le calcul des volumes infiltrés, effectué à partir de la tâche visualisée supposée totalement saturée et en appliquant le théorème de Guldin afin d'assurer le passage 2D - 3D, conduit dans toutes les configurations d'anneaux étudiés, à une surestimation importante de ce dernier par rapport au volume mesuré réellement injecté. L'existence de gradients de saturation non visible dans ces conditions d'expérimentation, doit alors être pris en compte dans l'analyse des essais.

L'imagerie en couleur, connaît depuis peu un essor considérable dans des domaines de recherches et d'applications très variés tels que la biologie, la biotechnologie, la cartographie, la radiographie à usage médicale ou bien encore le suivi du contrôle de qualité en industrie ((2), (3)). L'accroissement des capacités de stockage des ordinateurs et l'amélioration de ces derniers en terme de vitesse de calcul, permet désormais de développer des algorithmes de traitements numériques des images très complexes et adaptés à chaque application. Cette diversité d'utilisation a également contribué à la multiplication et la vulgarisation de logiciels (Paint Shop Pro, PhotoShop) permettant d'appliquer des traitements d'image "standards" (opérateur de contraste et de luminosité, diminution du nombre de couleurs, utilisation de filtres divers...) Cependant, la grande quantité d'information contenue dans une image impose à

l'expérimentateur de déterminer lui même et avant tout traitement, l'ensemble des attributs de l'image.

On s'attache ici à décrire la technique de prise d'image ainsi que les conditions d'éclairage utilisées pour la caractérisation en mode « vraie couleur » des phénomènes d'infiltration. Après avoir mis en évidence la relation entre couleur et degré de saturation, on propose une technique de segmentation couleur adaptée au dépouillement des essais d'infiltration.

II METHODOLOGIE EXPERIMENTALE

La méthodologie proposée consiste à visualiser à travers une paroi transparente, l'infiltration d'une solution colorée (eau + fluorescéine de sodium dosée à 0,5g/l) dans un sable initialement humidifié, le plan de visualisation étant éclairée au moyen de deux sources lumineuses (2x800W) munies de filtres bleus (LEE Filter « just blue »).

Le système d'acquisition et de traitement des données comprend un caméscope CANON EX-1 CCD, dont la vitesse d'obturation et l'ouverture du diaphragme sont fixées, un ordinateur (Pentium 100mhz) muni d'une carte d'acquisition couleur SMCAM II et du logiciel associé pour la digitalisation des images. Les images enregistrées sur bandes Hi 8 (séparation du signal vidéo en luminance (Y) et chrominance (R-Y, B-Y)), sont numérisées avec une résolution en couleurs de 24 bits (16,7 millions de couleurs) et avec une résolution de l'image de 736x560 pixels. Les images sont ensuite analysées à partir du logiciel Paint Shop Pro.

III RESULTATS

III.1 Visualisation en mode vraie couleur de l'infiltration

Les conditions initiales de l'essai d'infiltration sont reportés dans le tableau 1. Les clichés en mode de résolution 24 bits (clichés a, b et c de la figure 1) sont obtenus à des instants successifs de la phase d'infiltration. La technique de visualisation et de prise d'image proposée permet de distinguer en fonction de la teinte et au sein même du bulbe infiltré, des zones colorées allant du jaune vert sous l'anneau d'alimentation, au bleu pâle à proximité du front, en passant par un dégradé de teintes entre les deux. En revanche, le passage en échelle de gris (figure 1, image d) engendre une perte d'information conséquente.

Porosité moyenne ϵ	Teneur en eau initiale moyenne θ_i (cm ³ /cm ³)	Rayon de l'anneau r (mm)	Charge appliquée dans l'anneau Ho(mm)
0,45	4	48	12

Tableau 1. Conditions initiales d'expérimentation

III.2 Etalonnage « couleur / degré de saturation »

Afin de relier le degré de saturation à la couleur, le sable est mélangé à la solution contenant la fluorescéine suivant des proportions permettant de couvrir une plage de teneurs en fluides allant de quelques pourcents à la saturation. Le mélange est ensue

disposé dans un petit récipient (6×6×4[cm]) en plexiglas, l'ensemble étant placé sur table vibrante pendant la phase de remplissage (1) afin d'avoir pour chaque teneur en fluide, une densité proche de la densité moyenne obtenu dans le grand bac d'infiltration. L'ensemble est ensuite filmé en gardant les mêmes conditions d'éclairage (filtre bleu) et de réglages de caméra (distance, ouverture de diaphragme, vitesse d'obturation, focale) que celles utilisées lors des essais d'infiltration.

Le tableau 2 présente les différentes valeurs de teneurs en fluide volumique θ (= Volume de fluide/ Volume total), porosités ε (= Volume des vides / Volume total) et degré de saturation S_r ($= \theta/\varepsilon$). La première ligne du tableau correspond à la valeur de teneur en eau initiale du grand bac. On peut noter une bonne homogénéité dans les valeurs de porosités obtenues, excepté aux plus fortes teneurs en fluide. Néanmoins l'écart maximal existant par rapport à la porosité moyenne $\varepsilon = 0,45$ du grand bac (déterminée par prélèvement d'échantillon) est inférieur à 10%. La figure 2a donne une représentation de la règle d'étalonnage ainsi obtenue en mode de résolution 24 bits. La première teinte violette correspond à la couleur du sable humidifié à l'eau pure à $\theta = 4$ (teneur en eau initiale du sable dans le bac d'infiltration); c'est à dire sans ajout de colorant. La notation « $S_r = 0^*$ » traduit en fait l'absence de fluorescéine. Cette règle d'étalonnage donne un spectre de couleurs identique à celui observé lors de l'essai d'infiltration, allant du violet au bleu pâle pour les faibles degrés de saturation, au jaune-vert pour des degrés de saturation élevés. A première vue, il est donc possible de distinguer 3 à 4 couleurs dominantes. En revanche, le passage en échelle de gris (figure 2b) montre un chevauchement de certains niveaux et confirme donc la perte de contraste observée sur le cliché d de la figure 1.

N°	θ (cm ³ /cm ³)	ε (%)	S_r (%)
eau pure(*)			
1	4	45	10
eau + fluo.			
2	4	45	10
3	8	47	18
4	13	46	28
5	17	46	38
6	22	45	50
7	26	45	58
8	33	41	80
9	37	42	90

Tableau 2. Teneurs en fluide volumique, porosités et degré de saturation

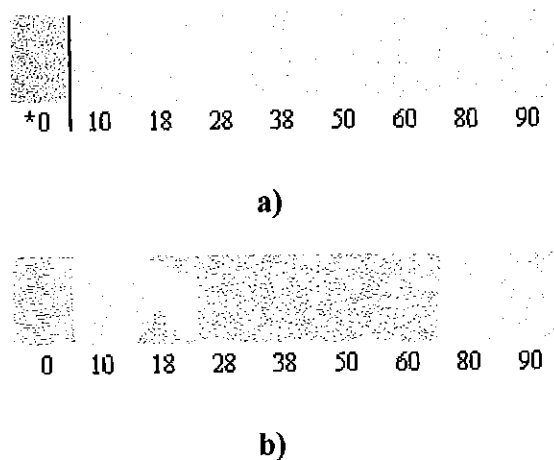


Figure 2. Evolution des teintes (a) et des niveaux de gris (b) en fonctions du degré de saturation S_r .

III. 3 Détermination d'une palette colorimétrique

Si la relation « couleur - degré de saturation » est clairement mise en évidence en mode de résolution 24 bits, il semble cependant plus approprié aux vues de la règle d'étalonnage, de définir des tranches de saturation plutôt que de faire correspondre à une teinte, une valeur de S_r . Par ailleurs, bien que le spectre de couleurs soit relativement

limité, les nuances (dégradés) au sein d'une teinte sont en revanche très riches. La procédure de traitement réalisée à partir du logiciel Paint Shop Pro consiste en fait à réduire le nombre de couleurs de l'image en définissant une palette colorimétrique de référence limitée à quelques couleurs dominantes.

Ayant accès aux valeurs (0-255) de rouge R de vert V et de bleu B de chaque pixel de l'image, la palette est définie en prenant les valeurs exactes R, V et B de chacune des couleurs utilisées dans la procédure de segmentation. La procédure de chargement de la palette s'effectue par un passage de l'image en mode de résolution 4 bits (16 couleurs). Pour un nombre de couleurs de la palette inférieur à 16, le programme prend par défaut le blanc ($R = V = B = 255$) pour les autres couleurs non sélectionnées. L'algorithme de traitement effectue le test suivant : si l'une des couleurs de l'image originale ne figure pas dans la palette, le programme la remplace par la couleur la plus proche.

Appliqué à la règle d'étalonnage, cette procédure de segmentation permet d'attribuer à une couleur un intervalle de saturation. Cependant, lorsque deux couleurs sont présentes pour une même valeur du degré de saturation, la couleur considérée comme représentative de la tranche est celle recouvrant le plus de pixels. Par ailleurs, le degré de saturation S_r équivalent à la transition de deux couleurs est calculé en faisant la moyenne des S_r des deux couleurs frontalières. La palette colorimétrique qui a été choisie comprend 4 couleurs et par conséquent, définit 4 tranches de saturations distinctes (100-70%, 70-30%, 33-14% et 14-0%).

Appliqué au dépouillement de l'essai d'infiltration, elle permet de quantifier et de suivre l'état de saturation du bulbe tout au long de l'essai (images a, b, c de la figure 3). Enfin, en dernière étape de traitement, il est possible d'améliorer le contraste de l'image par un choix judicieux de couleurs. La palette de couleurs synthétiques (image d figure ***) attribue les teintes chaudes (rouge) au degrés de saturation élevés et les teintes froides (vert, bleu,) au degré plus faibles.

IV CONCLUSIONS

La multiplication des cartes d'acquisition, la vulgarisation des logiciels de traitement d'images et l'accroissement des capacités de stockage des ordinateurs ouvrent désormais de nouveaux horizons dans la recherche et plus spécifiquement dans l'utilisation des techniques visuelles. Dans l'application présentée ici, l'analyse des images en mode vraies couleurs donne accès à des informations (gradient de saturation) qu'il était jusqu'alors, impossible de quantifier soit par niveaux de gris soit par le biais d'autres techniques de mesures (sondes neutroniques, TDR ou capacitive) à cette échelle d'étude.

REFERENCES

- (1) Gandola F., Abriak N. E., Haverkamp R. et Touma J., 1998 - Traceur fluorescent appliquée à la caractérisation d'une infiltration multidirectionnelle dans un milieu poreux : mise au point d'une technique de visualisation et de traitement des images. *Récents Progrès en Génie des Procédés. Visualisation des écoulements des transferts et des structures. Nancy. Novembre 1998.*
- (2) Vivier H., Vanhoutte B. et Pons M. N., 1993 - Analyse d'images en couleur : application au génie biotechnologique. *Récents Progrès en Génie des Procédés. Visualisation des écoulements des transferts et des structures, Nancy 1993. Vol. 7, 121-128.*

(3) Bensabbah, 1992 - Développement d'une palette tridimensionnelle en vue de l'optimisation optimale des représentations colorimétriques : Exemple d'applications industrielles et médicales. *Thèse, Université de Nancy 1.*

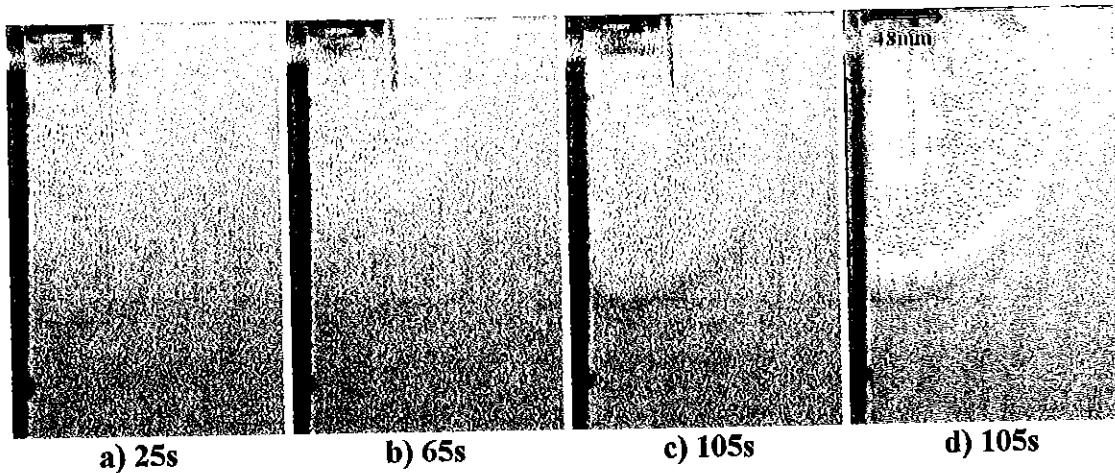


Figure 1. Visualisation des images prises à des instants successifs d'une infiltration réalisée en condition d'axisymétrie à partir d'un quart d'anneau.

a, b, c : représentation en mode vraies couleurs (16,7millions)

d : représentation en échelle de gris du cliché « c » (0-255)

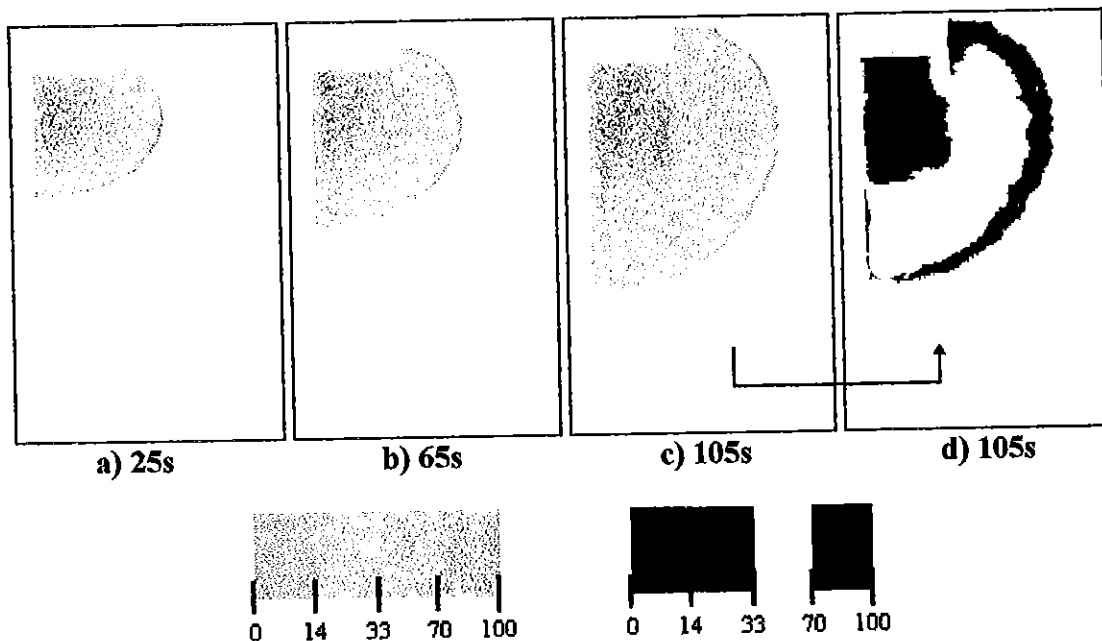


Figure 3. a, b, c : représentation des tranches de saturation après segmentation des images couleur. Mode de résolution 4 bits. Vraies couleurs.

d : amélioration du contraste à l'aide d'une palette colorimétrique synthétique.

TRACEUR FLUORESCENT APPLIQUE A LA CARACTERISATION D'UNE INFILTRATION MULTIDIRECTIONNELLE DANS UN MILIEU POREUX : MISE AU POINT D'UNE TECHNIQUE DE VISUALISATION ET DE TRAITEMENT DES IMAGES

F. GANDOLA, N.E. ABRIAK

<>

Ecole des Mines
BP 838 - 941, rue Ch. Bourseul
59508 DOUAI Cedex

R. HAVERKAMP, J. TOUMA

<>

LETHE - INPG
BP 53 - 38041 GRENOBLE Cedex

Résumé

Cette étude présente une méthode expérimentale, non destructive, développée en laboratoire, pour la caractérisation d'une infiltration réalisée en condition d'axisymétrie dans un milieu poreux non saturé. Nous montrons que cette méthode, basée sur la visualisation des phénomènes par fluorescence, permet de distinguer très nettement la zone infiltrée et de suivre avec une grande précision l'évolution du front d'humectation au cours de la phase d'infiltration. Conjointement, une technique de traitement des images basée sur l'analyse morphologique binaire est proposée pour la détermination des paramètres de l'écoulement.

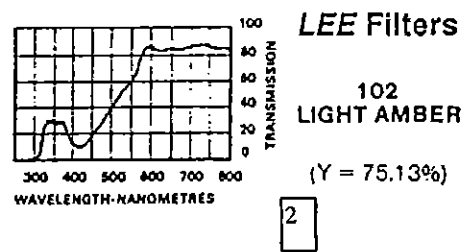
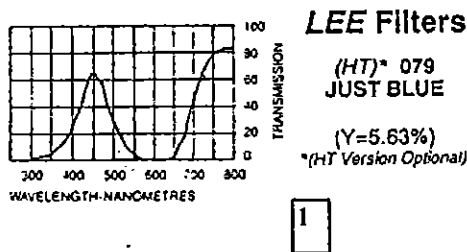
I. POSITION DU PROBLEME

La caractérisation hydrodynamique de la zone non saturée du sol est devenue une priorité majeure dans la recherche de solutions concernant des problèmes divers tels que la gestion des eaux, l'évaluation et le contrôle de la pollution d'origine agricole ou industrielle, le dimensionnement des sites de stockage de déchets divers... Si, les nouvelles techniques d'infiltrométrie de terrain telles que les infiltromètres à disques (1) et le perméamètre de Guelph (2) sont désormais très utilisés en raison de la facilité de mise en oeuvre et de la rapidité d'obtention des mesures, elles nécessitent cependant la prise en compte du caractère multidirectionnel de l'écoulement (relatif à ces appareils) dans le dépouillement des mesures. Or, l'étude des phénomènes d'infiltration multidirectionnelle reste difficile à aborder avec les moyens classiques dont on dispose actuellement (sondes T.D.R. ou neutroniques pour la mesure de la teneur en eau, combinées avec des tensiomètres pour la mesure de la succion). Outre la lourdeur de cet équipement en sondes, la présence de ces dernières dans un volume restreint pourrait perturber significativement l'écoulement.

L'approche expérimentale en laboratoire proposée repose sur la visualisation des phénomènes d'infiltration par fluorescence (3). On présente ici la procédure expérimentale suivie, la technique de traitement et d'analyse d'images associée et les principaux résultats obtenus.

II MATÉRIELS ET MÉTHODE

Travaillant en condition d'axisymétrie, l'infiltration est réalisée à partir d'un quart d'anneau collé à l'un des angles d'un bac en Plexiglas de dimensions 25-30-30 [cm]. Le sable initialement humidifié, est mélangé au moyen d'un malaxeur à train valseur, puis déposé par couches successives dans le bac placé sur table vibrante. Ce protocole expérimental déjà testé (4) assure entre autre une bonne homogénéité de remplissage par couche, condition nécessaire pour se placer en condition d'axisymétrie. L'écoulement est marqué à l'aide de fluorescéine de sodium dissoute dans l'eau (0,5g/l). Sachant que ce colorant possède un pic d'absorption maximale à la longueur d'onde $\lambda = 490\text{nm}$ et un pic d'émission à $\lambda = 515\text{nm}$ pour un $\text{pH} = 7$, un filtre bleu (079 just blue -Lee filter- (figure 1)) est utilisé en condition d'éclairage et un filtre orange (102 light Amber -Lee filter- (figure 2)) pour la prise d'image, ce dernier assurant un contraste très marqué en niveau de gris (0-255) entre zone infiltrée et zone non infiltrée.



Figures 1 et 2. Spectres de transmission des filtres bleus et orange utilisés

L'infiltromètre développé pour cette étude est constitué d'un système de vase de Mariotte et d'un vase communiquant (figure 3). Ce dispositif garantit simultanément le maintien d'une charge H_0 constante et faiblement positive dans l'anneau.

La phase d'infiltration est filmée à l'aide d'une caméra CANON X07 CCD. Les images sont ensuite numérisées à partir de la carte d'acquisition vidéo et du logiciel associé SMCAM II, puis traitées à partir du système de traitement et d'analyse d'image PC Scope sous Windows. Le dispositif expérimental général est représenté figure 4.

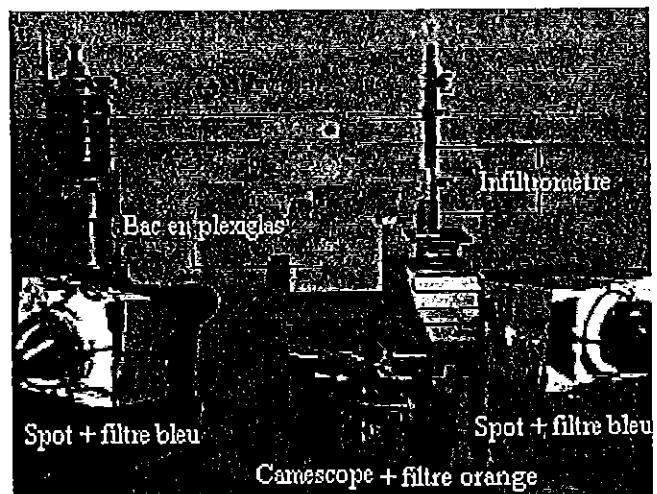
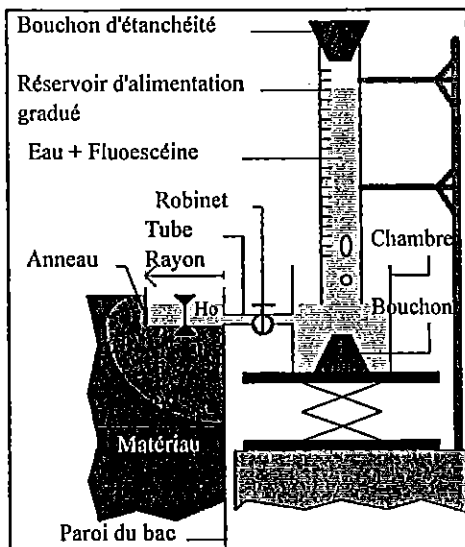


Figure 3. Technique d'infiltrométrie Figure 4. Dispositif expérimental général

L'analyse des images proposée est basée sur la morphologie mathématique binaire (5) : pour un contraste suffisamment marqué entre la zone d'intérêt et le fond de l'image, l'histogramme qui lui est associé permet de définir une valeur de seuil ($0 < \text{seuil} < 255$) pour la binarisation de l'image (Blanc (255) pour l'objet et noir (0) pour le fond). La génération de contour est obtenue par une opération d'ouverture (addition et soustraction au sens de Minkowski), suivie d'une opération d'amincissement avec un élément structurant défini par un voisinage 3×3 . Les différents calculs mis en oeuvre dans l'analyse des essais sont réalisés par rapport aux points du contour. La figure 5 donne une représentation des étapes de traitement effectuées sur une image relative à un essai d'infiltration réalisé dans un bac de dimensions restreintes (6-8-12 [cm]).

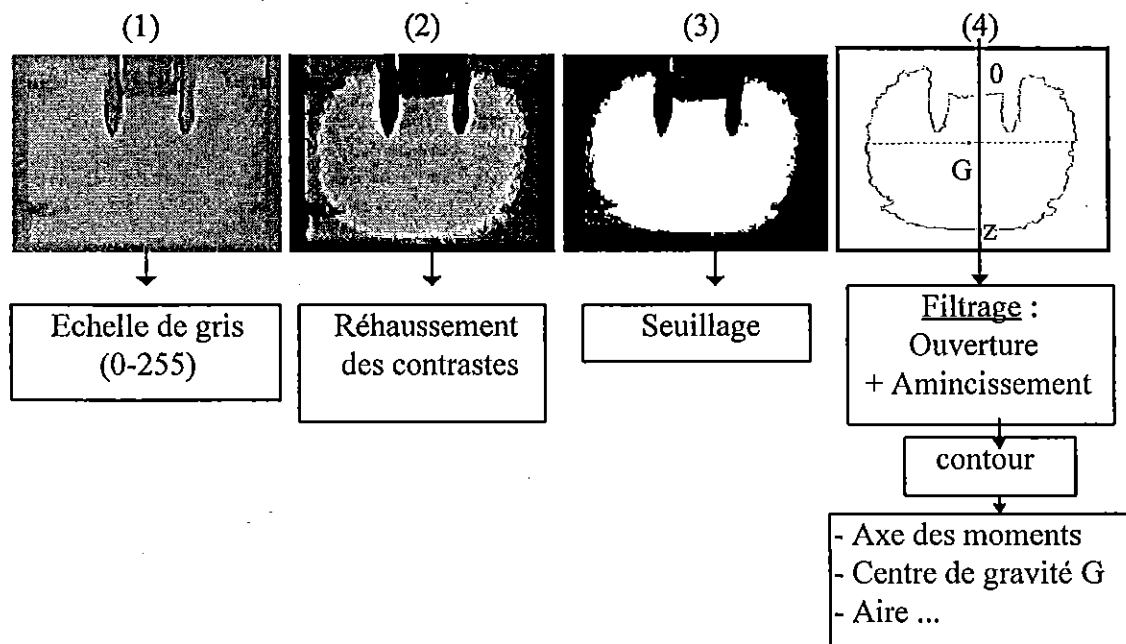


Figure 5. Étapes de traitement

Le calcul des volumes infiltrés à partir de la tâche visualisée repose sur l'application du théorème de Guldin qui établit, pour un corps possédant un axe de révolution, une relation entre son volume V et la demie-surface A définie par l'intersection de ce volume avec un des plans passant par l'axe de révolution. Pour une infiltration réalisée à partir d'un quart d'anneau, la relation s'écrit :

$$V't = \frac{1}{2} \pi X_G A \quad (1)$$

où $V't$ représente le volume total de la zone infiltrée à un instant donné ;
 A , la surface de la tâche visualisée ;
 et X_G , la distance entre l'axe de révolution et le centre de gravité G' de l'aire A .

Si la teneur en eau volumique initiale θ_i et la porosité ε sont supposées uniformes dans le bac, le degré de saturation global du domaine infiltré à un instant donné est égale à :

$$Sr = \frac{1}{\varepsilon} \left(\theta_i + \frac{V_{fl}}{V'_t} \right) = \frac{1}{\varepsilon} \left(\theta_i + 2 \frac{V_{fl}}{\pi X_G A} \right) \quad (2)$$

III RESULTATS ET DISCUSSION

Trois essais d'infiltration réalisés dans un même sable sont ici présentés figure 6, les conditions initiales d'humidification et de charge appliquée en surface étant voisines. En revanche, les dimensions de l'anneau diffèrent. Les images a, b, c obtenues pour chaque configuration d'anneau (rayon R = 18, 30 et 48 [mm]), ont été prises à des instants successifs de la phase d'infiltration et n'ont subi qu'un rehaussement de contraste. Il est à noter que l'utilisation simultanée de fluorescéine dans la solution injectée et de filtres au niveau de l'éclairage et de la prise d'image, permet de distinguer nettement la zone infiltrée, sans traitement préalable des images. D'autre part, d'un point de vue qualitatif, on peut déjà remarquer que la diffusion latérale s'avère être très importante dès les premiers instants de la phase d'infiltration et ce, quel que soit la configuration testée.

Par ailleurs, les clichés d montrent que l'analyse morphologique qui a été choisie pour le dépouillement des essais, donne avec une très grande précision la position du front d'humectation visualisé, et permet de suivre à tout instant son évolution durant la phase d'infiltration. Aussi, en superposant ces derniers, il est alors possible de déterminer dans une direction donnée les cinétiques d'avancées du front d'humectation.

Le tableau I présente, pour chaque essai, les valeurs du degré de saturation moyen Sr du bulbe calculé à partir de l'équation 2. Pour les anneaux de rayon R = 18 et R = 30mm, on note une diminution de Sr avec le temps d'infiltration. Pour R = 48mm, Sr diminue également si l'on exclut les premiers instants de l'infiltration. En fin d'alimentation, la valeur de Sr est comprise entre 40 et 65% sur l'ensemble des trois essais. Des coupes réalisées dans le massif en fin d'infiltration lors d'essais préliminaires ont montré que la paroi en Plexiglas n'avait pas d'influence sur l'écoulement et que la diffusion par capillarité au sein du massif s'effectuait de manière homogène (4). L'état de non saturation du bulbe est donc pleinement vérifié.

CONCLUSIONS

D'une manière générale, les principaux avantages de cette méthode de visualisation adaptée à la caractérisation des transferts hydriques en milieu poreux non saturé réside d'une part, dans la non intrusivité mais également dans la possibilité d'automatiser le traitement des images. Plus particulièrement, l'utilisation de la technique de visualisation par fluorescence et la mise au point d'une méthode de dépouillement basée sur l'analyse morphologique binaire ont permis de déterminer un nombre important de paramètres nécessaires à la caractérisation de l'infiltration. Toutefois, certaines améliorations peuvent être envisagées dans la détermination des gradients de saturation non visible en échelle de gris. En effet, si la méthode de traçage par technique de fluorescence permet dans de nombreuses applications d'accéder à la détermination des gradients de concentration de produits fluorescents en milieu transparent par la mesure de l'intensité lumineuse réémise, elle même directement accessible par une analyse de l'image en échelle de gris (0-255), obtenir cette

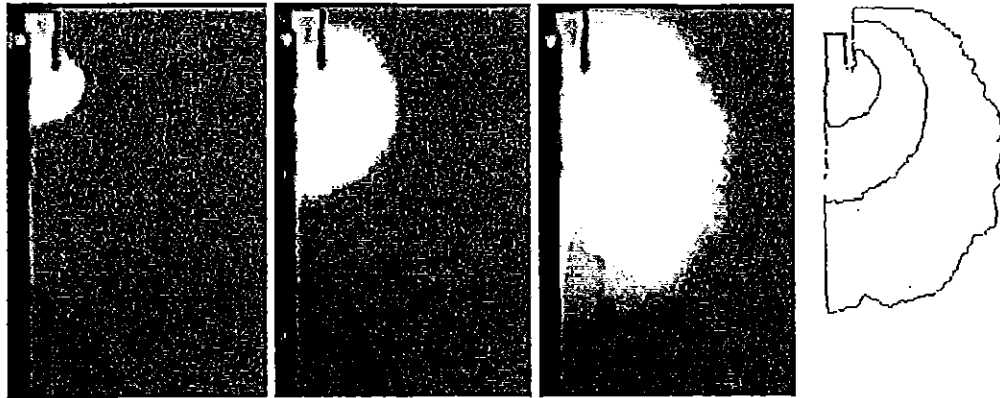
information dans un milieu triphasique (air, eau, sol), s'avère être nettement plus délicat. Ainsi, la variation de l'indice de réfraction, les phénomènes de diffusion importants sont autant de paramètres pouvant engendrer un chevauchement de niveaux de gris correspondant pourtant à des degrés de saturation différents en produits fluorescents (6). Dans ce cas, la couleur devient un complément d'information nécessaire à l'étude des paramètres d'intérêt.

REFERENCES

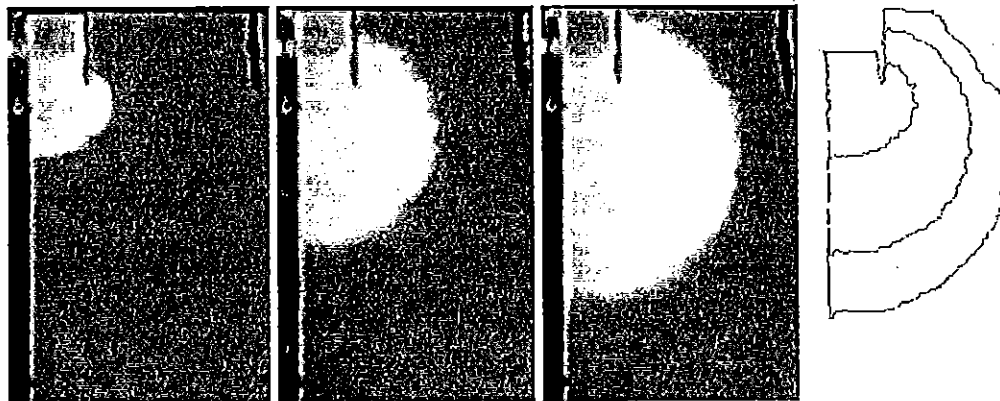
- (1) Perroux K.M. White I. (1988), « *Design for disc permeameters* ». Soil Sci. Soc. Am. J., 52, 1205-1215.
- (2) Elrik D.E. Reynolds W.D. (1992), « *Methods for analysing constant head well permeameter data* ». Soil Sci. Soc. Am. J., 56, 320-323.
- (3) Bouchy M. André J.C. (1992), « *Processus d'interaction photophysique et photochimique. Ch. 2. Techniques d'utilisation des photons. Principes et applications* ». Electra-Dopee, ch. 2.1, 67-95.
- (4) Gandola F. (1998), « *Etude des phénomènes d'infiltration par fluorescence* ». Actes du Concours jeunes chercheurs de l'A.U.G.C., Avril 1998, Reims, 143-150.
- (5) Coster M. Chermant J.L. (1985), « *Précis d'analyse d'image* ». Edition du C.N.R.S., 521p.
- (6) André J. C. Viriot M. L. (1993), « *Photophysique et visualisation en génie des procédés. Visualisation des écoulements des transferts et des structures* ». Nancy 1993. Vol. 7, 61-66.

Essai n°1 R = 18mm			Essai n°2 R = 30mm			Essai n°3 R = 48mm		
Temps (s)	Vf1 (ml)	Sr (%)	Temps (s)	Vf1 (ml)	Sr (%)	Temps (s)	Vf1 (ml)	Sr (%)
15	5	58	15	17	70	15	26	51
45	15	54	25	30	67	25	57	69
105	31	44	45	52	65	45	106	78
225	67	41	65	73	61	65	145	76
465	132	40	105	115	56	105	203	67
629	181	40	185	196	56	123	221	64

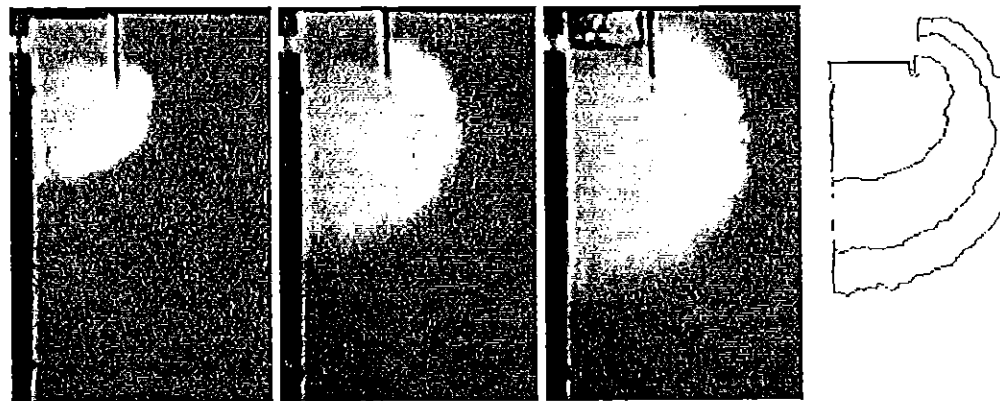
Tableau I. Valeurs des volumes injectés Vf1 en fonction du temps d'infiltration. Estimation des degrés de saturation Sr du bulbe.



a) 15s (5ml) b) 105s (31ml) c) 465s (132ml) d) contours
 Essai n°1 : $R = 18\text{mm}$; $\varepsilon = 0,48$; $\theta_i = 5\%$; $H_o = 21.6\text{mm}$



a) 15s (17ml) b) 105s (115ml) c) 185s (196ml) d) Contours
 Essai n°2 : $R = 30\text{mm}$; $\varepsilon = 0,46$; $\theta_i = 4\%$; $H_o = 26\text{mm}$



a) 25s (57ml) b) 65s (106ml) c) 105s (203ml) d) Contours
 Essai n°3 : $R = 48\text{mm}$; $\varepsilon = 0,46$; $\theta_i = 4\%$; $H_o = 29\text{mm}$

Figure 6. a), b), c) : visualisation de la tâche à des instants successifs de la phase d'infiltration pour chaque configuration testée. d) : représentation du front d'humectation.

VISUALISATION DES ECOULEMENTS DES MATERIAUX GRANULAIRES PAR FLUORESCENCE

S. KHATI	<>	IFORTECH 285, av. du Dr Schweitzer 59500 DOUAI
N.E. ABRIAK	<>	ECOLE DES MINES 941, rue Charles Bourseul 59508 DOUAI CEDEX

Résumé

Dans le cadre de la validation de modèles basés sur un comportement cinématique, nous avons développé la méthode de visualisation par fluorescence. Elle permet le suivi d'une façon continue des lignes matérialisées sur des échantillons de matériaux ensilés soumis à un écoulement gravitaire. L'exploitation des données est effectuée à partir des films vidéo grâce au dispositif de traitement d'image mis en place. Cette méthode permet par la suite de déterminer les différents profils au cours d'écoulement, de la traçabilité et du mode d'écoulement.

I. INTRODUCTION

Le terme milieux granulaires comprend l'ensemble des matériaux formés de particules de formes, de dimensions et de natures différentes, tels que le sable, la farine, le ciment, les céréales et de nombreux autres produits agro-alimentaires, pharmaceutiques ou chimiques. A une autre échelle, les produits plus volumineux tels que les déchets industriels ou les roches présentent un comportement similaire aux matériaux de petite taille. Ils présentent la particularité de faire partie de la vie courante et de se prêter difficilement à l'analyse. Les problèmes rencontrés sont le plus souvent liés à leur manutention et à leur stockage. Leurs propriétés d'écoulement dépendent essentiellement de l'état des contacts entre grains (1, 2), du degré de consolidation, si le matériau peut développer une cohésion mais aussi des conditions d'exploitation (3, 4). La diversité des méthodes et des domaines concernés ne fait que mettre en évidence la complexité d'un tel milieu.

Dans le cadre de la mécanique des milieux continus (figure 1), leur comportement peut être approché en faisant référence aux problèmes de déformation et de rupture des sols (5, 6) ou en l'assimilant à un fluide visqueux (7, 8, 9). D'un autre côté, l'approche cinématique ne considère pas l'état de charge mais simplement des effets purement cinématiques dont le processus peut être probabiliste ou déterministe (10, 11, 12). Notre étude est menée avec l'objectif de vérifier certains hypothèses soutenues par les approches purement cinématiques. La tentative d'utilisation de l'éclairage à « lumière noire » et de la fluorescence répond au besoin d'isoler et de suivre en continue le

mouvement d'un ensemble de particules en ignorant les autres phénomènes auxquels nous sommes habitués.

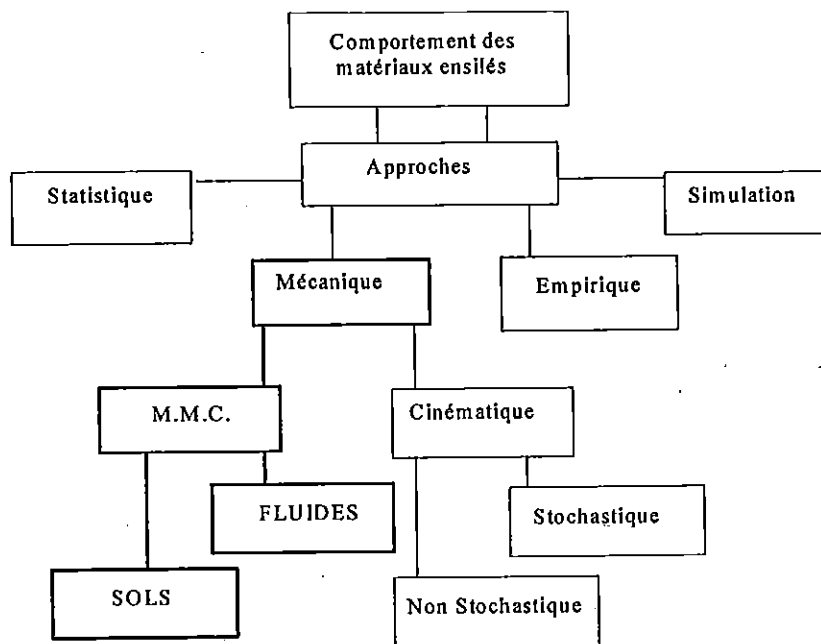


Figure 1 : Les approches pour l'analyse du comportement des matériaux granulaires.

II DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET MODE OPERATOIRE

Les essais d'écoulement sont réalisés sur du matériau 2D de différents diamètres en tiges parallèles en PVC à des élancements supérieurs à 2. Le dispositif utilisé est constitué (i) d'un silo modulaire qui permet de varier la largeur b du silo, l'orifice D de vidange, l'inclinaison α de la trémie par rapport à l'horizontale et la rugosité des parois ϕ_p , (ii) d'une balance pilotée par micro-ordinateur pour la mesure de la masse écoulee en fonction du temps, (iii) de caméras vidéo pour le suivi des écoulements sur différents plans.

Le silo est rempli sous l'effet de la pesanteur par couches successives tels que les génératrices des rouleaux soient parallèles entre elles. Des lignes sont matérialisées à la fluorescéine. On dispose le long de chaque coté un tube de néon produisant une lumière « noire ». Des réflecteurs permettent la répartition de l'éclairage sur la surface du massif et la protection des caméras. Les essais se déroulent dans une pièce noire uniquement sous cette lumière.

Le traitement des données est basé sur l'exploitation des différents films associés à la mesure du débit massique. Les différents plans projetés permettent de mesurer (i) le champs de déplacement à travers l'évolution du marquage, (ii) l'influence de la rugosité au niveau des parois.

Le dépouillement des essais a nécessité l'adaptation des techniques du traitement d'images (13). Des photos sont extraites toutes les 0,20 secondes par prise d'image d'une façon automatique. Le temps d'acquisition des images choisi coïncide avec la mesure automatique du débit massique.

III RESULTATS DES ESSAIS

Jusqu'à présent nous n'avons parlé que de notre première utilisation de la fluorescence. D'ailleurs, notre satisfaction de l'expérience et des résultats obtenus nous ont poussé à envisager d'autres expériences notamment dans le domaine des infiltrations (14).

Notre objectif de départ était de rendre compte, en laboratoire, de la cinématique des matériaux soumis à un écoulement gravitaire. Pour cela, nous avons mené deux types d'expériences, à savoir écoulements avec et sans inclusions. Les essais sont réalisés dans des silos à fond plat de 30 cm de base à orifice centré et pour un élancement supérieur à 2.

Les résultats obtenus montrent que les déplacements du matériau, dans la partie supérieure du silo, se font en bloc et donnent lieu à des trajectoires et des vitesses constantes. Au voisinage de l'orifice de vidange, les particules subissent une variation de vitesse en fonction de leur position par rapport à l'axe de symétrie (fig. 2). Ce même comportement a été observé sur les écoulements de blé de Chartres (15) et sur du sable (16). Les particules au-dessus de l'orifice de vidange sont en chute libre et les particules de la couche supérieure ont tendance à prendre, dans la couche inférieure, la place des particules animées de la plus grande vitesse de chute.

Sans inclusion, la vidange s'effectue en masse jusque dans la partie de transition. Dans le cas des essais avec inclusion, on constate une zone de perturbation autour de cette inclusion. Dans ce cas, l'explication, même si elle ne se voit pas, est directement liée à la mise en place du matériau et donc de la densité locale. Dans les deux cas, l'analyse des photos extraites des films montre une discontinuité concentrique autour de l'orifice. Elle devient plus importante avec l'augmentation de la taille de l'inclusion. Les mesures des forces locales au voisinage montrent que l'inclusion reprend une partie des efforts du massif qui se répartie d'une façon non homogène. Ceci provoque le décalage des vitesses au voisinage de l'inclusion. Il est plus visible sur les vitesses horizontales (figure 3). Par ailleurs, l'utilisation d'une inclusion circulaire ne montre pas de zone stagnante au dessus, ni de vide en dessous. Le matériau a plus tendance à se dilater pour occuper le vide. Une inclusion triangulaire ou carrée aurait apporté plus de précision à cette question (voir 17 et 18). Ceci ne va pas dans le sens de l'hypothèse d'un matériau incompressible. Au niveau des parois, la zone de perturbation augmente avec l'augmentation du frottement. On peut voir une analogie avec les couches limites dans les fluides.

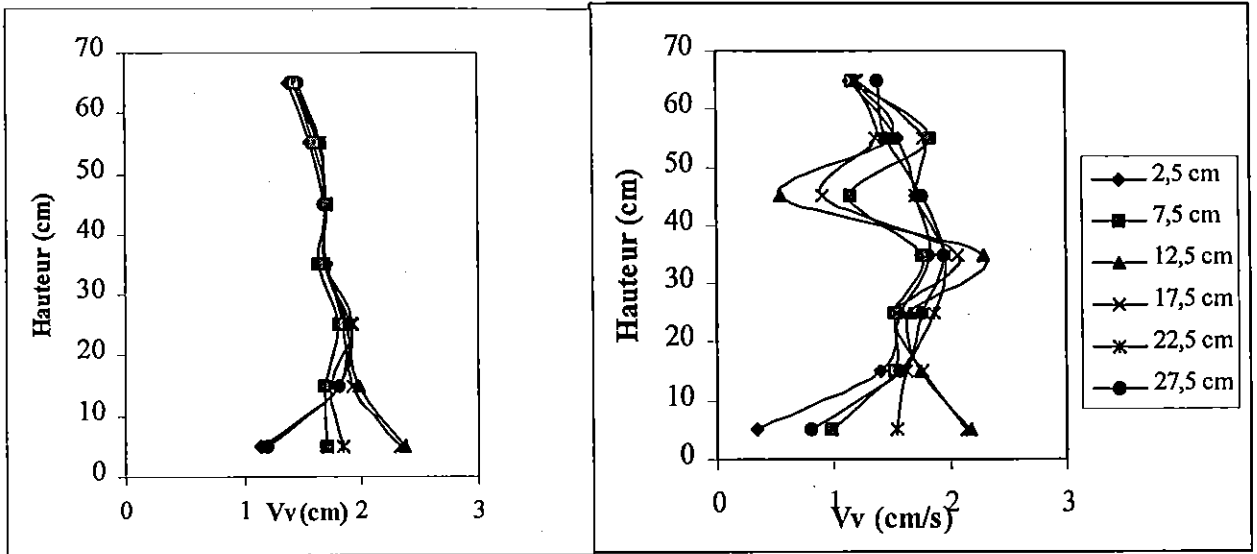
IV CONCLUSION

Les premiers résultats obtenus, suite à l'adaptation de cette technique, dans le cas des matériaux formés de grains sont satisfaisants. Cette première expérience ouvre la voie à de nouvelles investigations notamment la mesure des variations de volume au cours d'écoulement. Ceci complétera nos résultats sur l'influence de la répartition de la densité locale sur le comportement en écoulement.

La théorie stochastique, malgré des hypothèses restrictives et dans une certaine mesure, représente une bonne approche de l'écoulement gravitaire.

V REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

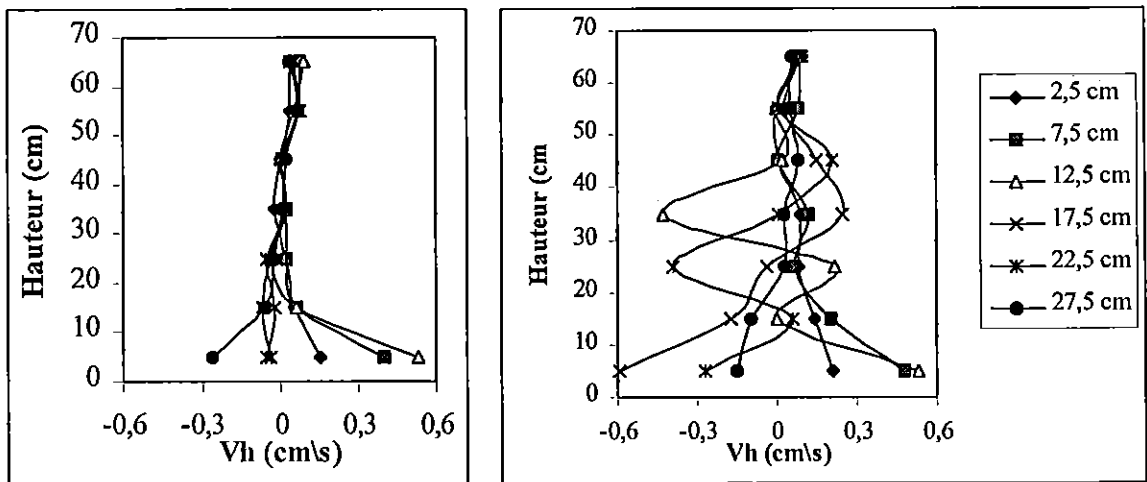
- (1) Khati S., Shahrour I. (1996) -Etude en laboratoire du frottement dans les matériaux granulaires- Revue Franç. Géotechnique, pp 59-67.
- (2) Khati S., Abriak N. & Shahrour I. (1998) -Comportement des matériaux à rhéologie complexe- Science et Rhéologie des poudres, Lyon, 3 et 5 Mars 1998, pp 243-250.
- (3) Baklouti M., Laurent A. (1995) -"Sécurité des stockages de matériaux en grains- Influence de la conductivité thermique"- Récents progrès en Génie des Procédés, GFGP, Vol. 9, n° 42, pp 153-158.
- (4) Khati S., Lancelot L. & Shahrour I. (1992) -Effect of temperature and humidity on the mechanical behaviour of chemical powders- Theoretical and Applied Rheology, Moldenaers & Keunings eds, Elsevier Sc. Publishers.
- (5) Michalowski R. L. (1990) -"Strain localisation and periodic fluctuations in granular flow processes from hoppers"- Geotechnique 40; n°3 pp 389-403
- (6) Hatssler & Eibl (1984) -"Numerical investigation on discharging silos"- ASCE SM, Vol. 6,
- (7) Bagnold R.A. (1954) -"Experiments on a gravity free dispersion of large solid spheres in a Newton fluid under shear"- Proc. R. Soc. Lond. Ser. A,225, pp 49-63.
- (8) Haff P.K. (1983) -"Grain flow as fluid mechanical phenomenon"- J. Fluid. Mech., vol. 134, pp 401-430.
- (9) Jenkins J.T. & Savage S. B. (1983) -"A theory for the rapid flow of identical, smooth, nearly elastic, spherical particles"- J. Fluid. Mech., vol. 130, pp 187-202.
- (10) Litwiniszyn J. (1963) -"The model of a random walk of particles adapted to researches on problèmes of mechanics of loose media"-Bulletin de L'academie Polonaise des sciences, Ser. Sc. Tech., vol XI, n°10.
- (11) Müllins W.W. (1972) -"Stochastic theory of particle flow under gravity"- J. Appl. Phys., Vol. 43, n° 2, pp. 665-678.
- (12) Nedderman R. M., Tüzun U. (1979) -"A kinematic model for the flow of granular materials"- Powder Tech., 22, p 243.
- (13) Khati S. (1996) -«Comportement des matériaux granulaires : Etude micro-macro du frottement et de la dilatance»- Thèse de l'Université de Lille I, p182.
- (14) Gandola F., Abriak N., Haverkamp R., Touma J. (1998) -Traceur fluorescent appliqué à la caractérisation d'une infiltration multidirectionnelle dans un milieux poreux-
- (15) Khelil A., Roth J. C. (1990) -"Spécification des charges et des écoulements dans les silos métalliques"- Rev. Franç. Géotech., n° 52, pp 11-25.
- (16) Kmita J. (1991) -"An experimental analysis of internal silo loads"- Bulk solids handling, Vol. 11, n° 2, pp 459-468.
- (17) Nedderman R. M., Tüzun U. (1985) -« Gravity flow of granular materials round obstacles. Investigations of the effects of inserts on flow patterns inside a silo »- Chemical engineering Science, vol. 3, n° 3, pp 321-336.
- (18) Nedderman R. M., Tüzun U. (1985) -« Gravity flow of granular materials round obstacles. Investigations of the stress profiles at the wall of a silo with inserts- Chemical engineering Science, vol. 3, n° 3, pp 337-351.



Sans inclusion

Avec inclusion (126 mm)

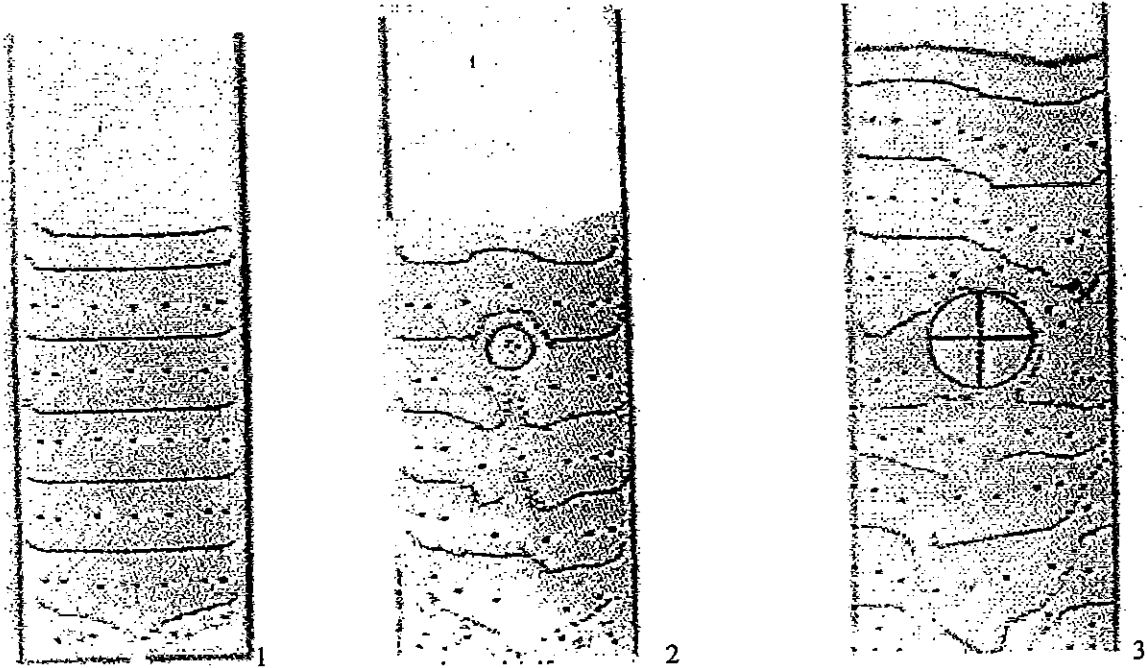
Figure 2 : Variation des vitesses verticales en fonction de la hauteur par rapport à l'orifice de vidange.



Sans inclusion

Avec inclusion (126 mm)

Figure 3 : Variation des vitesses horizontales en fonction de la hauteur par rapport à l'orifice de vidange.



Photos : Ecoulement de matériaux à travers un orifice centré sans inclusion et avec inclusion.

1 Sans inclusion

2 Inclusion de 63 mm

3 inclusion de 129 mm

NB : Le frottement de contact de la surface de l'inclusion est voisin de celui des matériaux (environ 11°)

LE COLORANT U.V. : UN TRACEUR PARTICULIEREMENT BIEN ADAPTE A LA DETERMINATION DE DISTRIBUTIONS DE TEMPS DE SEJOUR DANS DES REACTEURS INDUSTRIELS DE GRANDE DIMENSION

H. MUHR, J.P. LECLERC

<> LSGC-ENSIC - INPL
BP 451 - 1, rue Grandville - 540001 NANCY Cedex

R. DAVID

<> ECOLE DES MINES D'ALBI
Centre Poudres et Procédés - 81013 ALBI CT Cedex 9

J.M. BOSSOUTROT, F. GARCIA

<> ELF ATOCHEM
BP 63 - 69493 PIERRE BENITE Cedex

Résumé

Les traceurs radioactifs sont souvent utilisés pour déterminer des distributions de temps de séjour dans le milieu industriel. En raison de leurs inconvénients, ils ne sont envisagés que lorsque aucune autre substance ne peut donner de résultats équivalents. Les traceurs fluorescents représentent une alternative intéressante, notamment pour des réacteurs industriels de grande dimension : le naphthalène est souvent proposé pour des liquides organiques, et la forme sulfonée du naphthalène pour des systèmes aqueux. Ces substances sont dénommées " azurants " ou colorants U.V., car elles absorbent dans le domaine U.V. et réémettent dans l'U.V. ou le visible. Elles offrent de multiples avantages : bien entendu incolores dans le domaine visible, solubles dans le solvant considéré, stables à la lumière, faciles à utiliser (utilisation non réglementée), peu chères, non toxiques et détectables à très faible concentration (jusqu'à 10^{-7} mol/l). Un exemple d'application sur une unité industrielle en fonctionnement a confirmé l'intérêt de cette méthode.

I. POSITION DU PROBLEME

La mesure des Distributions de Temps de Séjour (DTS) est l'une des possibilités souvent mises en oeuvre pour déterminer le mode d'écoulement, première étape indispensable pour modéliser, dimensionner et optimiser les réacteurs multiphasiques. Les DTS sont obtenus à partir de traçages. Dans les liquides, les colorants, les espèces organiques avec des doubles liaisons, les électrolytes et les isotopes radioactifs peuvent être utilisés comme traceurs. La spectrophotométrie, la calorimétrie, la réfractométrie différentielle, l'électroconductivité et les mesures radioactives sont alors utilisées pour la détection. De nombreuses études relatives à l'utilisation de traceurs en génie de la réaction chimique sont résumées dans le chapitre 2 de Wen and Fan (1).

L'hydrodynamique d'un cristalliseur doit être étudiée pour mieux comprendre le procédé, plus particulièrement pour améliorer la qualité du mélange et pour trouver la position optimale des points d'alimentation des réactifs. Le cristalliseur suivi ici a un volume de l'ordre de 60 m^3 , sur le principe des cristalliseurs de type Crystal-Oslo. Aucune information complémentaire ne peut être fournie sur la géométrie exacte du réacteur et sur le produit élaboré pour des raisons de confidentialité. Des essais sur une maquette de laboratoire ont permis de déterminer un modèle hydrodynamique. Cependant, l'écart entre la maquette et le réacteur industriel d'une part et l'ajustement des paramètres d'autre part nécessitent d'avoir au moins une expérience de traçage sur l'unité industrielle. Un traceur approprié est nécessaire pour conduire ces expériences.

En effet, le liquide est chargé avec une phase solide cristallisée, le traceur de la phase liquide ne doit donc pas s'adsorber sur la phase solide. De nombreuses méthodes rapportées par Wen et Fan ont été testées sans succès, et les isotopes radioactifs ont été écartés pour des raisons de sécurité sur l'unité industrielle et par crainte des réactions des futurs consommateurs. Une substance chimique a été proposée pour mesurer expérimentalement des DTS de la phase liquide. Elle offre les mêmes avantages que les substances radioactives, mais aucune précaution n'est nécessaire dans les expériences de traçage et les chefs de fabrication ne sont pas hésitants quant à son utilisation. Cette substance est un colorant U.V. : l'acide 1-naphtalènesulfonique. Les conditions pour son utilisation, la méthode de détection, le mode opératoire, les avantages et les problèmes rencontrés sont présentés dans cette contribution.

II. SELECTION DU TRACEUR

Les industriels de la fabrication souhaitent réaliser des expériences de distribution de temps de séjour sans interrompre et perturber la production, et sans dégrader la qualité du produit. Pour une telle situation, des isotopes radioactifs ont été envisagés. Les avantages sont nombreux : faible volume d'injection, détection facile sans échantillonnage directement à travers la paroi, temps de réponse rapide, bonne sélectivité et bonne sensibilité, aucun danger pour le personnel et l'environnement en raison d'une durée de vie très courte. Mais la conduite de telles études nécessite bon nombre de précautions et n'est pas à la portée de tous. De plus, l'utilisation de traceurs radioactifs est très réglementée en France et encore très coûteuse. Elle peut ainsi apparaître comme un luxe pour certaines entreprises. Un autre point concerne la réticence des industriels, inquiets pour la qualité de leur produit, plus particulièrement lorsqu'il s'agit d'un produit de grande consommation.

Ainsi, l'utilisation de substances radioactives est seulement envisagée lorsqu'aucune autre technique n'est possible. Des traceurs salins classiques, comme NaCl, ne sont pas envisageables, car le volume nécessaire pour l'injection serait trop important pour une détection ultérieure correcte, et les impuretés atteindraient une valeur intolérable dans la solution et dans les cristaux. D'autres substances, tels les sels d'indium et de lithium, pour lesquels le niveau de détection est très bas, ne sont pas adaptés, car le bruit de fond est trop important dans la solution étudiée. Les colorants fluorescents usuels ne sont pas adaptés non plus, car le produit cristallisé serait alors coloré. En effet, dans la situation présente, le solide élaboré est parfaitement blanc, et cette couleur est l'un des principaux facteurs qui conditionnent la bonne qualité du produit. Il est donc nécessaire de trouver un traceur incolore. Un colorant fluorescent qui n'absorbe pas dans le domaine visible pourrait convenir. Ces substances sont communément appelées "azurants" ou encore colorants U.V..

II.1. Qualités demandées au traceur fluorescent (2)

En plus de ses propriétés spectroscopiques (absorption et émission), un traceur doit être soluble dans l'eau, stable à la lumière, bon marché, facile à manipuler et non toxique.

Caractéristiques spectroscopiques

Pour qu'une substance fluorescente puisse être utilisée comme traceur, il est nécessaire qu'elle possède les propriétés spectroscopiques suivantes : un coefficient molaire d'extinction et une émission de fluorescence avec un champ de quantum aussi importants que possible. La concentration minimale détectable apparaît alors comme inversement proportionnelle à la largeur du pic à mi-hauteur du spectre de fluorescence.

Solubilité

Une substance qui sera utilisée dans un milieu aqueux doit bien évidemment être soluble dans l'eau. Bien que l'analyse de la fluorescence permette la titration de microquantités, cette particularité n'implique pas qu'on puisse se satisfaire d'une faible solubilité. En effet, pour

des opérations concernant de très grands volumes de liquide (réacteurs industriels de grande dimension), on peut être conduit à injecter localement de grandes quantités de traceur fluorescent. Pour injecter le traceur dans de bonnes conditions, il est préférable de préparer le traceur en solution très concentrée. De plus, la faible solubilité d'une substance, expression de la tendance à quitter la phase aqueuse au bénéfice du substrat solide, révèle par conséquent ses propriétés de sorption. On doit donc s'attendre à ce que chaque espèce faiblement soluble soit fortement adsorbée et satisfasse avec difficulté le critère correspondant.

Les molécules organiques avec des propriétés fluorescentes sont en général insolubles ou faiblement solubles dans l'eau. La solubilité étant conférée par une structure ionique, il est donc nécessaire de procéder à un traitement approprié (comme par exemple la sulfonation).

Stabilité

Avec de telles substances, un autre critère doit être mentionné : le traceur doit être stable à la lumière. En effet, le traceur solubilisé en solution aura souvent une distance relativement longue à parcourir avant d'atteindre la zone d'observation. Il est donc important qu'il n'y ait aucune dégradation de ces traceurs pendant plusieurs heures, voire plus encore si les mesures sont conduites à l'extérieur du laboratoire. Les traceurs doivent donc être stables et ne pas posséder une trop forte photodégradabilité. Plusieurs observations montrent que pour les traceurs utilisés actuellement, la photodégradabilité n'est pas toujours négligeable (par exemple la fluorescéine).

Il faut enfin être prudent avec ce genre de produits, souvent instables, qui ne doit pas souffrir des conditions de stockage et du mûrissement.

Coût et quantité

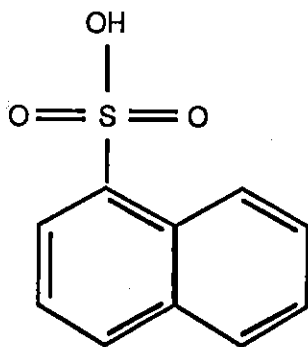
Quoique non d'une importance primordiale, car le coût du traceur représente uniquement, même pour le calibrage, une petite partie du coût total de l'opération, le prix des nouveaux traceurs doit être au maximum du même ordre de grandeur que celui des traceurs couramment utilisés, soit quelques dizaines de francs au kg.

Les quantités de colorant fluorescent généralement nécessaires étant en général relativement faibles, le critère précédemment défini est en général satisfait.

Toxicité

Ce critère est d'une importance cruciale. Le caractère répétitif des calibrages et de leur extension exclut toute substance dont l'utilisation pourrait avoir un effet nocif sur le produit élaboré et l'environnement.

II.2. Réactif sélectionné et compatibilité avec les spécifications



L'acide 1-naphtalènesulfonique est un des colorants U.V. envisageable comme traceur fluorescent (le naphtalène est insoluble dans l'eau, tandis que la forme sulfonée du naphtalène est soluble dans les milieux aqueux). Des tests ont été réalisés pour observer la compatibilité de cette substance avec des expériences de traçage. L'acide 1-naphtalènesulfonique utilisé est un produit MERCK, et la qualité sélectionnée est dite «pour analyses». La forme primaire de

cette substance est $C_{10}H_7O_3S$ et la forme développée est représentée par la molécule dessinée ci-dessus. Ce colorant possède les propriétés spectroscopiques requises définies précédemment. La dissolution dans l'eau permutée est très facile, avec des valeurs de solubilité supérieures à 100g/l à température ambiante, et aucune adsorption significative n'est à noter avec la phase solide du réacteur (des cristaux blancs dans le cas présent). Ainsi, les conditions de solubilité du colorant U.V. sont respectées.

Concernant la stabilité, aucune dégradation n'est observée pendant plusieurs heures. Ainsi, le colorant U.V. peut être considéré comme stable à la lumière. Pour en finir avec les critères énoncés précédemment, le produit utilisé est non toxique, incolore, et ainsi ne transmet aucune pollution, ni aucune couleur à la solution et aux cristaux. L'acide 1-naphtalènesulfonique remplit donc toutes les conditions nécessaires pour son utilisation en tant que traceur. La détermination de la concentration en traceur va être décrite maintenant.

II.3. Analyse et équipement

La mesure de la concentration en acide par absorption U.V. doit être évitée, en raison de l'existence d'interférences entre l'acide et le milieu aqueux, plus particulièrement pour la solution étudiée ici. Une mesure de meilleure qualité est obtenue par fluorescence U.V. : en excitant la solution acide à une longueur d'onde de 280 nm, une fluorescence spécifique de l'acide apparaît à 330 nm (3).

L'acide 1-naphtalènesulfonique est détecté facilement à l'aide d'un spectrofluorimètre à des très faibles concentrations. La figure 1 illustre le spectre d'émission de la solution acide, à une concentration de $10^{-5} \text{ mol.l}^{-1}$ dans l'eau (la figure 2 dans la solution mère du cristalliseur, c'est à dire une solution saturée en produit à cristalliser).

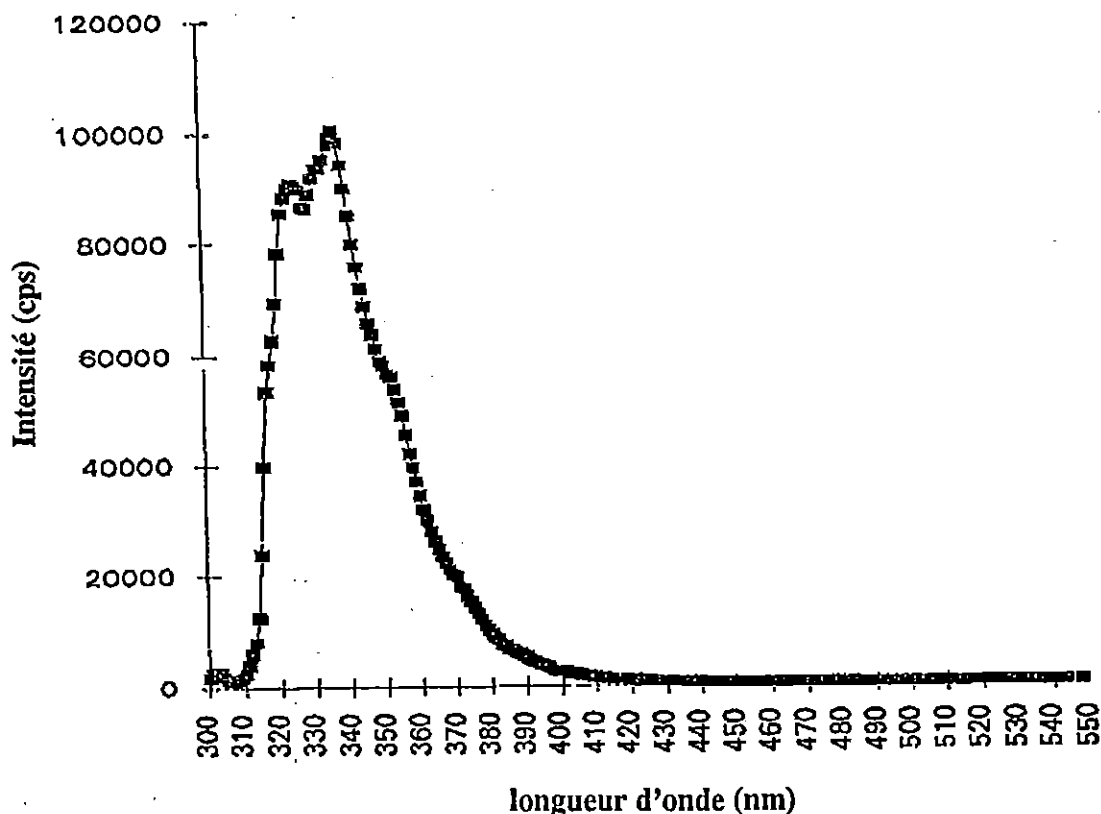


Figure 1 : spectre d'émission de l'acide 1-naphtalènesulfonique dans l'eau (10^{-5} M)

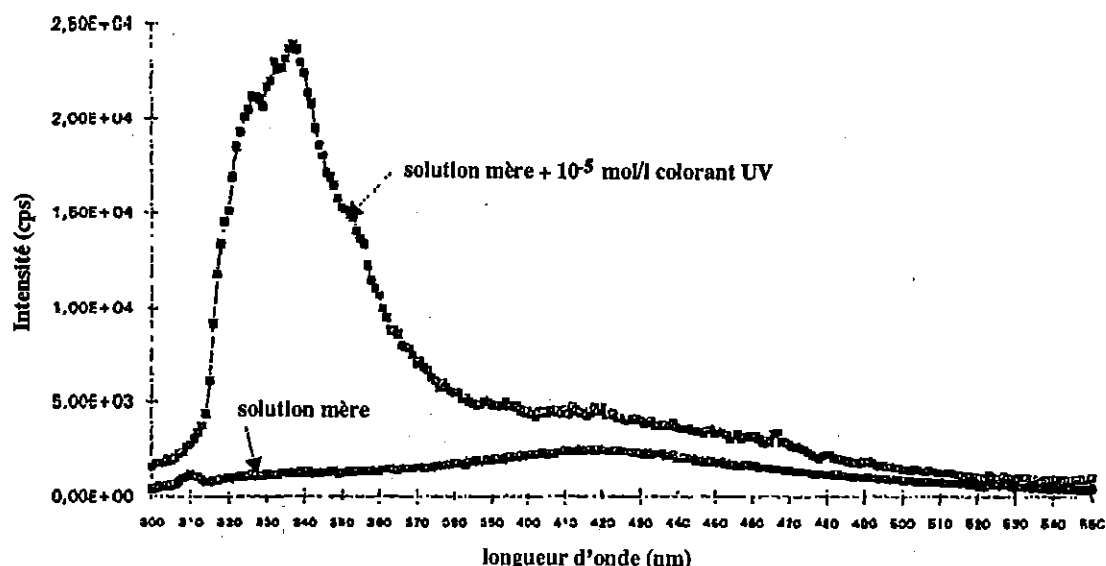


Figure 2 : spectre d'émission de l'acide 1-naphtalènesulfonique dans la solution mère (10^{-5} M)

Le spectre est quasiment identique dans les deux cas. L'émission maximale est située juste au-dessus de la valeur annoncée de 330 nm.

La figure 3 illustre la linéarité entre le signal et la concentration. L'adsorption est linéairement proportionnelle à la concentration dans les solutions diluées. Cette linéarité permet de suivre la concentration en ligne et donne au traceur les mêmes avantages que les isotopes radioactifs en matière d'acquisition de données.

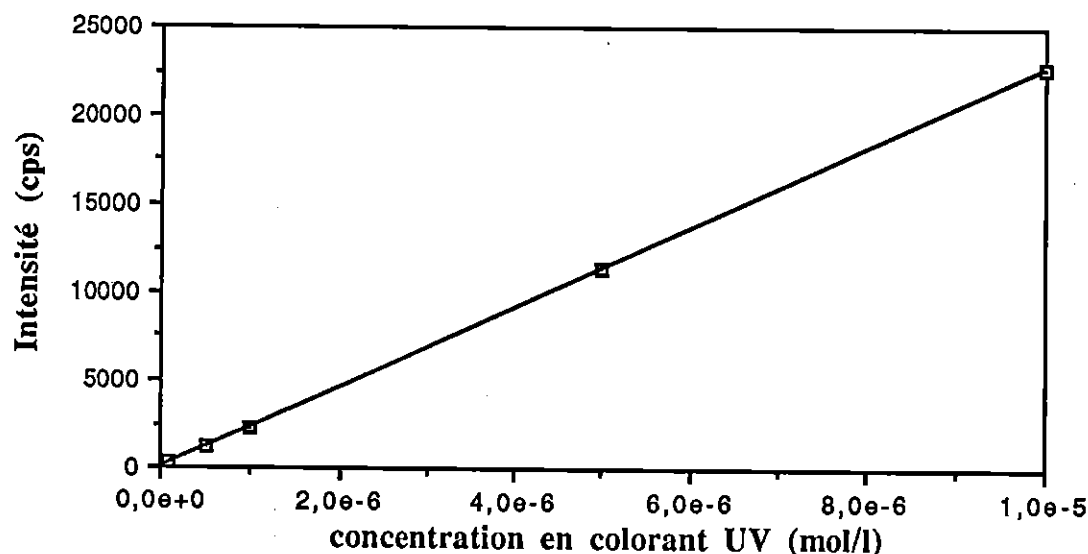


Figure 3 : relation entre l'intensité mesurée et la concentration en colorant

La limite de détection avec le spectromètre à fluorescence utilisé est obtenue lorsque la concentration en colorant est inférieure à 10^{-7} mol.l⁻¹. A ce niveau, une faible différence est observée sur le spectre d'émission de la solution mère avec ou sans le produit colorant. C'est ainsi que, pour une bonne précision dans les mesures, une solution légèrement plus concentrée doit être utilisée.

III. TRACAGE INDUSTRIEL

Des expériences de traçage ont été conduites sur un cristalliseur industriel. Le traceur est injecté dans le courant d'alimentation, et ensuite détecté en sortie de réacteur, et en plusieurs points locaux au sein du réacteur. Une estimation rapide de la quantité de solide nécessaire pour une injection, en considérant le cristalliseur comme un réacteur parfaitement mélangé et une concentration moyenne en acide de 10^{-6} mol.l⁻¹ dans le volume total de 60 m³, donne une quantité de 12,5 g d'acide 1-naphtalènesulfonique à injecter à l'entrée du réacteur. En raison de la faible quantité utilisée, le traceur peut facilement être injecté sous une forme d'un Dirac parfait, ce qui n'est pas toujours envisageable avec les sels par exemple. Pour accroître la précision des mesures, une quantité plus importante de traceur peut être injectée, par exemple deux ou trois fois la valeur annoncée précédemment (à travers une solution plus concentrée ou un volume légèrement plus important), cette quantité reste toutefois raisonnable. Le coût d'une injection est très faible. Il peut être estimé à moins de 100 F pour une distribution de temps de séjour dans un volume de 60 m³ (uniquement le prix de l'acide). Toutefois, un spectrofluorimètre est nécessaire, ainsi, le prix global de revient est alors plus conséquent.

Le produit fabriqué par le réacteur étant aux normes ISO 9002, un seul traçage a été effectué. Les différents prélèvements en sortie et locaux ont permis d'obtenir des courbes de DTS et de Distribution d'Âges Internes (DAI). La comparaison des résultats expérimentaux obtenus sur la maquette froide et de ceux obtenus sur l'installation industrielle ont permis de confirmer la validité du modèle d'écoulement déterminé en laboratoire et d'ajuster les paramètres pour le réacteur industriel. En raison de la confidentialité de l'étude, nous ne pouvons décrire le réacteur industriel et la seule présentation du modèle d'écoulement obtenu n'aurait que peu d'intérêt. En dehors des inconvénients et des avantages décrits ci-dessus, nous insisterons sur deux points : tout d'abord, les analyses sont effectuées après prélèvement et non pas en continu. De ce fait, certaines des courbes expérimentales manquaient d'informations car le nombre de points n'était pas suffisant. C'est un problème que l'on ne rencontre pas sur le traçage radioactif car le résultat est quasiment obtenu en temps réel. Il est surtout crucial pour les Distributions des Âges Internes car il est parfois difficile de prévoir a priori l'allure des courbes. Par contre la qualité de la production n'est pas affectée par le traçage avec un colorant U.V.. Il s'agit là d'un avantage essentiel.

IV. DISCUSSION ET CONCLUSION

Des expériences de traçage ont été conduites avec succès sur un réacteur industriel en utilisant un colorant U.V. : l'acide 1-naphtalènesulfonique. Les colorants U.V. peuvent être étendus largement à d'autres expériences de traçage. Ils doivent être préférés aux colorants fluorescents classiques, qui colorent de façon significative la solution ou même le solide. Un autre avantage est la faible quantité nécessaire à un traçage, ce qui les rend particulièrement adaptés aux installations de grande dimension. Le coût en produit de chaque expérience est faible, mais le prix d'achat d'un spectrofluorimètre peut apparaître comme un investissement bien que dans tous les cas, le prix global reste inférieur à celui des traçages radioactifs. Les colorants U.V. sont donc des traceurs industriels de choix permettant d'obtenir des DTS sans perturber la production.

REFERENCES

- (1) Wen C.Y. et Fan L.T., Models for flow systems and chemical reactors, New York, Marcel Dekker (1975).
- (2) Viriot M.L. et André J.C., Analysis, 17, 3, 97-111 (1989).
- (3) Ogan K, Katz E. et Slavin W., Anal. Chem., 51, 8, 1315-1320 (1979).

DETECTION DU VIEILLISSEMENT DES MEMBRANES D'OSMOSE INVERSE PAR UNE TECHNIQUE DE TRACAGE PAR DES IONS

E. ROTH, B. FABRE, A. ACCARY

◁ ENSCMu
Laboratoire Gestion des Risques et Environnement
25, rue de Chemnitz
68200 MULHOUSE

G. THOMAS

◁ CPELYON
Laboratoire d'Automatique et Génie des Procédés
43, bld du 11 Nov. 1918
69622 VILLEURBANNE

RESUME

Le colmatage des membranes d'osmose inverse précède généralement la dégradation de la qualité bactériologique et ionique du perméat qui peut s'avérer fatale dans son utilisation en dialyse rénale. Cependant, aucune méthode rapide ne permet de déterminer l'altération des propriétés de séparation des membranes due soit au colmatage soit à la modification de la structure de la membrane. Nous avons développé une méthode de traçage des flux dans une membrane composite spiralée FT30. Les distributions obtenues côté rejet et perméat sont analysées : on observe un étalement de la distribution côté rejet et l'apparition de nouveaux modes de perméation côté perméat avec le vieillissement de la membrane. Cette méthode de traçage permet ainsi de déterminer rapidement l'altération de la structure membranaire.

I. INTRODUCTION

L'osmose inverse est la méthode de préparation de l'eau ultra-pure utilisée pour soigner les malades atteints d'insuffisance rénale. La qualité bactériologique et ionique de l'eau produite est suivie de façon hebdomadaire. En effet toute altération de la qualité de l'eau peut être fatale aux patients. A ce jour, aucune méthode rapide ne permet de déterminer l'altération des propriétés de séparation des membranes due soit au colmatage soit à la modification de la structure de la membrane. Nous avons développé une méthode de traçage de membranes composites FilmTec FT30-4040 par des ions et testé par cette méthode une membrane neuve (FTN) ainsi que des membranes usées provenant de la centrale de production d'eau ultrapure pour dialyse rénale des Hôpitaux de Colmar. Elle permet de déterminer rapidement l'altération de la structure membranaire.

Les packs membranaires provenant de Colmar étaient disposés en deux étages d'osmose inverse en série RO₁ et RO₂. Le premier étage RO₁ (entrée E1) contient les membranes FT1 à FT4 montées en série : alimentation - rejet - alimentation. Les quatre sorties perméat sont collectées en un point P1 qui sert pour l'alimentation de l'étage RO₂ où les trois membranes (FT5 à FT7) sont montées parallèlement de la même

manière. La sortie du rejet R2 peut-être recyclée en partie en P1 ou E1 et la sortie R1 en partie en E1.

II. PRINCIPE

Chaque membrane est étudiée dans une installation pilote décrite par ailleurs (1). Le système ainsi considéré est à une entrée et deux sorties, il contient deux phases l'une mobile, l'eau et l'autre solide, la membrane avec le dépôt de colmatant. Le traceur peut se transférer de l'eau dans la membrane et inversement. Les résultats présentés relèvent plutôt d'une étude plus complexe de distribution de temps de contacts que nous ne pouvons mener complètement, car nous ne disposons pas d'un traceur inerte pour la membrane.

Le traceur (solutions 1.5 M de NaCl, de NaOH et 1.2 M de HCl) est injecté en amont de la pompe multi-étagée précédant la membrane. Une approche de type DTS permet, en court-circuitant le pack membranaire au moyen d'une canalisation supplémentaire installée entre l'entrée et la sortie du pack, de déterminer la distribution des temps de séjour du traceur dans la pompe et les canalisations côtés rejet ($g_r(t)$) et perméat ($g_p(t)$). Dans un deuxième temps, la membrane est mise en circuit et l'injection réitérée : les signaux sont enregistrés en conductimétrie en sortie du flux de perméat $y_p(t)$ et de rejet $y_r(t)$. D'un point de vue mathématique, la réponse du pack membranaire $x_i(t)$ ($i=p,r$) est reliée à $g_i(t)$ par le produit de convolution $y_i(t) = \int_0^t x_i(u) \cdot g_i(t-u) \cdot du$. Un filtre de Kalman permet de fournir une solution adaptée pour obtenir un estimé $\hat{x}_i(t)$ de $x_i(t)$ au sens de la norme 2 des côtés rejet et perméat.

III. CONDITIONS EXPERIMENTALES

Pour pouvoir comparer nos expériences de traçage pour les différentes membranes il est essentiel d'avoir une vitesse du fluide vecteur identique. Or, le débit de perméation Q_p dépend à la fois de la température (viscosité de l'eau) et de la pression (force motrice de la perméation). Une augmentation de pression entraîne une augmentation du flux de solvant sans affecter par contre celui de soluté (2). La température a une influence négligeable sur le flux de soluté (2).

Notre installation n'étant pas thermostatée, nous n'avons aucune action possible sur la température. Le débit de perméation est réglé par ajustement de la pression d'alimentation. Nous choisissons de fixer les débits de rejet et de perméat respectivement à $1.41 \cdot 10^{-4} \pm 0.02 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ et $5.0 \cdot 10^{-5} \pm 0.02 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ dans toutes les expériences de traçage.

Nous injectons entre 0.5 et 2.5 g de soluté, en amont de la pompe multiétagée, dans le circuit d'eau osmosée préparée au préalable et stockée dans la réserve de 1 m^3 du pilote. Nous avons vérifié expérimentalement que la quantité injectée n'influence ni la forme des signaux détectés côtés rejet et perméat, ni le pourcentage de réjection : la quantité de matière rejetée est linéairement liée à la quantité de matière injectée.

IV. RESULTATS

IV.1 Etude des distributions, côté réjection

Les caractéristiques des distributions calculées par déconvolution côté rejet des membranes ainsi que le pourcentage de réjection du traceur par la membrane sont rassemblés dans le tableau 1.

Tableau 1 : Temps de séjour moyen (± 0.1 s) et variance (± 0.2 s²) des distributions obtenues côté rejet avec chacun des trois traceurs et pourcentages de réjection du traceur par la membrane

	NaOH			NaCl			HCl		
	\bar{t}_s (s)	σ^2 (s ²)	R_{NaOH} (%)	\bar{t}_s (s)	σ^2 (s ²)	R_{NaCl} (%)	\bar{t}_s (s)	σ^2 (s ²)	R_{HCl} (%)
FTN	20.3	10.0	97.5	20.2	13.8	99.3	20.2	17.6	94.8
FT3	21.3	14.0	97.2	21.1	19.0	96.0	22.3	23.9	88.0
FT5	21.6	16.6	92.9	21.6	16.9	90.4	22.9	30.3	87.3
FT6	20.6	14.5	89.1	21.0	20.5	89.3	21.9	23.3	78.1
FT7	20.9	14.8	94.6	20.6	15.9	98.3	21.1	18.3	87.5

Les distributions sont monodisperses, les temps de séjour sont sensiblement du même ordre de grandeur pour des expériences réalisées avec des solutions de NaOH et de NaCl. Il faut noter un accroissement du temps de séjour et de la variance des distributions obtenues par traçage par des solutions d'HCl qui interfèrent sans doute davantage avec la membrane et/ou le dépôt de colmatant.

IV.2 Etude des distributions côté perméat

Les distributions obtenues par déconvolution ne sont pas monodisperses, excepté pour la membrane neuve tracée par les solutions de NaCl et de HCl. Nous obtenons en fait un mélange de distributions correspondant à l'apparition de nouveaux modes de perméation (figure 1). Les résultats des déconvolutions sont rassemblés dans le tableau 2.

Tableau 2 : Temps de séjour moyen (± 0.1 s) et variance (± 0.2 s²) des distributions côté perméat pour les trois traceurs

	NaOH		NaCl		HCl	
	\bar{t}_s (s)	σ^2 (s ²)	\bar{t}_s (s)	σ^2 (s ²)	\bar{t}_s (s)	σ^2 (s ²)
FTN	29.4	39.5	22.5	22.9	24.2	52.2
FT3	25.8	88.3	14.4	59.4	18.8	59.7
FT5	29.3	114.6	18.0	80.1	19.3	62.4
FT6	23.9	130.9	10.5	43.5	16.9	79.8
FT7	29.8	64.3	16.9	53.5	20.1	44.6

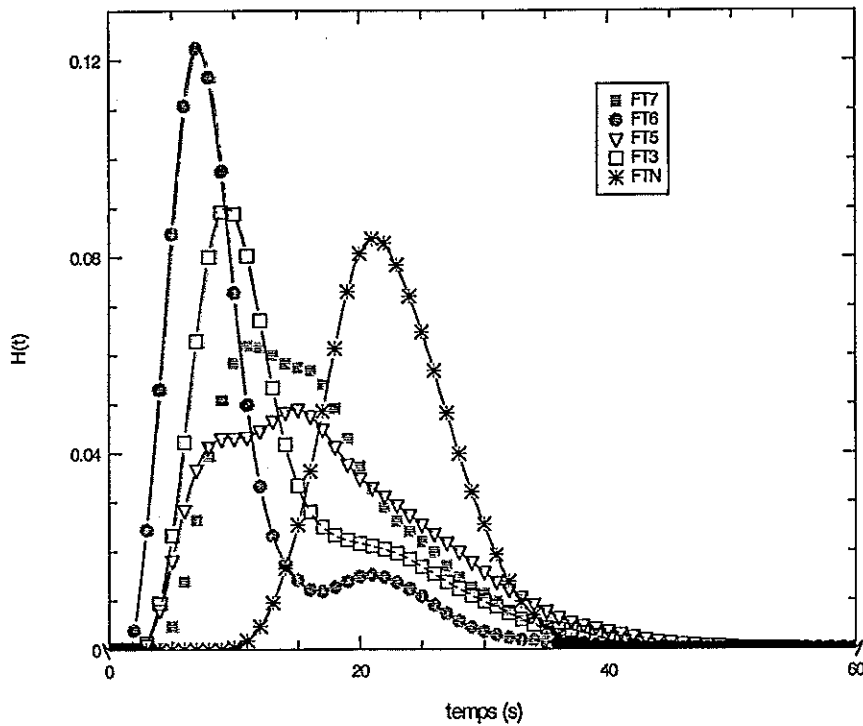


Figure 1 : Distributions obtenues côté perméat par traçage au chlorure de sodium

Le résultat du traçage côté perméat comprend aussi bien l'effet du transfert côté rejet de la membrane, du transport dans la membrane que du transfert côté perméat de la membrane. L'isolement du transport du soluté à travers la membrane est impossible. Il nous faut traiter le signal enregistré côté perméat dans sa globalité. Sachant que la dispersion dans le canal d'alimentation est monodisperse et en formulant l'hypothèse que l'écoulement du côté perméat de la membrane est de type piston à dispersion axiale nous en déduisons la présence de plusieurs modes de dispersion dans la membrane.

Une identification des différents modes de transport globaux de l'entrée du soluté dans le pack membranaire côté alimentation à sa sortie du tuyau collecteur est possible en décomposant le signal en somme de distributions de type dispersion axiale :

$$E_P(t_s) = \frac{1}{2} \left(\frac{Pe}{\pi \cdot \tau \cdot t_s} \right)^{1/2} \cdot \exp \left(- \frac{Pe \cdot (\tau - t_s)^2}{4 \cdot \pi \cdot t_s} \right)$$

Chaque fonction de distribution côté perméat est modélisée par une somme pondérée d'au plus 3 distributions de type piston à dispersion axiale, $E_{mod}(t)$ en parallèle :

$$E_{\text{mod}}(t) = \sum_{i=1, n} c_i \cdot E_p^i(t)$$

avec $\sum_i c_i = 1$

Les distributions des membranes colmatées sont composées de deux voire trois distributions type piston à dispersion dont l'une possède un temps de passage légèrement supérieur ou égal à celui caractérisant la membrane neuve et un Peclet plus faible que celui caractérisant la membrane neuve. Cette distribution correspondrait à une rémanence du mode de perméation de la membrane neuve. En plus de cette distribution se retrouvent une voire deux (dans le cas de la membrane FT5) distributions à temps de passage plus faible (5.9 à 13.2 s). L'apparition de ce mode de perméation très rapide ne peut néanmoins s'assimiler à un écoulement préférentiel de type court-circuit : l'examen des réjections montre que malgré une baisse des performances comparativement à la membrane neuve, le taux de réjection reste bien supérieur à 78 %. Le perçage des membranes est exclu.

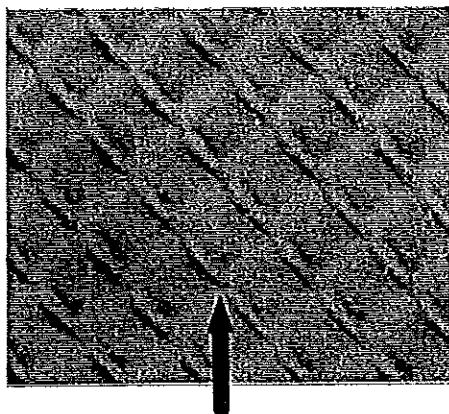
IV.3 Conclusions sur les expériences de traçage

Les ions hydroxydes ont des interactions physico-chimiques moins fortes avec la membrane et font moins d'excursions dans la membrane. Leur passage à travers la membrane par diffusion est plus lent. A l'inverse, la solution de chlorure d'hydrogène est la solution la moins bien rejetée (tableau 2) des trois testées avec des temps de séjour et des variances caractérisant les distributions côté rejet les plus élevées. Les ions hydrogène semblent avoir une forte affinité avec la membrane et réalisent facilement des transferts interphases. Cette forte affinité avec la membrane a pour conséquence de les faire traîner côté rejet (variance et temps de séjour élevés) mais ils traversent rapidement la membrane par diffusion par « bonds » des ions dans le polymère (3). La solution de chlorure de sodium a un comportement intermédiaire. Les membranes usées présentent des distributions altérées selon le degré de vieillissement. Côté rejet, la distribution est retardée et plus étalée dans le temps ; côté perméat on obtient un mélange de distributions caractéristique de l'apparition de nouveaux modes de perméation plus rapprochés de l'origine des temps et liés à la formation d'écoulements préférentiels dans la structure du polymère dense. Des clichés réalisés en microscopie, effectués sur des membranes usées, viennent corroborer cette hypothèse. Selon la nature du traceur, l'un ou l'autre des modes de perméation est plus accentué, témoignant ainsi de la différence de diffusion apparente des substances dans la membrane.

IV.4 Analyse du dépôt colmatant

Les examens de la surface des membranes sont effectués avec un binoculaire Olympus SZH et un microscope électronique à balayage (MEB) Hitachi SEM 570 muni d'un ensemble de microanalyse semi-quantitative KEVEX (DELTA CLASSE 4).

La membrane FT3 présente à l'œil nu une pellicule grisâtre non uniformément répartie : des stries plus noires apparaissent sur les bords du filet espaceur (photo 1).



sens du courant d'alimentation

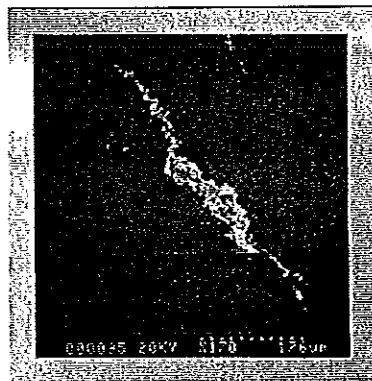


Photo 1 : Surface de la membrane FT3 observée au binoculaire ($\times 5$)

Photo 2 : Aspect des fissures remplies de dépôt sur FT6 ($\times 170$)

Une analyse en fluorescence X dispersive en énergie sur la zone colmatée de la membrane FT3 détecte la présence de Silicium (à 51.1 % en poids), de Fer (23.1 %), d'Aluminium (17.4 %) de Calcium (5.2 %) et de Titane (3.3 %).

La membrane FT6 présente des fissures. Le cliché MEB (photo 2) montre l'une d'entre elle. Son analyse révèle la présence de fer (57.9%), de chrome (21.0%), de nickel (7.8%) et d'aluminium (9.3%).

V. CONCLUSION

La méthode de traçage mise au point nécessite deux injections et les résultats sont obtenus après quelques minutes de calculs. Elle met en évidence l'apparition de modes de perméation rapide sur les membranes usées. Elle permet ainsi de déceler les altérations et fissures du tissu de la couche dense de la membrane avant que n'apparaissent les effets du colmatage à savoir une remontée brutale de la conductivité puis l'apparition de germes dans le perméat.

REFERENCES

- (1) Roth E., Fabre B., Accary A., Faller B., Etude du colmatage de membranes d'osmose inverse utilisées pour la préparation des eaux de dialyse rénale, Rev. Sci. Eau, acceptée pour publication, 11-3 (1998).
- (2) Dickson J.M., Fundamental aspects of reverse osmosis. in : Reverse Osmosis Technology, Application for high-purity water production, chap. 1, 2-45. Ed : Marcel Dekker, N.Y. (1988)
- (3) Kotelyanskii M.J., Wagner N.J., Paulaitis M.E., Atomistic simulation of water and salt transport in the reverse osmosis membrane FT-30, J. Mbr. Sci., 139, 1-16 (1998)

ETUDE DE L'ÉCOULEMENT DES MATÉRIAUX GRANULAIRES : EFFET DE PAROI

N.E. ABRIAK

<> ECOLE DES MINES DE DOUAI
BP 838 - 941, rue Ch. Bourseul
59508 DOUAI CEDEX

RESUME

Le but essentiel de cette étude est de préciser le phénomène d'écoulement du matériau granulaire dans un modèle bidimensionnel. Pour ce faire, on a utilisé la méthodologie qui consiste à disposer au moment du remplissage du silo des plans horizontaux de grains de couleurs différentes à des altitudes repérées, ce qui a simplifié l'étude de la traçabilité du matériau. En ce qui concerne l'effet des parois, on montre que dans le cas des parois semi-rugueuses, les effets de celles-ci sont négligeables. En revanche, dans le cas des parois rugueuses, le frottement entre elles et le matériau a une influence non négligeable au voisinage des parois.

I. TECHNIQUE EXPERIMENTALE

Le silo utilisé est représenté par une colonne qui est constituée de deux montants droits comportant une échelle graduée (de cinq centimètres en cinq centimètres), qui sert de repère spatial pendant le remplissage et la vidange (1).

Les rouleaux sont déposés dans le massif sous l'effet de la pesanteur, les couches successives ne sont pas compactées, mais simplement disposées de façon à ce que les génératrices des rouleaux soient bien parallèles entre elles. Signalons que ce matériau est très peu compressible sous pression isotrope, la densité initiale est donc assez constante pour le mode de remplissage utilisé (2).

Pour chaque manipulation, les modèles ont été remplis de la même manière et à une hauteur identique. L'observation du mouvement d'ensemble du matériau analogique est effectué à l'aide des couches de rouleaux colorés, espacées de 5 centimètres ; pendant l'écoulement, des photos sont prises toutes les secondes. L'enregistrement vidéo et les photos permettent une étude qualitative et quantitative du comportement mécanique du matériau analogique.

II. INFLUENCE DE LA RUGOSITE SUR LE MODE D'ÉCOULEMENT

Sont présentés ici les résultats expérimentaux concernant l'écoulement à travers un orifice dans un modèle à parois rugueuses ou semi-rugueuses et à trémie inclinée de 45° et 60°. Les mesures et les résultats obtenus au cours de ces essais représentant une masse de données considérable dont l'exploitation et le traitement ont conduit aux interprétations et aux conclusions présentées ci-dessous.

II.1.- Etude qualitative

Les figures 5 à 8 correspondent à l'expérience réalisée avec une trémie à 60° et parois latérales rugueuses. Afin de bien cerner le problème de l'influence de la rugosité des parois, il a semblé intéressant de faire d'autres expériences avec une trémie de 45°, et ceci dans l'optique de distinguer réellement les phénomènes dus à l'inclinaison de la trémie. Ainsi les figures 1 à 4 correspondent aux expériences effectuées sur le modèle à parois semi-rugueuses.

Au cours de ces expériences, on a distingué, en général, deux types d'écoulements : écoulement en masse et écoulement en cheminée (ou écoulement central). De plus, dès le début de la vidange, tout le matériau descend régulièrement et on observe un mouvement d'ensemble du matériau; c'est ce que l'on observe généralement dans les silos prototype où en grandeur réelle, munis de trémies lisses et suffisamment inclinées. En ce qui concerne le débit massique, on constate expérimentalement, que, pour un orifice de diamètre donné et une paroi latérale de rugosité bien déterminée, celui-ci augmente rapidement avec l'inclinaison et diminue légèrement avec la rugosité.

Les photographies montrent l'établissement progressif du régime d'écoulement permanent qui finit par s'établir dans le modèle. On peut ainsi distinguer dans le massif en mouvement deux parties nettement différentes :

1. Dans la partie basse où l'on distingue, dans le cas de la trémie 45°, deux zones. Une première zone où les rouleaux situés près des parois inclinées s'orientent vers le milieu de la trémie, une deuxième où les rouleaux sont en écoulement.

2. Dans la partie haute, on constate que les particules se mettent en mouvement avec une vitesse moindre près des parois, en raison du frottement sur celle-ci.

Dans le cas où la trémie est inclinée de 60°, les mêmes constatations que précédemment peuvent être faites à une particularité près : la zone d'orientation des rouleaux disparaît, aussi bien pour des parois rugueuses que pour des parois semi-rugueuses. La disparition de cette zone est imputable essentiellement à l'inclinaison de la trémie qui est d'ailleurs très supérieure à l'angle de frottement grains/grains. On a remarqué que tous les rouleaux au sein de la trémie sont presque en chute libre, sauf, bien entendu, au voisinage de la surface de la trémie, là où il y a apparition d'une couche limite. (la même remarque reste valable pour le silo à trémie de 45°).

Ces expériences montrent que le brusque passage de l'état d'équilibre de la matière ensilée au repos à celui de la matière en mouvement par suite de la vidange,

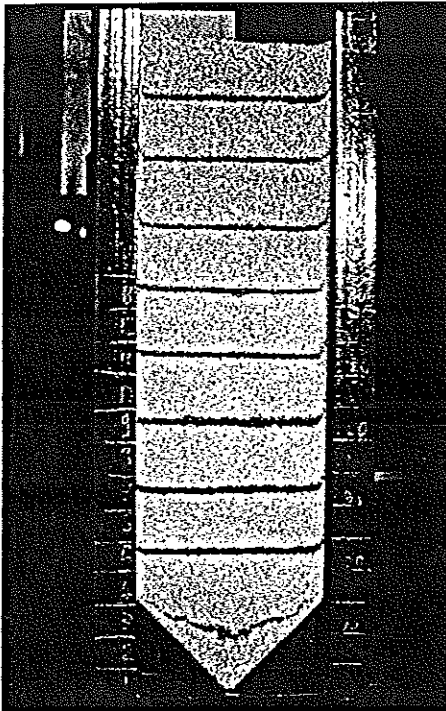


Figure 1 : $t=2s$, Trémie à 45°

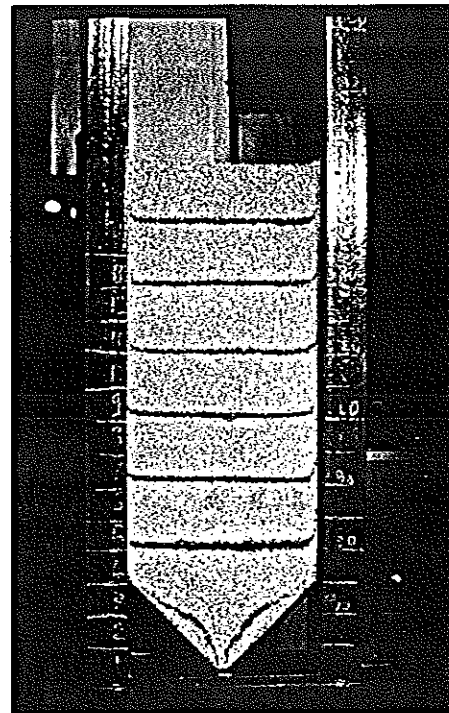


Figure 2 : $t = 14s$

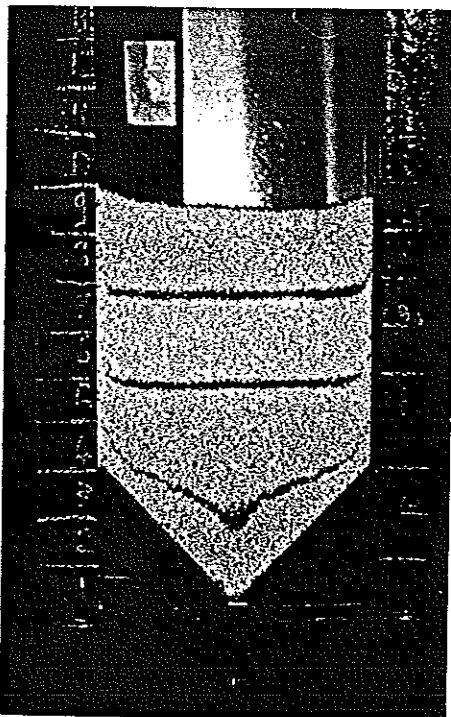


Figure 3 : $t = 26s$

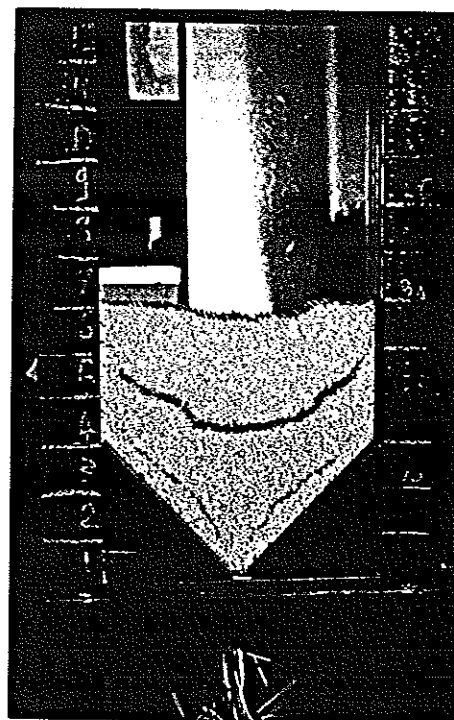


Figure 4 : $t = 34s$

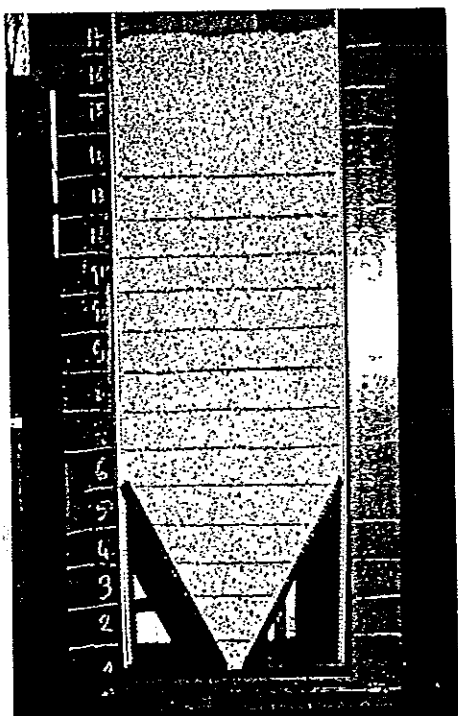


Figure 5 : $t = 0s$, Trémie à 60°
Parois rugueuses

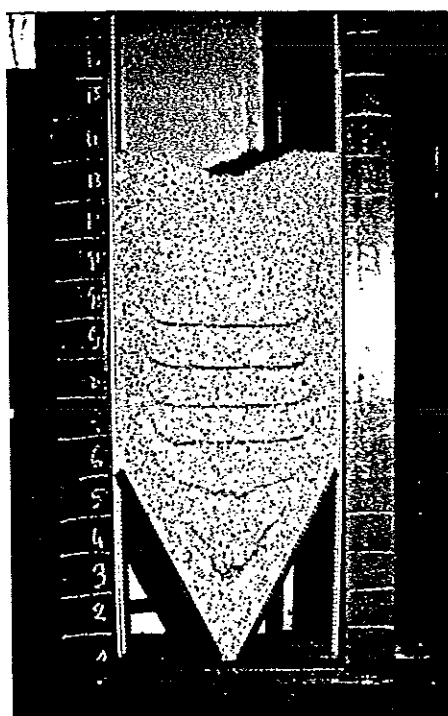


Figure 6 : $t = 10s$

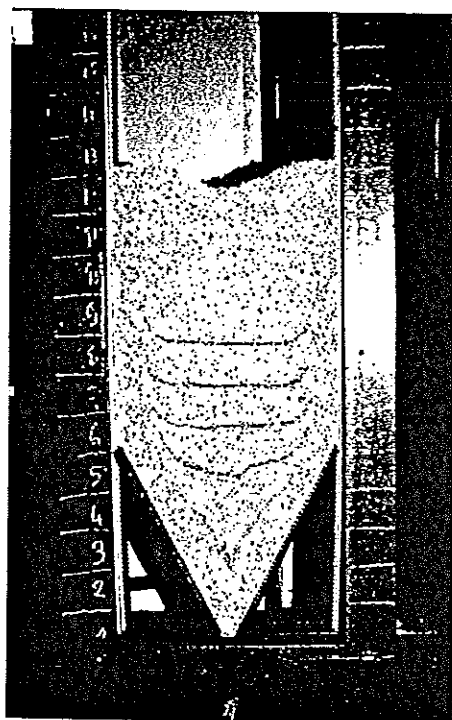


Figure 7 : $t = 13s$

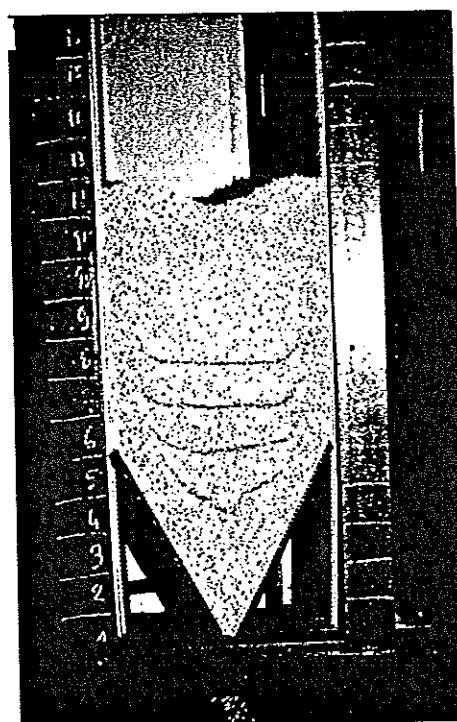


Figure 8 : $t = 17s$

entraîne un déséquilibre total de la masse ensilée ; la plupart des auteurs admettent que cela provoque généralement des augmentations importantes et rapides de la poussée des grains, assimilant ces dernières à des effets dynamiques qui sont actuellement encore très mal définis.

Ces expériences, ainsi réalisées, ont mis en évidence des phénomènes pressentis jusqu'ici mais insuffisamment définis de façon descriptive.

II.2.- Comportement de la surface libre

Dans le cas des parois semi-rugueuses, l'abaissement de la surface libre en fonction du temps est très régulier, sauf au début de l'écoulement où la surface libre du massif n'amorce sa descente que quelques secondes après l'ouverture de l'orifice. Cet effet différé résulte de l'existence d'un frottement interne, qui entraîne une lente propagation du cisaillement dans la masse ensilée. En fait, la surface libre reste plane jusqu'à une certaine hauteur Z bien déterminée, fonction de l'inclinaison (figure 4).

Alors que, dans le cas des parois rugueuses, c'est le phénomène contraire qui se produit. En effet quelques secondes après l'ouverture de l'orifice, on remarque un affaissement de la surface libre (figure 6) et, au fur et à mesure que l'écoulement s'établit au sein du silo, il se développe progressivement un cône faisant avec l'horizontale un certain angle α (figure 7) qui évolue avec le temps.

En observant attentivement le film tourné au cours de l'écoulement, on constate, en fait, que les grains à proximité des parois rugueuses sont freinés et s'immobilisent pendant un certain temps en restant comme collés à la paroi ; mais, une fois que la surface libre initiale dépasse ce niveau, les grains sont relâchés de part la paroi et glissent sur cette dernière en formant un angle d'inclinaison égal à celui du frottement grain/grain (figure 7).

III. CONCLUSION

Les photographies de l'écoulement (figures 5 à 8) montrent bien que la rugosité de la paroi fait passer la vidange au sein du silo de la vidange en semi-masse à la vidange en cheminée, et par conséquent, il va de soi que ces effets de parois peuvent causer des changements non négligeables au niveau du comportement général du massif au cours de l'écoulement (dans la mesure où ces effets peuvent modifier le fonctionnement de la vidange et de ce fait changer l'état de contrainte sur les parois).

IV. REFERENCES

- (1) Abriak N.E. , Etude cinématique et statique des matériaux granulaires , Habilitation à diriger des recherches en Mécanique, U.S.T.L, PP.1- 186, (1993)
- (2) Abriak N.E. , Flow of granular material containing inclusion, International Journal of storing, Handling an Transporting Bulk, Vol.17, N° 3. (1997)

ETUDE DU COMPORTEMENT HYDRODYNAMIQUE D'UN FLUIDE DANS UN ECHANGEUR EN GRAPHITE A AILETTES SPIRALEES INTERNES

S. BESSENET, J.P. LECLERC

<> LSGC-ENSIC
BP 451
1, rue Grandville
54001 NANCY CEDEX

V. RENAUDIN, J.M. HORNUT

<> UHP NANCY 1
IUT Nancy Brabois Le Montet
54601 VILLERS LES NANCY CEDEX

RESUME

Le développement d'un évaporateur à ailettes spiralées internes nous a amené à étudier le comportement hydrodynamique du liquide sur la surface de chauffe par la mesure de la distribution des temps de séjour. Nous avons ainsi obtenu une loi liant le temps de séjour moyen au débit de film et confirmé l'absence de phénomènes de courts-circuits nuisibles au bon fonctionnement de l'appareil.

I. INTRODUCTION

Dans l'optique d'une utilisation optimale de l'énergie dans les procédés industriels, de nombreuses recherches portent actuellement sur le développement d'échangeurs de chaleur performants. Les domaines d'étude généralement explorés sont les surfaces d'échange améliorées ou l'optimisation des performances.

Les recherches menées au sein du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique (L.S.G.C.) dans le groupe Economie Stockage et Valorisation de l'Energie (E.S.V.E.) et en collaboration avec un partenaire industriel LE CARBONE LORRAINE concernent l'utilisation de nouveaux concepts et de nouveaux matériaux permettant de réduire la consommation d'énergie. Ces travaux ont abouti en 1992 au dépôt d'un brevet sur les contacteurs gaz/liquide à ailettes spiralées internes (1). L'intérêt de cette structure en marche d'escalier provient d'une part de l'augmentation de la surface chauffante et donc de la compacité de l'échangeur et d'autre part du rôle de promoteur de turbulence joué par chaque rupture de pente en "cassant" l'écoulement, entraînant ainsi une amélioration des performances thermiques de l'échangeur (2), (3).

Les applications directement visées sont

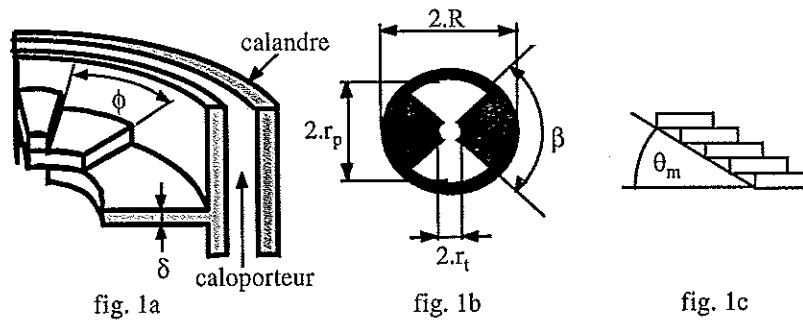
- Ailettes métalliques : agro-alimentaire pour la concentration de jus de fruits, lait...
- Ailettes en graphite : concentration d'acides minéraux, Pompes à chaleur à absorption eau/bromure de lithium

L'objectif de l'étude est la modélisation du comportement hydrodynamique et thermique en vue de l'obtention d'un code de dimensionnement des échangeurs. La première étape présentée ici concerne la détermination du comportement hydrodynamique du fluide à l'intérieur de l'évaporateur à l'aide de l'étude de la distribution des temps de séjour.

II. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

II.1. Description de l'évaporateur

L'évaporateur est constitué d'un empilement de 50 plaquettes en graphite en partie évidées (fig. 1b). Ces plaquettes circulaires sont assemblées et décalées d'un angle ϕ de façon à former un escalier spiralant sur lequel ruisselle le fluide à évaporer. Le chauffage est assuré par un fluide caloporteur circulant dans l'espace annulaire entre les plaquettes et la calandre de l'évaporateur (fig. 1a). L'étanchéité entre plaquettes est assurée par un joint plat.



Les caractéristiques géométriques des plaquettes sont les suivantes :

- β - angle des parties non évidées (90°)
- δ - épaisseur d'une plaquette (10 mm)
- r_p - rayon de pied de l'ailette (25 mm)
- r_t - rayon de tête de l'ailette (9 mm)
- R - rayon extérieur de la plaquette (31,5 mm)

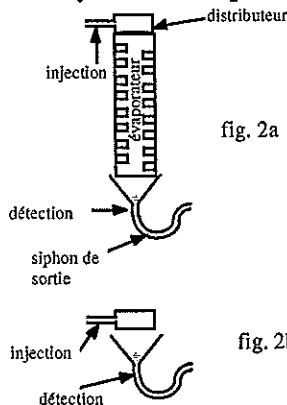
Les caractéristiques de l'empilement de ces ailettes sont les suivantes :

- n_p - nombre total de plaquettes
- n_{pt} - nombre de plaquettes par tour
- n_t - nombre de tours
- ϕ - angle de découvrément en degré (fig. 1a)
- θ_m - pente moyenne de l'escalier spiralant formé en degré (fig. 1c)

$$\theta_m = \arctan\left(\frac{\delta \cdot 360}{\phi \cdot \pi \cdot (r_t + r_p)}\right) \quad n_{pt} = \frac{360}{\phi} \quad n_t = \frac{n_p}{n_{pt}}$$

II.2. Dispositif et méthode pour l'étude de la distribution des temps de séjour (DTS)

Le montage expérimental est constitué d'un distributeur fixé sur l'évaporateur et d'un système de siphon pour récolter le fluide en sortie d'échangeur.



La détermination de la DTS est effectuée par l'injection d'une solution eau/LiBr (1 ml de solution contenant 28 % en masse de LiBr) à l'entrée du distributeur. La détection est assurée par une sonde conductimétrique Tacussel à l'entrée du circuit de récupération du fluide circulant (fig. 2a).

L'acquisition de données est assurée par un PC relié à un boîtier Analog Device 6B. Les paramètres d'acquisition sont une durée de 27 secondes pour 1024 mesures.

Pour assurer un bon mouillage de la surface, nous laissons le fluide circuler durant 30 mn dans l'évaporateur avant toute série de mesures.

De façon à modéliser uniquement l'hydrodynamique de l'échangeur, nous avons tout d'abord réalisé une série de mesures en le supprimant du montage (fig. 2b) afin d'étudier la réponse expérimentale du circuit distributeur + siphon ("signal d'entrée"). Ensuite nous avons effectué les mesures sur le montage complet (fig. 2a).

L'exploitation des courbes expérimentales par le logiciel DTS version 3.1 (4) nous permet ensuite de faire une convolution du signal d'entrée par la réponse impulsionnelle théorique pour modéliser le comportement hydrodynamique de l'échangeur seul.

Afin de minimiser les problèmes de reproductibilité, les courbes exploitées par le logiciel DTS résultent d'une moyenne de 6 à 12 courbes expérimentales.

Le montage expérimental ainsi que les mesures de DTS ont été réalisés en étroite collaboration avec E. SCHAEFFER, technicien du groupe.

III. L'HYDRODYNAMIQUE DES FILMS TOMBANTS

L'hydrodynamique des films tombants a été abondamment étudiée pour des écoulements sur surfaces lisses (5,8) mais les écoulements sur ailettes spiralées sont complexes et peu étudiés à ce jour.

L'étude du régime laminaire par le modèle de Nusselt donne une loi puissance liant la vitesse moyenne du film \bar{u} au critère de Reynolds (5).

$$\bar{u} = \left(\frac{\mu \cdot g}{48 \cdot \rho} \right)^{1/3} \cdot Re^{2/3} \quad \text{soit} \quad \tau = \frac{L}{u} = A \cdot m_f^{-2/3} \quad \text{avec} \quad Re = \frac{4 \cdot m_f}{\mu \cdot P_m}$$

P_m étant le périmètre mouillé, L la distance parcourue dans l'évaporateur, μ la viscosité dynamique du fluide, g l'accélération de la pesanteur, ρ la masse volumique du fluide, et m_f le débit massique du film.

Le régime turbulent donne des caractéristiques de film différentes pour lesquelles on obtient des relations du même type avec des exposants différents (8), (9).

$$\tau = B \cdot m_f^{-n} \quad \text{où } n \text{ varie de } \frac{1}{3} \text{ à } \frac{1}{2} \text{ selon les auteurs.}$$

D'une façon générale, le régime hydrodynamique de fonctionnement de l'échangeur a fait l'objet d'études précédentes pour des ailettes en laiton. Trois régimes ont été trouvés de façon visuelle, le régime sans débordement, le régime avec débordement et le régime de décollement/engorgement (3). L'objectif pour une utilisation optimale de la surface de chauffage est de travailler en régime de débordement pour lequel une fraction du fluide s'écoule sur la surface supérieure des ailettes en suivant une trajectoire "spiralante". L'autre fraction déborde par le trou central et mouille la face inférieure des ailettes en suivant une trajectoire "tombante". Les deux fractions pouvant se remélanger sur l'ailette inférieure. Ainsi la totalité de la surface libre des plaquettes participe à l'échange thermique tout en limitant le décollement du liquide au milieu de l'échangeur (court-circuit).

Le but de l'étude est à la fois de déterminer la loi liant le temps de séjour moyen du liquide à son débit et de vérifier que le domaine de fonctionnement actuel est bien optimal pour une bonne utilisation de la surface.

IV. RESULTATS POUR UNE SPIRALE DE PENTE $\theta_m = 47^\circ$

Les premières expériences menées sur des ailettes en laiton ont démontré que la spirale à $\theta_m = 47^\circ$ qui correspond à $\phi = 32^\circ$ présente les meilleures performances thermiques. C'est donc par cette structure que commence notre étude sur les ailettes en graphite.

IV.1. Résultats bruts

Les courbes obtenues montrent une diminution régulière du temps de séjour avec l'augmentation du débit de film. On ne note pas de distribution bimodale, ce qui confirme l'absence de court circuit et de séparation stricte entre courants spiralants et tombants (fig. 3a).

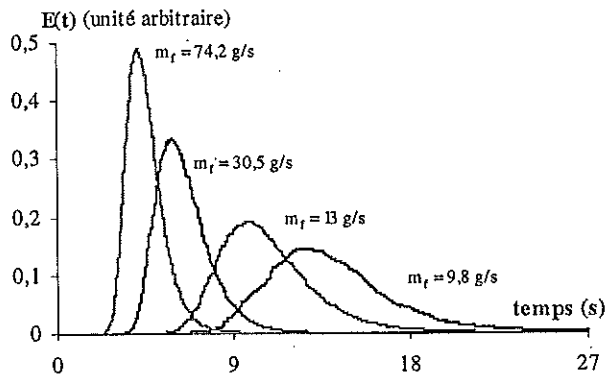


fig.3a évolution de la DTS avec le débit de film

On note de plus un très bon ajustement de la modélisation en cascade de réacteurs parfaitement agités (RPA) avec les courbes expérimentales ce qui ne laisse pas apparaître de volume mort dans l'évaporateur (fig. 3b). Le régime de fonctionnement n'est donc pas celui de décollement/engorgement.

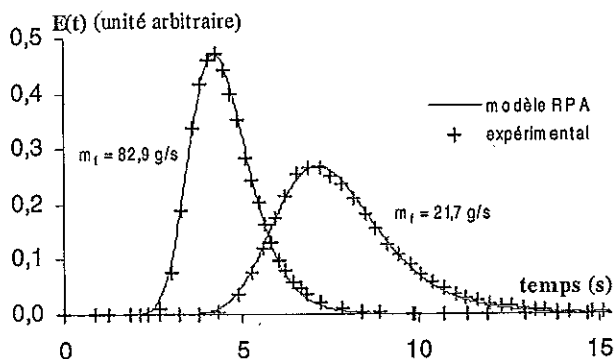


fig.3b exemple de modélisation en cascade de RPA

IV.2. Influence du débit sur le temps de séjour moyen

Les modélisations effectuées pour une gamme de débits de film (m_f) allant de 9,8 g/s à 91,7 g/s montrent une évolution du temps de séjour moyen selon une loi puissance de type Nusselt.

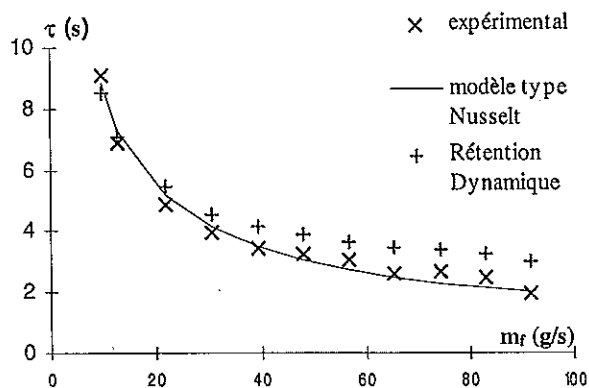


fig. 3c influence du débit sur le temps de séjour

Il apparaît que le modèle de type Nusselt représente très bien l'évolution des temps de séjour avec le débit de film sur toute la gamme étudiée (fig. 3c). L'erreur moyenne sur la totalité des points est de 6,5 % ce qui est relativement faible et correspond à l'ordre de grandeur de l'erreur expérimentale. On estime en effet le temps de réaction lors du lancement de la détection manuelle à 1 ou 2 dixième de seconde, soit 5 à 10 % du temps de séjour pour la plupart des débits.

La loi expérimentale obtenue est la suivante :

$$\tau = 0,4 \cdot m_f^{-2/3}$$

avec τ en s et m_f en kg/s.

Des mesures de rétention dynamique ont aussi été effectuées afin de vérifier les valeurs obtenues par la DTS. Les temps de séjours obtenus sont supérieurs à ceux de la DTS notamment à fort débit (fig. 3c). La différence vient essentiellement du protocole expérimental qui ne permet pas une mesure de rétention sur les plaquettes en graphite seules mais sur l'ensemble évaporateur + distributeur. On surestime ainsi le volume retenu et donc le temps de séjour.

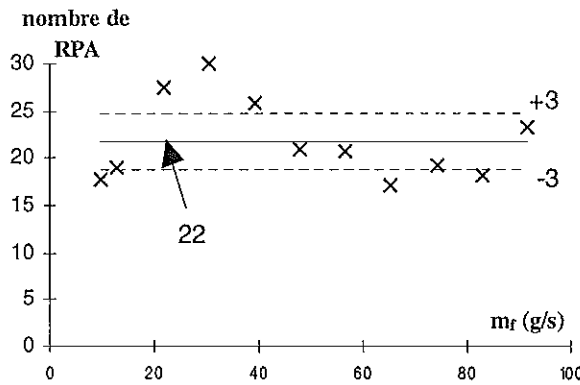


fig. 3d influence du débit sur le nombre de RPA

L'évolution du nombre de réacteurs parfaitement agités en série obtenu par simulation donne une moyenne de 22 sur l'ensemble des points (fig. 3d). On peut noter la grande dispersion des points mais une étude de sensibilité montre qu'une variation de ± 3 unités n'apporte pas d'écart significatif lors de la modélisation. Les valeurs obtenues ne nous permettent donc pas de conclure à ce stade de l'étude.

IV.3. Détermination du type de trajectoire dans l'évaporateur

Afin de déterminer le type de trajectoire suivie par le liquide à l'intérieur de l'évaporateur, nous procédons à une étude de la distribution des temps de séjour en introduisant un tube métallique à l'intérieur de l'appareil. Ce tube va forcer le liquide à suivre une trajectoire spiralante en s'écoulant uniquement sur la surface supérieure des ailettes en graphite.

La comparaison avec les temps de séjour obtenus sans le tube central nous permet d'exclure une trajectoire purement tombante. En effet, les temps ainsi mesurés sont du même ordre que ceux mesurés précédemment (fig. 3e). L'écart moyen de 7,5 % sur l'ensemble des points est essentiellement dû aux débits de 30,5 et 39,2 g/s (écarts égaux à 15 et 20%) alors que le reste de la gamme de débit donne des résultats très proches.

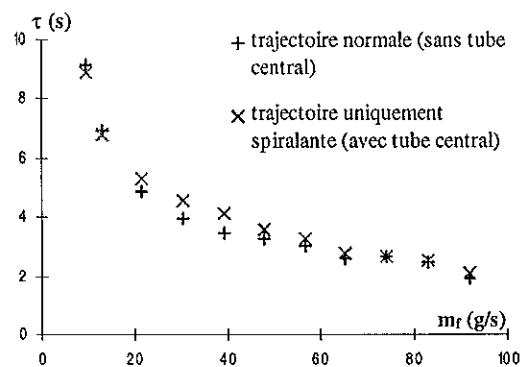


fig. 3e influence du tube central sur le temps de séjour

Le calcul des distances parcourues dans l'échangeur montre que de la trajectoire tombante (0,756 m) est plus courte d'environ 25% que la trajectoire spirale (0,975 m). La différence entre les temps de séjour n'étant pas aussi importante, il semble que le liquide suive majoritairement la structure géométrique en spirale, augmentant ainsi la durée de contact avec les parois chauffantes.

V. CONCLUSION

Les résultats des modélisations de l'écoulement en une série de réacteurs parfaitement agités nous permettent de tirer différentes informations sur le comportement hydrodynamique de l'évaporateur.

La très bonne concordance entre résultats expérimentaux et modélisation indique qu'il n'y a pas de court-circuit ni de séparation stricte entre un écoulement suivant la spirale et un autre suivant une trajectoire tombante. De même on ne détecte pas de volume mort au sein de l'évaporateur.

Les temps de séjour obtenus suivent une loi puissance de type Nusselt qui pourra être utilisée dans le cadre d'un code de calcul pour le dimensionnement de ce type de contacteurs gaz/liquide.

La comparaison entre écoulements libres et forcés par un tube central montre que la structure en spirale influence bien l'écoulement dans le sens escompté, justifiant ainsi le développement de cette géométrie. Il est néanmoins apparu lors d'une visualisation de l'écoulement à l'aide d'un endoscope qu'une partie du liquide déborde au centre de l'échangeur. Nous estimons donc que la partie de liquide tombant retrouve en arrivant sur l'ailette inférieure une trajectoire en spirale qui, sur la distance de l'échangeur, reste donc majoritaire.

REFERENCES

- (1) P. Le GOFF : Contacteurs Gaz/Liquide à film ruisselant. Brevet d'invention n° 92-11-234 déposé par Péchiney Recherche le 15/09/1992.
- (2) B. SCHWARZER, M. SEMNANI RAHBAR, H. Le GOFF, P. Le GOFF, Un nouvel évaporateur à film ruisselant dans un tube à ailette spiralée intérieure, *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 30 (7), 413-417 (1993)
- (3) V. RENAUDIN, J.M. HORNUIT, P. Le GOFF, Improvement of multifunctional heat exchanger applied in industrial processes, Contribution of LSGC to the Final report Contract JOU2-CT94-0405, 47-60 (1996.)
- (4) J.P. LECLERC, C. DETREZ, A. BERNARD, D. SCHWEICH, DTS : un logiciel d'aide à l'élaboration de modèles d'écoulements dans les réacteurs, *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, 50 (5), 640-656 (1995)
- (5) E. GANIC, K. MASTANALAH, Hydrodynamics and heat transfer in falling film flow, *Fundamentals of low Reynolds number forced convection*, Hemisphere publishing corporation, 487-527 (1981)
- (6) K.J. CHU, A.E. DUCKLER, Statistical characteristics of thin wavy films, *AICHE Journal*, 20 (4), 695-706 (1974)
- (7) K.J. CHU, A.E. DUCKLER, Statistical characteristics of thin wavy films, *AICHE Journal*, 21 (3), 583-593 (1975)
- (8) P.G. KOSKY, Thin liquid films under simultaneous shear and gravity forces, *Int. Journal of Heat and Mass Transfer*, 14, 1220-1224 (1971)
- (9) I. MUDAWWAR, M. EL-MASRI, Momentum and heat transfer across freely-falling turbulent films, *Int. Journal of Multiphase flow*, 12 (5), 771-790 (1986)

CHOIX DE TRACEURS POUR LA DETERMINATION DES TEMPS DE SEJOUR DES FARINES DANS LES CONDITIONNEURS

J. MABIT, Y. RIOU	<>	TECALIMAN BP 71627 - rue de la Géraudière 44316 NANTES CEDEX
B. NOVALES	<>	UPHYTEC - INRA BP 71627 44316 NANTES CEDEX
J. LEGRAND	<>	LGP - Université de NANTES - CRTT BP 406 44602 SAINT NAZAIRE

RESUME

L'efficacité des traitements hydrothermiques dans les procédés mis en oeuvre pour l'alimentation animale dépend du couple de paramètres (temps, température). Dans les procédés continus, la maîtrise du paramètre temps nécessite le contrôle de la distribution des temps de séjour (DTS). L'objectif de l'étude est de rechercher des traceurs, compatibles avec les farines mises en oeuvre dans l'industrie de l'alimentation animale, et de les tester. Deux traceurs ont été étudiés : la fluorescéine qui est imprégnée dans la farine et le chlorure de sodium dont on sature la farine. La fluorescéine est détectée par analyse d'image et le chlorure de sodium par conductimétrie après extraction. L'utilisation de ces deux traceurs a été testée pour étudier la DTS dans un conditionneur pilote.

I. INTRODUCTION

Dans l'industrie de l'alimentation animale, différents procédés utilisent un traitement hydrothermique (1) soit pour la destruction d'agents pathogènes, soit afin d'améliorer la qualité nutritionnelle de l'aliment. Ce traitement consiste à incorporer de la vapeur d'eau pendant une durée variant de quelques secondes à quelques minutes suivant la nature du procédé et du produit. L'efficacité du traitement dépend du couple de paramètres temps-température. Dans l'industrie, les procédés utilisés pour réaliser ce traitement sont en général continus. Le paramètre temps est le plus difficile à maîtriser en raison du phénomène de distribution des temps de séjour (DTS).

Dans le cas de la destruction d'agents pathogènes il est important que la durée du traitement s'applique à l'ensemble des particules. En effet, les particules ayant les temps de séjour les plus courts peuvent quitter le procédé sans avoir subi la totalité du traitement. Les traceurs utilisés pour la détermination de la distribution des temps de séjour sur des conditionneurs doivent répondre à certains critères. Le traceur doit être représentatif de l'écoulement du produit (masse volumique et granulométrie identiques à celles du produit). Le traceur est injecté en faible quantité pour ne pas perturber l'écoulement, il doit donc être détectable à faible dose dans l'aliment. Le traceur doit résister thermiquement et rester stable à la vapeur.

Les traceurs utilisés sont de préférence des traceurs « internes ». Ces traceurs sont une des composantes du produit à analyser ou bien une molécule fixée sur les particules.

Dans la présente étude, deux traceurs différents ont été utilisés pour la détermination des distributions de temps de séjour dans un conditionneur expérimental : la fluorescéine et le chlorure de sodium. La fluorescéine est une molécule qui possède des propriétés de fluorescence ce qui la rend donc facilement détectable. Une fois marquées à la fluorescéine, les particules sont facilement détectées à l'aide d'un système de vision artificielle adapté. Le chlorure de sodium a été choisi du fait de son utilisation dans l'alimentation animale. Il possède de plus une très bonne solubilité dans l'eau (36,2 g pour 100 g d'eau à 25°C) et une simple mesure de conductivité permet de le doser.

II. CHOIX DES TRACEURS

II.1. Description de la matière première

L'aliment utilisé pour cette étude est un maïs broyé sur un broyeur de type Forplex équipé d'une grille de 3 mm. L'aliment obtenu possède un diamètre médian de 593 μm , une masse volumique apparente de 617 g/l pour un taux d'humidité de 13%.

II.3. Description des traceurs retenus

Deux substances, la fluorescéine et le chlorure de sodium ont été retenues comme traceurs. La fluorescéine possède la propriété d'être fluorescente ce qui la rend facilement détectable dans le produit. Le chlorure de sodium est présent dans les farines de l'alimentation animale.

II.3.1. Traceur à base de fluorescéine

Le marquage à la fluorescéine est réalisé par imbibition de particules de maïs à l'aide d'une solution aqueuse de fluorescéine à 5 g/l. Après une mise en contact de 48 heures, le traceur est lavé puis séché. La granulométrie moyenne observée après absorption de la fluorescéine est de 771 μm . La fluorescéine a tendance à amalgamer les particules entre elles. La masse volumique apparente est peu différente (592 g/l).

Les particules marquées à la fluorescéine sont dénombrées par analyse d'images (2). Le système de prise d'images se compose d'une lampe à vapeur de mercure de 200W, de deux filtres pour la sélection des longueurs d'onde d'excitation et d'émission de la fluorescence de la fluorescéine et d'une caméra CCD. La caméra est positionnée à environ 15 cm au-dessus de l'échantillon. L'ensemble du système est enfermé dans une boîte noire afin de supprimer toute radiation externe. Cinq images sont acquises par échantillon. Chaque image enregistrée correspond à environ une surface carrée de 3 cm de côté. Les longueurs d'onde d'excitation et d'émission des filtres pour l'obtention de la fluorescence de la fluorescéine sont respectivement de 486 nm pour l'excitation et de 510 nm pour l'émission. Les images sont digitalisées avec une résolution de 512 x 512 pixels. Afin de déterminer la proportion de particules fluorescentes dans les échantillons, l'érosion, qui est une opération de base de la morphologie mathématique, est appliquée aux images. L'érosion est appliquée à l'image à l'aide d'un élément structurant carré avec un pixel de référence situé au centre du carré. L'opération d'érosion consiste à appliquer au pixel de référence la valeur minimum observée sur tous les pixels recouverts par l'élément structurant. Seuls les objets plus larges que l'élément structurant survivent à l'érosion. En appliquant successivement l'érosion

jusqu'à ce que toutes les particules aient disparues de l'image, on obtient ainsi une estimation de la proportion de particules fluorescentes dans l'échantillon.

Pour chaque image, 100 étapes d'érosion ont été effectuées. Le volume de l'image est mesuré à chaque pas. Ce volume correspond à la somme des niveaux de gris de l'image et est significatif de la disparition des particules à chaque étape d'érosion. Des courbes d'érosion sont obtenues en rassemblant le volume de l'image initiale et les valeurs correspondant au volume après chaque étape d'érosion. Une gamme étalon comprenant entre 0 et 25 % de particules fluorescentes est réalisée. Une régression en composantes principales est réalisée sur les courbes d'érosion obtenues pour la gamme étalon. Cette régression permet d'obtenir une équation de prédiction qui sera ensuite utilisée pour déterminer le pourcentage de particules fluorescentes dans les échantillons collectés au cours des DTS.

II.3.2. Traceur à base de chlorure de sodium

Une masse de 50 grammes de farine de maïs est immergée dans 100 ml d'une solution de chlorure de sodium à 320 g/l pendant 24 heures. Après absorption, le traceur est lavé puis séché à l'étuve. Le maïs absorbe 180 à 200 grammes de chlorure de sodium par kilogramme. La granulométrie observée après l'absorption du chlorure de sodium est peu différente de celle de la farine de maïs. Le diamètre médian est de 610 µm. Cette différence est peu significative. La masse volumique apparente est de 615 g/l.

Le chlorure de sodium est ensuite dosé dans les échantillons par conductimétrie après extraction à l'eau distillée, 150 ml pour 100 g de farine de maïs. Chaque échantillon est agité à 1200 tours/minutes au moyen d'une agitation mécanique muni d'un mobile d'agitation à 2 pales droites pendant 3 minutes. Une durée d'agitation plus importante augmente la conductivité et le bruit de fond. En effet, la conductivité de l'échantillon stagne entre 1 et 3 minutes d'agitation, au-delà elle s'avère plus importante. Les éléments contenus dans l'aliment comme les minéraux et les protéines solubles créent un bruit de fond. La mesure de conductivité ne peut être faite directement après l'arrêt de l'agitation, de fortes variations de conductivité étant observées. La mesure de conductivité doit être effectuée dans le surnageant une fois les fines particules de maïs décantées c'est à dire 1 à 2 heures après l'arrêt de l'agitation. La conductivité de chaque échantillon est divisée par la conductivité d'une solution de référence de chlorure de sodium à 2 g/l mesurée en même temps que l'échantillon. Cela permet notamment d'annuler l'effet de la température sur la conductivité.

De la même manière que pour la méthode à la fluorescéine, une gamme étalon a été réalisée avec des teneurs en chlorure de sodium variant de 0 à 5%.

III. MISE EN ŒUVRE DANS UN CONDITIONNEUR

III.1. Description du conditionneur

Le conditionneur utilisé dans cette étude est un conditionneur expérimental développé à l'INRA de Nantes (3) (4). Le conditionneur à vitesse variable est alimenté à l'entrée par un système bi-vis. Le conditionneur possède un diamètre intérieur de 100 mm et une longueur de 544 mm. Le volume accessible au produit est égal à 2,92 litres. Il est équipé d'un rotor unique de muni de 32 pales, inclinées à 3 degrés, réparties en 4 rangées de 8 pales. A la sortie du conditionneur, un tapis roulant permet de recueillir l'aliment. Une

injection de vapeur peut être réalisée à l'intérieur du conditionneur pour réaliser un traitement hydrothermique.

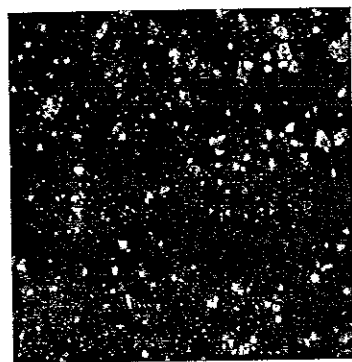
III.2. Description des méthodes

Les essais se sont déroulés sur le produit sec sans injection de vapeur. Les mesures de DTS ont été réalisées suivant un débit d'environ 40 kg/h de farine de maïs. La vitesse de rotation du conditionneur est réglée à 42 tours/minute. Ces réglages permettent d'obtenir un temps de passage de 107 secondes. Le temps de passage est calculé à partir du volume occupé par l'aliment dans le conditionneur. Le taux de remplissage du conditionneur est estimé à 66%. Pour chacune des expériences, le pilote fonctionne en régime permanent et chaque traceur est introduit successivement suivant une injection impulsion. La masse de traceur est de 50 grammes. Un prélèvement de 21 échantillons suivant une période de 10 secondes est réalisé sur le tapis roulant. Les 30 premières secondes ne sont pas conservées sur le tapis. La durée de la DTS est donc de 230 secondes

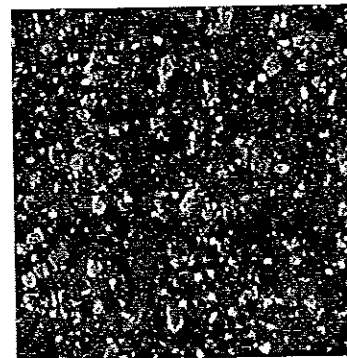
III.3. Résultats

Fluorescéine :

La figure 1 montre un exemple d'image obtenue à l'aide du système de prise d'acquisition. Les particules fluorescentes apparaissent blanches sur un fond noir. Naturellement, plus la teneur en particules marquées est forte et plus le nombre de particules fluorescentes est important dans l'image.



5 % de particules marquées



25 % de particules marquées

Figure 1 : Images de particules fluorescentes dans l'aliment

Les courbes d'érosion correspondant à ces images sont données dans la figure 2. On voit que les courbes comportent une diminution du volume à chaque étape d'érosion pour atteindre le volume minimal de l'image. La décroissance varie en fonction du nombre de particules fluorescentes présentes dans l'image. La régression réalisée sur l'ensemble des images obtenues pour les échantillons d'étalonnage a donné un coefficient de corrélation $r^2=0,992$. L'équation obtenue lors de cette régression a ensuite été appliquée aux échantillons collectés durant les expériences de DTS.

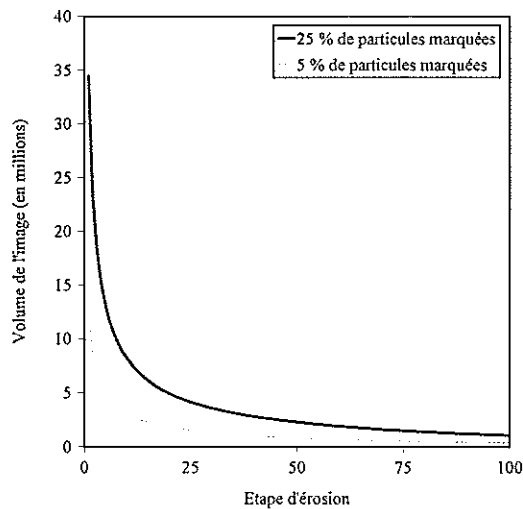


Figure 2: Courbes d'érosion

Chlorure de sodium :

Les expériences réalisées sur la gamme étalon montrent que le pourcentage de traceur est proportionnel à la conductivité. Un coefficient de corrélation de 0,997 a été obtenu entre les valeurs mesurées de la conductivité, γ , et les teneurs en chlorure de sodium dans les échantillons. A partir de ces résultats, il a été possible de formuler une équation de prédiction de la teneur en chlorure de sodium dans les échantillons suivant la formule suivante :

$$\% \text{ traceur} = 2,163 \times \frac{\gamma \text{ échantillon}}{\gamma \text{ référence}} - 1,687$$

Mesure de DTS :

Les courbes de DTS obtenues suivant les deux méthodes sont données après correction du taux de récupération de chaque traceur à 100% et normées en temps (Figure 3). Les premières particules apparaissent au bout de 40 secondes tandis que les dernières sortent

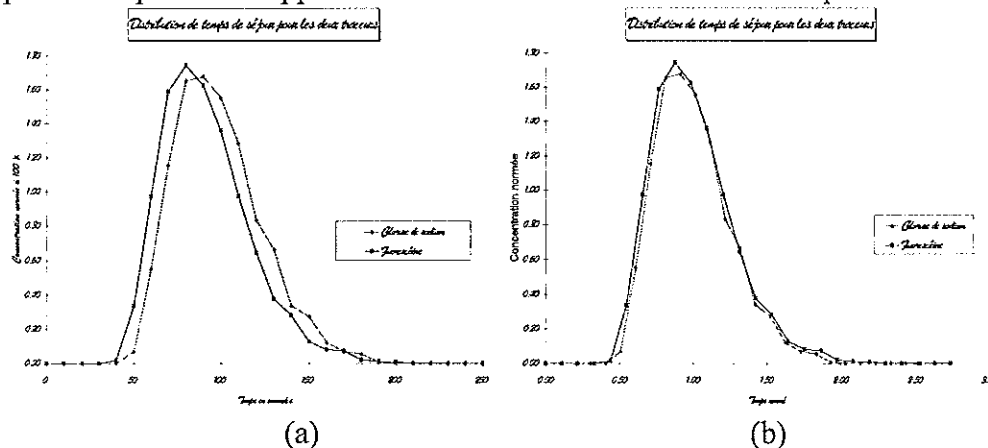


Figure 3 : Courbes de distribution des temps de séjour corrigées par le taux de récupération : (a) Evolution temporelle ; (b) Evolution en fonction du temps normé par le temps de séjour moyen

à 200 secondes. Les temps de séjour moyens sont de 98,4 et 91,2 secondes respectivement pour la fluorescéine et le chlorure de sodium. Les deux méthodes

donnent des distributions strictement identiques avec un léger décalage dans le temps. Ce décalage pourrait être dû à la différence de taille des particules obtenues après marquage des particules soit à la fluorescéine soit au chlorure de sodium. En effet des travaux réalisés au laboratoire (en cours de publication) ont montré que plus les particules étaient grosses et plus elles séjournèrent longtemps dans le conditionneur. Les particules marquées à la fluorescéine ont une granulométrie moyenne plus importante que celles marquées au chlorure de sodium (771 et 610 μm respectivement). Cette différence pourrait expliquer le décalage observé sur les distributions. La différence entre le temps de séjour moyen et le temps de passage, est due à la présence d'un volume mort, qui est défini par l'espace d'environ 3 mm compris entre les pales et le fond du conditionneur.

IV. CONCLUSION

Les deux méthodes présentées dans ces travaux, permettent d'obtenir des distributions des temps de séjours équivalentes. Le principal avantage de la méthode au chlorure de sodium est qu'elle nécessite un matériel peu coûteux et simple d'utilisation. De plus, cette méthode est celle qui respecte le plus les contraintes imposées en milieu industriel (acceptabilité du traceur). Cependant le chlorure de sodium ne peut s'utiliser que dans un aliment possédant une faible conductivité. La fluorescéine possède l'avantage d'être extrêmement sensible ce qui permet de la détecter même à des doses très faibles (de l'ordre de 100 ppm). Ceci est intéressant pour la détection du début et de la fin des distributions qui représentent pour la destruction d'agents pathogènes les points clés. La fluorescéine n'est actuellement pas acceptée au niveau industriel mais elle pourrait être remplacée par d'autres molécules fluorescentes. C'est le cas l'érythrosine qui possède des propriétés de fluorescence beaucoup moins fortes que la fluorescéine mais qui est un additif alimentaire couramment utilisé en alimentation animale. Cette méthode présente en outre l'avantage de permettre l'introduction de plusieurs traceurs lors de la même mesure de DTS en utilisant des molécules possédant différentes propriétés de fluorescence. Ceci nous a permis d'étudier le comportement de différentes classes granulométriques de particules au cours du traitement.

V. REFERENCES

- (1) Israelsen M., Jacobsen E. E., Dorthe Hansen I., High products temperature key to salmonella control, Feedstuffs, Vol. 66, N° 9, 31-37(1994).
- (2) Novales B., Bertrand D., Devaux M.F., Robert P., Multispectral fluorescence imaging for the identification of food products, J. Sci. Food Agric., Vol. 71, N° 3, 376-382(1996).
- (3) Papineau P., Sire A., Un mini-conditionneur expérimental pour les pulvérulents, Cahier des Techniques INRA, N° 32, Décembre, 3-12(1993).
- (4) Vandeville P., Giboulot B., Sire A., Papineau P., Guibert D., De Monredon F., Melcion J.P., Drouet E., Analyse du fonctionnement d'un conditionneur de vapeur, Récents Progrès en Génie des Procédés, Edition Tech. Doc, Lavoisier, Vol. 11, N°54, 129-134(1997).
- (5) Villermaux J., Réacteurs chimiques, Techniques de l'Ingénieur, Vol. J84, 11-19(1996).

Remerciements : *Les auteurs remercient l'ACTIA qui a participé financièrement à la réalisation du programme de recherche.*

EXPERIENCES DE DISPERSION EN MILIEUX POREUX PERIODIQUES BIDIMENSIONNELS

S. DIDIERJEAN, A. SOUADNIA, C. MOYNE

<> LEMTA
BP 160 - 2, av. de la Forêt de Haye
54504 VANDŒUVRE CEDEX

H.P. AMARAL-SOUTO <> Instituto Politécnico IPRJ - UERJ
Brésil - NOVA FRIBURGO

RESUME

On présente une méthode expérimentale d'étude de la dispersion en milieux poreux bidimensionnels fabriqués par photolithographie. Un petit volume de bleu de méthylène est introduit dans l'écoulement d'eau au sein du milieu poreux. Aux faibles concentrations, l'absorbance de la solution colorée est proportionnelle à sa concentration en bleu de méthylène. Les variations spatiales et temporelles du champ de concentration sont obtenues par l'analyse des images du processus enregistrées par une caméra CCD équipée d'un filtre interférentiel. En comparant les profils expérimentaux avec la solution de l'équation macroscopique de convection-diffusion, le coefficient de dispersion longitudinal est identifié. Ses variations en fonction du nombre de Péclet sont comparées aux résultats numériques obtenus pour des géométries identiques.

I. INTRODUCTION

I.1. Dispersion en milieux poreux

La dispersion est le résultat macroscopiquement observable du mélange de deux fluides miscibles qui s'écoulent au travers d'une structure poreuse. Parmi les mécanismes de mélange, on peut distinguer : la diffusion moléculaire résultant du mouvement brownien des molécules de soluté, et tous les mécanismes de mélange convectif relatifs à la complexité de l'écoulement des fluides au sein du milieu.

I.2. Du microscopique au macroscopique : milieux poreux périodiques

Les phénomènes qui se déroulent dans un milieu poreux doivent normalement être décrits à l'échelle des pores. Cependant, une telle description ne peut être appliquée dans la pratique du fait de la complexité de la géométrie du milieu. Le passage entre les niveaux microscopique et macroscopique peut être accompli de différentes façons parmi lesquelles la méthode de prise de moyenne sur un volume élémentaire représentatif (1). Toutes les méthodes s'accordent sur le fait qu'aux temps longs, le transport à l'échelle macroscopique est bien décrit par une équation classique de convection-diffusion. La méthode de prise de moyenne se prête particulièrement bien à l'étude des milieux poreux spatialement périodiques. Ces milieux sont formés d'une cellule unité reproduite périodiquement dans l'espace. L'étude de milieux poreux périodiques est intéressante numériquement car le problème pour déterminer les propriétés de transport dans de telles structures est réduit à un problème de convection-diffusion sur une cellule unité.

I.3. Les objectifs de l'étude

Les milieux poreux que l'on rencontre dans la pratique ne possèdent a priori pas d'ordre à grande échelle. Il est donc important de comprendre quels aspects de la dispersion,

mesurée dans des structures périodiques sont des artefacts dûs à la périodicité. L'objectif de ce travail est donc la mise au point d'un dispositif expérimental permettant d'étudier le processus de dispersion dans des structures bidimensionnelles périodiques ou totalement aléatoires.

II. PRINCIPE DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

II.1. Fabrication des milieux poreux par photolithographie

L'originalité de l'étude expérimentale de la dispersion que nous présentons ici réside dans la géométrie des milieux poreux. Ils sont obtenus par photopolymérisation contrôlée d'une résine. Une éprouvette en verre de 130 mm de longueur, de 25 mm de large et 5 mm de hauteur est remplie de résine photo-sensible. Un masque représentant la géométrie de la structure poreuse est placé sur la plaque de verre supérieure. L'ensemble est éclairé par un insolateur UV. Le milieu poreux obtenu après élimination de la résine liquide résiduelle est formé de cylindres de section quelconque de 5 mm de hauteur (figure 1). Ils se caractérisent par une très bonne définition géométrique.

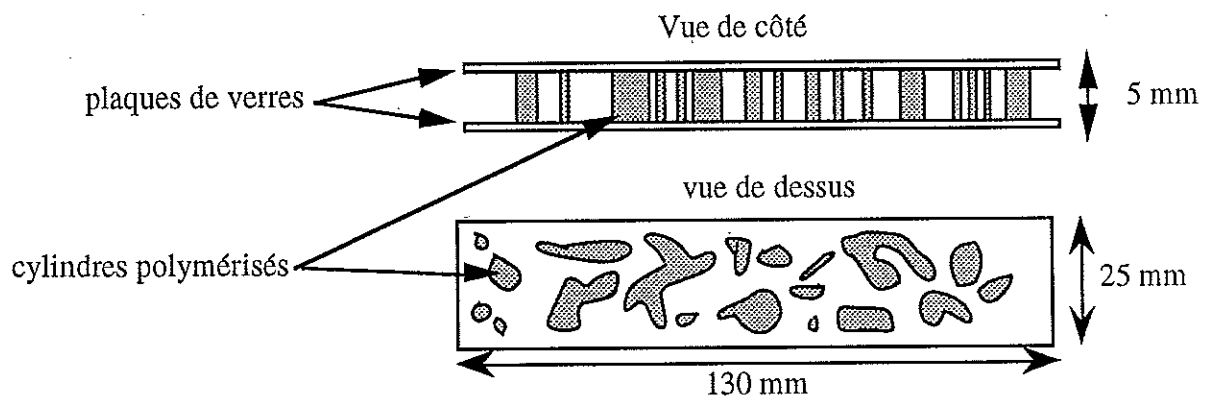


Figure 1 : Milieu poreux fabriqué par photolithographie.

II.2. Ensemble expérimental

Les expériences de dispersion en milieux poreux reposent sur la mesure de l'évolution de la concentration d'un traceur coloré introduit dans l'écoulement au sein du milieu. Le milieu poreux fabriqué par photolithographie et inséré entre deux canalisations de même section. Le milieu poreux est saturé en eau.

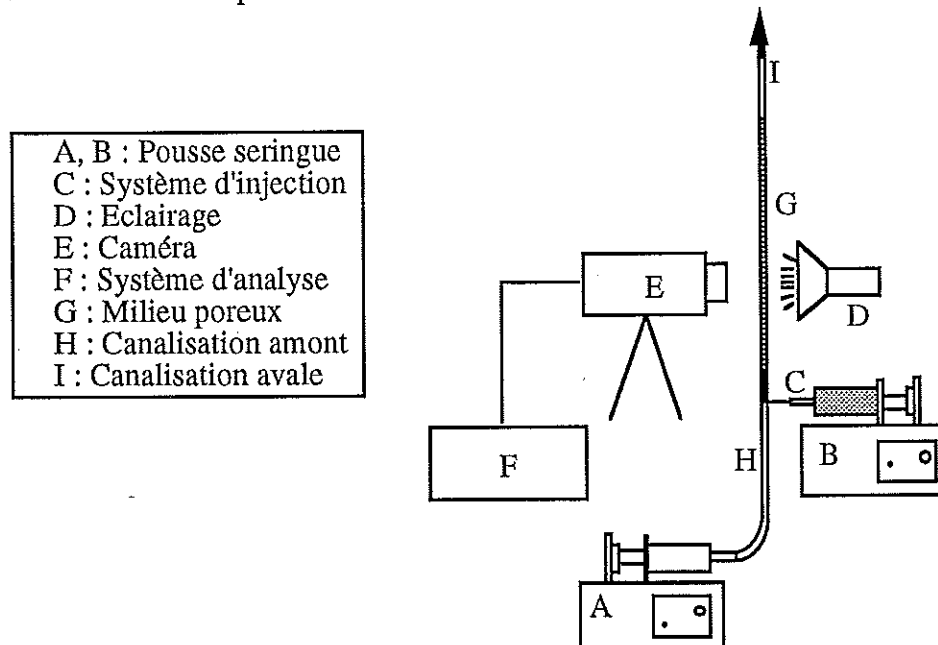


Figure 2 : Dispositif expérimental d'étude de la dispersion en milieux poreux.

Le traceur coloré est injecté à l'entrée du milieu sous la forme d'un Dirac en espace et en temps. L'ensemble caméra analyseur d'images, utilisable car la structure est transparente, permet de suivre l'évolution spatiale et temporelle du champ de concentration. L'ensemble expérimental est présenté sur la figure 2. Le bleu de méthylène en solution dans l'eau a été choisi comme traceur.

III. MESURE DE CONCENTRATION PAR METHODE OPTIQUE

III.1. Spectrophotométrie

La spectrophotométrie a pour objet la mesure, en fonction de la longueur d'onde, du rapport de deux grandeurs photométriques de même nature. Lorsqu'un faisceau de lumière qui transporte un flux énergétique incident F_0 frappe la surface d'un matériau non luminescent, il subit plusieurs altérations. Une partie du faisceau est réfléchi et renvoyée dans l'espace situé du côté du faisceau incident ; une autre partie est transmise et passe à travers le matériau ; une troisième enfin est absorbée et transformée en chaleur par interaction avec la matière. La spectrophotométrie mesure les rapports de chacun de ces flux modifiés au flux incident en fonction de la longueur d'onde.

III.2. Loi de Beer-Lambert

Un cas particulier de la spectrophotométrie est le cas où le facteur d'absorption suit la loi de Beer-Lambert. C'est le cas des filtres de verre et des filtres liquides. Lorsque le flux de rayonnement F à la longueur d'onde λ traverse l'épaisseur élémentaire dx d'un matériau, la diminution de flux due à l'absorption s'écrit :

$$dF_\lambda = -\alpha_\lambda F_\lambda dx \quad (1)$$

où α_λ est le coefficient d'absorption du matériau à la longueur d'onde λ . Si $F_{0\lambda}$ est le flux en $x=0$, à la distance x ce flux devient :

$$F_\lambda(x) = F_{0\lambda} \exp(-\alpha_\lambda x) \quad (2)$$

et le facteur de transmission de l'épaisseur x a pour valeur : $\tau_\lambda = \exp(-\alpha_\lambda x)$

On considère souvent la densité optique du corps absorbant définie comme le logarithme de l'inverse du facteur de transmission. En spectrophotométrie on a coutume d'utiliser le logarithme en base 10. L'absorbance D_λ est alors définie comme :

$$D_\lambda = \alpha_\lambda x / \log(10) \quad (3)$$

Le filtre liquide le plus simple est constitué d'une substance colorée dans un solvant supposé sans absorption. On désigne par c la concentration du colorant et par x l'épaisseur du filtre. Si la concentration reste faible, la loi de Beer-Lambert s'applique :

$$F_\lambda(x) = F_{0\lambda} \exp(-\epsilon_\lambda c x) \quad (4)$$

avec ϵ_λ le coefficient d'extinction moléculaire. Dans ce cas, la densité optique est :

$$D_\lambda = \epsilon_\lambda x c / \log(10) \quad (5)$$

III.3. Les éléments d'un spectrophotomètre : application au dispositif expérimental proposé

Dans un spectrophotomètre, on trouve toujours 4 éléments fondamentaux :

- La *source* a pour but de fournir, dans tout le domaine spectral d'analyse, un rayonnement continu. La source choisie ici est une source de lumière blanche.

- Le *monochromateur* permet de sélectionner une bande de longueur d'onde, la plus étroite possible parmi le spectre d'émission de la source. Dans le dispositif expérimental d'étude de la dispersion, on utilise un filtre interférentiel dont le coefficient de transmission est maximum à 665 nm, longueur d'onde correspondant au maximum d'absorption du bleu de méthylène. Il est placé devant l'objectif de la caméra.

- Le *récepteur physique* reçoit le flux transporté par la radiation quasi-monochromatique issue du monochromateur et le transforme en courant électrique mesurable. La qualité fondamentale du récepteur est sa linéarité. Les photodiodes

constituant la matrice de la caméra CCD utilisée dans le dispositif expérimental proposé constituent l'ensemble des récepteurs. Chaque cellule photosensible produit une différence de potentiel proportionnelle à l'intensité lumineuse reçue.

- *L'appareil de mesure* reçoit le courant délivré par le récepteur par l'intermédiaire d'un amplificateur. Dans la caméra CCD, l'amplificateur est précédé de registres de décalage et de transfert gérés par un séquenceur numérique. Le signal vidéo délivré par la caméra est ensuite numérisé. Il pourra être traité par un logiciel d'analyse d'images.

III.4. Etalonnage et précision de la mesure

Il s'agit de vérifier que le signal délivré par l'ensemble caméra - filtre interférentiel est bien proportionnel à la concentration du bleu de méthylène en solution dans l'eau.

Dans une éprouvette de même dimension que celle qui va recevoir les milieux poreux étudiés, on introduit une solution de bleu de méthylène de concentration connue c . Soit N le niveau de gris moyen de l'image de l'éprouvette. Soit N_0 le niveau de gris de l'image de l'éprouvette remplie d'eau. Si le dispositif est apte à mesurer une concentration, N et N_0 doivent satisfaire la relation suivante :

$$N = N_0 \exp(-\epsilon c d) \quad (6)$$

avec $d = 5$ mm l'épaisseur de l'éprouvette. Sur la figure 3, on compare l'absorbance du bleu de méthylène mesurée au spectrophotomètre à $\lambda = 664$ nm et celle déduite du calcul $\log_{10}(N_0/N)$ mesuré par la caméra vidéo. On peut alors constater une parfaite concordance entre les deux mesures et considérer que notre dispositif est bien en mesure de donner l'évolution de la concentration d'un traceur coloré injecté dans l'écoulement au sein du milieu poreux.

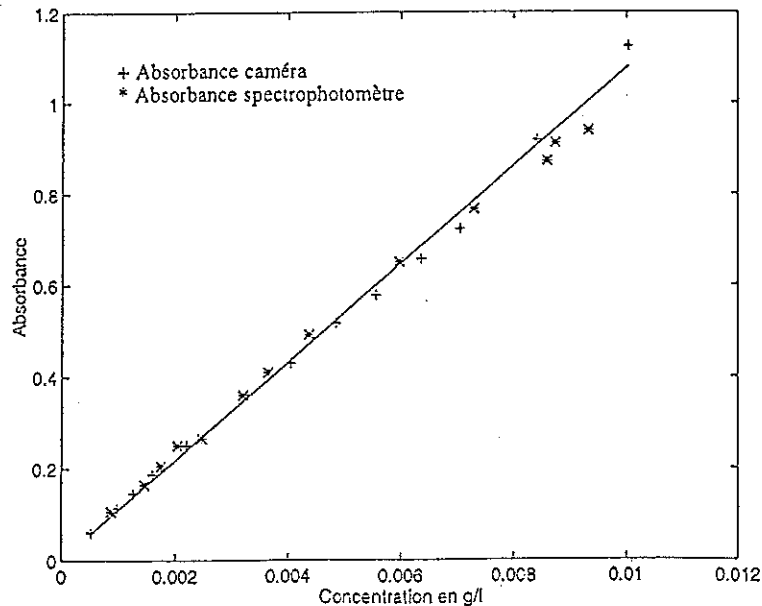


Figure 3 : Comparaison absorbance spectrophotomètre - absorbance caméra

Sur la base de la loi de Beer-Lambert, on vérifie également que, si la concentration en colorant n'est pas uniforme dans l'épaisseur du milieu, la mesure de l'intensité lumineuse transmise nous donne bien la concentration moyenne $\langle c \rangle$ dans la section ce qui, pour l'étude de la dispersion est de toute utilité. Lorsque la lumière traverse des zones de concentrations différentes, donc de densités optiques différentes, la densité optique totale est la somme des densités optiques partielles. Ainsi, si $c(x)$ donne la variation du champ de concentration dans l'épaisseur d du milieu poreux, alors le niveau de gris mesuré vérifie :

$$N = N_0 \exp\left(-\epsilon \int_0^d c(x) dx\right) \quad (7)$$

et donc :

$$\ln\left(\frac{N_0}{N}\right) = \varepsilon \int_0^d c(x) dx = \varepsilon d \langle c \rangle \quad (8)$$

III.5. Conclusion

La mesure de concentration par l'intermédiaire d'une caméra vidéo est rendue possible par l'utilisation d'un filtre interférentiel. L'intérêt majeur de cette technique est qu'elle est non-intrusive et permet de suivre l'évolution à la fois spatiale et temporelle du champ de concentration, que l'on pourra dans la suite moyenniser sur un volume élémentaire représentatif du milieu poreux.

La précision de cette technique de mesure diminue cependant dès que l'on atteint des concentrations élevées, du fait de l'atténuation exponentielle des niveaux de gris. Toutefois, en ajustant l'intensité lumineuse incidente et la concentration maximum du traceur injecté dans l'écoulement (ici 0,01 g/l), on est en mesure de limiter cette imprécision.

IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX

On présente maintenant quelques résultats obtenus avec l'ensemble expérimental présenté précédemment.

IV. 1. Identification du coefficient de dispersion longitudinal

Dans le cas de la dispersion en milieux poreux bidimensionnels, la variation spatiale et temporelle de la concentration moyenne est supposée régie par l'équation suivante :

$$\frac{\partial \langle c \rangle}{\partial t} + \langle v \rangle \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x} = D_{xx} \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2} + D_{yy} \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial y^2} + Q \delta(x) \delta(y) \delta(t) \quad (9)$$

où $\langle c \rangle$ est la concentration moyenne au point (x,y) au temps t , $\langle v \rangle$ la vitesse interstitielle de l'écoulement dans la direction x , Q l'intensité de la source, D_{xx} et D_{yy} le coefficient de dispersion longitudinal et transversal. Dans cette étude, on s'intéresse à la variation de D_{xx} en fonction du nombre de Péclet particulaire Pep (1) défini comme :

$$Pep = \frac{\langle v \rangle d_p \varepsilon}{D} \quad (10)$$

où ε est la porosité du milieu et d_p le diamètre particulaire équivalent.

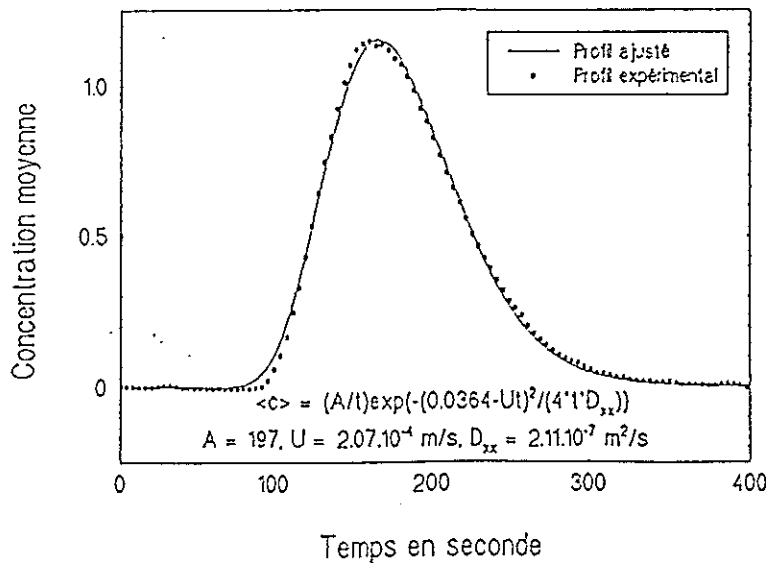


Figure 4 : Profil temporel de concentration

Dans le cas d'une source ponctuelle instantanée, située à l'origine du milieu poreux, la solution de cette équation est :

$$\langle c \rangle(x,y,t) = \frac{Q}{4\pi t \sqrt{D_{xx} D_{yy}}} \exp\left[-\frac{(x - \langle v \rangle t)^2}{4 D_{xx} t} - \frac{y^2}{4 D_{yy} t}\right] \quad (11)$$

En enregistrant à x donné et $y=0$ la variation temporelle de concentration, le coefficient de dispersion longitudinal D_{xx} peut être estimé. Il est évalué par ajustement par la méthode du simplexe de la solution (11) sur le profil expérimental. Sur la figure 4, on représente un profil expérimental et le profil ajusté.

IV.2. Quelques résultats

On présente figure 5 la variation, en fonction de Pe_p du coefficient de dispersion longitudinal dans un milieu périodique en ligne, pour différentes directions du vecteur vitesse moyenne. L'accord entre les calculs numériques et expérimentaux est assez satisfaisant. On note une forte dépendance du coefficient de dispersion en fonction de la direction du vecteur vitesse.

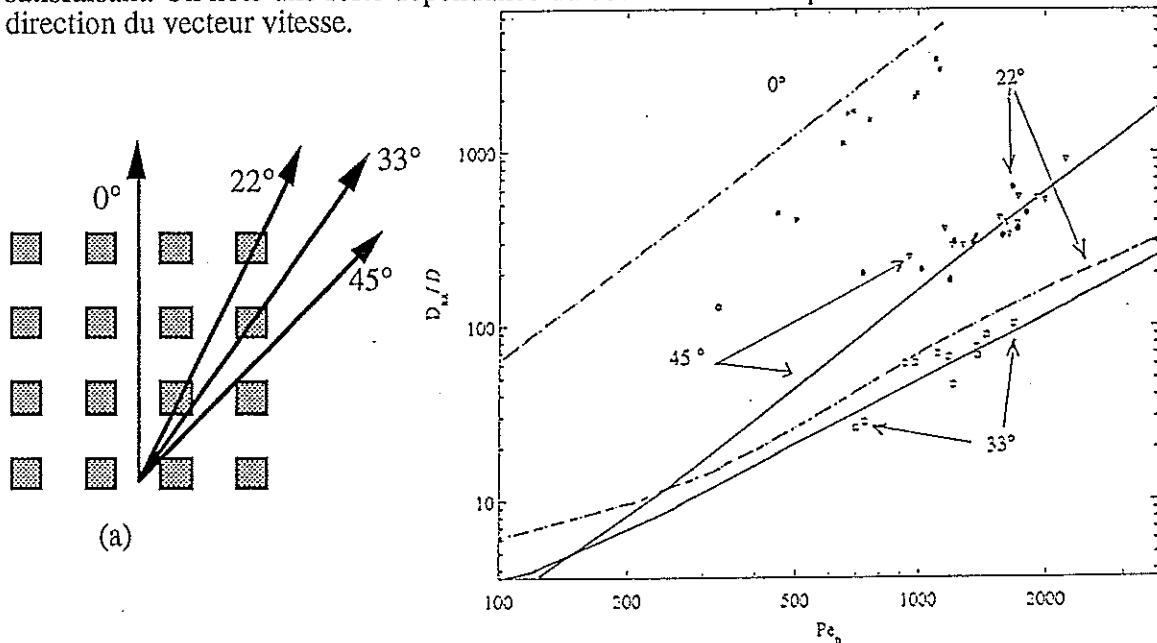


Figure 5 : (a) Milieu en ligne - (b) Coefficient de dispersion mesuré et calculé

20 arrangements aléatoires de cylindres dans la cellule unité ont été étudiés numériquement (2); 2 expérimentalement. L'ensemble des résultats s'accordent cette fois sur une très faible influence de la direction du vecteur vitesse, ce qui autorise à penser que si la cellule unité est suffisamment désordonnée, la modélisation périodique peut s'appliquer à l'étude de structures poreuses réelles (3).

V. CONCLUSION

Les expériences réalisées démontrent l'aptitude du dispositif expérimental à étudier quantitativement le processus de dispersion en milieux poreux périodiques bidimensionnels. Les principaux avantages de cette technique sont la parfaite maîtrise des géométries étudiées et le suivi non intrusif de l'évolution du champ de concentration dans le milieu. L'étude doit maintenant s'orienter vers l'étude de milieux totalement aléatoires.

REFERENCES

- (1) Caronell R.G., Whitaker S., Heat and mass transfer en porous media, Fundamentals of transport phenomena in porous media, Martinus Nijhoff publishers, 123-198 (1984)
- (2) Amaral Souto H.P., Moyne C., Dispersion in two-dimensional periodic porous media, Phys. Fluids (1996)
- (3) Didierjean S., Amaral-souto H.P., Delannay R., Moyne C., Dispersion en periodic porous media : Experience versus theory for two dimensional systems, Chem. Eng. Sc. (1997)

METHODE DE DETERMINATION DE L'ETAT DE SEGREGATION DANS UN ECOULEMENT TUBULAIRE

F. LEMPEREUR, L. FALK

<> LSGC-CNRS-ENSIC
BP 451 - 1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

Un système réactionnel test couplé à une mesure optique est développé pour mesurer l'état de ségrégation à très fine échelle (micromélange). Le dispositif spectrophotométrique réalisé permet de mesurer en continu la concentration d'un constituant qui est fonction de l'état de mélange du milieu. Un modèle d'interprétation simple est proposé pour déterminer les constantes de temps caractéristiques du système.

I. INTRODUCTION

Le processus de mélange de deux fluides miscibles peut être décomposé en deux grandes étapes. La première étape consiste à distribuer un courant de fluide dans un autre, sous l'effet de gradients de vitesse. On crée ainsi des agrégats de grande taille d'un fluide dans l'autre qui sont brassés entre eux et qui n'échangent pratiquement pas de matière avec leur environnement. Cette première étape, appelée étape de *macromélange*, est caractérisée par la Distribution des Temps de Séjour. Dans la seconde étape, appelée communément étape de *micromélange*, les agrégats diminuent de taille essentiellement sous l'effet du cisaillement turbulent et de la diffusion. La qualité d'un mélange dépend donc de la distribution locale de concentration et peut être quantifiée par l'intensité de ségrégation :

$$I_s(t) = \frac{\sigma_c^2(t)}{\sigma_c^2(0)}$$

où $\sigma_c^2(t)$ est la variance de la distribution de concentration à t et $\sigma_c^2(0)$ la variance au début du processus de mélange. La variance de concentration mesurée dépend de la taille de l'échantillon analysé, à savoir de la résolution spatiale de la sonde mise en œuvre.

Dans le cas de certains écoulements mettant en œuvre des réactions chimiques rapides et compétitives (polymérisations, synthèses organiques, précipitations), la qualité du mélange aux échelles les plus fines (micromélange) a une influence importante sur le rendement et la sélectivité. Il est donc particulièrement important de développer des méthodes de caractérisation du mélange à très fine échelle.

Dans un liquide, où le nombre de Schmidt est supérieur à 10^3 , la dimension des zones de ségrégation de concentration peut être de l'ordre de quelques microns. Les méthodes physiques (conductimétrie à pointe, optique par fluorescence laser) actuellement mises en œuvre permettent d'atteindre des échelles de l'ordre de 50 μm , correspondant à des fréquences de quelques kHz. Ces méthodes sont

suffisantes pour appréhender la qualité du mélange à l'échelle ultime de la turbulence (échelle de Kolmogorov), mais pas assez fines pour détecter l'échelle de concentration la plus ultime (échelle de Batchelor).

Le manque de résolution des sondes physiques peut être pallié par les méthodes chimiques basées sur un couplage de réactions concurrentes dont la sélectivité d'un des produits de réaction est sensible à l'état de mélange local. Bourne et al.(1) et Fournier et al.(2) ont développé de telles méthodes chimiques pour déterminer un temps de micromélange.

Cependant, l'application de ces techniques à des réacteurs tubulaires (Tosun (3)) nécessite généralement une prise d'échantillon en sortie du réacteur afin de doser le produit. La mesure de la qualité du micromélange constitue ainsi une mesure globale. Le prélèvement le long de l'écoulement pourrait être envisagé mais il est délicat dans la mesure où l'échantillon évolue avant la mesure. C'est pourquoi, nous avons développé une technique qui utilise la méthode chimique basée sur un système réactionnel test couplée à une mesure optique locale d'un des produits de réaction. Cette technique a été appliquée à l'étude de l'évolution du mélange de deux courants de fluide le long d'un réacteur tubulaire.

II. TECHNIQUE EXPERIMENTALE

II.1. Méthode chimique

La méthode chimique utilisée pour caractériser le micromélange repose sur le système de réactions parallèles concurrentes suivant:



La première réaction est pratiquement instantanée tandis que la seconde est rapide, de vitesse sensiblement égale au processus de micromélange. L'ajout d'une petite quantité d'une solution d'acide sulfurique (H^+ en défaut stœchiométrique) dans une solution contenant des ions iodure, iodate et borate peut donner lieu à deux scénarios:

- Le mélange est *instantané* jusqu'à l'échelle moléculaire (microfluide): les ions H^+ sont immédiatement dispersés dans la solution environnante et consommés par la réaction (1). Aucune trace d'iode n'est alors détectée.
- Le mélange est *imparfait*: les agrégats d'acide se désagrègent progressivement dans la solution environnante avec une constante de temps t_m , le temps de micromélange: une partie des ions H^+ est consommée par la réaction (1) et l'excès local résiduel de H^+ déclenche l'apparition d'iode par la réaction (2). La quantité d'iode produit est d'autant plus élevée que le temps de micromélange t_m est grand devant le temps caractéristique de la réaction (2).

La sélectivité du système en iode rend compte de l'état de ségrégation caractérisé par l'indice de ségrégation :

$$X_s = \frac{2(n_{I_2} + n_{I_3^-})}{n_{H^+}} \left(1 + \frac{n_{H_2BO_3^-0}}{6n_{IO_3^-0}} \right)$$

où n_x représente le nombre de mole de l'espèce x dans le mélange, et n_{x0} le nombre de mole de l'espèce x avant mélange.

L'iode produit par la réaction (2) réagit instantanément avec les ions I^- présents dans le mélange selon l'équilibre chimique (3). Le spectre d'absorption dans l'UV des ions triiodures ainsi formés est présenté figure 1.

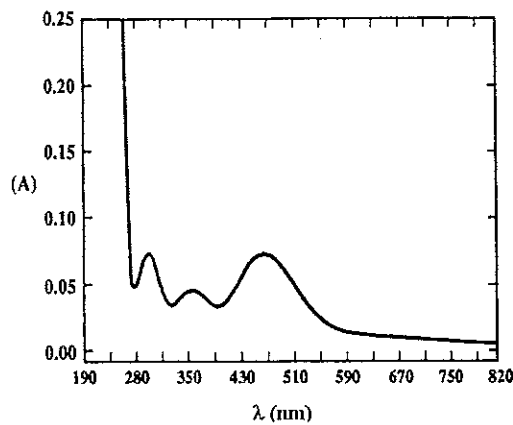


Figure 1: Spectre d'absorption d'une solution aqueuse d'iode.

Un pic de maximum d'absorption se situe à 351 nm. Il est donc possible de doser ces ions par spectrophotométrie d'absorption (Custer et al.(4)). La méthode de dosage de l'iode le long d'un réacteur tubulaire a été mise au point en se basant sur cette propriété optique de l'iode.

II.2. Montage expérimental

Le réacteur étudié est constitué par une tête de mélange suivie d'un tube en quartz de 4 mm de diamètre intérieur et de longueur 30 cm. La tête de mélange est alimentée d'une part par une solution contenant des ions I^- , IO_3^- , $H_2BO_3^-$ et d'autre part par une solution d'acide sulfurique. La cellule de mesure en ligne de la densité optique est placée sur le tube de sortie du mélangeur.

La cellule est constituée d'un pavé en polypropylène noir dans lequel sont percés deux canaux perpendiculaires. Un canal de 6 mm de diamètre permet de faire glisser la cellule le long du tube en quartz. L'autre canal de 4 mm de diamètre est bordé d'un côté par une source émettrice UV et de l'autre par une photodiode réceptrice. La source lumineuse et la photodiode sont situées chacune à une distance de 5 mm du tube (cf. figure 2).

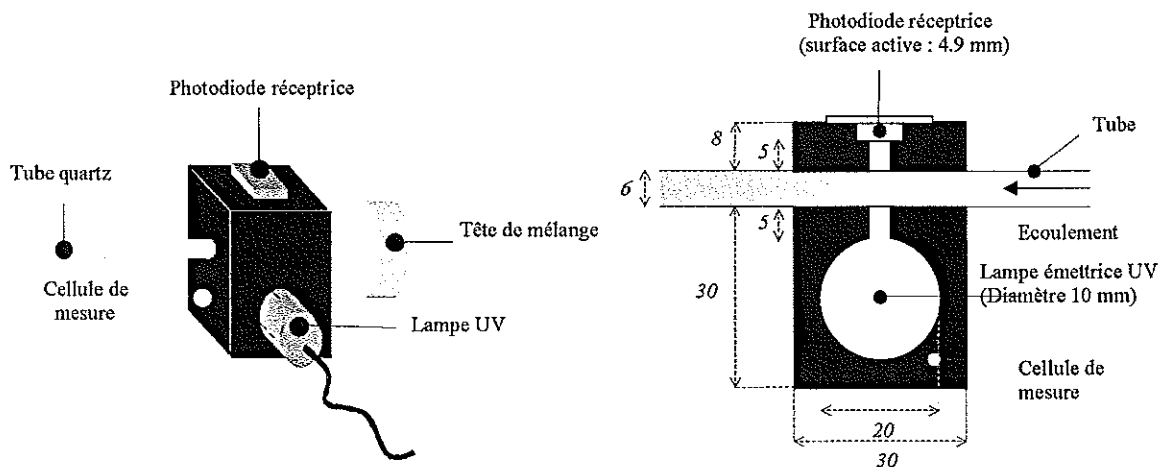


Figure 2 --Système optique de dosage en ligne (cotes en mm).

La source émettrice UV (Annalamp® mercury lamps) produit une lumière monochromatique UV à 351 nm avec une intensité de $14 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ à 20 cm. La photodiode réceptrice (Hamamatsu silicon UV sensor H4103) présente une sensibilité maximale pour des longueurs d'onde voisines de 350 nm. Sa zone active représente 2,5 mm de diamètre. Pour un suivi en temps réel du mélange dans le réacteur, la photodiode est reliée à un ordinateur. Un programme d'acquisition permet de visualiser et d'enregistrer les variations de la tension de la photodiode, fonction de l'intensité lumineuse qu'elle reçoit. La loi de Beer-Lambert permet alors de remonter à la concentration en ions triiodure dans la section du tube considérée:

$$A_{I_3^-} = \varepsilon_{I_3^-} \ell C_{I_3^-} = -\log\left(\frac{I}{I_0}\right)$$

où I est l'intensité reçue par la photodiode, I_0 l'intensité lumineuse de référence, $\varepsilon_{I_3^-}$ le coefficient d'absorption des ions triiodure (à 351 nm), $C_{I_3^-}$ la concentration en ions dans la section du tube traversée par le faisceau UV, et ℓ la longueur du trajet optique à travers le tube.

En déplaçant la cellule de mesure le long du tube nous obtenons une courbe de variation de l'absorbance (ou de la concentration en iode) en fonction de la longueur du tube.

II.3. Résultats expérimentaux

La figure 3 montre l'évolution de la concentration totale en iode le long tube dans les conditions expérimentales suivantes:

- Débit d'acide : 20 l/h
 $C_{\text{H}^+\text{-0}} : 0.1 \text{ mol/l}$
- Débit de solution iodure, iodate et borate : 20 l/h
 $C_{\text{H}_2\text{BO}_3\text{-0}} : 0.25 \text{ mol/l}$
 $C_{\text{I}^-\text{-0}} : 0.035 \text{ mol/l}$
 $C_{\text{IO}_3^-\text{-0}} : 0.007 \text{ mol/l}$

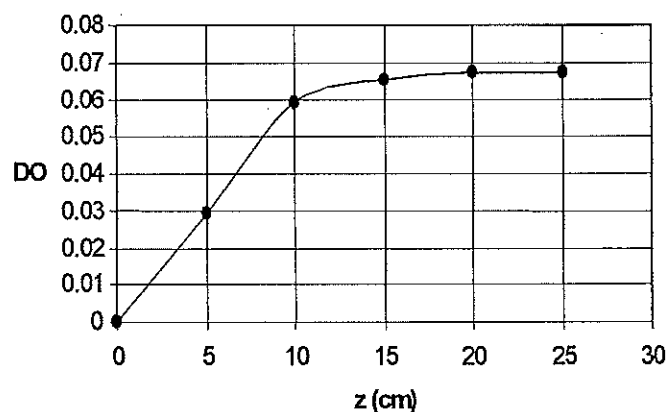


Figure 3 – Evolution de la concentration totale en iode en fonction de la distance.

Les résultats expérimentaux sont interprétés à l'aide d'un modèle phénoménologique simple représentatif de l'évolution du mélange, basé sur différentes constantes de temps. Ce modèle est donné ici à titre d'exemple pour illustrer les possibilités d'interprétation de la mesure.

II.4. Modélisation

Le mélange de deux fluides A et B dans le réacteur étudié peut être représenté par le modèle suivant, couplant macro et micromélange. On considère 3 zones caractéristiques constituées par une zone de réactif A pur, une zone de réactif B pur et une zone de mélange où il y a interaction entre A et B. Les flux de A et B sont érodés au fur et à mesure de l'écoulement, par un processus de macromélange, suivant les lois exponentielles :

$$q_A = q_{A0} \exp\left(-\frac{t}{t_{m1}}\right) \quad q_B = q_{B0} \exp\left(-\frac{t}{t_{m2}}\right)$$

où t_{m1} et t_{m2} sont les constantes de temps d'érosion, caractéristiques du processus de macromélange.

Le débit de la troisième zone correspond donc à :

$$q = q_{A0} - q_A + q_{B0} - q_B$$

La troisième zone est décomposée en deux sous-zones 1 et 2 qui sont le siège des réactions chimiques mises en jeu. Les deux fluides A et B érodés alimentent chacun ces deux sous-zones dont les concentrations s'homogénéisent avec une constante de temps t_m , égale au temps de micromélange. L'interaction entre ces zones est modélisé par le modèle IEM (Villermaux et al. (5)) (cf. figure 4).

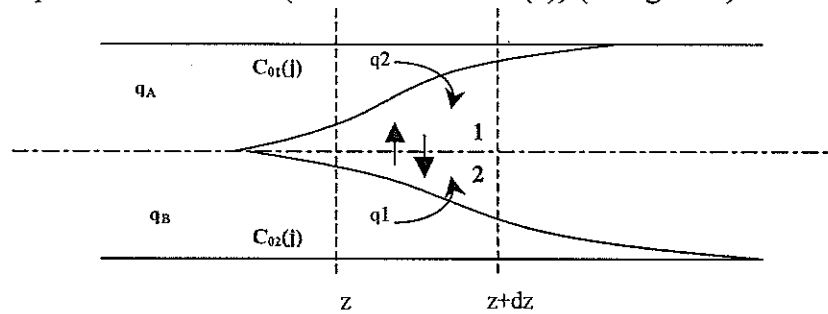


Figure 4 – Modélisation du mélange de A et B dans le réacteur.

Les équations représentant ce modèle sont pour chacun des réactifs j :

$$\frac{dC_1(j)}{u dz} = \frac{q_1}{V_1} (C_{01}(j) - C_1(j)) + r_1(j) + \frac{\overline{C(j)} - C_1(j)}{t_m}$$

$$\frac{dC_2(j)}{u dz} = \frac{q_2}{V_2} (C_{02}(j) - C_2(j)) + r_2(j) + \frac{\overline{C(j)} - C_2(j)}{t_m}$$

$$\text{avec } \overline{C(j)} = \frac{C_1(j)V_1 + C_2(j)V_2}{V_1 + V_2}$$

où V_1 et V_2 sont les volumes respectifs des zones 1 et 2 et u la vitesse moyenne de l'écoulement. Le calcul par ce modèle de l'évolution de la concentration en iode dans le réacteur est donné sur la figure 5 pour différents jeux de paramètres :

	t_{m1} (s)	t_{m2} (s)	t_m (s)
sim	2.5	2.5	0.055
sim1	2	2	0.048
sim2	3	3	0.061

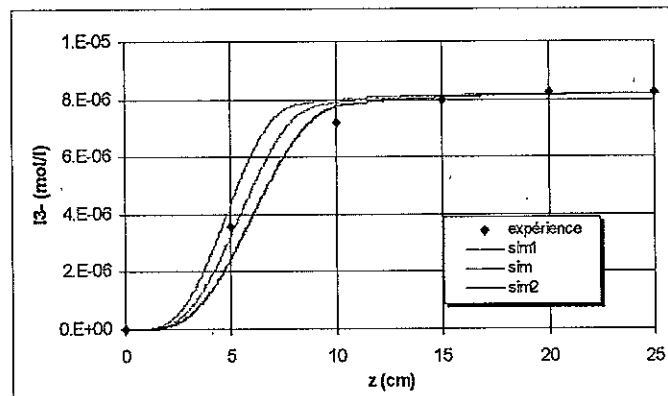


Figure 5 : Modélisation du mélange dans le réacteur par le modèle à trois zones.

Le modèle phénoménologique représente correctement, en première approche, les tendances expérimentales. On constate cependant que l'accord ne peut être vérifié pour les valeurs à l'entrée du tube d'écoulement par manque de données expérimentales puisque le montage mis au point n'est pas suffisamment miniaturisé.

III. CONCLUSION

La méthode de caractérisation de l'état de micromélange par un système réactionnel test a été couplée à une méthode optique fonctionnant en continu. Il est ainsi possible de coupler l'avantage de la caractérisation à très fine échelle par voie chimique à une méthode optique de mesure en ligne. Les premiers résultats acquis demandent cependant à être affinés grâce à une miniaturisation du dispositif qui permettrait d'appréhender encore mieux la qualité du mélange dans un écoulement complexe.

REFERENCES

- (1) Bourne J.R., Koziicki F., Rys R., Mixing and fast chemical reaction. I: test reactions to determine segregation, Chem. Eng. Commun., 36(10), 1643-1648 (1981).
- (2) Fournier M.C., Falk L., Villermaux J., A new parallel competing reaction system for assessing micromixing efficiency. Determination of micromixing time by a simple mixing model, 51(23), 5187-5192 (1996).
- (3) Tosun G., A study of micromixing in tee mixers, Industrial Engineering Chemical Research, 26, 1184-1193 (1987).
- (4) Custer J.J., Natelson S., Spectrophotometric determination of microquantities of iodine, Analytical Acta, 21(8), 1005-1009 (1949).
- (5) Villermaux J., Devillon J.C., Représentation de la coalescence et de la redispersion des domaines de ségrégation dans un fluide par un modèle d'interaction phénoménologique, Proceed. 2nd Int. Symp. Chem. React. Engin. Amsterdam, B1-13 (1972)

EVALUATION DES TAUX DE RENOUVELLEMENT DE L'EAU DANS DES GRAVIERES PAR TRACAGES - INTERPRETATION ET MODELISATION

O. GERBAUX-FRANCOIS, D. GETTO, P. SAINT-BONNET

<> CEA - DAMRI/SAR/SAT

17, rue des Martyrs

38054 GRENOBLE Cedex 9

L. BENABDESSALAM <> UNIVERSITE P. & M. CURIE

Laboratoire de Géologie Appliquée

4, place Jussieu

75252 PARIS

RESUME

Une étude expérimentale a été réalisée par traçages sur des gravières, avec pour objectif la détermination des temps moyens de résidence de l'eau dans ces systèmes.

Cette communication présente, à partir des équations de conservation de la masse et de bilan des flux, l'interprétation numérique des résultats des traçages en terme de temps moyen de séjour de l'eau dans les gravières.

I. PRESENTATION DE L'ETUDE

Dans le cadre de l'étude, réalisée par O. Schanen (Université P. Et M. Curie, Paris), de suivi des gravières (situées à Vimpelles, 77, aux bords de la Seine) du point de vue de la qualité de l'eau et des effets des gravières sur la nappe de la Seine, il s'est avéré nécessaire de quantifier les flux d'eau traversant les gravières et plus précisément les temps moyens de résidence de l'eau dans ces systèmes (1).

Une étude expérimentale a été réalisée par traçages de mars à juillet 1997 (2), avec comme objectif principal la détermination des temps de résidence moyens de l'eau dans ces gravières.

Classiquement, lorsque l'on considère le système « gravière » comme un mélangeur parfait, la loi de décroissance de concentrations en traceur est une exponentielle décroissante d'argument τ égal au rapport du débit écoulé par la nappe sur le volume de la gravière ($\tau = V/Q$). Cette approche ne permet pas, par sa construction (fonction concentration-temps strictement décroissante), de représenter des périodes de re-concentrations en traceur au cours du temps, comme cela a été observé expérimentalement. La loi de type exponentielle décroissante, résulte en fait, de l'hypothèse de débits et volumes constants dans le temps.

Dans cette communication, une approche différente des traçages est proposée. Cette interprétation se base sur une modélisation simplifiée des écoulements. Elle considère comme inconnues non seulement les temps de résidence mais également les débits, et introduit l'hypothèse de variabilités des débits et volumes dans le temps pour la détermination de la fonction concentration - temps. Afin de mieux prendre en compte les fluctuations de ces deux variables au cours du temps (les fluctuations du volume d'eau

dans les gravières ont pu être enregistrées une fois par semaine environ, et celles du débit d'écoulement sont ici inconnues) nous proposons une modélisation basée sur la résolution analytique des équations de bilan des flux d'écoulement et massique simultanément (2).

II. MODELISATION

Le système « gravière » est défini par les échanges entre la gravière et le milieu extérieur, à savoir la nappe et l'atmosphère. Les flux entrants sont les écoulements nappe - gravière et les pluies, les flux sortants sont les écoulements gravière - nappe et l'évapotranspiration (figure 1).

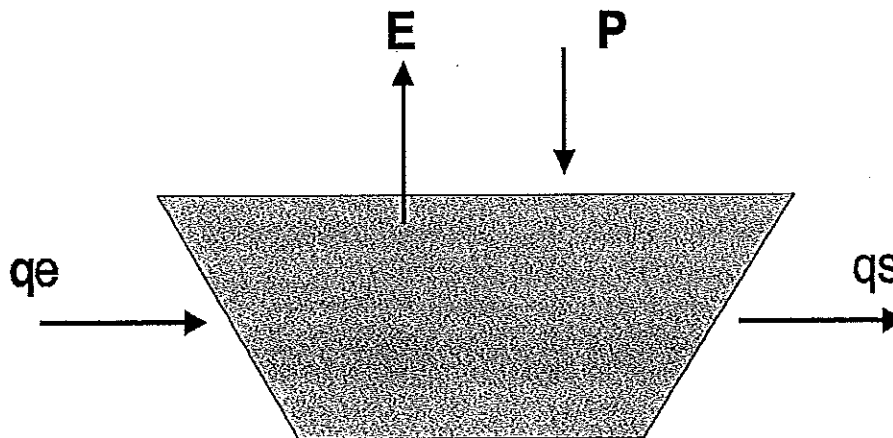


Figure 1 : Représentation schématique du système gravière

Le volume de la gravière est donc défini par le bilan des flux sur ce système :

$$\frac{dV}{dt} = q_e + P - q_s - E = q_e + P - Q \quad (1)$$

avec q_e le débit d'infiltration de l'eau de la nappe vers la gravière,
 q_s le débit d'infiltration de l'eau de la gravière vers la nappe,
 P le débit d'apport des pluies,
 E le débit sortant par évapotranspiration,
 Q le débit sortant total égal à $q_s + E$

La fonction concentration-temps $C(t)$ de disparition du traceur, en tout point de la gravière, est déduite de la solution de l'équation de conservation de la masse :

$$\frac{d(VC)}{dt} = q_e C_e + P \times 0 - q_s C - EC = q_e C_e - QC$$

avec $q = q_e$,

C_e la concentration en traceur ayant migré dans la nappe et qui entre à nouveau dans la gravière,

V le volume d'eau contenu dans la gravière,

$q C_e$ le flux massique entrant,

$Q C$ le flux massique sortant.

En tenant compte de (1), l'équation précédente devient :

$$\frac{d(VC)}{dt} = V \frac{dC}{dt} + C \frac{dV}{dt} = V \frac{dC}{dt} + C(q + P - Q) = qC_e - QC$$

$$\text{soit } V \frac{dC}{dt} = qC_e - (q + P)C \quad (2)$$

Afin de résoudre cette équation de conservation de la masse, il faut d'une part tenir compte de la variation ou non du volume d'eau de la gravière en fonction du temps, et d'autre part de la variation des débits dans le temps. Les solutions, $C(t)$, sont présentées en détail dans (2). Il est montré que :

- la loi exponentielle classiquement utilisée est caractéristique d'un système à débit et volume constants, sans aucun apport extérieur de traceur au système,
- l'hypothèse de débit invariable dans le temps est telle que la solution de l'équation de la conservation de la masse est une fonction concentration-temps toujours strictement monotone,
- l'hypothèse de débit variable dans le temps permet d'introduire une loi concentration-temps non strictement monotone, mais pouvant être croissante (avec apport extérieur de concentration en traceur) ou décroissante.

Le principe de la modélisation ici proposée est d'ajuster au mieux les expressions analytiques solutions du système d'équations (1) et (2) sur les données expérimentales, avec comme inconnues du système le temps de résidence et les différents débits. L'ajustement a été réalisé à partir du logiciel EXCEL, à l'aide des options de régression linéaire et « solveur ».

III. RESULTATS

Trois opérations de traçages ont été réalisées sur trois gravières différentes dénommées G1, G2 et G5, mettant en oeuvre des traceurs chimiques, à savoir le brome pour G1 et l'iode pour G2 et G5. Dans chacune des gravières, le traceur a été :

- injecté à l'aide d'une rampe d'injection double, immergée à -1m et -2m,
- réparti sur toute la surface par navigation lente durant l'injection,
- homogénéisé par la répartition spatiale de l'injection, grâce à un brassage rapide à l'aide du moteur de l'embarcation puis dans le temps, par les mouvements naturels de l'eau (vent - température) favorisé par la faible profondeur des gravières.

Afin de vérifier cette homogénéité, quatre points de prélèvements ont été équipés sur chacune des gravières.

Nous présentons ci-après uniquement les résultats obtenus sur la gravière G5, dont le volume moyen est de l'ordre de 15742 m^3 .

La distribution expérimentale des concentrations en fonction du temps est présentée sur la figure 2 (points sous forme de triangles), ainsi que l'ajustement à deux fonctions exponentielles décroissantes, pour lesquelles le temps initial varie. Le résultat de cet ajustement semble assez satisfaisant et la cassure entre les deux fonctions indique la nécessité de prendre en compte l'évolution du volume et/ou débit au cours du temps. On remarque que les temps de résidence ainsi déterminés sont compris entre 19 j et 45 j, et que les débits aux interfaces, Q ou q+P, se situent entre $367 \text{ m}^3/\text{j}$ et $1012 \text{ m}^3/\text{j}$.

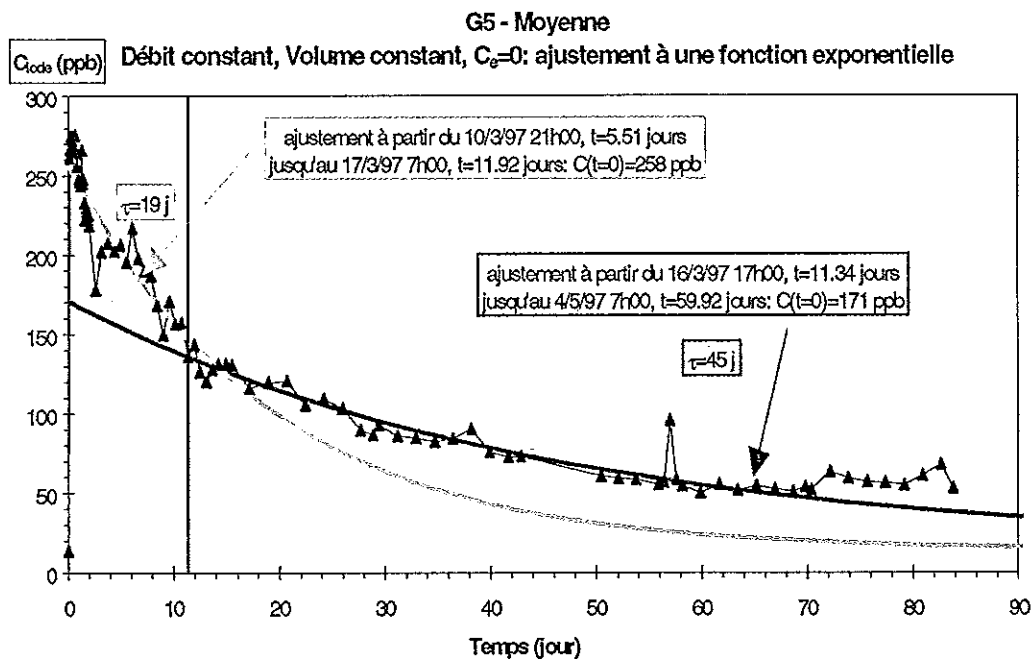


Figure 2 : Ajustement de la fonction de restitution d'iode en G5 à une fonction exponentielle.

Afin d'affiner l'ajustement, il a été procédé à un ajustement continu par morceaux, chaque phase étant définie par l'intervalle entre deux mesures consécutives du volume de la gravière. Les résultats de tels ajustements sont présentés sur la figure 3.

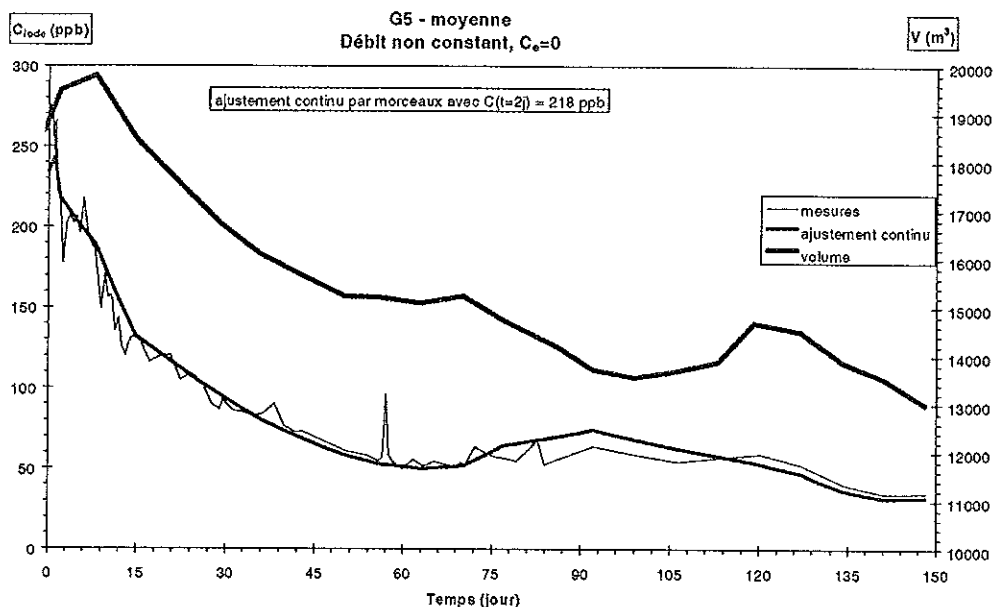


Figure 3 : Ajustement continu par morceaux de la fonction de restitution d'iode en G5.

Lors de la modélisation, et pour certaines périodes, les débits déduits de l'ajustement ne sont pas acceptables (valeurs négatives).

Le modèle proposé pour la gravière G5 est toutefois très satisfaisant compte tenu de la bonne représentation des valeurs de concentrations en traceur en fonction du temps.

Sur toute la période étudiée, le tableau suivant donne les caractéristiques des temps de résidence et débits :

	Temps de séjour T (j)	Débit q+P (m ³ /j)	Volume T x (q+P) (m ³)
Moyenne	41	577	16125
Minimum	9	168	13624
Maximum	90	2183	19647
Ecart type	22	518	2199

Cette modélisation a également été utilisée pour l'interprétation des deux autres traçages :

- sur G2, l'ajustement, dans son ensemble, est moins satisfaisant que celui obtenu sur G5, suggérant de prendre en compte des effets de relargage de l'iode après absorption sur les berges de la gravière par exemple (communication personnelle, O. Schanen),
- sur G1, l'interprétation des résultats s'est avérée plus délicate du fait de la relative homogénéité entre les mesures effectuées aux différents points de prélèvements, de la faible décroissance de la concentration en brome en fonction du temps dans la gravière et des fluctuations importantes des concentrations entre deux mesures consécutives.

IV. CONCLUSION

Pour chacune des gravières étudiées, l'approche classique supposant un volume et un débit constant et déterminant ainsi de façon analytique les temps de séjour de l'eau ne peut suffire à l'interprétation des résultats expérimentaux. La modélisation présentée ici, basée sur la résolution simultanée des équations de conservation de la masse et des flux, tout en considérant les variations des débits dans le temps, permet de bien représenter l'évolution observée expérimentalement de la concentration en traceur sur la période étudiée. Sur cette période d'étude, les valeurs des temps de résidence et de débits d'écoulement déduits d'un tel modèle sont physiquement réalistes, il existe cependant quelques phases pour lesquelles ces valeurs sont irréalistes, et la modélisation pourrait être alors améliorée en prenant en compte une éventuelle absorption du traceur sur les sédiments de la gravière suivi d'un relargage dans la gravière.

REFERENCES

- (1) Schanen O., Bendjoud H., Levassor A., Fustec E., Quantification des écoulements nappe-gravières, en zone alluviale, par optimisation du bilan hydrologique, C.R. Acad. Sc. Paris, 326,107-112 (1998)
- (2) Gerbaux O., Getto D., Saint-Bonnet P., Traçages pour l'acquisition du temps de séjour de l'eau dans les gravières et du transfert de l'eau des gravières vers la nappe. Rapport CEA-DAMRI 1998, DAMRI/SAR/SAT/RAP/98.01/OG/CRE

REMERCIEMENTS

Les opérations de traçages mentionnées dans cet article ont été réalisées par le CEA/DAMRI-SAR-SAT, en collaboration avec le Laboratoire de Géologie Appliquée de l'Université de Paris VI. Les remerciements s'adressent tout particulièrement à O. Schanen, B. Goetz et G. De Marsily de l'Université Paris VI.

LA DISPERSION AXIALE PAR LA VOIE DE LA MECANIQUE DES FLUIDES NUMERIQUE

A. COCKX, Z. DO-QUANG

<> CIRSEE-Suez Lyonnaise des Eaux
38, rue du Président Wilson
78230 LE PECQ

A. LINE, M. ROUSTAN <>

INSA - LIPE
Complexe scientifique de Rangueil
31077 TOULOUSE CEDEX 4

RESUME

La dispersion axiale est un facteur qui permet d'évaluer globalement le mélange d'un réacteur. Le premier objectif de ce travail est de démontrer la capacité de la mécanique des fluides à prédire cette dispersion axiale. Dans ce but, la méthodologie du traçage numérique est validée pour un écoulement piston. Le second objectif est d'évaluer les différentes contributions physiques du mélange dans un réacteur de type airlift. Dans ce réacteur, c'est à 80 % la dispersion spatiale due aux hétérogénéités du champ de vitesse qui mélange le traceur. Les dispersions axiales expérimentale et simulée avec le code Estet-Astrid sont en très bon accord si la simulation est 3D. Une simulation 2D est par contre à exclure car elle sous-estime de plus de 30% le mélange. L'outil numérique permet de localiser précisément les zones à forte dispersion.

I. INTRODUCTION

Traditionnellement, le Génie Chimique modélise les réacteurs en s'appuyant sur deux modèles idéaux : l'écoulement piston et le mélange parfait. Les réacteurs réels sont encadrés par ces modèles idéaux et, dans le cas de réacteurs à écoulement convectif moyen non nul, le réacteur est modélisé par la superposition d'un écoulement piston (selon Z par exemple) et d'une dispersion aléatoire (1). Cette dispersion axiale E_{ZL} est écrite par analogie à la loi de Fick et comprend tout ce qui éloigne le réacteur réel du piston : la diffusion moléculaire (D_L), la diffusion turbulente (D_T) et la dispersion spatiale (D_S). Si l'écoulement est permanent et établi hydrodynamiquement (2), le bilan de transport de la concentration s'écrit de façon simplifiée :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U_Z \cdot \frac{\partial C}{\partial Z} = E_{ZL} \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} \quad (\text{éq. 1}) \quad \text{avec} \quad E_{ZL} = D_L + D_T + D_S \quad \text{et} \quad Pe = \frac{U_Z \cdot L}{E_{ZL}}$$

Ce modèle à une dimension (Z) permet d'accéder à l'évolution de la concentration en fonction du temps et donc à la distribution des temps de séjour (DTS) du réacteur, capitale pour en comprendre son fonctionnement. Il reste donc à résoudre cette équation pour des conditions aux limites données et à estimer correctement le coefficient de dispersion axiale. Le nombre de Peclet exprime de manière adimensionnelle ce coefficient.

II. PRESENTATION ET SIMULATION DE L'AIRLIFT

Les réacteurs de type airlift sont une famille de contacteur gaz-liquide dans lesquels il y a une circulation du liquide, guidée par la géométrie du système. Ils sont généralement utilisés pour leur capacité de transfert de masse, notamment d'air dans les procédés biologiques du traitement des eaux. Les faibles cisaillements néfastes au développement des micro-organismes, le faible coût pour l'agitation et surtout des capacités de transfert de masse accrue par rapport aux colonnes à bulles ont contribué au développement industriel de ces réacteurs. Le réacteur étudié au laboratoire de l'INSA de Toulouse est une cuve rectangulaire. De l'air est injecté dans le bas du réacteur (côté ascendant) et le déséquilibre de rétention qui apparaît des deux côtés de la plaque est à l'origine de la mise en mouvement du liquide. Les principales caractéristiques géométriques et de fonctionnement sont résumées ci-dessous :

Géométrie	Dimension
Hauteur	3 m
Largeur	0,5 m
Profondeur	0,5 m
Section ascendante S_A	0,125 m ²
Section descendante S_B	0,125 m ²
Section de passage inférieure S_I	0,075 m ²
Hauteur de paroi	2,35 m

Fonctionnement	Valeur
Vitesse débitante j_G	1,7 cm/s
Diamètre de bulle d_b	3,5 mm
Hauteur d'eau inférieure h_i	15 cm
Hauteur d'eau supérieure h_s	15 cm

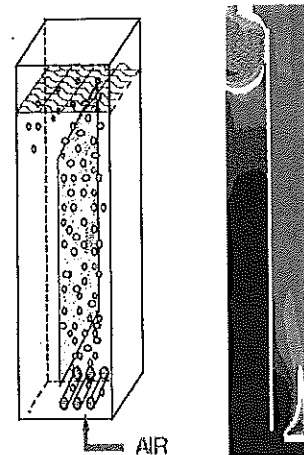


Figure 1 : Pilote de laboratoire et simulation du taux de gaz avec ASTRID

La caractérisation de l'hydrodynamique de l'airlift joue un rôle très important en vue de ces futures applications. Dans le but de le modéliser, des mesures expérimentales ont été faites pour valider la simulation numérique et mieux comprendre le comportement du réacteur. Les validations sur l'hydrodynamique ont été publiées (3). L'ensemble des simulations a été fait avec le code de calcul Estet-Astrid (4) développé par le Laboratoire National d'Hydraulique d'EDF. A partir de ces résultats validés pour l'hydrodynamique, on peut passer à l'étape de simulation du mélange. Comme expérimentalement, on voudrait déterminer la distribution des temps de séjour numérique par injection d'un traceur. Au préalable, on se propose de valider la méthode numérique dans une configuration simple.

III. VALIDATION DU TRACAGE NUMERIQUE EN ECOULEMENT PISTON

Une simulation est faite pour un écoulement parfaitement piston de manière à imposer une diffusion turbulente nulle et une dispersion spatiale nulle ($D_T=0$, $D_S=0$). La longueur du piston est de 1 m avec une vitesse moyenne du liquide $U_L=0,1$ m/s. L'injection de traceur se fait sous la forme d'un pseudo-Dirac sur un temps très court et pour une concentration constante C_E . Pour que cette condition initiale n'influence pas l'interprétation de la dispersion axiale, nous utilisons la méthode des deux mesures (2). La mesure de E_{ZL} numérique correspond alors à : $E_{ZL} = D_L + D_N$. En faisant varier

successivement la diffusion moléculaire D_L et la taille du maillage, on peut estimer la diffusion numérique D_N . L'évolution de la dispersion du traceur (Figure 2) est suivie en fonction du temps par deux sondes numériques. On en déduit le coefficient de dispersion E_{ZL} .

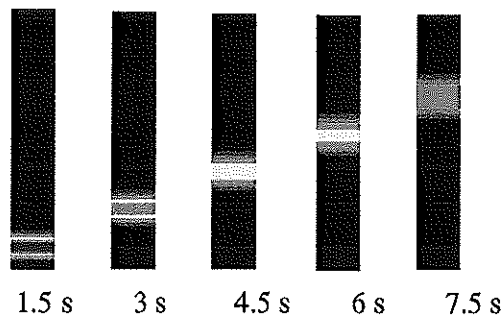


Figure 2 : Champs de concentration pour le réacteur piston

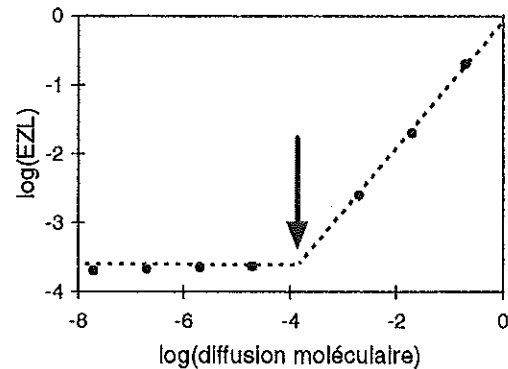


Figure 3 : Mise en évidence du seuil de diffusion numérique

La figure 3 montre comment déterminer la diffusion numérique : nous partons d'une diffusion moléculaire forte qu'on diminue progressivement. Le E_{ZL} est 'mesuré' par les sondes et à partir d'un certain moment, la mesure de la dispersion axiale ne baisse plus : il apparaît un seuil en dessous duquel il n'est pas possible de détecter la diffusion moléculaire imposée. Ce seuil définit la diffusion numérique du maillage. En dessous de ce seuil, la dispersion axiale numérique n'a pas de sens physique. Ce seuil donne alors l'erreur de précision du traçage numérique. Au delà de ce seuil, les simulations montrent que la dispersion simulée reproduit bien la valeur théorique (pente=1) et la dispersion numérique est négligeable.

IV. TRACAGE NUMERIQUE ET EXPERIMENTAL DE L'AIRLIFT

IV.1. Traçage expérimental

L'injection de sel se fait en haut de la partie descendante de l'airlift, au niveau de la sonde conductimétrique. Le sel décrit alors plusieurs boucles de circulation autour de la paroi interne avant d'être uniformément réparti (5). La courbe réponse à l'injection instantanée du sel est de type sinusoïde amortie (Figure 6). Il est possible de la lisser à partir du modèle de Voncken (1966), solution du bilan de transport (éq. 1) avec des conditions limites de recirculation :

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{Pe}{\pi\theta}} \sum_{j=0}^{\infty} \exp\left(-\frac{Pe}{4\theta}(j-\theta)^2\right) \quad \text{avec } \theta = \frac{t}{t_c}, \quad t_c \text{ est le temps de circulation}$$

La superposition de la courbe expérimentale et de la courbe modélisée par Voncken permet d'accéder au Peclet représentatif du mélange et d'aboutir ainsi au coefficient de dispersion axiale du liquide E_{ZL} .

IV. Traçage numérique

Numériquement, l'injection de sel se fait exactement comme pour l'expérience et on peut suivre l'évolution de la dispersion du traceur (Figure 5) en fonction du temps. Nous pouvons alors constater que le mélange est beaucoup plus important dans la zone

ascendante de l'airlift, le distributeur de gaz agissant en quelque sorte comme un mélangeur statique.

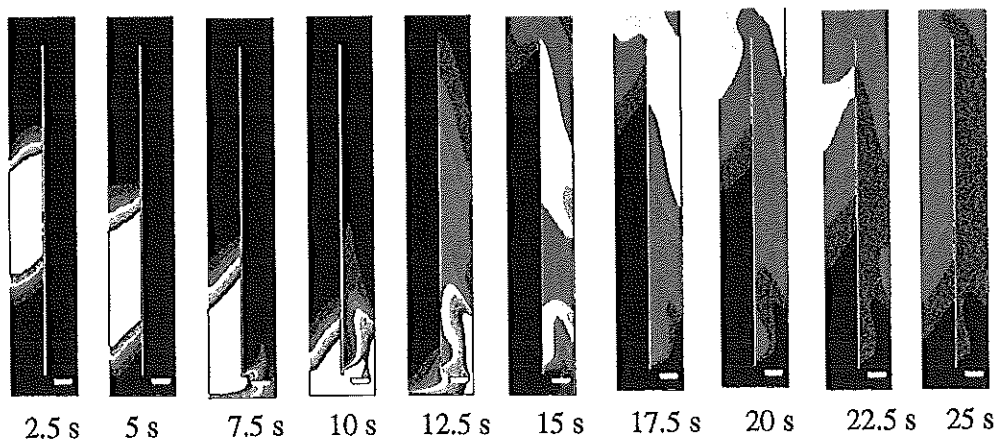


Figure 5 : Champs de concentration dans l'airlift

Tout comme la DTS expérimentale, la DTS numérique est de type sinusoïde amortie (figure 6). La superposition de la courbe simulée et du modèle de Voncken (5) nous permet de déterminer le temps de circulation et le nombre de Peclet global.

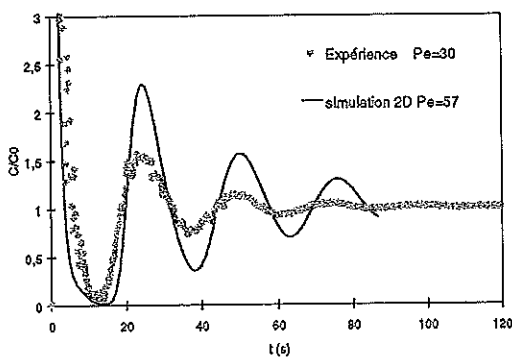


Figure 6 : DTS numérique 2D et expérience

	t_c (s)	Pe	V_c (m/s)	E_{ZL} (m ² /s)
Expérience	25	30	0.2	$4 \cdot 10^{-2}$
Simulation 2D	25	57	0.2	$2,1 \cdot 10^{-2}$

Expérimentalement, nous observons que le sel parcourt 3 boucles de circulations avant d'être uniformément réparti par la dispersion axiale. Numériquement, nous retrouvons par la simulation les temps de circulation t_c de manière très fine mais, par contre, l'allure de la DTS sinusoïdale simulée est bien moins amortie que dans la réalité. Nous trouvons en effet un coefficient de dispersion axiale $E_{ZL} = 0,021$ m²/s plus faible que l'expérience (0,04 m²/s) mais du même ordre de grandeur. Une analyse plus approfondie des contributions à la dispersion est alors nécessaire pour déterminer la cause de cet écart.

V. INTERPRETATION DE LA DISPERSION AXIALE

A partir des résultats de simulation, nous pouvons calculer les différents termes de dispersion qui sont à l'origine du E_{ZL} : la diffusion moléculaire D_L (négligeable), la diffusion turbulente D_T et la dispersion spatiale des vitesses D_S sans oublier la diffusion numérique D_N (figure 7). Pour relier l'approche locale de la simulation au concept global de coefficient de dispersion axiale, il faut d'abord intégrer sur la section les équations locales de transport de concentration (opérateur $\langle \rangle$). Le calcul fait apparaître un terme

de dispersion dans la section $\langle \tilde{C}\tilde{U}_z \rangle$ qui se modélise par un coefficient de dispersion spatiale définit par :

$$D_s = \frac{\langle \tilde{C}\tilde{U}_z \rangle}{\partial \langle C \rangle / \partial z} \quad \begin{array}{l} C \text{ est la concentration locale et} \\ \tilde{C} \text{ l'écart de } C \text{ par rapport à sa moyenne} \end{array}$$

Le coefficient de dispersion D_s est représentatif du mélange dans la section. Dans le cas idéal d'un écoulement piston, les profils de concentration et de vitesse du liquide sont uniformes radialement. \tilde{C} et \tilde{U}_L sont donc nuls et le coefficient D_s aussi.

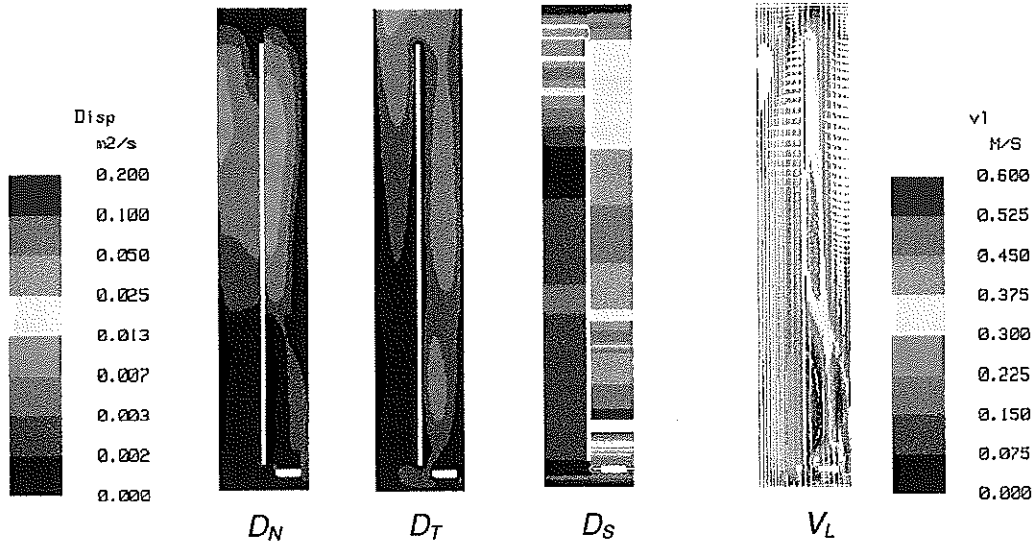


Figure 7 : différentes contributions de la dispersion axiale : numérique, turbulente et spatiale

Pour la simulation en 2D, nous pouvons calculer le poids de chaque type de diffusion :

D_L	D_N	D_T	D_S_{DESC}	D_S_{ASC}	$D_{TOT} \approx E_{ZL}$	
1.10^{-6}	$1,6.10^{-3}$	$1,4.10^{-3}$	$4,7.10^{-3}$	$2,5.10^{-2}$	$1,8.10^{-2}$	m ² /s
0	8,8	7,7	13,0	69,5	100	%

La dispersion spatiale est très différente suivant que l'on se trouve dans des zones de forte recirculation avec un mélange important (près des retournements en haut et en bas de l'airlift) ou dans des zones plus proches de l'écoulement piston (Figure 7). Nous observons que le D_s contribue de façon majoritaire au coefficient de dispersion axiale E_{ZL} , comparé à la diffusion turbulente estimée dans ce type de géométrie. La diffusion numérique reste limitée à 9% de la valeur réelle. L'écart expérience/simulation provient alors probablement d'une mauvaise estimation de la dispersion spatiale D_s . Dans l'objectif d'améliorer les résultats, un traçage est fait en 3D pour capter la dispersion dans la troisième direction. La nouvelle distribution des temps de séjour numérique améliore sensiblement les résultats 2D (figure 8). La DTS est plus aplatie et le mélange complet se fait plus rapidement, au bout de 3-4 boucles de circulations.

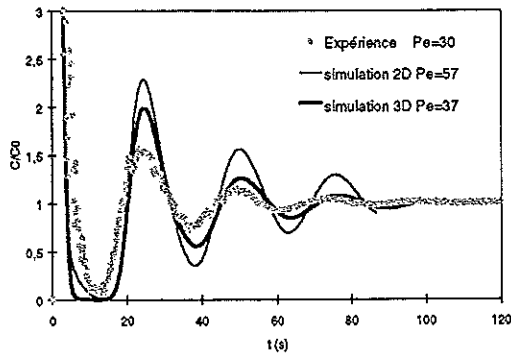


Figure 8 : DTS numérique 3D et expérience

	t_c (s)	Pe	V_c (m/s)	E_{ZL} (m^2/s)
Expérience	25	30	0.2	4.10^{-2}
Simulation 2D	25	57	0.2	$2,1.10^{-2}$
Simulation 3D	25	37	0.2	$3.2.10^{-2}$

Nous trouvons un coefficient de dispersion axiale $E_{ZL} = 0,032 m^2/s$ très proche de l'expérience ($0,04 m^2/s$). La simulation est donc capable de retrouver un ordre de grandeur très correct de la dispersion dans un réacteur aussi complexe que l'airlift.

VI. CONCLUSION

La simulation numérique est capable de prédire correctement (à 20%) la dispersion d'un traceur dans un réacteur aussi complexe que l'airlift. Pour atteindre ce résultat, il est essentiel de simuler l'écoulement dans une géométrie tridimensionnelle pour estimer correctement le caractère 3D du mélange. Ces résultats permettent de visualiser précisément les zones à fort mélange. Ainsi, ils permettent d'évaluer rapidement l'influence de la géométrie sur la dispersion d'un traceur et ses conséquences sur le procédé mis en œuvre. Ils peuvent également servir à l'association optimale de réacteurs idéaux pour le choix d'un modèle global.

REFERENCES

- (1) Villermaux J., Génie de la réaction chimique : conception et fonctionnement des réacteurs, Génie des Procédés de l'école de Nancy, 2^e édition, Tec & Doc-Lavoisier (1993)
- (2) Cockx A., Modélisation de contacteurs gaz-liquide : application de la mécanique des fluides numérique aux airlifts, thèse de doctorat de l'INSA de Toulouse, 1997.
- (3) Cockx A., Line A., Roustan M., Hebrard G., Doquang Z., Simulation numérique de différents contacteurs gaz-liquide, le 6^{ème} Congrès Français de Génie des Procédés, Paris, France (1997).
- (4) Simonin O., Viollet P.L., On the computation of turbulent two-phase flows in the eulerian formulation, Turbulent Two-Phase System, Euromech 234, Toulouse, France (1988).
- (5) Voncken R.M., Circulatiestroming and menging in geroerde vaten Proefschrift ter verkrijging van de graad van doctor in de technische wetenschappen, Technische Hogeschool te Delft (1966).
- (6) Couvert A., Hebrard G., Line A., Roustan M., Lazarova V., Doquang Z., Etude hydrodynamique et modélisation d'un réacteur de type airlift à paroi interne, 6^{ème} Congrès Français de Génie des Procédés, Paris, France (1997).

ETUDE DES ECOULEMENTS INTERMITTENTS GAZ-SOLIDE PAR UNE METHODE DE SUIVI DES STRUCTURES SOLIDES

Y. MELINGE, C. LANOS

<> INSA Rennes
CS 14315 - 20, av. des Buttes de Coësmes
35043 RENNES

R. BOUARD

<> C.E.A.T. - LEA
43, rue de l'Aérodrome
86036 POITIERS

RESUME

Les différentes structures qui apparaissent dans l'écoulement intermittent, d'un mélange gaz-solides, sont détectées grâce à des mesures de pression pariétales réparties le long d'une conduite horizontale. Dans cette note, nous présentons le principe de détection de bouchons solides ayant séjourné dans un tronçon de mesure et les paramètres déduits de l'analyse. On détermine les vitesses d'extrémités, la vitesse moyenne, la longueur, l'évolution de la pression du gaz aux extrémités et dans le bouchon. Les résultats obtenus par cette méthode sur sites expérimentaux et réels montrent des possibilités d'adaptation aux applications industrielles.

I. INTRODUCTION

Dans les installations de transport de produits solides en vrac, fonctionnant en régime intermittent, la présence de singularités (extrémités de circuit, point d'introduction, changements de direction, modification de section, ...) contribue à la modification locale de l'écoulement et lui donne, globalement, un caractère aléatoire en espace et en temps (1).

Dans le cas particulier des changements de direction, les perturbations engendrées sont la cause de sollicitations mécaniques apériodiques supplémentaires qui peuvent conduire à la détérioration de l'installation.

Dès lors qu'une étude sur le comportement local de l'écoulement est initiée au droit de ce type de singularités, des informations relatives aux structures solides, qui apparaissent dans l'écoulement, sont nécessaires afin de prédire les actions mécaniques provoquées sur les coudes. Ce problème nous a conduit à développer une instrumentation spécifique utilisant les fluctuations de pression, exercées par la phase gazeuse, sur la paroi des conduites. Dans le cas des écoulements intermittent gaz-solide, les bouchons solides s'apparentent à des traceurs et la signature (en pression) provoquée par le gaz permet leur identification et donne lieu à l'estimation de certains paramètres tels que vitesses solides, longueur de la structure solide et les variations de pression de la phase gazeuse aux extrémités et le long de la structure.

Cette technique développée en laboratoire sur le banc d'essai du C.E.A.T. à fait l'objet de différents tests de validation. De plus, des essais réalisés sur un site réel montrent que cette technique s'adapte aisément aux applications industrielles.

II. MOYENS EXPERIMENTAUX

La confrontation de la méthode de détection avec l'écoulement s'effectue sur le banc d'essai du C.E.A.T.. C'est un système fermé pour la phase solide et ouvert pour la phase gazeuse (figure 1). On distingue un ensemble de stockage et d'expédition de la phase solide et une alimentation en gaz, dont la pression de fonctionnement est réglable entre 0 et 4 bars. Le mélange diphasique est réalisé dans l'introducteur et propulsé dans le circuit de transport. Celui-ci possède une longueur totale de 56 m et de 80 mm de diamètre intérieur. On distingue trois configurations géométriques différentes, horizontale-horizontale, horizontale-verticale, verticale-horizontale, qui permettent de recréer des conditions réelles de transport.

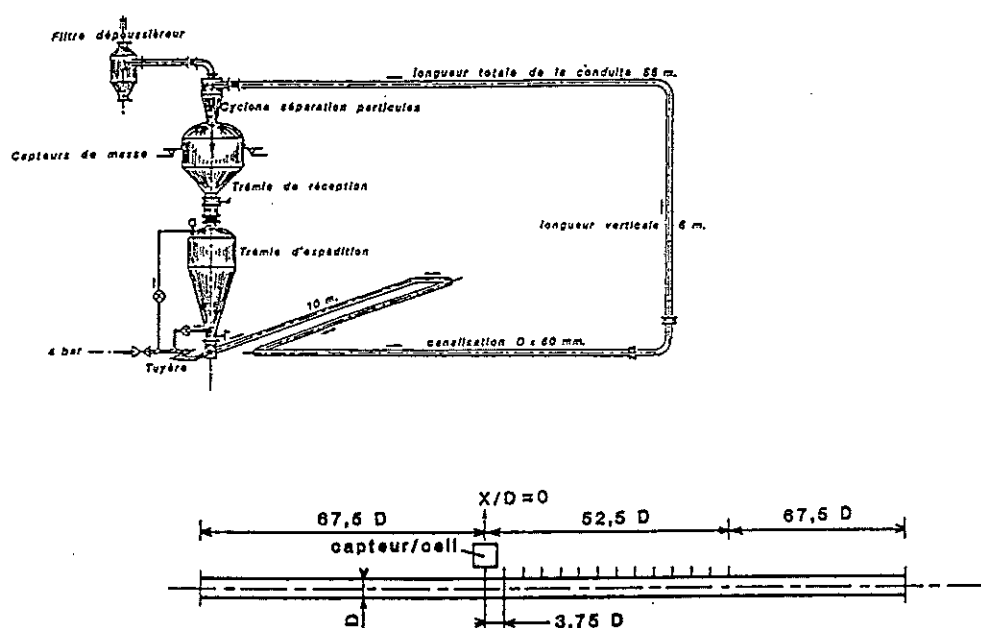


Figure 1 : Schématisation du banc d'essai.

L'instrumentation utilisée comprend un système de contrôle de débit de la phase gazeuse (tuyère, capteur de pression Schlumberger CZ9286/4, thermocouple Thermocoax 2ABAC/TI/MF7 (type k)), la pesée continue de la trémie de stockage par trois capteurs de force (Enertec-Schlumberger CD7501/5). Le système de détection développé est formé de quatre capteurs de pression relative, piézorésistifs (Schlumberger CZ9286/2) et de dix capteurs de pression relative, capacitifs (Endress+Hauser PMC130). La totalité des données acquises sont enregistrées par l'intermédiaire d'une carte d'acquisition à seize voies (Analog Devices RTI800).

III. DEFINITION DU MELANGE DIPHASIQUE

La phase secondaire, monodispersée, non cohésive, est constituée de particules de polypropylène (A10TB) appartenant au groupe D de la classification de Geldart (2). La

masse volumique réelle de ce matériau est de 678 kg/m^3 . La forme des grains est assimilable à un cylindre de section elliptique ($4,45 \text{ mm} \times 3,71 \text{ mm} \times 2,48 \text{ mm}$). La phase primaire est de l'air sec déshuilé.

IV. DESCRIPTION DE L'ÉCOULEMENT

L'écoulement produit est couramment désignée sous le vocable d'écoulement à poches, par analogie avec les mélanges gaz-liquide. Il se rencontre principalement sous deux formes : horizontale et verticale. Toutefois, dans cette présentation seul le cas de l'écoulement en conduite droite horizontale est considéré. De façon générale, avec le matériau utilisé, le régime intermittent gaz-solide est une alternance de poches de gaz et de bouchons solides à structure non stable. Les poches de gaz circulent au-dessus d'une couche de particules immobiles, formant une hauteur variable. Les bouchons solides, objet de l'étude, présentent trois parties "distinctes" (figure 2).

- Le corps, zone dense du bouchon est homogène et assimilable à un milieu poreux. Une étude réalisée à l'aide d'une technique de visualisation, (3) a permis de montrer, notamment, l'absence de gradient de vitesse suivant la hauteur dans la section droite, pour les particules situées en proche paroi.
- Le nez ou partie avant du bouchon raccorde le corps et la couche fixe de la poche précédente. Cette jonction forme une zone de consolidation et favorise l'expulsion des grains depuis la partie haute de la section et donne à cette partie du bouchon l'allure d'une vague déferlante.
- La queue ou partie arrière du bouchon forme le raccord entre le bouchon et la couche fixe présente sous la poche de gaz suivante. Il s'agit d'une zone d'effondrement continu du bouchon solide.

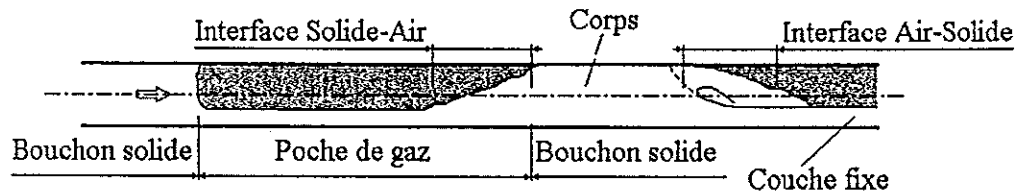


Figure 2 : Représentation schématique d'une période complète de l'écoulement en conduite droite horizontale.

V. PRINCIPE DE DETECTION

La méthode de suivi des bouchons solides est basée sur la reconnaissance de structures au moyen d'une mesure de pression pariétale, (3), (4). Dans son principe de base, pour deux sondes disposées sur la conduite et distantes d'une longueur L faible, le passage du bouchon provoque sur le premier capteur une variation de pression identifiable qui est perçue par le second avec un décalage de temps proportionnel à la vitesse de déplacement du bouchon. En multipliant le nombre de points de mesure sur la conduite, le suivi des bouchons dans leur mouvement est alors possible. La construction de la variable pression en espace et en temps forme l'outil de détection.

Pour cette étude, nous utilisons un total de 14 capteurs distants de 300 mm (distance minimale fixée par la vitesse maximum des bouchons dans le circuit et la capacité de la chaîne de mesure). Cette instrumentation placée sur le circuit de transport (figure 1) loin

de toute singularité permet, d'une part, d'obtenir une reconstitution du passage des bouchons au cours du temps et, d'autre part, d'évaluer la fréquence de passage des bouchons solides (figure 3). Sur cette figure, deux types d'informations sont mises en évidence correspondant au passage successif des poches et des bouchons. Toutefois, devant les échelles de fluctuations de pression obtenues, la distinction entre les deux types d'informations s'effectue aisément en remarquant que tant que la distance entre les sondes reste faible, la différence de pression entre deux points de mesure, au passage d'une poche de gaz, est dans tous les cas négligeable pour être représentative de sa présence dans la zone de mesure. L'étude des caractéristiques d'un bouchon solide s'effectue à partir d'une cartographie de pression statique identique à celle de la figure 4.

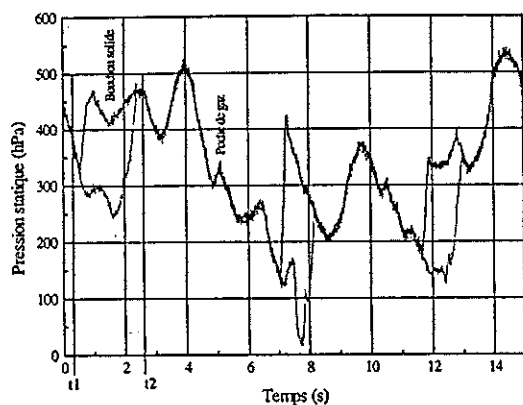


Figure 3 : Reconstitution du passage des bouchons solides dans le tronçon de mesure à l'aide de deux capteurs.

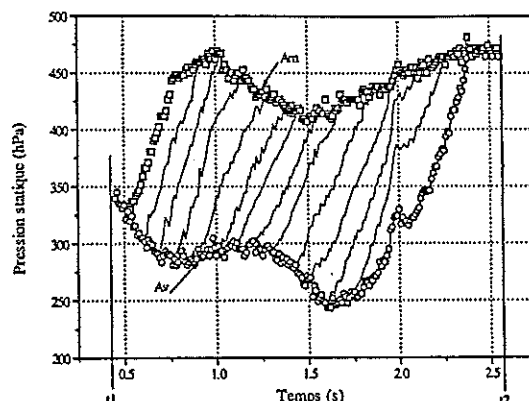


Figure 4 : Cartographie de pression statique du passage d'un bouchon dans le tronçon de mesure. $q_g = 0,045 \text{ kg/s}$ et $q_s = 0,65 \text{ kg/s}$.

On distingue sur la représentation de la figure 4, l'évolution de la pression dans les poches de gaz aval (Av) et amont (Am) ainsi que l'évolution de la pression dans le bouchon et son suivi dans le tronçon de mesure par le réseau de courbes formant un peigne.

La possibilité de dissocier l'information associée aux poches et aux bouchons, permet d'identifier les extrémités de chaque bouchon comme étant l'intersection des signaux de passage du corps devant chaque capteur avec l'évolution de la pression dans les poches de gaz. En conséquence, le mouvement et les propriétés de chaque bouchon peuvent être caractérisés par les paramètres suivants déduits de la cartographie de pressions statiques.

V.1. Longueur des bouchons

En localisant le passage des interfaces devant chaque instrument de mesure, on dispose de deux relations affine entre le temps et l'espace. Lorsque les deux interfaces sont ensemble dans le tronçon de mesure, on détermine la longueur des bouchons par différenciation.

V.2. Vitesse d'extrémités

La dérivation par rapport au temps des relations affine exprimant la position des extrémités définit deux vitesses colinéaire à la direction de l'écoulement. La vitesse de l'interface air-solide (partie avant du bouchon) et l'interface solide-air (partie arrière des bouchons).

V.3. Vitesse moyenne des bouchons

Pour chaque bouchon analysé, on recherche le décalage de temps le plus probable autorisant la corrélation de deux signaux de pression formant la cartographie (figure 4). Pour ce faire, on construit la fonction d'intercorrélation dont la variable unique est le décalage cherché. Cette méthode a déjà été employée avec succès par (4), (5). La représentation de cette relation en fonction du décalage présente un maximum correspondant à la corrélation optimum. On déduit finalement la vitesse moyenne du bouchon entre deux sondes par le rapport : L/τ_1 , avec L, la distance entre les capteurs et τ_1 , le temps de transit moyen.

V.4. Pression aux extrémités et différence de pression entre les extrémités

L'utilisation de capteur de pression permet d'associer à la position des extrémités au cours du temps la valeur de la pression exercée. On déduit la différence de pression entre les interfaces du bouchon lorsqu'elles sont ensemble dans le tronçon de mesure. Ce paramètre est essentiel dans ce type d'écoulement puisqu'il traduit l'énergie motrice nécessaire au mouvement du bouchon.

V.5. Evolution de la pression du gaz le long du corps du bouchon

Pour quantifier ce paramètre, on définit un repère orthonormé relatif à l'une des extrémités du bouchon. Pour une date donnée, lorsque cette interface correspond avec la position d'une sonde, on peut mesurer la pression du gaz le long de l'amas de particules et étudier son évolution au cours du temps de séjour dans le tronçon de mesure.

VI. VALIDATION DU SYSTEME DE DETECTION

VI.1. Analyse fréquentielle

Une analyse spectrale de puissance réalisée pour un intervalle de débits massiques gazeux de 0,035 et 0,045 kg/s et des taux de charge compris entre 17,9 et 12,7, dans une section du circuit, autorise un échantillonnage des signaux à 100Hz. De plus, la durée d'enregistrement maximum permet la capture de plusieurs structures solides pour l'analyse des périodes d'apparition dans la zone d'étude.

VI.2. Sensibilités des sondes de pression

La méthode a été confrontée simultanément à une technique de détection utilisant des sondes optiques, développées au laboratoire, (3), et préalablement étalonnées sur les différentes formes possibles de chacune des extrémités des bouchons solides, identifiées par une méthode de visualisation. Ces tests montrent que la méthode utilisant les capteurs de pression permet d'identifier parfaitement l'extrémité arrière des bouchons. En revanche, dans l'état actuel des travaux, seule la zone dense de la partie avant est détectée (ce qui correspond au cœur de la zone déferlante)

VI.3. Distances maximum entre les sondes

Enfin, pour valider l'instrumentation, nous avons réalisé des essais dans le but de fixer la distance maximum entre deux sondes, (3). Il s'agit de couvrir, à l'aide des quatorze

capteurs, une zone du circuit la plus importante possible. De plus, cette distance doit permettre à l'instrumentation de suivre les fluctuations locales imposées aux bouchons solides. Dans l'intervalle des débits massique d'alimentation défini au §VI.1, les résultats obtenus permettent de couvrir une longueur droite maximum de 243D.

VII. CONCLUSION

L'utilisation minimum de deux capteurs de pression statique permet d'identifier le passage des différentes structures d'écoulements discontinus gaz-solide. L'analyse du comportement individuel des bouchons solides dans une partie d'un circuit est alors possible, en évaluant leurs vitesses, leur longueur, leur gradient de pression ainsi que les pressions aux extrémités. Grâce à cet outil expérimental non intrusif, nous avons évalué le caractère stochastique de l'écoulement en conduite droite horizontale d'une part et nous avons obtenu les informations nécessaires à la résolution du problème de l'action mécanique des bouchons solides dans les coudes. Cette technique a également été utilisée (en laboratoire) pour l'analyse de l'écoulement en conduite droite verticale et le cas limite de l'engorgement a pu être mis en évidence. Enfin, en collaboration avec la société Guérin Systems, nous avons effectué l'analyse du comportement local de l'écoulement sur un site réel. Cette étude représente par ailleurs une faisabilité sur le développement d'un produit industriel commercialisable. En terme de perspectives, l'ensemble des données obtenues doit nous permettre à présent d'établir un modèle du comportement dynamique des bouchons solides dans les conduites et déterminer la porosité équivalente du milieu diphasique.

Toutefois, avant l'utilisation de cette technique, on distingue deux contraintes qui doivent être vérifiées selon la plage de débits d'alimentation retenue pour la formation de l'écoulement. Il s'agit de l'échantillonnage des signaux et l'espacement des sondes de mesure sur la conduite. En effet, l'étude de l'influence de la distance entre les capteurs montre l'existence d'un intervalle à respecter pour que les grandeurs moyennes déduites soient valides.

VIII. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- (1) Gadoin E., Régime intermittent gaz-liquide en conduite horizontale. Ecoulements non établis et transitoires, Thèse de l'institut national polytechnique de Toulouse (1993).
- (2) Geldart D., Powder technology, vol7, pp 285-292 (1973).
- (3) Mélinge Y., Etude de l'écoulement intermittent gaz-solide au voisinage de changements de direction à rayon de courbure constant, Thèse de l'université de Poitiers (1998).
- (4) Mi B. et Wypich P. W., Particles slug velocities in horizontal slug flow pneumatic conveying, Powder Handling & Processing. Vol 5, N°3, pp. 227-233 (1993).
- (5) Smith R.A. et Klingzing G. E., Investigation of particles velocities in a gas-solid system, AIChE Journal, Vol 32, N°2, pp. 313-316 (1986).

CARACTERISATION D'ECOULEMENT DANS UN MELANGEUR PAR TRACAGES ET MODELISATION

G. BEAUDOING, Ph. BERNE

<> CEA - DAMRI/DTA
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX

RESUME

En génie industriel l'optimisation d'installation de production nécessite la connaissance des écoulements internes et des temps de séjour des substances (liquide, gaz ou solide). L'étude de la circulation de ces substances dans un mélangeur industriel conduit à mettre en œuvre du traceur conservatif de la ou des substances à marquer. La méthodologie des traceurs mise en œuvre associe d'une part les techniques de marquage de produits (radioactifs, fluorescents, ...) et d'autre part l'analyse système qui permet le traitement des signaux d'entrées et de sorties.

Parallèlement à cette démarche expérimentale, on présente une simulation numérique de l'écoulement dans le mélangeur, réalisée avec le code de calcul TRIO-VF. Ce code intègre les équations de Navier-Stokes par une méthode de volumes finis. La simulation numérique permet d'illustrer la circulation du traceur à l'intérieur du mélangeur ; dans la mesure où elle peut être validée par comparaison avec l'expérience, elle donne aussi accès à la distribution des âges internes.

I. INTRODUCTION

Nous présentons une application de la méthodologie à la caractérisation d'écoulements d'eau en conditions isothermes dans un mélangeur à géométrie cylindrique fixe dans lequel sont implantés des dispositifs conçus pour améliorer ou amplifier des anomalies de fonctionnement : by-pass variant de 0 à 48.5 %, zones et volumes à faible renouvellement variant de 0 à 34 %. Les méthodes classiques de traçages conduisent à l'exploitation des distributions de temps de séjour (DTS). Le réacteur est alimenté pour diverses situations d'écoulements (débits d'entrée stationnaires, interposition d'obstacles améliorant ou altérant l'état de mélange) en vue d'obtenir les DTS correspondantes. Le réacteur considéré est représenté par un corps cylindrique vertical. Le jet d'alimentation et la sortie circulaires sont tangentiels respectivement au fond et au couvercle et ils sont diamétralement opposés dans un même plan vertical. Les DTS sont obtenues par la mise en œuvre de traceurs fluorescents. Les résultats expérimentaux obtenus correspondent à des écoulements dont le nombre de Reynolds du jet d'alimentation varie de 6300 à 862000.

II. DEMARCHE EXPERIMENTALE

La démarche expérimentale met en œuvre un traceur fluorescent injecté dans la buse d'entrée et sa détection est réalisée en sortie du mélangeur. Le dispositif est représenté suivant le schéma de principe de la figure 1.

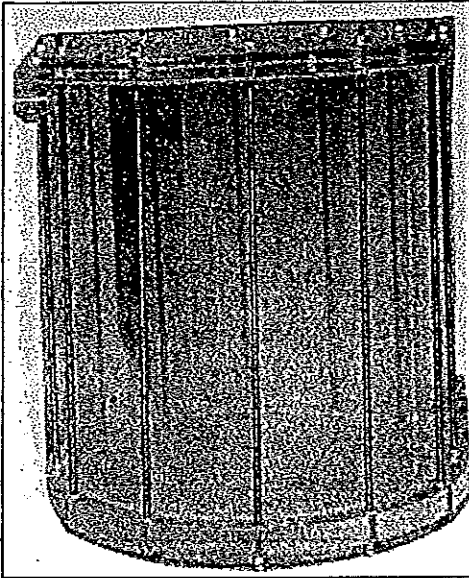


Figure 1: Représentation du banc expérimental

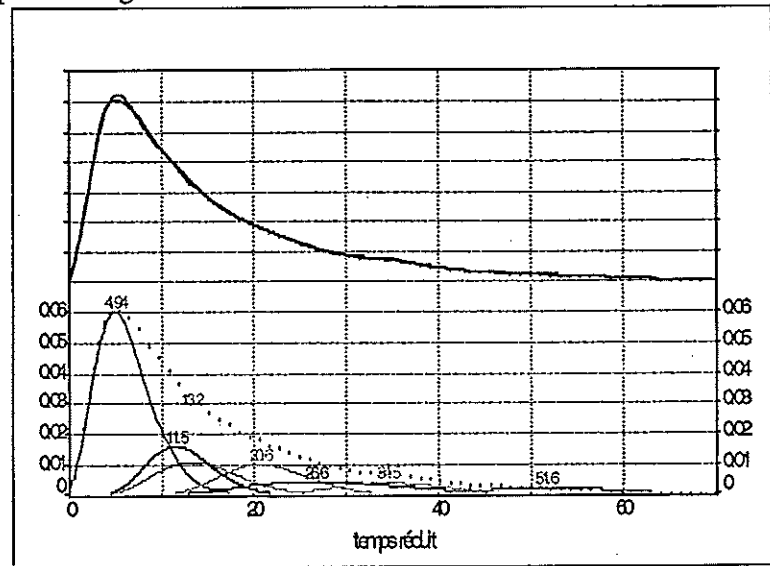


Figure 2: Distribution des Temps de Séjour expérimentale décomposée avec PEAKFIT

II.1. Méthodologie des traceurs en milieux confinés

La méthodologie générale des traceurs consiste à marquer les molécules entrantes dans le système réacteur défini et à les dénombrer en sortie en fonction du paramètre temporel. Différentes techniques sont mises en œuvre qui permettent en particulier d'évaluer visuellement ou par détection extérieure les champs des vitesses ou des concentrations; le cas présent ne traitera expérimentalement que de l'exploitation des données de sortie du système.

II.1.1 Hypothèses et conditions aux limites de l'expérimentation

Les hypothèses restrictives du système sont les suivantes :

- la géométrie du système est indéformable, les dimensions des tubes d'entrée et de sortie sont petites par rapport aux dimensions du réacteur,
- l'injection est supposée homocinétique, la fonction d'entrée est assimilée à un Dirac et le traitement de la réponse conduira à l'acquisition de la réponse impulsionnelle,
- l'écoulement déterministe est isotherme et en régime permanent,
- le fluide mis en œuvre est de type newtonien.

II.1.2 Expérimentations

Les traçages ont été réalisés sur 3 modèles physiques de même géométrie avec des rapports de similitude géométrique égaux à 1, 5 et 10. Sur le modèle à échelle 1 ($\Phi = 0.287$ m, $h = 0.30$ m, Volume = $19.7 \cdot 10^{-3}$ m³), la gamme de Reynolds du jet d'alimentation qui est étudiée s'étale de 6 300 à 84 800 pour des vitesses de jet U valant de $0.32 < U < 6.37$ m/s. Des expérimentations sont réalisées dans 3 cas principaux :

- fonctionnement en géométrie initiale sans obstacle,
- fonctionnement avec la présence d'un obstacle amplificateur de court circuit,
- fonctionnement avec la présence d'un obstacle amplificateur de « volume mort ».

Les modèles de courbes expérimentales obtenues sont représentés sur les figures 3 et 4 :

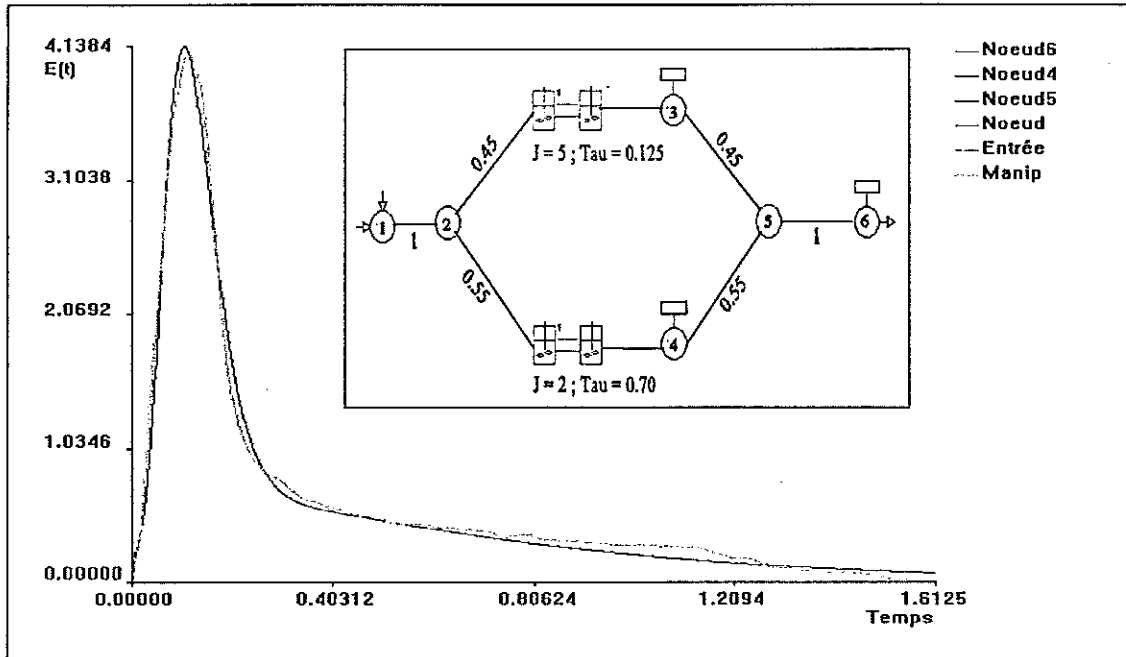


Figure 3 : Ecoulement avec ampli court circuit : courbe expérimentale + représentation

L'exploitation des réponses impulsionnelles est réalisée suivant deux approches :

- 1-par optimisation des courbes avec un modèle d'écoulement de type hydrodispersif calé avec deux paramètres de convection et de dispersion,
- 2-par optimisation avec le réponse impulsionnelle équivalente d'un modèle de réseaux de mélangeurs (piston, réacteur agité simple et en série, court circuit, réseaux de réacteurs agités avec échange disposés en cascade).

L'utilisation du code DTS permet ces optimisations.

Les résultats d'optimisation obtenus pour des modèles de représentation d'écoulement sont respectivement présents dans les figures 3 et 4.

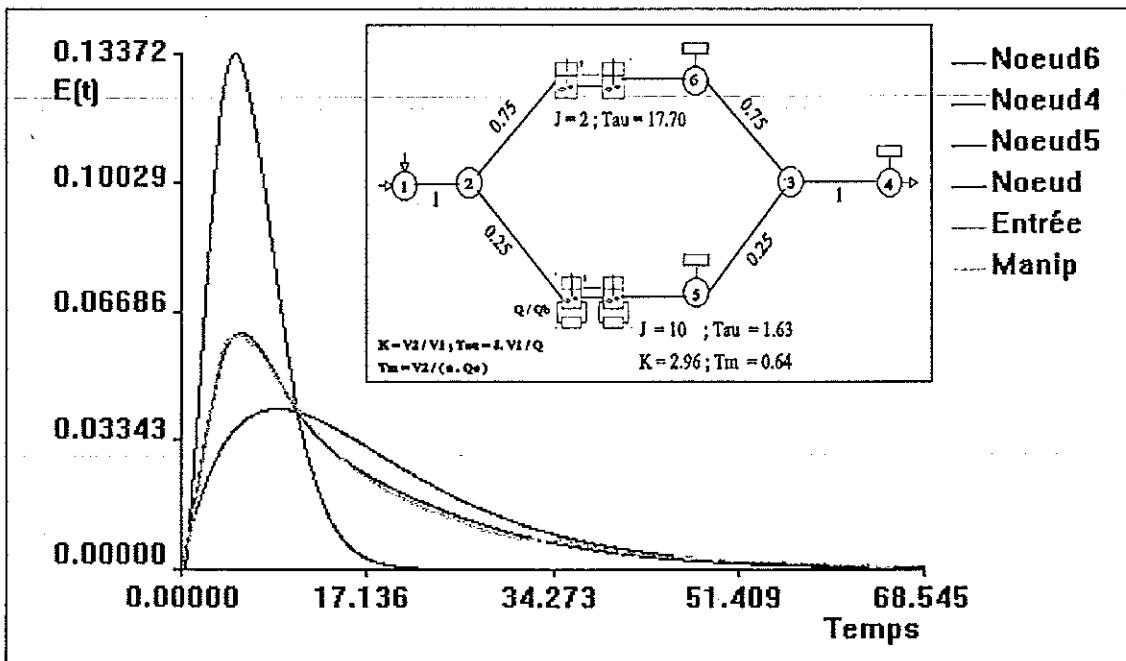


Figure 4: Ecoulement avec « volume mort » : courbe expérimentale + représentation

III. DEMARCHE PAR TRAITEMENT NUMERIQUE

III.1. Intérêt

Les méthodes décrites dans le chapitre précédent sont typiquement des méthodes locales : on s'intéresse à l'évolution des concentrations à l'entrée et à la sortie du système, et éventuellement en un nombre limité de points intérieurs. On conçoit tout l'intérêt qu'il y aurait à accéder à une information complète sur le champ de concentration interne, en fonction du temps. Les codes de mécanique des fluides numérique (souvent désignés par l'acronyme anglais « CFD », Computational Fluid Dynamics) sont un moyen de répondre à cette préoccupation. Nous montrons ici comment un de ces codes (en l'occurrence TRIO-VF, développé au CEA) permet de calculer l'écoulement et de simuler une expérience de traçage dans notre mélangeur. Il s'agit seulement d'un exemple d'illustration, la capacité de calcul mise en jeu, relativement faible, ne permettant pas de montrer réellement le caractère prédictif de notre simulation numérique.

III.2. Equations de l'écoulement

Dans le cas où le fluide utilisé est incompressible et newtonien (ce qui est vrai pour l'eau), son écoulement est décrit par les équations de Navier-Stokes, qui consistent en un bilan de masse et un bilan de quantité de mouvement. Comme l'écoulement qui nous intéresse est nettement turbulent, ces équations doivent être complétées par un modèle de turbulence. Un choix classique est le modèle dit « $k-\varepsilon$ », qui présente l'avantage d'être à la fois simple et raisonnablement efficace. Il consiste à calculer une viscosité turbulente en fonction de l'énergie cinétique turbulente k et de la fonction de dissipation associée ε , grandeurs dont il faut aussi résoudre les équations de bilan. L'aspect hydrodynamique de l'écoulement est donc décrit par six équations aux dérivées partielles :

- un bilan de masse (ou équation de continuité),
- trois bilans de quantité de mouvement (une par composante),
- un bilan d'énergie cinétique turbulente,
- un bilan de dissipation de l'énergie turbulente.

Ces équations peuvent se mettre sous forme adimensionnelle. Dans le cas qui nous occupe, où il n'y a, a priori, pas d'effet de densité, le seul paramètre qui subsiste est le nombre de Reynolds.

Si l'on souhaite simuler la dispersion d'un traceur dans le système, il convient de rajouter une équation aux dérivées partielles qui exprime le bilan de masse de traceur. Il est moins connu que la distribution de l'âge interne, $\bar{\tau}$, est également régie par une équation du même type :

$$\nabla \cdot (u\bar{\tau} - D\nabla\bar{\tau}) = 1 \quad (1)$$

où u est le vecteur vitesse et D un coefficient de dispersion, égal à la somme de la diffusivité moléculaire du traceur dans le fluide et de la diffusivité turbulente, si l'on se place dans le cadre du modèle $k-\varepsilon$.

III.3. Le code de calcul utilisé

Il existe à l'heure actuelle de nombreux codes de CFD. Pour la simulation numérique présentée ici, nous avons choisi d'utiliser le code TRIO-VF version 8.7, qui a été développé au CEA. Ce code traite des problèmes d'écoulement, éventuellement couplés avec des échanges de chaleur ou de matière, en régime laminaire et turbulent. Les modèles de turbulence proposés comprennent le $k-\varepsilon$ standard (que nous avons adopté), une version à bas Reynolds et divers modèles sous-mailles pour la simulation des grandes échelles. Les équations de bilan sont discrétisées par une méthode de volumes finis et peuvent

être résolues par différentes méthodes, parmi lesquelles nous avons choisi la méthode du gradient conjugué. Les méthodes retenues sont tout à fait classiques ; leurs mérites principaux sont leur robustesse du point de vue numérique.

III.4 Cas d'étude : réacteur cylindrique sans obstacle interne

Nous présentons ici, à titre d'illustration, quelques résultats obtenus pour le réacteur cylindrique en géométrie normale, pour une valeur du nombre de Reynolds de 10^5 . Le maillage utilisé est un maillage cylindro-polaire assez grossier comportant $17 \times 33 \times 16$, soit environ 9000 nœuds. La DTS calculée est la suivante :

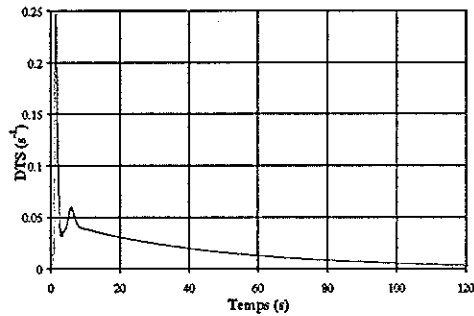
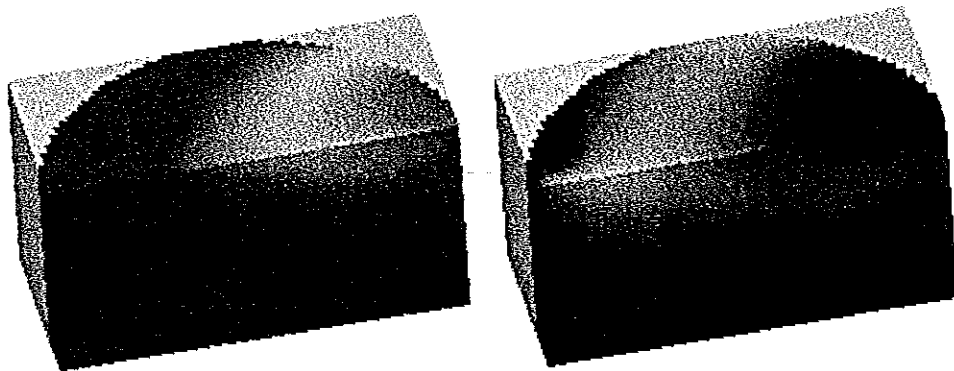


Figure 5 : DTS calculée dans le mélangeur cylindrique

Cette DTS reproduit certaines caractéristiques des DTS données par l'expérience : présence d'un court-circuit et d'une recirculation, qui se traduisent respectivement par le premier et le second pic. Par contre, les propriétés de mélange du système ne sont pas correctement reproduites : la traînée de la courbe calculée est manifestement trop longue. Ce mauvais résultat est probablement lié au choix d'un maillage trop grossier, qui limite le nombre de Reynolds réel du calcul à une valeur nettement trop basse, en dépit de l'apport du modèle de turbulence (autrement dit, le calcul effectué se rapprocherait du régime laminaire).

Les figures 6 ci-dessous présentent l'évolution du champ de concentration tridimensionnel pendant les 15 premières secondes de l'expérience de traçage. On observe assez nettement comment le traceur se disperse à l'intérieur du mélangeur, du fait de la recirculation (on a représenté seulement une moitié du mélangeur ; les zones claires correspondent aux concentrations les plus élevées). Nous estimons que, malgré les défauts de notre simulation, les phénomènes observés sont *qualitativement* réalistes.



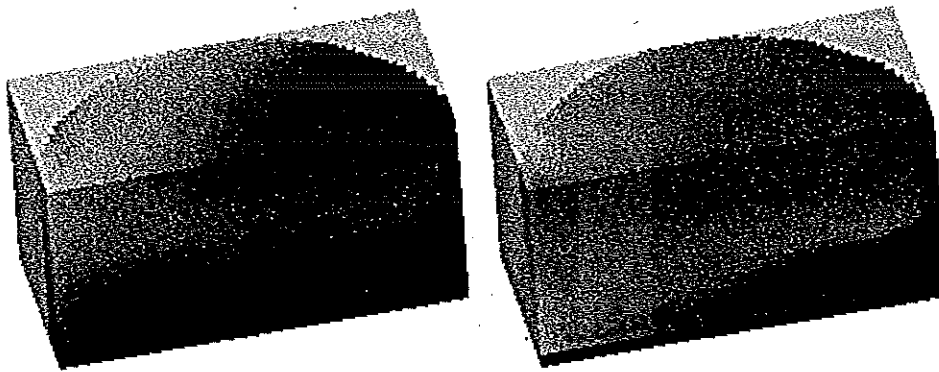


Figure 6 : Dispersion du traceur dans le mélangeur pendant les 15 premières secondes

La figure 7 montre enfin l'allure du champ d'âge interne calculé. Elle n'est donnée qu'à titre d'illustration ; il nous semble en effet que les insuffisances de la simulation, révélées par la DTS, lui ôtent son caractère prédictif.

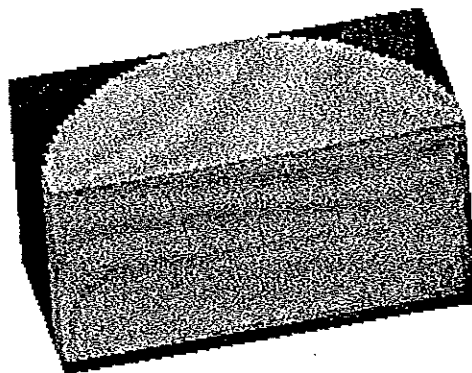


Figure 7 : une illustration des lignes iso-âge interne dans le mélangeur

V. CONCLUSION

Les simulations numériques permettent de visualiser les champs de vitesse et de concentration dans le mélangeur. Ces visualisations montrent clairement le jet créé par l'entrée du fluide, l'impact de ce jet sur la paroi opposée et l'existence d'une recirculation. Il en résulte une meilleure compréhension des phénomènes révélés par les expériences de DTS. La démarche proposée conduit à l'élaboration d'une méthodologie qui permettra à partir d'expérimentations de traçages in situ et de simulations numériques conduisant à des DTS identiques de représenter les champs des vitesses et des concentrations dans des enceintes industrielles à géométrie similaire, par exemple pour mieux apprécier la bonne implantation de détecteurs spécifiques en milieu ambiant.

BIBLIOGRAPHIE

- BEAUDOING G.,1974, Détermination expérimentale par la technique des traceurs des conditions de similitude de certains types de mélangeurs, doctorat 3^{ème} cycle, Toulouse.
- VILLERMAUX J.,1985, Génie de la réaction chimique. Conception et fonctionnement des réacteurs.
- International Atomic Energy Agency, 1990, Guidebook on radioisotope tracers in industry, Technical Report Series n° 316.
- BERNE Ph., BLET V.,1998, Assessment of the systemic approach using radioactive tracers and CFD, to be presented at Roomvent'98, 6th International conference on air distribution in rooms, Stockholm.

MESURE DU DEBIT D'UNE SOURCE NON PONCTUELLE DE GAZ PAR UNE TECHNIQUE DE TRACAGE ATMOSPHERIQUE

Ph. BERNE, A. TREGOURES

<> CEA - DAMRI/SAR/SAT
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX 9

RESUME

On présente les bases théoriques d'une méthode de mesure du débit émis par une source de gaz étendue, au moyen du traçage gazeux. Appliquée à une décharge d'ordures ménagères, cette méthode a permis de mesurer, de façon fiable et reproductible, le débit de méthane rejeté à l'atmosphère.

I. CONTEXTE

Il existe de nombreuses sources de contaminants gazeux, d'origine naturelle, agricole ou industrielle. Il est nécessaire de connaître le débit de ces sources si l'on souhaite, par exemple, contrôler la qualité de l'air ou maîtriser l'effet de serre. Une difficulté particulière provient de ce que ces émissions se présentent souvent sous la forme de sources surfaciques, dont le débit peut varier fortement dans l'espace. Un exemple typique serait l'émission de méthane par les décharges d'ordures ménagères.

A notre connaissance, quatre grands types de méthodes sont envisageables pour la mesure du débit de gaz émis par une source surfacique étendue :

- les chambres d'accumulation, qui donnent une mesure du flux d'émission **local** ; un traitement géostatistique permet ensuite, d'accéder au débit global ;

- si l'origine de l'émission se trouve en profondeur, la mesure du gradient de concentration dans le sol, qui donne également le flux **local** moyennant une estimation du coefficient de diffusion du gaz dans le sol ;

- les méthodes dites « micrométéorologiques », dont le principe est d'évaluer le flux de gaz dans la couche-limite qui se développe en aval de la source, par des mesures simultanées de vitesses et de concentrations ; ces méthodes donnent une mesure du débit **intégré** sur une portion de la surface de la source ;

- le traçage gazeux, qui consiste à ensemencer la source avec un gaz convenablement choisi ; cette méthode donne également un débit **intégré**. Dans ce qui suit, nous en décrivons les fondements théoriques et l'application en conditions réelles à une décharge d'ordures ménagères.

II QUELQUES CONSIDERATIONS THEORIQUES

II.1. Les bases

Soit une source de surface D émettant un gaz avec la distribution de débit $Q(x, y)$, que l'on cherche à connaître (on admet que l'on peut négliger la variabilité de

la source pendant la durée de l'expérience et donc que le temps peut être éliminé de l'expression de Q). On s'intéresse également au débit total Q , égal à $\int_D Q(x', y') dx' dy'$.

De manière très générale, la concentration du gaz émis en point quelconque (x, y) au sol peut s'écrire :

$$C(x, y, t) = \int_D K(x, y, t, x', y') Q(x', y') dx' dy' \quad (1)$$

où K est le « coefficient de transfert atmosphérique » entre les points (x, y) et (x', y') à l'instant t . L'équation (1) montre que si l'on connaît la distribution spatiale de K , des mesures de C devraient fournir des informations sur la distribution de Q .

Un cas particulier important est celui où la source peut être considérée comme ponctuelle (soit parce qu'elle l'est vraiment, soit parce qu'elle est très éloignée du point de mesure). $K(x, y, t, x', y')$ se ramène alors à $K_D(x, y, t)$ et l'équation (1) se réduit à :

$$C(x, y, t) = K_D(x, y, t) Q_i \quad (2)$$

Cette relation est en fait valable pour tout gaz transporté de manière passive dans l'atmosphère, ce qui signifie que si un gaz traceur est injecté en D avec un débit q , et si sa concentration c est mesurée au même point (x, y) , Q_i sera donné par :

$$\frac{C(x, y, t)}{Q_i} = \frac{c(x, y, t)}{q} \quad (3)$$

Cette équation très simple permettrait donc de calculer Q_i à partir de deux mesures de concentration seulement. En contrepartie, elle n'est utilisable que pour des sources **ponctuelles**. Si l'on revient au cas général, soient \vec{V} le vent moyen, x sa direction et y la direction perpendiculaire (figure 1) :

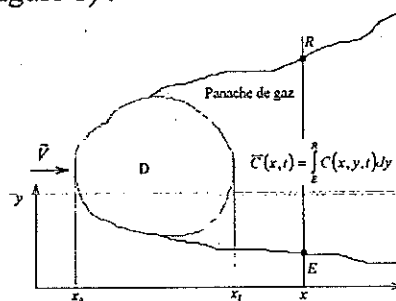


Figure 1 : Emission non ponctuelle - Définitions

Supposons maintenant que l'on ait accès (par exemple par des prélèvements multiples) à la concentration en gaz intégrée sur la largeur du panache, $\bar{C}(x, t)$. Cette grandeur sera également donnée par :

$$\bar{C}(x, t) = \int_D \bar{K}(x, t, x', y') Q(x', y') dx' dy' \quad (4)$$

où \bar{K} est le coefficient de transfert moyenné sur la largeur du panache. Nous pouvons alors moyenniser cette relation sur une période de temps τ , significativement plus grande que l'échelle de temps de la turbulence locale. Notant \tilde{C} et \tilde{K} les concentration et coefficient de transfert moyennés dans le temps, on obtient :

$$\tilde{C}(x) = \int_D \tilde{K}(x, x', y') Q(x', y') dx' dy' \quad (5)$$

Admettons enfin que la turbulence atmosphérique est statistiquement homogène dans la direction du vent et la direction perpendiculaire (ce qui revient, en gros, à supposer qu'il n'y a pas d'obstacle dans le voisinage de la source). Il vient :

$$\bar{C}(x) = \int_{x_0}^{x_1} \bar{K}(x-x') \bar{Q}(x') dx' \quad (6)$$

(x_0 et x_1 sont définis sur la figure 1). Cette relation est aussi applicable, moyennant les mêmes hypothèses, à tout gaz transporté de façon passive par l'atmosphère.

II.2. Application : la méthode « in-situ »

L'équation (6) suggère une méthode pratique pour la mesure de $\bar{Q}(x)$ au moyen du traçage gazeux. Divisons en effet la surface de la source en N bandes parallèles suivant la direction perpendiculaire au vent :

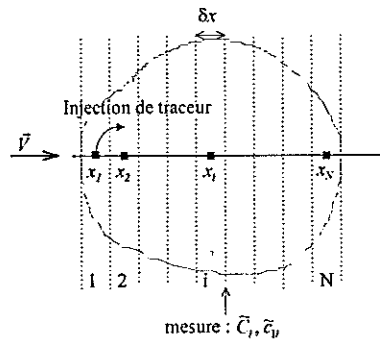


Figure 2 : Méthode in-situ : injection du traceur et points de mesure

Chaque bande, de largeur δx , est centrée sur le point x_i et émet un débit \bar{Q}_i approximativement égal à $\bar{Q}(x_i) \delta x$. Injectons le gaz traceur au point x_i , avec un débit q , et mesurons successivement les concentrations du gaz émis et du traceur, \bar{C}_{ii} et \tilde{c}_{ii} , au bord le plus éloigné de chaque bande (figure 2). S'il y a de la rétrodiffusion (i.e. si les gaz peuvent « remonter » le vent, par exemple en cas de vent faible), il faut effectuer une seconde série de mesures, \bar{C}_{Ni} et \tilde{c}_{Ni} , en injectant cette fois le traceur au centre de la dernière bande. Le coefficient de transfert atmosphérique moyen entre les points d'injection du traceur et le $i^{\text{ème}}$ points de mesure est donné par :

$$\bar{K}_{ii} = \frac{\bar{C}_{ii}}{q}, \quad \bar{K}_{Ni} = \frac{\tilde{c}_{Ni}}{q} \quad (7)$$

Si l'hypothèse d'homogénéité spatiale de la turbulence est respectée, il est possible de faire une translation de ces coefficients de transfert suivant la direction du vent. Autrement dit, le coefficient de transfert atmosphérique entre la bande i et le point de mesure j est donné par :

$$\left. \begin{aligned} \bar{K}_{ij} &= \bar{K}_{i,j+1-i} \text{ si } j \geq i \\ \bar{K}_{ij} &= \bar{K}_{N,j+N-i} \text{ si } j \leq i \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

L'ensemble des \bar{K}_{ij} peut donc être déterminé avec $2N$ mesures de concentration en gaz traceur (et même N si on peut négliger la rétrodiffusion). Il est enfin possible de mettre l'équation (6) sous forme discrète :

$$\bar{C}_j = \sum_{i=1}^j \bar{Q}_i \bar{K}_{ij} \quad (9)$$

Les \tilde{K}_y et les \tilde{C}_j étant accessibles grâce aux mesures de concentration en gaz émis et en gaz traceur, on peut résoudre le système (9) pour trouver les \bar{Q}_i . Le débit total de gaz émis est enfin donné par :

$$Q_t = \sum_{i=1}^N \bar{Q}_i \quad (10)$$

Si la largeur de la source (i.e. sa dimension selon la direction du vent) est faible, N peut être ramené à 1 et les équations (7), (8) et (10) se réduisent à la forme très simple :

$$Q_t = \frac{\tilde{C}}{\bar{c}} q \quad (11)$$

En résumé, ce développement théorique montre qu'en effectuant au plus deux injections de traceur couplées chacune avec N mesures de concentration en gaz émis par la source et en gaz traceur, on peut déterminer le débit moyen de gaz émis par chacune des N bandes et bien entendu le débit total de la source. Nous désignons cette méthode, à notre connaissance originale, comme la « méthode in-situ », parce que les mesures de concentration se font sur la surface même de la source.

III. MESURES SUR LE TERRAIN

III.1 Le site

La méthode a été testée en conditions réelles lors d'une campagne d'essais sur la décharge d'ordures ménagères de Rochy-Condé, à une centaine de kilomètres au nord de Paris. L'objet était la mesure du débit de méthane CH_4 (biogaz) émis par la décharge. Différentes techniques ont été essayées et comparées, du point de vue de la qualité de leurs résultats, de leur facilité de mise en œuvre et de leur coût. Ces essais, très exhaustifs, étaient organisés par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME), dans le cadre d'une grande campagne d'intercomparaison de méthodes (1), et sont décrits plus en détail dans (2).

La décharge de Rochy-Condé est une ancienne carrière de sable, de forme rectangulaire et d'une surface d'environ 8 hectares. Les déchets ont été déposés en deux périodes, de février 1988 à avril 1990 et de novembre 1993 à mai 1995 ; ils se composent principalement d'ordures ménagères (pas de déchets d'origine industrielle). La décharge n'est pas équipée de système de collecte du biogaz. Le sol de la décharge est parcouru de profondes fissures, avec une couverture végétale assez clairsemée. Elle est entourée d'un fossé d'une largeur de 1 à 1,5 m et d'une profondeur de 0,5 à 1 m. Tout ceci laisse présager une émission du méthane très hétérogène, avec des flux élevés au niveau des fissures et du fossé (ce qui a effectivement été confirmé par des mesures locales par chambre d'accumulation). Dans le voisinage se trouvent des champs en exploitation, un terrain d'aéromodélisme et des terrains vagues. Il n'y a pas de relief marquant.

La campagne de mesures s'est déroulée du 1^{er} au 5 juillet 1996. Pendant cette période, le vent a soufflé de l'ouest et de l'ouest-sud-ouest, avec une vitesse moyenne de l'ordre de 3 m/s. Les températures se sont étagées entre 11 et 21 °C. Il y a eu peu de pluie et la pression barométrique est restée stable. On peut imaginer que ces deux facteurs favorisent une production stable de biogaz.

III.2 Instrumentation

Nous avons retenu l'hexafluorure de soufre SF_6 comme gaz traceur pour cette expérimentation. Il s'agit là d'un choix très classique, inspiré par les propriétés

d'innocuité et de facilité de détection du SF₆. En dehors des mesures annexes (température de l'air, vitesse et direction du vent ...), il fallait donc mesurer des concentrations de CH₄ et de SF₆ dans l'air (problème rendu épineux, dans le cas du CH₄, par la faiblesse des concentrations attendues et l'existence d'un bruit de fond atmosphérique de l'ordre de 1,8 ppm en volume). Pour cela, nous avons pu procéder de deux manières différentes :

- par prélèvements dans des sacs et analyse en différé

Nous avons utilisé des sacs de 10 litres, remplis en 60 minutes. Les concentrations intégrées suivant la direction perpendiculaire au vent ont été obtenues soit par prélèvements multiples, soit en déplaçant un même sac à vitesse constante suivant cette direction. Cette méthode très simple s'est avérée pratique et efficace, avec l'avantage supplémentaire de réduire le nombre de sacs à analyser. Le dosage du CH₄ et du SF₆ ont été faits avec des chromatographes munis respectivement d'un détecteur à ionisation de flamme (appareil BENDIX de type 8201) d'un détecteur à capture d'électron (appareil construit au laboratoire). Ces deux appareils se sont révélés bien adaptés à un usage sur le terrain, mais la mesure de concentrations de CH₄ peu différentes de l'ambiante s'est avérée délicate.

Pour limiter la durée des essais, une seule traverse de la décharge a été faite, ce qui correspondrait au cas $N = 1$ de la partie théorique, ou encore, en principe, à une décharge de faible largeur. Comme le montre la figure 3, cette condition n'est pas trop mal respectée avec les directions de vent rencontrées. Ces expériences ne donnent donc accès qu'au débit total de méthane émis par la décharge, comme le montre l'équation (11). Au total, nous avons effectué cinq expériences de ce type, d'une durée comprise entre une heure et demie et cinq heures.

- par mesure en temps réel

Un examen rapide des appareils existants a montré tout l'intérêt de l'interférométrie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR : Fourier Transform Infra Red) pour notre application. Cette technique permet en effet de doser simultanément le CH₄ et le SF₆ et donne, de plus, des concentrations intégrées sur une ligne (en l'occurrence le trajet optique du faisceau de mesure), ce qui correspond exactement à la grandeur que nous recherchons. Nous avons pu utiliser un système construit par la MIDAC Corporation, comprenant d'une part une source infrarouge à 1550 K placée au foyer d'un réflecteur parabolique et d'autre part un interféromètre FTIR muni d'un détecteur HgCdTe refroidi à l'azote liquide. Cet appareil mesure le spectre d'absorption de l'atmosphère dans la bande de 5000 à 700 cm⁻¹, sachant que les raies d'absorption principales du CH₄ et du SF₆ se situent respectivement à 3018 et 960 cm⁻¹. Le chemin optique peut atteindre quelques kilomètres, ce qui est plus que suffisant pour notre application. Les spectres d'absorption de la vapeur d'eau et du dioxyde de carbone, présents en grande quantité dans l'atmosphère, peuvent être éliminés par la mesure d'un « blanc », pris par exemple en amont de la source de gaz étudiée.

Une série de mesure a été faite avec ce système sur le site de Rochy-Condé. Trois traverses de la décharge ont été faites (ou, autrement dit, $N = 3$). Du fait de l'encombrement et de la maniabilité somme toute réduite de l'interféromètre, il n'a malheureusement pas été possible de couvrir la totalité de celle-ci ; de même, la contribution des fossés n'a pas pu être prise en compte. Là encore, l'essai a pu être mené à bien en quelques heures seulement.

III.3. Résultats

Au final, les résultats obtenus avec les prélèvements et mesures en différé s'établissent comme suit :

Date	2 juillet après-midi	3 juillet après-midi	4 juillet matin	4 juillet après-midi	4 juillet soir
Q_t ($\text{Nm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$)	5,8	5,2	5,2	5,4	5,4
Q_t/S ($\text{Nml} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{min}^{-1}$)	73	65	64	68	67

Compte tenu de l'incertitude des mesures et de l'erreur due à la méthode elle-même (estimée au moyen de tests numériques dont on pourra trouver une description dans (3)), l'incertitude globale est estimée à 35 % avec un intervalle de confiance de 95 %. Ces résultats sont très reproductibles et tout à fait comparables à ceux que donnent, par exemple, les méthodes par chambre d'accumulation (1). Nous devons également signaler que notre méthode par traçage gazeux supporte aisément la comparaison avec les autres méthodes utilisées sur le site de Rochy-Condé, sur la plan de la facilité de mise œuvre, de la rapidité et du coût.

L'interférométrie FTIR donne les débits d'émission de trois bandes de la décharge (respectivement 0,8 ; 0,1 et 0,9 $\text{Nm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$), soit un débit total de 1,8 $\text{Nm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$, manifestement sous-estimé. Une correction pour prendre en compte le flux sortant des fossés donnerait la valeur de 4,4 $\text{Nm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$, qui est compatible avec les résultats précédents.

IV. CONCLUSION

Selon nous, ce travail apporte deux éléments :

- **d'un point de vue théorique**, nous avons établi de façon sûre les fondements d'une méthode originale de mesure du débit d'une source diffuse par traçage gazeux,
- **d'un point de vue pratique**, nous avons pu montrer que cette méthode était utilisable dans les conditions de terrain, relativement difficiles, d'une décharge d'ordures ménagères.

Le traçage gazeux apparaît ainsi comme une alternative intéressante aux méthodes classiques par chambres d'accumulation ou par mesures micrométéorologiques.

REMERCIEMENTS

La campagne d'essais de Rochy-Condé a été financée et organisée par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME). Nous remercions également MIDAC Corporation et la société RMP pour leur aide dans l'utilisation de l'interféromètre FTIR.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) ADEME, Comparaison de méthodes de mesure des flux de méthane émis par les décharges d'ordures ménagères. Collection « Données et Références », réf. 2605 (1995)
- (2) Savanne D. et col., Comparaison de sept méthodes de mesure du flux de méthane émis par une décharge d'ordures ménagères. Communication au XI^{ème} Clean Air Congress, Durban, Afrique du Sud, 11-13 septembre 1998
- (3) Trégourès A., Gonze M.A., Berne P., Measurement of methane emissions using tracer-gas : method improvement. In : Sardinia 97, 81-85. Ed : Christensen T.H., Cossu R., Stegmann R., CISA, Cagliari (1997)

LE TRACAGE NUMERIQUE : PREDICTION DE LA DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR (DTS) PAR LES OUTILS DE LA MECANIQUE DES FLUIDES NUMERIQUE

Z. DO-QUANG, A. COCKX

<> CIRSEE-Suez Lyonnaise des Eaux
38, rue du Président Wilson
78230 LE PECQ

M. ROUSTAN, A. LINE

<> INSA - LIPE
Complexe scientifique de Rangueil
31077 TOULOUSE CEDEX 4

RESUME

Le but de ce travail est de montrer quelques cas d'applications particulières de la méthodologie d'un traçage numérique en expliquant les équations, les conditions aux limites, la procédure de calcul et traitement des résultats numériques. Sur différents réacteurs industriels utilisés pour le traitement de l'eau (de volume et géométrie variables) des traçages expérimentaux au chlorure de lithium (LiCl) ont été réalisés afin de valider les simulations numériques effectuées avec le code ESTET.

I. INTRODUCTION. OBJECTIFS

La méthodologie des traçages est couramment utilisée pour accéder à la distribution des temps de séjour dans les réacteurs ouverts et ainsi caractériser leur comportement hydrodynamique global (Danckwerts, 1957). En effet, on peut approcher par des modèles mathématiques à un ou plusieurs paramètres les courbes réponses obtenues en sortie du réacteur. Dans les réacteurs ouverts le comportement hydrodynamique peut être caractérisé le plus souvent par les modèles *Piston diffusionnel* ou *Mélangeurs en cascade* (Levenspiel, 1962; Villiermaux, 1972). Dans la plupart des cas (réacteurs de géométrie simple) cette information globale peut suffire pour caractériser les performances du réacteur du point de vue des cinétiques chimiques. Cependant, cette approche globale montre des limites dans le cas où le système possède plusieurs entrées ou plusieurs sorties avec une géométrie plus ou moins complexe. De même, réaliser des traçages à échelle industrielle est souvent laborieux et coûteux.

Par ailleurs, la description traditionnelle de l'écoulement des fluides consiste à résoudre les équations de l'hydrodynamique, c'est à dire, de conservation de la masse et de la quantité de mouvement (Navier-Stokes) ainsi que l'équation du transport d'un scalaire (ex. concentration d'un traceur) avec les conditions limites spécifiques. Avec le développement au cours des dernières années des outils de la Mécanique des Fluides Numérique, il devient désormais possible d'obtenir une description beaucoup plus fine de l'hydrodynamique du système étudié : on peut alors obtenir comme résultats les champs des vitesses et de concentration en tout point et à chaque instant. Ainsi on dispose de toute l'information nécessaire pour remonter à la distribution des âges internes des paquets de fluide ou à la distribution des temps de séjour du fluide dans le

réacteur ouvert. Il est alors possible de déduire les valeurs des variables globales caractérisant la circulation du fluide et l'état de mélange (Pe pour le modèle *Piston diffusif* ou J pour le modèle *Mélangeurs en cascade*) à partir des données locales.

L'objectif du présent travail est de montrer les potentialités des outils de la Mécanique des Fluides Numérique à remplacer par la simulation les expériences de traçages sur différents réacteurs industriels utilisés en traitement de l'eau (plus précisément pour la désinfection de l'eau par le chlore). La désinfection par le chlore s'effectue dans un ou plusieurs réacteurs de taille et de géométrie assez variables. La géométrie et les conditions opératoires de ces systèmes déterminent leur comportement hydrodynamique qui a un impact important sur l'efficacité du procédé et sur la qualité de l'eau produite. Les informations ainsi obtenues permettent une meilleure compréhension et interprétation de l'hydrodynamique et des phénomènes de mélange influençant les réactions chimiques. Les résultats des simulations sont comparés avec les mesures expérimentales de distribution des temps de séjour pour valider les prédictions du modèle numérique.

II. APPROCHES ET OUTILS

L'approche de modélisation s'appuie sur la résolution des équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement (équations de Navier-Stokes) associées au modèle de turbulence $k-\varepsilon$.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \rho U = 0$$

$$\frac{\partial \rho U}{\partial t} + \nabla \rho UU = \rho g - \nabla P + \nabla(\bar{\tau} - \rho \overline{u'u'})$$

Le traçage numérique consiste à résoudre une équation supplémentaire de transport d'une espèce inerte en tout point du système étudié. Le suivi de l'évolution de sa concentration en sortie en fonction du temps permet de remonter à la courbe de distribution des temps de séjour.

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla CU = \nabla(-\overline{c'u'}) + S$$

Pour un écoulement bidimensionnel avec U et V comme vitesses du fluide suivant les directions x et z (m/s) l'équation de transport de la concentration pourrait s'écrire dans sa forme simplifiée comme :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial x} + V \frac{\partial C}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{t,x} \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{t,z} \frac{\partial C}{\partial z} \right)$$

Le coefficient de diffusion turbulente D_t (qui est une grandeur difficilement accessible) est calculé à partir de la viscosité turbulente ν_t (donnée par le modèle de turbulence) et du nombre de Schmidt turbulent $\sigma_t (\cong 1)$:

$$\sigma_{t,x} = \frac{\nu_t}{D_{t,x}}$$

La résolution numérique du système d'équations aux dérivées partielles a été réalisée à l'aide du code ESTET développé par EDF et commercialisé par Simulog.

III. APPLICATION A L'ETUDE DES RESERVOIRS DE DESINFECTION D'EAU

II.1. Cas 1

Dans cette étude les traçages numériques ont permis de définir un aménagement avec des chicanes internes d'un réacteur présentant des dysfonctionnements (existence des court-circuits ou des zones mortes) ou pour augmenter le caractère piston de l'écoulement.

Sur la figure 1a, est représenté le champ de concentration d'un traceur introduit selon le mode échelon dans un réacteur initialement dépourvu de chicanes. Le comportement hydrodynamique de ce réacteur est proche d'un réacteur parfaitement mélangé avec une zone échangeant lentement située au centre du système. Sur la figure 1b est représenté le même réacteur cette fois aménagé avec des chicanes internes qui permettent d'imposer le parcours de l'eau de manière à se rapprocher d'un écoulement piston. Dans ce deuxième cas l'hydrodynamique du réacteur (caractérisée par la forme de sa courbe DTS) est proche d'un modèle de 7 RPA en série. La figure 2 montre un bon accord entre les courbes expérimentales.

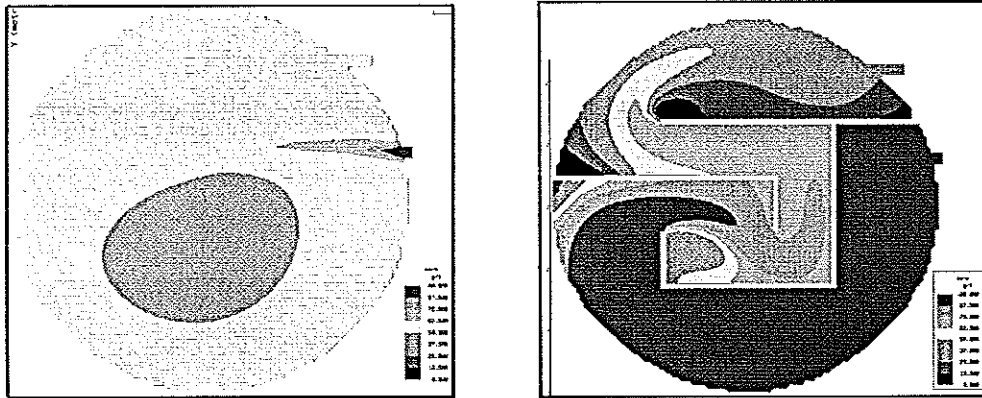


Figure 1. Distribution de la concentration de traceur au temps $t = \tau$ (réponse à un échelon)

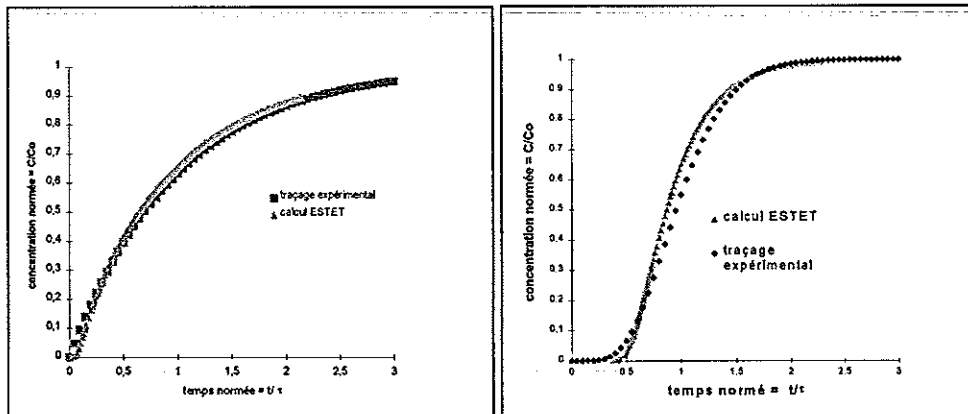


Figure 2. Courbes DTS simulées et expérimentales

En tenant compte de la réaction entre les composés polluants contenus dans l'eau et le chlore (cinétique d'ordre 1) il est possible alors de montrer que l'efficacité de désinfection est nettement améliorée dans le deuxième cas.

II. 2. Cas 2

Souvent les systèmes industriels possèdent des entrées et sorties multiples comme ceux représentés sur la figure 3. Les trois réacteurs de chloration sont disposés en série et connectés entre elles par plusieurs entrées et sorties. De cette manière l'eau traversant le système est séparée en fractions qui n'ont pas le même temps de séjour et par conséquent pas le même temps de contact avec le chlore. Pour prédire la qualité finale de l'eau il est important d'évaluer le degré de désinfection de chaque fraction d'eau quittant le système. Le traçage numérique est la seule voie possible dans ce cas pour décrire l'hydrodynamique du fluide car il devient possible d'accéder aux informations concernant le parcours exact du fluide dans le système et l'évolution de son âge.

Le réservoir critique est le réservoir central car il a deux sorties (points 5 et 6) qui vont directement sur les pompes de refoulement vers le réseau de distribution, donc il faut s'assurer que dans ces sorties l'eau est suffisamment désinfectée. Voilà pourquoi notre étude portera essentiellement sur ce deuxième réservoir. Il a une forme circulaire et est muni de chicanes internes qui imposent un parcours le plus long possible pour l'eau. Le réacteur possède une entrée (point 2) et cinq sorties (points 3, 4, 5 et 6). Les sorties 3 et 4 assurent la liaison avec le réservoir 3 alors que les sorties 5 et 6 refoulent l'eau vers les réseaux de distribution. Les caractéristiques du réservoir sont : Volume = 1320 m³, Diamètre = 29 m, Niveau d'eau = 2 m, Temps de séjour = 17 min.

Le maillage réalisé pour la simulation est tridimensionnel et composé de 111100 noeuds. Les conditions limites utilisées sont spécifiées dans le tableau 1.

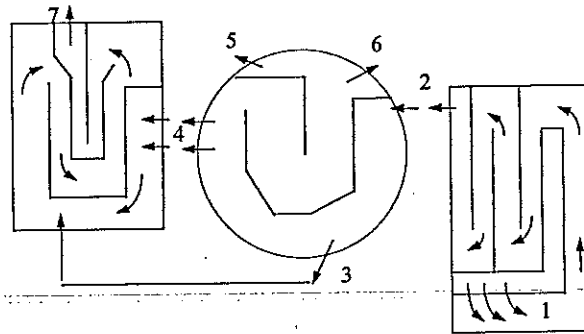


Figure 3. Schéma du groupe des réacteurs de chloration étudié

Tableau 1. Conditions aux limites utilisées pour la résolution du problème

B. C.	ENTREE	SURFACE LIBRE	PAROIS	SORTIES 3,4	SORTIES 5,6
VITESSE	$U_x = 0$	$\frac{\partial U_x}{\partial z} = 0$	$U_x = 0$	débit imposé	pression imposée
	$U_y = 0$	$\frac{\partial U_y}{\partial z} = 0$	$U_y = 0$	$\frac{\partial U_x}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial U_z}{\partial x} = 0$
	$U_z = \text{const.}$	$U_z = 0$	$U_z = 0$	$\frac{\partial U_y}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial U_y}{\partial x} = 0$
TURBULENCE	$k = 0.003U_x^2$	$\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial k}{\partial n} = 0$	$\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial \varepsilon}{\partial n} = 0$
	$\varepsilon = 6 \frac{k^{1.5}}{D}$	$\frac{\partial k}{\partial z} = 0$	$\varepsilon = \frac{0.1k^{1.5}}{0.4y}$	$\frac{\partial k}{\partial z} = 0$	$\frac{\partial k}{\partial n} = 0$

La cartographie des vitesses (figure 4) montre l'existence des veines fluides caractérisées par des vitesses importantes dans les compartiments plus étroits situés en périphérie du réservoir. En revanche, des zones de recirculation concernées par des vitesses plus faibles sont situées au centre du réacteur et près des sorties 5 et 6.

Les débits passant dans les différents points du réacteur sont résumés comme suit :

- 1 : entrée verticale (eau provenant du réservoir R1 en amont)
- 2 : connexion avec le réservoir R3 en aval (débit 770 m³/h soit 16 % du débit total)
- 3 : connexion avec le réservoir R3 en aval (débit 530 m³/h soit 11 % du débit total)
- 4 : connexion avec le réservoir R3 en aval (débit 530 m³/h soit 11 % du débit total)
- 5 : refoulement vers le réseau de distribution (débit 2160 m³/h soit 45 % du débit total)
- 6 : refoulement vers le réseau de distribution (débit 810 m³/h soit 17 % du débit total)

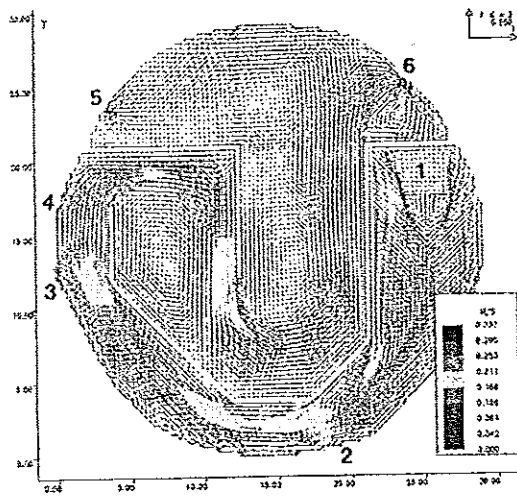


Figure 4. Champ vectoriel des vitesses dans un plan à mi-hauteur du réservoir

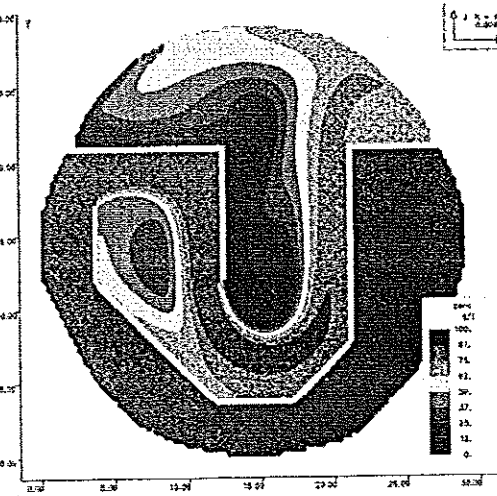


Figure 5. Champ de concentration de traceur au temps $t = \tau$ (injection échelon)

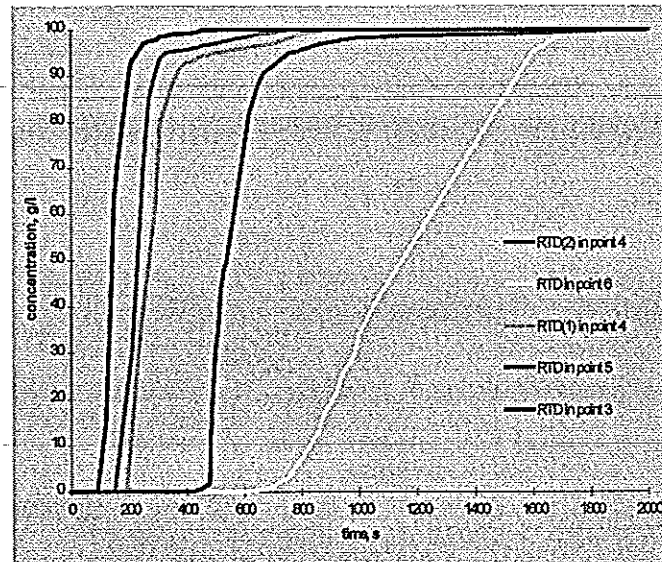


Figure 6. Courbes de DTS pour les différents points de sortie du réservoir

L'objectif de l'étude est de pouvoir estimer à partir des simulations le temps de séjour moyen et le comportement hydrodynamique de chaque fraction d'eau quittant le système. Alors, sur la base d'un champ hydrodynamique établi, l'injection en continu d'un traceur à l'entrée du réacteur a été simulée. Des sondes numériques placées dans

les différentes sorties du système ont permis l'obtention des courbes de distribution des temps de séjour pour chaque fraction de fluide quittant le système. Ainsi le temps de séjour moyen de la première fraction d'eau quittant le réacteur par la sortie 3 est d'environ 2,5 minutes et étant donné le caractère piston de l'écoulement ce temps de séjour est assez homogène et représentatif de l'ensemble du fluide dans cette zone. La deuxième fraction de fluide sortant par les deux sorties 4 a aussi un comportement proche du piston et aura un temps de séjour moyen dans le système de 5 minutes. Ces deux fractions d'eau vont par la suite séjourner encore environ 1 heure dans le troisième réservoir (fig.1) donc globalement le niveau de désinfection pour cette tranche d'eau est estimé comme étant suffisant. La dernière fraction (qui en même temps est la plus importante) sortante en 5 et 6 aura un temps de séjour moyen de 24 minutes mais suite aux recirculations engendrées par le passage de l'eau entre les chicanes la distribution des temps de séjour est plus large et le comportement du fluide est proche de 3 RPA en série. Globalement, avec ce fonctionnement le réservoir montre des performances de désinfection satisfaisantes car le temps minimum de contact de l'eau avec le chlore requis pour ce système est de 10 minutes.

Comme nous l'avons vu dans l'équation de transport de la concentration le coefficient de diffusion turbulente est calculé par le rapport (viscosité turbulente/Schmidt turbulent). Afin d'estimer l'impact du terme de diffusion une étude de sensibilité a été réalisée en prenant trois différentes valeurs pour le nombre de Schmidt : 0.5 ; 1 (valeur par défaut) et 5. Les résultats obtenus sont très différents. Il est clair que la diffusion joue un rôle important (surtout dans les zones de vitesses et niveau de turbulence faibles) et qu'elle ne peut pas être négligée. Avec l'augmentation du nombre de Schmidt, le coefficient de diffusion diminue et le traceur a tendance à sortir plus tard. Avec un nombre de Schmidt de 0.5 la diffusion est surestimée.

V. CONCLUSION

Les nombreux avantages des outils de la Mécanique des Fluides Numérique justifie son utilisation courante dans les procédures de conception et d'optimisation des réacteurs industriels. Le modèle a été utilisé pour caractériser l'importance de la configuration et conditions de fonctionnement d'un réacteur sur ses performances de façon plus rapide et pour un coût plus faible comparé aux besoins d'un programme expérimental de recherche équivalent. Les résultats numériques fournissent des données précises concernant les caractéristiques de l'écoulement. Les simulations ont permis une amélioration considérable des performances des contacteurs de chloration. Plusieurs réacteurs de chloration industriels ayant des capacités comprises entre 100 et 10000 m³/h ont été modélisés à l'aide du logiciel de Mécanique des Fluides ESTET.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. DOQUANG Z., Etude expérimentale et numérique des performances des contacteurs de désinfection de l'eau potable par le chlore", Thèse INSA, 1993
2. US EPA, Guidance Manual for Compliance with the Filtration and Disinfection Requirements for Public Water Systems Using Surface Water Sources, 1991
3. LEVENSPIEL O., Chemical Reaction Engineering, Second Edition, Wiley, 1972
4. STAMBOLIEVA Z., ROUSTAN M., WABLE O., DUGUET J-P., MALLEVIALLE J., « Methods for Design of Chlorine Contactors for Drinking Water Treatment. Kinetic and Hydraulic Considerations », Proceedings of AWWA Annual Conference, San Antonio, USA, 1993

MODELISATION GLOBALE D'UN REACTEUR A PLASMA D'INDUCTION PAR UNE METHODE DE TRACEURS

C. DOUDOU, C. TRASSY

<> ENSHMG - EPM-MADYLAM
BP 95 - Domaine Universitaire
38402 ST MARTIN D'HERES

C. JALLUT

<> LAGEP - CPE Lyon
Bât. 308 G
69622 VILLEURBANNE Cedex

RESUME

Ce travail concerne l'utilisation d'une approche de type génie de la réaction chimique basée sur l'emploi d'un traceur pour la modélisation d'un procédé à plasma inductif utilisé pour le traitement des poudres. Le traceur doit rendre compte de la notion intuitive d'histoire thermique communément employée dans le domaine du génie de l'élaboration des matériaux. Le traceur est une poudre injectée dans la décharge plasma : il doit subir une transformation repérable témoignant de son histoire thermique. Dans cet article, on définit plus précisément une notion d'histoire thermique adaptée au cas d'un réacteur de traitement de solides granulaires. On propose une méthode de mesure de la distribution statistique correspondante et on rend compte d'essais préliminaires réalisés en utilisant une poudre de zircone yttrée comme traceur sur un pilote de 100 kW à 3,5 Mhz installé au laboratoire EPM-MADYLAM de Grenoble.

I. INTRODUCTION

Un plasma est un milieu constitué d'ions, d'électrons et d'espèces excitées (1). Dans le domaine technologique, on distingue les plasmas d'arc obtenus par une décharge électrique établie entre deux électrodes placées dans le gaz des plasmas inductifs entretenus par induction électromagnétique. A basse pression (jusqu'à environ 100 à 500 Torr), les températures des électrons et des autres espèces présentes sont différentes. En particulier, ces dernières sont à une température inférieure et on parle de plasmas froids. Pour des applications à hautes températures, la pression est plus élevée et les deux populations de particules voient leurs températures se rejoindre, jusqu'à des niveaux de l'ordre de 4000 à 20000 K selon les conditions et le type de décharge : ce sont les plasmas thermiques. On trouvera dans la référence (1) une description des applications des plasmas d'arc et inductifs. On utilise par exemple les plasmas inductifs dans le domaine de l'analyse chimique, la synthèse de matériaux (oxydes, nitrures, métaux purs, silice ultrapure), la purification de ces mêmes matériaux obtenus par d'autres voies, la sphéroïdisation de poudres de matériaux réfractaires. La spécificité de ce type de plasma est une grande pureté due à l'absence d'électrodes.

Dans le domaine de la modélisation des réacteurs plasmas homogènes, on trouve principalement des approches de type modélisation fine basée sur la résolution numérique des équations couplées de bilans de quantité de mouvement, de matière et d'énergie et des équations rendant compte des interactions électromagnétiques (2,3). Dans le cas des réacteurs diphasiques plasma - solide comme les réacteurs de traitements de poudres ou pour les applications des plasmas à la projection, une difficulté

supplémentaire à la résolution numérique du problème est la prise en compte des interactions solide - gaz. Ainsi, on trouve des travaux, en particulier motivés par les applications des plasmas dans le domaine du revêtement de surfaces, concernant les transformations physico-chimiques subies par des particules dans un plasma de caractéristiques connues (4,5). Des modèles plus complets tenant compte des interactions plasma - particules au niveau des transferts de chaleur et de matière existent mais la description des transformations au sein des particules est simplifiée (6).

La voie plus globale consistant à utiliser des modèles plus simples basés sur une notion statistique de distribution de temps adaptée à la situation est moins courante. Dans le cas de réacteurs chimiques homogènes isothermes, il s'agit maintenant d'une approche bien établie (7). Nous nous trouvons ici dans un cas plus complexe de réacteur hétérogène non isotherme nécessitant la définition d'une variable temporelle aléatoire particulière. Cette définition fait l'objet de la première partie de cet article. La deuxième partie sera consacrée à la description d'essais préliminaires réalisés sur un réacteur pilote installé au laboratoire EPM - MADYLAM (Grenoble), ce travail ayant fait l'objet d'une collaboration entre ce dernier et le LAGEP (Villeurbanne) (8). Par ailleurs, ce travail fait suite à d'autres travaux menés au sein du laboratoire EPM-MADYLAM (9,10).

II. LA NOTION INTUITIVE D'HISTOIRE THERMIQUE

Cette notion est employée dans le domaine de l'élaboration et du traitement des matériaux. Il s'agit de l'idée selon laquelle le résultat d'une opération de nature thermique sur un matériau dépend de la trajectoire de température qu'il a subie au cours de son séjour dans un procédé. Dans le cas d'un procédé tel qu'un réacteur plasma de traitement de poudres, on peut adopter le point de vue Lagrangien consistant à suivre une particule solide lors de sa traversée de la décharge plasma. Lorsqu'une particule traverse un tel milieu, la température de son environnement immédiat T_{ext} va varier en fonction de son âge interne, influençant les transformations physiques ou chimiques qu'elle subira. Si on considère maintenant une population de particules en sortie de la torche plasma, on conçoit que le traitement subi puisse avoir un certain caractère aléatoire en un sens double :

- il y a d'une part la distribution classique des temps de séjour des particules dans le réacteur ;
- la multiplicité des trajectoires pouvant conduire au même temps de séjour peut correspondre à autant de trajectoires de température extérieures différentes, distribuées aléatoirement et donc à autant d'histoires thermiques.

Il s'agit de définir une variable aléatoire unique rendant compte des deux phénomènes à la fois. Ce type d'approche a déjà été utilisée dans le domaine du génie de la réaction chimique au travers de la notion de temps d'interaction et de sa distribution (7).

III. EXEMPLES DE DISTRIBUTIONS DE TEMPS D'INTERACTION

III.1. Distribution des Temps de Contact (11,12)

Cette notion a été définie dans le cas de réacteurs hétérogènes isothermes utilisés pour les réactions catalytiques, en particulier les lits fluidisés. L'idée est de représenter le temps passé au contact du catalyseur par la phase fluide, qui seul compte pour l'avancement de la réaction. Considérons l'expression du bilan matière d'une espèce consommée i relativement à une particule fluide, vue comme un micro-réacteur fermé, au cours de son parcours dans le réacteur :

$$\frac{dC_i}{dt_s} = - \frac{(1 - \varepsilon) \cdot \rho_c}{\varepsilon} \cdot f(C_i, k_i) \quad [1]$$

ρ_c et ε étant fonctions de la position dans le réacteur sont aussi fonctions de t_s . Pour éliminer l'influence de ces variations et tenir compte du caractère aléatoire de t_s et des variations de ρ et ε , on définit le temps de contact t_c comme suit :

$$dt_s \cdot \frac{(1-\varepsilon) \cdot \rho_c}{\varepsilon} = dt_c \cdot \frac{(1-\bar{\varepsilon}) \cdot \bar{\rho}_c}{\bar{\varepsilon}} \quad [2]$$

où $\bar{\rho}_c$ et $\bar{\varepsilon}$ sont des valeurs moyennes de ρ et ε . L'équation [1] devient alors :

$$\frac{dC_i}{dt_c} = - \frac{(1-\bar{\varepsilon}) \cdot \bar{\rho}_c}{\bar{\varepsilon}} \cdot f(C_i, k_i) \quad [3]$$

Si on connaît la distribution des temps de contact $\Psi(t_c)$, on peut calculer la concentration du réactif consommé en sortie de réacteur C_s . Par exemple, dans le cas d'une réaction d'ordre 1, $f(C) = k \cdot C$ et :

$$\frac{C_s}{C_e} = \int_0^{\infty} e^{-kt_c'} \cdot \Psi(t_c') \cdot dt_c' \quad [4]$$

On trouvera dans la référence (12) la description d'une technique de mesure de $\Psi(t_c)$ à l'aide de plusieurs traceurs plus ou moins adsorbables à la surface du catalyseur.

III.2. Distribution des temps thermiques (13)

Cette notion a été définie pour des réacteurs chimiques homogènes non isothermes. Dans ce cas, l'équivalent de l'équation [1] est simplement :

$$\frac{dC_i}{dt_s} = - k_0 \cdot e^{-\frac{E}{RT(t_s)}} \cdot f(C_i) \quad [5]$$

$T(t_s)$ est la trajectoire de température subie par la particule fluide considérée à sa traversée du réacteur. Selon la même logique que précédemment, on représente le double caractère aléatoire de t_s et $T(t_s)$ à l'aide d'une variable aléatoire unique, le temps thermique t_{Th} défini comme suit :

$$e^{-\frac{E}{RT(t_s)}} \cdot dt_s = e^{-\frac{E}{RT}} \cdot dt_{Th} \quad [6]$$

où \bar{T} est une température moyenne. Dans le cas d'une réaction d'ordre 1, l'analogie de [4] est :

$$\frac{C_s}{C_e} = \int_0^{\infty} e^{-kt_{Th}'} \cdot \Psi(t_{Th}') \cdot dt_{Th}' \quad [7]$$

avec $k = k_0 \cdot e^{-\frac{E}{R\bar{T}}}$. A notre connaissance, aucune méthode de mesure n'a été proposée pour la distribution des temps thermiques ainsi définie.

IV. NOTION D'HISTOIRE THERMIQUE POUR UN REACTEUR A PLASMA THERMIQUE DE TRAITEMENT DE POUDRES (8,14)

Considérons le bilan d'énergie relatif à une particule au cours de son « vol » dans le réacteur :

$$\frac{d(\int_V \rho_p \cdot h_p \cdot dV)}{dt_s} = \int_s \vec{\Phi}(T_w, T_{ext}(t_s), P_j(t_s)) \cdot \vec{n} \cdot dS \quad [8]$$

Cette équation, valable quels que soient les phénomènes se produisant au sein de la particule, est l'analogie de [1] ou [5]. Le problème est que la densité de flux de chaleur $\vec{\Phi}$ sur la surface latérale de la particule n'est pas constante au cours du temps de séjour t_s car elle dépend de la température du plasma rencontré $T_{ext}(t_s)$ et de paramètres du transfert P_j (typiquement un coefficient d'échange de chaleur) non constants. On pose alors de façon analogue à [2] et [6] :

$$\int_s \vec{\Phi}(T_w, T_{ext}(t_s), P_j(t_s)) \cdot \vec{n} \cdot dS \cdot dt_s = \int_s \vec{\Phi}(T_w, \bar{T}_{ext}, \bar{P}_j) \cdot \vec{n} \cdot dS \cdot dt_{Th} \quad [9]$$

L'équation [8] devient alors :

$$\frac{d(\int_V \rho_p \cdot h_p \cdot dV)}{dt_{Th}} = \int_S \vec{\Phi}(T_w, \bar{T}_{ext}, \bar{P}_j) \cdot \vec{n} \cdot dS \quad [10]$$

On peut alors proposer de calculer le traitement thermique subi par les particules dans le réacteur plasma non isotherme en déterminant ce qui se passerait pour une particule dans un plasma isotherme de référence à \bar{T}_{ext} au sein duquel les paramètres P_j seraient constants égaux à \bar{P}_j . Le caractère aléatoire du traitement subi par une population de particules serait alors représenté par une distribution des temps thermiques définis ici. Nous envisageons ci-après un moyen de mesure de cette distribution.

V. PROPOSITION D'UNE METHODE DE MESURE DE LA DISTRIBUTION DES TEMPS THERMIQUES

V.1. Principe

L'idée est de repérer dans des particules de matériaux convenablement choisis ayant traversé le réacteur, un front de transformation dont la position à l'intérieur des particules renseigne sur le temps passé dans le réacteur et le niveau de température rencontré. Si on dispose d'une population de particules suffisamment monodisperses, la mesure consistera à extraire une distribution statistique de la position des fronts repérés sur un nombre suffisant de particules. A chaque position de front correspond alors un temps thermique et la distribution de la position des fronts est une image de la distribution des temps thermiques. Si R_f est la position du front de transformation et $g(R_f)$ la distribution de ces fronts, on a la relation suivante :

$$g(R_f) \cdot dR_f = \Psi(t_{Th}) \cdot dt_{Th} \quad [11]$$

Cette relation suppose qu'on associe de façon bijective un temps thermique à une position du front. Si on possède toutes les données physico-chimiques nécessaires, la quantité $\frac{dR_f}{dt_{Th}}(t_{Th})$ peut être calculée par simulation des phénomènes subis par une particule de matériau traceur dans le plasma de référence. Le problème est bien sûr de trouver des matériaux susceptibles de présenter de telles transformations facilement repérables et que la sortie de la torche induise un effet de trempe suffisamment rapide.

V.2. Essais préliminaires (8)

Les matériaux suivants ont été envisagés pour cette étude. Ils donnent lieu à une fusion des grains par les bords. L'idée est alors de repérer la position d'un front de fusion :

- quartz (silice cristalline sous forme α) : le refroidissement brutale de la silice liquide conduit à de la silice vitreuse repérable en masse par rayon X ;
- un acier eutectoïde à 0,85 % de carbone : après fusion et trempe, il donne de la martensite repérable par différence de micro-structure à partir de techniques métallographiques associées à la photographie ;
- la zircone yttrée : il s'agit d'une poudre poreuse de zircone (ZrO_2) contenant 6 à 8 % d'oxyde d'yttrium (Y_2O_3). Après fusion, la porosité initiale se trouve fermée.

Des essais préliminaires ont été réalisés en utilisant la zircone yttrée et ceci dans différentes conditions de fonctionnement du pilote. La figure 1 représente une photographie typique de l'apparence du traceur avant et après passage dans la torche.

On constate que la population de poudre s'est scindée en deux sous-populations :

t_s : temps de séjour	s
t_c : temps de contact	s
t_{Th} : temps thermique	
R_f : position du front de pénétration de la transformation du matériau traceur	m
S : surface extérieure d'une particule	m ²
V : volume d'une particule	m ³

Indices

c : relatif à un catalyseur
e : entrée
ext : relatif au milieu plasma
i : relatif au réactif i
j : relatif au paramètre j du transfert de chaleur
p : relatif à la particule
w : relatif à la surface extérieure de la particule
s : sortie

Symboles grecs

$\bar{\Phi}$: densité de flux de chaleur W.m⁻²
 Ψ : distribution de temps d'interaction s⁻¹
 ρ : masse volumique kg.m⁻³
 ε : porosité externe d'un lit catalytique

REFERENCES

- (1) Laroche G., Orfeuill M. (Coordonnateurs), Les plasmas dans l'industrie. Collection Electra, EDF (1991)
- (2) Boulos M. I., Fauchais P., Pfender E., Thermal plasmas. Fundamentals and applications. Volume 1, Plenum Press, New-York (1994)
- (3) El-Hage, Mostaghimi J., Boulos M. I., A turbulent flow model for the rf inductively coupled plasma, J. Appl. Phys., 65(11), 4178-4185 (1989)
- (4) Bourdin E., Fauchais P., Boulos M. I., Transient heat conduction under plasma conditions, Int. J. Heat Mass Transfer, 26(4), 567-582 (1983)
- (5) Vardelle M., Vardelle A., Fauchais P., Trassy C., Proulx P., Experimental and numerical investigation of powder vaporization under thermal plasma conditions, Colloque de Physique, Colloque C5, 18(51), 171-180 (1990)
- (6) Proulx P., Mostaghimi J., Boulos M. I., Plasma particles interaction effects in induction plasma modelling under dense loading conditions, Int. J. Heat Mass Transfer, 28(7), 1327-1336 (1985)
- (7) Villiermaux J., Génie de la réaction chimique. Conception et fonctionnement des réacteurs, Lavoisier, Technique et Documentation, Paris (1993)
- (8) Doudou C., Contribution à une approche globale du traitement de poudres par plasma d'induction, Thèse Université Claude Bernard, Lyon (1998)
- (9) Paillard J. P., Torche à plasma inductif : modélisation et mise au point d'un pilote industriel. Couplage avec le creuset froid de tirage, Thèse INPG, Grenoble (1995)
- (10) Chazot O., Caractérisation globale d'un réacteur à plasma inductif. Application à un procédé de traitement de poudres de titane, Thèse INPG, Grenoble (1997)
- (11) Nauman E. B., Collinge C. N., The theory of contact time distributions in gas fluidized beds, Chem. Engng. Sci., 23, 1309 - 1316 (1968)
- (12) Nauman E. B., Collinge C. N., Measurement of contact time distributions in gas fluidized beds, Chem. Engng. Sci., 23, 1317 - 1326 (1968)
- (13) Nauman E. B., Nonisothermal reactors. Theory and application of thermal time distributions, Chem. Engng. Sci., 32, 359-367 (1977)
- (14) Chazot O., Doudou C., Garnier M. et Jallut C., Modélisation globale d'un réacteur plasma inductif pour le traitement des poudres, Congrès International « L'induction dans les procédés industriels », Paris, 26-29 Mai 1997 (1997)

UTILISATION DU LOGICIEL "D.T.S." A DES FINS PEDAGOGIQUES : MODELISATION DE L'HYDRODYNAMIQUE D'UN LIT FLUIDISE CONTINU

C. TORREZ, C. ANDRE <> ECOLE DES HAUTES ETUDES INDUSTRIELLES
Laboratoire de Génie des Procédés
13, rue de Toul
59046 LILLE CEDEX

Résumé

Nous avons étudié l'hydrodynamique d'un lit fluidisé continu. Il est constitué par un empilement de particules sphériques inertes et identiques de diamètre $d = 3.5$ mm. Ce lit est fluidisé par un courant d'air et alimenté en continu par un débit massique ajustable. Nous avons déterminé expérimentalement la distribution de temps de séjour $E(t)$ en réalisant une impulsion de particules colorées à l'entrée du système. Ces expériences ont été modélisées grâce au logiciel D.T.S. L'optimisation de la valeur des paramètres du modèle des mélangeurs en cascade et de celles du modèle des mélangeurs en cascade avec échange nous a permis de rendre compte des expériences réalisées. Les valeurs de ces paramètres sont en accord avec ce que l'on pouvait attendre compte tenu de l'architecture du dispositif utilisé. Le dispositif présenté permet la visualisation de l'écoulement et l'illustration du concept de D.T.S.

I DISPOSITIF EXPERIMENTAL

I.1 Principe des expériences

Le lit fluidisé est constitué par un empilement de particules sphériques inertes (sucre) et identiques de diamètre $d = 3.5$ mm . La masse volumique des particules est $\rho_s = 1650$ kg/m³. Le lit est fluidisé par un courant d'air et alimenté en continu par un débit massique ajustable entre 2.5 et 5 kg/min. A l'instant initial, les étudiants réalisent une impulsion de traceur (billes identiques à celles du lit mais colorées). Ce dispositif présente l'avantage d'être transparent et donc de permettre une visualisation aisée de l'écoulement. Le courant de sortie du réacteur est recueilli toutes les 30 secondes dans des bacs. La pesée de la masse de billes dans chaque bac permet de vérifier que l'écoulement est en régime permanent et de calculer le débit moyen Q_m sur la durée de l'expérience. La masse M de billes contenue dans le lit est déterminée à la fin de l'expérience.

I.2 Présentation du dispositif expérimental .

La valeur de Q_m est fixée par le taux d'ouverture de la fente au niveau du bac de stockage des billes blanches (cf. figure n°1).

La valeur de M est fonction de la vitesse d'air u_{lit} . En effet, une augmentation de u_{lit} entraîne une augmentation de la porosité ε du lit et donc une diminution de M .

On a la relation suivante :

$$M = \rho_s \cdot \Omega \cdot L \cdot (1 - \varepsilon)$$

La valeur expérimentale du u_{lit} est choisie à l'issue d'une étude initiale en statique au cours de laquelle l'évolution de la perte de charge ΔP en fonction de u_{lit} est étudiée. Cette étude initiale permet la mise en évidence de la transition lit fixe / lit fluidisé et donc la détermination de la vitesse minimale de fluidisation u_{min} . Une valeur typique est :

$$u_{lit} = 1,5 \cdot u_{min} = 3 \text{ m/s}.$$

Les valeurs de la hauteur L de la section Ω du lit sont données dans le schéma de l'installation présenté Figure n°1:

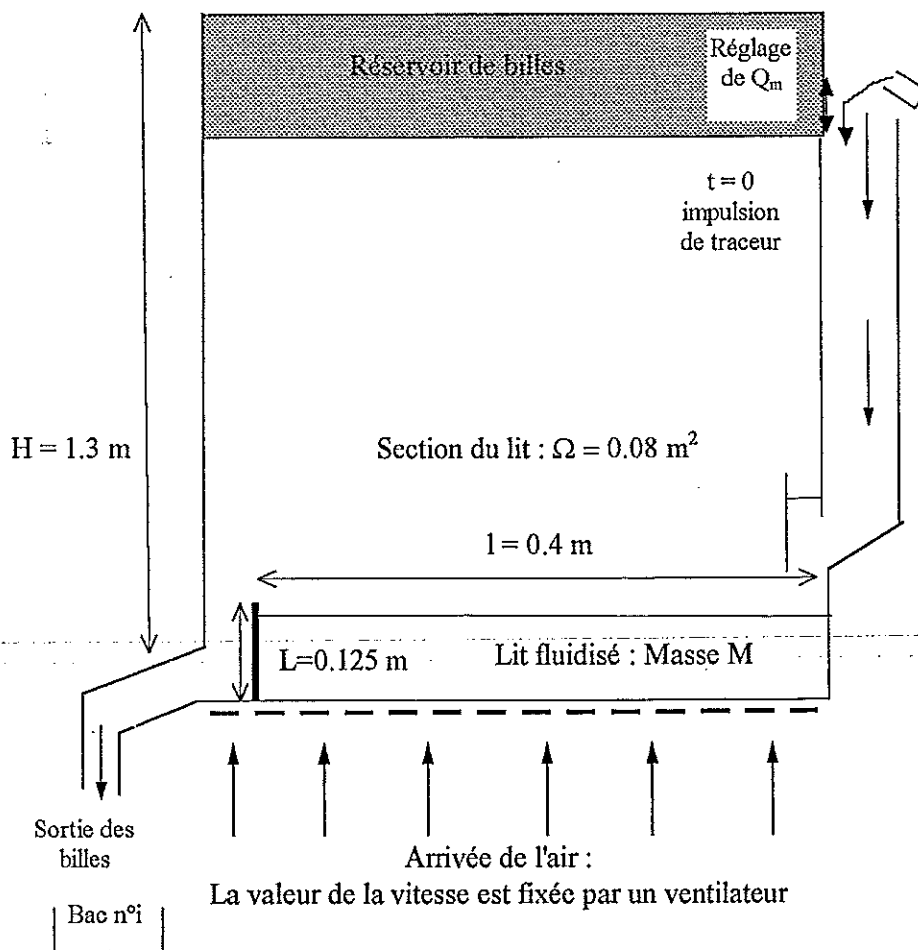


Figure n°1: Schéma du dispositif expérimental

I.3 Exploitation des expériences.

Le comptage des billes colorées contenues dans chaque bac permet l'obtention de la fonction $y(t)$ exprimée en nombre de billes par kilogramme. La distribution des temps de séjour $E(t)$ est obtenue après normation de $y(t)$ (1).

Le temps de passage t_p est obtenu grâce à la relation : $t_p = \frac{M}{Q_m}$

Les moments statistiques d'ordre 1 et 2 de $E(t)$ sont calculés grâce à un tableur . Les étudiants obtiennent ainsi le temps de séjour moyen μ_1 et la variance réduite σ_0^2 .

Les étudiants proposent des modèles d'écoulement simples et réalistes. Les expressions analytiques des fonctions de transfert $G(s)$ sont établies ainsi que celles des moments statistiques d'ordre 1 et 2 de $E(t)$.

La relation de VAN DER LAAR permet de relier $G(s)$ aux valeurs expérimentales de μ_1 et de σ_0^2 :

$$\mu_n = (-1)^n \cdot \lim_{s \rightarrow 0} \frac{\partial^n G(s)}{\partial s^n}$$

Lorsque le modèle envisagé ne fait intervenir que 2 paramètres cette démarche simple en permet la détermination par identification.

Dans le cas d'un modèle plus complexe, cette méthode n'est plus applicable car nous ne disposons pas d'une précision expérimentale permettant la détermination des moments d'ordre supérieurs à 2. Nous avons alors utilisé le logiciel D.T.S.

Les expressions théoriques pour les modèles des mélangeurs en cascade (M.C.), des mélangeurs en cascade avec échange (M.C.E.) et celui de Cholette et de Coutier (2) sont rappelées dans le tableau n°1 :

	$G(s)$	μ_1	σ_0^2
M.C.	$\left(1 + \frac{\tau \cdot s}{J}\right)^{-J}$	τ	$\frac{1}{J}$
M.C.E.	$\left(1 + \frac{\tau \cdot s}{J} \cdot \left(1 + \frac{K}{1 + t_m \cdot s}\right)\right)^{-J}$	$(1 + K) \cdot \tau$	$\frac{1}{J} + \frac{2 \cdot K}{(K + 1)^2} \cdot \frac{t_m}{\tau}$
Cholette et Cloutier (2)	$\left(1 - \alpha + \alpha \cdot \left(1 + \frac{\beta \cdot \tau \cdot s}{\alpha \cdot J}\right)^{-1}\right)^J$	$\beta \cdot \tau$	$\frac{1}{J} \cdot \left(\frac{2}{\alpha} - 1\right)$

Tableau n°1 : Expressions analytiques des fonctions de transfert $G(s)$ et des moments d'ordre 1 et 2

N.B. : Les notations utilisées pour les paramètres des modèles sont celles utilisées dans (3).

II RESULTATS :

Pour les modèles (M.C.) et de Cholette et Cloutier, nous avons vérifié l'accord entre les résultats obtenus par le calcul et ceux proposés par le logiciel D.T.S. obtenus grâce à la méthode d'optimisation de Rosenbrock (3).

.Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau n°2 :

	M.C.	M.C.E.	Cholette et Cloutier
exp. n°1 $t_p = 87$ s	J=2 $\tau = 85$ s	J=5.64 ; K=1.12 $t_m = 35.2$ s ; $\tau = 45.2$ s	J=2 $\alpha = 1$; $\beta = 0.98$
exp. n°2 $t_p = 146$ s	J=1.86 $\tau = 130$ s	J=6.13 ; K=1.86 $t_m = 36.6$ s ; $\tau = 46.8$ s	J=2 $\alpha = 0.96$; $\beta = 0.91$
exp. n°3 $t_p = 158$ s	J=2 $\tau = 140$ s	J=5.07 ; K=1.245 $t_m = 42.3$ s ; $\tau = 66.2$ s	J=2 $\alpha = 1$; $\beta = 0.88$
exp. n°4 $t_p = 168$ s	J=1.93 $\tau = 131$ s	J=3.55 ; K=0.75 $t_m = 60.6$ s ; $\tau = 79.5$ s	J=2 $\alpha = 0.98$; $\beta = 0.78$
exp. n°5 $t_p = 244$ s	J=1.7 $\tau = 186$ s	J=2.46 ; K=0.58 $t_m = 55$ s ; $\tau = 122.6$ s	J=2 $\alpha = 0.92$; $\beta = 0.76$

Tableau n°2 : Résultats de l'optimisation des paramètres

La figure n°2 compare les résultats expérimentaux et ceux prédits par les différents modèles utilisés pour l'expérience n°2 .

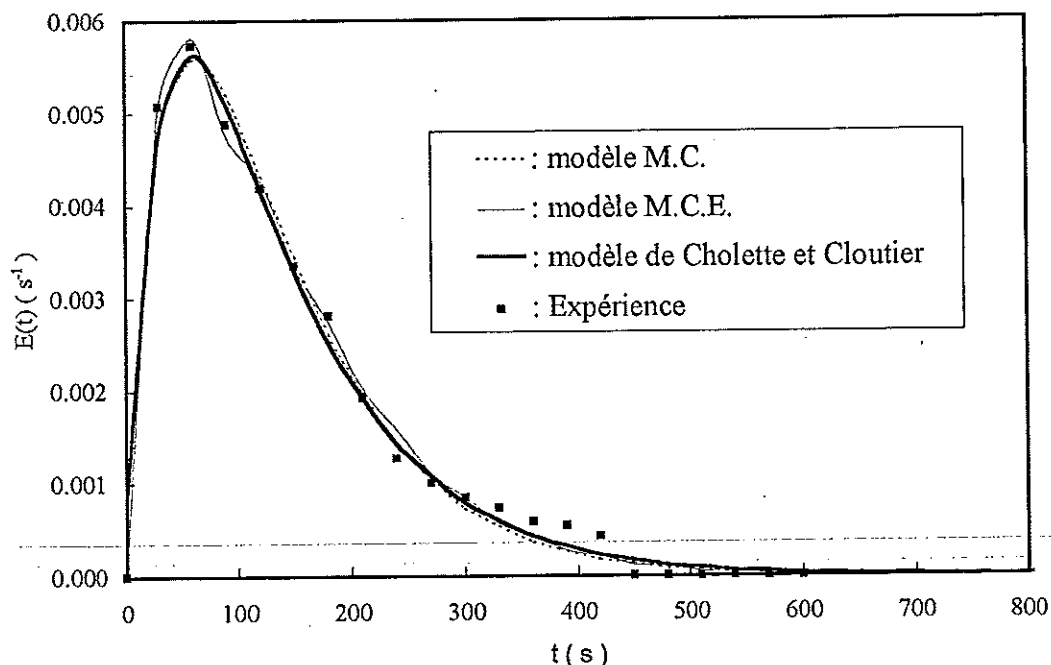


Figure n°2 : Exemple d'optimisation pour l'expérience n°2 ($t_p = 146$ s).

III INTERPRETATION DES RESULTATS

Le modèle des mélangeurs en cascade (M.C.) conduit à un nombre de mélangeurs en série proche de 2. Cette valeur est en accord avec l'architecture du dispositif qui est telle que le flux d'air traversant le lit est subdivisé en 2 courants de débits égaux. Le dispositif étudié est donc en première approximation assimilable à 2 réacteurs agités identiques mis en série.

De plus, le temps de séjour τ obtenu est inférieur au temps de passage t_p . Cette constatation prouve l'existence de volume mort au sein du réacteur. L'évolution du taux de volume mort $1-\beta$ en fonction du temps de passage est représentée figure 3 .

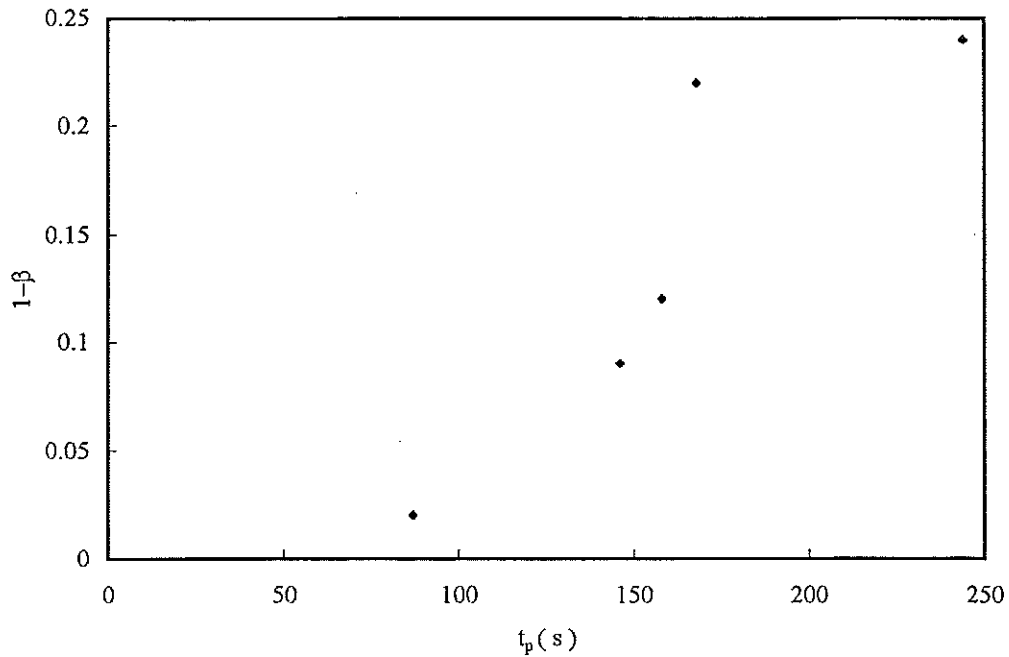


Figure n°3 : Evolution du taux de volume mort en fonction du temps de passage

Nous observons une importante augmentation du taux de volume mort pour les valeurs du temps de passage les plus élevées. De telles conditions expérimentales ont été atteintes avec des vitesses d'air faibles ($u_{lit} \approx u_{min}$) afin de maintenir une valeur de la masse M de billes au sein du lit la plus élevée possible. Ces vitesses d'air plus faibles ont entraîné une moins bonne qualité du mélange au sein du lit. Le rôle de la vitesse d'air est assimilable à celui de la vitesse d'agitation dans une cuve agitée en phase liquide.

La figure 4 montre l'évolution de la D.T.S. représentée sous forme adimensionnelle $\tau.E(t) = f(t / \tau)$ avec $\tau = \beta.t_p$. Les résultats expérimentaux sont en accord avec le modèle théorique des mélangeurs en cascade pour $J=2$.

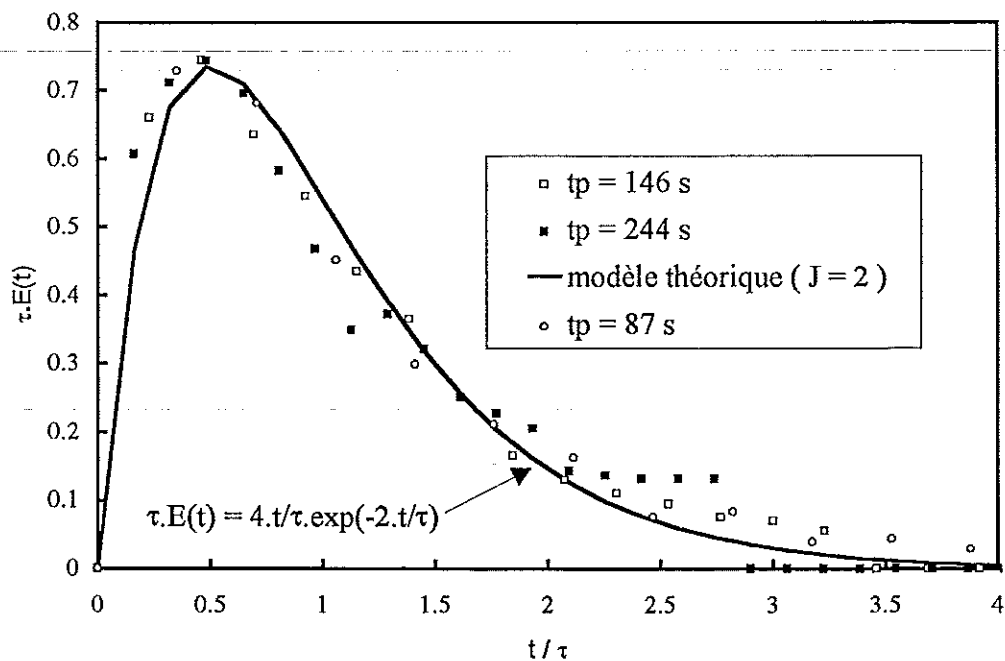


Figure n°4 : $\tau.E(t) = f(t / \tau)$

L'utilisation du modèle de Cholette et Cloutier (avec $J=2$) confirme l'existence de volumes morts et met en évidence un faible taux de court-circuit.

Le modèle des mélangeurs en cascade avec échange (M.C.E.) conduit à des valeurs de la fonction objectif plus faibles que les autres modèles. Ce meilleur ajustement est rendu possible par un nombre de paramètres ajustables plus important. Cependant l'interprétation des valeurs obtenues est plus difficile car elles sont moins directement liées à l'architecture du dispositif.

IV CONCLUSION

Cette étude est un exemple d'utilisation du logiciel D.T.S. à des fins pédagogiques. Le dispositif présenté permet donc aux étudiants de réaliser des expériences de traçage pour caractériser l'hydrodynamique d'un lit fluidisé continu. La valeur élevée du diamètre des particules permet une visualisation de l'écoulement et une détection qualitative de l'écart à l'idéalité de l'écoulement (volume mort ou court-circuit). Cet écart à l'idéalité a pu être quantifié par une exploitation des résultats utilisant les différents modèles décrits lors de l'enseignement théorique. Les résultats obtenus par les modèles des mélangeurs en cascade et celui de Cholette et Cloutier sont tout à fait cohérents. Nous avons pu ainsi déterminer les valeurs du taux de volume mort $1-\beta$ et du taux de court-circuit α caractérisant l'hydrodynamique du lit fluidisé continu étudié.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES :

(1) J. VILLERMAUX "Génie de la réaction chimique : conception et fonctionnement des réacteurs", Ed. Lavoisier (1993).

(2) CHOLETTE et CLOUTIER

"Mixing efficiency Determinations for continuous flow systems", The Canadian Journal of Chemical Engineering ,106-112. , (juin 1959).

(3) J.P. LECLERC, C. DETREZ, A. BERNARD, D. SCHWEICH

" D.T.S. : Un logiciel d'aide à l'élaboration de modèles d'écoulement dans les réacteurs " , Revue de l'institut français du pétrole , vol. 50 n°5. , 641-656 (1995).

TECHNIQUE EXPERIMENTALE DE LA DETERMINATION DES CHAMPS DE VITESSE DES MATERIAUX GRANULAIRES : MODIFICATION DU MODELE THEORIQUE DE MULLINS

N.E. ABRIAK

<> ECOLE DES MINES DE DOUAI
BP 838
941, rue Ch. Bourseul
59508 DOUAI CEDEX

RESUME

L'objectif de ce travail est la modification du modèle théorique de MULLINS en utilisant la technique expérimentale de traçage qu'on a développée pour la détermination des champs de vitesse des matériaux granulaires dans un silo. On a, ainsi, proposé une autre forme de distribution de densité de probabilité $P(x,y,z,t)$, qui spécifie la probabilité pour qu'un saut de lacune (vide) parvienne à s'étendre dans certaines directions bien précises, et une modification est proposée de la formulation théorique $Z=f[(z_0,t,T(x_0,z_0))]$ qui donne de très bons résultats.

I. TECHNIQUE EXPERIMENTALE

Le grand problème que l'on rencontre actuellement dans l'étude de matériaux granulaires est la localisation d'un grain dans l'espace à trois dimensions du silo. La méthode classique utilisée est celle des « radio-piles » couramment utilisées en médecine. En général, on introduit une radio-pile dans le milieu granulaire et on suit son mouvement lors de l'écoulement grâce à sa radio-activité. L'efficacité d'une telle méthode n'est pas prouvée dans la mesure où les radio-piles ne sont pas des vrais grains. La méthodologie qu'on a développée s'est avérée plus efficace puisqu'on a pu valider le modèle théorique de Nedderman et Tuzun (1). La méthode consiste à plonger un certain nombre de grains dans une peinture noire et les mélanger avec les matériaux granulaires à étudier. Les grains colorés sont similaires aux autres grains du matériau et ne perturbent en aucune façon l'écoulement. Ils sont positionnés délicatement suivant des rangs d'altitudes fixées, équidistant les uns des autres. Ce positionnement est important pour connaître l'influence de la position de départ des grains dans le silo. On suit simultanément, à l'enregistrement vidéo, l'écoulement sur un téléviseur. Grâce à cette méthodologie de visualisation, on a pu modifier et généraliser ainsi le modèle théorique de Mullins à toutes formes de trémie.

II. PRESENTATION DE LA DEMARCHE POURSUIVIE POUR LE CALAGE DU MODELE

La théorie stochastique d'écoulement gravitaire de particules sans cohésion est une théorie essentiellement cinématique où certaines grandeurs mécaniques ne sont pas traitées (forces, pressions) et dans laquelle la zone de chute libre au voisinage de l'orifice n'est pas prise en considération. Elle donne l'équation suivante de base d'écoulement exprimée en fonction du nombre de pores par unité de volume (C): $J_z = v \langle W \rangle C$ où v est le nombre effectif de sauts de pores par unité de temps et $\langle W \rangle$ la valeur de l'espérance de la composante verticale W d'un saut.

En fait, on suppose que les écoulements descendants de particules se font grâce à la pénétration à travers l'orifice des lacunes (vides) qui montent vers le haut. Dès qu'une particule tombe dans un vide, il peut y avoir la migration de vide vers le haut qui aura une composante aléatoire et sera décrite formellement par une distribution de densité de probabilité (P).

On considère également que la divergence du flux de particules peut être conceptualisée comme opposée à la divergence du flux de porosité, soit, $\bar{j} = -\bar{j}'$

\bar{j} : le flux (nombre de particules par cm^2 , par seconde de grains),

\bar{j}' : celui des lacunes.

On peut ainsi appliquer la théorie de diffusion pour les pores considérés comme des suspensions identifiables subissant des mouvements aléatoires.

Si n est le nombre effectif de sites par unité de volume, c le nombre de lacunes par unité de volume, c' celui des grains, alors $c+c'=n$;

On suppose que $\frac{c}{n} \ll 1$ ce qui donne $c'=n$, c' est à dire qu'un grain sera toujours entouré par d'autres pour que les effets d'ingérence entre les pores puissent être négligés et que les paramètres décrivant le mouvement des lacunes soient indépendants.

La fréquence fondamentale des fuites aléatoires de lacunes est le nombre de fois par seconde où une lacune est déplacée par des particules qui tombent dedans ; elle est

donnée par $\nu = \frac{1}{\tau}$ où τ représente le temps nécessaire pour qu'une particule tombe dans

un pore. On supposera que ceci est donné par la durée de chute libre d'un point à un

autre du diamètre de la particule, soit $\nu = \frac{1}{\tau} = \sqrt{\frac{g}{4a'}}$

où g : accélération de la pesanteur

a' : rayon de la particule

Si l'on suppose que les particules se déplacent latéralement vers les zones de grand flux en utilisant le gradient horizontal $-J_z$, on peut écrire que :

$$\bar{J} = -\alpha \frac{\partial J_z}{\partial x} \bar{i} - \alpha \frac{\partial J_z}{\partial y} \bar{j} + J_z \bar{K} \quad (1)$$

avec :

$$\alpha = \frac{\langle u^2 \rangle}{2\langle w \rangle} = \frac{\langle v^2 \rangle}{2\langle w \rangle} = \frac{\langle r^2 \rangle}{4\langle w \rangle} \quad (2)$$

où $\langle u^2 \rangle$; $\langle v^2 \rangle$ sont les seconds moments de distribution, u, v les composantes suivant x et y des sauts de pores équivalents, $r = (x^2 + y^2)^{\frac{1}{2}}$ est la composante radiale cylindrique. La condition de stationnarité donne $\vec{\nabla} \bar{J} = 0$ (3) ; des équations (1) et (3) on déduit l'équation suivante :
$$\frac{\partial J_z}{\partial Z} = \alpha \left[\frac{\partial^2 J_z}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 J_z}{\partial Y^2} \right] \quad (4)$$

L'équation (4) est identique à l'équation de diffusion instationnaire à deux dimensions, si on remplace le temps par z et le coefficient de diffusion par α . Grâce à cette équation, on peut déterminer J_z et par suite \bar{J} à partir de l'équation (1), partout dans la région du massif granulaire. En supposant une densité (n) constante partout dans la région de l'écoulement stationnaire et un mouvement de particule adéquatement décrit par la vitesse moyenne (c'est à dire en ignorant les fluctuations), on peut montrer pour un silo semi-infini à fond plat, avec un orifice en $r = z = 0$ qu'une particule de coordonnées cylindriques (r_0, z_0) à l'instant $t=0$, possède les coordonnées (r, z) à l'instant t où T, r et z sont données par Mullins (2,3) :

$$z = z_0 \left(1 - \frac{t}{T(r_0, z_0)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (5)$$

$$r = r_0 \left(1 - \frac{z}{z_0} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

où $T(r_0, z_0) = \frac{2\pi\alpha n}{Q} \exp\left(\frac{r_0^2}{4\alpha z_0}\right) z_0^2$ (7) est le temps de sortie de la particule, Q le nombre de particules s'écoulant de l'orifice par unité de temps. La théorie prédit qu'avant écoulement, chaque couche mince, initialement horizontale, développe une dépression telle que si z_m est la valeur minimale de z sur le profil ayant lieu sur l'axe de révolution z du silo, alors, en élevant l'équation 5 au carré et en utilisant l'équation 7, on obtient l'équation (8)

$$z_m^2 = z_0^2 - \frac{Qt}{2\pi\alpha n} = z_0^2 - \frac{V}{2\pi\alpha} \quad (8) \text{ où } V \text{ est le volume équivalent de la matière écoulée.}$$

L'équation prédit que si les mesures sur une série de franges initialement horizontales de paramètres Z_0 sont prises après un laps de temps fixé de l'écoulement, le graphe de z_m^2 en fonction de z_0^2 serait une ligne droite de pente égale à l'unité d'ordonnée à l'origine i , α peut être déterminé si V est connu. $\alpha = -\frac{V}{2\pi i} \frac{2}{5}$ avec

$$V = \frac{QT}{n}$$

$$\text{et } Q = \frac{\text{nombre de particules écoulées}}{\text{temps écoulé}} = \frac{nPe}{t_e} \quad (9)$$

$$n = \frac{\text{nombre de particules total}}{\text{volume total}} = \frac{nPt}{V_t} \quad (10)$$

Comme on suppose que n est constant l'équation (10) devient :

$$n = \frac{\text{nombre de particules écoulées}}{\text{volume écoulé}} = \frac{n \cdot Pe}{Ve}$$

$$\text{d'où } Ve = \frac{nPe}{n} = V \text{ soit } V = V = \frac{Qte}{n} = \frac{QT}{n}$$

Ainsi V est proportionnel à t , si Q est constant, c'est à dire que $\frac{V}{t}$ est constant.

En deux dimensions les équations 5, 6 et 7 deviennent

$$Z = z_0 \left[1 - \frac{t}{T(x_0, z_0)} \right]^{\frac{2}{3}} \quad (11)$$

$$X = x_0 \left[\frac{z}{z_0} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (12)$$

$$T(x_0, z_0) = \frac{4\sqrt{\pi\alpha n}}{3Q} \exp z_0^{\frac{3}{2}} \left[\frac{x_0^2}{4\alpha z_0} \right] \quad (13)$$

où Q' est le nombre de particules écoulées à travers l'orifice ($x = z = 0$) par unité de temps par unité de longueur suivant y . Pour les mêmes raisons et de façon identique, on déduit :

$$Z^{\frac{3}{2}} = Z_0^{\frac{3}{2}} - \frac{3Qt}{4\sqrt{\pi\alpha n}} = Z_0^{\frac{3}{2}} - \frac{3a}{4\sqrt{\pi\alpha}} \quad (14) \quad \alpha = \frac{9a^2}{16\pi i} \quad (15)$$

où i est l'ordonnée à l'origine de la droite de l'équation 14 et a est la surface équivalente des particules écoulées du plan (x, z) .

III. DETERMINATION DU TEMPS DE SORTIE DANS LE CAS D'UN SILO MUNI D'UNE TREMIE

En utilisant la formule de MULLINS suivante :

$$T(x_0, z_0) = \frac{4}{3} \sqrt{\pi\alpha} \frac{d}{m} \exp \left(\frac{x_0^2}{4\alpha z_0} \right) z_0^{\frac{3}{2}} \quad (16)$$

qui permet de calculer le temps de sortie de grains, on a pu constater que le temps réel déterminé expérimentalement diffère énormément de ce dernier. Ainsi, on a été amenée à introduire des changements dans la formulation (16).

Deux changements ont été effectués : le premier concerne le temps de sortie des grains qui se trouvent sur l'axe central. Celui-ci est nettement inférieur au temps calculé par la formule de MULLINS. Le changement a donc consisté à multiplier ce dernier temps par une fonction θ supérieure à 1. Le deuxième changement concerne le temps réel de sortie des grains au voisinage des parois ; celui-ci est au contraire supérieur au temps calculé par la formule de MULLINS. Ceci est dû au terme exponentiel et ce

changement a consisté à multiplier le terme exponentiel par une fonction de θ inférieure à 1.

Ainsi, on propose une distribution de densité de probabilité de la forme suivante :

$$P(x,y,z,t)=A \exp \left[-\frac{x^2 + y^2}{4Dt} \sin^2\theta - \frac{z - Vt}{4Dzt} \right] dx dy dz$$

D : coefficient effectif de diffusion dans les directions x et y.

D_z : coefficient effectif de diffusion dans la direction de Z.

où $A = \frac{\sin^2\theta}{8(\pi t)^{\frac{3}{2}} (D^2 D_z)^{\frac{1}{2}}}$ et D est une constante à déterminer selon le processus

stochastique, θ étant l'angle que fait la trémie avec la verticale

au lieu de $P(x,y,z,t) = A \exp \left[-\frac{x^2 + y^2}{4Dt} - \frac{(z - Vt)^2}{4Dzt} \right] (dx dy dz)$.

Alors le temps de sortie devient : $T = \frac{4}{3} - \sqrt{\pi\alpha} \frac{d}{m} \exp \left[\frac{(x_0 \sin\theta)^2}{4\alpha z_0} \right] z_0^{\frac{3}{2}} e^{k \cos\theta}$

et dans le cas d'un silo à fond plat ($\theta = \frac{\pi}{2}$) on retrouve la formulation de MULLINS.

CONCLUSION

En utilisant la formulation du temps modifié (T) les valeurs de z calculée par la théorie de MULLINS sont de moins en moins proches des valeurs expérimentales au fur et à mesure que le temps t augmente. En tenant compte des conditions aux limites ($t=0$ et $t=T$) et du cas où $\theta = \frac{\pi}{2}$ on a pu modifier le modèle de MULLINS comme suit :

$$z = z_0 \left(1 - \frac{t}{T} \right)^{\frac{3}{2}} \ln \left[\frac{t}{T} \left(\frac{t}{T} - 1 \right) - \frac{x_0^2}{z^2} \cos\theta + e \right]$$

e est une constante.

REFERENCES

- (1) Abriak N.E, Parsy F, Experimental and theoretical modelisation of bidimensionnal flow, International Journal of Powder Handling and Processing (1997)
- (2) Mullins W;W., Experimental evidence for the stochastic theory of particle flow under gravity, Powder Technology, Vol.9, pp.29-37 (1974)
- (3) Mullins W. W., Stochastic theory of particle flow under gravity, J. Appl. Phys., Vol.43, n°2.,pp. 665-678 (1974).

APPLICATION OF TRACERS FOR VERIFICATION OF MATHEMATICAL MODELS OF MIXING IN INDUSTRIAL CRYSTALLIZERS

A. BORISSOVA

<> University of Chemical Technology and Metallurgy
Blvd. Kl. Ohridski, 8
Bulgarie -1756 SOFIA

Verification of mathematical models of complex, multiphase and polydisperse crystallization systems requires precise experimental observations of both the "invisible" kinetic processes of nucleation and growth of crystals and transport phenomena as flow dynamics and mixing. Could radiotracers meet these requirements and how the radiotracer applications in this field could be improved? The paper is looking for the ways to answer these questions from the point of view of the radiotracer methodology.

I. INTRODUCTION

Transport phenomena in engineering unit operations can be modelled on the basis of theoretical mass balance equations: equations of fluid dynamics and mass transfer processes. This complex deterministic description usually contains kinetic constants that can be estimated only experimentally. Even if all the constants are known by a previous experience, the model should be verified experimentally to prove its structural reliability. The complexity of the transport processes and the need of precise diagnosis of phenomena taking place in all space and time stages of the process, make the application of the radiotracer methods with their high accuracy and sensitivity preferable compared to other traditional methods of experimenting. Further development of these methods should be directed to their submission to the needs of the industrial practice and the end-user.

The attempts to improve the methodology of radiotracer applications for verification of mathematical models of multiphase systems should be focused on the following stages: *design and conducting of the experiments, data acquisition, preliminary treatment of the experimental data, data interpretation – mathematical model solution, identification and optimization.*

On the first stage a proper radiotracer should be chosen and optimal design of the experiments and equipment provided. The improvement of the next stages is connected with the *perfection of the software* applied.

Till now the efforts in software preparation have been directed to the development of *Residence Time Distribution (RTD)* software to simulate the reactor functioning. The known software packages (Progepi's and Thyn's) have as object of simulation the hydrodynamics of the reactor and don't include heat and mass transfer and chemical reaction. If the industrial process is dependent on the hydrodynamics (e.g. flotation) the RTD software is helpful, but in the great variety of chemical technology processes it is not enough to the aim of the process optimization. The development of *end-user directed software package for tracer analyses based on general mathematical model including the main hydrodynamics, mass and heat transfer processes and chemical reaction* corresponds to the needs of the industrial practice and is to be the next step in the tracer methodology perfection.

II. MACRO AND MICROMIXING IN CONTINUOUS INDUSTRIAL CRYSTALLIZERS

The complex behaviour of industrial crystallizers is determined by the interaction between hydrodynamics, kinetics, equilibrium, mass and heat transfer processes taking place in a polydisperse physicochemical system with both deterministic and stochastic properties. Modelling of mixing at such conditions is a task delicate that is difficult to be solved on the basis of the Navier-Stocks equations because of the complexity of the system and the properties of the fluids.

The following approaches can be applied to model mixing processes in continuous industrial crystallizer:

- Residence Time Distribution (RTD) of macroflows – Danckwert's concept,
- Environmental Micromixing Models – Zwietering's concept.

II.1 Modelling of macromixing

It is well known that idealized perfectly mixed or plug flow conditions are seldom achieved in large industrial crystallizers. Consideration of crystallization is even more complicated than nonlinear homogeneous reaction systems, because the degree of mixing of two phases and the distribution of the solid phase must be taken into account.

Modelling of the reactor with the aid of simple modules is based on the association of these modules (perfect mixing or plug flow) in a chain (net). The following disadvantages of the RTD method speak about its impossibility to be applied to complex systems:

- The number of the modules increases dramatically,
- There is no precise methodology to choose the modules (cells) and their number. The experimental curve is the only basis for the flow dynamics visualization and the net configuration. The task is becoming even more difficult when the complexity of the hydrodynamics in the crystallizer increases.
- Some of the parameters used have no definite meaning (i.e. number of the cells), others of interest to the practice (i.e. impeller speed, hold-up, power input, mixing index, etc.) are either presented as complexes of constants or not included into the model at all.
- RDT modelling is applied only to continuous reactors. Verification of batch crystallizer models based on tracer experiments is of great importance for the industrial practice.

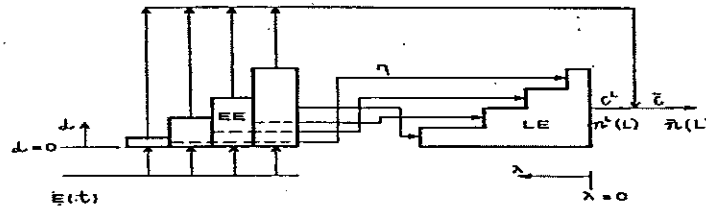
Adding to the above the difficulties connected with conducting of the RTD experiments like realization of perfect impulse input of the tracer, etc. the need of updating the tracer methodology with respect to complex multiphase systems becomes obvious.

II.2 Modelling of micromixing

Micromixing is important for the overall performance of multiphase systems where segregation phenomena are essential. It influences significantly the characteristics of the crystallizer operation as well, especially in the case of precipitation when the solid phase is formed as a result of chemical reaction.

Environmental models for chemical reactions are essentially system-specific and empirical in nature. To eliminate uncertainties in design, induced by non-ideal liquid mixing, Zwietering suggests a model for intermediate conditions, according what "flow points" (in Danckwert's terminology) spend part of its period of residence time in an environment corresponding to one of the two extreme (limit) states i.e. complete segregation and maximum mixedness, and the remainder - in the environment

corresponding to the other one. Residence time t is a sum of the age α and residual lifetime λ of the point ($\alpha + \lambda = t$). According to this assumption the crystallizer is regarded as a sequence of reactor-blocks (environments), each of which is featuring idealized liquid flow. The network-model is based on the understanding of the flow pattern gained from RTD measurements. Schematic presentation of the two environment model is given in the following figure:



Two-environment model [1] assumes that the crystallizing solution enters a completely segregated entering environment (EE) and subsequently transfers to a maximum-mixedness leaving environment (LE) at a specified rate as defined by environment transfer function. The crystallizer volume is represented by two environments with different state of mixing: entering environment, consisting of segregated flow with nucleation as a dominant process and leaving environment - mixed flow where only crystal growth occurs. Material transfer from the EE is assumed to take place at a rate which is proportional to the amount of material remaining in the EE and with a specific rate of transfer parameter η ($T(\alpha) = e^{-\eta\alpha}$). When $\eta = 0$ there is no transfer from the EE to the LE and the whole vessel is completely segregated. When η is infinitely large the entire entering material is immediately transferred into the LE so that the vessel is in the state of maximum mixedness. Intermediate values of η corresponds to the real cases of flow dynamics in crystallizer.

Entering into the vessel the input flow resides in a segregated state for its age α and subsequently transfers to the LE where it spend its residual lifetime λ . Of the material leaving the crystallizer the fraction that enters and remains in the crystallizer for ages between 0 and α is $F(\alpha)$ and it is related to RTD function $E(\alpha)$ as

$$E(\alpha) = \frac{dF(\alpha)}{d\alpha} \quad (1)$$

Of the material of age α the fraction remaining in the EE is

$$F^E(\alpha) = \exp(-\eta\alpha) \quad (2)$$

and the fraction in LE is

$$F^L(\alpha) = 1 - \exp(-\eta\alpha) \quad (3)$$

III. MATHEMATICAL MODELLING OF DMT-CRYSTALLIZATION

III.1 Modelling of crystallizer operation – Batch case

Dimethyl-Terephthalate (DMT) is raw material for synthetic fibre production. The process of its crystallization is a stage in DMT-department, Chemical Plant – Jambol, Bulgaria based on “WITTEN” method and aims DMT batch purification from its iso- (DMI) and ortho- (DMO) isomers. The different solubility of DMT and its

impurities in methanol is used. Well soluble impurities remain in the solution and the not-readily-soluble DMT crystallizes. The operation of the reactor is batch.

The physicochemical system considered consists of four phases : liquid (methanol solution), solid (crystals), vapour and foam. Mathematical model of the process of DMT-crystallization consists of 10 ordinary non-linear differential equations, describing the change with time of the DMT-, DMI- and DMO-concentrations in liquid and solid phases, densities of the phases and height of the foam. The model includes a partial differential equation for particle balance and two non-linear algebraic equations for pressure and temperature change. Conventional power law expressions are used to represent the growth and nucleation kinetics of the crystallization process.

Data taken from the reports of microprocessing system for distributed control TDC-2000 at DMT-department, Chemical Plant – Jambol, Bulgaria, from gas-chromatography, chemical analyses and differential scanning calorimetry have been used for batch model verification. There are any or rather scarce and approximate experimental data from the real time operation of the crystallizer, however, for the height of the foam layer and the distribution of the crystals by size that could be an area of radiotracers application.

III.2 Modelling of the crystallizer operation – Continuous case

Well known defects of the batch operating reactors in relation to their control and efficiency make it reasonable to investigate the case of continuous operation of DMT-crystallizers. The investigation is a theoretical one and it is based on the computer simulation of the crystallizer operation.

To model the case of unpremixed flows (raw DMT and methanol solution) three environment model consisted of two EE and one LE in the states of complete segregation and maximum mixedness corerspondingly, is applied. The equations for component mass balance (concentrations of j-component in i-phase) are :
for EE (with respect to the age α)

$$\frac{dc_{ij}}{d\alpha} = f_j(J_{1 \rightarrow 2}, J_{1 \rightarrow 3}) \quad (4)$$

for LE (with respect to the residual life time λ)

$$-\frac{dc_{ij}}{d\lambda} = f_j(J_{1 \rightarrow 2}, J_{1 \rightarrow 3}) + \eta J_{EE \rightarrow LE, j} \quad (5)$$

where c_{ij} - concentration of jth component in ith phase; $J_{i \rightarrow j}$ - mass transfer from ith to jth phase; f_j - mass transfer function for jth component.

The assumptions of perfect mixing conditions produces good simulation results for batch DMT crystallization. In the case of continuous operation, however, simulation using exponentially decaying RTD function (exit age distribution) corresponding to CSTR or MSMR crystallizers and mixing parameter η in the range $10^{-6} - 10^{-1}$, gives unreliable results. Another reason for these results might be the use of the same values of the kinetic constants as in the case of batch operation. Obviously some structural changes in the model or/and more accurate determination of the model parameters are necessary for the new design of the reactor.

The computational work for both batch and continuous models has been done at HP 1097C Sun Workstation using Fortran 77 programming language.

III.3 Radiotracer applications for the mathematical models verification

The possibilities of radiotracers as a tool for experimenting can be fully demonstrated by their application to the complex, multiphase and polydisperse physicochemical crystallization system. Radionuclides are the best tracers to "observe" both the "invisible" kinetic processes of nucleation and growth of crystals and transport processes as flow dynamics and mixing.

Till now this application is limited to hydrodynamics behaviour study and directed mainly to flow patterns investigation. Diffusion of mass, transfer processes in new phase formation, dynamics in multiphase systems are still not objects of investigation with radiotracers. Flow patterns in crystallizers have been investigated by J.C.Mishra (^{60}Co trace movement in a Draft Tube Baffle (DTB) crystallizer has been used to represent the circulation rates of the flow medium) and S.W.Smith, J.K.Basson and I.A.Smith (^{131}I has been applied to investigate the behaviour of sugar crystallizers). New radiotracer experiments for a deeper look inside the complex mass transfer processes going on in the crystallizer system should be designed to verify the mathematical model of the reactor. ^{24}Na , ^{131}I , ^{82}Br or Tc-99m-EDTA could be used to trace the liquid phase, and ^{198}Au or ^{51}Cr – for the solid phase. Radiotracer experiments could be designed as well to investigate the process of nucleation. The determination of the initial point of nucleation is important in most of the cases.

In DMT crystalization each of the two tracers is added to the corresponding flow before mixing them under the temperature of 100°C and the resulting pressure of 3 atm. Intensities of their emission are measured by scintillation detectors coupled to ratemeters and single channel analysers (to follow the dynamics of one phase) or multichannel analysers (in case of double labelling to investigate the dynamics of the both phases).

IV. SOFTWARE FOR VERIFICATION OF MATHEMATICAL MODELS

Used by radiotracer specialists software packages simulating hydrodynamics models derived from RTD experiment are *Logiciel DTS*, *Progepi*, Nancy [2]; *Thin's RTD software* for data analysis of tracer flow experiments, Prague [3]; Computer system for data acquisition and processing, INCT, Warsaw. There are few studies and any software developed on tracer analysis in heterogeneous systems. Solid phase flow dynamics modelling and macro and micromixing rate determination are problems still open from theoretical and experimental point of view.

The proposed software for verification of mathematical models of crystallization is designed as a part of *complete information technology for mathematical modelling* of real chemical technology processes developed as analogo-digital set of modules. The interface between the reactor and the computer supplies the input information flows for the software system with the transformed data from the tracer experiments. The software project consists of modules for: preliminary data treatment, simulation of kinetics, equilibria, hydrodynamics, mass and heat transfer etc. main physicochemical processes, optimization of the reactor operation.

The main numerical methods applied in the software are: Numerical integration and differentiation, Statistical and Optimization procedures, Spline-approximation and interpolation, Least squares, Fourier transformation, Iterative and Sorting procedures, etc. The system is based on the use of *Borland Delphi Developer* for PCs – a powerful and flexible media for generation of 32-bit code using effectively the possibilities of Windows 95 and Windows NT. At the moment the modules for the preliminary data treatment and hydrodynamics modelling are the object of development.

IV.1 Software for preliminary data treatment

It consists of the modules for Noise (Background) Reduction and Data Smoothing, Correction of the Discretization Error, Moment Estimation.

The module for the *Noise Reduction* is based on the computer filters realization. The Fast Fourier Transformation (FFT) is often used method for the noise reduction. In the case of investigation of crystallization, it however might not be applicable because of the complex spectrum of the experimental data obtained from the discrete system. The following filters are realized in the software:

- Smoothing by three data points, i.e for the i^{th} data point the following equation is applied: $Y_i = (Y_{i-1} + Y_{i+1})/2$. The rank of the filter determines the number of the consequent iterations of smoothing;
- Spline smoothing, i.e the cubic spline function for each interval $[x_i, x_{i+1}]$ of x is

$$Y_i(x) = \frac{1}{6h_i} \left[m_i (x_{i+1} - x)^3 + m_{i+1} (x - x_i)^3 \right] + \frac{1}{h_i} \left[\left(Y_i - \frac{m_i h_i^2}{6} \right) (x_{i+1} - x) + \left(Y_{i+1} - \frac{m_{i+1} h_i^2}{6} \right) (x - x_i) \right]$$

$$\text{where } h_i = x_{i+1} - x, \quad m_i = Y''(x) \quad (6)$$

The module for the *Correction of Discretization Error* is based on the calculation of the "geometry centre" of the experimental data used, i.e.

$$X_{corr.} = \frac{(Y_{i-1} - Y_{i+1})}{2(Y_{i-1} - 2Y_i + Y_{i+1})}, \quad Y_{corr.} = X_{corr.} \cdot 4(Y_{i-1} - Y_{i+1}) \quad (7)$$

IV.2 Software for basic flow pattern modelling

Module for each of the main flow pattern is provided. The following equation is used to determine the number of the cells n in a *cascade of perfectly mixed cells*:

$$C(t) = 1 - e^{-nt/\bar{t}} \left\{ 1 + \frac{nt}{\bar{t}} + \left(\frac{nt}{\bar{t}} \right)^2 \frac{1}{2!} + \dots + \left(\frac{nt}{\bar{t}} \right)^{n-1} \frac{1}{(n-1)!} \right\} \quad (8)$$

$C(t)$ – concentration of the tracer at time t , \bar{t} – mean residence time.

The following system of equations is used to describe the *plug flow model*:

$$v \frac{dc_i}{dt} = Sr_i, \quad i = 1, 2, \dots, k \quad v c_T \frac{dT}{dt} = S Q_r + \frac{K_T F}{l_r} (T_x - T) \quad (9)$$

where v – volume rate, c_i – concentration of the i^{th} component, k – number of the components, l – length, l_r – length of the reaction, S – intersection of the reactor, r_i – rate of the reaction according to the i^{th} component, c_T – specific heat, T – temperature, Q_r – heat of the reaction, $K_T F$ – heat transfer coefficient,

CONCLUSIONS

Perfection of radiotracer methodology in the field of data processing should be focused on the development of end-user directed software including sophisticated mathematical models and improved interface, help and visualization facilities.

REFERENCES

- (1) Tavare N.S., Mixing, reaction and precipitation: Environment micromixing models in continuous crystallizers – I. Premixed feeds, Computers Chem. Eng., 16, 923-936, (1992)
- (2) Leclerc J.-P., Detrez C., Bernard A., Schweich D., DTS: Un logiciel d'aide a l'elaboration de modeles d'ecoulement dans les reacteurs, Revue de l'Institut Francais du petrole, 50, 5, 641-656, (1995)
- (3) Thyn J., Zitny R., Residence Time Distribution Software Analysis, Computer Manual Series, 11, IAEA (1996)

ETUDE EXPERIMENTALE DE L'ÉCOULEMENT DE POUDRES EN FOUR TOURNANT

M. DEBACQ, D. ABLITZER

<> LSGMM - Ecole des Mines
Parc de Saurupt - 54042 NANCY Cedex

J.L. HOUZELOT

<> LSGC-ENSIC
BP 451
1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

S. BOUTIN, D. HARTMANN

<> COGEMA
BP 16
26701 PIERRELATTE Cedex

RESUME

Dans le cadre de la modélisation des fours tournants de défluoration de l'hexafluorure d'uranium, une étude dynamique des fours industriels s'imposait. En vue d'étudier les types d'écoulement et les temps de séjours moyens dans les fours industriels, nous avons effectué des mesures de Distribution des Temps de Séjour par traçage radioactif. Ces mesures ont été comparées aux résultats rapportés dans la littérature. Nous avons en particulier vérifié que les fours industriels fonctionnent en régime proche de l'écoulement piston, et nous avons pu corréliser le temps de séjour moyen dans ces fours au débit d'alimentation et à la vitesse de rotation.

I. INTRODUCTION

Au cours du cycle du combustible nucléaire, l'uranium sous forme d'hexafluorure est enrichi par diffusion gazeuse. A la sortie de l'usine d'enrichissement, l' UF_6 appauvri doit être converti en U_3O_8 pour permettre son stockage en toute sécurité (conversion réalisée par COGEMA). La transformation $UF_6 \rightarrow U_3O_8$ est réalisée dans un réacteur complexe : l' UF_6 est hydrolysé en phase gazeuse dans un réacteur vertical, puis l' UO_2F_2 solide formé (sous forme de poudre) est converti en U_3O_8 solide dans un four tournant légèrement incliné par rapport à l'horizontale.

La modélisation de ce four tournant passe entre autres par une bonne connaissance de l'écoulement de la charge solide le long du four. Cet écoulement conditionne en effet les échanges thermiques et de matière, en particulier au niveau de la qualité du contact gaz/solide, et de sa durée.

Lors de cette étude, l'influence de la vitesse de rotation et du débit d'alimentation sur le temps de séjour moyen dans le four tournant a été étudiée à l'aide de mesures de distribution des temps de séjour par traçage radioactif dans un des fours industriels.

II. REVUE DES ETUDES ANTERIEURES

L'étude de l'écoulement d'une charge solide dans un four tournant a fait l'objet de nombreuses publications. Les auteurs s'accordent généralement à dire que cet écoulement est de type piston avec une très faible dispersion axiale.

D'après Henein (1), le mouvement transversal du solide peut varier avec la vitesse de rotation du four et les propriétés du solide. Cependant dans la plupart des applications, on se place en régime de roulement (plus efficace pour les échanges thermiques et de matière) : le solide au sein de la charge subit un mouvement de masse qui le remonte à l'apex du lit avec la même vitesse angulaire que celle du four, tandis que le solide en surface ruisselle rapidement en bas du lit.

La plupart des auteurs donnent des expressions du temps de séjour moyen dans un four tournant en fonction des divers paramètres opératoires (débit d'alimentation Q , vitesse de rotation ω , angle d'inclinaison α , longueur L et diamètre D du four...) et des propriétés des solides concernés (en particulier de l'angle de talus θ et du diamètre des particules d_p).

Sullivan (2) propose dès 1927 une corrélation rendant compte de l'influence de ces paramètres, observée expérimentalement, sur le temps de séjour moyen.

Beaucoup d'auteurs se sont attachés à décrire le mouvement d'une particule solide dans le lit de manière géométrique. S'intéressant au régime de roulement, Saeman (3) et Kramers (4) établissent des expressions du temps de séjour moyen pour des fours dépourvus de barres de relevage ou de chicanes. A partir de ces travaux, Afacan (5) propose une équation synthétique qui peut être résolue numériquement et pour laquelle il suggère une condition limite (hauteur du lit en sortie de four) adaptée au four et au produit considéré. Hanrot (6) puis Lebas (7) conservent cette description géométrique en faisant intervenir les notions d'angle de plus grande pente et de temps de séjour en surface du lit. Das Gupta (8), Kohav (9) et Rogers (10) ont tenté d'ajouter à cette description du mouvement la possibilité d'une ou plusieurs déviations par rapport au chemin le plus probable. Leurs modèles, totalement statistiques, ne permettent plus d'écrire une expression simple du temps de séjour moyen. Ronco (11) couple la description géométrique à une analyse dimensionnelle. Toutes ces expressions ayant été établies à partir de considérations géométriques sur le mouvement des grains, on peut s'interroger sur leur application à des régimes d'écoulements différents et notamment en présence de barres de relevage.

Quelques auteurs proposent des approches plus globales par analyse dimensionnelle. Zablotny (12) détermine expérimentalement les exposants de l'expression qu'il propose. Perron (13) ajoute à son analyse dimensionnelle un modèle rhéologique et obtient une expression de la vitesse axiale du lit.

Des mesures expérimentales de Distribution des Temps de Séjour ont permis à un certain nombre d'auteurs d'établir des expressions du temps de séjour moyen. Nicole (14) interprète ses mesures à l'aide de la relation simplifiée de Ronco ; Hehl (15) détermine les exposants d'un début de loi puissance ; Chatterjee (16) complète son analyse dimensionnelle en déterminant les valeurs des constantes ; enfin Mureau (17) puis Boutin (18) établissent un modèle global du four de conversion basé sur l'exploitation de mesures de D.T.S. sur le solide et le gaz.

On observe une grande diversité dans les relations proposées au niveau de l'influence du débit (Tableau 1). Il faut en outre noter que seule une minorité de travaux concerne des fours munis de barres de relevages.

Auteur	expression pour le temps de séjour moyen	puissance pour les variables indépendantes				
		Q	ω	α ou $\tan \alpha$	L	D
Sullivan	$\tau = \text{cste} \cdot \frac{1,77 \cdot L \cdot \theta^{1/2}}{R \cdot \omega \cdot \alpha}$	0	-1	-1	+1	-1
Saeman	$\tau = \frac{3 \cdot L \cdot \sin \theta \cdot (\Gamma - \sin \Gamma)}{8\pi \cdot R \cdot \omega \cdot \tan \alpha \cdot \sin^3(\Gamma/2)}$	im- pli- cite	-1	-1	+1	-1
Afacan	$\frac{dh}{dx} = \frac{\tan \alpha}{\cos \theta} - \frac{3 \cdot Q_v \cdot \tan \theta}{4\pi \cdot \omega \cdot R^3} \cdot \left[\frac{2 \cdot h}{R} - \left(\frac{h}{R} \right)^2 \right]^{-3/2}$					
Das Gupta	$\frac{dh}{dx} = -\frac{3 \cdot Q_v \cdot \tan \theta}{4\pi \cdot \omega} \cdot \ln \left[\frac{1 - 2 \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot h}{R} - \left(\frac{h}{R} \right)^2}}{1 - \frac{h}{R}} \right] \cdot \left[2 \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot h}{R} - \left(\frac{h}{R} \right)^2} \cdot \left(\cos^{-1} \left[1 - \frac{h}{R} \right] - \left[1 - \frac{h}{R} \right] \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot h}{R} - \left(\frac{h}{R} \right)^2} \right) \right]^{-1}$					
Ronco	$\tau = 0,513 \cdot \left(\frac{Q_v \cdot \sin \theta}{(\alpha + \psi) \cdot D \cdot \omega} \right)^{1,33} \cdot \frac{L}{Q_v}$	0,33	-1,33	-1,33	-1	-1,33
Zablotny	$\tau = \text{cste} \cdot \left(\frac{L}{\omega \cdot D^2} \right) \cdot \left(\frac{\alpha}{\theta} \right)^{-0,85}$	0	-1	-0,85	+1	-2
Perron	$\tau = \int_0^L \frac{dx}{\text{cste} \cdot R \cdot \alpha \cdot \omega \cdot \frac{\Gamma + 2 \tan \frac{\Gamma}{2}}{\left(1 - \cos \frac{\Gamma}{2} \right)^3 \cdot \left(\cos \theta + 2 \cot \frac{\Gamma}{4} \cdot \sin \theta \right)}}$					
Nicole	$\tau = 0,393 \cdot \frac{L \cdot Z^{0,29}}{R \cdot \omega \cdot \tan \alpha}$	im- pli- cite	-1	-1	+1	-1
Hehl	$\tau \propto \omega^{-0,373} \cdot Q_v^{-0,6075}$	-0,61	-0,37			
Chatterjee	$\tau = 0,1026 \cdot \frac{L^3}{Q_v} \left(\frac{\theta}{\alpha} \right)^{1,054} \left(\frac{Q_v}{L^3 \cdot \omega} \right)^{0,981} \left(\frac{L}{D} \right)^{1,1}$	-0,02	-0,98	-1,05	+1,16	-1,1

Tableau 1 : expressions relevées dans la littérature pour le temps de séjour moyen.

III. DISTRIBUTIONS DES TEMPS DE SEJOUR

III.1. Détermination expérimentale des D. T. S.

La méthodologie consiste à réaliser une injection de type créneau d'UF₆ d'un enrichissement différent au niveau de l'alimentation du réacteur d'hydrolyse et à suivre les réponses en entrée et en sortie du four tournant, à l'aide de sondes à rayonnement γ . Trois détecteurs à scintillation de type NaI sont placés respectivement à l'entrée du réacteur d'hydrolyse, à l'entrée et à la sortie du four tournant. *

Nous avons étudié d'une part la forme des signaux en entrée et en sortie du four tournant afin de déterminer le modèle d'écoulement correspondant, et d'autre part l'influence de deux paramètres opératoires (débit d'alimentation et vitesse de rotation) sur le temps de séjour moyen. Les différents essais réalisés sont donnés dans le **Tableau 2**.

* mesures réalisées en collaboration avec le DAMRI (CEA - Grenoble)

III.2. Dépouillement des mesures

Chaque courbe a d'abord été corrigée du bruit de fond, normée par son aire sous tendue, et munie de barres d'erreurs (représentant l'incertitude sur la statistique de comptage). Nous avons alors testé différents modèles d'écoulement : réacteur piston, cascade de réacteurs agités, réacteur piston avec dispersion axiale. *

Pour chacun des 6 essais, le modèle d'écoulement le mieux adapté est celui d'un régime piston avec faible dispersion axiale (les nombres de cellules agitées et les critères de Péclet sont grands).

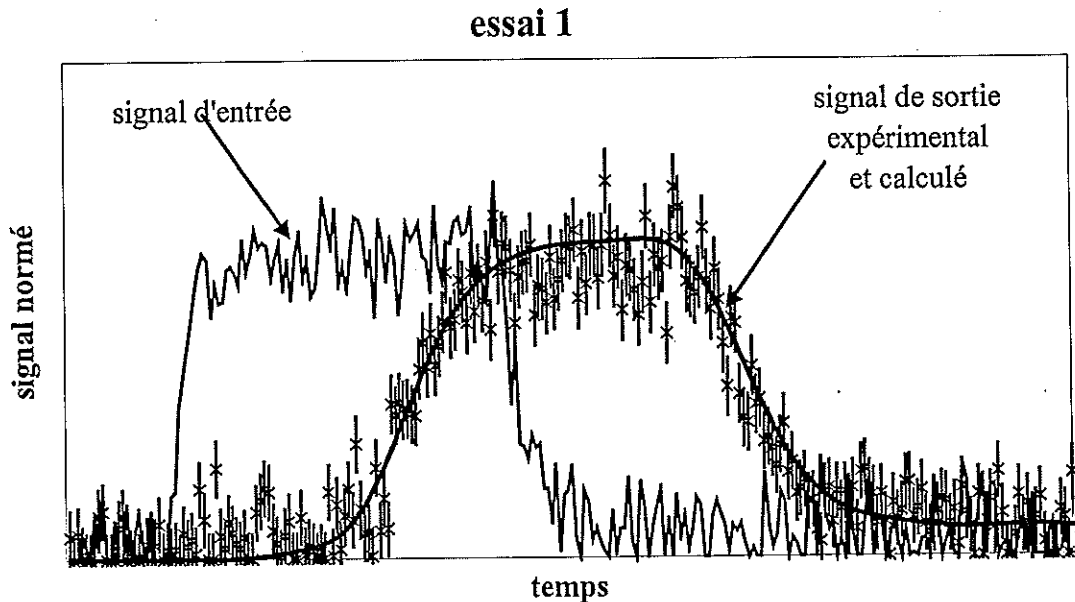


Figure 1 : modélisations pour un écoulement piston avec dispersion axiale.

NB : Par souci de lisibilité, le signal d'entrée (discontinu) est représenté par la ligne joignant les points successifs.

essai	1	2	3	4	5	6
débit alimentation [kg/h]	895	508	712	888	889	887
vitesse rotation [tr/min]	2,1	2,1	2,1	2,7	1,6	2,1
moyenne des temps de séjour moyens [min]	19	37	23	16	26	essai écarté car régime permanent non atteint
nombre de cellules agitées	31	27	41	37	25	
critère de Péclet	50	50	120	70	30	

Tableau 2 : paramètres opératoires et résultats des modélisations.

Il faut noter que le four possède des équipements intérieurs (barres de relevage).

III.3. Exploitation quantitative

Nous avons pu corréler les valeurs de temps de séjour avec le débit d'alimentation ou la vitesse de rotation :

$$\tau \propto \omega^{-0,9} \cdot Q_m^{-1,2}$$

* simulations réalisées à l'aide du logiciel DTS (PROGEPI - Nancy) pour le réacteur piston et la cascade de réacteurs agités, et d'un programme fortran pour le réacteur piston avec dispersion axiale

comparaison avec les relations de la littérature

Les résultats expérimentaux peuvent être directement comparés avec ceux de Sullivan, Saeman, Ronco, Zablotny, Nicole, Hehl et Chatterjee (Tableau 1). Par ailleurs il est possible, connaissant les angles de talus des différentes espèces (ils ont été mesurés par la méthode du cylindre tournant), et en supposant un profil de conversion (les variations de densité entre les différents produits et la réaction chimique font en effet varier le débit volumique Q_v), de recalculer les temps de séjour à partir des relations d'Afacan et de Das Gupta. Afacan préconise d'utiliser comme condition limite la hauteur du lit en sortie de four : $h_L = h_{\text{barre de relevage}} + 2.d_p$. Une résolution numérique à l'aide de la méthode de Runge et Kutta d'ordre 4 donne les résultats suivants :

Q_m [kg/h]	895	508	712	888	889	890	1000	890
ω [tr/min]	2,1	2,1	2,1	2,7	1,6	4	2,1	3,3
τ [min] expérimental	19	37	23	16	26			
τ [min] Afacan	11	19	13	11	11	11	9	11
et Das Gupta	7	13	9	7	7	7	6	7

essais expérimentaux recalculés

calculs supplémentaires
pour régressions linéaires

Tableau 3 : temps de séjour moyen d'après Afacan et Das Gupta.

Les valeurs de temps de séjour moyen calculées (Tableau 3) sont du même ordre de grandeur que celles obtenues grâce aux D.T.S., ce qui est acceptable dans la mesure où le profil de conversion, n'étant pas connu pour l'instant, a été choisi arbitrairement (décroissance linéaire), et était identique pour tous les calculs. Les corrélations avec le débit et la vitesse de rotation sont :

$$\tau \propto \omega^{+0,02} \cdot Q_m^{-1,00} \text{ selon Afacan ; } \tau \propto \omega^{+0,002} \cdot Q_m^{-1,00} \text{ selon Das Gupta.}$$

L'influence de la vitesse de rotation, observée expérimentalement, sur le temps de séjour moyen est en bon accord avec la plupart des valeurs relevées dans la littérature. Les modèles d'Afacan et de Das Gupta ne rendent toutefois pas du tout compte de cette influence.

L'influence du débit d'alimentation reste dans la diversité des corrélations de la littérature. Les modèles d'Afacan et de Das Gupta représentent bien l'influence du débit d'alimentation pour le four industriel.

Nous devons donc par la suite mettre en place un modèle mieux adapté à la géométrie des fours.

IV. CONCLUSION

La campagne de mesure de Distribution des Temps de Séjour par traçage radioactif menées sur un des fours COGEMA nous a permis de nous assurer que le four industriel fonctionne bien en régime piston avec une faible dispersion axiale.

D'après l'exploitation quantitative des mesures, l'influence de la vitesse de rotation sur le temps de séjour moyen est en bon accord avec les équations relevées dans la littérature.

L'influence du débit d'alimentation reste dans la fourchette des résultats de la littérature.

Nous pourrions donc intégrer par la suite au modèle global de four tournant de conversion la corrélation suivante :

$$\tau \propto \omega^{-0,9} \cdot Q_m^{-1,2}$$

NOMENCLATURE

R	rayon intérieur du tube (m)	α	angle d'inclinaison du four (rad)
d_p	diamètre de particule (m)	Γ	angle de remplissage (rad)
h	hauteur du lit de solide (m)	θ	angle de talus (rad)
L	longueur du four (m)	τ	temps de séjour moyen (s)
Q_m	débit massique de solide ($\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$)	ω	vitesse de rotation du four ($\text{tr}\cdot\text{s}^{-1}$)
Q_v	débit volumique de solide ($\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$)	ψ	angle lit/four (rad)
Z	taux de remplissage (%)		

REFERENCES

- (1) Henein H., Brimacombe J.K., Watkinson A.P., Experimental Study of Transverse Bed Motion in Rotary Kilns, *Met. Trans. B*, 14B, 191-205(1983)
- (2) Sullivan J.D., Maier C.G., Ralston O.C., Passage of Solid Particles through Rotary Cylindrical Kilns, U.S. Bur. of Mines, Technical Papers, 384, 1-42 (1927)
- (3) Saeman W.C., Passage of Solids through Rotary Kilns, factors affecting time of passage, *Chem. Eng. Progress*, 47, 10, 508-514 (1951)
- (4) Kramers H., Croockewit P., The passage of granular solids through inclined rotary kilns, *Chem. Eng. Sci.*, I, 6, 259-265 (1952)
- (5) Afacan A., Masliyah J.H., Solids Hold-Up in Rotary Drums, *Powder Technol.*, 61, 179-184 (1990)
- (6) Hanrot F., Analyse physico-chimique et modélisation de la pyrolyse de grains de charbon en four tournant, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (1992)
- (7) Lebas E., Etude et modélisation de la pyrolyse du charbon en four tournant, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (1995)
- (8) Das Gupta S., Khakhar D.V., Bhatia S.K., Axial transport of granular solids in horizontal rotating cylinders. Part 1 : Theory, *Powder Technol.*, 67, 145-151 (1991)
- (9) Kohav T., Richardson J. T., Luss D., Axial Dispersion of Solid Particles in a Continuous Rotary Kiln, *AIChE J.*, 41, 11, 2465-2475 (1995)
- (10) Rogers R.S.C., Gardner R.P., A Monte Carlo Method for Simulating Dispersion and Transport, *Powder Technol.*, 23, 159-167 (1979)
- (11) Ronco J.J., Tecnología de las Operaciones y los Procesos de la Industria Química, *Industria y Química*, XX, 6, 605-615 (1960)
- (12) Zablony W.W., The movement of the charge in rotary kilns, *Int. J. Chem. Eng.*, 5, 2, 360-366 (1965)
- (13) Perron J., Bui R.T., Rotary Cylinders : Solid Transport Prediction by Dimensional and Rheological Analysis, *Canadian J. of Chem. Eng.*, 68 (1990)
- (14) Nicole C., Etude et modélisation de l'hydrofluoration du dioxyde d'uranium en four tournant, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (1995)
- (15) Hehl M., Kröger H., Helmrich H., Schügerl K., Longitudinal Mixing in Horizontal Rotary Drum Reactors, *Powder Technol.*, 20, 29-37 (1978)
- (16) Chatterjee A., Sathe A.V., Srivastava M.P., Mukhopadhyay P.K., Flow of Materials in Rotary Kiln, *Met. Trans. B*, 14B, 375-399 (1983)
- (17) Mureau P., Hemati M., Michaille P., Laguerie C., Modelling of rotary kiln, 36^e Séminaire Procédés Eurotherm, 165-171 (1994)
- (18) Boutin-Lacombe S., Modélisation de la conversion de l'hexafluorure d'uranium en dioxyde d'uranium par un procédé en voie sèche, Thèse de l'Université de Rouen (1995)

CONFRONTATION EXPERIMENTALE DE TROIS METHODES DE TRACAGE POUR LA DETERMINATION DU TEMPS DE CIRCULATION AXIALE MOYEN D'UN AGITATEUR HELICOÏDAL

G. DELAPLACE, N. BELAUBRE, J.C. LEULIET

<> INRA - LGPTA
BP 39 - 369, rue J. Guesde
59651 VILLENEUVE D'ASCQ Cedex

J.Y. DIEULOT

<> IAAL - USTL
Bât. C6
59655 VILLENEUVE D'ASCQ

RESUME

Les valeurs de temps de circulation et de mélange ont été déterminées par trois méthodes expérimentales différentes (suivi de particules, méthodes thermique et conductimétrique) lors de l'agitation de différents fluides Newtoniens par un mobile hélicoïdal. Un modèle de type fonction de transfert dépendant uniquement de deux paramètres a été utilisé pour décrire l'allure des courbes de circulation obtenues par les méthodes thermique et conductimétrique, après l'injection d'un traceur. Les 2 paramètres de ce modèle ont ensuite été corrélés à la valeur du nombre de Reynolds. Cette corrélation permet de prédire, quelles que soient les conditions opératoires (viscosité, vitesse) le processus de mélange.

I. INTRODUCTION

La synthèse de nombreux produits nécessite de mettre en contact dans des cuves mécaniquement agitées des substances de nature différente pour les faire réagir. Pour que tous ces réactifs aient une action efficace, il est souhaitable qu'ils soient rapidement et uniformément répartis dans le milieu réactionnel. Dans le cas contraire, l'évolution de la réaction sera mal contrôlée et la qualité du produit final ne sera pas constante.

Le choix du système d'agitation pour mener à bien l'opération de mélange joue alors un rôle capital. En milieu fortement visqueux, afin d'éviter la formation de zones mortes, les agitateurs de proximité de type hélicoïdal sont très souvent utilisés. Classiquement, on caractérise l'aptitude d'un système d'agitation hélicoïdal à homogénéiser des produits visqueux par la mesure des temps de circulation axiale t_c qu'il génère pour différentes vitesses d'agitation. Très peu d'auteurs [1] ont comparé les valeurs du temps de circulation axiale t_c déterminées par différentes techniques expérimentales. Aussi, un des premiers objectifs de ce travail sera de réaliser pour notre système d'agitation hélicoïdal un peu particulier (Système PARAVISC[®], société EKATO) pour les deux sens de rotation une confrontation entre trois méthodes de traçage différentes (suivi de particule, méthodes conductimétrique et thermique)

La connaissance précise, pour un agitateur hélicoïdal, du laps de temps nécessaire à un élément de fluide pour accomplir une boucle de circulation à une vitesse d'agitation donnée présente également d'autres intérêts: elle permet d'accéder aux valeurs de temps de mélange du système. En effet de nombreux auteurs ont montré que pour ce type de système d'agitation en régime laminaire le degré d'homogénéité souhaité est atteint dès que le fluide injecté a parcouru un nombre fixé de boucles de circulation. Le deuxième objectif de ce travail sera donc de présenter le modèle et la méthode retenus pour modéliser et prédire pour notre agitateur, quel que soit le régime d'écoulement, la dynamique du traceur dans le milieu agité.

II. MATERIELS ET METHODES

II.1. Plate-forme expérimentale et instrumentation

L'agitateur utilisé et les principales dimensions géométriques du système d'agitation sont indiqués sur la Figure 1. La cuve utilisée comporte un fond bombé. Tout au long des essais, le volume de fluide dans la cuve a été maintenu constant (34 litres, pour une hauteur de 0,402 m). L'agitateur est mis en rotation (sens horaire ou anti-horaire), à l'aide d'un moteur à vitesse variable. La vitesse de rotation N (tours/s) a été mesurée à l'aide d'un tachymètre électronique (série F90 - DIMELCO). La sonde de conductivité utilisée est de marque SOLEA-TACCUSSEL, type CD 78. Un thermocouple de type J (jonction fer-constantan) de très faible inertie thermique (thermocouple nu, dépourvu de toute gaine) a été utilisé pour la méthode thermique. Le temps de réponse moyen à 95% de ce dispositif a été déterminé comme étant inférieur à 0,2 s.

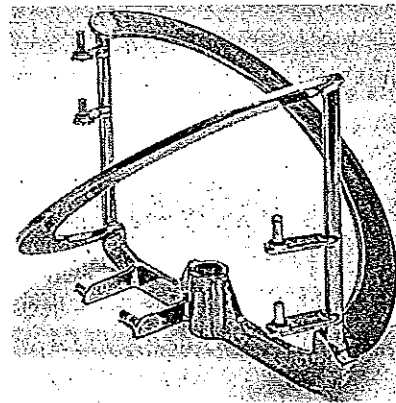
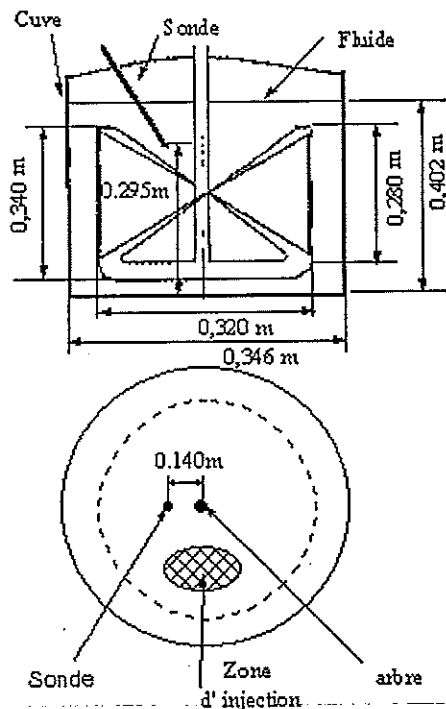


Figure 1: Principales dimensions géométriques du système d'agitation hélicoïdal étudié (Système PARAVISC® de la société EKATO) et position de la zone d'injection et de la sonde de température utilisée

II.2. Fluides utilisés

Les fluides Newtoniens testés sont des solutions aqueuses de glucose, de saccharose et de l'eau pure. Les concentrations ont été choisies pour obtenir différents niveaux de viscosité. Les propriétés rhéologiques ont été déterminées à l'aide d'un viscosimètre rotatif à vitesse imposée (CONTRAVES, type Rhéomat 30) équipé de différents systèmes de cylindres coaxiaux. La plage de vitesse de cisaillement a été de $0-500 \text{ s}^{-1}$, couvrant celle rencontrée dans notre cuve agitée.

II.3. Protocole expérimental

II.3.1. Suivi de particules

Nous avons suivi pour diverses vitesses d'agitation ($0,33 \leq N \leq 0,75$ tour/s dans le sens anti-horaire) et différents fluides Newtoniens ($2,8 < \text{Viscosité}, \mu < 4,5 \text{ Pa.s}$) le mouvement d'une bille colorée (diamètre 7,5 mm) de densité équivalente à celle du milieu agité. Le temps de circulation axiale est défini comme le temps nécessaire à la bille pour traverser deux fois dans le même sens le plan horizontal, éclairé par la source LASER. La hauteur séparant le plan horizontal du fond de la cuve est de 0,295 m

II.3.2 Méthodes thermique et conductimétrique

Nous avons détecté, pour diverses vitesses de rotation ($0,16 \leq N \leq 2$ tours/s, sens horaire et anti-horaire) et différents fluides Newtoniens ($\mu = 0,001$ à 30 Pa.s) le signal émis par les sondes thermique ou conductimétrique après injection d'un traceur (solution saline à 60g/l de propriétés physiques identiques au fluide agité ou quantité de fluide surchauffée de 40°C par rapport au milieu agité). Ce signal a été enregistré par une carte d'acquisitions rapides (PCL-812 PG, ADVANTECH) installée dans un micro-ordinateur de type PC à une fréquence de 200 Hz. Le temps de circulation axiale se détermine alors comme étant l'intervalle de temps qui s'écoule entre deux pics consécutifs de la courbe réponse suivie du traceur.

Quels que soient le fluide traité ou la technique employée, le volume de traceur introduit dans la cuve a toujours été de 500 ml ($1,42\%$ du volume total). Son incorporation a été réalisée manuellement avec une seringue. La localisation de la zone d'injection ainsi que l'emplacement de la sonde de mesure sont restés fixes tout au long des essais expérimentaux (Figure 1).

Après chaque injection, nous avons vérifié que l'influence de la perturbation thermique ou l'ajout d'une solution chargée en NaCl ne modifiait pas les propriétés physiques du fluide agité.

II.4. Modélisation des courbes réponses

Comme les profils expérimentaux de conductivité et de température sont de type oscillatoire amorti pour une perturbation de type échelon (entrée du traceur), un système de réacteurs mélangés en série [2] peut être utilisé pour décrire le processus de mélange. Comme Khang et Levenspiel (1976) [3] l'ont suggéré, nous avons assimilé la fonction de transfert réelle de ce système à une fonction de transfert $H(p)$ du second ordre qui se traduit en coordonnées temporelles par:

$$y(t) = K \left\{ 1 - \exp(-t) \cdot \omega_n \cdot \zeta \cdot \sin \left[t \cdot \omega_n \cdot \sqrt{1 - \zeta^2} + \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{1 - \zeta^2}}{\zeta} \right) \right] \right\} \quad (2)$$

Dans cette expression, $y(t)$ représente le signal de sortie (température ou conductivité) et t représente le temps. Le paramètre K désigne le gain statique défini comme le rapport entre les valeurs finales et initiales du signal délivré par les sondes. Le paramètre ζ représente le coefficient d'amortissement et le paramètre $\omega_n = 2 \cdot \pi / t_c$ la pulsation naturelle (rad.s^{-1}). La valeur du paramètre K dépend uniquement de la quantité de traceur injectée. En revanche les valeurs des paramètres ζ et ω_n dépendent grandement des conditions opératoires (vitesse de rotation, viscosité du produit) et seront bien entendu liées au système d'agitation étudié.

De nombreuses méthodes existent pour identifier les paramètres ζ et ω_n de la fonction de transfert $H(p)$ introduite [4]. Dans cette étude, plusieurs d'entre elles ont été comparées: la méthode de minimisation de la norme ℓ_1 offrant les meilleurs résultats a finalement été choisie. Elle a ensuite été utilisée pour déterminer à partir d'essais expérimentaux jugés représentatifs (7 en laminaire et 5 en turbulent) l'évolution des paramètres ω_n et ζ en fonction de la vitesse de rotation ou du nombre de Reynolds $Re = \rho / (N \cdot d^2 \cdot \mu)$. d représente le diamètre de l'agitateur (m) et ρ , la masse volumique du fluide (Kg/m^3). On aboutit alors aux corrélations suivantes :

- en régime turbulent: $\xi = 2,07 \cdot 10^{-6} \cdot Re - 1,077 \cdot 10^{-2}$ (3) et $\omega_n = 4,46 \cdot N$ (4)

Signalons que les relations (3) et (4) ne sont valables que pour une valeur du nombre de Reynolds supérieure à 10000 .

- en régime laminaire: $\xi = -9,539 \cdot 10^{-3} \cdot \log Re + 1,277 \cdot 10^{-1}$ (5) et $\omega_n = 0,54 \cdot N$ (6)

Pour les 12 essais utilisés à la fois en régimes laminaire et turbulent, l'utilisation des relations (3) à (6) permet de prédire les valeurs des coefficients ξ et ω_n à mieux de 15%.

III. RESULTATS ET DISCUSSIONS

III.1. Temps de circulation par suivi de particules

La Figure 2 illustre l'allure type des distributions de temps de circulation axiale obtenues en milieu visqueux ($Re = 29$) par suivi de particule. Sur cette figure, on peut voir que pour notre agitateur et le plan de référence horizontal considéré, la courbe de distribution des temps de circulation s'apparente à une Gaussienne.

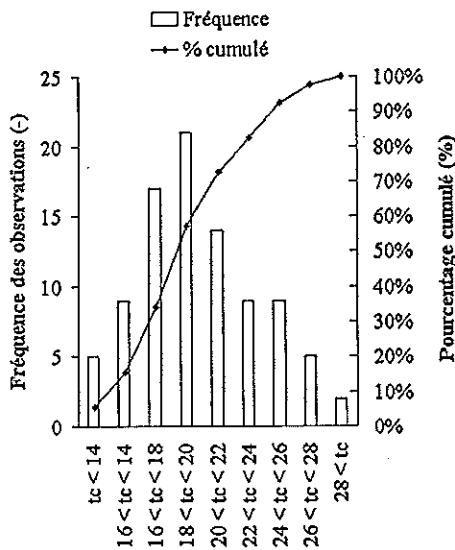


Figure 2: Distribution des temps de circulation obtenus par suivi d'une particule lors du mélange d'un fluide Newtonien en milieu fortement visqueux (système d'agitation: PARAVISC - $N = 0,583$ tours/s et $Re = 28,7$). Le sens de rotation de l'agitateur est le sens anti-horaire. Le plan horizontal de référence choisi est situé à 0,295 mètre du fond de la cuve. Les temps de circulation axiale sont exprimés en secondes.

La Figure 3 montre qu'en milieu fortement visqueux, pour notre agitateur, le produit adimensionnel $N \cdot \bar{t}_c$ est constant et vaut en moyenne 10,7. Ce résultat est conforme à ceux trouvés généralement pour des agitateurs à rubans hélicoïdaux [5].

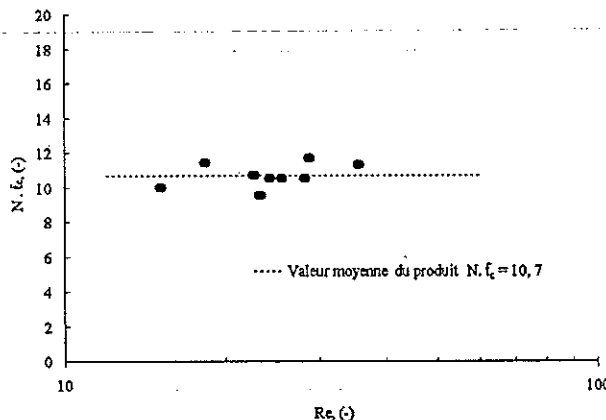


Figure 3: Evolution du produit $N \cdot \bar{t}_c$ avec le nombre de Reynolds en régime laminaire pour le système d'agitation PARAVISC. Les temps de circulation reportés sont les temps moyens de circulation axiale \bar{t}_c obtenus par suivi d'une particule lors du mélange d'un fluide Newtonien. Le sens de rotation de l'agitateur est le sens anti-horaire.

Les essais de suivi de particules réalisés en agitant de l'eau nous ont montré qu'il n'y avait plus pour cet agitateur de circulation axiale. La bille oscille autour d'un plan horizontal tout en tournant à une vitesse légèrement plus faible que celle de l'agitateur. Ceci est conforme aux observations visuelles de Gelus et al. (1979) [6] qui avaient également constaté ce phénomène pour un agitateur hélicoïdal à rubans.

III.2 Temps de circulation: méthodes thermique et conductimétrique

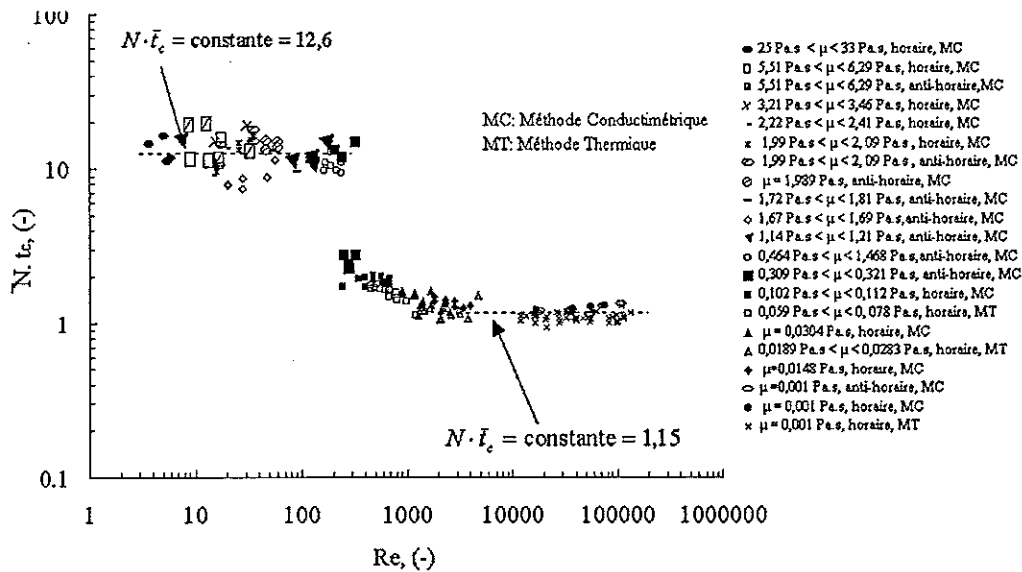


Figure 4: Evolution du produit $N \cdot \bar{t}_c$ avec le nombre de Reynolds en régime laminaire pour le système d'agitation hélicoïdal.

Sur la Figure 4, nous avons représenté l'évolution du produit $N \cdot \bar{t}_c$ en fonction du nombre de Reynolds. L'agitateur tourne soit dans le sens horaire soit dans le sens anti-horaire. Chaque valeur \bar{t}_c reportée correspond à la valeur moyenne de l'intervalle de temps séparant les pics des courbes réponse obtenues par méthodes conductimétrique et thermique lors de l'homogénéisation à une vitesse donnée d'un liquide.

L'analyse de cette courbe permet de mettre en évidence plusieurs points:

- Les valeurs du produit adimensionnel $N \cdot \bar{t}_c$ sont indépendantes pour notre système d'agitation du sens de pompage et de la technique expérimentale utilisée: en effet, les résultats trouvés par les méthodes conductimétrique et thermique d'une part et déterminés dans les deux sens de rotation d'autre part, sont tout à fait comparables.

- Pour des valeurs de nombres de Reynolds compris entre 4 et 200, malgré la dispersion des résultats, le produit $N \cdot \bar{t}_c$ peut être considéré comme constant et indépendant de cette valeur du nombre de Reynolds. Ce résultat est en accord avec les résultats expérimentaux obtenus par Carreau et al. (1976) et Brito-de la Fuente et al. (1990) [5;7] pour des agitateurs à rubans hélicoïdaux. La valeur moyenne du produit $N \cdot \bar{t}_c$ est de 12,6. Cette valeur n'est pas très éloignée de celle obtenue par suivi de particule $N \cdot \bar{t}_c = 10,6$ ce qui justifie l'emplacement de la sonde de mesure pour obtenir une valeur moyenne représentative du débit axial global.

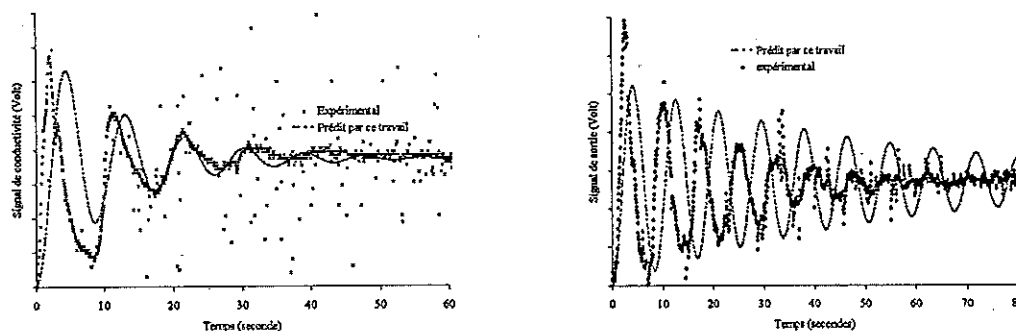
- Pour des valeurs du nombre de Reynolds supérieures à 2000, le produit $N \cdot \bar{t}_c$ est sensiblement constant. La valeur moyenne de ce produit vaut 1,15.

Nous avons observé lors des essais de suivi de particule qu'il n'y avait plus de débit de pompage axial en milieu très peu visqueux. Par conséquent, le temps de circulation détecté par la sonde ne peut pas correspondre à un temps de circulation axiale. L'intervalle de temps entre deux pics mesuré par la sonde représente en fait un temps de circulation tangential. Le fait que le produit $N \cdot \bar{t}_c$ soit proche de 1 confirme ce qui avait été observé par les expériences de suivi de particule: pour des valeurs du nombre de Reynolds supérieures à 2000 le fluide tourne en bloc et la vitesse d'un élément de fluide passant devant la sonde de mesure est pratiquement égale à la vitesse de la pale.

- Enfin, on peut remarquer sur cette figure que les mouvements axiaux cessent très brutalement (pour des valeurs de Reynolds comprises entre 200 et 250).

III.3. Modélisation des courbes de circulations

Afin de valider les relations traduisant l'évolution des paramètres ζ et ω_n avec les conditions hydrodynamiques, nous avons comparé l'allure de quelques courbes de circulation expérimentales et courbes prédites à l'aide des relations (3) à (6) (Figures 5)



Figures 5: Courbes de circulation prédites par la relation (2) et courbes de circulation expérimentales en régime laminaire ($Re=81$; $N=1,35$ tour/s; $\mu=2,4$ Pa.s) et turbulent ($Re=16996$; $N=0,15$ tour/s; $\mu=0,001$ Pa.s). Les valeurs des paramètres ζ et ω_n sont calculées par les relations (3) à (6).

Les résultats apparaissant à la figure 6 concernant la prédiction des courbes réponse des différents capteurs sont très encourageant. La figure 5 montre qu'il est possible de représenter mathématiquement ces signaux, y compris en régime turbulent où les phénomènes de dispersion ne durent que quelques dizaines de secondes.

IV. CONCLUSIONS

Dans ce travail, trois techniques de traçage (suivi de particules, méthodes conductimétrique et thermique) ont été utilisées pour déterminer les temps de circulation d'un agitateur hélicoïdal (système PARAVISC[®], société EKATO) traitant des fluides Newtoniens: ces trois méthodes ont donné des résultats tout à fait équivalents. L'ensemble des régimes d'écoulement a été abordé, du régime laminaire au régime turbulent en passant par les régimes de transition, ainsi que pour les deux sens possibles de rotation, horaire et anti-horaire. Cette bonne concordance des résultats a autorisé dans un deuxième temps la modélisation des courbes de circulations par un modèle relativement simple à deux paramètres, type fonction de transfert.

V. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES:

- [1] Chavan, V.V., et J. Ulbrecht, "Internal Circulation in Vessels Agitated by Screw Impellers", Chem. Eng. J., 6, 213-223 (1973).
- [2] Sasakura, T., Y. Kato, S. Yamamuro, et N.Ohi, "Mixing Process in a Stirred Vessel", Ind. Chem. Eng., 20, N°2, 251-258, (1980).
- [3] Khang, S.J., et O. Levenspiel, "New scale-up and design method for stirrer agitated batch mixing vessels", Chem. Eng. Sci., 31, 569-577, (1976).
- [4] Unbehauen, H., et G.P. Rao, "Continuous-time Approaches to System Identification-A Survey", Automatica, 26, 23-35, (1990).
- [5] Carreau P.J., Patterson I. et Yap C.Y., (1976) "Mixing of viscoelastic fluids with helical-ribbon agitators - I. Mixing time and flow patterns", The Can. J. of Chem. Eng., Vol 54, 135-142.
- [6] Gelus, M., G., Le Cardinal. et E., Germain, "Choix d'un agitateur lorsque la viscosité varie de 1 Centipoise à 2000", Entropie, 88,54-59 (1979)
- [7] Brito-de la Fuente E., Leuliet J.C., Choplin L. et Tanguy P.A., (1990) "Mixing and circulation times in rheologically complex fluids", AIChE Symposium Series N°121, 76-96.

NUCLEAR METHODS APPLIED TO EVALUATION OF GOLD CONCENTRATION PROCESS

L. PETRYKA, L. FURMAN, A. OCHONSKI, K. PRZEWLOCKI, Z. STEGOWSKI
<> University of Mining and Metallurgy
al. Mickiewicza 30
Pologne - 30-059 KRAKOW

1. Introduction

Recently exploited ores contain significant intrusions of many metals despite of the main components, which are currently concentrated. This situation originates necessity of checking which metals, and how may be recovered. For example, in the Lubin Basin, in neighborhood of copper deposits there exist layers containing significant amount of silver, gold, cobalt and other metals. That arises the question whether the better, from economical point of view, would be mixing those ores with normally processed copper ore or collect them and concentrate separately in the existing installation. The both proposals may be properly evaluate only in full-scale process by complex investigations with application of both the nuclear and conventional methods.

The paper presents specially designed measuring methods and results obtained during 6 shifts in the "POLKOWICE" Copper Mine, where almost 13 000 t of ore containing 0.7% Cu, above 10 ppm of Ag and Co, as well as almost 1.4 ppm of Au, was processed.

For the above task realization, great modifications in labeling of the processed ore, tracer concentration measurement as well as data processing and results interpretation was necessary.

2. Radiotracer investigations

The geological investigations of the ore show stochastic distribution of gold in form of different size and oxidation level particles in limestone and dolomite rocks. The size of such particles vary from small fraction of μm up to several hundreds of μm . This distribution and average content of gold below 1.4 ppm in ore eliminates the simple ore particles activation in nuclear reactor and measurement of its concentration in the investigated stream.

In this situation the Authors prepared the following two labeling methods:

- Radioactive ^{198}Au isotope placed in ore grains by chemical methods [1],

- Microscopic selection of ore particles containing significant amount of gold in representative for entire ore forms.

The first method was proceeded by detailed examinations of chemical procedures delivering metallic gold in size equal to particles occurring in the natural ore. The tracer obtained by this way possessed the sorbed gold mostly in pores. In laboratory installation the gold introduced by this way was concentrated similarly to natural one. The second method needs spectrometric analysis of radiation recorded by both: the scintillation probes mounted outside of the examined stream and Ge-Li detector for sample evaluation.

Fig. 1. presents flow diagram of the process with places where probes were mounted (numbers 1÷10) and sampling points (letters A÷I) situated. Measurement points were selected for evaluation of the whole ore concentrating process. Measurement of significant technological parameters complemented the recording of γ radiation.

The example of recorded data processing may be seen at Fig. 2. Due to 6 shifts lasting investigations and two impulse injections of ore labeled by ^{198}Au , accurate description of examined slurry flow rate and their density was possible. Those information allow the accurate tracer balance description. The radioactive gold distributions obtained in both injections give very similar pictures of metallic gold flow through the concentration process. For the single measurement several milligrams of gold was adsorbed in 70 g sample of gold ore. After the impulse injection of such tracer in the spiral classifier inlet (I 1), the both: gamma radiation intensity and slurry's samples were collected during 24 hours. Every sample was weighted, its volume was measured and all of them were used for continuous tracer density evaluation. This procedure allows determination of all flow balances including volumetric, mass of dry ore, and mass of particular metal flow rates.

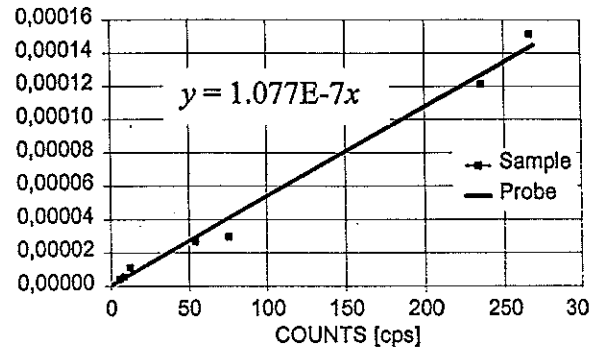
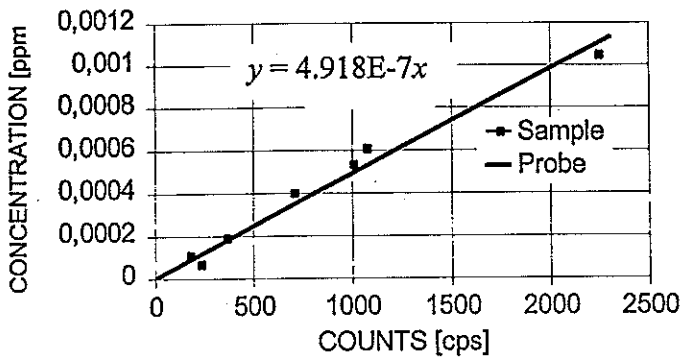
The Table 1 shows mean metallic gold and flow balances in the process, based on two tracer injections. Totally, during 6 shifts, about 400 slurry samples from points assigned by letters A ÷ H, were collected.

The balances obtained from radiotracer investigations were compared with results of activation analysis. However, the concentration and the range of gold intrusions' diameter either in input ore or in slurry samples strongly influenced the balance accuracy. For simplification, the balance of copper was evaluated prior to the calculations mentioned. Results are presented in the Tables 2 and 3. The greater gold recovery derived from the activation analysis may be interpreted as result of inclusion, for evaluation, the gold particles connected with sulfur compounds, not metallic only as in radiotracer measurements.

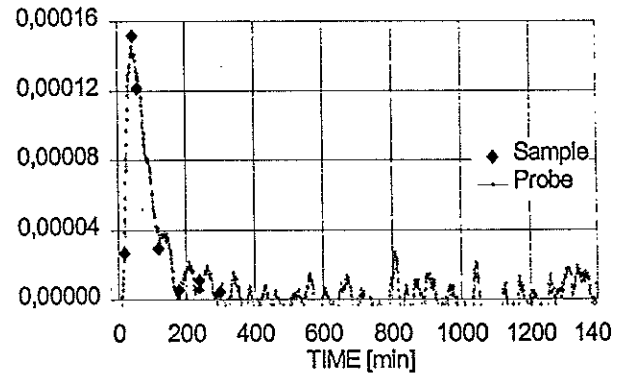
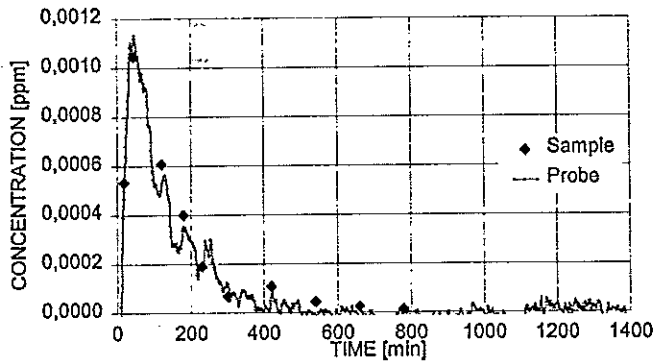
CONCENTRATE

TAILINGS

CALIBRATION



CONCENTRATION of ^{198}Au



OUTFLOW of ^{198}Au

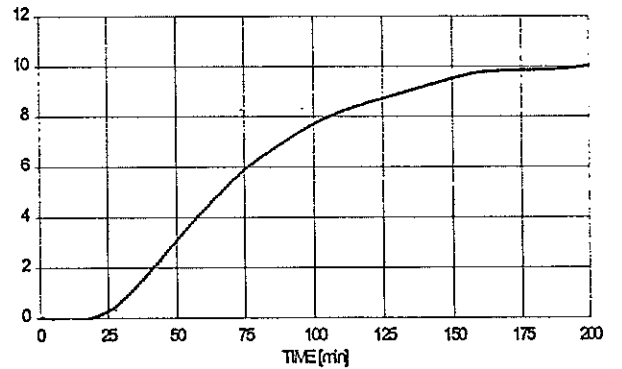
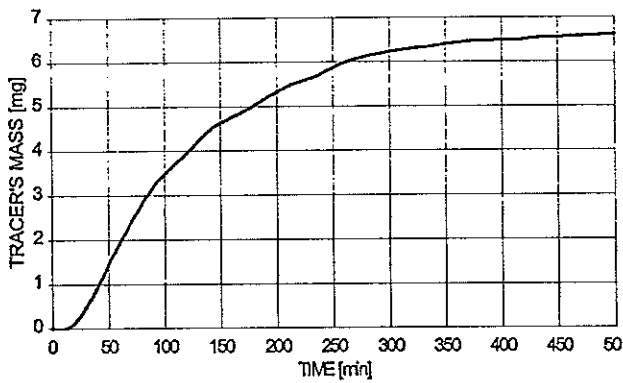


Fig. 2. Example of data processing

TABLE 1. SEPARATION OF RADIOACTIVE GOLD

Stream	Dry ore	Density	Slurry	Separation coeff.
	t/min	t/m ³	t/min	%
Inflow to Classifier	1,49	1,59	2,52	100
Overflow of Classifier	2,40	1,35	5,83	149
Inflow to Hydrocyclone	2,40	1,26	7,27	149
Overflow of Hydrocyclone	1,41	1,19	5,44	66
Underflow of Hydrocyclone	0,99	1,52	1,82	83
Tailings from Flash Flotation	0,97	1,65	1,55	49
Concentr. from Flash Flotation	0,02	1,59	0,04	3
Underflow of Classifier	1,13	1,49	2,15	54
Outflow of Ball Mill	2,04	1,75	2,99	103
Cleaned Concentrate	0,03	1,06	0,31	40
Tailings	1,44	1,18	5,88	57

TABLE 2. COPPER BALANCE AFTER ACTIVATION ANALYSIS

Stream	Dry ore	Flow rate Cu	Cu content	Separation coeff.
	t/min	Kg/min	%	%
Inflow to Classifier	4,47	10,46	0,70	100
Overflow of Classifier	7,20	14,81	0,62	147
Inflow to Hydrocyclone	7,20	14,81	0,62	147
Overflow of Hydrocyclone	4,23	7,26	0,52	72
Underflow of Hydrocyclone	2,97	7,52	0,76	75
Tailings from Flash Flotation	2,91	4,73	0,49	47
Concentr. From Flash Flotation	0,06	2,79	13,28	28
Underflow of Classifier	3,38	5,73	0,51	57
Outflow of Ball Mill	6,11	10,45	0,51	104
Cleaned Concentrate	0,08	4,95	18,34	49
Sum of Concentrates	0,14	7,74	16,12	77
Tailings	4,33	2,26	0,16	23

TABLE 3. GOLD BALANCE (36 PPM OF GOLD IN INFLOW ASSUMED)

Stream	Dry ore	Flow rate Au	Au content	Separation coeff.
	t/min	[g/min]	[ppm]	%
Inflow to Classifier	4,47	6,08	1,36	100
Overflow of Classifier	7,20	9,12	1,27	150
Inflow to Hydrocyclone	7,20	9,12	1,27	150
Overflow of Hydrocyclone	4,23	3,82	0,90	63
Underflow of Hydrocyclone	2,97	5,30	1,79	87
Tailings from Flash Flotation	2,91	3,03	1,04	50
Concentr. From Flash Flotation	0,06	2,26	35,9	37
Underflow of Classifier	3,38	1,09	0,03	18
Outflow of Ball Mill	6,11	4,12	0,68	68
Cleaned Concentrate	0,08	1,57	19,4	26
Sum of Concentrates	0,14	3,84	2,66	63
Tailings	4,33	0,42	0,52	37

3. Conclusions

- The investigations confirmed the diversified in form and grain size Au content in the ore.
- The full balance of processed metals in one of the greatest ore treatment plant in Europe was made, using only small amount of radioactive tracer.
- In similar way the balance of other rare metals can be achieved (Ag, Co, Zn, Fe, Se, Sc, Ir etc.).
- The three methods used: continuous recording of radiation intensity, sampling and activation analysis gave reliable and precise results.

4. References

- 1 Petryka L. *Proceedings of Forth International Conference on Non-ferrous Ore Processing* held on October 20-22 in Polanica Zdrój, Poland, pp. 133 - 154, Wrocław 1998.
- 2 Petryka L. Implementation of Radioisotopes in Indonesian Mineral Industry. *The End-of-Mission Report, RAS/8/071-82-01, Isotopes and Radiation for Technology and Environment Sustainable Development, Tracers in Gold Processing, IAEA, 1996, Vienna.*

TRACAGE EN MILIEU DIPHASIQUE (LIQUIDE AQUEUX / LIQUIDE ORGANIQUE) SUR UN ENSEMBLE REACTIONNEL COMPOSE DE DEUX REACTEURS AGITES EN SERIE, SUIVI D'UN DECANTEUR

I. SALLET, S. CLOOTS

<> PROCESS VISION SERVICES
Bld de Smet de Naeyer, 45
B - 1090 BRUXELLES

Résumé

Cet article décrit une étude de traçage réalisée sur des réacteurs industriels de type diphasique. Deux liquides non-miscibles, un acide et un organique, sont mis en contact afin de réaliser une réaction de nitration. Etant donné la nature des produits, les temps de séjours relativement court et la construction de l'installation industrielle, la seule technique de traçage applicable à cette installation passait par des traceurs radioactifs. Une des exigences souhaitées pour la réalisation de ce travail était d'effectuer le traçage sur chacune des phases sans que le traceur choisi pour une phase migre vers l'autre phase.

Introduction

Afin d'augmenter sa capacité globale de production, un de nos clients souhaitait analyser le comportement de son unité de nitration. Cette dernière était composée de deux cuves agitées en série suivies d'un décanteur. L'alimentation, située au sommet du premier réacteur, se fait par deux lignes séparées acheminant une phase acide lourde et une phase organique nettement plus légère. Le mélange quittant le premier réacteur s'écoule par débordement vers le second réacteur. Les fluides sont non miscibles. (voir fig. 1)

Du fait de la nature des fluides et de la conception de ces réacteurs, il a été décidé de tracer chaque phase et chaque réacteur à l'aide d'un traceur spécifique. Cette configuration fait penser, a priori, au modèle d'un mélangeur imparfait de Cholette et Cloutier (1).

Choix du traceur

Pour des raisons évidentes de détection, il a été décidé d'utiliser un émetteur gamma. Les traceurs à émission bêtas nécessitent en principe un échantillonnage.

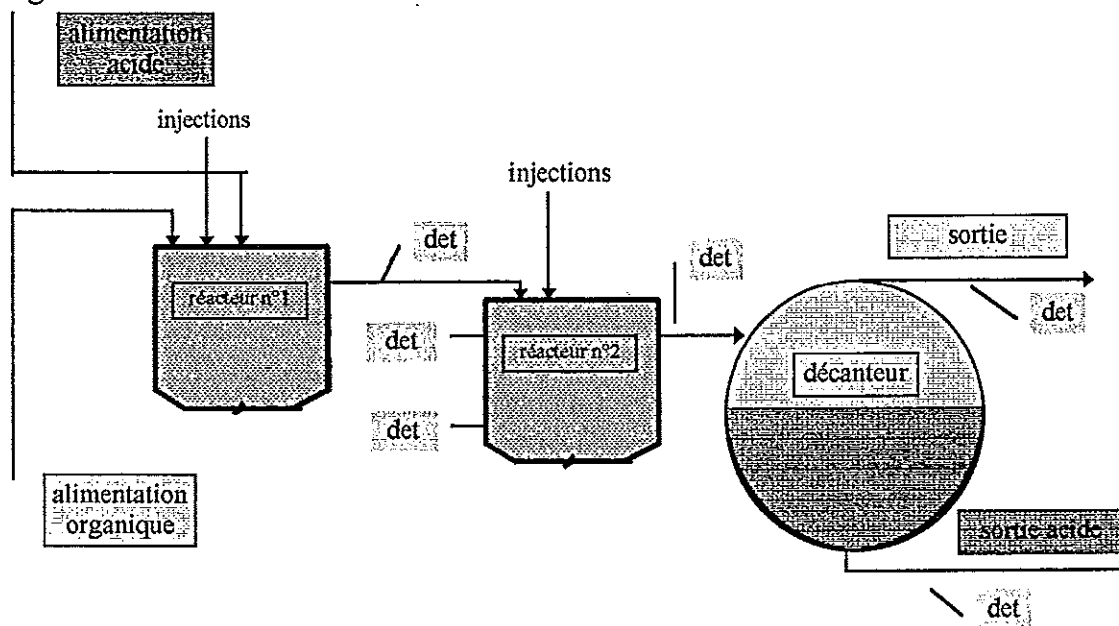
Le traceur devait avoir les caractéristiques suivantes:

- rester exclusivement dans la phase à tracer et être non volatil aux conditions du procédé,
- posséder une demi-vie suffisamment longue de manière à pouvoir être détecté au moins une heure après l'injection,

-avoir une énergie de rayonnement suffisamment élevée de manière à pouvoir être détecté au travers des parois.

Après expérimentations, le Technétium 99m a été sélectionné pour tracer la phase acide et du Brome 82 pour la phase organique.

Figure 1: Schéma de l'installation



Le Technétium est un émetteur gamma de 0.141 Mev ayant une demie vie de 6 heures. Il a été utilisé sous forme de NaTcO_4 en solution aqueuse. Cette solution est obtenue tel quel après élution d'un générateur $\text{Mo}^{99}\text{-Tc}^{99\text{m}}$.

Le Brome 82 possède principalement des raies à 0.554 Mev et à 1.474 Mev avec une demie vie de 1.47 jours. Il a été utilisé sous forme de dibromobenzène. Ce traceur est obtenu par activation dans un réacteur nucléaire.

Mise en oeuvre

La détection du rayonnement se fait à l'aide de détecteurs à scintillations placés dans un collimateur en plomb. Ces détecteurs sont réglés de manière à n'être sensible qu'au rayonnement primaire du traceur.

Les détecteurs sont placés à la sortie des réacteurs (voir figure 1) et aux sorties acides et organiques du décanteur pour mesurer une éventuelle dispersion des traceurs utilisés dans la phase qu'ils ne sont pas censés suivre. De plus des détecteurs sont placés sur les parois du second réacteur afin d'observer une éventuelle zone stagnante qui serait logiquement plus riche en acide étant donné sa densité nettement supérieure par rapport à la phase organique. Ces mesures en paroi constituent un avantage indéniable des traceurs radioactifs par rapport aux autres traceurs.

L'injection du traceur est réalisée dans un premier temps dans les conduites d'alimentation du premier réacteur. Mais pour des raisons de commodité et d'efficacité le traceur a été ensuite directement injecté dans le ciel du premier et second réacteur. L'injection directe sous forme impulsionnelle dans le second réacteur permet d'étudier son comportement à partir du signal obtenu à sa sortie et cela sans devoir calculer sa fonction de transfert à partir du signal obtenu à la sortie du premier réacteur.

Résultats

Le premier réacteur dit 'fortement agité' donne, aussi bien pour une injection acide qu'organique, un signal de sortie extrêmement semblable à celui du modèle du réacteur parfaitement agité. Toutefois les temps moyens de séjour sont différents entre la phase acide et la phase organique. On trouve respectivement 496 et 560 secondes. Il est possible à l'aide des débits d'alimentation respectifs de quantifier les volumes respectifs occupés par chacune des phases.

Les schémas, en annexe, reprennent l'allure des courbes obtenues qui sont superposées au modèle du réacteur parfaitement agité, dont la formule est $C_{\text{sortie}}(t) = C_0 \text{Exp}(-t/\tau)$.

Pour le second réacteur dit 'peu agité', chacune des phases a un comportement hydrodynamique particulier et fort différent de l'autre.

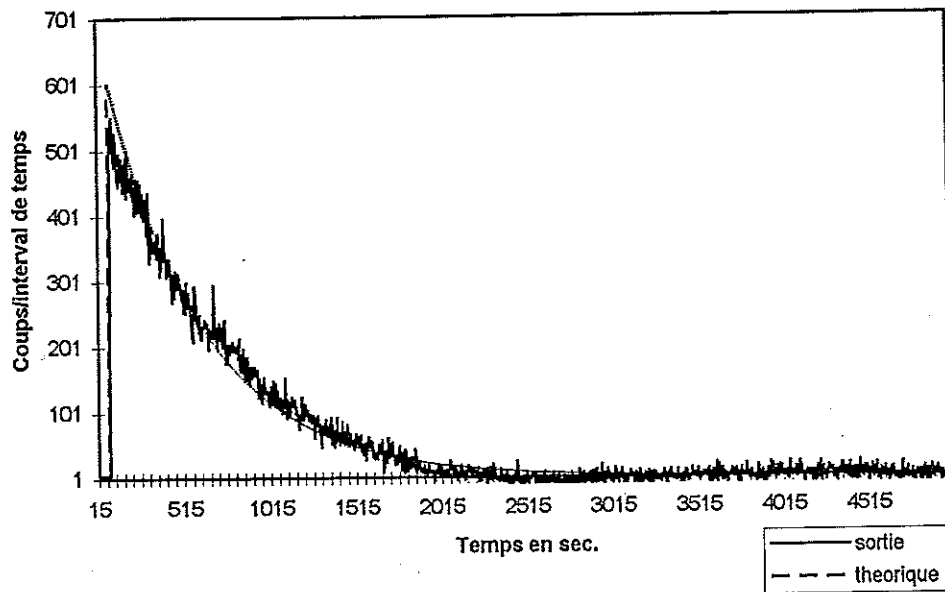
La phase acide (voir graphe) présente un comportement qui se rapproche de celui du réacteur parfait avec la particularité d'avoir au début une décroissance très rapide et ensuite une décroissance plus lente.

Pour la phase organique, on constate la présence d'un passage intense de traceur pendant quelques dizaines de secondes, suivi d'une très longue traînée qui connaît une deuxième valeur maximale environ 15 minutes après l'injection. Cette allure de courbe, nous indique la présence d'un petit volume court-circuit (bipasse) et d'un volume plus important dans lequel la phase organique transite relativement lentement (stagnation). Le comportement des signaux enregistrés en paroi du réacteur en position haute et basse donne un éclairage supplémentaire sur le phénomène observé. Le détecteur « haut » a l'allure du mélangeur parfait, c'est-à-dire qu'il atteint directement son maximum, suivi d'une décroissance constante. Tandis que le détecteur du bas « voit » directement l'augmentation en concentration du traceur, mais la concentration maximale n'est atteinte qu'après environ 8 minutes. Ceci illustre assez clairement une des tendances du produit organique à s'accumuler dans une zone basse du réacteur que l'on pourrait considérer comme une zone de stagnation. Cette situation était difficile à prévoir étant donné la densité nettement plus faible de la phase organique par rapport à la phase acide. La formation d'une émulsion relativement stable pourrait être une explication à ce phénomène.

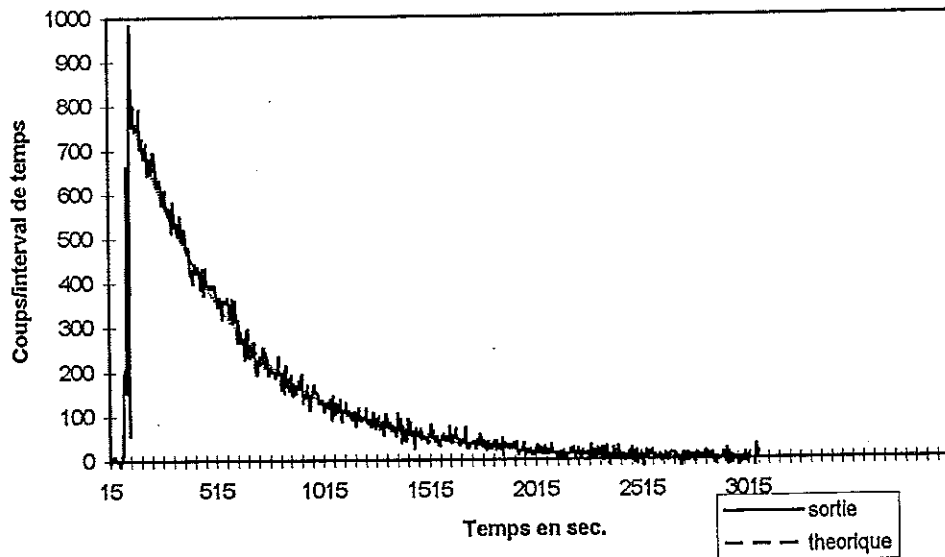
REFERENCES

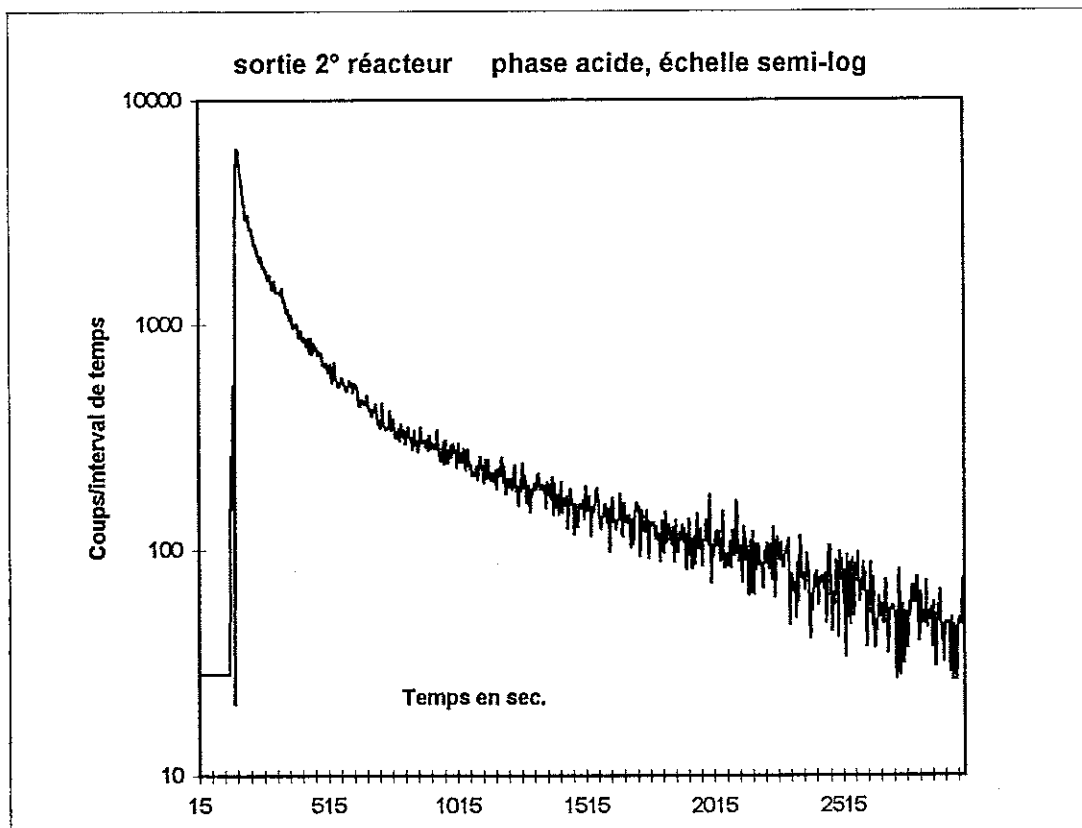
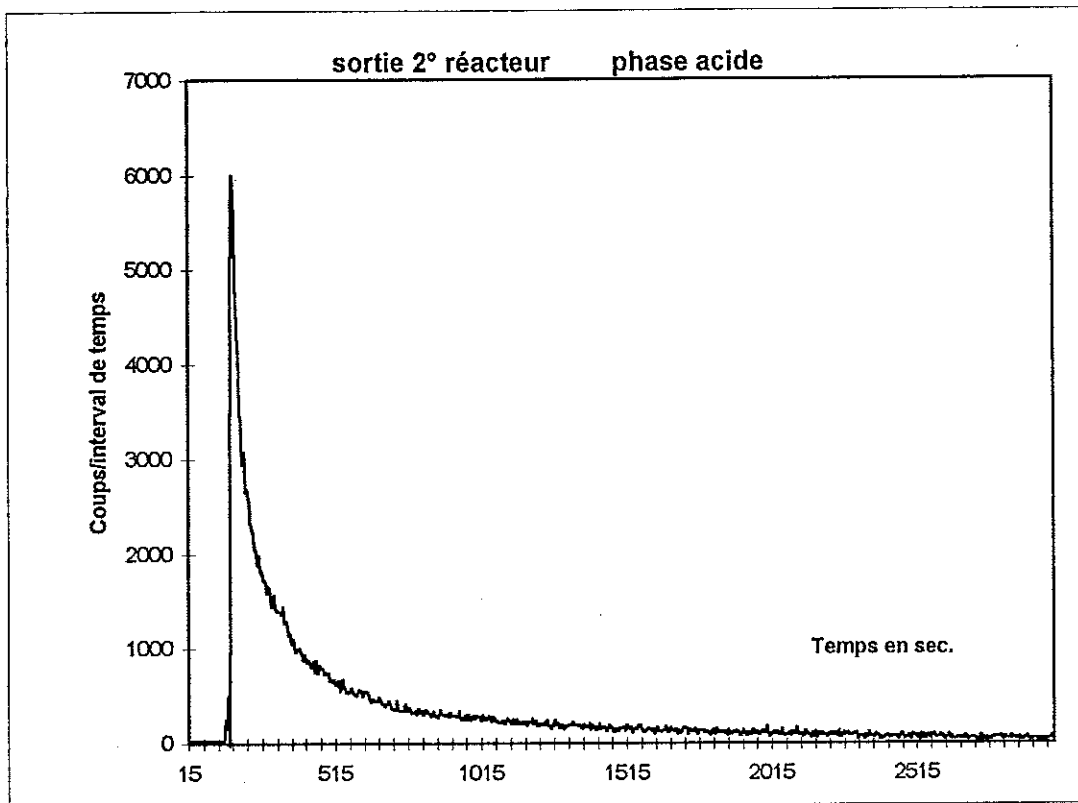
(1) Villermaux J. , Génie de la réaction chimique (ENSIC). Ed: TEC&DOC LAVOISIER, 1993.

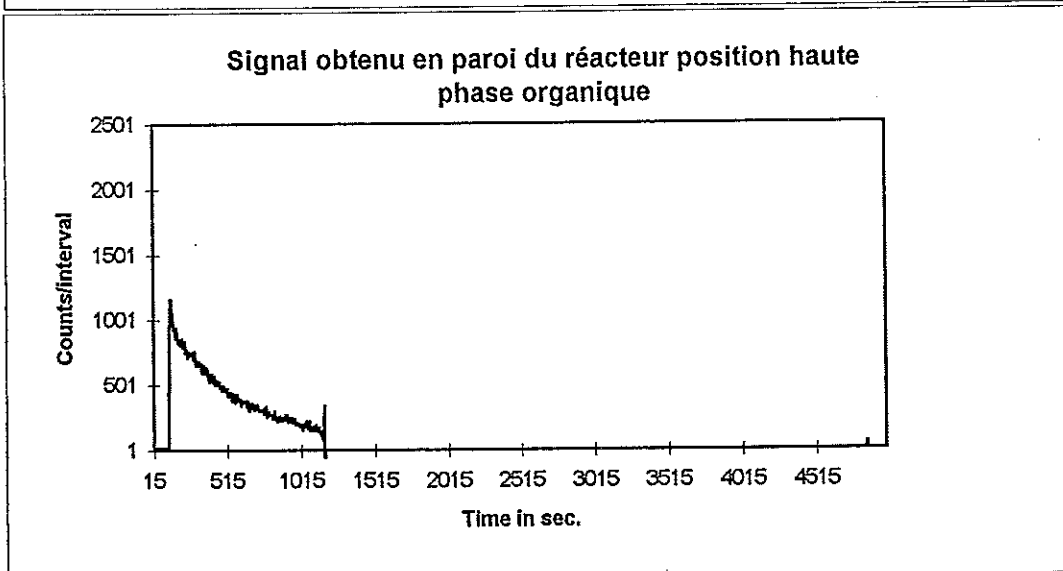
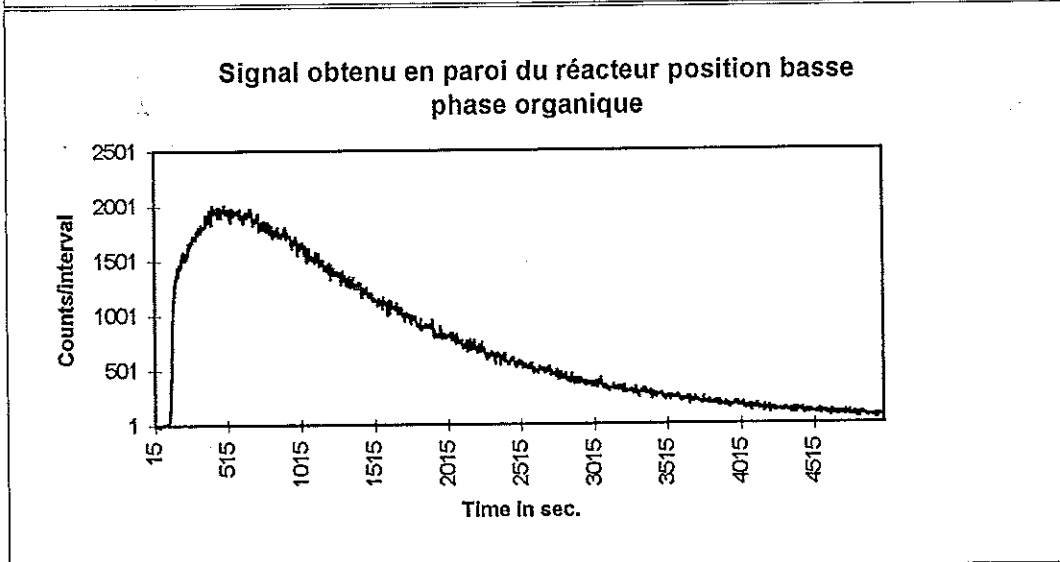
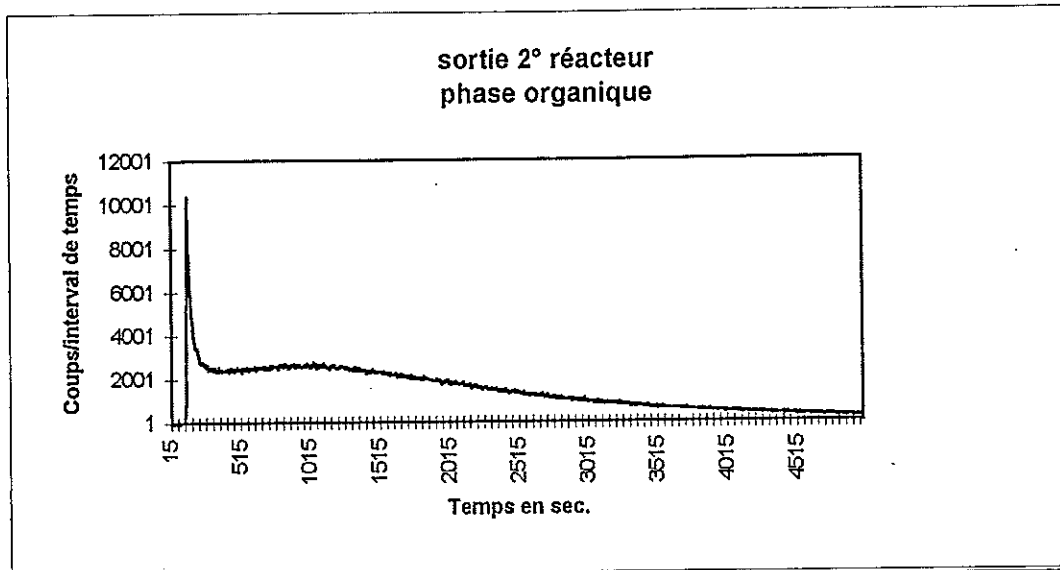
Sortie du 1^o réacteur superposée au modèle "parfait mélangeur"
phase organique



Sortie du 1^o réacteur superposée au modèle "parfait mélangeur"
phase acide







INTERET DE LA TECHNIQUE DE TRACAGE EN REACTEUR FERME AU LIQUIDE POUR CARACTERISER L'HYDRODYNAMIQUE DES CONTACTEURS POLYPHASIQUES GAZ-LIQUIDE-SOLIDE

G. HEBRARD, M. ROUSTAN, D. BASTOUL

<> INSA - LIPE - DGPI
avenue de Ranguell
31077 TOULOUSE Cedex 4

Résumé

Le coefficient de dispersion axiale de la phase liquide E_{z1} a été déterminé en réacteur fermé au liquide, sur différents contacteurs polyphasiques G/L et G/L/S de type colonne à bulles, lit turbulé et lit turbulé inversé. Pour les contacteurs de type G/L, le distributeur de gaz conditionne le régime d'écoulement du gaz et par conséquent le mélange axial de la phase liquide. Une abaque faisant intervenir les nombres de Peclet et de Froude a été proposée permettant de caractériser le régime d'écoulement du gaz : homogène (parfait, imparfait) ou hétérogène. Un nombre sans dimension, appelé nombre de dispersion N_D , défini par le rapport $Pe/Fr^{1/3}$, permet d'identifier les différents régimes d'écoulement. Dans le cas des réacteurs G/L/S de type lit turbulé et lit turbulé inversé, le coefficient de dispersion axiale de la phase liquide est essentiellement conditionné par la présence de solide, le distributeur de gaz ne jouant qu'un rôle secondaire.

INTRODUCTION

L'intensité du mélange axial de la phase liquide dans les systèmes diphasiques et triphasiques dépend essentiellement de la rétention de gaz et de solide ainsi que du distributeur de gaz. Elle est caractérisée généralement par le coefficient de dispersion axiale liquide $E_{z1}(m^2/s)$. Deckwer et coll (1), Baird and Rice (2), Joshi (3), Rice et coll (4) et Kawase et Moo-Young (5) ont mesuré des coefficients de dispersion axiale du liquide en colonne à bulles G/L. Tous leurs résultats indiquent que E_{z1} dépend fortement de la vitesse superficielle du gaz et du diamètre de colonne. Cependant la prise en considération du distributeur de gaz n'apparaît pas. Au niveau des réacteurs polyphasiques de type G/L/S beaucoup d'auteurs ont estimé les valeurs de E_{z1} sur des lits fluidisés triphasiques, mais peu d'auteurs se sont intéressés aux lits fluidisés utilisant des particules de gros diamètre (3 à 5 mm) et ayant des masses volumiques proches de celle de l'eau (900 à 1100 kg/m³).

Aussi l'objectif de ce travail est de :

- proposer pour les système G/L une abaque liant les nombres de Peclet et de Froude afin de prédire, à partir de la mesure du coefficient de dispersion axiale liquide E_{z1} , la nature du régime d'écoulement du gaz.
- caractériser le mélange axial de la phase liquide au sein de deux réacteurs polyphasiques de type lit turbulé et lit turbulé inversé et évaluer l'effet de la masse de solide introduite et du distributeur de gaz sur les valeurs de E_{z1} .
- étendre l'utilisation de l'abaque proposée en G/L au système G/L/S.

MATERIEL ET METHODE

Les expériences en diphasique G/L et triphasique G/L/S (lit turbulé, lit turbulé inversé) ont été conduites sur deux colonnes en PVC transparent de 0,2 et 0,385 m de diamètre interne respectif et 4 m de hauteur. Trois types de distributeur de gaz ont été utilisés : une plaque percée en PVC et deux membranes souples en caoutchouc. Les caractéristiques de ces distributeurs de gaz sont présentées dans le tableau 1. La figure 1 présente l'installation expérimentale.

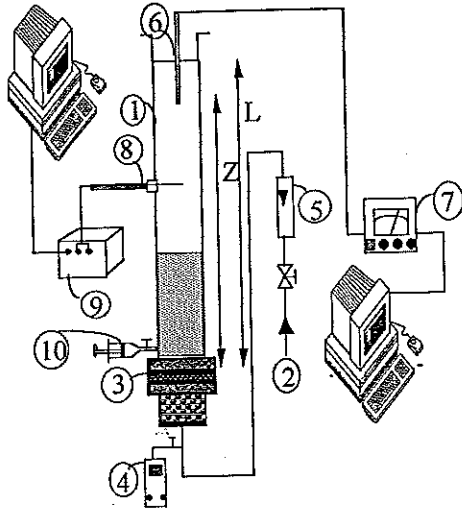


Figure 1: installation expérimentale

1.Colonne; 2.Gaz; 3.Distributeur; 4. Manomètre; 5.Rotamètre; 6.Sonde conductimétrique; 7.Conductimètre; 8.Fibre optique; 9. Optoflow; 10.Injection du traceur; 11. particules solides.

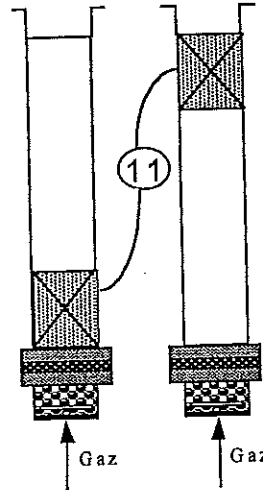


Figure 2: Turbulé Figure 3: Inversé

Les figures 2 et 3 schématisent le principe du lit turbulé et du lit turbulé inversé décrit respectivement par BECK (6) et COMTE (7).

Tableau 1

Distributeur de gaz	Taille de la maille carrée (mm)	Diamètre des orifices (mm)	Nombre de trous par cm ²	Epaisseur (mm)
Plaque Percée	5	2,5	4	20
Membrane 1	5	0,5 initial	4	2,5
Membrane 2	2,5	0,5 initial	16	2

En réacteur G/L/S, la phase solide est constituée de particules quasiment sphériques en polyéthylène ou polystyrène dont les principales caractéristiques sont précisées dans le tableau 2.

Tableau 2

Solide	Dp (mm)	ps (kg/m ³)	Composition
PS1	4	1028	Polystyrène
P1	3,76	934	Polyéthylène

Un nombre sans dimension appelé nombre de masse, noté MA, est utilisé pour rendre compte des différentes quantités de solide introduit dans les colonnes :

$$MA = \frac{m_p}{\rho_s \cdot D_c^3}$$

m_p : masse de solide (kg), ρ_s : masse volumique du solide (kg/m³),
 D_c : diamètre de colonne (m)

Le mélange global de la phase liquide est décrit par le modèle piston diffusionnel dont le paramètre caractéristique est le coefficient de dispersion axiale. La détermination de E_{zl} à débit de liquide nul se fait directement par la méthode de traçage qui consiste à injecter un traceur sous forme d'impulsion de DIRAC à la base de la colonne et à suivre ensuite sa concentration en continu à une certaine distance du point d'injection. Le processus de propagation est alors décrit par l'équation suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = E_{zl} \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2}$$

La solution de cette équation, avec les conditions aux limites proposées par Inoue (8), peut s'exprimer par l'équation ci-dessous :

$$y = \frac{C(t, x)}{C_0} = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \left[(\cos n\pi x) \exp \left(-\frac{n^2 \pi^2}{L^2} E_{zl} t \right) \right]$$

$C(t, x)$: concentration à l'instant t et à la côte x
 C_0 : concentration moyenne en traceur
 $x = Z/L$ altitude relative

L : longueur de dispersion
 E_{zl} : coefficient de dispersion axiale
 t : temps écoulé depuis l'injection

Cette équation donne l'évolution au cours du temps de la concentration relative en traceur y à l'altitude relative x .

Le schéma de principe du dispositif expérimental est présenté sur la figure 1. La méthode de traçage consiste à injecter une solution de chlorure de sodium (NaCl , 250 g.l^{-1}) à la base de la colonne et à suivre l'évolution de la concentration en une position donnée. Le suivi de la concentration en traceur s'effectue à l'aide d'une sonde conductimétrique de type Tacussel XE 100, et d'un conductimètre analogique dont la sortie tension est reliée à un ordinateur. E_{zl} est calculé par un programme qui minimise l'écart entre les valeurs expérimentales et théoriques de y . Pour chaque condition opératoire la valeur de E_{zl} est la moyenne de trois mesures.

RESULTATS ET DISCUSSION

Système diphasique G/L

Sur les bases de résultats précédents, Hébrard et coll. (9) proposent une abaque pour le système G/L, permettant de déterminer les conditions de régime d'écoulement du gaz dans le réacteur à partir de la mesure du coefficient de dispersion axiale (figure 4).

Ainsi pour une valeur de E_{zl} correspondant à une condition opératoire donnée, il est possible de déterminer les nombres de Peclet et Froude définis par :

$$Pe = \frac{U_G \cdot D_c}{E_{zl}} \quad Fr = \frac{U_G^2}{g \cdot D_c} \quad N_D = \frac{Pe}{Fr^{1/3}}$$

U_G (m/s) : débit de gaz par unité de section droite de colonne

g (m/s^2) : accélération de la pesanteur

D_c (m) : diamètre de colonne

Les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ calculées pour chaque condition opératoires ont ensuite été associées sur l'abaque à un régime d'écoulement du gaz.

Trois intervalles de variation du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ ont ainsi été définis sur le diagramme et associés (tableau 3) aux trois types de régime d'écoulement du gaz : homogène parfait, homogène imparfait et hétérogène.

Tableau 3 : Valeurs du nombre de dispersion N_D en fonction du régime d'écoulement.

$Pe/Fr^{1/3}$	Régime d'écoulement	Distributeur de gaz
2,5 à 5	Hétérogène	Plaque percée, Membrane
5 à 10	Homogène imparfait	Plaque percée, Membrane
Supérieur à 10	Homogène parfait	Membrane

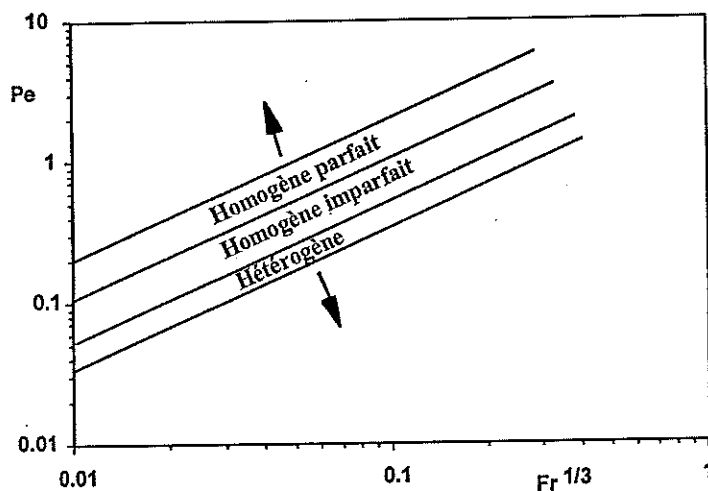


Figure 4: Abaque $Pe=f(Fr^{1/3})$ pour le système G/L

Cette abaque a été testée avec les résultats rencontrés dans la littérature. Deckwer et coll (1) propose une expression de Ez_l fonction de la vitesse superficielle du gaz et du diamètre de colonne, établie pour un distributeur de gaz de type plaque percée :

$$Ez_l = 0,678.D_c^{1,4}.U_g^{0,3}$$

Les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ obtenues à partir de cette relation pour des valeurs de U_g variant jusqu'à 10 cm/s sont comprises entre 3 et 3,5. Elles sont caractéristiques sur l'abaque d'un régime hétérogène spécifique aux plaques percées.

Rice et coll (4) ont déterminé les valeurs de Ez_l dans des colonnes à bulles de différents diamètres (5, 10, 15 et 30 cm) équipées de distributeurs plaque percée ou membrane. Les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$, calculées à partir de leurs données, varient de 4,5 à 6 pour la plaque percée et de 5 à 11 pour le distributeur membrane. Ces résultats sont en accord avec les nôtres, ils montrent que seul le distributeur membrane permet d'accéder à des valeurs de $Pe/Fr^{1/3}$ proche de 10, caractéristiques d'un régime d'écoulement du gaz de type homogène parfait à faible mélange axial de la phase liquide.

Système triphasique G/L/S

Le coefficient de dispersion axiale du liquide Ez_l a été déterminé dans deux réacteurs de type G/L/S : un lit turbulé et un lit turbulé inversé. Les coefficients de dispersion axiale de la phase liquide ont été déterminés pour différentes valeurs du nombre de masse MA et pour des vitesses de gaz supérieures à la vitesse de gaz critique nécessaire à la mise en mouvement de tout le matériau.

Lit turbulent

Dans ce réacteur, le matériau utilisé possède une masse volumique légèrement supérieure à celle de l'eau. Il est mis en mouvement dans la colonne par la seule contribution d'un débit de gaz. Sur la figure 5 sont reportées les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ obtenues en lit turbulent, pour deux types de distributeurs et plusieurs nombres de masse MA.

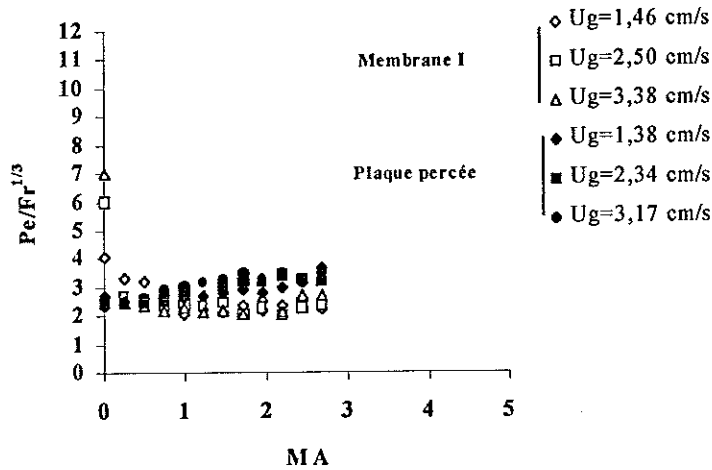


Figure 5: Evolution du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ en fonction du nombre de masse pour le lit turbulent équipé d'une membrane ou d'une plaque percée.

Par analogie avec l'abaque définie pour le système G/L, la figure 5 montre que quel que soit le distributeur de gaz et le nombre de masse utilisé, les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ sont proches de 3 et donc caractéristiques d'un régime d'écoulement du gaz hétérogène. De plus, pour le lit turbulent, l'effet du distributeur de gaz sur les valeurs de mélange axial de la phase liquide est négligeable. En effet beaucoup de particules restent en fond de colonne, près du distributeur et bien qu'en mouvement, elles jouent le rôle d'un distributeur de gaz supplémentaire de type plaque percée conduisant à la création d'un régime d'écoulement de type hétérogène.

Lit turbulent inversé

Le matériau utilisé dans ce réacteur possède une masse volumique légèrement inférieure à celle de l'eau. Il est mis en mouvement dans la colonne par la seule contribution d'un débit de gaz. Sur la figure 6 sont reportées les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ obtenues en lit turbulent inversé pour deux types de distributeur et plusieurs nombres de masse MA.

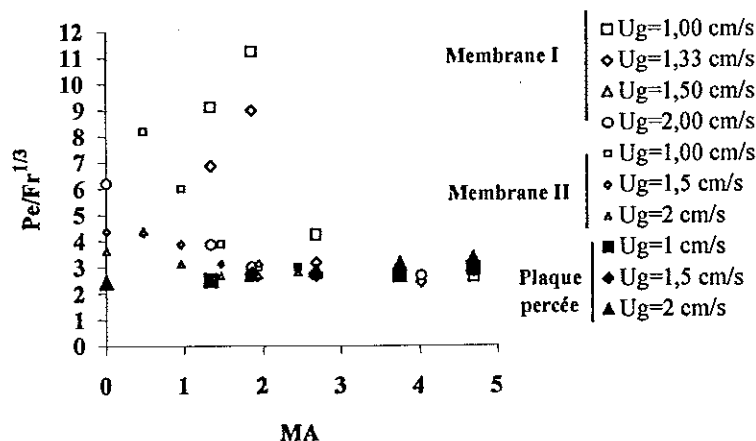


Figure 6: Evolution du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ en fonction du nombre de masse pour le lit turbulent inversé équipé de membranes ou d'une plaque percée.

Par analogie avec l'abaque définie pour le système G/L, la figure 6 montre que les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ sont comprises entre deux intervalles. Un premier intervalle correspondant à des valeurs de $Pe/Fr^{1/3}$ variant entre 2,5 et 5, caractéristiques en système G/L d'un régime d'écoulement hétérogène associé à un fort mélange liquide. Un deuxième intervalle où les valeurs de $Pe/Fr^{1/3}$ varient de 5 à 11; elles sont caractéristiques en G/L d'un régime d'écoulement homogène (parfait ou imparfait), associé à un faible mélange de la phase liquide. Seuls les points expérimentaux obtenus avec le distributeur membrane se trouvent dans ce deuxième intervalle.

Pour des valeurs du nombre de masse $MA < 3$, les valeurs du rapport $Pe/Fr^{1/3}$ avec la membrane sont supérieures à celles obtenues avec la plaque percée. Le rapport $Pe/Fr^{1/3}$ dépend donc du distributeur de gaz. Pour des valeurs de $MA > 3$ le rapport $Pe/Fr^{1/3}$ est constant et égal à 3, ceci quel que soit le distributeur de gaz utilisé. Au delà d'une certaine valeur du nombre de masse, le distributeur de gaz n'a aucun effet sur Ezi.

CONCLUSION

Grâce à la méthode de traçage, utilisée en réacteur fermé de type G/L ou G/L/S, une abaque a été proposée faisant intervenir les nombres de Peclet et de Froude. Elle permet d'identifier, en réacteur polyphasique, les différents régimes d'écoulement du gaz à partir du nombre de dispersion N_D défini par le rapport $Pe/Fr^{1/3}$.

REFERENCES

- (1) Deckwer, W.D., Burchart, R. and Zoll, G., 1974, Chem Eng Sci, 29: 2177.
- (2) Baird M.H.I and Rice R.G, Axial dispersion in large unbaffled columns, Chem.Eng.J., 9, (1975), p171-174.
- (3) Joshi, J.B., 1980, Axial mixing in multiphase contactors : a unified correlation, Trans IChemE, 58: 155-165.
- (4) Rice, R.G., Tupperainen, J.M.I and Hedge, R.M., 1981, Dispersion and holdup in bubble columns comparison of rigid and flexible spargers, Can J Chem Eng, 59: 677-687.
- (5) Kawase, Y and Moo-Young, Mathematical models for design of bioreactors : applications of Kolmogoroff's theory of isotropic turbulence, Chem.Eng.J., 43, 1990, B19-B41.
- (6) Beck, C. Thèse "Etude de la mise en suspension par bullage de particules synthétiques de faible densité dans un réacteur triphasique : le lit turbulé" INSA Toulouse 1994. n°299.
- (7) Comte Gautron, M.P. Thèse "Etude d'un nouveau réacteur triphasique : le lit turbulé inversé" INSA Toulouse 1998. N°454.
- (8) Inoue, H and Ohki, Y., 1970, Chem Eng Sci, 25:1.
- (9) Hébrard, G, Bastoul, D and Roustan, M, Influence of the gas sparger on the hydrodynamic behaviour of bubble columns, Trans IChemE, Vol74, Part A, April 1996, 406-414.
- (10) Kato, Y, Morooka, S, Koyama, M, Kago, T and Yang, S., Longitudinal dispersion coefficient of liquid in three-phase fluidized bed for gas-liquid-solid systems., Journal of Chemical Engineering of Japan, vol.18, No.4, p313-318, 1985.

TRACER APPLICATION IN DEHYDRATION AND CALCINATION IN INDUSTRIAL PRODUCTION OF PIGMENTS

J. THYN, T. CECHAK, R. ZITNY

<> Czech Technical University
Tchecoslovaquie - PRAGUE

Abstract:

Processes of dehydration and calcination in production of pigments have been analysed by radiotracer (Na^{24}) and by multiple detector system. New models, describing RTD of furnaces are suggested. Special attention is paid to the influence of fractional distribution of processed particles on RTD and to the effect of disintegration on Rosin Rammler distribution. RTD software (1) is used for identification of residence times and fractional distributions.

I. PROCESS DESCRIPTION

The both processes - dehydration and calcination take place in rotational horizontal furnaces (length cca 30 m, drum diameter 3 m), heated by flue gases in cocurrent or counter-current flow arrangement of streams, see Fig.1. Particles of monohydrate covered by green vitriol $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ enter the dehydration furnace, where excessive water is released. Optimal recirculation is necessary for good quality of product. Problems encountered at higher recirculation ratios concern disintegration, worsening fractional distribution of particulate material. As the fine part cannot be successfully processed in the calcination furnace, it must be separated, and recirculated or wasted. Thus the relationship between fractional distribution and the residence time distribution of the processed particular solid phase in furnaces, screw blender as well in a drum separator is of a primary importance.

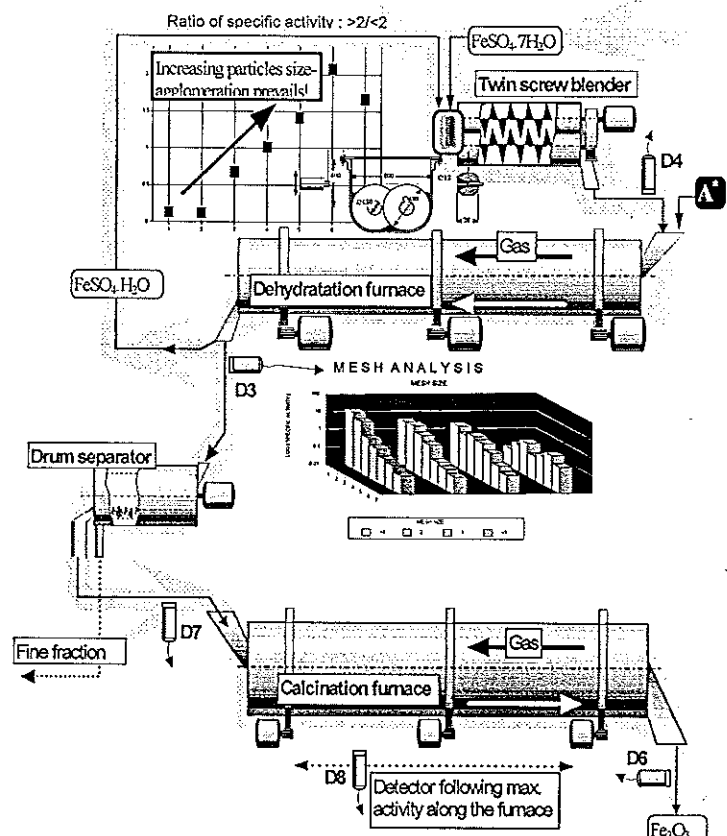


Fig.1 Production of pigments - measurement set-up

the residence time distribution of the processed particular solid phase in furnaces, screw blender as well in a drum separator is of a primary importance.

II. THEORETICAL MODELS OF FURNACES

II.1. RTD model of a drum furnace

A typical drum furnace, shown in Fig.2, is characterised by residence time, which depends on characteristic dimension d of processed material, usually the Sauter diameter of particle. This relationship can be described by the following Friedman, Marshall formula (2) either for counter-current gas-solid flow

$$\leftarrow t = L \left(\frac{0.23}{tg\alpha N^{0.9} D} + \frac{3\dot{M}_G}{\sqrt{d}\dot{M}_S} \right) = L \left(k_1 + \frac{k_2}{\sqrt{d}} \right) \quad (1a)$$

or for co-current flow

$$\rightarrow t = L \left(\frac{0.23}{tg\alpha N^{0.9} D} - \frac{3\dot{M}_G}{\sqrt{d}\dot{M}_S} \right) = L \left(k_1 - \frac{k_2}{\sqrt{d}} \right) \quad (1b)$$

The first term describes velocity of particular phase induced by rotation of inclined drum, while the second term represents transport by a carrying medium - by the flue gas stream. The coefficients k_1 , k_2 depend on diameter, D , and angle α of the inclined drum, rotational speed N , and the relative mass flowrate of gaseous/solid phase, but they are independent of particle diameter, d . It is obvious that for monodisperse material the time t in Eqs.(1) is the mean residence time and that the flow inside the drum could be approximated by plug flow.

However, incoming stream is usually polydisperse mixture of particles characterised by a fractional distribution $f(d)$. It is a common practice to use the Rosin Rammler distribution, which can be expressed in the form

$$f(d) = \frac{nd^{n-1}}{d_m^n} \exp\left[-\left(\frac{d}{d_m}\right)^n\right] \quad (2)$$

determined by the two parameters: d_m is the diameter of a mean fraction (simple mean diameter of fractional distribution), and exponent n characterises a spread of the RR fractional distribution.

Assuming that particles of different diameters distributed according to Eq.(2) move independently through the furnace with the velocities determined by Eq.(1), i.e. in a parallel flow, it is possible to derive the impulse response (residence time distribution and mean residence time) of the whole furnace in an analytical form.

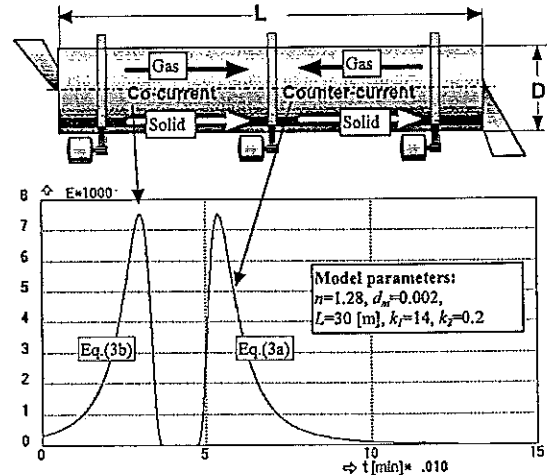


Fig.2 RTD of drum furnaces

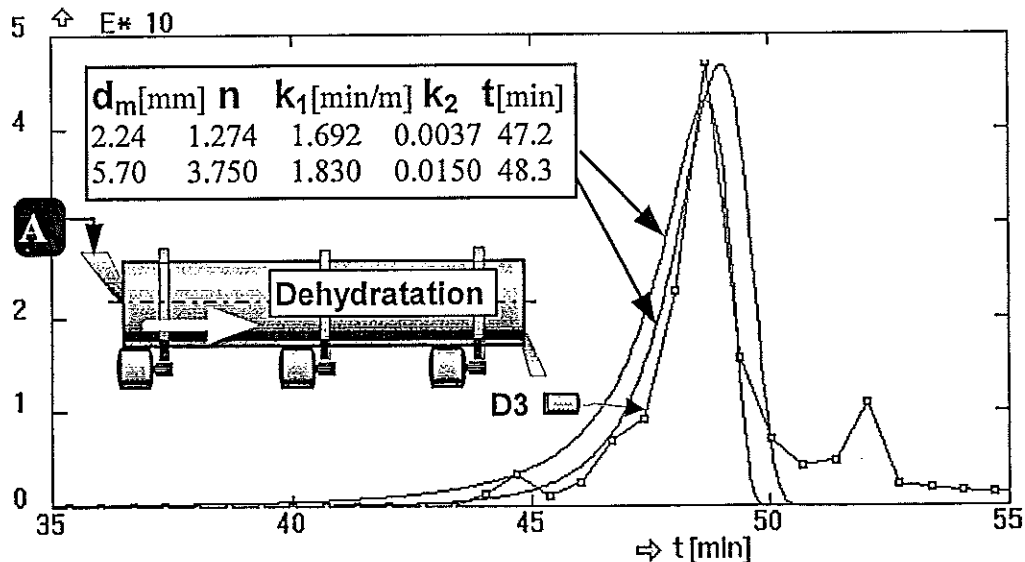


Fig.3 Dehydration furnace. RTD model (7b)+Experiment (first pass of tracer)

Experimental procedure has to begin with the sieve analysis of particular material flowing through a furnace, giving Rosin Rammler parameters d_m and n . The residence time distribution $E(t)$ is identified in the second part of experiment by stimulus-response technique using suitable tracer. Even then the two unknown coefficients k_1 and k_2 can be evaluated by comparison of mean residence times, and the variance of impulse responses, according to suggested model, see Fig.3.

The coefficients k_1, k_2 determined experimentally at certain operating conditions can be used for an estimates of the mean residence time at a slightly changed rotational speed N , diameter of drum, relative mass flowrate of gas or mean diameter of solid particles using Eqs.(1). It is sufficient to replace numerical constants (0.23, 3) in Eqs.(1) by the more relevant constants, recalculated from k_1, k_2 for the specific furnace.

An example is shown in Fig.4, where D_0, N_0, d_{m0} correspond to operating conditions, for which $k_1=2.215, k_2=0.0416, d_m=0.0057$ and $n=3.75$ were identified.

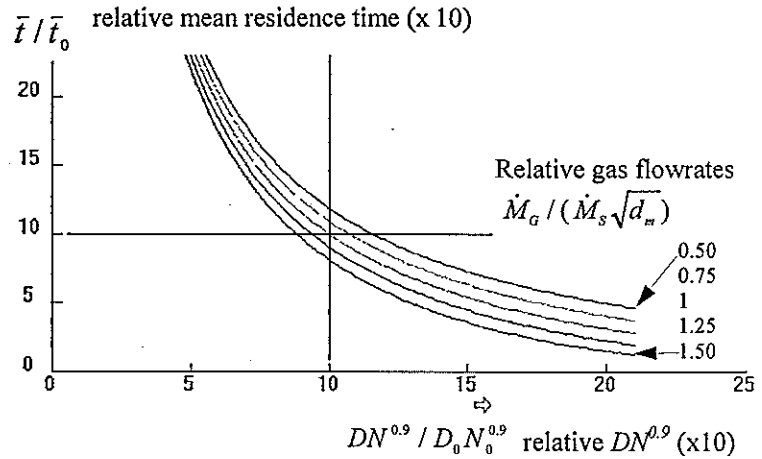


Fig.4 Mean residence time-operational parameters

II.2. Disintegration or agglomeration process in a drum furnace

High temperatures in dehydration furnace cause vigorous release of water steam, and contribute to a partial disintegration of particles. Similar behaviour can be expected in calcination, where particles are split by gas, which is released during chemical reaction. Besides this the disintegration of particles can be result of mutual abrasion or impacts to the inner wall of furnaces.

Disintegration as well as agglomeration process can be idealised in the following way: Polydisperse mixture is composed of spherical particles (characterised by diameter d), that are transformed either by splitting or by joining, giving rise to new particles with different but the same diameter, $^3\sqrt{2} d$ for agglomeration, or $d/^3\sqrt{2}$ for disintegration.

Rate of disintegration depends on specific power (i.e. on the level of shear forces or pressures acting in the transported material) and could be described by a kinetic equation of the first order assuming a constant specific power input

$$\frac{1}{m} \frac{\partial m}{\partial t} = -r(d, T, \dots) \quad (3)$$

where m is the mass of monodisperse material (spheres of diameter d). There exist several hypotheses relating initial and final diameter of particle with the amount of energy required for transformation. One of the simplest is the Bond's hypothesis giving

$$r(d) = \frac{P_s}{K_s} \sqrt{d}, \quad (4)$$

where P_s is specific power [W/kg], corresponding either to the purely mechanical interactions, or to the internal pressure of steam released at a particle pores, or to the reaction enthalpy evolved during calcination. K_s is a material parameter, characterising cohesion of particle.

The ratio P_s/K_s is important for technology, as it determines e.g. the level of disintegration of processed material at a certain distance from the inlet to a drum furnace

or to a mill. A possible approach, how to evaluate P_S/K_S is based on using RTD and on the sieve analysis of samples taken from the inlet and from the outlet of the furnace.

To solve the problem a very simple model, shown in Fig.5, was suggested. The

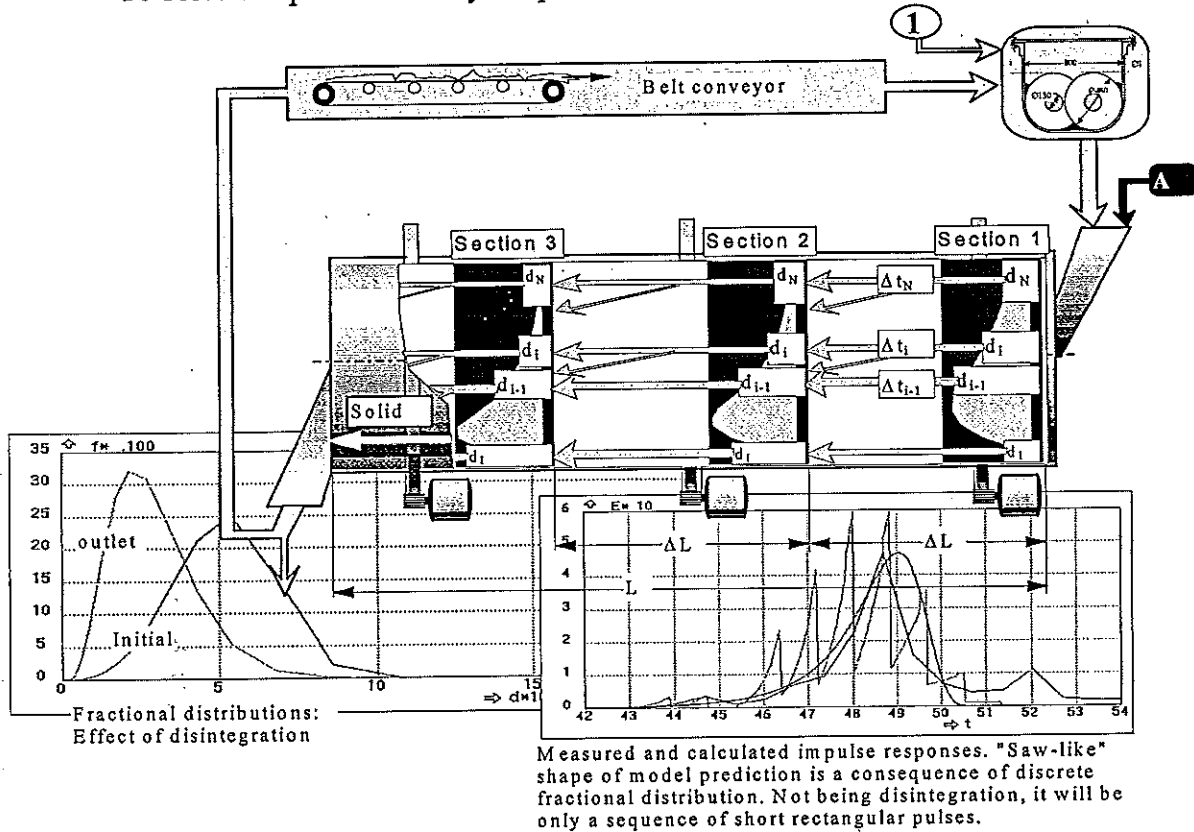
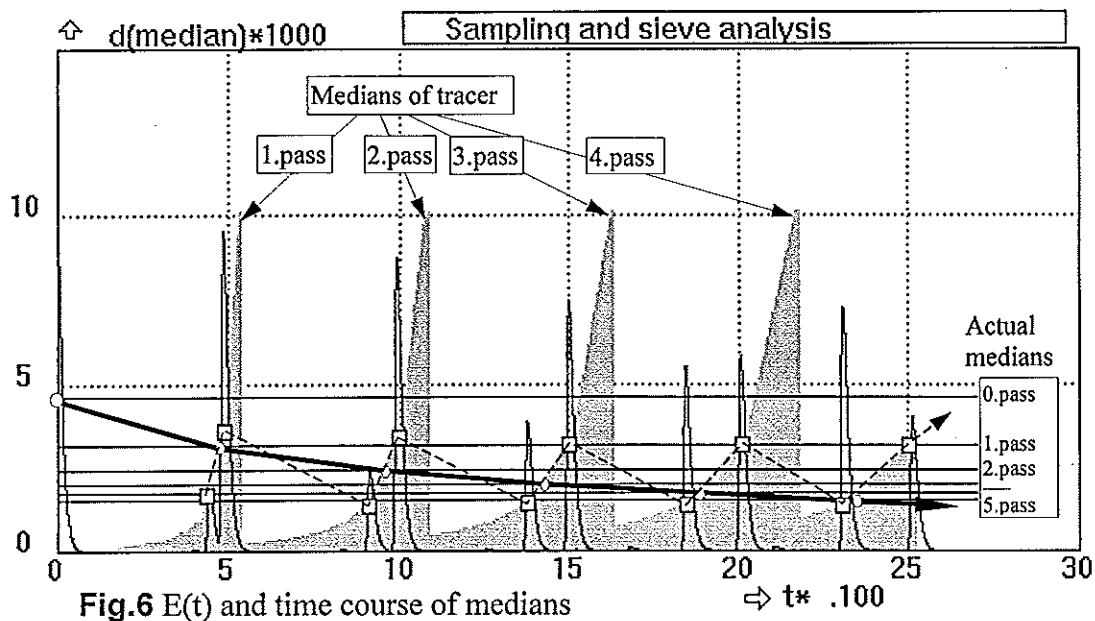


Fig.5 Dehydration line simulation using model of disintegration in furnace

model distinguishes labelled particles (tracer) and remaining material. The furnace is divided into N_L sections of the length ΔL and particles (either tracer or "dummy" material) are sorted into N bins according their size in each section. The "age" distributions of the tracer are recorded in all individual bins. Material transfer between neighbouring sections (along the furnace) is calculated according to Eqs.(1), i.e. only the plug flow is assumed (recorded time distributions of tracer are only sequences of short peaks, corresponding to the instantaneous dosing of tracer into the inlet section). In the case that $P_S > 0$ the process of disintegration is simulated by the transfer of a certain amount of material from the i -th bin (characterised by diameter d_i) to the $i-1$ bin (with smaller diameter d_{i-1}) and this amount is calculated from rate equation (3) for the residence time $\Delta t_i = \Delta L(k_1 \pm k_2 / \sqrt{d_i})$ as

$$\Delta m_i = m_i [1 - \exp(-\Delta t_i \sqrt{d_i} \frac{P_S}{K_S})]. \quad (5)$$

As far as the fractional distribution concerns, the model describes only an approach to the steady state, assuming e.g. the RR fractional distribution at the inlet section of furnace as a first approximation which is improved after 1, 2, ..., pass of material in the recirculation loop (furnace-conveyor-blending). Limiting fractional distributions along the furnace, in the blender, etc., depend only on the composition of fresh material at feed 1 and upon the process parameters, P_S/K_S , recirculation ratio, and others. However, the actual process is not quite steady, and size distributions fluctuate. Therefore many samples for the sieve analysis must be taken from inlet and outlet and even their time averages can be compared with presented model giving the estimate of disintegration parameter P_S/K_S .



Tracer experiment represents different option: Using sieve analysis of *labelled* particles. A problem is in the selection of proper time, when the samples should be taken from the furnace outlet. Fig.6 demonstrates the effect using our model predictions of the impulse response and the time course of characteristic particle diameter (size of tracer). As the characteristic size the median of diameter has been selected. A positive value $P_s/K_s=0.5$ (estimated by sieve analysis without tracer, just comparing statistically evaluated material samples from inlet and outlet of furnace at a steady state operation) indicates, that a disintegration proceeds in the furnace. It does not necessarily means that the disintegration prevails in the whole dehydration line, as the agglomeration in other apparatus, screw blender, can be more intensive. Prevailing trend could be confirmed by the analysis of samples taken at precisely selected times, denoted by circles in Fig.6. Misleading conclusions could be drawn, e.g., using the strategy based upon sampling at $E(t)$ peaks, shown by squares. It seems that *any* procedure, based on comparison of fractional distributions of tracer in individual samples, is questionable. Much more reliable information could be obtained comparing *total amount* of labelled particles in their respective bin before and after the pass through the furnace. It requires time integration of the amount of the i -th material fraction at inlet M_{i0} and at outlet M_{i1} . This integration can be performed using suggested model which represents an interpolation formula, necessary for the time integration.

Direct evaluation of sieve analysis:

A) Using model is a very laborious procedure which can be avoided if a sufficient number of samples is taken from the inlet and outlet during the first pass of tracer. Then the processing of measured data is straightforward, using the approximation of time integrals by sums:

$$\frac{M_{i1}}{M_{i0}} = \frac{\int u_{i1} m_{i1} dt}{\int u_{i0} m_{i0} dt} \approx \frac{\sum_{j=1}^{N_{samples1}} m_{ij1} \Delta t_{j1}}{\sum_{j=1}^{N_{samples0}} m_{ij0} \Delta t_{j0}}, \quad (6)$$

where m_{ij0} , m_{ij1} are *masses* or *specific activities* of labelled material in i -th bin, i.e. on the i -th sieve, j is an index of sample taken from the inlet and outlet, and Δt_{j0} , Δt_{j1} are time intervals between samples. Eq.(6) assumes that the velocity u_i of particles d_i is constant along the furnace.

B) In the case that only the outlet sampling is available, it is also possible to use Eq.(6), this time calculating the ratio of integrals from subsequent passes (for example from the first and second pass). This procedure can be recommended only in the case, that the interference - overlaps - of subsequent passes can be neglected. Note, that in this case the overall effect of the dehydration process, and not only the effect of furnace, is taken into account. This kind of analysis tells us what a process takes place inside the furnace, or in the whole process line: if the ratio M_{i1}/M_{i0} is lower than 1, disintegration prevails and reversibly, M_{i1}/M_{i0} greater than 1 indicates aggregation.

It is possible, at least in principle, to obtain information about processes inside the screw blender, which were not directly measured, combining the both procedures of evaluation, A and B.

C) Continuous sieve analysis of tracer enables also calculation of mean velocities (or residence times) of individual fractions, and these residence times can be confronted with Eq.(1) and used for identification of k_1, k_2 coefficients. The residence time of the i -th fraction can be approximated by the following expression

$$t_i = \frac{\sum_{j=1}^{N_{samples1}} m_{ij1} t_{j1} \Delta t_{j1}}{\sum_{j=1}^{N_{samples1}} m_{ij1} \Delta t_{j1}} - \frac{\sum_{j=1}^{N_{samples0}} m_{ij0} t_{j0} \Delta t_{j0}}{\sum_{j=1}^{N_{samples0}} m_{ij0} \Delta t_{j0}} \quad (7)$$

which holds under the same assumptions as Eq.(6). t_{j0}, t_{j1} are times of sampling.

III. EXPERIMENTS

Impulsive - short - dosing of radiotracer and detection of tracer "concentration" in different localities of the system offer the information on RTD and its numerical characteristic in separate apparatus, quantity of recirculation ratio of material which is returning back from output of the dehydration furnace to the twin screw blender, and as well the evaluation of granulation effect of recirculated particles inside the blender.

Recirculation ratio is evaluated by classical way - e.g. estimation from the integral distribution function is presented in Fig.7

Granulation effect evaluation: Beside the response of tracer concentration the samples should be taken from dehydration furnace in time when the traced particles are going outside of DF. On the basis of sieve analysis of tracer - the ratio over and down the sieve and mean dimension of particles in every recycle should be evaluated. Results are presented in Fig.1 and granulation could be evaluated as $d=f(t)$.

REFERENCES

- (1) Žitný R., Thýn J.: Residence time distribution software analysis. Computer manual series, No.11, IAEA Vienna, (1996)
- (2) Friedman F., Marshall A.: Chem.Eng.Progress, 45, p.482, (1949)

Acknowledgement: This research was done in frame of IAEA research contract 10051.

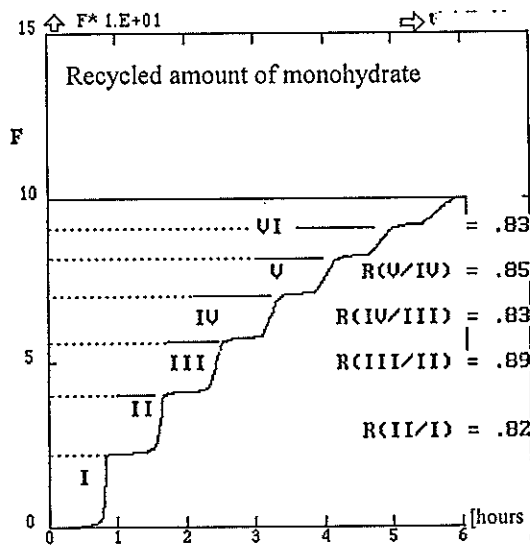


Fig.7 F(t) recirculation ratio

EVALUATION PAR TRACAGES DES DISTRIBUTIONS DES TEMPS DE SEJOUR DE L'EAU DANS DES RESERVOIRS DE CHLORATION D'USINES DE TRAITEMENT DES EAUX

P. BURGHOFFER, O. GERBAUX-FRANCOIS

<> CEA - DAMRI/SAR/SAT
17, rue des Martyrs - 38054 GRENOBLE

O. CHATAIGNER

<> Cie Générale des Eaux
Quartier Valmy - 32, place Ronde
92982 PARIS LA DEFENSE

J. CAVARD

<> Syndicat des Eaux d'Ile de France
14, rue St Benoit - 75006 PARIS

RESUME

Le présent article décrit une interprétation fine des Distributions des Temps de Séjour (D.T.S.) de l'eau entre l'entrée et la sortie d'un réservoir, à partir de résultats d'expériences de traçages. Deux méthodologies différentes d'interprétation sont présentées : une approche conventionnelle et une approche systémique. L'interprétation systémique, plus élaborée, consiste à définir un modèle hydraulique de l'écoulement composé d'un flux principal, de court-circuit et de volume stagnant. Les deux démarches permettent d'interpréter les D.T.S. et donnent des résultats équivalents en terme de paramètres temporels. L'approche systémique fournit des descriptions plus réalistes des écoulements réellement en jeu.

I. OBJECTIFS DE L'ETUDE

L'étude des réservoirs de chloration nécessite une connaissance fiable des temps de séjour de l'eau. La désinfection par le chlore et les cinétiques de formation de sous-produits de chloration sont en effet directement conditionnées par le temps de contact entre le chlore et l'eau. A cette fin, plusieurs traçages de ces bassins ont été réalisés dans les usines de traitement d'eau de Méry-sur-Oise (1) et Neuilly-sur-Marne (2) situées en banlieue parisienne. Ils ont eu pour objectif d'évaluer les Distributions de Temps de Séjour de l'eau (D.T.S.) en différents points de mesures des différents réservoirs. A partir des résultats des expériences de traçages, une interprétation fine des D.T.S. a été réalisée selon deux types d'approches : analyse conventionnelle et analyse systémique. Nous présentons dans cet article les résultats obtenus pour le bassin de Méry sur Oise.

II. DESCRIPTION DES TRACAGES

Le choix des traceurs de l'eau, utilisables en présence de chlore, a fait l'objet d'une pré-étude en laboratoire. Deux traceurs parfaitement utilisables pour marquer l'eau chlorée des réservoirs ont donc été choisis.

Ce sont :

– la fluorescéine, traceur fluorescent mesurable in-situ, permettant d'enregistrer en continu les fonctions de passage de l'eau marquée au droit des points de prélèvements

du réservoir étudié, et ainsi de piloter l'essai. L'interprétation des résultats expérimentaux obtenus avec ce traceur sera plutôt qualitative que quantitative.

– le lithium, sous forme de chlorure de lithium, qui n'est pas détruit par le chlore et qui est le traceur conservatif de référence, permettant de quantifier les concentrations en traceur atteintes en chacun des points de mesures et ainsi de déterminer les caractéristiques temporelles du transfert de l'eau recherchées.

La figure 1 présente de façon simplifiée le circuit hydraulique de l'eau dans le réservoir CD. Après avoir traversé des réservoirs d'ozonation, l'eau est chlorée et pénètre dans le réservoir de chloration CD. Un système de trois vannes (V_1 , V_2 et V_3), placées au delà d'un déversoir permet de régler l'alimentation en eau du réservoir CD. Le débit et le niveau de l'eau peuvent varier d'un essai de traçages à l'autre, mais ont été maintenus constants pour chaque essai.

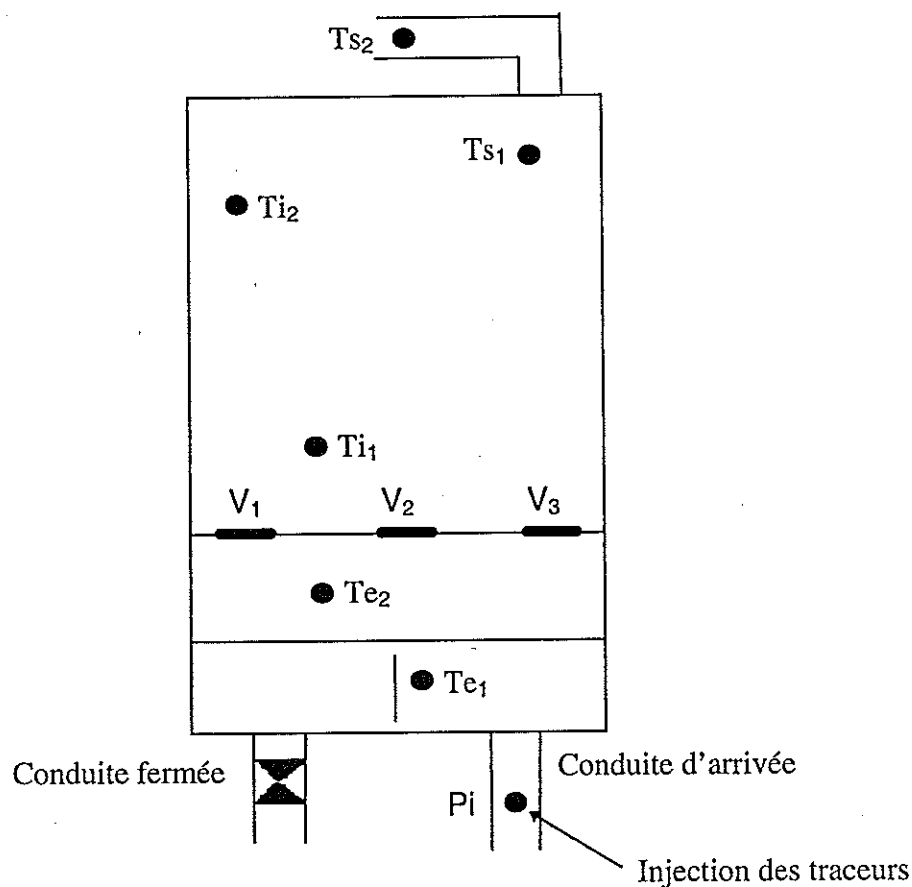


Figure 1 : Schéma du réservoir CD de Méry sur Oise

Le point d'injection des traceurs (P_i) est situé sur la conduite d'arrivée d'eau au droit du réservoir CD.

Les points de mesures des traceurs ont été choisis en fonction des accès existants :

- deux accès à l'entrée de part et d'autre du déversoir (T_{e1} et T_{e2}),
- deux accès intermédiaires (T_{i1} et T_{i2}),
- un accès en sortie du réservoir (T_{s1}).

Un autre point de mesure en sortie a été choisi sur la conduite de sortie après déchloration (T_{s2}).

III. INTERPRETATION DES RESULTATS

Les résultats des traçages ont été analysés suivant deux approches différentes :

⇒ L'approche conventionnelle :

Chaque courbe concentration - temps $C(t)$, obtenue par traçages, a été ajustée, au mieux par la composition de n fonctions de type piston - dispersion.

Elle permet d'obtenir une forme analytique des Distributions des Temps de Séjour

définie par $h(t) = \frac{C(t)}{\int_0^{+\infty} C(t) dt}$ sous la forme :

$$h(t) = \sum_{i=1}^n A_i \frac{U_i}{\sqrt{4\pi D_i t}} \exp\left[-\frac{(L - U_i t)^2}{4 D_i t}\right]$$

avec :

L = distance prise égale à 1m pour l'ajustement des fonctions concentration - temps,

t = temps (s)

les paramètres hydrodispersifs sont définis par :

U = vitesse moyenne (m/s)

D = coefficient de dispersion (m^2/s)

Pour chacune des fonctions de type piston - dispersion, on définit le nombre de Péclet

adimensionnel par $Pe = \frac{U.L}{D}$

⇒ L'approche systémique :

L'approche systémique consiste à proposer des modèles d'écoulement combinant les différents types de réacteur, tout en introduisant des courts-circuits, des reflux, des volumes stagnants, afin d'obtenir une D.T.S représentant le plus fidèlement possible le comportement hydrodynamique du réservoir étudié. Les trois types de réacteurs utilisés sont :

Le réacteur piston (RP)

Le réacteur parfaitement agité (RPA)

Les mélangeurs en cascade (JRPA)

La modélisation de l'approche systémique se fait par l'intermédiaire de logiciel DTS (3), logiciel d'aide à la construction de modèles d'écoulement à partir de la méthode des Distributions de Temps de Séjour. La détermination de la fonction de transfert est effectuée en résolvant les bilans de matière dans l'espace de Laplace. Ce logiciel peut donner la réponse à un signal d'entrée quelconque et plusieurs paramètres du modèle peuvent être optimisés.

Afin de schématiser l'existence des différents types d'écoulement constatés lors de l'analyse des D.T.S. par traçage du bassin de Méry sur Oise, le modèle proposé pour simuler les D.T.S. par approche systémique est celui présenté sur la figure 2. Le schéma présente l'agencement de 3 branches d'écoulement en parallèle sur lesquelles sont disposés des mélangeurs en cascade. La branche supérieure simule l'écoulement de type court-circuit. La branche inférieure simule l'écoulement de type recyclage, ayant lieu

sur la branche du milieu représentant l'écoulement principal. Un réacteur piston est placé à l'amont de ce système de branches pour prendre en compte le retard temporel. Les inconnues d'un tel système sont au nombre de 9 :

- pour chacune des 3 branches parallèles le nombre de RPA en cascade (J_2, J_3, J_4) et le temps de passage globale de la cascade (t_2, t_3, t_4),
- pour la branche principale d'écoulement le temps de retard t_1 ,
- pour la branche du court-circuit, la fraction de débit passant par cette branche $a Q$,
- pour la branche de reflux, la fraction de débit recyclé $b(1-a) Q$.

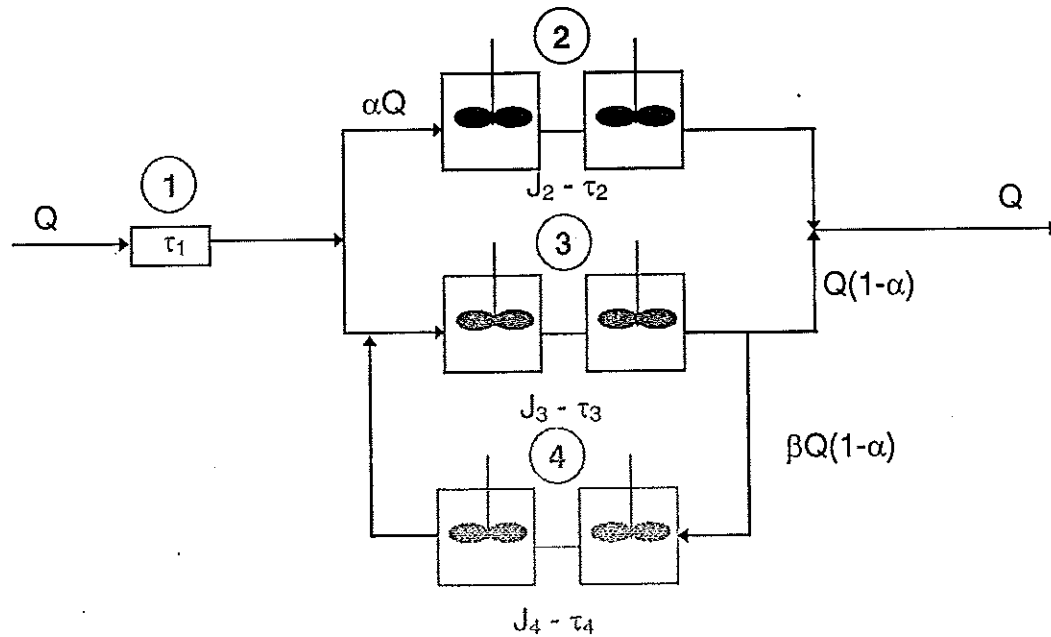


Figure 2 : Schéma représentatif du comportement du réservoir de Méry sur Oise pour le logiciel DTS

La simulation consiste à définir et optimiser les valeurs des 9 inconnues de telle sorte que le signal d'entrée imposé égal à la fonction d'entrée établie par traçage au point d'entrée Te2, le signal de sortie, résultant de la simulation, corresponde au mieux à celui obtenu expérimentalement au point de sortie Ts1, sachant qu'il n'y a pas une solution unique à ce problème d'optimisation.

Le logiciel DTS utilisé permet l'optimisation au maximum de 6 inconnues, qui sont le temps de passage dans les cascades ou le temps de retard dans le piston et le nombre de mélangeurs parfaits en cascade. Pour ces simulations le débit Q est pris égal à l'unité, afin de définir directement les valeurs de a et b . Le type de schéma proposé implique donc la détermination à priori des fractions de débit ainsi que les inconnues, $t_1, t_2, J_2, t_3, J_3, t_4, J_4$.

Certaines des inconnues ont pu être évaluées à priori par l'analyse de la décomposition du signal de sortie $h_{Ts1}(t)$ en la somme de 4 fonctions de type piston - dispersion (approche conventionnelle). Pour cela les temps moyens de chacune de ces fonctions ont été calculés :

fonction	U (m/s)	D (m ² /s)	Pe	t moy (mn)	$1 - \left(\frac{T}{t_{moy}}\right)$	$1 - \left(\frac{t_{moy}}{T}\right)$
1	1.72e-04	4.78e-05	4	151	0.19	-
2	1.53e-04	1.92e-06	80	112	-	0.009
3	4.92 e-04	1.51e-05	33	36	-	0.71
4	6.32e-04	5.34e-06	118	27	-	0.78

La dernière fonction caractérisée par des courts temps de séjour et un grand nombre de Péclet semble correspondre au court-circuit. Le débit du reflux a pu être évalué par approximation successive à partir de la valeur de $1 - \left(\frac{t_{moy}}{T}\right)$ de la dernière fonction

piston-dispersion, soit b de l'ordre de 0.78.

De même, la première fonction caractérisée par des longs temps de séjour et un petit nombre de Péclet semble correspondre aux zones stagnantes. Le débit du court-circuit a pu être évalué par approximation successive à partir de la valeur de $1 - \left(\frac{T}{t_{moy}}\right)$ de cette

première fonction piston-dispersion, soit de l'ordre de 0.19.

Les résultats des simulations avec le logiciel DTS sont tels que le modèle systémique correspondant au mieux aux résultats expérimentaux entre les points Te1 et Ts1 a les caractéristiques suivantes :

a	b	t ₁	t ₂	J ₂	t ₃	J ₃	t ₄	J ₄
0.10	0.78	9.06	92.73	25	16.67	5	54.12	2

La figure 3 présente la D.T.S. de ce modèle systémique pour une entrée correspondant à un Dirac ainsi que le résultat de la simulation lorsque l'entrée est le signal obtenu en Te2 par traçage. Pour comparaison le signal en Ts1 est également représenté.

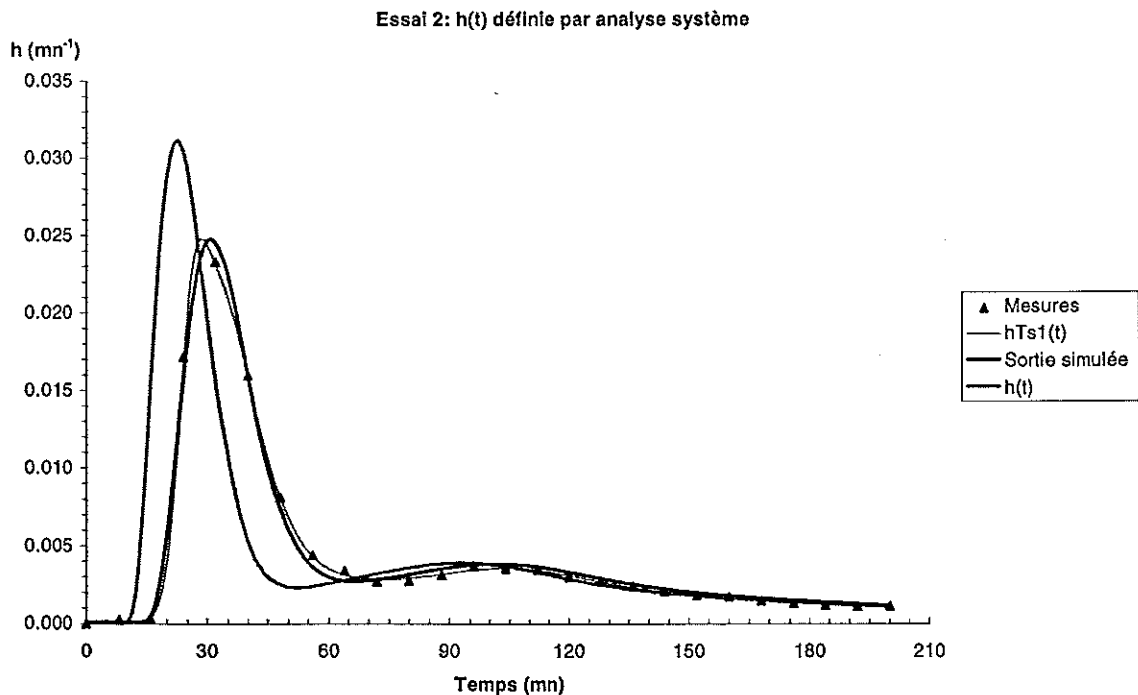


figure 3 : Résultat de l'analyse systémique pour l'essai 2

Les caractéristiques temporelles de la D.T.S obtenue par déconvolution et par analyse systémique sont les suivantes :

h (t)	t _a (mn)	t ₁₀ (mn)	t ₉₀ (mn)	t _r (mn)	t _{modal} (mn)	t _{moy} (mn)	T (mn)	h _{max} (mn ⁻¹)
déconvolution	12	20	211	911	21	89	899	0.037
analyse systémique	12	19	197	605	22	83	593	0.031

IV. CONCLUSION

Les traçages des ouvrages de chloration sont des moyens efficaces d'accéder à la distribution des temps de séjour de l'eau. Deux méthodes complémentaires d'interprétation des traçages ont été présentées. Une première approche dite conventionnelle permet d'assimiler l'écoulement à une superposition de fonctions piston-dipersion. Il est alors possible d'obtenir les paramètres temporels de l'écoulement. La seconde approche, plus élaborée, consiste à définir un modèle hydraulique représentatif de l'écoulement. Il est alors possible de reproduire les différents types d'écoulement observé durant les expériences de traçage comme les courts-circuits et reflux et d'évaluer les paramètres du modèle. L'utilisation d'un code de mécanique des fluides est un moyen supplémentaire d'accéder aux connaissances hydrauliques des bassins de chloration et peut être une aide précieuse pour élaborer un modèle systémique pertinent. L'utilisation d'outil de ce type permet de plus de déterminer les performances des ouvrages en projet en raison du caractère prédictif de ces outils. Pratiquement, l'acquisition détaillée de ces connaissances hydrauliques vise à étudier l'impact de la circulation de l'eau sur la qualité du traitement. On recherche entre autres à limiter la formation des sous-produits de chloration et à améliorer la désinfection de l'eau, notamment lorsque les ressources en eaux brutes se dégradent.

REFERENCES

- (1) François O., Calmels P., Getto D., Saint-Bonnet P., Etude par traçages des modalités de transfert de l'eau dans le réservoir CD de l'usine de Méry-sur-Oise. Rapport CEA-DAMRI 1996, DAMRI/SAR/SAT/RAP/96.23/OF/CR
- (2) Calmels P., Getto D., François O., Etude par traçages des modalités de transfert de l'eau dans les réservoirs R4, puis R2, R1 et R3 de l'usine de Neuilly sur Marne. Rapport CEA-DAMRI 1995, DAMRI/SAR/SAT/RAP/95.29/PC/CR
- (3) Leclerc J.P., Detrez C., Bernard A., Schweich D., DTS un logiciel d'aide à l'élaboration de modèles d'écoulement dans les réacteurs. Revue de l'Institut Français de Pétrole, Vol. 50, N°5, Septembre-Octobre 1995.
- (4) Villermaux J. Génie de la réaction chimique - conception et fonctionnement des réacteurs, Edition Tec & Doc - Lavoisier, 1993
- (5) Chataigner O., Gagnon J.L., Chagneau G., Chopard P., Fluent : la modélisation numérique au service de la conception optimisée des réacteurs de post-chloration, 25èmes journées de l'hydraulique, Chambéry, 15-18 septembre 1998.

VENTILATION D'UNE AIRE INDUSTRIELLE. MODELISATION PAR DISTRIBUTION DES TEMPS DE SEJOUR (DTS)

F. BONTHOUX, G. AUBERTIN, J.M. DESSAGNE, J.C. SERIEYS

<>

INRS

Scie Thermique Ventilation

Avenue de Bourgogne

54500 VANDŒUVRE LES NANCY

Résumé

Le concept de durée de temps de séjour d'un traceur dans un réacteur agité a été appliqué à l'étude de la ventilation d'une aire de peinture industrielle. La modélisation a permis d'établir une représentation validée de l'écoulement et de quantifier les principaux paramètres qui le décrivent. L'accord avec les résultats expérimentaux est satisfaisant. Bien que cette technique ne fournisse pas une représentation unique de l'écoulement et doive par ailleurs s'appuyer sur la compréhension des phénomènes en cause, elle permet de valider ou d'exclure différents scénarios.

I. INTRODUCTION

Une modélisation de type Distribution de Temps de Séjour (DTS) a été conduite pour compléter l'évaluation des performances d'une installation de ventilation. Cette approche a été motivée par la configuration particulière du local étudié -une aire de peinture- qui ne permettait pas d'appliquer avec suffisamment de garanties les critères habituels (1) (efficacité de distribution d'air neuf, ...). En effet, comme ce type de local n'est pas clos, son volume n'est pas défini et les débits d'air entrant et sortant sont mal contrôlés.

Le concept de DTS introduit en 1953 par Danckwerts (2) est aujourd'hui couramment employé en génie chimique (3). Exploité conjointement à la cinétique chimique, l'information globale sur la circulation des fluides permet de prévoir la performance des réacteurs.

Dans une modélisation DTS, l'écoulement est représenté au moyen de volumes élémentaires (modules) connectés les uns aux autres. Ces modules symbolisent les écoulements de base (piston, mélange). Chaque module est caractérisé par sa réponse impulsionnelle, son volume et le débit du fluide qui le traverse.

Connaissant les caractéristiques de tous les modules et leurs liaisons, il est possible de calculer la réponse en concentration du réseau à une injection de traceur. Une première configuration du réseau est établie sur la base des informations physiques disponibles sur l'écoulement. Le problème consiste à optimiser la configuration et les paramètres s'y rattachant par ajustement des courbes simulées à celles mesurées.

Dès 1969 (4), cette approche a été utilisée pour modéliser la ventilation d'un local muni d'une entrée et d'une sortie d'air. En 1995, Olander (5,6,7) a réalisé ce type d'approche en laboratoire sur une cabine munie d'une ventilation générale et d'un captage localisé.

II. DESCRIPTION DE L'INSTALLATION DE VENTILATION

L'aire de peinture, de surface 67 m^2 , est implantée dans un vaste atelier. Elle est divisée en deux zones par des parois de hauteur $5,85 \text{ m}$ (figure 1). Chacune dispose d'un caillebotis d'extraction ($3 \text{ m} \times 5 \text{ m}$) et d'un système d'apport d'air de compensation. Ce dernier, placé à une hauteur de $8,4 \text{ m}$, comprend un plenum ($1,4 \text{ m} \times 5 \text{ m}$) entouré par deux rangées de 14 buses de soufflage ($\text{Ø} 70 \text{ mm}$). L'espace libre entre les parois et le système de compensation d'air autorise le passage d'un pont roulant.

Le débit global de soufflage est de $27\,000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, celui d'extraction de $35\,000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. Les deux zones ne sont jamais utilisées simultanément pour du pistelage : l'une sert au séchage pendant que l'opérateur peint dans l'autre. Pour favoriser l'assainissement de la zone de travail, la répartition du débit d'air est asservie à l'activité : $\approx 15 \%$ pour le séchage et $\approx 85 \%$ pour le pistelage. La réduction du débit d'air de compensation dans la zone choisie pour le séchage est obtenue par la fermeture du registre en entrée du plénum. L'air de compensation est chauffé en saison froide.

Lors des mesures, le pont roulant se trouvait à l'extérieur de l'aire de peinture. Cette situation est favorable en terme d'efficacité de distribution d'air neuf. La différence de température entre l'air soufflé et l'air ambiant était de 8° C . Le pistelage était réalisé dans la zone Z1, en conséquence de quoi le registre du caisson correspondant à la zone Z2 était fermé.

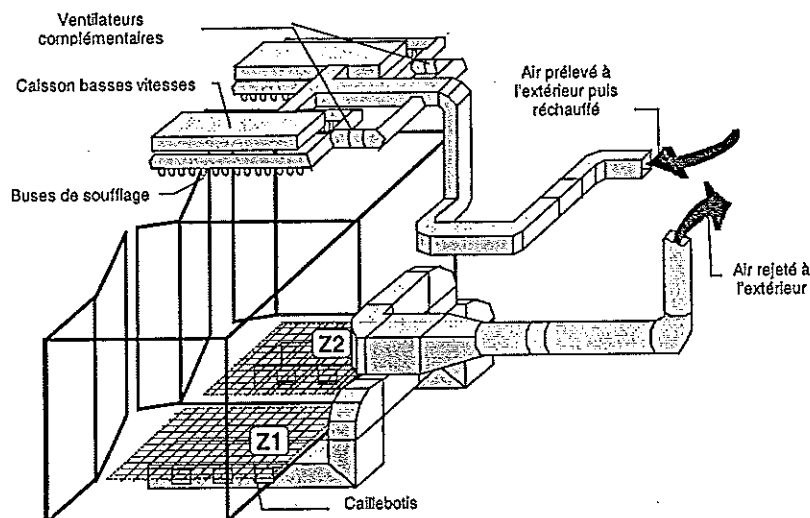


Figure 1. Schéma de l'aire de peinture et de son installation de ventilation

III. MODELISATION

III.1. Les courbes de réponses

Pour des raisons d'accès, d'une part, et de longueur de mélange, d'autre part, les différents systèmes de soufflage n'ont pas fait l'objet de mesures individuelles. Le traceur, de l'hélium, a donc été injecté dans la totalité du débit d'air de compensation. Les réponses en concentration ont été enregistrées par prélèvement dans les conduits d'extraction des zones Z1 et Z2.

Ces deux réponses (figure 2), issues d'une injection de durée 8s, sont très semblables. La présence du pic avec une pente quasi verticale indique qu'une partie de l'air traverse rapidement le volume ; ensuite, la décroissance régulière est le résultat d'une fonction de type mélange. Ce mélange peut résulter soit d'un brassage, soit d'une recirculation rapide d'une partie du débit traversant le volume.

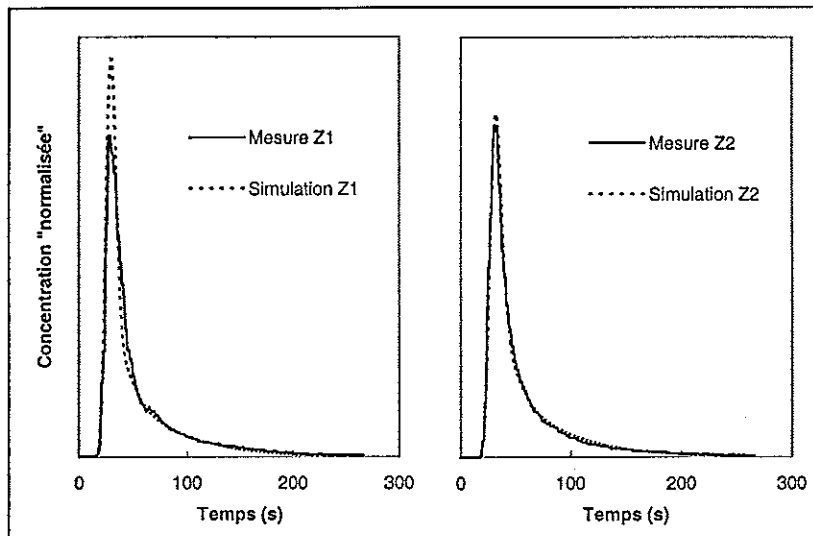


Figure 2. Courbes de réponses des zones Z1 et Z2

III.2. Le réseau de modules

L'élaboration du réseau de modules est une opération délicate. Il doit rendre compte de l'écoulement tout en ayant un degré de complexité adapté à la situation : trop simple, il ne permettra pas d'ajuster les courbes de réponse ; trop complexe, il nécessitera l'optimisation de nombreuses variables, de plus son interprétation n'en sera que plus difficile. Dans cette optique, le réseau initial est choisi volontairement simple ; il peut au besoin être amendé.

Avant de proposer un schéma sous forme de réseau, une représentation plus classique de l'écoulement est fournie. La figure 3 montre cette représentation où les zones les plus foncées indiquent des écoulements organisés du type piston et les zones les plus claires des zones agitées du type mélange. Les éléments utilisés pour l'élaboration de cette représentation sont fournis ci-après.

- La visualisation sommaire réalisée à l'aide de fumigène montre des écoulements de nature différente dans chacune des zones. Dans la partie basse de Z1, l'écoulement est assez organisé et ne présente que de faibles remontées le long des parois. Dans la partie haute, les remontées sont plus marquées. La partie Z2 présente distinctement, sur toute la hauteur des zones à courant descendant (sous influence des jets) et des zones agitées à courant ascendant.
- Bien qu'il n'ait pas été possible de visualiser l'écoulement entre le haut des parois et le système de compensation, il est possible d'émettre des hypothèses. Cette zone, nommée par la suite « soufflage », est agitée par les jets. Il y a création d'un débit induit sur les premiers décimètres après les introductions d'air, là où elles peuvent être assimilées à des jets libres.

- La concentration mesurée dans l'extraction à la suite d'une injection continue de traceur dans la compensation d'air permet de déterminer un débit global circulant dans le volume étudié. Ce débit est estimé à $45\ 000\ \text{m}^3.\text{h}^{-1}$. La soustraction du débit apporté par la compensation d'air ($27\ 000\ \text{m}^3.\text{h}^{-1}$) indique un débit d'infiltration $18\ 000\ \text{m}^3.\text{h}^{-1}$. Le même calcul réalisé pour le débit extrait ($35\ 000\ \text{m}^3.\text{h}^{-1}$) fournit un débit d'exfiltration de $10\ 000\ \text{m}^3.\text{h}^{-1}$ (figure 4). Ces débits d'air non-contrôlés entrent et sortent par la partie supérieure de la cabine.

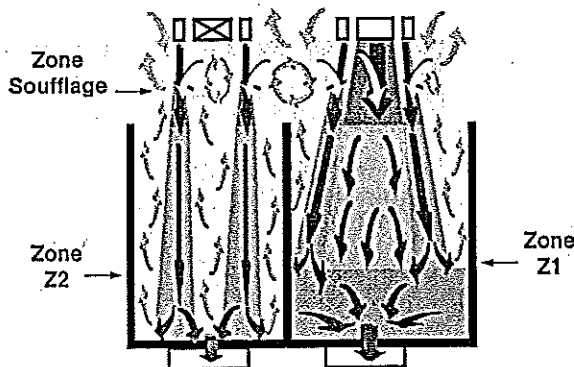


Figure 3. Schéma de l'écoulement

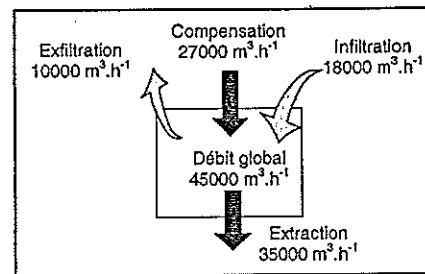


Figure 4. Bilan des débits entrant et sortant de la zone étudiée

La représentation figure 3 n'est pas directement convertie en réseau de modules. En effet, une représentation de type DTS est surtout une modélisation fonctionnelle de l'écoulement. C'est pourquoi, des simplifications peuvent être apportées par le regroupement des volumes remplissant la même fonction. Par exemple, pour la zone Z2, il suffit de conserver une fonction « piston » pour représenter les jets et une fonction plus ou moins « mélange » pour les remontées.

Pour construire le réseau, 11 volumes sont conservés. Ils sont représentés sur la figure 5. Bien que la figure 5 affiche des éléments de type « piston » et « mélange », tous les modules sont décrits à l'aide de mélangeurs en cascade où le nombre de J est adapté à l'écoulement (mélange parfait $J=1$; écoulement de type piston J infini). Le nombre de J doit impérativement être choisi en tenant compte du volume du module ; la figure 6 montre l'intérêt d'utiliser le rapport J/volume . La proposition « a » représente un écoulement de type piston ($J=48$). « a » est équivalente à « b » par définition même du mélangeur en cascade. La proposition « c » présente toujours le même écoulement, pourtant elle est composée d'un module où $J=45$ et d'un module où $J=3$.

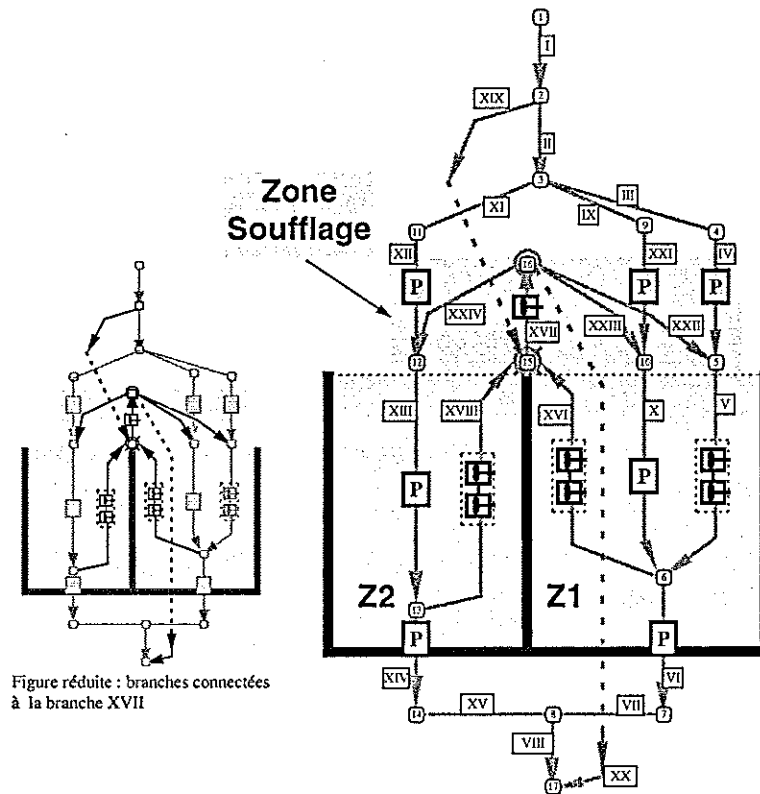


Figure 5. Réseau de modules représentant l'écoulement. La zone grisée indique le volume étudié. Les branches situées en dehors représentent les conduits ainsi que les infiltration et exfiltration d'air. Elles ne possèdent pas de fonction de transfert, leurs présences assurent la conservation des débits entre l'entrée et la sortie du réseau.

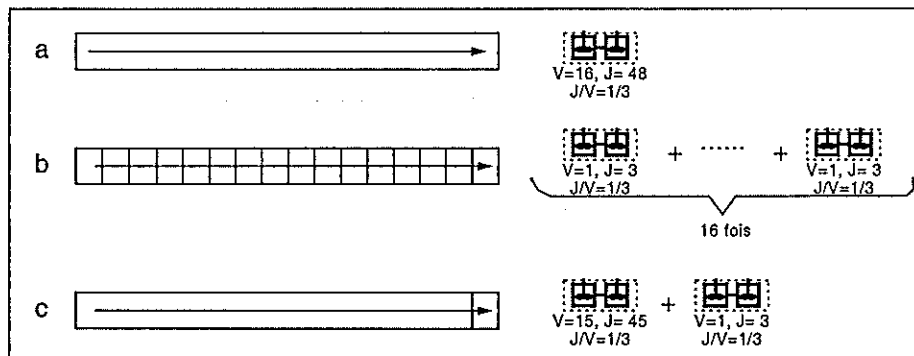


Figure 6. Trois solutions pour représenter un même écoulement. La constante J/V permet de voir qu'ils sont identiques.

III.3. Les paramètres du modèle

Le réseau est constitué de 24 branches dont 11 contiennent des modules. A raison d'une variable par branche (un débit) et de deux variables supplémentaires par module (le volume et la valeur de J), le nombre brut de paramètres est de 46.

En fait, le nombre d'inconnues est beaucoup plus faible. D'une part, l'égalité des débits entrant et sortant à chaque nœud permet déjà de réduire à 3 le nombre d'inconnues de type « débit ». D'autre part, les volumes physiques des zones « soufflage » Z1 et Z2 imposent des contraintes sur le volume des différents modules.

De plus, les plages de variation des paramètres sont limitées. En effet, les visualisations au fumigène permettent d'imposer des fourchettes acceptables pour certains volumes, par exemple la branche XIII représente entre 20 % et 40 % de la zone Z2. De plus, à volume égal, le nombre de J associé à un module décroît à mesure que l'on s'éloigne d'une bouche de soufflage car l'écoulement est de moins en moins piston. Il est aussi possible d'exploiter quelques mesures de vitesses ; par exemple, une vitesse de 0.5 m.s^{-1} mesurée dans la zone symbolisée par la branche XIII puis rapportée à la distance à parcourir (environ 6 m) fournit une approximation du ratio débit/volume. Enfin, certaines branches remplissent des fonctions analogues pour les côtés Z1 et Z2, les paramètres qui les caractérisent doivent donc être du même ordre. En ajoutant encore que les débits et les volumes sont des valeurs positives, la marge de manœuvre pour ajuster les paramètres est très réduite.

L'ensemble de ces contraintes géré à l'aide d'un tableur permet d'aboutir en une dizaine d'itérations à la solution proposée sur le tableau 1 (l'ajustement des courbes est présenté figure 3). Pour réaliser ces simulations, des modules ont été ajoutés pour prendre en compte les fonctions de transfert liées à l'appareillage de mesure (cellule de mesure, tuyaux de prélèvement, ...).

Zone	branche	Libellé	Volume		Débit $\text{m}^3.\text{h}^{-1}$	J	J/volume m^{-3}
			m^3	% zone			
Z1	V	caisson	60	35	51 000	4	0,07
	X	jet	37	22	16 000	6	0,16
	XVI	remontée	22	13	37 000	1	0,05
	VI	extraction	50	30	30 000	10	0,2
Z2	XIII	jet	52	35	16 000	7	0,14
	XVIII	remontée	95	64	11 000	2	0,02
	XIV	extraction	2	1	5 000	4	2
soufflage	XVII	mélange	172	86	66000	1	0,01
	IV	caisson	20	10	17 000	20	1
	XXI	jet côtéZ1	4	2	5 000	20	5
	XII	jet côtéZ2	4	2	5 000	20	5
	XXII	air induit caisson	-	-	34 000	-	-
	XXIII	air induit jet côtéZ1	-	-	11 000 (220 % du jet côté Z1)	-	-
	XXIV	air induit jet côtéZ2	-	-	11 000 (220 % du jet côté Z2)	-	-

Tableau 1. Paramètres du modèle. Les « remontées » intéressent 13 % du volume de la zone Z1 contre 64 % dans zone Z2. Par ailleurs, deux tiers du débit soufflé dans cette zone remontent.

IV. INTERPRETATION DES RESULTATS ET DISCUSSION

Le mauvais fonctionnement de la zone Z2 est confirmé par le modèle : les deux tiers du débit soufflé remontent après avoir traversé la zone polluée. En effet, le débit initial des jets augmentant de 220 % par effet d'induction, l'extraction ($5\ 000\ \text{m}^3.\text{h}^{-1}$) n'est plus en mesure d'évacuer les $16\ 000\ \text{m}^3.\text{h}^{-1}$ soufflés. Dans la zone Z1, bien que la plus grande partie du volume (87 %) soit traversée par un flux d'air orienté vers l'extraction, plus de la moitié du débit soufflé remonte en partie haute.

Dans la zone Z2, la réduction du débit d'air délivré par les buses de soufflage permettrait certainement d'améliorer les performances de l'installation.

Les résultats avancés ici reposent entièrement sur le réseau proposé figure 5. La correspondance satisfaisante entre les courbes mesurées et simulées, obtenue en respectant les contraintes imposées par l'observation du système, permet de le valider.

Un réseau plus complexe a aussi été testé : il incluait un échange entre les flux d'air soufflés et les remontées (branches XIII \leftrightarrow XVIII et X \leftrightarrow XVI). L'ajustement des courbes a conduit à imposer un débit négligeable pour cet échange et donc à ce rapprocher du réseau initial.

La sensibilité de quelques paramètres a été testée, notamment le débit induit par les buses de soufflage. Les courbes peuvent être ajustées, dans le respect des contraintes, pour une valeur variant entre 200 % et 300 % avec un optimum à 220 % du débit délivré par les buses.

V. CONCLUSION

Dans l'étude de cette aire de peinture, la modélisation de type DTS a permis, d'une part, d'établir une représentation validée de l'écoulement et, d'autre part, de quantifier les principaux paramètres qui décrivent l'écoulement. Ce type de modélisation est un complément utile à la visualisation de type fumigène ; elle permet de confirmer dans sa globalité ce que la visualisation a montré de façon souvent partielle et locale.

Cette méthode, le plus souvent utilisée pour la modélisation de réacteur chimique, est peu documentée pour la prise en compte de paramètres mesurés à l'intérieur du volume étudié. L'ajustement des paramètres pourrait être facilité par la mise en relation du nombre de J qui caractérise l'agitation d'une zone et de grandeurs comme la turbulence de l'air.

VI. REFERENCES

- (1) SANDBERG M., SJOBERG M. - The use of moments for assessing air quality in ventilated rooms. *Build and Environment* 18, No. 4, 1983, pp. 181 - 197.
- (2) DANCKWERTS P. V. - Continuous flow systems, Distribution of residence times, *Chemical Engineering Science*, 1953, 2, 1, pp. 1-13.
- (3) VILLERMAUX J. - Génie de la réaction chimique, conception et fonctionnement des réacteurs -Paris, Edition Technique et Documentation, 1982, 401p.
- (4) CHEN M.S.K., FAN L.T.,HWANG C.L.,LEE E.S. - Air flow models in a confined space, A study in age distribution, *Buid. Sci.*,1969, 4, pp. 133,144.
- (5) OLANDER L.,DESSAGNE J.M., BONTHOUX F.,AUBERTIN G. - Use Residence Time Distribution for evaluation of ventilation systems, *Ventilation '94*, 1994, 1, pp 127-135.
- (6) OLANDER L.,DESSAGNE J.M., BONTHOUX F.,LECLERC J. - Study of general ventilation and local exhaust ventilation in industrial premises using Residence Time Distribution Theory, *Environmental Progress*, 1995, 14, 3, pp 159-163.
- (7) OLANDER L.,DESSAGNE J.M., BONTHOUX F.,LECLERC J. - Residence Time Distribution, Characterises ventilation in industrial premises, *Chemical Technology*, 1995, 2, 3, pp 13-15.

COMPLEMENTARITE DES TECHNIQUES DE TRACAGES GAZEUX ET PARTICULAIRE APPLIQUEES A LA CARACTERISATION DES TRANSFERTS D'AEROCONTAMINANTS

S. DRECOURT, N. DUPOUX, J.C. LABORDE, J. LACAN

<> IPSN - CEA Saclay
Bât. 383
91191 GIF s/YVETTE Cedex

RESUME

La communication présentée évoque les techniques de traçage mises en oeuvre à l'Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire (IPSN) afin de simuler de manière réaliste le comportement d'aérocontaminants de nature diverse.

Elle expose ensuite quelques exemples concrets de complémentarité de ces techniques pour la protection d'un opérateur à un poste de travail (cas d'une sorbonne de laboratoire) et pour le positionnement d'un détecteur de polluant (surveillance des opérateurs); ces deux exemples illustrent en particulier la nécessité d'effectuer du traçage particulaire dès lors que le polluant réel possède un diamètre aérodynamique médian massique supérieur à quelques microns.

I. INTRODUCTION

Dans de nombreux secteurs industriels (chimie, pharmacie, nucléaire,...), la ventilation est mise en oeuvre afin de protéger les opérateurs et l'environnement extérieur vis-à-vis d'un polluant. La ventilation s'applique non seulement dans les conditions normales de fonctionnement d'une installation (sorbottes de laboratoire, par exemple), mais aussi dans des conditions incidentelles (rupture d'un élément d'une enceinte de confinement statique, ouverture intempestive d'une trappe pour introduire du matériel, par exemple). Dans les deux cas, il convient de limiter la propagation des polluants présents à l'intérieur d'un espace de travail partiellement fermé, ou de s'assurer qu'un incident entraînant une dispersion des polluants hors de cet espace est détecté au plus vite. Afin de caractériser les performances d'une ventilation et de simuler expérimentalement le comportement aéraulique d'un polluant, les techniques de traçage quantitatives sont couramment mises en oeuvre.

Depuis plusieurs années, le Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement (SERAC) développe des techniques de traçages gazeux et particulaire (aérosols fluorescents) non radioactifs, et les applique dans le cadre d'expertises qu'il est amené à faire dans différents secteurs (le nucléaire, mais aussi dans les stations d'épuration d'eau couvertes, l'agroalimentaire); ces expertises concernent les transferts de polluants présents dans l'air à l'intérieur des installations. La gamme de polluants potentiellement en suspension dans l'air (polluants gazeux ou particuliers de diamètres aérodynamiques pouvant atteindre quelques dizaines de microns) justifie la complémentarité des techniques de traçages gazeux et particulaire, mises en oeuvre lors de ces expertises sur site. En effet, dès que le diamètre aérodynamique du polluant dépasse quelques microns, les phénomènes de dépôts propres à la physique des aérosols sont à prendre en considération.

II. TECHNIQUES MISES EN OEUVRE

Dans le cas de l'analyse des systèmes ventilés, le traçage permet d'une part de mesurer les paramètres de fonctionnement statique et dynamique du système lui-même (débit, taux de renouvellement, efficacité de captage, efficacité de confinement dynamique), d'autre part de caractériser les interactions entre le système et son environnement (temps et coefficient de transfert).

Parmi les différents phénomènes responsables de la dispersion d'un polluant gazeux dans l'air, la diffusion turbulente est dans la grande majorité des cas prépondérante ; dans le cas de la dispersion d'un polluant particulaire, viennent s'ajouter les effets propres à la physique des aérosols (sédimentation, inertie, par exemple) lorsque le diamètre aérodynamique médian massique du polluant est supérieur ou égal à quelques microns. Dans le domaine de l'aérocontamination, il est donc essentiel de disposer d'une gamme de traceurs allant des gaz jusqu'aux particules de quelques dizaines de microns.

Les principales techniques mises en oeuvre sont :

- * les traceurs radioactifs [1], généralement des émetteurs de rayonnement gamma, dont l'activité est la plus faible possible afin de satisfaire aux normes de radioprotection (^{133}Xe , par exemple),
- * l'hélium (He) et l'hexafluorure de soufre (SF_6) en tant que traceurs gazeux,
- * les traceurs fluorescents (uranine ou fluorescéine sodée, par exemple) en tant que traceurs particulaires.

Les techniques mises en oeuvre depuis plusieurs années au SERAC afin de couvrir une large gamme d'aérocontaminants sont He, SF_6 et les traceurs fluorescents. Si les techniques de traçage gazeux, déjà présentées lors de différents congrès nationaux et internationaux [2], [3] et donc non décrites dans ce texte, sont d'usage courant, la technique de traçage particulaire à émission maîtrisée, en termes de distribution granulométrique et de débit massique, est moins répandue.

Le système de production de traceur particulaire dépend essentiellement du diamètre spécifié pour les particules, lesquelles doivent être le plus monodispersées possible (écart-type géométrique inférieur à 1,6) :

- ♦ pour les aérosols de diamètre aérodynamique médian massique compris entre $0,15 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$, la production est assurée par un générateur pneumatique (pulvérisation d'une solution à l'aide d'air comprimé + élimination des plus grosses gouttelettes formées + séchage des gouttelettes résiduelles) dérivé de la norme NFX 44011,
- ♦ pour les aérosols de diamètre compris entre $0,6 \mu\text{m}$ et $10 \mu\text{m}$, la production est assurée à partir du principe de pulvérisation ultrasonore, puis séchage des gouttelettes formées. Une céramique piézoélectrique vibre, à fréquence élevée, à l'intérieur de la solution et donne naissance à une fontaine ; un air de dispersion entraîne les gouttelettes de diamètre d_g , fonction de la fréquence de vibration de la céramique, formées en partie supérieure de cette fontaine. Le séchage de ces gouttelettes permet d'obtenir des particules solides de diamètre d_p , dépendant de la concentration volumique C_v du traceur dans l'eau.

Au système de production est associé un système de détection comprenant :

- un dispositif de prélèvement composé d'une pompe de prélèvement, d'un compteur volumétrique et d'un filtre de prélèvement, à fibres, placé dans un porte-filtre associé,

- un fluorimètre permettant de mesurer, après prélèvement sur filtre et mise en solution dans de l'eau ammoniacale, la masse de fluorescéine sodée présente sur le filtre de prélèvement. L'analyse de la fluorescéine sodée repose sur sa propriété de fluorescence, les mesures étant faites en différé ; connaissant la masse de fluorescéine sodée déposée sur le filtre de prélèvement et le volume d'air échantillonné, on en déduit la concentration de fluorescéine sodée au point de prélèvement.

Cette technique de traçage particulière ne permet donc pas de réaliser des mesures en temps réel, ce qui en constitue l'inconvénient majeur ; des travaux prometteurs afin de remédier à cet inconvénient sont cependant en cours au SERAC [4].

III. APPLICATION A LA CARACTERISATION DES TRANSFERTS DE CONTAMINATION

Le coefficient de transfert K , exprimé en s/m^3 ou h/m^3 , entre un point M quelconque situé à l'intérieur d'un local ventilé et la source d'émission S est défini par :

$$K = \frac{C}{q}$$

C : concentration de traceur au point M considéré
 q : débit de traceur au point source S

Pour un régime de ventilation donné, K est constant : on peut donc, à partir de la connaissance du débit de contaminant et du coefficient de transfert, déterminer la concentration ou la fraction de contaminant inhalée par un individu opérant dans le local où se trouve la source potentielle de contamination, ou bien déterminer la quantité de contaminant présente à proximité d'un détecteur.

Généralement, on distingue deux types d'émission :

- ◆ Emission continue (lorsque la durée d'émission du polluant est nettement supérieure au temps de renouvellement de l'air dans le local) ; les coefficients de transfert dits continus sont alors déterminés par la relation :

$$K_c = \frac{C^*}{q}$$

C^* : concentration de traceur à l'équilibre au point M considéré

- ◆ Emission impulsionnelle (lorsque la durée d'émission du polluant est nettement inférieure au temps de renouvellement de l'air dans le local) ; les coefficients de transfert dits impulsionnels sont alors déterminés par la relation :

$$K_I = \frac{1}{M_T} \int_0^{\infty} C(t) \cdot dt$$

$C(t)$: concentration massique de traceur au cours du temps au point M considéré
 M_T : masse de traceur émis au point source S

De même, afin d'évaluer l'efficacité d'une barrière de confinement dynamique, on peut utiliser les définitions données précédemment pour le coefficient de transfert, avec :

- la source S située à l'intérieur de l'enceinte de confinement à étudier,
- le point de mesure M situé à l'extérieur de cette enceinte.

Dans ce cas, le coefficient K est appelé généralement coefficient de rétrodiffusion.

IV. EXEMPLES D'APPLICATION ET DE COMPLEMENTARITE ENTRE LES TRACAGES GAZEUX ET PARTICULAIRE

IV.1 Protection d'un opérateur à un poste de travail

Une enceinte expérimentale (figure 1), équivalente à une sorbonne de laboratoire, est constituée d'une face avant mobile de largeur 100 cm et de hauteur d'ouverture pouvant atteindre 100 cm ; elle est équipée dans sa partie supérieure d'un réseau d'extraction d'air, à l'aide duquel il est possible de faire varier la vitesse de l'air au niveau de l'ouverture. Une instrumentation associant des techniques de traçages et d'anémométrie laser à effet DOPPLER est mise en oeuvre afin de caractériser l'efficacité de protection d'un opérateur dans différentes conditions opératoires de fonctionnement (hauteur et vitesse d'écoulement à l'ouverture variables, présence ou non d'obstacles).

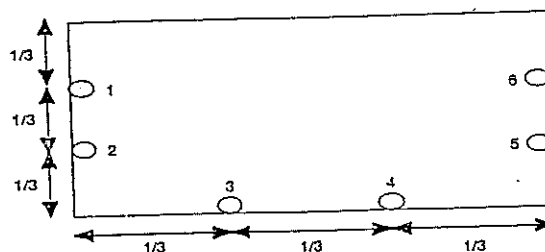
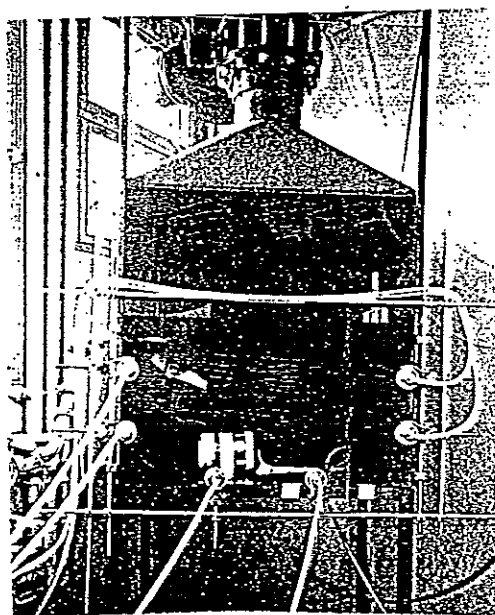


Figure 1 : Enceinte expérimentale et localisation des points de mesure

La figure 2 permet de comparer les coefficients de rétrodiffusion mesurés en six points différents, à l'hélium et avec des aérosols fluorescents de $0,15 \mu\text{m}$ et $5 \mu\text{m}$, pour une hauteur d'ouverture de $0,4 \text{ m}$ et deux vitesses débitantes moyennes à l'ouverture ($0,5 \text{ m/s}$ et 1 m/s). On observe des valeurs quasiment identiques pour l'hélium et l'aérosol de $0,15 \mu\text{m}$; les deux traceurs ont donc un comportement aéraulique équivalent d'un point de vue des transferts de polluant. Par contre, le comportement de l'aérosol de $5 \mu\text{m}$ comparé à celui des deux autres traceurs dépend de la localisation du point de mesure :

- le long de la paroi latérale droite (points 5 et 6) $K_{0,15} > K_5$; $K_{0,15}$ et K_5 sont respectivement les coefficients de rétrodiffusion pour l'aérosol de $0,15 \mu\text{m}$ et celui de $5 \mu\text{m}$,
- * le long de la paroi latérale gauche (points 1 et 2) $K_{0,15} \simeq K_5$,
- * le long de la paroi inférieure (points 3 et 4) $K_{0,15} < K_5$.

Pour cette dernière paroi, plus la vitesse de l'écoulement augmente, plus l'écart entre $K_{0,15}$ et K_5 augmente. Ce phénomène, a priori surprenant, s'explique vraisemblablement par la mise en suspension d'une partie des aérosols de $5 \mu\text{m}$ qui se sont initialement déposés par le mécanisme de sédimentation sur le plan de travail pour former un agglomérat de particules ; un accroissement de la vitesse d'écoulement favorise la mise en suspension d'une partie de ces nouvelles particules.

Il est donc important de retenir qu'il existe des configurations normales de fonctionnement d'une sorbonne pour lesquelles le risque de rétrodiffusion d'un aérosol de $5\ \mu\text{m}$ est plus élevé que celui d'un aérosol de $0,15\ \mu\text{m}$ ou d'un polluant gazeux. Les tests normalisés actuels d'efficacité de confinement utilisant un traceur gazeux peuvent donc ne plus être représentatifs des polluants particulaires, et devenir même moins pénalisants.

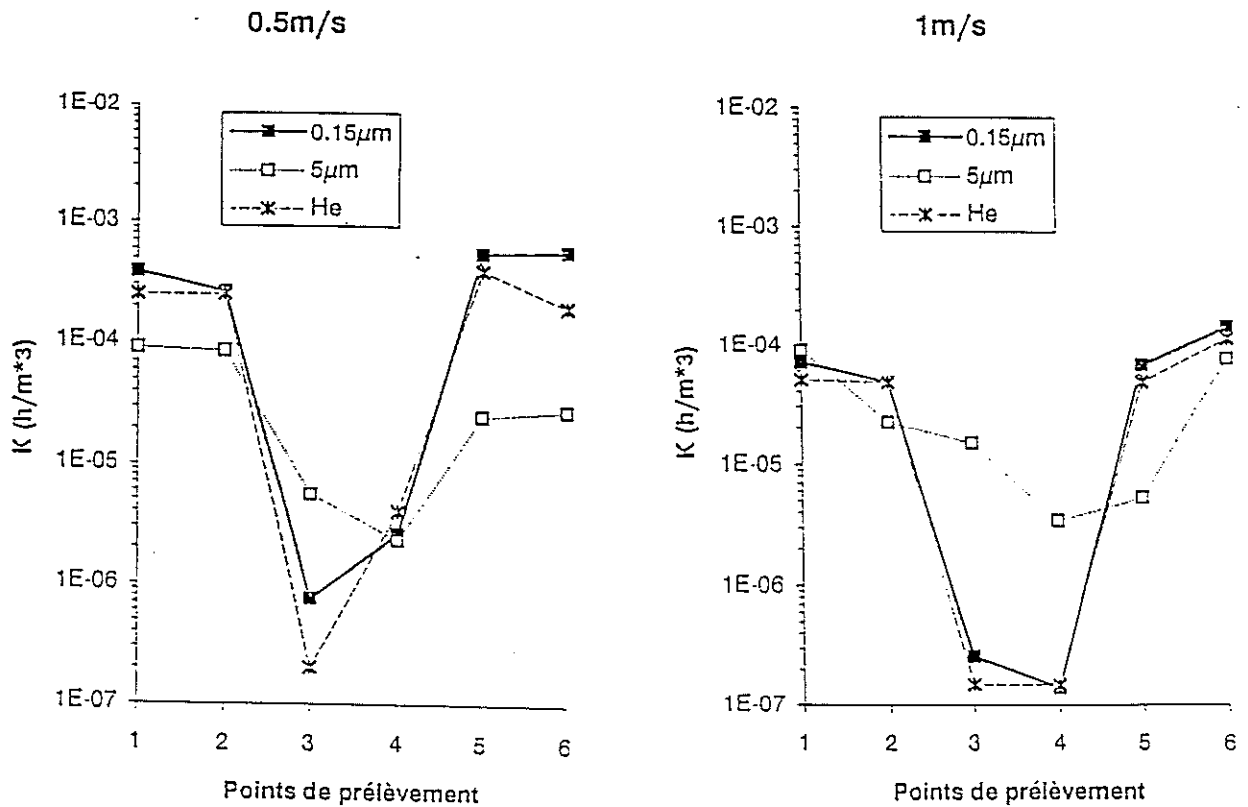


Figure 2 : Coefficients de rétrodiffusion à l'extérieur d'une sorbonne

IV.2 Position d'un détecteur de contamination

Le problème posé est de déterminer l'emplacement optimal d'une seule balise de radioprotection pour deux sources potentielles de contaminants gazeux et particulaire (diamètre aérodynamique médian massique = $5\ \mu\text{m}$), ainsi que de comparer les transferts de chacun des contaminants en différents points d'un local ; ce dernier, dont le volume est de $540\ \text{m}^3$ et le taux de renouvellement d'air de $5\ \text{R/h}$, est équipé de deux bouches de soufflage et de deux bouches d'extraction, situées respectivement en parties haute et basse du local.

L'hélium et l'aérosol de fluorescéine sodée sont simultanément émis en S_1 , puis en S_2 ; des mesures de concentrations résultant de ces émissions sont réalisées en cinq points du local. La figure 3 résume les résultats obtenus en termes de coefficients de transfert gazeux et particulaire.

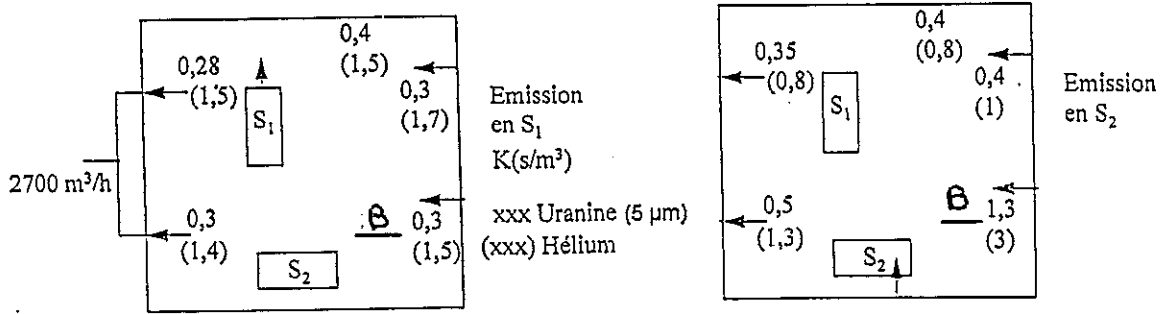


Figure 3 : Coefficients de transfert à l'intérieur d'un local ventilé

Les coefficients de transfert particulaire sont en moyenne trois fois plus faibles que les coefficients de transfert gazeux quelle que soit la localisation de la source d'émission ; cela résulte des phénomènes de dépôts particulaires. Par ailleurs, on déduit de ces mesures que l'emplacement optimal d'une balise de radioprotection en un point unique, assurant la surveillance vis-à-vis des sources potentielles retenues, est situé dans la zone repérée B sur les schémas.

V. CONCLUSION

L'article présenté illustre la complémentarité des techniques de traçage gazeux et particulaire ; en effet, dans le cas d'une pollution particulaire, dont le diamètre aérodynamique dépasse quelques microns, il s'avère nécessaire de faire appel à des traceurs particulaires dont le diamètre aérodynamique médian massique doit être égal à celui du polluant réel, afin d'être représentatif du transfert aéraulique du polluant.

REFERENCES

- [1] Blet V., Chaussy C., Narp F., Eckton E., Vitart X., Vincent R.. Application of radioactive tracers for the study of ventilation in industrial premises, ECCE 1 - Florence, may 1997
- [2] Vavasseur C.. Application of tracer gas methods to the measurements of ventilation parameters in nuclear power plants and various industrial sectors, Ventilation'85. - Toronto, 1985
- [3] Berne Ph., Cassette Ph.. Le traçage gazeux, technique d'analyse des procédés complexes, 1er Congrès National de Génie des Procédés - Nancy, septembre 1987
- [4] Prévost C., Vendel J., Seigneur A.. Développement d'un détecteur temps réel de particules fluorescentes : application à la caractérisation des transferts de polluants, Congrès Traceurs et Méthodes de Traçage - Nancy, novembre 1998

EXPLORATION DE L'HYDRODYNAMIQUE D'UN BIOFILTRE DE NITRIFICATION TERTIAIRE EN GRANDEUR REELLE

F. SEGURET, Y. RACAULT

<> CEMAGREF
BP 3 - 50, avenue de Verdun
33612 GAZINET Cedex

M. SARDIN

<> LSGC - ENSIC
BP 451 - 1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

RESUME

Le comportement hydrodynamique d'un biofiltre de nitrification tertiaire d'effluents domestiques est exploré. Il s'agit d'un prototype industriel d'une surface horizontale de 144 m². Il est rempli d'un matériau dont la granulométrie est de 3,5 mm, sur une hauteur de 4 m. Les distributions des temps de séjour ont été obtenues à partir de traçages au chlorure de lithium. La variabilité spatiale des temps de séjour moyens du traceur mesurés à la surface du matériau est très importante et s'explique principalement par la géométrie de système de distribution de l'effluent sous le lit, les temps de séjour au sein du lit de matériau étant au contraire homogènes. Le comportement du lit est proche d'un réacteur piston avec dispersion axiale. Une approche des conséquences de l'hétérogénéité mesurée sur la qualité du traitement est réalisée à l'aide d'un modèle théorique de nitrification par le biofilm.

MOTS CLES

Biofiltre, hydrodynamique, nitrification, eau usée, distribution des temps de séjour

INTRODUCTION

Les biofiltres ont connu un développement important en traitement des eaux usées dans la dernière décennie en raison de nombreux atouts : ils ne sont pas soumis aux aléas de la décantation, sont compacts, peuvent être installés dans des bâtiments fermés et se prêtent à une construction modulaire permettant d'adapter la capacité de traitement aux variations de débit (1). Ils sont utilisés de manière courante pour la nitrification tertiaire (2).

L'objectif de la présente étude est d'explorer l'écoulement au sein d'un biofiltre de taille industrielle. D'autres auteurs ont pu observer sur des systèmes similaires des différences de temps de séjour d'un point à l'autre de la surface horizontale supérieures à 40% (3), ou ont suggéré l'existence d'écoulements préférentiels (4). Pour déterminer une éven-

tuelle hétérogénéité de l'écoulement, les distributions des temps de séjour au sein du biofiltre seront ici comparées en 6 points de la surface horizontale, à la fois à la surface du matériau et à la base de celui-ci. Partant des résultats obtenus et d'un modèle théorique de nitrification par le biofilm, une simulation sera réalisée pour évaluer l'impact d'une forte augmentation de concentration en azote sur la qualité du traitement.

MATERIEL ET METHODES

L'unité expérimentale est localisée à la station d'épuration d'Achères, qui traite une partie des eaux usées de l'agglomération parisienne. Il s'agit d'un prototype industriel de 144 m^2 , constitué par une seule cellule de biofiltration, qui a fait l'objet d'un suivi de cinq ans (5). Le garnissage est constitué d'un matériau de $3,5 \text{ mm}$ de granulométrie, reposant sur un plancher percé de buses. D'un volume de 575 m^3 et d'une hauteur de 4 m , il constitue un massif filtrant, servant de support au biofilm. Le système d'aération, fournissant l'oxygène nécessaire à la nitrification, est situé à la base du plancher. Il en couvre toute la surface. L'effluent est admis par une canalisation alimentée par une pompe. Une cheminée permet d'équilibrer la perte de charge, qui est de l'ordre de 1 m (figure 1).

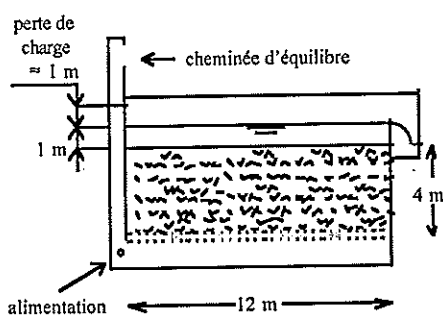


Figure 1. Coupe schématique du biofiltre

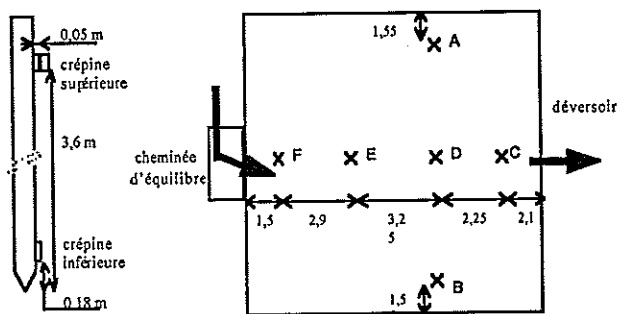


Figure 2. Position des points de prélèvement

Quatre points de mesure ont été répartis sur la médiatrice du réacteur, et deux points sur les cotés. A chaque point, 20 prélèvements ont été réalisés lors de chaque essai, à environ 20 cm au-dessus de la base du matériau, et 30 cm au-dessous de la surface supérieure (figure 2). La durée des prélèvements était de 30 minutes aux points bas et 60 minutes aux points hauts. Cinq essais ont été réalisés, dont deux sans insufflation d'air. La vitesse ascensionnelle de l'effluent était comprise entre $8,01$ et $8,08 \text{ m}^3 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, et la vitesse de l'air d'environ $21 \text{ Nm}^3 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Le traçage a été réalisé en utilisant du chlorure de lithium, qui est présent en faible quantité dans l'effluent, à concentration quasi constante, et n'est pas assimilé par la biomasse. Le traceur a été déversé dans la canalisation d'aspiration de la pompe d'alimentation. La durée de l'injection a été de 2,5 à 5 minutes (en fonction des conditions expérimentales). Les concentrations de traceur des prélèvements ont été déterminées par photométrie de flamme.

RESULTATS

Courbes de concentration

Les cinq essais ont permis d'obtenir 60 courbes de concentration. L'ensemble des résultats ne pouvant être exposé ici, la figure 3 montre à titre d'exemple les courbes obtenues en parties haute et basse du matériau pour chaque point lors de l'essai 5. Le pic de concentration apparaît en premier au point F, puis aux points E, D, C. Le traceur est donc réparti progressivement selon l'axe longitudinal central, depuis le point d'entrée de l'effluent jusqu'au déversoir de sortie. Les deux points situés sur le côté du biofiltre (A et B), reçoivent le traceur plus tardivement que les points de l'axe central. Le point B, situé du côté droit en regardant le sens de l'écoulement, est systématiquement privilégié. Cela s'explique par la configuration du système d'admission de l'effluent.

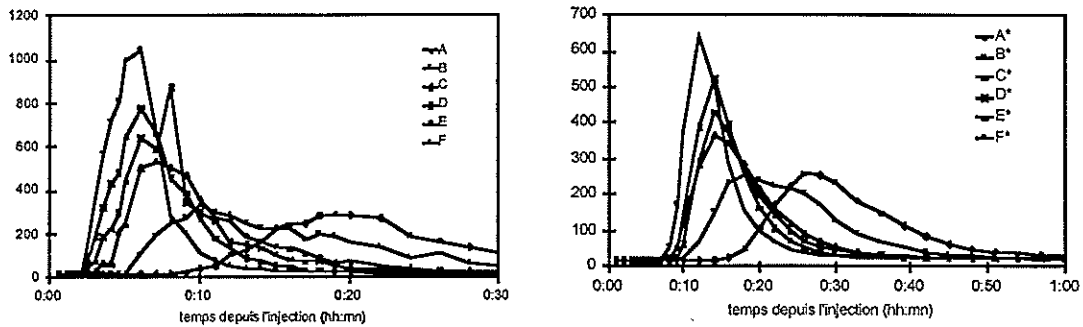


Figure 3. Courbes de concentration au niveau bas (à gauche) et au niveau haut (à droite)

Temps de séjour moyens

Le tableau 1 présente les temps de séjour moyens calculés. Les résultats à la base du lit varient peu d'un essai à l'autre : l'écart type des résultats obtenus pour un même point est inférieur à 13,4 %, ce qui laisse penser que la reproductibilité des essais est satisfaisante. Comme on peut s'y attendre au regard des courbes de concentration, il existe une forte variabilité du temps de séjour en fonction de la position du point. Ainsi les points latéraux (A et B) ont un temps de séjour en moyenne 3,8 fois plus élevé que les points de la médiatrice.

Tableau 1 : temps de séjour moyens en minutes

Essai	débit m^3h^{-1}	air	Points inférieurs (base du garnissage)						Moyennes		
			A	B	C	D	E	F	A-B	C-F	A-F
1	1155	avec	19,2	10,8	5,43	3,57	2,63	1,51	15,0	3,29	7,18
2	1154	avec	19,7	12,8	4,93	4,27	3,39		16,3	4,29	8,28
3	1160	sans	19,7	10,9	5,86	5,09	3,44	2,69	15,3	4,27	7,96
4	1164	sans	18,2	11,5	6,36	5,25	3,79	2,66	14,9	4,51	7,96
5	1156	avec	19,6	13,4	6,58	4,85	3,39	1,93	16,5	4,19	8,29
Essai	débit m^3h^{-1}	air	Points supérieurs (partie haute du garnissage)						Moyennes		
			A*	B*	C*	D*	E*	F*	A*-B*	C*-F*	A*-F*

1	1155	avec	26,6	19,9	15,2	13,3	10,6	32,0	23,3	17,8	19,6
2	1154	avec	26,2	19,9	14,6	12,7	10,7	28,2	23,1	16,5	18,7
3	1160	sans	27,9	20,7	17,3	16,3	13,9	19,2	24,3	16,7	19,2
4	1164	sans	26,9	20,7	17,3	15,9	14,9	19,4	23,8	16,9	19,2
5	1156	avec	28,2	20,8	14,8	14,3	12,3	11,1	24,5	13,1	16,9

L'observation des temps de séjour moyens obtenus aux points hauts laisse apparaître des valeurs élevées pour le point F, alors que celui-ci présentait les valeurs les plus faibles au niveau bas. Le temps de séjour moyen est particulièrement élevé lors du premier essai, puis diminue progressivement au cours du temps, pour reprendre une valeur logique lors du dernier essai. Nous suggérons que ce phénomène est caractéristique d'un colmatage partiel du matériau à la verticale du point F ; il se résorbe en quelques jours suite aux opérations de lavage intégrées au procédé.

Résultats concernant le lit de matériau

Le volume actif et un paramètre caractéristique de la dispersion entre les points de prélèvement haut et bas ont été calculés en faisant l'hypothèse qu'entre ces deux points l'écoulement est assimilable à un piston avec dispersion axiale. Les valeurs obtenues sont présentées au tableau 2.

Tableau 2. Volumes actifs et longueurs de dispersion caractéristiques

Essai	vitesse $m^3 m^{-2} h^{-1}$	volume actif (m^3)		longueur de dispersion (mm)	
		moyenne	min - max	moyenne	min - max
1	8,0	162	150 - 173	172	102 - 263
2	8,0	157	146 - 166	167	134 - 201
3	8,1	169	159 - 184	238	128 - 294
4	8,1	178	159 - 190	224	108 - 283
5	8,0	166	144 - 198	277	181 - 392

Contrairement aux temps de séjour observés à la surface du matériau, les volumes actifs au sein du matériau présentent une variabilité faible. Si on exclut le point F, dont les valeurs sont particulières en raison du colmatage à sa verticale, l'écart type des valeurs obtenues aux différents points pour un même essai est compris entre 4,0 et 9,4 %. La forte hétérogénéité des temps de séjour observés à la surface du biofiltre est donc due principalement à la distribution de l'effluent à la base, et non à un comportement hétérogène du garnissage.

Les valeurs du volume actif semblent peu influencées par la présence ou l'absence d'air, alors que l'on s'attend à un volume actif supérieur sans air. Cela pourrait être expliqué par une expansion du matériau moins importante sans air, ce qui diminuerait la porosité du garnissage et compenserait ainsi le volume libéré par les bulles d'air.

Les valeurs de la dispersion apparaissent élevées, si on les compare avec les résultats obtenus lors d'essais similaires sur un autre type de biofiltre à flux ascendant (6). La différence entre ces deux systèmes est que dans le second, le matériau est flottant et re-

tenu par un plafond ; il ne peut donc comme ici subir une expansion. Cette expansion, et les courants de matériau qu'elle peut provoquer, pourraient expliquer les valeurs de dispersion axiale élevées observées.

DISCUSSION

La question se pose de savoir si le comportement hydrodynamique décrit ci-dessus peut influencer la qualité du traitement. Pour y répondre, une approche théorique utilisant un modèle numérique de nitrification par le biofilm a été choisie. Le système est décrit comme un biofilm d'épaisseur uniforme, dans lequel le substrat (NH_4^+) et l'oxygène sont transportés par diffusion moléculaire et consommés à une vitesse donnée. Cela détermine la vitesse apparente de consommation du substrat à la surface du biofilm (7). Les paramètres cinétiques ont été arbitrairement choisis identiques à ceux obtenus lors de l'étude par d'autres auteurs d'un biofiltre de nitrification tertiaire (8).

Pour simuler l'écoulement, le biofiltre a été divisé en 12 colonnes de section identique, chaque colonne correspondant à un point de mesure. Pour les 4 colonnes situées sur chaque bord, des caractéristiques hydrodynamiques identiques ont été affectées, d'après les résultats obtenus pour les points A et B (figure 4).

Une première simulation a été effectuée en régime permanent. Dans ce cas, la concentration sous le biofiltre est homogène et seule l'hétérogénéité du massif de matériau peut avoir une influence sur les performances. Deux configurations hydrodynamiques ont été testées : l'une avec les résultats expérimentaux différenciés pour chaque colonne, l'autre avec la même valeur moyenne pour toutes les colonnes (volume actif 144 m^3 , coefficient de dispersion $139 \text{ m}^2\text{j}^{-1}$). Pour les différentes configurations d'entrée testées (8 à 18 mgL^{-1} en N-NH_4^+), il n'y a pratiquement pas de différence entre les deux configurations. La variabilité spatiale des caractéristiques hydrodynamique du massif n'apparaît donc pas avoir d'influence sur les performances.

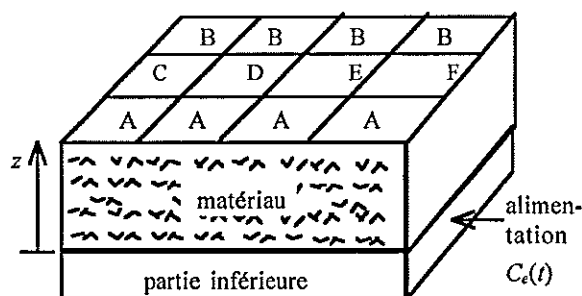


Figure 4. Colonnes utilisées pour la simulation

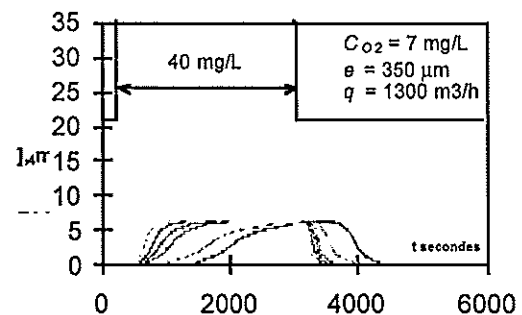


Figure 5. Concentrations résiduelles calculées en sortie des colonnes

Tableau 3. Flux supplémentaire en kg N-NH_4^+ en régime transitoire

	entrée	sortie
(d) mélange intégral	19,2	3,92
(b) mélange mesuré « moyenné »	19,2	4,29
(a) comportement différencié	19,2	4,51
(c) piston	19,2	6,19

Pour connaître l'influence du compartiment inférieur, une simulation a été réalisée en régime permanent, en supposant une augmentation brutale et très forte de la concentration d'entrée, passant de 21 mgL^{-1} à 40 mgL^{-1} pendant 47 minutes. Cet échelon de concentration va au-delà de la capacité pour laquelle le biofiltre a été dimensionné. L'évolution de la concentration résiduelle de substrat en sortie est fournie par la modélisation aux différents points. Plusieurs configurations hydrodynamiques de la zone inférieure ont été testées : (a) comportement différencié pour chaque point conforme aux observations expérimentale, (b) comportement identique pour tous les points en utilisant des valeurs moyennes, (c) comportement piston, (d) comportement mélange intégral. La figure 5 montre les profils de concentration dans le premier cas. Le flux de substrat supplémentaire dû à l'échelon a été calculé pour chaque cas (tableau 3). Il apparaît que, mieux la zone inférieure est mélangée, meilleure est l'élimination de l'échelon.

CONCLUSION

La seule observation des temps de séjour à la surface du biofiltre d'Achères pourrait laisser penser qu'il y règne des conditions d'écoulement très hétérogènes. En réalité l'importante variabilité spatiale des temps de séjour s'explique par la géométrie du système d'admission, qui ne permet pas un mélange homogène du traceur sous le matériau. L'étude de l'écoulement au sein du matériau proprement dit montre que les temps de séjour à différentes verticales y sont, au contraire, relativement homogènes. La méthode de traçage mise en œuvre a montré la possibilité d'un colmatage temporaire du garnissage, lequel s'est résorbé en quelques jours en liaison avec les opérations de lavage intégrées au procédé. La dispersion axiale au sein du massif apparaît élevée que dans d'autres techniques de biofiltration, probablement en raison de l'expansion du matériau. L'utilisation d'un modèle cinétique simple de biofilm nitrifiant laisse penser que l'hétérogénéité observée expérimentalement n'a de conséquences sur les performances de l'installation que dans le cas d'un pic de concentration brutal excédant les caractéristiques pour lesquelles le biofiltre a été dimensionné.

REFERENCES

- (1) Ballay D., Blais J.F., Le traitement des eaux usées, Rev. Sci. Eau, n° spécial 1998, 77-86 (1998)
- (2) Canler J.P., Durand C., Perret J.M., Efficacité des biofiltres vis-à-vis de l'azote. in : Colloque « traitement de l'azote. Cas des eaux résiduaires et des lisiers », Pollutec Lyon, 25/10/96, 39-52, Cemagref éditions, Antony (France) (1996)

- (3) Tschui M., Boller M., Gujer W., Eugster J., Mader C. Tertiary nitrification in aerated biofilter reactors. in : Proceedings of the european water filtration congress , 17, Oostende, Belgique, 2.25-2.38 (1993)
- (4) Boller M., Gujer W., Tschui M., Parameters affecting nitrifying biofilm reactors, Water Science and Technology, 29, n°10-11, 1-11 (1994)
- (5) Pujol R, Lemmel H, Vedry B., Le biofor en nitrification tertiaire : le prototype SIAAP de la station Seine aval (Achères). Techniques Sciences et Méthodes, 3, 23-34 (1998)
- (6) Séguret F., Racault Y., Hydrodynamic behaviour of a full-scale submerged biofilter and its possible influence on performances. in : Proceedings of the IAWQ 19th Biennial International Conference, Vancouver (Canada), 21-26/06/1998, 2, 254-261 (1998)
- (7) Harremoës P, Henze M., Biofilters. in : Wastewater treatment, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 143-193 (1995)
- (8) Toettrup H, Rogalla F, Vidal A, Harremoës P, The treatment trilogy of floating filters : from pilot to prototype to plant, Water Science and Technology, 29, n°10-11, 23-32 (1993)

HYDRODYNAMIQUE DANS UN DECANTEUR DE STATION D'EPURATION : UTILISATION DES TRACEURS RADIOACTIFS ET MODELISATION

Z. DO-QUANG, P. CHATELLIER, J.M. AUDIC

◁ CIRSEE-Suez Lyonnaise des Eaux
38, rue du Président Wilson
78230 LE PECQ

RESUME

I. INTRODUCTION

Le procédé à boues activées est le procédé de traitement des eaux résiduaires urbaines le plus répandu en France. Ce procédé couple un réacteur biologique à un décanteur (figure 1). Dans ce procédé la biomasse, qui se développe dans le réacteur biologique, est séparée de l'eau traitée dans un décanteur puis renvoyée dans le réacteur biologique.

Par suite une biomasse se développe dans le système "réacteur biologique-décanteur". Cette biomasse, par son activité, réalise la dépollution de l'eau résiduaire.

Bien entendu la biomasse est active dans le bassin d'aération comme dans le clarificateur. Les modèles utilisés dans la simulation de ces installations doivent donc prendre en compte l'activité de l'ensemble de la biomasse présente à la fois dans le réacteur biologique et dans le décanteur. Pour cela il est intéressant de connaître la distribution des temps de séjour des boues contenue dans le décanteur.

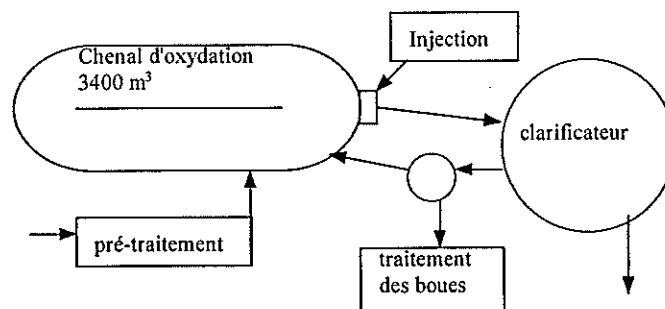


Figure 1. Station d'épuration de Villiers Saint Paul

II. PROBLEMATIQUE, APPROCHES ET METHODES

Plusieurs types de mesures permettent de caractériser le fonctionnement des clarificateurs. Parmi ces méthodes de mesures les plus simples permettent de déterminer le temps de séjour hydraulique dans le clarificateur. La méthode la plus classique consiste à réaliser un traçage à l'aide de chlorure de lithium. La détermination de la distribution des temps de séjour des matières solides est plus délicate.

Des méthodes de bilan permettent de suivre la masse de boues contenues dans le clarificateur. Elles consistent à mesurer les débits et concentrations de matières en

suspension entrant et sortant des clarificateurs. On peut alors réaliser des bilans sur les matières en suspension sur l'ouvrage étudié. Malheureusement les flux de matières en suspension transitant par le clarificateur sont assez élevés par rapport au stock contenu dans l'ouvrage. Le temps de séjour des matières en suspension dans le clarificateur est donc relativement faible (de l'ordre d'une heure). La simple différence des flux de matières en suspension entrant et sortant ne permet donc pas d'exprimer la quantité de biomasse contenue dans le clarificateur. Ceci est d'autant plus vrai que les erreurs de mesures des appareils utilisés sont assez élevées. La différence entre les flux entrant et sortant de l'ouvrage parfois est proche de l'erreur de mesure. Il est donc nécessaire de compléter ces données par une mesure de la hauteur du lit de boues présent dans le fond du clarificateur. Cette mesure donne une information directe sur la quantité de boues contenue dans le clarificateur.

Malheureusement toutes ces mesures ne permettent pas d'obtenir une distribution des temps de séjour des boues contenues dans le décanteur. Seule la réalisation d'un traçage permet d'accéder à cette information.

III. TRAÇAGES DES BOUES AVEC DES COMPOSES RADIOACTIFS

La distribution des temps de séjour des boues est importante si l'on désire estimer l'impact de l'activité biologique présente dans le clarificateur sur le fonctionnement global de l'installation. En effet si une fraction de boues reste trop longtemps immobilisée dans le clarificateur elle peut subir des modifications biologiques susceptibles d'altérer le fonctionnement de l'ensemble de l'installation de traitement.

Un traçage des solides dans le clarificateur c'est avéré nécessaire. Les traceurs classiques sont des composés qui s'adsorbent sur la biomasse. Pour réaliser le traçage on doit alors réaliser un prélèvement et une analyse. Se pose alors le problème de la représentativité de l'échantillon vu les faibles volumes de fluide analysés. Dans le cas décrit ici de l'or radioactif a été utilisé pour réaliser les traçages. En effet ce composé possède une grande affinité envers les floes et ne modifie pas leur comportement. Il peut en outre être détecté à l'aide d'une sonde mesurant l'intensité des rayons émis.

L'or radioactif a une période de demie vie suffisamment faible pour pouvoir être rejeté dans l'environnement. Les principales caractéristiques de l'or radioactif sont les suivantes :

- période de demie vie de 2,7 jours.
- des radiations faciles à détecter : 410keV.
- la fixation sur les floes se fait par des réactions d'oxydoréduction.

Les mesures expérimentales ont été réalisées sur le clarificateur de la station d'épuration de Villers Saint Paul (Banlieue de Creil). Cet ouvrage est un clarificateur raclé dont les principales caractéristiques sont données sur la figure 2.

Le radioélément est fixé sur les boues entrant dans l'ouvrage et l'évolution de la radioactivité a été mesurée par 12 sondes placées dans différents points du clarificateur. La réponse de la sonde située au niveau du tube de recirculation des boues a été utilisée pour déterminer la distribution des temps de séjour des boues dans l'ouvrage.

Trois cas de figure ont été étudiés :

- Essai 1 : lit de boues normal et débit de recirculation de 250 m³/h. (Figure 3).
- Essai 2 : petit lit de boues et débit de recirculation de 250 m³/h. (Figure 4).
- Essai 3 : petit lit de boues et débit de recirculation de 500 m³/h. (Figure 5).

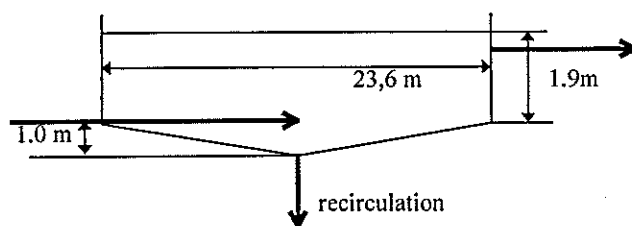


Figure 2. Caractéristiques du clarificateur

Les figures 3, 4 et 5 donnent les résultats des traçages réalisés. Sur ces figures l'abscisse est donnée en minutes et l'ordonnée en nombre de pulsations par seconde reçues par le détecteur. Cette grandeur traduit l'intensité du rayon et est directement proportionnelle la concentration en matériaux traçant. L'intensité du rayon a été corrigée pour tenir compte de la période de demie vie du traceur.

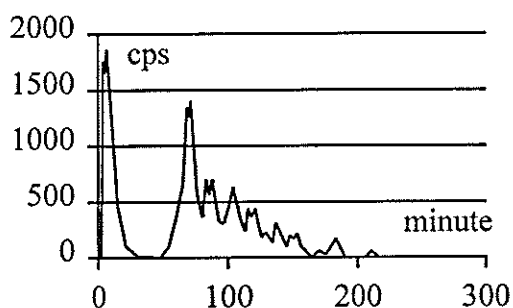


Figure 3: Traçage de l'essai

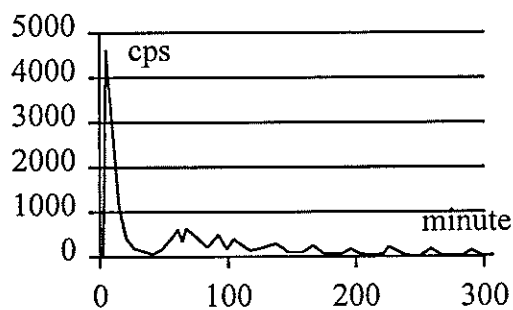


Figure 4: Traçage de l'essai

	Lit boues normal	Petit lit boues	Petit lit boues
Débit d'entrée	69	96	76
Débit recirculation	250	250	500
% de court circuit	28	47	52
Temps de séjour moyen (minutes)	73	76	42

Tableau 1. Synthèse des résultats

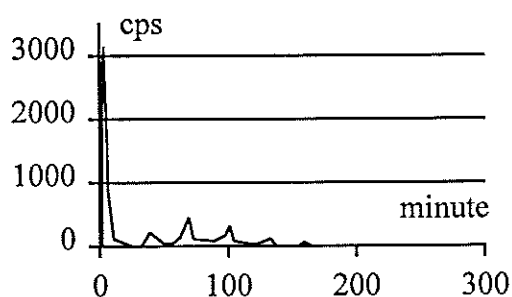


Figure 5: Traçage de l'essai

L'analyse des courbes 3, 4 et 5 a donné les résultats présentés dans le tableau 1 qui ont permis de mettre en évidence un taux de court-circuit des matières en suspension compris entre 28 et 52 pour-cent. Les deux traçages réalisés pour un petit lit de boues (peu épais) donne des taux de court-circuit relativement important par opposition au cas d'un lit de boues normal. On notera également que le taux de court-circuit est quasiment identique pour les deux essais où le lit de boues est fin et pour une valeur doublée du débit de recirculation. Le temps de séjour moyen de la biomasse dans le clarificateur a également été estimé. Contrairement au taux de court-circuit ce temps ne semble pas dépendre de la hauteur du lit de boues. En revanche il est fonction du débit de recirculation.

Une modélisation reposant sur des techniques de la mécanique des fluides numérique s'est donc avérée nécessaire pour mieux comprendre l'hydrodynamique du système.

IV. SIMULATIONS AVEC LE CODE ESTET

Le code de calcul ESTET (développé par EDF et commercialisé par la société Simulog) a été utilisé pour la simulation. Ce code résout les équations de Navier Stokes associées au modèle turbulent k-ε. Le modèle utilisé est de type monophasique avec transport d'un scalaire actif couplé avec le champ hydrodynamique. Le couplage entre le champ du scalaire et le champ hydrodynamique se fait par l'intermédiaire de deux équations permettant d'exprimer la variation locale de la masse volumique du fluide et sa vitesse de décantation en fonction de la concentration locale du scalaire. Les paramètres de l'équation de la vitesse de décantation doivent être ajustés à partir de données expérimentales préalablement obtenues. Le modèle permet de prédire le champ de vitesse et la distribution des concentrations dans le cas d'une suspension de floes en écoulement turbulent stabilisé. A partir du champ hydrodynamique ainsi obtenu il est possible par l'utilisation des techniques de traçage numérique de remonter à la distribution des temps de séjour des phases.

IV.1. Résolution de l'équation de transport de la concentration boues

En écrivant le bilan de conservation (avec les termes de convection, diffusion disparition par sédimentation) en coordonnées cartésiennes et en écoulement bidimensionnel, on obtient :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial x} + (V - V_s) \frac{\partial C}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{t,x} \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{t,z} \frac{\partial C}{\partial z} \right)$$

Les coefficients de diffusion turbulente de la matière en suspension $D_{t,x}$ et $D_{t,z}$ (qui sont des grandeurs difficilement accessibles) sont calculés à partir de la viscosité turbulente ν_t (donnée par le modèle de turbulence) et du nombre de Schmidt turbulent σ_t ($\cong 1$). Ainsi l'équation précédente devient:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial x} + (V - V_s) \frac{\partial C}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\nu_t}{\sigma_{t,x}} \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\nu_t}{\sigma_{t,z}} \frac{\partial C}{\partial z} \right)$$

avec : U, V = vitesses du fluide suivant les directions x et z (m/s)

V_s = vitesse de sédimentation des boues (m/s)

ν_t = viscosité turbulente du fluide (m^2/s)

$\sigma_{s,x}, \sigma_{s,z}$ = Nombre de Schmidt turbulent suivant les directions x et z

La vitesse de sédimentation est le paramètre qu'il faut ajuster expérimentalement. Elle est représentée le plus souvent par une loi exponentielle décroissante par rapport à la concentration des boues (exemple courbe type). Dans ces régions de faibles concentrations, on observe expérimentalement que la vitesse des particules augmente avec la concentration (décantation diffuse) pour atteindre un maximum. Il correspond à un état des particules où elles ne vont plus s'agglomérer mais se gêner. Pour prendre en compte ces deux phénomènes et ce maximum de la vitesse de décantation, Takacs (1991) propose une formule en double exponentiel :

$$V_s = V_0 (\exp^{-K_1(C - C_{\min})} - \exp^{-K_2(C - C_{\min})})$$

avec : V_0 = vitesse de chute de la particule libre (m/s),

K_1 = paramètre de décantation des floes (obtenu expérimentalement) (l/g),

K_2 = paramètre de décantation des colloïdes (obtenu expérimentalement) (l/g),

C = concentration en boue (g/l),

C_{\min} = concentration minimum dans le clarificateur (g/l)

C_0 = concentration des boues à l'entrée du clarificateur (g/l)

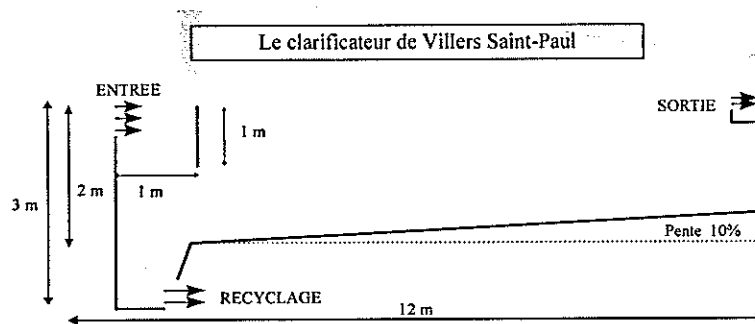
La masse volumique du mélange eau+boue (ρ_m) est la variable à travers laquelle la boue va influencer l'écoulement. Pour trouver une relation simple il suffit de considérer un volume V_e d'eau claire ayant une masse volumique ρ_e (1000 kg/m³) dans lequel on rajoute un volume V_b de boue sèche ayant une masse volumique ρ_b . En écrivant la conservation de la masse et en supposant l'additivité des volumes, on peut écrire :

$$\rho_m(V_e + V_b) = \rho_e V_e + \rho_b V_b$$

En exprimant la concentration des boues dans le mélange comme $C = \frac{\rho_b V_b}{V_e + V_b}$ on obtient :

$$\rho_m = C + \frac{\rho_e V_e}{V_e + V_b}, \quad \text{soit} \quad \rho_m(x, z) = \rho_e + C(x, z) \left(1 - \frac{\rho_e}{\rho_b} \right)$$

IV.2. Géométrie et maillage



CONDITIONS AUX LIMITES :

(Conditions opératoires)

- Conditions d'entrée : $Q = 350 \text{ m}^3/\text{h}$, $C_0 = 4 \text{ g/l}$
- Conditions de sortie : $Q_e = 100 \text{ m}^3/\text{h}$ eau
 $Q_b = 250 \text{ m}^3/\text{h}$ boue recyclage

PARAMETRES de la SIMULATION :

- Maillage irrégulier: 40 000 noeuds
- Pas de temps : 0.25 s
- Paramètres vitesse de décantation :
 $V_a = 10 \text{ m/h}$, $K_1 = 0.59$, $K_2 = 18$, $C_{\text{max}} = 0.008 \text{ g/l}$

Les conditions limites sur les variables du système sont détaillées ci-après. Pour la vitesse du fluide on applique les conditions limites classiques : symétrie sur la surface libre, loi de paroi sur les bords, débit imposé en sortie et vitesse imposée en entrée. Pour prendre en compte la turbulence on utilise le modèle k- ϵ standard. Les conditions limites concernant l'équation de transport des boues sont donc les suivantes :

ENTREE	SORTIE	PAROI	SURFACE LIBRE	INTERFACE LIT DE BOUES
$C = C_0$	Bilan matière	Flux nul	$\frac{\nu_t}{\sigma_{t,z}} \frac{\partial C}{\partial z} + V_S C = 0$	si $C > C_{\text{max}} \rightarrow V_S = 0$

IV. 3. Résultats numériques

Il est clair que compte tenu de la rhéologie particulière de l'écoulement et des phénomènes d'amortissement de la turbulence près de l'interface du lit de boues le modèle de turbulence utilisé n'est pas très adapté et devrait être affiné en introduisant des termes sources appropriés. Néanmoins, l'objectif de ce travail dans un premier temps a été de tester les potentialités de l'approche CFD à simuler correctement les phénomènes de décantation.

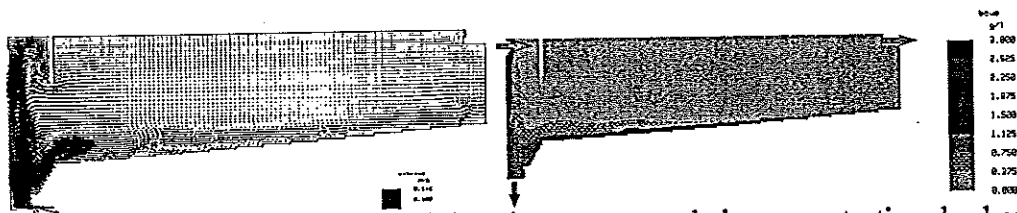


Figure 6. Champ vectoriel des vitesses eau et de la concentration des boues

Les simulations numériques confirment l'existence du court-circuit mis en évidence par les traçages expérimentaux (passage du nuage radioactif sortant du clifford directement dans le circuit de recirculation) qui s'explique par la chute du courant en entrée. En effet comme le montre la figure 6 dès sont entrée dans l'ouvrage l'écoulement plonge le long de la paroi sous l'effet de différence de densité entre le fluide entrant (chargé en boue) et le fluide présent dans le système (eau avec faible concentration de boues). Ensuite le courant principal, lorsqu'il rencontre la paroi de fond, génère un courant secondaire qui se propage sur toute la surface radiale du clarificateur. Une grande recirculation de faible vitesse (inférieure à 1 cm/s) est formée dans la zone supérieure du clarificateur ce qui est confirmée également par les traçages expérimentaux indiquant des vitesses radiales de transition à mi-hauteur de l'ouvrage de l'ordre de 0.5 cm/s. En appliquant les techniques de traçage numérique il est possible de simuler la courbe DTS le temps de séjour.

V. CONCLUSION

Le temps de séjour des boues est une donnée capitale pour les décanteurs secondaires car non seulement il intervient dans leur dimensionnement mais aussi il est un paramètre essentiel de contrôle du fonctionnement des stations d'épuration. Des temps de séjour courts ne permettent pas la bonne séparation des phases (décantation impossible) et les temps de séjours trop longs sont à l'origine du déclenchement des réactions de dénitrification dans le lit de boues perturbant le fonctionnement de l'ensemble des ouvrages (bassin biologique et clarificateur). La qualité de l'effluent est directement affectée par ce paramètre. Voilà pourquoi il doit être correctement estimé.

Des traçages à l'or radioactif et des simulations numériques ont été réalisées sur un ouvrage industriel afin de déterminer le temps de séjour des boues. Les résultats obtenus ont mis en évidence la complexité de l'écoulement dans le clarificateur (recirculations, courants de fonds, passages préférentiels). Les débits d'entrée et de recirculation ainsi que la concentration des boues dans le flux entrant ont une forte influence sur l'hydrodynamique du système. Les résultats numériques obtenus sont en bon accord qualitatif avec la réalité ce que montre que les potentialités du code ESTET à simuler des phénomènes de décantation.

REFERENCES

1. Matko, T., Fawcett, N., Sharp, A. and Stephenson, T., 1996, A numerical model of flow in circular sedimentation tanks, *Trans IchemE*, 74(B3): 197-204.
2. Imam E., McCorquodale J.A., Bewtra J.K., 1983, Numerical modelling of sedimentation tanks, *J Hydr Eng ASCE*, 109: 1740-1754.
3. Zhou S., McCorquodale J.A., 1992, Mathematical modelling of a circular clarifier, *Canadian J. Civ Eng*, 19:365-374
4. J.M. Audic, Ch. Fayoux, Y. Lesty, P. Brisset, 1994, Sludge retention times distribution in clarifier: a key point for population dynamic and nutrients removal control, *Wat. Sci. Tech.*, 29:57-60

CONDITIONS D'ÉCOULEMENT INSATURE

M. MOHAMMEDI, A. LAKEL

<> CSTB
84, av. J. Jaurès - Champs s/Marne
77421 MARNE LA VALLEE

C. DAGOT, M. BAUDU

<> ENSIL - LSEE
123, av. Albert Thomas
87060 LIMOGES

Résumé

Une caractérisation hydrodynamique de différents matériaux de garnissage a été réalisée. Cette étude a permis d'une part de classer les matériaux suivant l'importance des temps de séjour de l'effluent, paramètre intimement lié à la capacité épuratoire, et d'autre part, de rendre compte de la présence de courts-circuits ou de volumes morts au sein de chaque massif. L'exploitation des D.T.S. montre que les matériaux se comportent différemment. Le modèle de réacteurs en cascade avec échange de matière a été utilisé afin de décrire les D.T.S. obtenues. Cette modélisation a permis de montrer que suivant la nature du matériau, on passe d'un écoulement de type piston ($J = 200$) à un écoulement proche du mélangeur intégral ($J = 7$). Une bonne correspondance entre le temps de séjour moyen expérimental et théorique a été obtenue. Le temps d'échange a été exploité en fonction de la granulométrie et du taux de saturation en eau du massif filtrant.

I. INTRODUCTION

L'optimisation des performances des procédés d'assainissement semi-collectif vise à réduire les volumes des réacteurs biologiques, tout en maintenant de bonnes performances épuratoires. L'utilisation dans les massifs filtrants de matériaux de garnissage performants constitue à cet effet une alternative de choix. Dans ce cadre, de nouveaux matériaux sont susceptibles de remplacer le sable, matériau traditionnel en assainissement. Leur caractérisation est souvent physique (diamètre, densité, porosité, surface spécifique) ou fondée sur des performances épuratoires liées à leur capacité à retenir ou à traiter une pollution. Globalement, les qualités attendues de ces matériaux sont une bonne capacité de rétention de l'eau, un temps de séjour de l'effluent élevé, une aération naturelle optimale et un faible coût. Les trois premières qualités sont intimement liées à l'hydrodynamique du système filtrant.

L'objet de cette étude est de 1) caractériser l'hydrodynamique de massifs filtrants insaturés remplis de différents garnissages, 2) proposer une modélisation globale de l'écoulement au sein de ces systèmes et 3) définir de nouveaux paramètres caractérisant un garnissage.

II. MATÉRIELS ET MÉTHODE

Une colonne de 8 cm de diamètre garnie sur une hauteur de 90 cm a été utilisée. Les filtres ainsi constitués sont alimentés en eau à l'aide d'une pompe péristaltique. La charge hydraulique (Ch) est fixée à $0,1 \text{ m.h}^{-1}$.

Les matériaux utilisés sont : perlite expansée, sepiolite, zéolithes (deux types : la clinomin V et la chabamin J respectivement de la famille des clinoptilolites et des chabazites), pouzzolane, verre expansé, sable et cutilène (laine de roche).

Le système filtrant fonctionnant en régime permanent est excité par un signal impulsionnel et la réponse du système est mesurée en sortie. Le traceur utilisé est de l'iodure de potassium.

III. CARACTERISATION DE L'HYDRODYNAMIQUE

III.1. Comparaison des matériaux

Le classement des matériaux montre que la perlite, la sepiolite et à un degré moindre les deux zéolithes présentent les temps de séjour moyens les plus importants. En revanche, le cutilène et notamment le verre expansé sont caractérisés par de faibles temps de séjour moyens. On passe en effet, de 47 minutes pour le verre expansé à 331 minutes pour la perlite expansée. Cette différence importante montre que la nature du matériau influe beaucoup sur le temps de séjour moyen (tableau I).

	perlite expansée	sepiolite	chabamin J	clinomin V	pouz- zolane	sable	cutilène	verre expansé
t_s (mn)	331,0	233,3	174,0	154,0	133,0	108,0	97,0	47,0

Tableau I : Temps de séjour moyens pour différents matériaux (Ch : 0,1 m.h⁻¹).

III.2. Diagnostic des réacteurs

Le rapport entre le temps de séjour moyen et le temps de passage (t_s/t_p) permet d'évaluer la qualité du mélange et de l'écoulement au sein d'un réacteur. Le temps de passage est accessible par la relation (1) :

$$t_p = \frac{V_t}{Q} \quad (1)$$

où V_t et Q désignent respectivement la quantité d'eau totale mise en jeu durant l'écoulement et le débit d'alimentation.

Lorsque le temps de séjour moyen est inférieur au temps de passage, on considère que le réacteur comporte des volumes morts. Dans le cas inverse, le réacteur présente des courts-circuits hydrauliques (1).

Suivant la nature du matériau, le comportement est totalement différent (tableau II).

	perlite expansée	sepiolite	chabamin J	clinomin V	pouz- zolane	sable	cutilène	verre expansé
t_s/t_p	1,2	0,92	0,98	1,02	1,16	0,9	2,22	0,46

Tableau II : Rapports entre t_s et t_p (Ch : 0,1 m.h⁻¹).

La qualité de l'écoulement pour certains matériaux semble idéale. C'est le cas des deux zéolithes et à un degré moindre le sable, la perlite et la sepiolite. En revanche, le cutilène présente des courts-circuits très prononcés. Sa texture fibreuse pourrait être à l'origine de ce dysfonctionnement. Le verre expansé est caractérisé par des volumes morts représentant environ 50 % du volume du réacteur.

III.3. Caractérisation et modélisation des D.T.S.

III.3.1. Caractérisation des D.T.S.

Les essais de traçage sur les différents matériaux révèlent des D.T.S. différentes suivant les matériaux (figure 1).

Nous distinguons deux types d'allures : des gaussiennes assez symétriques et des cloches avec une déformation plus ou moins importante de la partie terminale.

L'écoulement insaturé est caractérisé par des courbes en forme de cloche avec une déformation importante de la partie terminale (2). Ce résultat est vérifié dans le cas de la pouzzolane et du verre expansé. En revanche, sous les mêmes conditions, le sable, la perlite expansée et les deux zéolithes présentent des courbes symétriques.

III.3.2. Modélisation des D.T.S.

Nous avons choisi de représenter les différentes D.T.S. par le système des mélangeurs en cascade avec échange de matière, en nous appuyant sur un outil logiciel pratique développé à cette fin au Laboratoire des Sciences du Génie Chimique de Nancy (3). Le modèle est caractérisé par les paramètres Tau , J , T_m et K représentant respectivement le temps de passage dans la phase active, le nombre de réacteurs en série, le temps d'échange entre la phase active et stagnante et enfin le rapport des volumes stagnant et actif. En terme mathématique, ces paramètres sont écrites en fonction du débit d'alimentation Q , des volumes actif et stagnant V_{ai} et V_{si} et de la fraction de fluide échangeable α par les relations suivantes :

$$Tau = J \frac{V_{ai}}{Q} \quad (2)$$

$$T_m = \frac{V_{ai}}{\alpha Q} \quad (3)$$

$$K = \frac{V_{si}}{V_{ai}} \quad (4)$$

Le paramètre K caractérisant le rapport entre les volumes stagnant et actif a été déterminé expérimentalement. Nous avons supposé que les volumes actif et stagnant correspondent respectivement au volume d'eau égouttable (V_e) et au volume d'eau retenue après égouttage (V_r). La valeur de K est ainsi fixée et l'optimisation des paramètres Tau , J et T_m a été effectuée de façon à approcher les D.T.S. expérimentales obtenues. Le nombre d'itération et la précision sont fixés respectivement à 1000 et 0,1%. Les résultats de ces simulations sont représentés sur le tableau III et la figure 1.

Comme le montre la figure 1, les courbes théoriques sont superposables aux courbes expérimentales. Le modèle des mélangeurs en cascade avec échange de matière peut décrire les écoulements en milieu insaturé.

Matériaux	Paramètres du modèle						
	Tau (mn)	J	T_m (mn)	K	t_{th} (mn)	t_s (expéri.) (mn)	E. R. (%)
cutilène	43,1	200	3,3	1,1	90,0	97,0	7,2
perlite expansée	66,5	197	0,3	3,7	311,2	331	6,0
pouzzolane	40,4	150	15,9	2,1	123,1	133,0	7,4
sable	37,5	185	0,5	1,8	103,9	108,0	3,8
sepiolite	24,8	137	18,9	7,2	202,9	233,3	13,0
verre expansé	9,9	7	18,9	3,6	45,4	47,0	3,4
chabamin J	48,0	72	7,1	2,5	170,3	174,0	2,1
clinomin V	56,1	150	7,8	1,7	154,4	154,0	0,2

Tableau III : Valeurs optimisées des paramètres du modèle DTS

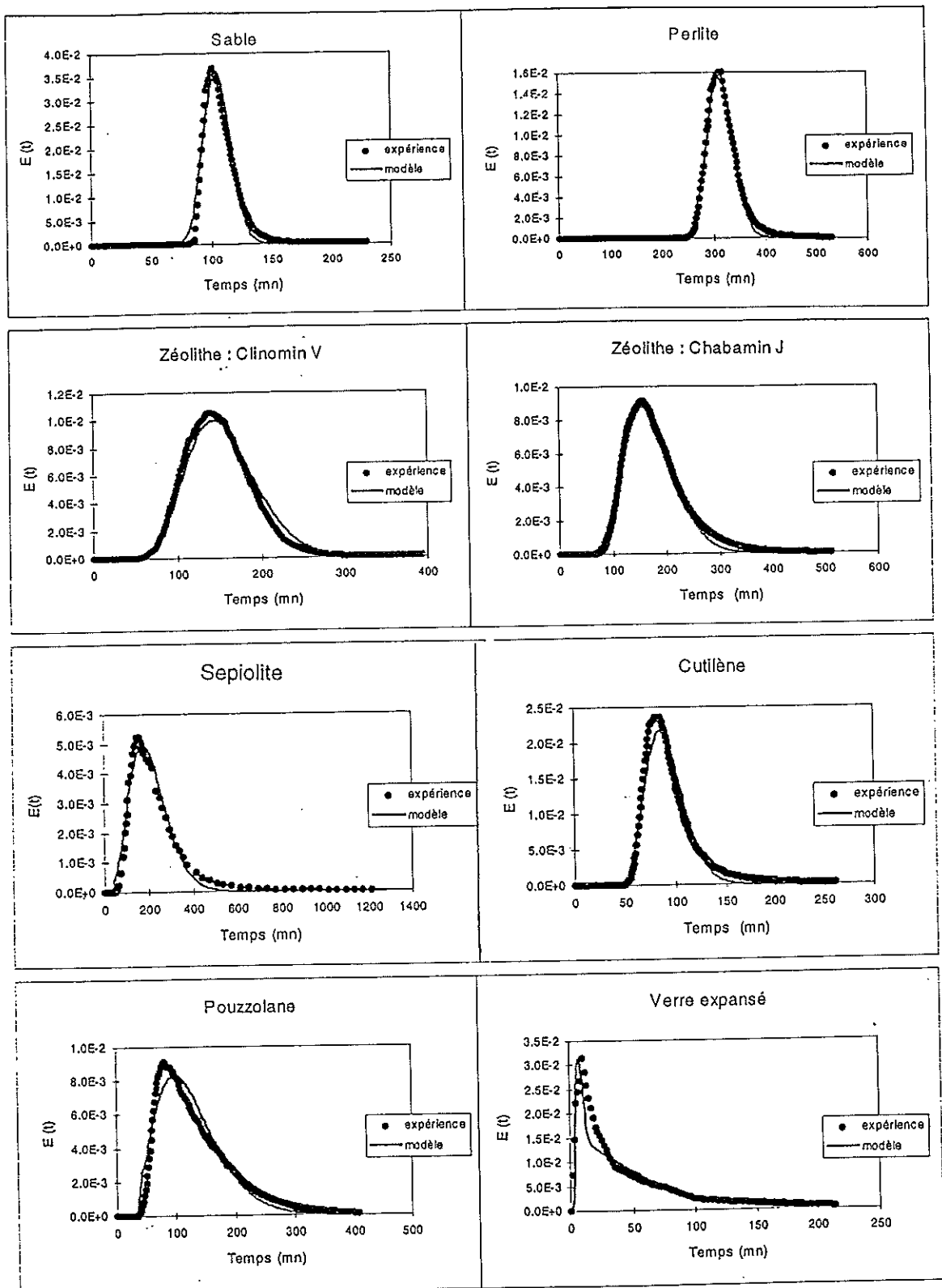


Figure 1 : Modélisation des distributions des temps de séjour avec le logiciel DTS

Le tableau III montre que l'écoulement piston est obtenu pour tous les matériaux sauf dans le cas du verre expansé qui manifeste le comportement d'un mélangeur intégral. Ce résultat est intéressant pour le dimensionnement, souvent empirique, des filtres biologiques. En considérant des réactions d'ordre 1, et pour un taux de conversion quasi total, un réacteur à écoulement piston nécessite un volume largement inférieur à celui d'un réacteur parfaitement mélangé (1 et 5).

Ainsi, un filtre garni de perlite, de sable ou de sepiolite nécessiterait beaucoup moins de volume qu'un filtre garni de verre expansé. Cependant, en épuration biologique, l'ordre des réactions varie généralement entre 0 et 1 en fonction de la concentration de la pollution biodégradable. Lorsque l'ordre est nul, la dimension du réacteur n'est pas une fonction du type d'écoulement.

On remarque que le temps d'échange (T_m) entre les phases stagnante et active varie d'un matériau à un autre. Si on porte les valeurs de T_m en fonction de la granulométrie du massif, on observe deux stades : une nette croissance des valeurs de T_m en fonction de la taille des grains suivie d'un palier pour des valeurs du diamètre moyen $D_m \geq 2,5$ mm (figure 2).

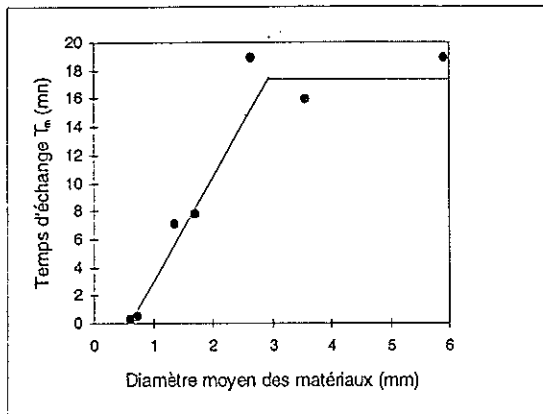


Figure 2 : Influence de la taille des grains sur le temps d'échange

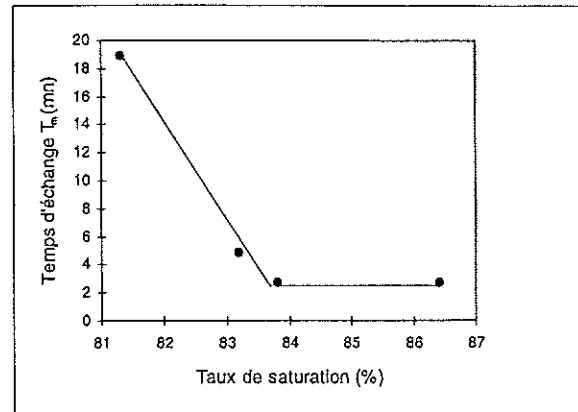


Figure 3 : Variation du temps d'échange en fonction du taux de saturation (cas de la sepiolite)

Pour un écoulement saturé et en comparant le sable et le gravier, certains auteurs (4) ont montré que plus la granulométrie du massif est fine, plus la dispersion est faible. On peut admettre que l'écoulement piston est associé à la granulométrie fine du matériau. Dans ce cas, les zones stagnante et active se confondent et le temps d'échange entre elles devient négligeable voir nul. Le sable et la perlite présentent cette situation. Inversement, plus la granulométrie du massif est importante, plus on s'écarte du fonctionnement idéal. Les deux phases (stagnante et active) ne peuvent plus être considérées comme confondues, et un échange de matière s'opère alors entre elles. La figure 2 montre que ce temps est d'autant plus lent que la granulométrie du milieu est grossière. Toutefois, au-delà d'un certain diamètre (2,5 mm), le temps d'échange semble se stabiliser à une valeur finale indépendante de la granulométrie du milieu.

Un phénomène analogue à celui constaté sur la figure 2 est observé en augmentant le débit d'alimentation, donc le taux de saturation dans le massif (le taux de saturation représente la fraction du volume occupé par l'eau mise en jeu durant l'écoulement rapporté au volume du vide initial dans le massif). Le temps T_m décroît linéairement en fonction de l'augmentation du taux de saturation pour atteindre un palier (figure 3).

A mesure que le débit augmente, l'écoulement au sein du massif filtrant tend à être saturé. La distinction des deux phases (stagnante et active) s'estompe progressivement, engendrant ainsi une diminution du temps d'échange. Cette situation se poursuit jusqu'à atteindre un palier aux environs de 84% de taux de saturation, où le temps d'échange devient indépendant du taux de saturation.

Si l'on admet que l'épuration est d'autant plus satisfaisante que la valeur de T_m est faible (ce qui est *a priori* logique, car lorsque le temps d'échange est élevé, il est probable que la matière polluante soit entraînée par le fluide en écoulement avant qu'elle n'ait le temps de s'échanger avec la phase stagnante et donc le biofilm), il apparaît ainsi que les

conditions optimales relatives au milieu filtrant et à l'hydraulique du système, soient dictées par une faible granulométrie et un taux de saturation en eau élevé.

Le paramètre Tau du modèle ne traduit que le temps de passage dans la phase active. Afin d'avoir le temps de séjour moyen théorique de tout le réacteur, il y a lieu de multiplier après optimisation, le terme Tau par le terme $1+K$. Le temps de séjour moyen théorique est ainsi donné par la relation (5).

$$t_{th} = Tau(1 + K) \quad (5)$$

Le calcul de l'erreur relative (E.R.) montre qu'un faible écart est obtenu entre les valeurs des temps de séjour moyens expérimentaux et théoriques (tableau III).

IV. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

La détermination des temps de séjour moyens a permis d'une part, de classer les matériaux suivant ce paramètre et d'autre part, de diagnostiquer les réacteurs moyennant le rapport t_g/t_p . A l'inverse des autres matériaux, le cutilène et le verre expansé sont les matériaux qui s'écartent le plus du cas idéal où le rapport vaut 1.

Le profil des D.T.S. est étudié pour les différents matériaux et le logiciel *DTS* a été utilisé pour décrire ces courbes expérimentales. Il en résulte que le modèle de cascade de réacteur avec échange de matière peut décrire les écoulements en conditions insaturées.

Par ailleurs, la modélisation a permis de mettre en valeur certains paramètres tels que le nombre de réacteurs en série (J) et le temps d'échange (T_m). Le paramètre J est un outil traduisant le type d'écoulement qui s'opère dans le massif filtrant. Le temps d'échange T_m semble varier en fonction de la granulométrie et du taux de saturation en eau du milieu filtrant.

L'un des plus important paramètres d'optimisation des dispositifs filtrants est le temps de séjour moyen. La perlite expansée, la sepiolite et les deux zéolithes présentent des temps de séjour moyens plus important que celui du sable. Ces matériaux peuvent donc se substituer au sable. Il reste à vérifier que ces matériaux fournissent une aération naturelle optimale afin de maximiser les cinétiques biologiques d'élimination de la matière carbonée et la nitrification des effluents.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- (1) Villiermaux J. "Génie de la réaction chimique-Conception et fonctionnement des réacteurs" 2^{ème} Edition Tec & Doc - Lavoisier, 443 p., (1993).
- (2) Aranyossi J. F. " Contribution à l'étude des transferts d'eau et de soluté dans la zone non saturée par traçage cationique et isotopique" Thèse de 3^{ème} cycle, Université Paris VI, (1978).
- (3) Leclerc J.P., Detrez C., Bernard A., Schweich D. "DTS : un logiciel d'aide à l'élaboration de modèles d'écoulement dans les réacteurs" Rev. IFP 50, (5), (1995).
- (4) Lakel A., Baudu M., Dagot C. "Hydrodynamique d'un filtre biologique en système insaturé avec nitrification d'un effluent septique" Wat. Res., (646), à paraître (1998).
- (5) Levenspiel O. "Chemical reaction engineering" 2^{ème} Edition Ed. John Wiley & Sons, INC, New York, London, Sydney, Toronto 578 p., (1972).

MODELISATION DES ECOULEMENTS RUISSELANTS SANS PRESSION EN REGIMES PERMANENT ET PULSE PERIODIQUE DANS LES SYSTEMES FILTRANTS D'ASSAINISSEMENT AUTONOME

A. LAKEL, M. MOHAMMEDI

<> CSTB
84, av. Jean Jaurès - Champs s/Marne
77421 MARNE LA VALLEE

C. DAGOT, M. BAUDU <>

ENSIL - LSEE
123, av. Albert Thomas
87060 LIMOGES

Résumé

La plupart des systèmes d'assainissement autonome fondée sur des approches de dimensionnement empiriques ou de savoir - faire ne répondent que partiellement aux exigences de rejet. Ces systèmes dans leur grande majorité utilisent des milieux filtrants épurateurs alimentés de manière séquentielle de façon à répartir l'effluent sur l'ensemble de la surface filtrante. Dans cette étude, nous présentons la modélisation de l'écoulement rencontré dans ces systèmes. Cet écoulement, insaturé, est représenté par le modèle DEM, appliqué au régime pulsé périodique, selon une méthodologie permettant la transformation d'une réponse impulsienne obtenue avec un écoulement à débit variable en réponse à débit constant.

Introduction

La plupart des systèmes d'assainissement autonome fondés sur des approches de dimensionnement empiriques ou de savoir - faire ne répondent que partiellement aux exigences de rejet. Ces systèmes dans leur grande majorité utilisent des milieux filtrants épurateurs alimentés de manière séquentielle de façon à répartir l'effluent sur l'ensemble de la surface filtrante. De plus, afin de favoriser une aération biologique nécessaire à l'activité bactérienne en place, les conditions de fonctionnement de tels filtres imposent un écoulement de type ruisselant (écoulement en milieu insaturé). L'optimisation des performances de ces procédés nécessite en préalable la caractérisation des écoulements au sein des filtres épuratoires.

Sur le plan scientifique, les courbes de DTS expérimentales obtenues sur les massifs filtrants d'assainissement autonome, montrent que l'écoulement ruisselant ne peut être représenté précisément par un modèle classique avec flux piston et dispersion axiale. En effet, certains travaux (1 et 2) s'appuyant sur des observations phénoménologiques, semblent une bonne base pour la représentation de ce type d'écoulement. L'hydrodynamique du système est représentée par un écoulement à deux phases: une phase dynamique en interférence avec une phase d'eau immobilisée. Le bilan de masse relatif résultant, est établi (1) pour un écoulement de type piston dispersif dans la phase mobile et échange de matière avec une zone stagnante du fluide. La résolution de ce bilan de masse pour des conditions initiale et limite de celle d'un réacteur clos, réalisé dans le domaine de Laplace par Lakel et al (3), conduit à la fonction de transfert $G(s)$. On définit ainsi le modèle à flux piston à dispersion axiale avec échange de matière ou modèle DEM. L'inversion de G permet d'aboutir à l'expression de la fonction de distribution de temps de séjour. Le modèle est caractérisé par les paramètres suivants : f la fraction de fluide en écoulement dynamique, P le critère de dispersion axiale dans la phase dynamique, et η le nombre d'unités de transfert de matière entre la phase dynamique et la phase stagnante. Ces trois paramètres du modèle sont obtenus par minimisation d'une fonction objective.

Le modèle DEM est capable de représenter d'une part, les écoulements s'approchant du mélange intégral et flux piston et d'autre part, l'écoulement classique du flux piston à dispersion axiale avec les conditions initiale et limite de celles du réacteur fermé-fermé (3). L'ajustement du modèle aux points expérimentaux a permis de déterminer les valeurs des trois paramètres P, f, et η, pour les divers traçages en régime permanent. Toutefois, ce modèle, développé pour des écoulements en régime permanent ne peut être appliqué sans une adaptation judicieuse aux conditions d'écoulement à régime variable.

L'objectif de ce travail est de présenter d'une part, la méthodologie d'adaptation d'une réponse impulsionnelle obtenue avec un écoulement à débit variable et d'autre part, d'appliquer le modèle DEM à l'écoulement insaturé en régime pulsé périodique.

I. ADAPTATION DES REPONSES IMPULSIONNELLES A DEBITS VARIABLES

Rappelons que la réponse impulsionnelle est dérivée de la fonction concentration-temps à la sortie du système (impulsion de DIRAC) par l'équation 1

$$E(t) = \frac{Q(t) \cdot C(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} Q(t) \cdot C(t) \cdot dt} \quad (1) \quad \left| \quad E(t) = \frac{C(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} C(t) \cdot dt} \quad (2) \quad \left| \quad \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) dt = 1 \quad (3) \right.$$

Lorsque le débit est constant entre le temps d'apparition et le temps final de la DTS, l'équation 1 est transformée en équation 2. Cette équation permet d'écrire pour un débit constant la relation 3. Par contre, cette relation n'est plus valable lorsque le débit est variable. L'état du système est influencé par une variation du débit au cours du traçage. Pour contourner cette difficulté, certains auteurs (5) ont proposé une hypothèse qui repose sur le principe d'invariance du système physique en fonction de la variation du débit : *le système physique (espace occupé par le marqueur au cours du traçage) est supposé ne pas varier en fonction du débit. Seul le débit ou sa variation influe sur la réponse impulsionnelle.*

Ainsi, la transformation d'une réponse impulsionnelle obtenue à débit constant E(t), en réponse obtenue à débits variables E'(t') s'effectue avec la relation 4.

$$E'(t') = \frac{Q' E(t)}{Q} \quad (4) \quad \left| \quad t' = \frac{Q \cdot t}{Q'} \quad (5) \right.$$

La réponse impulsionnelle est considérée comme une suite de créneaux. Ces relations impliquent la discrétisation du temps à partir de l'injection en pas égaux à Δ t. Cette discrétisation du temps impose l'équation 6.

$$E(t) \Delta t = E'(t') \Delta t' \quad (6) \quad \text{avec} \quad \sum_{-\infty}^{+\infty} E'(t') \Delta t' = 1$$

$$\sum_{-\infty}^{+\infty} E(t) \Delta t = \sum_{-\infty}^{+\infty} E'(t') \Delta t' = \sum_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{Q'}{Q} \right) E(t) \Delta t' \text{ ce qui impose : } \Delta t' = \frac{Q}{Q'} \Delta t$$

Toutefois, pour éviter les problèmes de chevauchement des signaux lorsque le débit augmente et la disjonction des signaux lorsque le débit va décroître, on détermine des temps de séjour moyens à partir des relevés expérimentaux. On pose alors, t_m, temps moyen de séjour pour chaque signal comme suit (figure 1) :

$$t_m = \frac{t_1 + t_2}{2} \quad (7) \quad \left| \quad t'_{1m} = \frac{t'_2 + t'_1}{2} \quad (8) \quad \left| \quad \text{et } Y = \frac{t'_2 - t'_1}{t_2 - t_1} \quad (9) \right. \right.$$

E(t) permet d'accéder à E'(t) de la manière suivante :

$$E(t_{1m}) = Y_1 E'(t'_{1m})$$

$$\text{si } E(t_{1m})(t_2 - t_1) + E(t_{2m})(t_3 - t_2) = 1;$$

alors, $E'(t'_1 \bar{m})(t'_2 - t'_1) + E'(t'_2 \bar{m})(t'_3 - t'_2) = 1$.

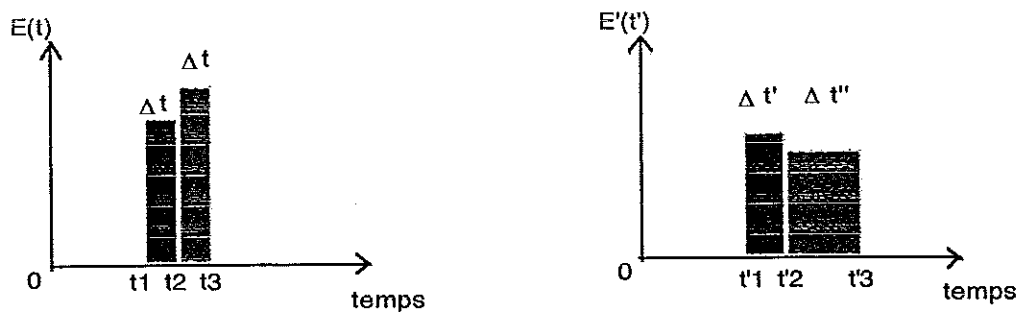


Figure 1 : Transformation d'une réponse à débits variables en une réponse à débit constant.

II. MATERIAU, MATERIELS ET METHODES

II.1. Matériau filtrant

Le matériau filtrant est un mélange constitué de sable de maçon (débarrassé de ses fines) et de flocons. Les principales caractéristiques des matériaux testés (selon ϕ) sont regroupées dans le tableau I.

Matériau	DE (mm)	Cu	γ_s	ϵ	As (m-1)
Mélange	0,25	2,8	2,41	0,61-0,65	20000

Tableau I : Caractéristiques physiques du garnissage utilisé. DE : diamètre effectif. γ_s : densité relative. ϵ : porosité externe du garnissage. As : Aire spécifique.

II.2. Matériels

Dans un premier temps, la caractérisation de l'écoulement a été réalisée sur une colonne garnie de diamètre égal à 20 cm et d'une hauteur de 95 cm. Dans un second temps, nous avons étudié ce mode de fonctionnement sur des colonnes de 30 cm de diamètre. 3 colonnes de mélange sable-géotextile ont été utilisées de hauteurs de garnissage de 20, 60 et 95 cm. L'alimentation en entrée est réalisée par injection de 300 ml pendant 1 minute toutes les heures. Le débit de sortie est mesuré en fonction du temps de manière à étudier la déformation des créneaux initiaux au cours du transport dans la colonne.

Caractérisation hydrodynamique

L'alimentation est effectuée de manière pulsée et périodique sur les colonnes où l'écoulement est insaturé. Le traceur est injecté après établissement du régime (24 h), de manière très brève lors d'un créneau de fluide. Le temps d'injection t est de 1 mn et la période est de 60 mn. La transformation des signaux et la détermination des temps de séjour est opérée selon la procédure suivante : la variation du débit est discrétisée en pas de temps égaux à Δt à partir du temps d'injection du traceur. La transformation consiste à définir le temps t (temps de séjour déterminé si le débit était constant) à partir de t' (temps de séjour mesuré à débit variable) grâce à la relation 10. Ainsi grâce aux équations 7,8 et 9, il est alors possible construire les courbes de DTS.

$$t = \sum_{i=1}^n (Q_i / Q) \Delta t + k(Q_{n+1} / Q) \Delta t \quad (10)$$

III. RESULTATS

III.1. Caractérisation hydraulique

Etude préliminaire sur colonne de 20 cm de diamètre:

La figure 2 représente les évolutions des débits d'entrée et de sortie en fonction du temps. La série impulsionnelle du débit d'entrée est transformée par le massif filtrant. En effet, à la sortie du filtre, nous observons une variation périodique de faible amplitude. Le filtre semble se comporter comme un "amortisseur hydraulique". Cet amortissement peut s'expliquer par l'effet de dispersion hydrodynamique à travers le garnissage en condition insaturée. Les deux variations du débit l'un imposé à l'entrée, l'autre observé à la sortie présentent un déphasage.

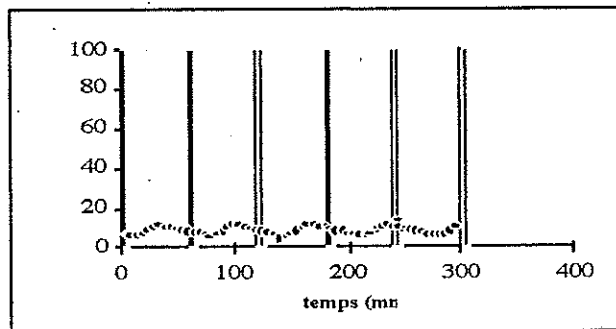


Figure 2 : Débit de sortie de filtre (points) généré par le débit impulsionnel périodique d'entrée $Q = 300 \text{ ml.h}^{-1}$ (débit moyen $Q_m = 5 \text{ ml.mn}^{-1}$), colonne de $D = 20 \text{ cm}$, Profondeur $H = 95 \text{ cm}$.

Comportement hydraulique du massif sur colonne de 30 cm de diamètre:

A 20 cm de profondeur, la réponse du signal d'entrée est une série de pic d'amplitudes (40 ml.mn^{-1}) et d'allures identiques présentant une traînée en fin de courbe (figure 3). Il est à noter que ces profils sont similaires à ceux rencontrés dans les courbes de D.T.S. en régime permanent. Il y a une succession de pics. Chaque pic est suivi d'une traînée. Il s'agit d'une série de courbes de drainage qui mettent en évidence l'existence de phase stagnante dans ce type d'écoulement. A 60 cm de profondeur de massif, la variation du débit de sortie est toujours périodique mais avec une très faible amplitude: le débit permanent est quasiment atteint. A 95 cm de profondeur (figure 4), le régime permanent est considéré comme atteint.

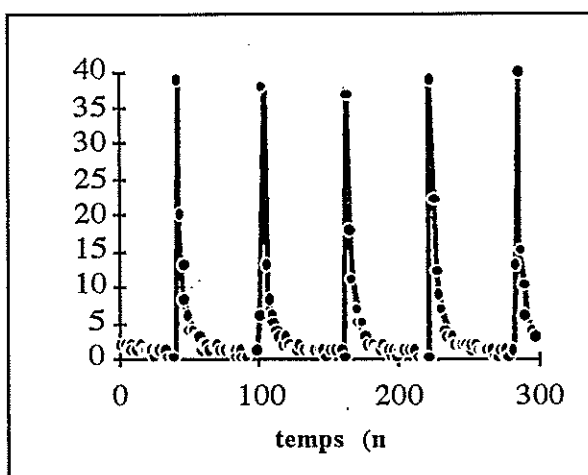


Figure 3 : Débit de sortie à 20 cm de profondeur (débit moyen, $Q_m = 5 \text{ ml.mn}^{-1}$), colonne de $D = 30 \text{ cm}$.

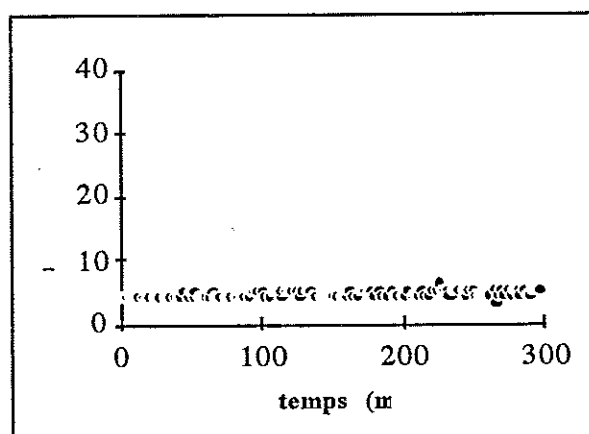


Figure 4 : Débit de sortie à 95 cm de profondeur (débit moyen, $Q_m = 5 \text{ ml.mn}^{-1}$), colonne de $D = 30 \text{ cm}$.

III.2. Etude expérimentale des D.T.S.

Dans le tableau II sont consignés les temps de séjour moyens calculés par la méthode des moments et la charge hydraulique pour chaque débit d'entrée.

Débit (ml.h ⁻¹)	Ch (cm.j ⁻¹)	ts (mn)	P	f	h
300	10	1949	83	0.65	1.1
510	17	735	80	0.64	1.4
969	34	345	75	0.66	1.2
1916	65	181	70	0.6	1.3

Tableau II : Valeurs des charges hydrauliques et des temps de séjour en fonction du débit.. Valeurs des paramètres du modèle D.E.M. à différentes charges.

III.3. Application du modèle DEM

Influence de la variation du débit sur la D.T.S. :

Des simulations de D.T.S. ont été réalisées pour des hauteurs de massifs de 20, 60 et 95 cm de manière à voir les comportements hydrodynamiques théoriques en intégrant dans le modèle DEM, la variation de débit. A 20 cm de profondeur, la D.T.S. est fortement influencée par la variation du débit, notamment en sommet de courbe. Le nombre de dispersion P est estimé à 20, sachant qu' à une profondeur de 95 cm, P est de l'ordre de 80 en régime hydraulique permanent. Les paramètres f et η sont pris arbitrairement égaux à 0.65 et 1.4. A 60 cm de profondeur de massif, la D.T.S. présente une allure moins accidentée. A 95 cm de profondeur, les oscillations de la D.T.S. calculées à partir du modèle DEM et celles du débit sont orientées dans le même sens avant le pic (point le plus haut) de la D.T.S et dans le sens opposé après le pic (déphasage).

Ajustement du modèle aux résultats expérimentaux

Dans la figure 5, est représenté un exemple de modélisation d'une D.T.S. expérimentale obtenue pour une charge hydraulique d'entrée de 10 cm.j⁻¹ ($Q_0 = 300$ ml.h⁻¹). Un ajustement correct du modèle est obtenu. Dans le tableau II sont consignés les résultats des diverses modélisation. Il en ressort que P semble décroître quand la charge augmente, que la valeur de la fraction dynamique est identique à celle déterminée en régime permanent. Par contre η augmente légèrement avec la charge.

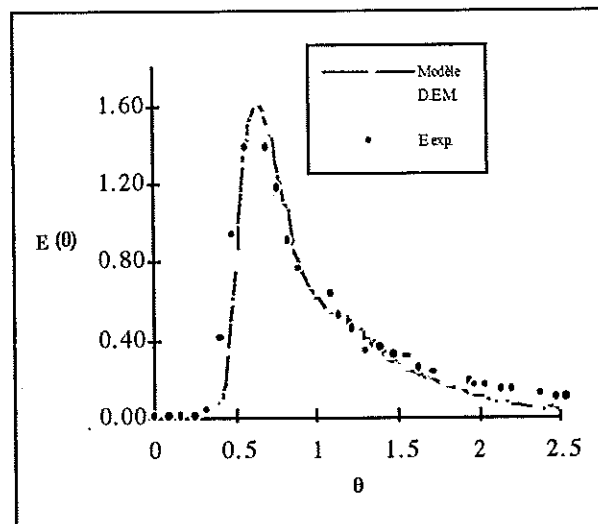


Figure 5 : Modélisation de l'écoulement à $Q_0 = 300$ ml.h⁻¹. Colonne de $D = 30$ cm, $H = 95$ cm, $P = 83$, $f = 0.65$, $h = 1.1$.

IV. CONCLUSION

La détermination des distributions de temps de séjours se heurte à deux problèmes cruciaux :

- d'une part la méthodologie de traçage usuelle (étude de la réponse impulsionnelle) ne peut s'appliquer dans tous les cas car elle repose sur le principe d'invariance du système physique étudié. Elle ne peut être utilisée lorsque le débit d'alimentation subit une variation lors du traçage.
- d'autre part la modélisation de l'hydrodynamique utilise des modèles bien souvent inadaptés pour quatre raisons essentielles : mauvaises conditions initiale et limite, modèles trop complexes, variables difficilement accessibles par la mesure, modèles empiriques.

Cette étude a permis de montrer que l'hydrodynamique au sein de massifs filtrants insaturés rencontrés en assainissement autonome peut être représentée même si le régime d'alimentation n'est pas toujours permanent.

NOMENCLATURE

$C(t)$: concentration ($M.L^{-3}$) au temps t	t_1, t_2, t_3 : temps de séjour (débit constant);
$E(t)$: réponse impulsionnelle (T^{-1}) au temps t	t'_1, t'_2, t'_3 : temps de séjour (débit variable);
$E'(t')$: réponse impulsionnelle à débit variable (T^{-1})	s : variable de Laplace,
$Q(t)$: débit au temps t ($L^3.T^{-1}$) en régime permanent	f : fraction de fluide en écoulement dynamique,
$Q'(t')$: débit d'alimentation au temps en régime variable ($L^3.T^{-1}$)	P : critère de dispersion axiale dans la phase dynamique,
Q_m : débit d'alimentation moyen	η : nombre d'unités de transfert de matière entre la phase dynamique et la phase stagnante,
t, t' : temps de séjour (T)	

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- (1) Van Deemter J.J.; Zuiderweg F.J.; Klinkenberg, A. (1956) A. Longitudinal diffusion and resistance to mass transfer as causes of nonideality in chromatography., *Chem. Eng. Sci.*, **5**, 271-289.
- (2) Villermaux J.; Van Swaaij W.P.M (1969) Modèle représentatif de la distribution des temps de séjour dans un réacteur semi infini à dispersion axiale avec zones stagnantes, *Chem. Eng. Sci.*, **24**, 1097-1111.
- (3) Lakel A. Baudu M. & Dagot C. "Hydrodynamique d'un filtre biologique en système insaturé avec nitrification d'un effluent septique" *Wat. Res.*, n°646, 25p., (1998).
- (4) Lakel A. (1995) Analyse déterministe de systèmes de biofiltration en écoulements saturé et insaturé dans le cadre d'un procédé d'assainissement autonome avec recyclage permettant l'élimination des composés azotés. Thèse de l'Université de Limoges.
- (5) Dzikowski M., Carlier E., Crampon N. (1981) Relations entre réponses impulsionnelles et conditions hydrodynamiques des systèmes dans le cadre de traçages artificiels : théories et application sur colonne de laboratoire. *J. Hydrol.*, **125**, 129-148.
- (6) Desjardins R. (1988) Le traitement des eaux. Ed. Ecole Polytechnique de Montréal, Montréal.

APPORT DU TRACAGE GAZEUX POUR L'ETUDE DE LA CIRCULATION DES GAZ EN CAS D'INCENDIE DANS UN LOCAL VENTILE

E. ESPI	<>	IPSN-DPEA-SERAC - CEA 17, rue des Martyrs 38054 GRENOBLE Cedex 9
Ph. BERNE	<>	CEA - DTA/DAMRI/SAT 17, rue des Martyrs 38054 GRENOBLE Cedex 9
P. DUVERNEUIL	<>	ENSIGC 18, chemin de la Loge 31078 TOULOUSE Cedex

RESUME

Dans le cadre d'une étude menée sur les transferts de contaminants en cas d'incendie dans un local ventilé, des expériences de traçage gazeux ont été réalisées à deux échelles différentes : à échelle réelle dans une cellule de 100 m³ ainsi qu'à échelle réduite dans une maquette d'environ 1 m³. Ces expériences ont permis de caractériser le transfert de la contamination dans les cellules, d'en définir des modélisations simples et de déterminer certains paramètres associés.

I. INTRODUCTION

Le risque incendie est présent dans toutes les installations industrielles. Dans le cadre de l'industrie nucléaire, il revêt une gravité particulière, dans la mesure où il entraîne une possibilité de relâchement de contaminants radioactifs hors de leur confinement (1). On conçoit alors tout l'intérêt d'une bonne compréhension et d'une bonne maîtrise du transport de ces contaminants à l'intérieur du local en feu, depuis leur source jusqu'aux issues du local, qui sont principalement les bouches d'extraction de la ventilation. Le travail exposé ici s'inscrit dans ce cadre, et porte sur le transfert de la contamination en cas d'incendie dans un local ventilé. Il comporte une part expérimentale importante, qui fait largement appel à la technique du traçage gazeux.

II LES INSTALLATIONS EXPERIMENTALES

II.1. Cellule d'essais à l'échelle 1

Nous avons pu utiliser un chambre d'essais de 100 m³ (5×4×5 m³), ce qui correspond sensiblement à la taille d'un local nucléaire en grandeur réelle. Cette cellule (figure 1) est équipée d'une ventilation mécanique consistant en un soufflage et une extraction, chacun comportant deux bouches, une en partie haute et une en partie basse du local. Le débit de ventilation atteint 3000 Nm³/h. Lors de nos expériences, l'incendie est simulé par un brûleur placé au centre de la pièce. La puissance maximum dégagée est de 150 kW, ce qui est représentatif de la combustion d'une boîte à gants (enceinte assurant le confinement de substances dangereuses, munie de gants pour leur manipulation sans contact direct, et souvent réalisée en matière plastique). L'instrumentation de la cellule comporte un ensemble de thermocouples, des analyseurs de gaz reliés par un piquage à la gaine d'extraction, et le système de traçage qui sera décrit plus loin.

Cette cellule nous a permis d'étudier trente-six configurations : soufflage en partie haute ou en partie basse, extraction en partie haute ou en partie basse, trois débits de ventilation différents, trois puissances calorifiques différentes.

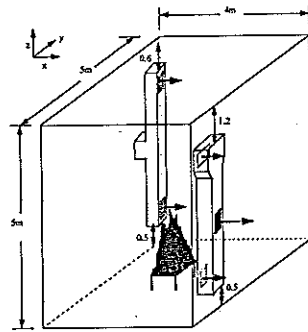


Figure 1 : Cellule d'essais à l'échelle 1

II.2. Cellule d'essais à échelle réduite

La cellule à l'échelle 1 présente cependant plusieurs inconvénients :

- le protocole expérimental y est relativement lourd,
- les points de mesure (et en particulier les prélèvements) ne sont pas mobiles en cours d'expérience, ce qui interdit en pratique de mesurer des profils,
- il n'est pas possible d'y faire des observations visuelles ou d'utiliser des méthodes optiques, par exemple pour la mesure des vitesses internes.

Cet ensemble de raisons nous a conduit à concevoir une cellule à échelle réduite, qui serait en similitude géométrique, mais également hydrodynamique et, dans la mesure du possible, thermique, avec la cellule à grande échelle. Nous inspirant de la littérature (2, 3), nous avons choisi de conserver deux nombres sans dimension :

$$\Pi_1 = \frac{gL_r}{V_r^2} \quad (1)$$

$$\Pi_2 = \frac{\sqrt{L_r} \dot{q}}{\rho C_p T_r \sqrt{g}} \quad (2)$$

où L_r , V_r et T_r sont les échelles de longueur, de vitesse et de température, \dot{q} la puissance du foyer, g l'accélération de la pesanteur, ρ et C_p la masse volumique et la capacité calorifique du fluide (l'air en l'occurrence). Cette similitude assure que le rapport entre les effets inertiels et gravitaires est conservé entre les deux échelles. Une similitude thermique correcte impose également des conditions sur les propriétés thermiques des parois, conditions qui n'ont pu être respectées ici. Notre similitude n'est donc que partielle et sa qualité demande à être vérifiée. A titre indicatif, nous avons choisi un rapport géométrique de 1/4,71 entre les deux échelles, ce qui donne un volume de cellule de l'ordre du mètre-cube pour l'échelle réduite.

II.3. Le système de traçage gazeux

Nous avons retenu l'hélium comme traceur, principalement à cause de sa stabilité en température. Il peut, suivant les expériences, être relâché par bouffées, émises par une capacité remplie sous une pression connue, ou de façon continue, par l'intermédiaire d'un débitmètre massique. La mesure est effectuée au moyen d'un spectromètre de masse Alcatel ASM 100 Turbo.

III. RESULTATS

III.1. Compréhension « qualitative » de l'écoulement

Un expérience de traçage, réalisée systématiquement dans les deux cellules, consiste à émettre une bouffée d'hélium au voisinage du brûleur et à en suivre la concentration à l'extraction. On simule donc très exactement le transport à l'intérieur du local d'un contaminant relâché par le foyer de l'incendie. Un résultat typique est donné en figure 2 :

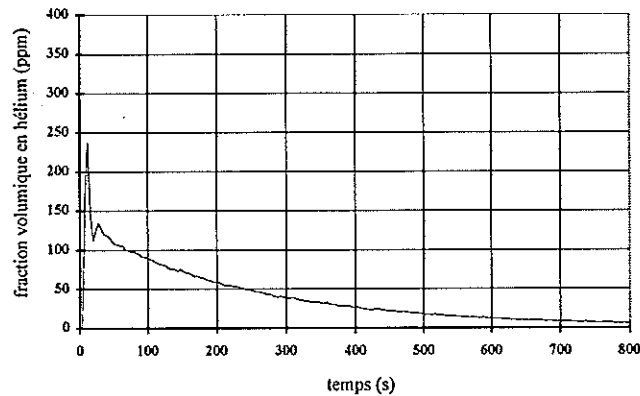


Figure 2 : Evolution typique de la concentration lors d'une expérience de traçage

On observe un pic de concentration (parfois deux), probablement lié à un flux de court-circuit, suivi d'une décroissance d'allure exponentielle. Tous les essais ont été doublés, ce qui a montré que la décroissance était reproductible, mais pas le ou les pics. Nous avons donc renoncé à exploiter ces derniers. En revanche, la décroissance s'est effectivement révélée de nature exponentielle et nous fournit donc pour chaque expérience une constante de temps, ou encore, comme il est traditionnel en ventilation, un *taux de renouvellement* (en heures⁻¹) égal à l'inverse de cette constante de temps.

Cette exploitation des traçages peut paraître sommaire ; en fait, la simple connaissance du taux de renouvellement nous fournit des informations intéressantes :

- du point de vue expérimental, elle nous permet d'ores et déjà de vérifier la qualité de la similitude entre les deux cellules : ramenés à la même échelle de temps, les taux de renouvellements doivent être identiques pour une expérience donnée. C'est ce que nous avons pu vérifier, à mieux que 15 % ;

- si l'on compare le taux de renouvellement mesuré avec le taux de renouvellement nominal (défini comme le rapport du débit d'extraction, exprimé aux conditions de température de celle-ci, et du volume de la cellule), on constate des situations très différentes suivant le position du soufflage et de l'extraction. En soufflage haut, les deux taux de renouvellement sont toujours très voisins, ce qui laisse à penser que la cellule se comporte comme un réacteur parfaitement agité. En soufflage bas, ils diffèrent de manière significative : le taux de renouvellement mesuré étant plus grand ou plus petit que le taux de renouvellement nominal suivant que l'extraction est en partie haute ou en partie basse. La confrontation de ces résultats avec les profils de température mesurés nous a permis d'en déduire des schémas de circulation des gaz dans la cellule.

- pour revenir à l'objectif pratique de ce travail, la mesure des taux de renouvellement nous indique par exemple au bout de combien de temps la charge de contaminant de la cellule aura décré d'un facteur donné, ou encore, pratiquement, au bout de combien de temps une intervention humaine sera possible dans le local incendié.

III.2. Expériences complémentaires dans la cellule à échelle réduite

La cellule à échelle réduite permet de doser la concentration en gaz traceur, en continu, en un point de prélèvement mobile. Cette possibilité a été exploitée de deux manières :

- Tout d'abord, nous avons pu mesurer des profils verticaux de concentration, en situation stabilisée, avec une émission continue de gaz traceur. En fait, comme celui-ci est directement émis dans les flammes du brûleur, nous avons pu vérifier que ces profils étaient tout à fait similaires aux profils de concentration en produits de combustion et aux profils de température. Sur la base de cette constatation, le traçage gazeux nous a permis d'étudier de manière très simple l'existence (ou non) de deux zones de températures et de compositions très contrastées, et le cas échéant de déterminer la hauteur de l'interface. Ces observations nous ont incité à considérer la cellule comme deux mélangeurs parfaits superposés, en configuration de soufflage bas, et comme un mélangeur unique en soufflage haut.

- Nous avons pu étayer ces hypothèses par l'émission de bouffées de traceur et la mesure de l'évolution des concentrations en fonction du temps en différents points intérieurs et à l'extraction. En soufflage haut, toutes ces évolutions sont pratiquement superposables ; en soufflage bas, on voit clairement deux types d'évolutions différentes, dont il est parfois possible de tirer les deux constantes de temps (ou les deux taux de renouvellement) d'un modèle à deux zones.

III.3. Obtention de données « quantitatives »

En fait, les codes d'incendie utilisent de longue date cette hypothèse qu'un local en feu peut être représenté par deux zones fortement brassées (4) - la plupart du temps sans autre justification que le « bon sens », et en l'étendant parfois à des situations où elle n'est pas vérifiée. On y voit donc figurer des paramètres comme les débits d'échange entre la zone chaude et la zone froide ou la répartition des débits de soufflage et d'extraction entre les deux zones (sachant que la stratification thermique n'empêche pas forcément une fraction de l'air frais issu d'une bouche de soufflage en partie basse de gagner la couche supérieure). Certains de ces paramètres peuvent être modélisés, par exemple le débit entraîné par le panache de gaz de combustion ; les autres sont bien souvent laissés au choix de l'utilisateur, même si les développeurs des codes indiquent parfois des valeurs recommandées (5). Il nous a donc paru judicieux de tenter de les quantifier, dans la cellule à échelle réduite, par des expériences de traçage gazeux. La question qui se pose est alors de déterminer les six débits Q_1 , Q_1' , Q_2 , Q_2' , Q_3 et Q_4 (figure 3).

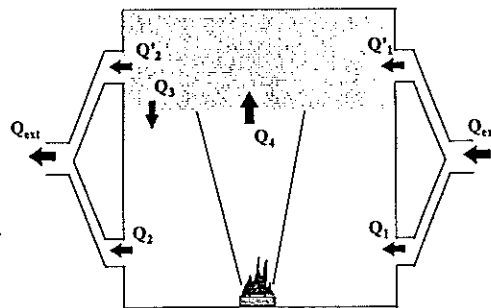


Figure 3 : définition des débits dans un modèle à deux mélangeurs parfaits

Pour cela, nous pouvons réaliser deux émissions continues de gaz traceur, une en zone basse et une en zone haute, en mesurant chaque fois les concentrations d'équilibre dans chaque zone et à l'extraction. Nous disposons en théorie de suffisamment d'informations pour résoudre les équations de bilan de chaque zone et en tirer les débits recherchés. En pratique, la recherche d'un point de prélèvement « représentatif » s'avère parfois délicate, particulièrement dans la zone inférieure. Malgré cette difficulté, il nous a été possible de déterminer des valeurs des débits, ainsi que les intervalles d'incertitudes associés. Certaines de ces valeurs se révèlent substantiellement différentes de celles qui sont habituellement recommandées.

Nous avons aussi tenté de déduire certains de ces débits de mesures vélocimétriques locales dans la cellule à petite échelle. Nous disposons en effet de mesures du champ de vitesse par plans (6), obtenues par la technique de vélocimétrie par image de particules (plus connue sous l'acronyme anglais de PIV, *Particle Image Velocimetry*). Malgré la sophistication de cette technique, il ne nous a pas été possible, en pratique, de déterminer ces débits de façon fiable, ni même de délimiter clairement les deux zones de la cellule. On voit là tout l'apport du traçage gazeux, qui nous a fourni ces informations avec quelques expériences simples.

IV. CONCLUSION

Le traçage gazeux nous est apparu comme un outil irremplaçable pour cette étude. Moyennant un choix judicieux du type et du lieu de l'injection, il nous a permis de *caractériser* les transferts de contamination dans le local incendié, d'*en proposer des modèles* simples et enfin de *quantifier* les débits mis en jeu, avec une grande facilité de mise en œuvre.

REFERENCES

- (1) Bouilloux L., Etude de la mise en suspension physico-chimique des oxydes de plutonium et d'uranium lors de la combustion de polycarbonate et de ruthénium lors de la combustion des solvants de retraitement du combustible irradié, Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble (1998)
- (2) Quintiere J., McCaffrey B.J., Kashiwagi T., A scaling study of a corridor subject to a room fire, ASME Paper 77-HT-72 (1977)
- (3) Thomas M.A., Hinkley P.L., Theobald C.R., Simms D.L., Investigations into the flow of hot gases in roof venting, Fire Research Technical Paper n°7, Dept of Scientific and Industrial Research (1963)
- (4) Cox G., Compartment fire modelling, in : Combustion Fundamentals of Fire, Ed : Cox G., Academic Press (1995)
- (5) Malamas M., Logiciel FLAMME-S version A3.1 - Notice d'utilisation. Rapport d'Etude IPSN/DRS/LEMF n°EF.30.40.R /95.793 indice A (1995)
- (6) Espi E., Berne Ph., Duverneuil P., Obtention de champs de vitesse dans l'air avec la technique de vélocimétrie par image de particules, présenté au 6^{ème} congrès de vélocimétrie laser, Saint-Louis (1998)

MODELISATION HYDRODYNAMIQUE D'UN DIGESTEUR ANAEROBIE A LIT FLUIDISE

V. OTTON, J.F. BETEAU, A. CHERUY

⟷ ENSIEG - CNRS-INPG - Laboratoire d'Automatique
BP 46
38402 SAINT MARTIN D'HERES Cedex

M.N. PONS

⟷ LSGC-CNRS-ENSIC
BP 451 - 1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

J.Y. HIHN

⟷ Université de Franche-Comté - LCTS
BP 1559
25009 BESANCON

F. DELPECH

⟷ EFPG-INPG - Laboratoire de Génie des Procédés Papetiers
BP 65
38402 SAINT MARTIN D'HERES Cedex

Résumé

Ce travail concerne l'étude de réacteurs à lit fluidisé utilisant la digestion anaérobie pour le traitement des effluents papetiers. La maîtrise du fonctionnement passe par une modélisation adaptée qui prenne en compte le comportement hydrodynamique complexe du procédé. Des expériences de traçage ont été conduites à l'aide d'un traceur salin suivi par conductimétrie. Deux types de modélisation ont été envisagées : la première est une approche boîte noire conduisant à un modèle à paramètres distribués (réacteur piston à dispersion axiale), alors que la deuxième est de type boîte grise (structure de modules de réacteurs pistons ou parfaitement agités) basée sur la connaissance de la géométrie du réacteur. Après une présentation détaillée de chacune des approches, on en discute les avantages et les inconvénients.

I. INTRODUCTION

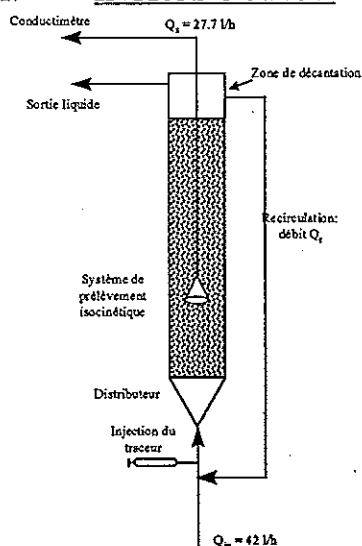


Figure 1: Système expérimental

Les effluents papetiers sont caractérisés par de fortes charges organiques, dont l'élimination est possible par digestion anaérobie. Cependant, pour être viable industriellement, ce procédé nécessite la mise en œuvre de lois de commande robustes et stabilisantes. L'utilisation de réacteurs à lit fluidisé permet déjà d'améliorer la stabilité du procédé, dans la mesure où les micro-organismes fixés sur le support sont confinés dans le réacteur et où les transferts de matière y sont très rapides. Lorsque ces réacteurs présentent un faible rapport diamètre (D)/hauteur(H), on observe des rendements biologiques de dépollution tout à fait intéressants. Cependant, dans ce cas le comportement hydrodynamique est complexe et doit être pris en compte pour toute modélisation dynamique du procédé.

Dans cet esprit un réacteur pilote à lit fluidisé d'un volume de 13 litres et avec un rapport D/H de 0.025 a été construit (Figure 1). Le débit de recirculation peut varier dans la gamme 0 à 120 l/h. Les micro-organismes se fixent sur des particules de Biolite® d'un diamètre initial moyen de 280 μm et de densité initiale apparente égale à 1.6.

La caractérisation de l'hydrodynamique a été effectuée à partir de traçages par injection d'une solution de NaCl concentré, avec un suivi par conductimétrie. Ces traçages ont été réalisés pour différentes configurations : sans particules-support, sans et avec recirculation, en fluidisation. La mesure s'effectue par un système d'échantillonnage le long du réacteur, où trois points de mesure ont été définis (notés z_1 à z_3) en plus de la sortie (notée z_4) (Tableau 1).

La modélisation a été conduite de deux manières:

- en "boîte noire", c'est-à-dire en cherchant à caler les paramètres de fonctions de transfert sans considération de la configuration physique du réacteur;
- en "boîte grise", c'est-à-dire en bâtissant une structure de modules de réacteurs piston ou parfaitement agités basée sur la connaissance de la géométrie du réacteur (zone stagnante à la paroi, etc.);

La première approche a conduit, dans le cas du fonctionnement en fluidisation, à évoluer d'un modèle de fonctions de transfert vers un modèle à paramètres distribués de réacteur piston à dispersion axiale dont le coefficient de dispersion axiale varie avec le débit de recirculation. La seconde approche s'adapte à tous les cas de figure, avec des modifications des paramètres en fonction des conditions opératoires.

On discutera les avantages et les inconvénients des deux approches en termes du nombre de paramètres à estimer, d'extrapolation du modèle et de son couplage à une cinétique biologique.

II. MODELE DE COMPORTEMENT

II.1. Approche par les fonctions de transfert

Une première approche envisageable est de modéliser le comportement hydrodynamique par des fonctions de transfert, donc par une modélisation Entrée/Sortie. Pour cela, il faut prendre en compte les retards du procédé. La fonction de transfert type proposée est :

$$F(p) = \frac{K \exp(-Rp)}{(1 + \tau_1 p)(1 + \tau_2 p) \dots (1 + \tau_n p)}$$

Souvent, le gain K est égal à 1, mais il peut aussi correspondre à un phénomène de dilution et ne pas être égal à 1. Les retards et constantes de temps sont évalués par des techniques classiques d'identification minimisant l'erreur entre la sortie du modèle et la concentration mesurée du traceur. L'avantage de cette technique est que n ne dépasse rarement 3 et que l'on obtient des modèles simples.

Le but est d'étudier le comportement du distributeur, du recyclage et de la fluidisation. Pour cela, trois études ont été mises en œuvre, chacune permettant une analyse séparée des phénomènes. La première série d'expériences, menée sur le réacteur sans recyclage ni particule, a permis de quantifier les effets du distributeur. Quelque soit le point de mesure, les constantes de temps identifiées sont les mêmes, seul le gain et le retard changent. Ainsi, dans ce cas, la dynamique correspond au mélange assuré par le distributeur. La deuxième série d'expériences, a été faite sans particules mais avec la recirculation afin de caractériser son comportement dynamique. Elle se comporte comme un réacteur de type piston où le retard est proportionnel au débit de recirculation. On observe des pics successifs décroissants de traceur, correspondant à la réponse initiale à l'injection puis à la partie du traceur réinjectée par le recyclage. On modélise le $n^{\text{ième}}$ pic

par une fonction de transfert comportant les constantes de temps précédentes à la puissance i , un gain fonction de la fraction liquide recirculée, et un retard proportionnel à ceux du réacteur et du recyclage. Le schéma de simulation et les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 2.

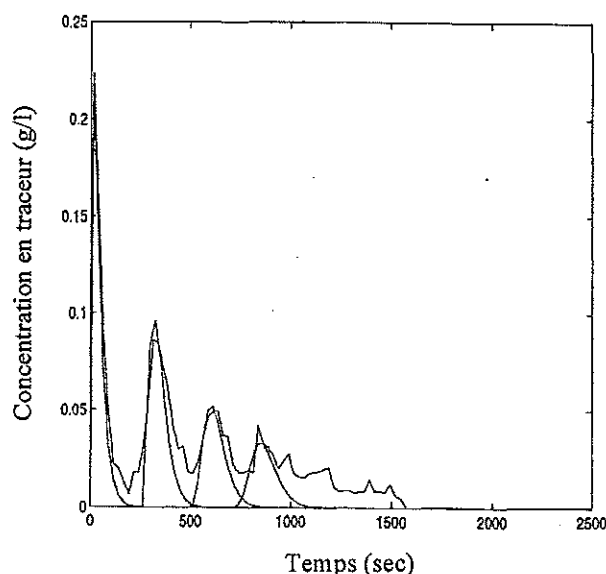


Figure 2 : concentration du traceur mesurée et simulée en sortie du réacteur

La troisième série d'expériences sur le lit fluidisé complet a pour but d'étudier le comportement hydrodynamique en fluidisation. Au fur et à mesure que l'altitude du point de mesure augmente, la réponse se déforme et les pics présentent une traînée de plus en plus forte. Pour chaque point de mesure et chaque condition opératoire, on obtient une fonction de transfert complètement différente des autres. Les modèles obtenus n'ont donc aucun pouvoir prédictif, et ne permettent pas l'analyse globale du système. Malgré la simplicité de cette approche, elle n'est pas adaptée pour la commande.

II.2. Approche par la dispersion axiale

Pour décrire le comportement du lit fluidisé, une deuxième approche consiste à modéliser notre système par un réacteur de type piston à dispersion axiale :

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} = -U_i \frac{\partial \xi}{\partial z} + D \frac{\partial^2 \xi}{\partial z^2}$$

avec U_i la vitesse interstitielle, D le coefficient de dispersion axiale et ξ la concentration du composé dans la phase liquide.

Le modèle obtenu comporte des équations aux dérivées partielles dépendant du temps et de l'altitude z . Nous avons mis en œuvre la méthode de collocation orthogonale afin de discrétiser la variable d'espace. Il s'agit d'approximer le modèle initial en n modèles réduits aux équations différentielles ordinaires, en n points dits de collocation. L'avantage de la collocation orthogonale est de conserver la dimension des variables d'état et l'équilibre des bilans matière. De plus, l'approximation se rapproche rapidement de la solution exacte quand le nombre de points de collocation augmente.

Le principe de cette méthode est donnée par exemple dans (1). L'idée de base est d'écrire les variables d'état $\xi(t,z)$ sous la forme d'une somme finie de produits de fonctions du temps et de l'espace :

$$\xi(t, z) = \sum_{j=0}^{p+1} P_j(z) \xi_j(t) \text{ avec } \xi_j(t), \text{ l'évolution au cours du temps de } \xi(t, z = z_j)$$

La base de fonctions $P_j(z)$ est choisie parmi les polynômes orthogonaux de Lagrange (2). Après séparation des évolutions temporelles et spatiales de la variable d'état $\xi(t, z)$, nous pouvons écrire facilement sa dérivée par rapport à z :

$$\frac{\partial \xi}{\partial z} = \sum_{j=0}^{p+1} \frac{dP_j(z)}{dz} \xi_j(t) \text{ et } \frac{\partial^2 \xi}{\partial z^2} = \sum_{j=0}^{p+1} \frac{d^2 P_j(z)}{dz^2} \xi_j(t)$$

On en déduit facilement les n modèles réduits en chaque point de collocation.

La validité du modèle réduit dépend à la fois du choix du nombre de points intérieurs de collocation (p) et de leur répartition. Pour cela, (2) a montré que l'on pouvait prendre les zéros des polynômes de Jacobi. Ils dépendent de deux paramètres α et β qui fixent leur répartition. Dans le cas de notre réacteur, (3) a montré que le meilleur choix possible était $p = 3$, $\alpha = 0$ et $\beta = p+1$.

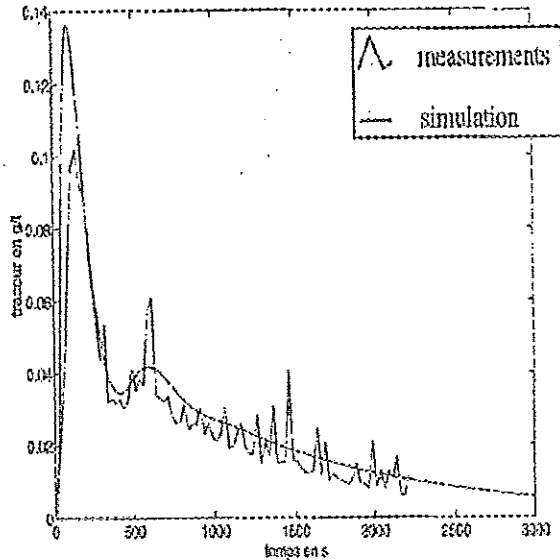


Figure 2 : Simulation et mesure du traceur au point de collocation 3

A partir des expérimentations, le paramètre U_i du modèle a été calculé, et le paramètre D identifié par la minimisation de l'erreur de sortie. Le modèle après collocation permet de décrire de façon satisfaisante le comportement du lit fluidisé, comme le montre la figure 2. De plus, une relation linéaire entre D (m^2/s) et le débit Q (l/h) du réacteur a été trouvée (4) :

$$D = 7,5 \cdot 10^{-5} Q + 5,6 \cdot 10^{-4}$$

La présence de réactions biologiques peut facilement être prise en compte dans ce modèle, en ajoutant dans l'équation aux dérivées partielles le terme cinétique approprié.

Toutefois, deux limitations existent. Ce modèle est de type comportemental et ne cherche qu'à décrire la déformation d'un profil le long du réacteur, sans expliquer les phénomènes mis en jeu (zones mortes, recirculation, diffusion,...). Enfin, le modèle obtenu est spécifique de la géométrie de la colonne utilisée, et s'adapte difficilement en cas de changement.

III. MODELE DE CONNAISSANCE

Pour résoudre ce problème il a été décidé d'essayer de développer un modèle de type boîte grise basé sur les observations faites sur le réacteur et sur sa conception géométrique. Il a été notamment remarqué, en l'absence de particules, un piégeage du traceur dans la colonne, ce qui donne à penser qu'il existe, dans ce cas, une zone mal mélangée. Le modèle est conçu à partir de compartiments parfaitement mélangés, disposés de façon à tenir compte de ce phénomène.

La partie réactionnelle a une hauteur de 2.95 m pour une section de $4.53 \cdot 10^{-3} m^2$, ce qui conduit à un volume total, V_t , de 13.4 l: $V_{dis} + V_r = V_t$. Le décanteur a un volume de 2l (V_{up}) et le volume de la boucle de recirculation est estimé à $V_b = 3l$. Les points de prélèvement se situent à l'altitude z_i , ce qui donne les volumes actifs, c'est-à-dire situés entre le distributeur et le système de prélèvement, V_{ai} , indiqués dans le Tableau 1.

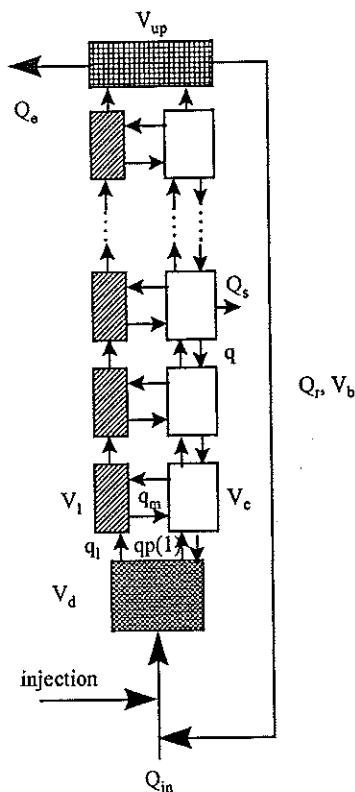


Figure 3: Modèle boîte grise du lit fluidisé

Le bilan de matière sur le distributeur s'écrit:

$$\frac{dc(1)}{dt} = \frac{1}{V_{dis}} (Q_m \cdot c_m + Q_r \cdot c_r + q \cdot c(2) - (qp(1) + q + q_i + \delta Q_s) \cdot c(1))$$

où c_m est la concentration en traceur dans l'alimentation, c_r est la concentration en traceur au retour de la boucle de recirculation, q_i , le débit partant dans la zone annulaire, $qp(1)$, le débit partant dans la zone centrale et q le débit de rétro-mélange.

$qp(1) = Q_m + Q_r - \delta Q_s$ avec $\delta = 1$ si le prélèvement a lieu au niveau du distributeur et $\delta=0$ dans le cas contraire.

Le bilan de matière sur les zones centrales, pour $i=2$ à $n-1$, s'écrit:

$$\frac{dc(i)}{dt} = \frac{1}{v_c} ((q + qp(i-1)) \cdot c(i-1) + q_m \cdot c_m(i) + q \cdot c(i+1) - (2 \cdot q + q_m + qp(i) + \delta Q_s) \cdot c(i))$$

Pour $i = n$, il devient:

$$\frac{dc(n)}{dt} = \frac{1}{v_c} ((q + qp(n-1)) \cdot c(n-1) + q_m \cdot c_m(n) + q \cdot c_{up} - (2 \cdot q + q_m + qp(n) + \delta Q_s) \cdot c(n))$$

$qp(i) = qp(i-1) - \delta Q_s$ avec $\delta = 1$ si le prélèvement a lieu au niveau de i et $\delta=0$ dans le cas contraire.

La Figure 4 présente un exemple de résultat obtenu avec ce type de représentation. Les courbes simulées sont en accord général avec les courbes expérimentales, notamment en ce qui concerne le piégeage du traceur, le retour du traceur par la boucle de recirculation et l'effet du débit d'échantillonnage. L'inconvénient du modèle réside dans le grand nombre de paramètres à identifier.

Point	Altitude (m)	Volume actif (l)
0	0	0
1	1.09	4.94
2	1.9	8.61
3	2.4	10.9
4	2.6	11.8

Tableau 1: Répartition des points de prélèvement

Le modèle de la colonne (Figure 3) comporte $n-1$ unités comprenant chacune une zone centrale "active" et une zone annulaire "morte" avec échange entre ces deux zones. La dispersion axiale est représentée à l'aide d'un débit de rétro-mélange entre les unités. La boucle de recirculation a un comportement piston et est représentée comme une cascade de m réacteurs parfaitement agités.

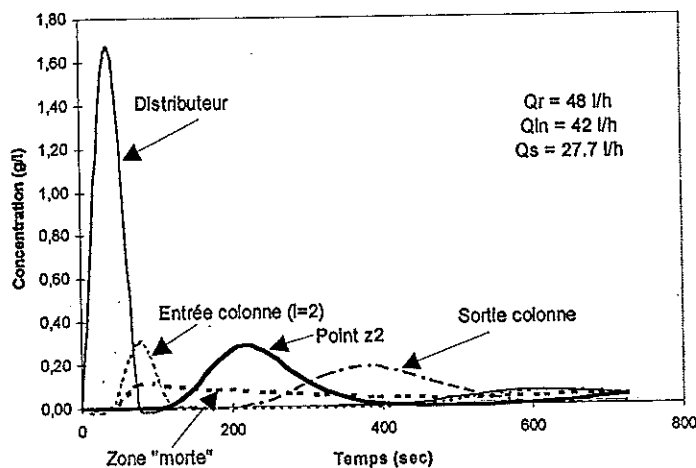


Figure 4: Exemple de simulation par le modèle boîte grise, en l'absence de particules

IV. CONCLUSION

Ce travail concerne la caractérisation du comportement hydrodynamique d'un lit fluidisé anaérobie. Des expérimentations de traçage ont été menées sur un réacteur pilote et utilisées pour la modélisation.

La première approche, de type boîte noire a permis par une analyse en fonctions de transfert de quantifier le rôle du distributeur et du recyclage. Puis une analyse à travers un modèle de réacteur piston avec dispersion axiale a permis de décrire le comportement en fluidisation. La validité du modèle dépend de trois paramètres. Sa complexité reste raisonnable, l'ajout de cinétiques biologiques ou physico-chimiques peut se faire sans problème. Toutefois, même si ce modèle a été validé pour différentes conditions opératoires (débits), il reste spécifique de la géométrie du réacteur étudié.

La deuxième approche, de type boîte grise, prend en compte la connaissance de la géométrie du réacteur. Le modèle obtenu permet de rendre compte des expériences de façon extrêmement satisfaisante. D'autre part, l'introduction de vitesses biologiques et physico-chimiques se fait très facilement. Bien que ce modèle comporte plus d'équations que le précédent, il est beaucoup plus flexible, car il permet aussi bien l'utilisation de différentes conditions opératoires, que le changement de géométrie du réacteur.

Dans un objectif de compréhension, de simulation et de prédiction du comportement du réacteur, la deuxième approche est mieux adaptée, alors que la première convient au réglage de lois de commandes sur le réacteur.

REFERENCES

- (1) Hihn J.Y., Delpech F., Rouger J., Béteau J.F., Vers le suivi et le contrôle d'un lit fluidisé anaérobie utilisé pour le traitement d'effluents papetiers : modélisation, *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 7, 29, 13-18 (1993)
- (2) Villadsen J.V., Steward W.E., Solution of boundary-value problems by orthogonal collocation, *Chem. Eng. Sci.*, 22, 1483-1501 (1967)
- (3) Béteau J.F., Chérut A., Hihn J.Y., Delpech F., Paper wastewater treatment by an anaerobic fluidized bed : monitoring and control, *Mededelingen van de Faculteit van de landbouwwetenschappen, MFLRA3 58 (4b) 1815-2140*. Ed : Universiteit Gent, Belgique (1993)
- (4) Otton V., Modélisation et analyse d'un procédé à paramètres répartis : étude de la digestion anaérobie en lit fluidisé, Thèse de doctorat de l'INPG, spécialité automatique productique (1998)

DETERMINATION DES COURBES DTS DANS LES REACTEURS DE TRAITEMENT DE L'EAU DE TAILLE INDUSTRIELLE

Z. DO-QUANG	<>	CIRSEE-Suez Lyonnaise des Eaux 38, rue du Président Wilson 78230 LE PECQ
M. ROUSTAN	<>	INSA - LIPE Complexe scientifique de Rangueil 31077 TOULOUSE CEDEX 4

RESUME

Des traçages au LiCl ont été réalisés sur des réacteurs de taille industrielle utilisés pour la désinfection de l'eau potable (réservoirs de chloration et tours d'ozonation) avec pour objectif de déterminer leur comportement hydrodynamique. L'analyse des courbes de distribution des temps de séjour (DTS) a permis de proposer pour chaque système un modèle d'écoulement combinant des réacteurs parfaitement agités et des réacteurs piston. Suite à cette première étude des modifications ont été apportées aux systèmes permettant d'améliorer leur performances de désinfection.

I. INTRODUCTION

Dans les procédés de production d'eau potable, l'ozone et/ou le chlore sont utilisés comme agents d'oxydation et/ou de désinfection. Ces procédés sont régis par des lois cinétiques plus ou moins complexes, mais qui peuvent en première approximation, se ramener à des expressions cinétiques du premier ou du second ordre. Pour un réacteur de volume donné il est donc certain qu'en augmentant le caractère «piston» de l'écoulement, il est possible d'améliorer la performance d'oxydation ou de désinfection. Les tours d'ozonation sont constituées de plusieurs compartiments séparés par des chicanes simples ou doubles. Dans chaque compartiment de l'air ozoné est dispersé sous forme de bulles par des diffuseurs poreux. Les volumes de ces tours sont de l'ordre de 200 à 400 m³ avec des temps de séjour de 8 à 30 minutes.

Les contacteurs de chloration ont des volumes beaucoup plus importants de 200 à 20000 m³ avec des temps de séjour allant de 1 à plusieurs heures.

Les objectifs des tests de traçage sont donc les suivants :

- comprendre le fonctionnement actuel de ces contacteurs en étudiant l'influence des paramètres opératoires : débit d'eau, débit d'air ozoné
- apporter d'éventuelles modifications pour améliorer l'hydrodynamique en augmentant le caractère «piston» de l'écoulement
- proposer une modélisation complète tant du point de vue écoulement que du point de vue de l'efficacité de l'oxydation ou de la désinfection
- disposer d'une banque de données pour valider les calculs qui pourraient être obtenus à partir de la simulation numérique par les codes de calculs.

II. MATERIELS ET METHODES

Les traçages ont été réalisés sur deux types d'installations industrielles : les réservoirs de chloration (R1 et R2) et les tours d'ozonation (T1 et T2).

Les caractéristiques géométriques de ces contacteurs sont données sur les figures 1 et 4. Le traceur utilisé est du chlorure de lithium (LiCl) injecté sous forme d'une impulsion de Dirac à l'entrée du réservoir. Des prises d'échantillons à la sortie de la tour ou du réservoir ont été faites en fonction du temps. Pour chaque traçage réalisé il a été déterminé :

- la courbe expérimentale Concentration traceur sortie = fonction (temps)
- la moyenne de la distribution des temps de séjour μ et le rapport μ/τ . Ceci permet de mettre en évidence un dysfonctionnement éventuel
- la variance de la distribution σ^2 , et la variance réduite σ^2
- la valeur du critère d'efficacité hydraulique T_{10} et T_{10}/τ . Ce temps T_{10} est défini comme étant le temps au bout duquel 10% de la quantité de traceur injecté est récupérée en sortie (1). La signification physique du T_{10} est que 90 % de l'eau traversant le réacteur a un temps de séjour supérieur à T_{10}
- le modèle d'écoulement (le plus simple) qui permet de représenter au mieux la courbe expérimentale

III. RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1. Réservoirs de chloration

La technique des traçages a été utilisée pour mettre en évidence le dysfonctionnement d'un contacteur de chloration industriel et proposer un aménagement avec chicanes internes. Les problèmes le plus souvent rencontrés dans ces systèmes sont la création de passages préférentiels du fluide et la formation de zones mortes (2,3). Le système étudié (figure 1) est constitué de deux réservoirs cylindriques en série de volumes $V1 = 925 \text{ m}^3$ et $V2 = 1625 \text{ m}^3$. Initialement aucun des deux réservoirs n'est pourvu de chicanes. L'ensemble de résultats est représenté dans le tableau 1.

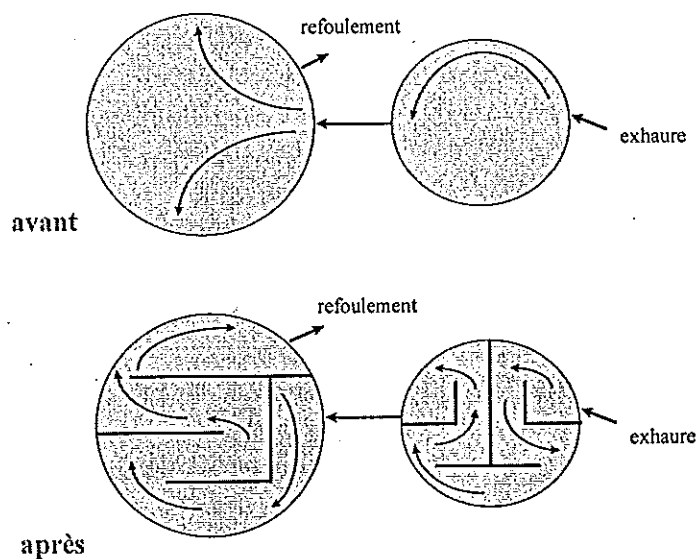


Figure 1. Schéma de l'ensemble de deux réservoirs de chloration (avant et après optimisation)

Réservoir	Volume m ³	Débit m ³ /h	Temps de séjour hydraulique τ min	Temps de séjour moyen μ min	Modèle Hydrodynamique conf. initiale
R1	925	750	74	71	1 RPA $m = 0.05$
R2	1625	750	130	130	1 RPA
R1	925	1500	37	34	1 RPA $m = 0.08$
R2	1625	1500	65	64	1 RPA
R1+R2	2550	1500	102	100	2 RPA $V_1/V_2=0.45$ $V_p/V_T=0.1$
R1+R2	2550	720	212	219	2 RPA $V_1/V_2=0.45$ $V_p/V_T=0.1$

Tableau 1. Résultats de traçages sur l'ensemble de deux réservoirs (configuration initiale)

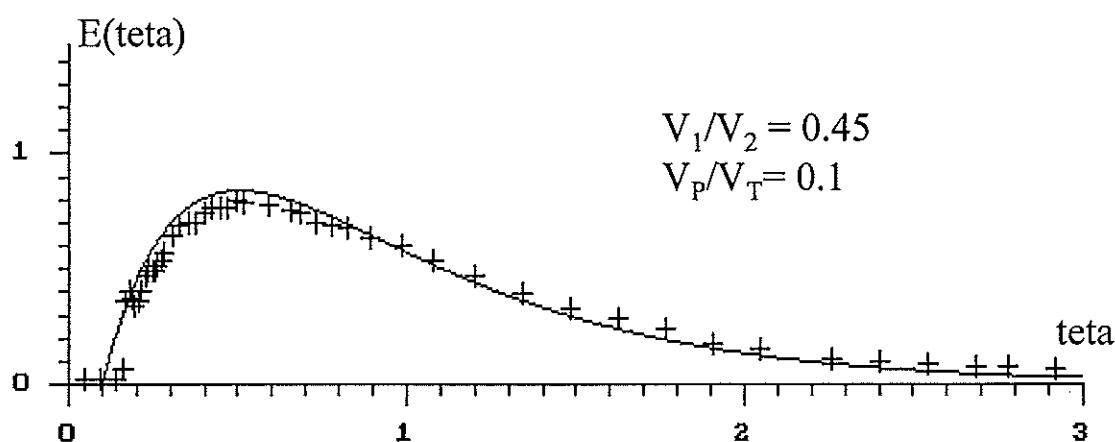


Figure 2. Courbe DTS pour l'ensemble de deux réservoirs R1 + R2 (configuration initiale)

Pour l'ensemble de résultats, les valeurs de la moyenne μ sont très proches du temps de séjour hydraulique τ , ce qui indique l'absence de zones mortes ou stagnantes.

En revanche, compte tenu des positions de l'entrée et de la sortie, dans le réservoir R1 on peut imaginer un passage préférentiel du fluide le long de la paroi, en périphérie du réservoir alors que la zone centrale est plutôt caractérisée par une grande recirculation qui échange avec le reste du réservoir (figure 1a).

Dans le réservoir R2, sous l'effet de l'arrivée du fluide il se crée deux zones de recirculation : une grande zone de recirculation avec fort taux de mélange du côté gauche de l'entrée et une plus petite sur le côté droit de l'entrée (figure 1a).

L'analyse des courbes expérimentales indique que chaque réservoir se comporte comme un réacteur parfaitement agité. L'hydrodynamique globale du système peut être caractérisée par un modèle de 2 RPA de volumes différents en série (avec un rapport de volumes V_1/V_2 d'environ 50%) comportant une zone piston correspondant au volume de la canalisation de connexion entre les deux réservoirs ($V_p/V_T = 0.1$). La courbe de DTS est représentée sur la figure 2.

L'introduction de chicanes augmente la longueur de parcours de l'eau dans le réservoir et améliore ainsi le caractère piston de l'écoulement (figure 1b). Ceci a pour effet une augmentation du temps de contact effectif (T_{10}) qui se rapproche plus de la valeur du temps de séjour hydraulique.

Après aménagement de chacune des deux réservoirs avec des chicanes internes (Figure 1b) des nouveaux essais de traçages ont été réalisés. Les résultats sont reportés dans le tableau 2. Il est clair que la présence des chicanes dans le réservoir améliore nettement le flux piston et permet d'augmenter l'efficacité de désinfection.

Réservoir	Volume m ³	Débit m ³ /h	Temps de séjour hydraulique τ min	Modèle Hydrodynamique après aménagement
R1	925	1500	37	10 RPA $T_{10}/\tau = 0.6$
R2	1625	1500	65	7 RPA $T_{10}/\tau = 0.56$
R1+R2	2550	1500	102	12 RPA $T_{10}/\tau = 0.62$

Tableau 2. Résultats de traçage sur les deux réservoirs aménagés avec chicanes internes

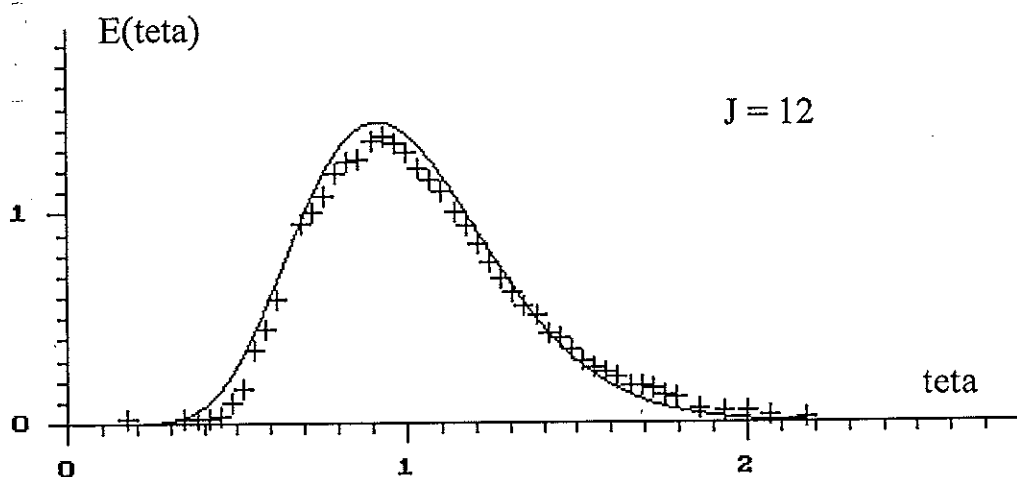


Figure 3. Courbe DTS pour l'ensemble de deux réservoirs R1 + R2 après modifications

III.2. Tours d'ozonation

Dans les tours d'ozonation il est important d'assurer un bon contact entre les bulles d'air ozoné et l'eau à désinfecter afin que le transfert de masse puisse s'effectuer au mieux. Ceci dépendra de l'hydrodynamique diphasique de l'écoulement gaz-liquide. L'objectif est d'améliorer le mélange dans les compartiments où il y a injection du gaz et assurer un bon transfert de l'ozone vers la phase liquide et ensuite créer un écoulement « piston » dans les compartiments intermédiaires (sans gaz) où s'effectue principalement la réaction de désinfection entre l'ozone dissous et les micro-polluants contenus dans l'eau (4, 5).

Le modèle retenu pour représenter l'écoulement est composé d'un réacteur piston de volume V_p correspondant au volume des zones sans présence des bulles suivi d'une association de J RPA en série de volume total V_R . On a donc un modèle à deux paramètres : J et $\alpha = V_p / (V_p + V_R)$

Dans le tableau 3 est reporté l'ensemble des données expérimentales obtenues sur deux sites industriels dont les caractéristiques géométriques sont semblables à celles représentées sur la figure 4. Les rapports μ/τ sont voisins de 1. On peut donc considérer que la tour d'ozonation fonctionne correctement (pas de zone morte).

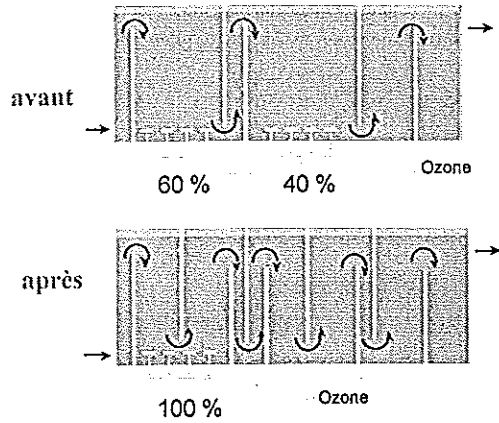


Figure 4. Schéma des tours d'ozonation avant et après travaux d'aménagement

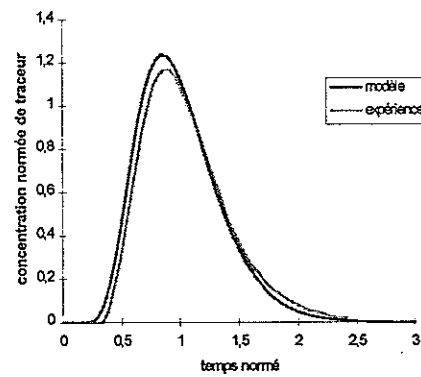


Figure 5. Courbe de distribution des temps de séjour (expérimentale et modèle)

Réacteur ozonation	Volume m3	Débit m3/h	Temps de séjour moyen, min	Modèle Hydrodynamique avant aménagement	Modèle Hydrodynamique après aménagement
site 1	260	1900	8.2	2 RPA $\alpha = 0.15$ $T_{10}/\tau = 0.39$	4 RPA $\alpha = 0.20$ $T_{10}/\tau = 0.55$
site 2	220	1300	10.2	4 RPA $\alpha = 0.10$ $T_{10}/\tau = 0.48$	6 RPA $\alpha = 0.15$ $T_{10}/\tau = 0.60$

Tableau 3. Résultats des traçages obtenus sur tours d'ozonation avant et après aménagement

Cependant, afin d'augmenter la valeur du T_{10} et les performances de désinfection, il a été proposé d'aménager les deux tours avec des parois intermédiaires. Dans les nouvelles conditions de fonctionnement un gain d'environ 30 % a été obtenu sur le temps de contact effectif. Par ailleurs des traçages réalisés à différents débits d'eau et d'air ont permis de constater que les paramètres du modèle J et α varient avec les conditions opératoires mais dans des faibles proportions. Un exemple de courbe DTS est montré sur la figure 5.

IV. EVALUATION DES PERFORMANCES DE DESINFECTION

Avec le modèle hydrodynamique (établi à l'aide des traçages) il est possible d'estimer les performances de désinfection en introduisant l'expression cinétique de la désinfection :

$$r_{\mu} = k_{\mu} [\text{micro-organismes}] [\text{désinfectant dans l'eau}] = k_{\mu} C_{\mu} C_D$$

En considérant une concentration en désinfectant dissous constante l'expression de la cinétique devient :

$$r_{\mu} = K'_{\mu} C_{\mu} \quad K'_{\mu} = k_{\mu} C_D$$

Dans ces conditions le degré de désinfection globale N/N_0 s'obtient par l'équation déduite de la fonction de transfert correspondant au modèle J RPA en série avec une zone piston de fraction volumique α :

$$\frac{N}{N_0} = 1 - \left[\frac{1}{1 + k_\mu \cdot \frac{(1-\alpha)\tau}{J}} \right]^J e^{-\alpha k_\mu \tau}$$

$k_\mu \tau$ étant le nombre de Damkhöler, N_0 le nombre de micro-organismes entrant dans le réacteur et N le nombre de micro-organismes en sortie du réacteur.

A titre d'exemple avec $\alpha = 0.1$, $J = 6$, $k_\mu = 0.48$ min.l/mg, $C_D = 0.2$ mg/l et $\tau = 12$ min on obtient un nombre de Damkhöler de 12, soit un abattement $N/N_0 = 0,9994$ (réduction de 3.2 en échelle log). Ce type de modélisation permet donc de déterminer les conditions opératoires en fonction d'un objectif prédéterminé de réduction des micro-organismes.

V. CONCLUSION

Dans cette étude nous avons pu caractériser l'hydrodynamique des contacteurs de chloration et des tours d'ozonation à l'aide d'un modèle simple basé sur la combinaison de réacteurs piston et de J réacteurs parfaitement agités en série. Nous avons montré l'intérêt de l'utilisation des courbes DTS permettant :

- d'établir un diagnostic précis de l'écoulement d'eau dans des contacteurs de très grands volumes
- de proposer des modifications géométriques pour améliorer les performances de désinfection
- de proposer une modélisation complète pour prédire les performances de désinfection ou d'oxydation

REFERENCES

1. US EPA, Guidance Manual for Compliance with the Filtration and Disinfection Requirements for Public Water Systems Using Surface Water Sources, 1989
2. Do-Quang Z., Etudes expérimentale et numérique des performances des contacteurs de désinfection de l'eau par le chlore, *Thèse de l'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, France*, 1993
3. Do-Quang Z., Duguet J-P., Roustan M., Lainé J-M., *Study of Full-Scale Reactor Performance for Drinking Water Advanced Oxidation Treatment*, Proceedings IOA-EAG Conference AQUATECH, Amsterdam, 1996
4. Roustan M., Beck C., Wable O., Duguet J-P., Mallevalle J., *Modelling Hydraulics of Ozone Contactors*, Ozone Science & Engineering, vol 15, pp 213-226, USA, 1993
5. Martin N., Bellamy W. D., Bourbigot M. M., Brink D., *Full Scale Evaluation of Ozone Contact Chambers for Disinfection by Ozone*, Ozone in Water and Wastewater Treatment Proceedings, 11 th Ozone World Congress, pp S-14-39, San Fransisco, CA, USA, 1993

ETUDE DE L'HYDRODYNAMIQUE D'UN REACTEUR CANAL A BOUES ACTIVEES EN REGIME VARIABLE

O. POTIER, M.N. PONS, N. ROCHE, J.P. LECLERC, L. GALDEMAS,
Ch. PROST

◁ LSGC-CNRS-ENSIC
BP 451
1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

Résumé

Une variation importante de l'hydrodynamique des réacteurs de type canal en fonction du débit liquide les traversant a été mise en évidence sur une station d'épuration des eaux usées et sur un pilote. Une modélisation simple est proposée, basée sur une cascade de RPA (Réacteurs Parfaitement Agités) dont le nombre varie en fonction du débit.

INTRODUCTION

Dans une station d'épuration d'eaux usées, le fonctionnement du réacteur biologique est lié à son régime hydrodynamique. Ceci est particulièrement important dans le cas de réacteurs de forme canal, pour lesquels le rapport longueur/largeur peut être très grand : existence de gradients de concentration. L'objet de cette étude est de développer une méthode permettant de caractériser et de modéliser l'hydrodynamique de ce type d'ouvrage. Bien qu'il s'agisse de systèmes triphasiques, la caractérisation a porté uniquement sur la phase liquide.

I. ETUDE SUR SITE

I.1. Matériel et méthode

Le réacteur canal étudié est situé sur la station d'épuration des eaux usées de la Communauté Urbaine du Grand Nancy (station de Nancy-Maxéville). Il est aéré par des dômes poreux, son volume est de 3300 m³ : sa longueur (déployée) 102 m, largeur 9 m, hauteur 3,6 m. Ce réacteur épure un tiers du débit traité dans la filière urbaine.

Des traçages au chlorure de lithium ont été réalisés. Ce traceur a été choisi du fait de sa très faible adsorption sur les particules solides, de son seuil de détection très bas, de sa quasi-absence dans les eaux résiduaires et de sa non toxicité pour les quantités utilisées.

Des quantités ad hoc de chlorure de lithium sont dissoutes dans de l'eau et rapidement injectées dans l'ouvrage (environ 10 Kg de LiCl par expérience). La durée de l'injection est inférieure à 1% du temps de passage dans le système. Elle peut être considérée comme de type impulsif. Des échantillons sont prélevés en différents endroits (figure 1) et filtrés. La concentration en lithium de ces échantillons est mesurée par

absorption atomique. Dans les conditions d'analyse, la réponse de l'appareil est parfaitement linéaire dans la gamme 0 – 4 mg/l, avec une sensibilité de 1% et une limite de détection de 0.012 mg/l.

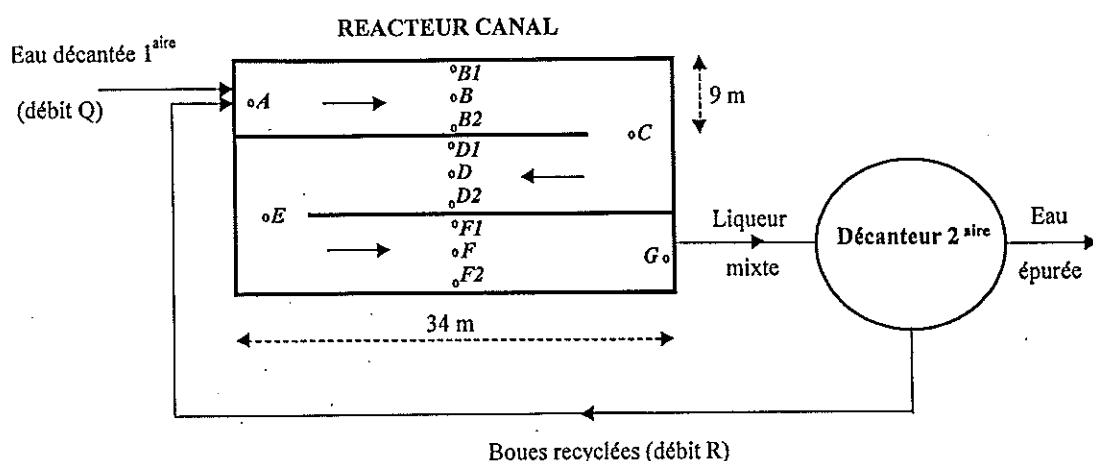


Figure 1 : Schéma du réacteur ; emplacement des points de prélèvement

Le débit est enregistré en continu. Les points de prélèvement B1, B2, D1, D2, et F1, F2 permettent de déterminer l'existence de gradients transversaux.

Une des difficultés de ce type d'expérience est l'impossibilité d'avoir des débits parfaitement constants : bien que les périodes d'expérimentation soient planifiées, un changement brutal de météorologie ne peut être exclu (pluie, orage, ...), ni des actions humaines non signalées préalablement sur le réseau d'égout.

I.2. Résultats

Une première expérience a été réalisée pour un débit total (Q+R) de 2200 m³/h. Dans ces conditions le réacteur canal a le comportement hydrodynamique d'une cascade de $J=12$ réacteurs parfaitement agités. La comparaison des courbes expérimentales et simulées est présentée figure 2.

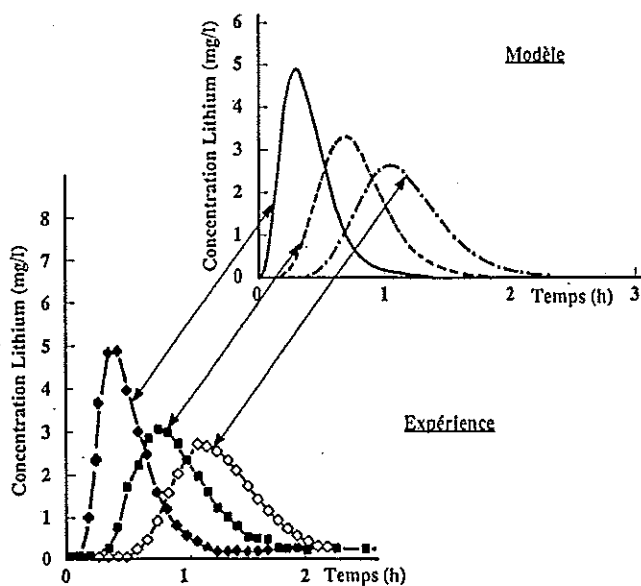


Figure 2 : Résultat du traçage (réacteur canal n°1 de la station de Nancy-Maxéville), comparaison des courbes expérimentales (au 1/3, aux 2/3 et à la sortie du réacteur) et simulées (pour J égal à 4, 8, et 12 RPA)

Le nombre J a été calculé par la méthode des moments (ordre 1 et centré d'ordre 2) (Villiermaux (1)). On peut remarquer que logiquement un tiers de la longueur du réacteur représente une cascade de 4 réacteurs et que deux tiers en représentent 8.

La faible augmentation de la concentration de lithium au bout de deux heures correspond au recyclage en tête du réacteur de boue provenant du décanteur secondaire. Par conséquent ces quelques grammes de lithium ont déjà été observés auparavant sur le tracé et ne doivent pas être comptabilisés deux fois dans le bilan de matière.

Il a été vérifié qu'il n'existe pas de gradient de concentration transversaux : les variations entre les points B, B1, B2 ou D, D1, D2 ou F, F1, F2 étant de l'ordre de 5%. Deux expériences ont ensuite été réalisées à des débits de 1650 m³/h et de 1280 m³/h. Les valeurs de J sont alors respectivement de 9 et de 6 : cela montre l'influence du débit sur l'hydrodynamique du réacteur.

II. ETUDE SUR PILOTE

Pour pouvoir continuer les études entreprises et nous libérer des contraintes liées au débit nous avons reconstruit un réacteur canal pilote.

II.1. Matériel et Méthode

De forme allongée et rectangulaire le réacteur pilote est aéré par le fond. Son volume est de trente litres. Ce pilote devant servir par la suite à une étude en présence de biomasse, les paramètres que nous avons choisis de garder identiques à ceux du réacteur de taille industrielle sont le temps de passage (τ) et le gradient de concentration (correspondant à celui d'une cascade d'une dizaine de RPA). Pour arriver à ceci nous avons pourvu le réacteur de quelques chicanes, la phase liquide restant ainsi continue de l'entrée à la sortie. Le traceur est du chlorure de sodium et l'évolution de sa concentration en sortie est obtenue à l'aide d'une sonde conductimétrique.

La figure 3 permet la comparaison entre une courbe expérimentale et une courbe simulée correspondante. L'hydrodynamique du pilote correspond effectivement à une cascade.

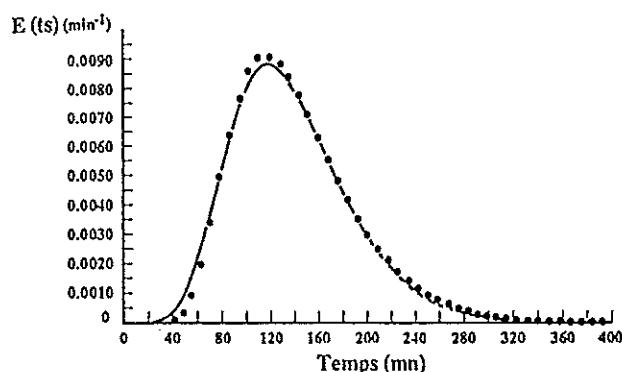


Figure 3 : Etude sur pilote, tracé expérimental ($\tau=143$ min) et théorique (cascade de 8 RPA)

II.2. Influence du débit

Afin d'étudier le comportement hydrodynamique du réacteur canal lorsque le débit évolue, nous avons effectué une série de traçages pour différents temps de passage (le débit restant constant au cours d'un même traçage).

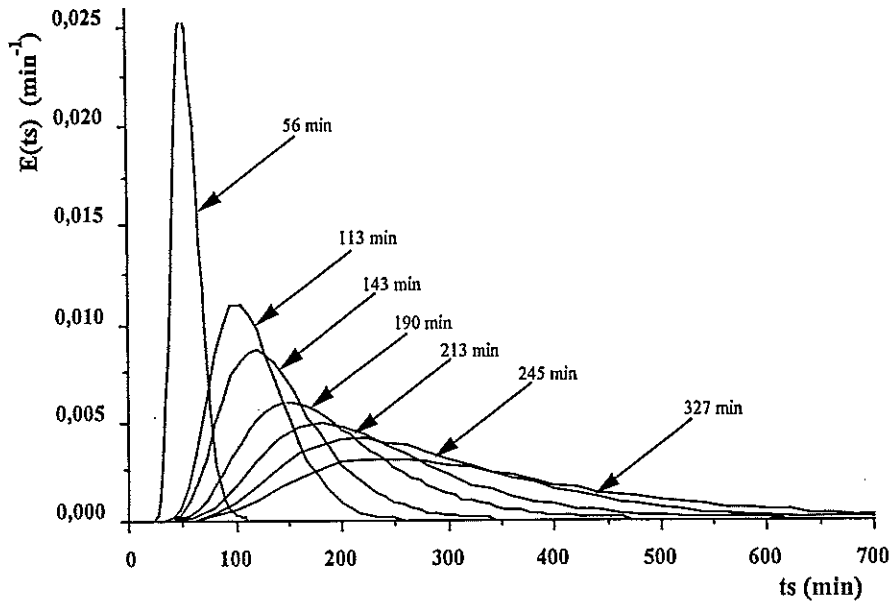


Figure 4 : Etude pilote : Distribution des Temps de Séjours pour les sept temps de passage étudiés

Le résultat des expériences (figure 4) montre que l'hydrodynamique varie fortement. Le réacteur canal pilote correspond toujours à une cascade de RPA, mais J varie de 18 à 5 lorsque le temps de passage passe de 56 à 327 minutes.

III. MODELISATION

III.1. Concepts

Pour étudier le comportement du réacteur canal, nous faisons l'analogie avec un réacteur piston avec dispersion axiale (Villiermaux (1)). Le flux de matière y est la somme d'un flux convectif (mouvement d'ensemble de type piston) et d'un flux dû à la dispersion axiale.

Le nombre adimensionnel P , homogène à un critère de Péclet, permet de voir l'importance du flux convectif par rapport au flux dispersif.

$$P = \frac{u.L}{D} \quad [1]$$

Avec : - u : vitesse moyenne du liquide : rapport de la longueur du bassin au temps de

passage :

$$u = \frac{L}{\tau} \quad [2]$$

- D : coefficient de dispersion axiale

Soit en remplaçant :

$$P = \frac{L^2}{D.\tau} \quad [3]$$

Il est intéressant de relier ceci à une représentation de type cascade de réacteurs parfaitement agités, utilisable ultérieurement lors de simulation de station d'épuration. P peut être relié à J par l'expression suivante (excellente lorsque J est grand) (J. Villiermaux (1)) :

$$P \cong 2(J-1) \quad [4]$$

On aboutit à :

$$J \cong \frac{L^2}{2D\tau} + 1 \quad [5]$$

Comme le débit d'aération ne change pas, ni la taille des bulles, ni les caractéristiques physiques du liquide, nous supposons que le coefficient de dispersion axiale reste constant et que seul le flux convectif varie lorsque le débit liquide varie.

Ainsi si $D = \text{constante}$,

$$J = 1 + \frac{K}{\tau} \quad [6] \quad \text{avec} \quad K = \frac{L^2}{2D} \quad (\text{voir O. Potier (2)})$$

Dans le cas étudié, cette hypothèse s'avère juste. Sur la figure 5 (courbe $J=f(\tau)$) sont comparés les points expérimentaux et la courbe théorique (où K théorique est la moyenne arithmétique des K calculés à chaque point, $K=1080$ minutes).

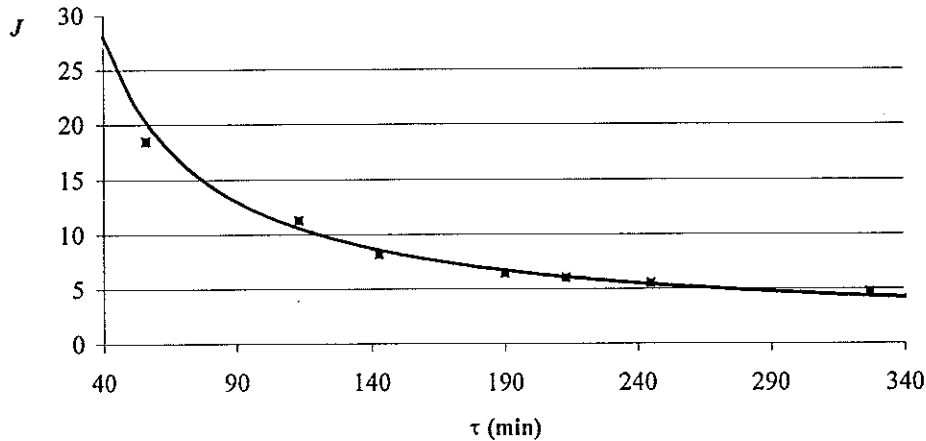


Figure 5 : Courbe $J=f(\tau)$; comparaison théorie et expérience, réacteur canal pilote.

III.2. Validation sur site

Cette formule simple peut se révéler fort pratique pour la caractérisation de l'hydrodynamique.

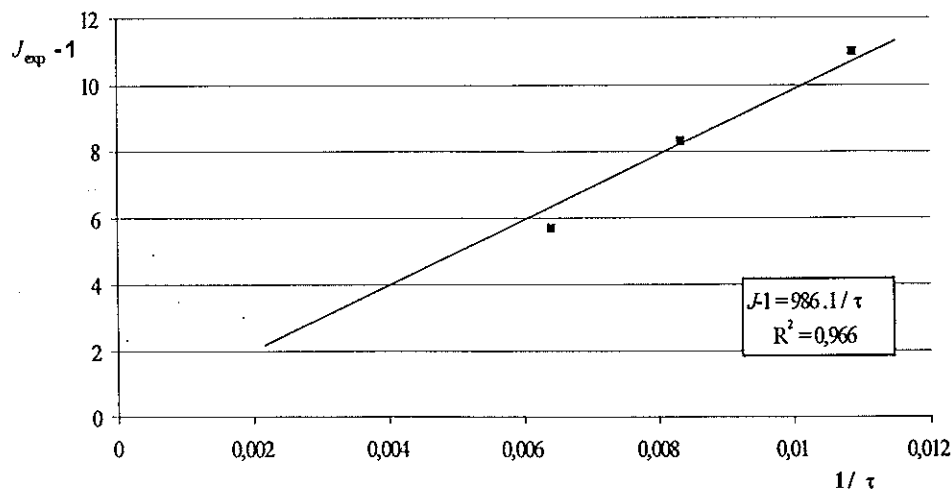


Figure 6 : $J_{exp} - 1 = f(1/\tau)$; Réacteur canal de 3300 m^3

Pour valider cette méthodologie, les expériences réalisées sur site (§1) sont utilisées. Les conditions d'aération sont les mêmes pour les trois traçages. On représente les résultats expérimentaux en traçant $J-1$ en fonction de $1/\tau$: l'obtention d'une droite de pente $K (= 986 \text{ min})$ signifie que D reste constant (figure 6).

Le modèle est en bonne adéquation avec l'expérience. Il est donc aussi adapté aux installations de grandes tailles.

Sur la figure 7 sont comparés les points expérimentaux et la courbe théorique utilisant la valeur de K obtenue sur la figure 6 ($K = 986$ minutes). Le temps de passage, $\tau=155$ minutes, correspond à une valeur maximum lorsque le débit est le plus faible (tôt le matin, en été, par temps sec). Un très fort débit (en milieu de journée, par temps de pluie) n'entraînera pas un temps de passage inférieur à 80 minutes (sur la station de Nancy).

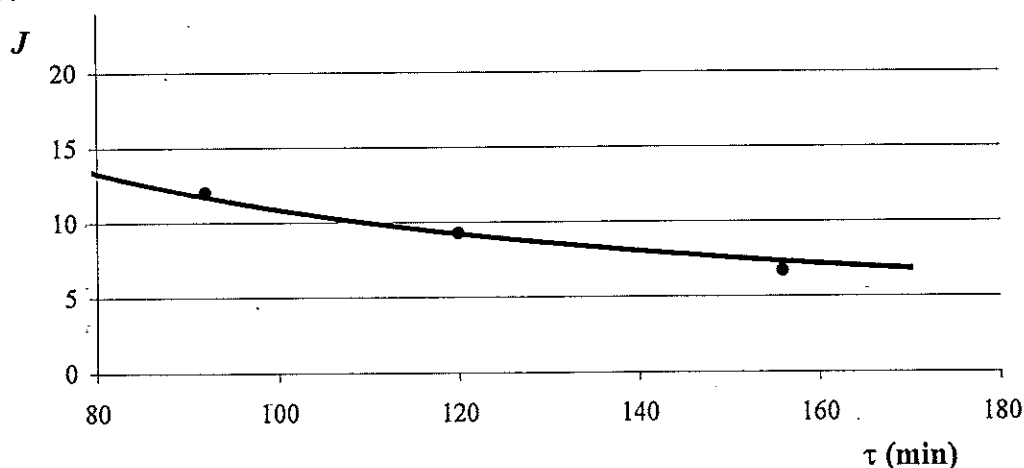


Figure 7 : $J = f(\tau)$; Réacteur canal de 3300 m^3

IV. CONCLUSION

Une variation significative de l'hydrodynamique du réacteur canal est mise en évidence lorsque le débit varie. Un modèle simple est proposé : le réacteur canal est représenté par une cascade dont le nombre de RPA varie avec le temps de passage.

Ces observations permettent d'entrevoir une nouvelle approche de l'optimisation des réacteurs de traitement des eaux. Il est ainsi important de tenir compte de ces phénomènes pour une modélisation globale d'une station.

Enfin, notre modèle développé pour le traitement des eaux, pourrait fort bien être utilisé pour d'autres réacteurs fonctionnant en régime transitoire, notamment des réacteurs polyphasiques à courants croisés.

Remerciements

Nous remercions la Communauté Urbaine du Grand Nancy de nous avoir permis l'accès à la station de Nancy-Maxéville, ainsi que le personnel exploitant de la société TRADILOR pour sa collaboration. Nos remerciements s'adressent aussi à I. Lafitte, P. Nieddu et E. Golinelli.

Bibliographie

- (1) Villermaux J., « Génie de la réaction chimique ; conception et fonctionnement des réacteurs », Tec&Doc. Lavoisier, 1993
- (2) Potier O., « Etude des stations d'épuration des eaux usées urbaines par boues activées : modélisation de l'aérateur canal » Thèse de doctorat de l'INPL, 1993

ÉCOULEMENT, BIODEGRADATION DES POLLUANTS ET REOXYGENATION DES RIVIERES EVALUES PAR TRACAGES, PLAN D'ECHANTILLONNAGE ET ANALYSE SYSTEME

G. BEAUDOING

<> CEA - DAMRI/DTA
17, rue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX

RESUME

La méthodologie des traceurs issue des techniques de marquage et de traitement du signal permet en particulier dans le réseau hydrographique de suivre la progression d'une même tranche d'eau marquée sur un tronçon de rivière pour bien caractériser les écoulements et établir des bilans massiques afin d'évaluer des lois de comportement des substances dissoutes ou en suspension.

Le cas d'application présenté traite d'un système hydraulique composé d'une rivière principale et de ses affluents. L'hydrodynamique du système hydraulique est caractérisée par les distributions des temps de séjour respectives entre les entrées du système et sa (ou ses) sortie(s). Les DTS expérimentales obtenues permettent d'élaborer un plan d'échantillonnage aux entrées et sortie du système hydraulique pour suivre en temps réel les mêmes tranches d'eau et réaliser les suivis spatio temporels de la composition des eaux. Les données obtenues (oxygène dissous, DBO5, DCO, matières en suspension et phases azotées) permettent ainsi d'évaluer à l'aide d'un modèle simple du premier ordre de Streeter et Phelps les coefficients cinétiques de biodégradation, de sédimentation et de réaération du réseau hydraulique étudié.

I. INTRODUCTION

La dynamique économique des grandes cités industrielles conduit à l'exploitation intensive de tous les systèmes de production industrielle, agricole ou domestique. Parallèlement à leurs productions, ces systèmes génèrent des effluents contenant des déchets liquides et solides qui après divers traitements sont rejetés dans les écosystèmes aquatiques : rivière, karsts, mers, lacs, aquifères...

La méthodologie des traceurs permet d'apprécier les paramètres hydrodispersifs d'un système d'écoulement simple ou complexe constitué par la rivière principale et ses affluents et cela pour un régime hydraulique établi. La connaissance des réponses impulsionnelles respectives obtenues entre chaque section d'entrée et la (ou les) section(s) de sortie du système permet d'établir un plan d'échantillonnage d'eaux aux sections caractéristiques du système hydraulique étudié. Ces échantillons dosés permettent de connaître qualitativement et quantitativement les fonctions d'entrée et de sortie. Le couplage de l'hydrodynamique et de la chimie des eaux conduit à apprécier d'une part les cinétiques de biodégradation des pollutions organiques et d'autre part les coefficients de réoxygénation de la rivière évalués au fil de l'eau à partir des entrées du système jusqu'aux sections de sortie choisies. Ces données sont capitales pour l'équilibre

d'un écosystème car elles permettent d'optimiser en amont les lois de rejets en masse et en intensité d'effluents dans le milieu récepteur tout en respectant les objectifs de qualité des eaux qui lui ont été imposés.

II. METHODOLOGIE

La méthodologie proposée associe d'une part la caractérisation expérimentale de l'hydrodynamique du système hydraulique par des opérations de traçages « in situ » qui sont traitées numériquement à l'aide de modèles d'écoulements de type hydrodispersif ou de réseaux équivalents de mélangeurs parfaitement agités disposés en cascades parallèles ou séries. La généralité des cas réels qui peuvent se trouver dans notre environnement sont assimilables à la représentation de la figure 1 :

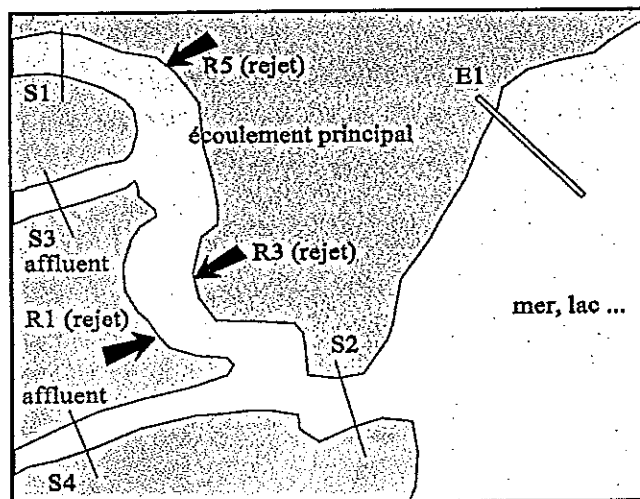


Figure 1: Réseau hydrographique complexe

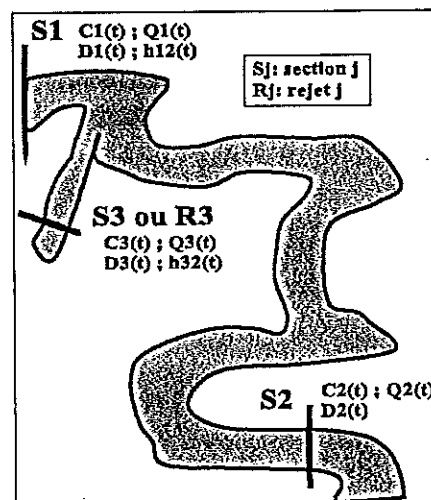


Figure 2: Système étudié

Dans le cadre du développement analytique de la méthodologie nous traiterons d'un système complexe simplifié représenté par la figure 2. Cet écosystème est constitué d'une part d'un écoulement principal délimité par les sections S1 et S2 ; d'un écoulement secondaire constituant l'affluent délimité par la section d'entrée S3 (ou d'un rejet intermédiaire référencé R3). En chacune des sections entrantes et sortantes du système hydraulique défini des plans d'échantillonnage d'eau sont établis qui permettront d'apprécier dans le temps l'évolution des principaux paramètres physico-chimiques de l'eau au cours de son transfert. Le phasage du plan d'échantillonnage des eaux est imposé par les résultats des traçages préalables qui conduisent à l'obtention des distributions des temps de séjour.

La Distribution des Temps de Séjour ou Réponse Impulsionnelle $h_{12}(t)$ du tronçon S1-S2 est obtenue à partir d'une injection homocinétique instantanée de traceur réalisée dans la section S1. Cette grandeur représente pour un tronçon de rivière délimité par deux sections de mesures S1 et S2, la fraction de fluide marqué dont le temps de séjour sur ce tronçon est compris entre les instants t et $t + dt$. Il peut arriver que l'injection soit réalisée en amont S0 de la section d'entrée S1 à une distance supérieure à la distance de bon mélange. Les données obtenues $h_{01}(t)$ et $h_{02}(t)$ aux sections S1 et S2 conduisent à la réponse $h_{12}(t)$ à partir de la relation $h_{02}(t) = h_{01}(t) * h_{12}(t)$ soit par déconvolution ou soit par optimisation à l'aide d'un modèle hydrodispersif représentant la fonction $h_{12}(t)$. Pour une fonction d'entrée variable $C_1(t)$, on obtient la fonction de sortie par l'expression suivante :

$$C_2(t) = \int_0^t C_1(u) \cdot h_{12}(t-u) \cdot du$$

Les fonctions obtenues aux sections d'entrée (Si) et de sortie (Sj) sont : $h_{ij}(t)$, $C_i(t)$ et $C_j(t)$, $Q_i(t)$ et $Q_j(t)$; avec : $h_{ij}(t)$: réponses impulsionnelles du système Si-Sj ; $C_i(t)$, $C_j(t)$: les concentrations mesurées au temps t ; $Q_i(t)$: flux volumique d'eau mesuré Si au temps t.

II. 1. Mécanismes et phénomènes pris en compte dans l'écosystème

La méthode mise en œuvre pour décrire la qualité des eaux d'une rivière soumise à des rejets biodégradables prend en compte deux phénomènes :

- les phénomènes hydrodynamiques,
- les phénomènes physico-chimiques,

II. 1. 1 Phénomènes hydrodynamiques

Dans un souci de simplification quelques hypothèses sont posées :

. l'écoulement supposé unidirectionnel est monodimensionnel. Les dispersions transversale et verticale ne sont pas prises en compte, cependant la collecte d'échantillons d'eau en un seul point dans les sections d'entrée et de sortie nécessite d'avoir préalablement vérifié que le bon mélange est obtenu entre les eaux du rejet et les eaux principales réceptrices,

. le régime d'écoulement des eaux est supposé permanent durant la période d'échantillonnage bien qu'il y ait variation des concentrations des paramètres de caractérisation physico-chimique des eaux .

. la géométrie et les conditions aux limites du milieu qui définissent l'écoulement sont prises globalement en compte à partir des résultats de traçage.

II. 1. 2. Phénomènes physico-chimiques

Les phénomènes qui sont pris en compte en première approximation suivent des cinétiques du premier ordre. Ils sont relatifs à :

. la biodégradation des pollutions organiques consommatrices d'oxygène dissous qui est caractérisée par le coefficient du premier ordre de biodégradation K_1 et suivant le modèle de STREETER et PHELPS [1]:

. la cinétique de sédimentation des substances polluantes en suspension entre les entrées et sortie du système est supposée être du premier ordre,

. la réoxygénation des tronçons de cours d'eau obtenue par réaération naturelle et caractérisée par le coefficient du premier ordre de réoxygénation K_2 . Si $C(t)$ et $D(t)$ sont respectivement la concentration en paramètre polluant et le déficit en oxygène dissous dans l'échantillon d'eau correspondant prélevé, les équations de cinétique sont définies par les relations :

$$\boxed{\frac{dC(t)}{dt} = - K_1 \cdot C(t)} \quad \text{et} \quad \boxed{\frac{dD(t)}{dt} = - K_2 \cdot D(t)} \quad \text{avec} \quad D(t) = C_s(t, T^\circ\text{C}) - C(t, T^\circ\text{C})$$

où C_s = concentration à saturation en oxygène dissous, $K_1 \cdot C(t)$ qui représente la consommation d'oxygène par biodégradation et $K_2 \cdot D(t)$ l'apport d'oxygène par réaération naturelle et artificielle du tronçon de rivière étudié. Certains phénomènes sont considérés en première approximation comme secondaires et ne sont pas pris en compte explicitement dans le présent modèle. Leur intégration dans les équations de traitement des résultats ne posera aucun problème à l'avenir et permettra d'affiner la connaissance de la part relative à chacun des phénomènes et mécanismes dans la prise en compte de la biodégradation et de la transformation des phases carbonées et azotées.

Les flux de matières organiques et minérales qui sont retenus comme participant dans les équations du bilan en oxygène sont principalement la DBO5, DCO, COT,

MEST, phases azotées (N organique, NH₄⁺, NO₂⁻, NO₃) dosés sur eaux décantées et brutes.

II. 2. Couplage des phénomènes hydrodynamique et physico-chimiques

Pour simplifier le développement analytique nous traiterons le cas du milieu récepteur défini avec un seul affluent (ou rejet). Ce tronçon est donc défini par deux sections d'entrée S1, S3 et une section de sortie S2.

Les flux massiques correspondants seront supposés définis par les expressions Q1(t).C1(t), Q2(t).C2(t), Q3(t).C3(t) avec les réponses impulsionnelles correspondantes h12(t) et h23(t). Dans la section en aval du système, la courbe concentration-temps C2(t) observée sera liée aux paramètres d'entrée par la relation suivante avec Q3(t) << Q1(t) :

$$C2(t) = \frac{Q1}{Q2} . C1(t) * h12(t). \text{EXP}(- K1. t) + \frac{Q3}{Q2} . C3(t) * h32(t). \text{EXP}(- K1.t)$$

Le déficit en oxygène dissous sera obtenu à partir de l'expression :

$$Q2(t). D2(t) = Q1(t).D1(t)*h12(t). \text{EXP}(- K2.t) + Q3(t).D3(t)*h32(t). \text{EXP}(- K2.t) + \frac{K1}{K2 - K1} . [\text{EXP}(- K1.t) - \text{EXP}(- K2.t)] . [Q1(t).C1(t) * h12(t) + Q3(t).C3(t) * h32(t)]$$

Remarque : si une variation non négligeable des flux d'eau est observée il conviendra d'en tenir compte suivant deux démarches : d'une part pour les faibles variations des flux volumiques qui influencent peu les valeurs des réponses impulsionnelles il conviendra d'intégrer dans les équations des bilans les fonctions de variations de ces flux volumiques et d'autre part quand la réponse impulsionnelle est modifiée notablement pour des variations importantes de flux, il sera alors nécessaire d'en tenir compte expérimentalement ou analytiquement sur les données h12(t) et h32(t).

III. PRINCIPE D'ACQUISITION DES PARAMETRES

III. 1. Réponses impulsionnelles du système

Chaque réponse impulsionnelle est déterminée expérimentalement par mise en œuvre de traceur. Quand on est en présence d'un rejet sur un tronçon il convient d'obtenir les réponses impulsionnelles d'une part entre les sections d'entrée-sortie et d'autre part entre le point de rejet et la section de sortie. Par ailleurs et pour conforter les valeurs des réponses impulsionnelles obtenues il est bon de renouveler ces acquisitions durant la phase d'échantillonnage des eaux. L'exploitation des réponses impulsionnelles sera effectuée analytiquement à l'aide d'un modèle hydrodispersif ou d'un modèle de représentation des écoulements qui associe des réseaux de mélangeurs.

III. 2. Bilans massiques des flux polluants

L'évaluation des transformations physico-chimiques engagées à l'intérieur du système hydraulique entrées-sortie peut être appréciée à partir de l'équation des bilans matières pour chacune des espèces minérales et organiques dosées dans les eaux. Pour un écoulement entrant variable modifiant peu la réponse impulsionnelle le bilan matière est obtenu à partir de l'équation:

$$\text{bilan matière} = Qe(t) . Cej(t) * hes(t) - Qs(t) . Csj(t)$$

L'expression $Q_e(t) \cdot C_{ej}(t) \cdot h_{es}(t)$ représente l'évolution du flux massique du paramètre physico-chimique que l'on devrait mesurer en section de sortie si ce paramètre était conservatif au cours de son transit interne au système ; tandis que l'expression $Q_s(t) \cdot C_{sj}(t)$ constitue l'évolution réelle du flux du paramètre j qui est dosé dans la section de sortie du système. Il convient cependant d'échantillonner en entrée et en sortie suivant un plan d'échantillonnage des eaux qui concerne les mêmes fractions d'eaux. Si T_a et Θ sont respectivement le temps d'arrivée (début) en section de sortie et la durée de la réponse impulsionnelle, les prélèvements en section de sortie débiteront avec un retard égal à $T_a + \Theta$ par rapport au début des prélèvements effectués à la section d'entrée. Par ailleurs, les prélèvements en section de sortie auront une durée T_2 qui sera égale à $T_2 = T_1 - \Theta$ où T_1 est la durée des prélèvements en section d'entrée.

Paramètres caractéristiques des réponses impulsives :

S0 $h_{03}(t)$, T_{a0-3} , θ_{03} S4 $h_{43}(t)$, T_{a4-3} , θ_{43}

S1 $h_{13}(t)$, T_{a1-3} , θ_{13} S0

S2 $h_{23}(t)$, T_{a2-3} , θ_{23}

θ_{43} : durée de la D.T.S. entre S4 et S3

T_{a0-3} : temps d'arrivée du traceur de S0 à S3

Flux massique en traceur aux sections de mesures :

$S_0 \rightarrow Q_0(t) \cdot C_0(t)$ S3 $\rightarrow Q_3(t) \cdot C_3(t)$

$S_1 \rightarrow Q_1(t) \cdot C_1(t)$ S4 $\rightarrow Q_4(t) \cdot C_4(t)$

$S_2 \rightarrow Q_2(t) \cdot C_2(t)$

Durée des prélèvements aux sections

S3 : T_3 S0 : $T_0 = T_3 + \theta_{03}$

S4 : $T_4 = T_3 + \theta_{43}$ S2 : $T_2 = T_3 + \theta_{23}$

S1 : $T_1 = T_3 + \theta_{13}$

Temps de début et de fin de prélèvements

S_i : section amont ; $t(\text{début})_i$; $t(\text{fin})_i$; T_i

S_j : section aval ; $t(\text{début})_j$; $t(\text{fin})_j$; T_j

les temps sont fixés en S_j ; $T_i = T_j + \theta_{ij}$

on aura en S_i :

$t(\text{deb})_i = t(\text{deb})_j - (T_{ai-j} + \theta_{ij})$

$t(\text{fin})_i = t(\text{deb})_j + (T_j - T_{ai-j})$

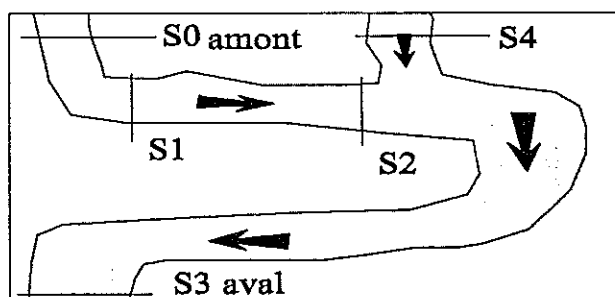


Figure 3 : Schéma du planning de prélèvements aux sections du réseau hydraulique

IV. ETUDE DE CAS : RESULTATS EXPERIMENTAUX

La méthodologie décrite a été mise en œuvre sur quelques rivières et fleuves français pour des régimes hydrauliques différents de 45 l/s à 19.30 m³/s et sur des longueurs de tronçon variant de 2 000 à 14 000 mètres, [2]. Les tronçons étudiés étaient caractérisés d'une part avec des débits d'affluents de flux massiques négligeables devant ceux véhiculés par le tronçon principal. Les résultats obtenus sont présentés dans les tableaux référencés : tableaux 1 et 2.

Les campagnes de mesures de traceur ont permis dans une première phase de caractériser les distributions des temps de séjour de chaque tronçon (tableau 1). L'évaluation des durées des DTS sur chaque tronçon, des temps d'arrivées et des durées d'observation aux sections de sortie ont ainsi permis dans une seconde phase d'imposer les débuts et les durées d'échantillonnage aux sections de sortie.

Rivières : noms	longueur en m.	débit m3/s	vitesse cm / s	profondeur : m	T °C	Cs(O2) saturation mg/l	temps séjour moyen :h.
L'ANTE	2 500	0.045	14.0	0.20	22	8.8	4.9
LA VERE	4 200	0.13	6.6	0.30	22	8.8	17.6
LA VIE	6 000	0.11	19.6	1.60	19.5	9.2	8.5
L'ORNE	3 000	1.20	2.8	0.5 à 3.0	16.5	9.8	29.9
MARNE_CAU	2 000	1.00	2.4	0.5 à 2.0	13.5	10.5	22.6
MARNE_CAL	2 400	1.00	4.1	8.0 à 10	14	10.4	16.4
SEINE_TOY	14 000	17.00	50.0	1.30	18	9.5	7.7
LOING_MNT	3 900	3.90	7.9	3.00	19	9.4	13.7
L'OISE_CEI	4 400	19.30	8.0		16	10.0	15.2

tableau 1 : Caractéristiques des Tronçons de rivières étudiés

L'exploitation des données expérimentales obtenues a permis de réaliser les bilans matière pour chaque tronçon et d'évaluer par optimisation numérique les paramètres de biodégradation (K1) et de réaération (K2).

Les résultats obtenus pour chaque site expérimental sont les suivants :

Rivières : noms	Biodégradation : K1 en jour-1				Réaération, réoxygénation: 3, 4, 5 K2 en jour-1		
	DBO5 décanté mg/l	DBO5 non décanté mg/l	COT mg/l	N organique mg/l	Données de terrain : eau décantée oui non		Relation théorique de la bibliographie
L'ANTE	4.15	7.8	9.8	2.7	19.3	29.6	6.1-8.8-2.8-8.1-11
LA VERE	2.84	3.1	1.1	0.7	5.5	5.7	1.7- 6.2- 8-2- 2.7
LA VIE	2.6	3.4	3.3	0.5	5.0	6.6	5-10.6-16-7.6-7.8
L'ORNE	# 0	0.6	# 0	0.2	# 0.7	0.7	0.1- 0.3- 0.2- 0.07
MARNE_CAU	0.3	---	0.4	0.2	1.2	1.2	non applicables
MARNE_CAL	# 0	# 0	# 0	0.3	# 0.1	# 0.1	non applicables
SEINE_TOY	2.4	---	1.1	1.4	3.2	3.9	2.6-2.8-3.4-6.1- 2
LOING_MNT	# 0	# 0	0.2	0.3	0.2	0.4	0.3-0.8-0.3-1.0
L'OISE_CEI	# 0	# 0	---	----	---	---	0.1-0.2-0.1-0.5-.1

tableau 2 : Comparaison des coefficients de réaération expérimentaux et « théoriques » issues de la bibliographie

Pour chaque tronçon de rivière étudié les résultats expérimentaux obtenus ont permis l'acquisition des données suivantes :

- Réponses Impulsionnelles, vitesse moyenne et coefficient de dispersion longitudinal (modèle hydrodispersif),
- Schéma de représentation d'écoulement par association de réseaux de mélangeurs en cascade (en série ou en parallèle ; mélangeur piston, parfaitement agité avec ou sans échange avec des « zones mortes »). Cette représentation permet en particulier de mieux

représenter les écoulements d'eau et les transports de solutés interactifs avec les dépôts de sédiments présents en fond de rivière.

- Evaluation des phénomènes de réaération naturelle des eaux et des flux d'oxygène consommés par biodégradation qui intègre : la réoxygénation par les échanges air-eaux imputables aux turbulences des eaux et la réoxygénation biologique des eaux due à l'action photosynthétique sous flux de rayonnements solaires.

- Coefficients de réaération qui sont déterminés par optimisation numérique à partir des courbes représentées sur les figures 4 et 5.

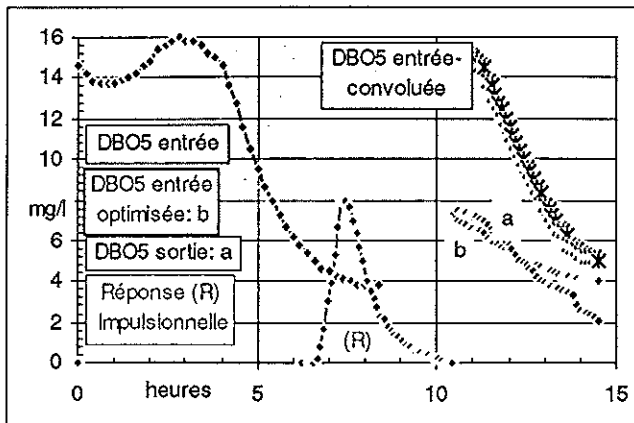


Figure 4 : Fonctions d'entrée brute et optimisée, de sortie et réponse impulsionnelle

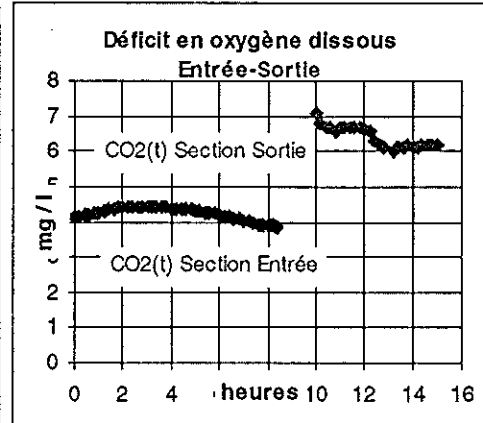


Figure 5 : Déficit en oxygène dissous

V. CONCLUSIONS

La méthodologie des traceurs associée à l'analyse système représente la seule possibilité pour déterminer ces paramètres In Situ. C'est en particulier le cas sur les rivières et fleuves dont les géométries (sections mouillées, profondeurs) sur de longs tronçons ne peuvent pas être assimilées à des écoulements de surface de type écoulements en canaux.

La nécessité d'évaluer In Situ les cinétiques de biodégradation pour des écosystèmes non reproductibles d'une rivière à l'autre ne peut que conduire à mettre en œuvre des méthodologies de ce type. Par ailleurs, les régimes hydrauliques ne sont pas toujours établis et il conviendra pour des temps de transferts importants de prendre en compte l'exploitation des Réponses Impulsionnelles en régime hydraulique variable.

La méthode d'exploitation pourrait s'imprégner en particulier des travaux de M.Dzikowski [6]. La représentation d'écoulements en régimes hydrauliques établis à l'aide de modèles d'écoulements de type réacteurs en cascades avec échange devrait par ailleurs aussi permettre de mieux représenter ces écoulements.

VI. REFERENCES

- (1) E.B.PHELPS, U.S. Ged.Survey Water supply Paper, n° 224, pp 75, 1909.
- (2) G.Beaudoing, P.Mouyon, B.Ville, D.Marion, R.Margrita, Etude d'Autoépuration de cours d'eau. Rapport CEA/ SARR/ GARTHI/ 7635.
- (3) W.B.Langbein, W.H.Durum, The aeration capacity of streams, U.S.Geological Survey circular n°542 Washington DC, 1967.
- (4) M.Owens, R.W.Edward, J.W.Gibbs, Some reaeration studies in streams, Int. J. Air and Water Pollut., 1964.
- (5) W.P.Isaacs, A.F.Gavoy, Atmospheric oxygenation in a simulated stream, Journal of the Sanitary Engineering Division, ASCE, vol.94, n° SA2, Proc Paper 5905, 1968.
- (6) M.Dzikowski, Convolution à débit variable à partir de réponses de traçages artificiels dans les milieux poreux ou karstiques, Journal of Hydrology, 164, 1995.

SIMULATION DES CHANGEMENTS DE TEINTE DANS UN FOUR DE FUSION DE VERRE

E. PUONS, S. RATTANA, J.Ph. VANTARD

<> BSN (Groupe DANONE)
BP 16 - Centre de St Romain en Gier
69702 GIVORS Cedex 02

C. PLARD

<> EDF - DER / ADEI
Les Renardières - 77818 MORET s/LOING Cedex

N. MECHITOUA

<> EDF - DER / LNH
6, quai Watier - 78400 CHATOU

J.L. HOUZELOT, J. LEDE

<> LSGC-CNRS-ENSIC
BP 451 - 1, rue Grandville
54001 NANCY Cedex

RESUME

Dans l'industrie du verre d'emballage, il est parfois nécessaire de changer la teinte du verre produit par les fours de fusion pour répondre aux impératifs de production. Ces changements de teinte sont opérés en continu en faisant varier de manière judicieuse la composition des matières premières enfournées. Malheureusement cette étape transitoire occasionne dans certains cas de graves perturbations sur la qualité du verre produit. L'objet de cet article est de prouver la faisabilité de simuler numériquement cette opération et ainsi de mieux comprendre les phénomènes physiques mis en jeu.

I. INTRODUCTION

Un four verrier est un grand bassin rectangulaire dont les murs sont constitués de matériaux réfractaires, pouvant contenir plusieurs tonnes de verre en fusion. Généralement les fours fonctionnent en régime permanent et sont dimensionnés pour que le temps de séjour moyen du verre soit de 24 heures. Les matières premières (sable, calcaire et soude) sont enfournées à la surface du bain de verre et flottent du fait leur faible densité apparente avant de fondre et de pénétrer à l'intérieur de la masse de verre en fusion. Sur certains fours, on procède fréquemment à des changements de teinte. Ces changements se font en modifiant de manière progressive la composition des matières premières entrantes (ajout ou suppression d'oxydes métalliques colorants, modification de l'état d'oxydoréduction du verre, ...). Cette opération se traduit par une variation locale des propriétés physiques du verre (conductivité thermique et électrique, viscosité, densité), ce qui perturbe le fonctionnement du four lors de cette phase transitoire. Sur le plan industriel, on cherche à limiter le temps nécessaire pour obtenir la teinte désirée tout en préservant le niveau de qualité. Pour cela on procède à des étapes de dopage (on introduit dans le four plus de colorant qu'il n'en faudrait pour obtenir la teinte finale pendant une courte période). Ces dernières doivent être optimisées afin de ne pas produire des gradients chimiques trop importants dans les zones mortes du four. En effet, l'existence de zones dans lesquelles des verres d'état d'oxydoréduction très différent cohabitent, conduit souvent à la formation de bulles de gaz (bouillons) qui persistent dans le four pendant plusieurs jours après la fin du changement de teinte.

II. MODELISATION DES ECOULEMENTS ET DES TRANSFERTS THERMIQUES LORS D'UN CHANGEMENT DE TEINTE

II. 1. Calcul des écoulements et des transferts thermiques

Ces calculs sont brièvement décrits ici, le lecteur cherchant à approfondir ce domaine est invité à se reporter à la lecture des articles (1,2,3,4). Les écoulements de verre et les transferts thermiques dans le four sont obtenus en résolvant de manière couplée les équations de Navier Stokes et de conservation de l'énergie :

- Conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \rho \nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad (1)$$

- Conservation de la quantité de mouvement :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \rho (\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} + \nabla P = \nabla \cdot (\mu \nabla \vec{v}) + \rho \vec{g} \beta (T - T_0) \quad (2)$$

- Conservation de l'énergie :

$$\rho \frac{\partial (C_p T)}{\partial t} + \rho \vec{v} \cdot \nabla (C_p T) = \nabla \cdot (k_{eff} \nabla T) \quad (3)$$

Ces équations doivent être résolues en considérant les conditions aux limites appropriées :

- adhérence et échange thermique sur les parois réfractaires du four,
- glissement et flux de chaleur provenant de la zone de combustion à la surface libre du bain de verre,
- entrée de matière à la température imposée sur la zone de fusion des matières premières.

II. 2. Prise en compte du paramètre « teinte »

Afin de représenter le comportement transitoire du four lors du changement de teinte, les propriétés locales du verre (masse volumique, conductivité thermique, viscosité, conductivité électrique) doivent être calculées à chaque itération temporelle. Considérons le changement de teinte correspondant au passage du verre V^1 au verre V^2 . On peut définir en tout point du four le paramètre « teinte » ξ comme la proportion de verre V^2 ($\xi \in [0,1]$ avec $\xi = 0$ pour les zones où il n'y a que du verre V^1 et $\xi = 1$ pour les zones où il n'y a que du verre V^2). Les propriétés physiques locales du verre sont alors fonction de la température et sont supposées dépendre linéairement de ξ . Ainsi pour la conductivité thermique effective et la viscosité du verre, on a :

$$k_{eff}(T, \xi) = (1 - \xi) k_{eff}^1(T) + \xi k_{eff}^2(T) \quad (4)$$

$$\mu(T, \xi) = (1 - \xi) \mu^1(T) + \xi \mu^2(T) \quad (5)$$

Les variations de masse volumique au cours du changement de teinte bien que faibles dans l'absolu ne doivent pas être négligées car elles sont comparables aux variations dues aux différences de température responsables de la convection naturelle dans le four.

Si on considère que la diffusion des colorants dans le verre est négligeable devant leur convection, le calcul de la variable $\xi(x, y, z, t)$ se fait en résolvant l'équation (6) à chaque itération temporelle :

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} + \vec{v} \cdot \nabla \xi = 0 \quad (6)$$

Pour résoudre cette équation, on applique les conditions aux limites suivantes :

- $\xi = 1$ à l'entrée des matières premières dès que le changement de teinte débute.
- Flux nul sur toutes les autres frontières du domaine.

D'autre part on suppose qu'avant le début du changement de teinte, on a $\xi = 0$ dans tout le domaine.

II. 3 . Exemple de calcul

Le but de cet article étant de montrer la faisabilité des calculs ainsi que la nature des informations qui peuvent en être tirées, un cas 2D a été considéré. On étudie le passage d'une teinte verte à une teinte blanche pour un tonnage du four maintenu constant à 280 t/j. La figure 1 montre l'état initial (verre vert) et final (vert blanc) du bain de verre.

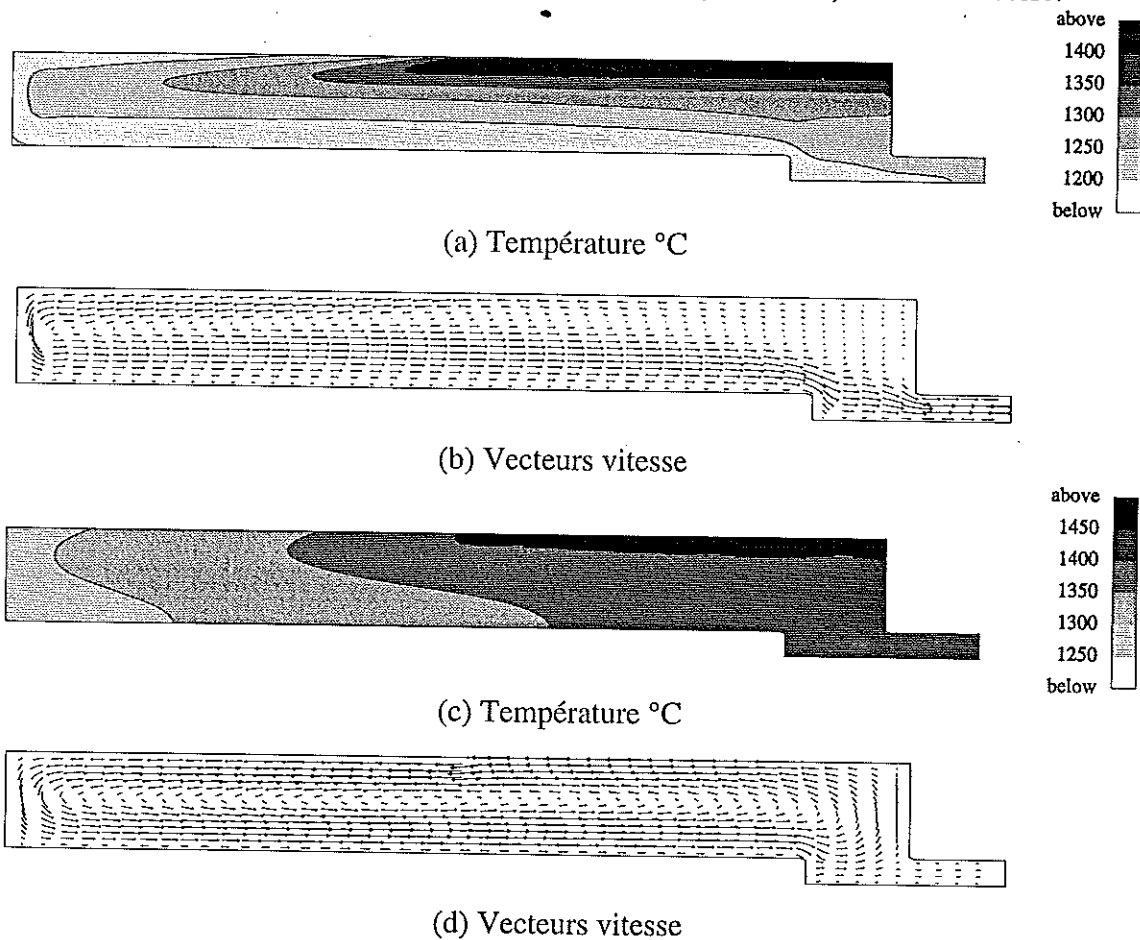


Figure 1 : Température et vecteurs vitesse dans le four dans le cas du verre vert (a-b) et dans le cas du verre blanc (c-d)

Entre ces deux verres, la propriété physique qui change le plus est la conductivité thermique effective. Cette variation explique en grande partie la différence de comportement du four entre ces deux types de verre.

La figure 2 met en évidence l'arrivée de la teinte dans le four. Au cours des premières heures du changement de teinte ($t < 8h$), le verre blanc arrive par la surface du bain et plonge sous l'effet de la convection naturelle. Puis, sous l'effet de la force de tirée, il arrive dans le siphon sous la forme d'une « langue » (figure 2c). Par la suite, une partie non négligeable du verre blanc est recyclé sous l'effet de la convection en passant par la partie supérieure du bain (figure 2d). Les figures 2e, 2f et 2g mettent alors en évidence la formation d'une poche de verre vert au centre du four qui se résorbe lentement au

cours du temps. Il est à remarquer que dans le cas présent, après 28 heures de changement de teinte, le verre qui sort par le siphon est quasiment blanc ($\xi = 0,98$). Cependant il est probable que l'existence de la poche de verre vert soit pénalisante quant à la durée réelle du changement de teinte car elle implique que des verres de REDOX très différents restent en contact pendant de longues heures dans le four d'où formation d'inclusions gazeuses.

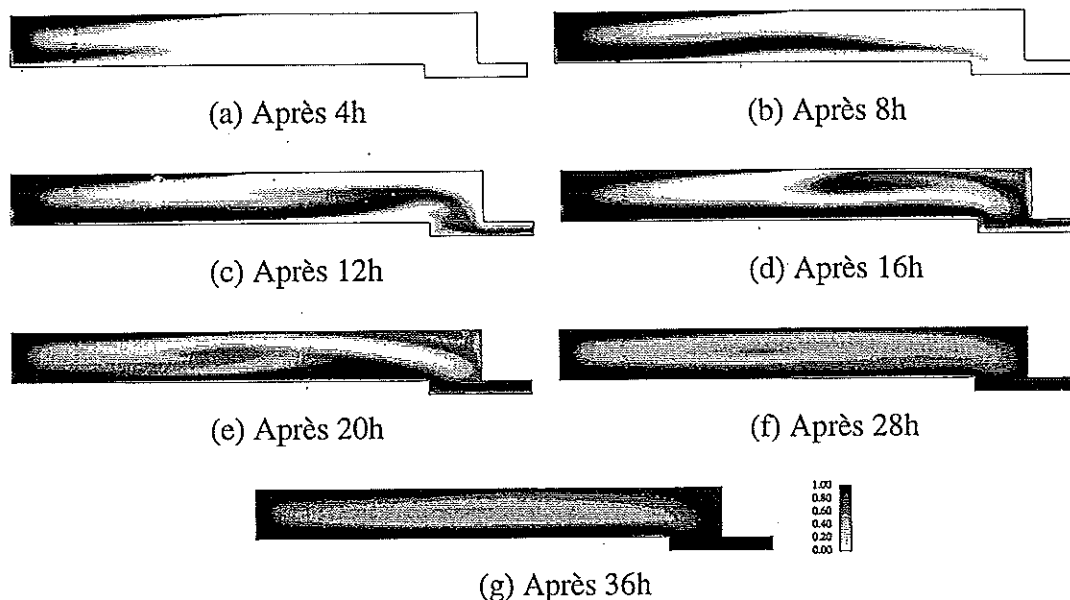


Figure 2 : Evolution du paramètre de « teinte » ξ dans le four au cours du temps

III . OPTIMISATION DES CHANGEMENTS DE TEINTE

Il est donc possible de simuler numériquement les changements de teinte dans le détail. Cependant, cette technique est lourde à mettre en œuvre et n'est pas encore utilisée pour l'exploitation quotidienne des fours industriels. On préfère modéliser le comportement du four grâce à un réacteur parfait (bien souvent un mélangeur parfait) et prédire par convolution l'évolution de la teinte en sortie. Si dans un certain nombre de cas ce modèle est suffisant, dans d'autres cas plus complexes, il est limité et peut conduire à commettre des erreurs dramatiques. L'objet de cette partie est de proposer un modèle hydrodynamique de four plus proche du comportement réel de ce dernier.

III . 1 . Modèle hydrodynamique de four

Compte tenu de l'aspect des courbes de distribution des temps de séjour (DTS) obtenues par simulation numérique (figure 3), il semble que le modèle de J mélangeurs en cascade avec échange (modèle MCE – figure 4) soit représentatif du cas des fours verriers. Les trois paramètres de ce modèle $t_m = \frac{V_2}{\alpha Q}$, $K = \frac{V_2}{V_1}$ et $\tau = \frac{JV_1}{Q}$ peuvent facilement être calculés grâce à un algorithme d'optimisation, mais ne sont valables, en toute rigueur, que pour le point de fonctionnement considéré.

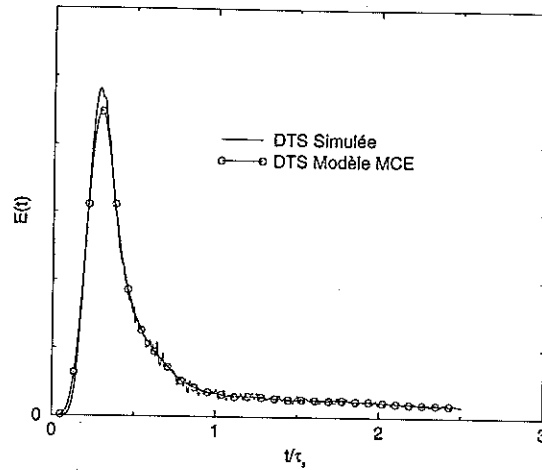


Figure 3 : Exemple de courbe DTS simulée et calculée par le modèle MCE dans le cas d'un fonctionnement du four en verre blanc

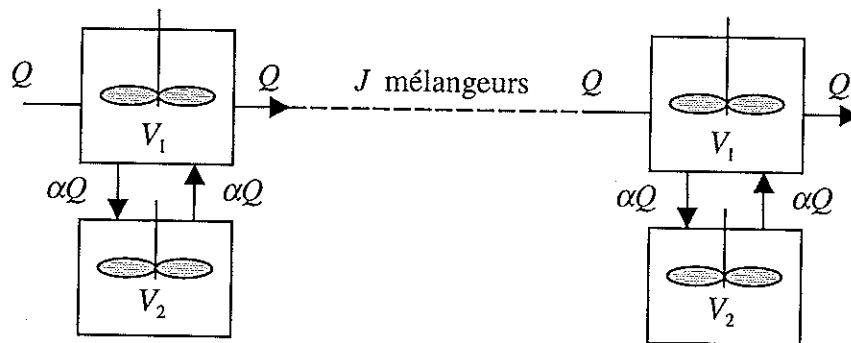


Figure 4 : Modèle hydrodynamique équivalent de four verrier (Modèle MCE)

La figure 3 montre que dans le cas présent, le modèle MCE convient parfaitement pour représenter le comportement hydrodynamique du four.

III. 2 . Optimisation des étapes de dopage

Une fois les paramètres du modèle MCE calculés, il est relativement aisé d'obtenir par convolution la variation de la teinte en sortie du four en fonction de la façon dont on a modifié la composition des matières premières entrantes. La figure 5 montre ainsi la réponse calculée pour 3 modes de dopage différents.

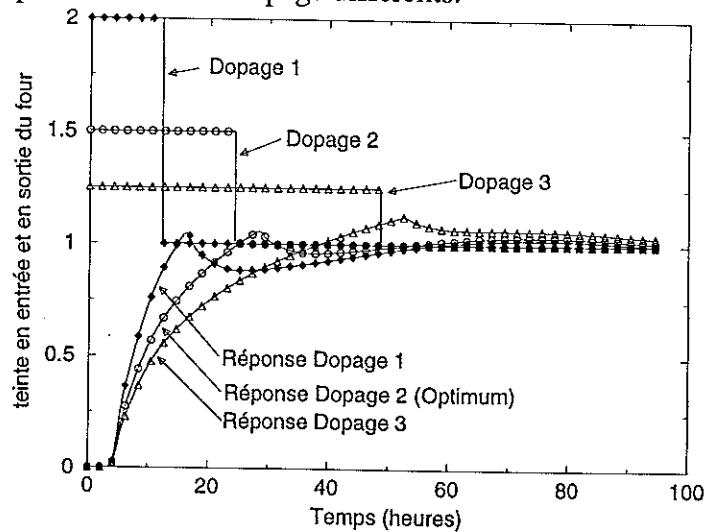


Figure 5 : réponse du four pour 3 modes de dopage différentes

Ce graphique montre qu'il est nécessaire de trouver un compromis entre la rapidité avec laquelle on réalise le dopage et la stabilité de la teinte en sortie du four.

IV. CONCLUSIONS

La simulation directe des changements de teinte sur un four verrier est possible, mais cet outil reste encore réservé au domaine de la recherche du fait de la puissance de calcul nécessaire. D'un point de vue plus industriel, il est envisageable d'utiliser des modèles hydrodynamiques simplifiés (voir aussi 5) permettant de mieux prédire et maîtriser les phases de changement de teinte. Par une amélioration des connaissances physiques, des techniques de simulation, de modélisation, mais aussi de mesure (voir 6), on peut espérer pour l'avenir une amélioration significative de la maîtrise (rapidité et stabilité) des opérations de changement de teinte.

NOTATIONS

C_p	Capacité calorifique	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
$E(t)$	Réponse impulsionnelle	adim
\bar{g}	Gravité	$9,81 m^2.s^{-1}$
J	Nombre de motifs élémentaires du modèle MCE	adim
K	Rapport entre zone morte et zone mélangeur	adim
k_{eff}	Conductivité thermique effective	$W.m^{-1}.^{\circ}C^{-1}$
Q	Débit de verre entrant	$m^3.s^{-1}$
t	Temps	s
t_m	Temps de séjour dans une zone morte élémentaire	s
T	Température	$^{\circ}C$
T_0	Température de référence	$^{\circ}C$
V_1	Volume d'une zone mélangeur élémentaire	m^3
V_2	Volume d'une zone morte élémentaire	m^3
\bar{v}	Vitesse du verre	$m.s^{-1}$
α	Proportion du débit total passant dans la zone morte	adim
β	Coefficient de dilatation volumique	$^{\circ}C^{-1}$
μ	Viscosité	Pa.s
ρ	Masse volumique	$kg.m^{-3}$
τ	Temps de séjour dans la zone mélangeur	s
ξ	Paramètre de teinte	adim

REFERENCES

- (1) Viskanta R., Review of three-dimensional mathematical modeling of glass melting, Journal of Non-Crystalline Solids, N° 177, p. 347-362, 1994.
- (2) Schill P., Calculation of 3D glassmelt flow in large furnace via two grids method, Glastechn. Ber., Vol. 63K, p. 39
- (3) Muysenberg H.P.H., Simonis F., Heijden T.C., The use of numerical flow models in glass melting process, Proc. 16th Int. Congr. on glass, Vol. 6, p. 3
- (4) Puons E., Rattana S., Vantard J.P., Plard C., Mechtoua N., Houzelot J.L., Lede J., Modélisation des fours de fusion de verre, Verre, vol.4, n°2, mars-avril 1998, p.11-15.
- (5) Bauer R.A., op den Camp O., Optimal control of glass melting process using simulation models, Proc. XVIII International congress on glass, B6, p.7, 1998
- (6) Jones J.V., Tracer model for improving continuous product changes, Proc. XVIII International congress on glass, B5, p. 42, 1998.

MESURE DE DEBIT DE NAPPE EN ECOULEMENT NATUREL PAR DILUTION D'UN TRACEUR FLUORESCENT

N. COURTOIS

◁ CEA - DAMRI/DTA/SAR
17, avenue des Martyrs
38054 GRENOBLE CEDEX 09

Résumé

L'article suivant présente le principe de la mesure locale de débit de nappe par dilution d'un traceur fluorescent dans une portion de forage. Si la mesure est facile à mettre en œuvre, elle n'est pas directe : il faut savoir comment la donnée cherchée des courbes expérimentales. Une étude paramétrique expérimentale a été conduite sur une maquette à l'échelle 1, pour une gamme de débits de dilution proche de celle du terrain. L'observation du comportement du système amène à une conceptualisation physique qui est la combinaison de modèles d'écoulement simples (mélangeurs parfaits et pistons). Une solution analytique du modèle est proposée, et deux méthodes d'ajustement à 2 et 4 paramètres sont testées.

I. INTRODUCTION

I.1. Contexte hydrogéologique

La protection des nappes souterraines requiert la connaissance de leurs caractéristiques, comme le gradient hydraulique, les perméabilités et les coefficients de dispersion. Le rhéomètre, appareil développé et utilisé à la Section d'Application des Traceurs permet la mesure du débit de nappe en écoulement naturel à travers un forage (1). La perméabilité horizontale K_h correspondante s'en déduit par l'équation de Darcy, moyennant un facteur de proportionnalité β dépendant des caractéristiques du forage et du terrain, et dont la détermination sort du cadre de l'article : $K_h = -\beta \cdot Q_n \cdot \nabla H$, avec Q_n le débit de la nappe à travers le forage, et ∇H le gradient hydraulique moyen.

I.2. Principe de la mesure de débit par dilution

Le principe de la mesure de débit par dilution est simple (cf. figure 1) : un traceur fluorescent (Rhodamine WT), injecté instantanément dans une portion de forage isolée par des packers (rondelles étanches), est dilué par l'écoulement de la nappe à travers le puits. La disparition du traceur est mesurée en continu par un fluorimètre. La circulation de l'eau dans le volume du rhéomètre et dans le circuit est assurée par une pompe immergée, dont le débit est réglé par un convertisseur en fréquence. La vitesse de disparition du traceur est liée au débit de nappe qui traverse le volume de forage isolé.

Usuellement (3), le volume de forage isolé V_f est assimilé à un mélangeur parfait, de temps de séjour V_f/Q_n .

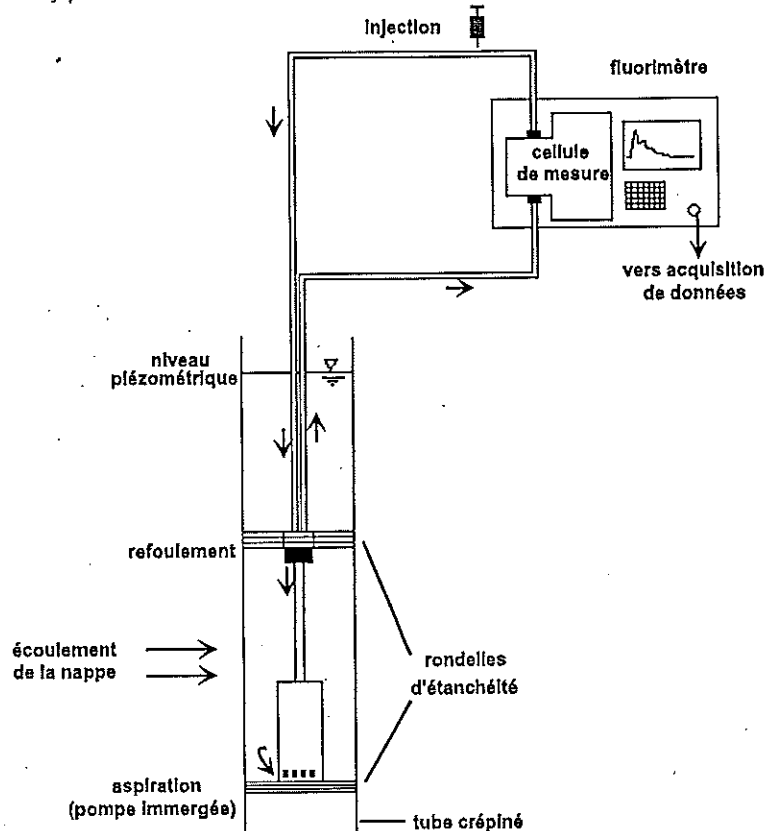


Figure 1 : Schéma de principe de la mesure de débit par dilution

I.3. Avantages et inconvénients de la méthode

Du point de vue expérimental, la méthode présente l'avantage d'utiliser des traceurs fluorescents sans danger pour l'environnement. De plus, elle ne nécessite pas de pompage dans le puits puisque la mesure s'effectue en écoulement naturel. L'inconvénient majeur est le volume de tuyaux, qui peut devenir important si la profondeur du puits augmente. Pour une mesure de débit dans un puits à 25 mètres de profondeur, le volume de tuyaux équivaut à la moitié de celui du forage isolé.

II. ETUDE EXPERIMENTALE SUR MAQUETTE

Le problème posé est de savoir comment extraire le débit Q_n des courbes expérimentales de dilution. L'hypothèse du mélangeur parfait utilisée habituellement ne rend pas compte du temps circulation dans les tuyaux ni du recyclage du traceur.

Plusieurs paramètres entrent en jeu dans la méthode de mesure de débit par dilution :

- V_f le volume de forage isolé entre les packers,
- V_e le volume du circuit extérieur (tuyaux et fluorimètre),
- Q_p le débit de la pompe de circulation,
- Q_n le débit de la nappe traversant le volume de forage isolé.