

Rapport de stage de fin d'études

# **Développement d'une technique expérimentale de détermination de la distribution des temps de séjours des phases solide et gazeuse**

Marc DALMAU ARREDONDO

Responsable stage international : Aurelie DELORME

Responsable direct : Aïssa OULD-DRIS

Enseignant suiveur : Michel HOUDÉ

Du 12 mars 2012 au 27 juillet 2012

Centre de Recherches – UTC

## **Remerciements**

*Je tiens à remercier en premier lieu le Professeur Aïssa OULD-DRIS, qui a accepté de me prendre comme stagiaire. Je le remercie pour l'assistance qu'il m'a apportée, pour ses encouragements, pour les conseils qu'il m'a donnés et la bonne ambiance dans laquelle j'ai pu travailler.*

*Je tiens aussi à remercier Mourad HAZI pour sa disponibilité permanente et pour m'avoir aidé lors des moments les plus difficiles.*

*Mes remerciements vont aussi à la professeur Rosa Mari DABRA, pour son soutien moral et ses conseils pour affronter l'avenir.*

*Je remercie Ahmed BELLIL pour ses conseils avisés et pour sa disponibilité lors des nombreuses et bénéfiques discussions que nous avons eues ensemble.*

*Je tiens à remercier aussi à Tarik DRAH pour ses explications et conseils au début du stage.*

*Je désirerais adresser ma gratitude à chacun des membres du Génie des Procédés Industriels de l'UTC, qui m'ont aidé et conseillé: stagiaires, doctorants, techniciens, enseignants et personnel administratif.*

*Je voudrais aussi remercier tous les amis que je me suis fait pendant cette inoubliable année d'échange. Je n'oublie pas non plus Alice SUTRA, Sebastian FRONTALLINI, Gabriel NOCITO, Guilherme DANTAS, Pedro AFONSO, Guilherme RIBEIRO, Maria Julia CUNHA, Matej SLOVÁČEK, Jirí JAZZICEK, Felipe RODRÍGUEZ, Daniel TORRES, Nestor LÓPEZ, Gisela DURRUTY, Maria LANGOYO, Ana GUILARTE, Jorge GOMEZ, Beatriz ARROYO, Robert NOLAND et Juan DIAZ (je m'excuse d'avance auprès de ceux que je n'ai pas cité). Merci à tous pour leur soutien moral et leur affection mais aussi pour toutes les expériences et bons moments partagés à Compiègne.*

*J'adresse de chaleureux remerciements à mon père, ma mère et ma sœur, pour l'opportunité qu'ils m'ont donné d'étudier, leur confiance en moi et leur soutien pendant toutes ces années.*

*Enfin, je ne saurais terminer ces remerciements sans avoir une pensée pour mes amis de l'Espagne, pour leur soutien lors des moments difficiles, pour m'encourager, relever les défis et pour leur affection malgré la distance. Mes remerciements vont spécialement à César MARTÍNEZ, Roc MATHEU, Alberto ESPINOSA, Adrià BORDES, Marc BORDES, Victor BLANCO, Martin LÁZARO, Núria SALADIÉ, Sara VIDAL, Julia JARQUE, Clara RODRIGUEZ, Pedro AGUAS, Martin MÉNDEZ, Daniel GARCÍA, Carmen BALSALOBRE, David ALONSO, Eduard LAGUARDA, Arnau MESTRES et David GRACIA entre autres.*

## Index

1. Présentation du stage.....	5
2. Introduction.....	6
2.1 La Distribution de Temps de Séjour (DTS) .....	6
2.2 Détermination expérimentale de la DTS .....	7
2.2.1 Détermination de la DTS gaz.....	7
2.2.2 Détermination DTS solide.....	8
2.2.2.1 Méthodes perturbatrices .....	8
2.2.2.1.1 Traceur chimique.....	8
2.2.2.1.2 Traceur radioactif .....	8
2.2.2.1.3 Traceurs magnétiques.....	8
2.2.2.1.4 Traceurs par taille granulométrique .....	9
2.2.2.2 Méthodes non perturbatrices .....	9
2.2.2.2.1 Traceur thermique.....	9
2.2.2.2.2 Absorption lumineuse .....	9
2.2.2.2.3 Traceur phosphorescent.....	9
3. Fabrication des particules traçantes.....	11
3.1 Approche théorique .....	11
3.2 Expérience .....	11
3.2.1 Caractérisation du sable.....	11
3.2.2 Procédé d'enrobage .....	13
3.2.2.1 Produits.....	13
3.2.2.2 Méthode .....	13
3.2.3 Résultats .....	13
3.2.3.1 Analyse granulométrique .....	13
3.2.3.2 Analyse de phosphorescence.....	15
4. Caractérisation du phénomène de phosphorescence .....	17
4.1 Approche théorique .....	17
4.1.1 Unités de grandeur .....	17
4.1.2 Détermination théorique de l'équation de flux de lumière reçu.....	18
4.1.2.1 Simplification de l'équation de facteur de forme $F_{12}$ .....	19
4.2 Description du matériel .....	22
4.2.1 Le photomultiplicateur.....	22
4.2.2 La carte d'acquisition.....	23

4.2.3	Le logiciel .....	24
4.2.4	Le flash.....	24
4.2.5	Le pigment.....	25
4.3	Le banc d'essais.....	25
4.3.1	Description de l'installation .....	25
4.4	Expériences.....	26
4.4.1	Détermination de la position du flash .....	26
4.4.2	Contribution du flash au signal reçu.....	26
4.4.3	Contribution du bruit de fond au signal reçu.....	28
4.4.4	Evolution du signal reçu par rapport à la distance h.....	28
4.4.5	Evolution du signal reçu par rapport à la surface de l'échantillon .....	29
4.4.6	Vérification de la fonction de flux de lumière.....	30
4.4.7	Simplification de l'équation du flux de lumière.....	32
4.4.8	Evolution du signal reçu par rapport à la masse de poudre.....	33
4.4.9	Détermination expérimentale de la fonction de décroissance de la phosphorescence .....	35
4.4.10	Equation globale du signal reçu .....	37
5.	Détermination de la DTS sur le réacteur .....	40
5.1	Description de l'installation .....	40
5.2	Traitement du signal .....	41
5.3	Premiers essais.....	42
5.4	Amélioration de la technique.....	44
6.	Conclusions .....	45
7.	Bibliographie.....	46
8.	Annexe A. Fiche techniques du matériel employé.....	48
9.	Annexe B. Exemples d'essais.....	52

## 1. Présentation du stage

Pendant le semestre de printemps de l'année scolaire 2011-2012, j'ai effectué mon stage de fin d'études au Centre de Recherches de l'Université de Technologie Compiègne, au sein du département Génie des Procédés Industriels.

Mon stage s'inscrivait dans le marc du projet CEGASET (*Méthodologie spécifique globale de Caractérisation des Écoulements GAZ/Solides pour l'optimisation d'Enceintes Thermiques*).

Le projet CEGASET est un projet cofinancé par le Conseil Régional de la Picardie et l'Union Européen. Il est développé dans le «Laboratoire des Transformations Intégrées de la Matière Renouvelable (TIMR)» de l'UTC et le «Laboratoire des Technologies Innovantes (LTI)» de l'UPJV. C'est précisément dans les installations de l'équipe (TIMR) où j'ai développé mon travail. Cette équipe a une compétence reconnue dans le domaine de la conversion thermochimique de la biomasse et des déchets ; et dispose aussi des compétences et moyens nécessaires, à échelle laboratoire ainsi qu'à échelle pilote pour l'évaluation et le développement de procédés et équipements dans le domaine de l'industrie.

Pour une durée de trois ans, l'objectif de ce projet est de mettre en place un outil pour caractériser les écoulements à l'aide d'un couplage d'une méthode numérique, tout en modélisent le comportement de l'écoulement par éléments discrets, et une méthode expérimentale, tout en calculant la Distribution de Temps de Séjour (DTS) du système. C'est précisément sur cette dernière partie que repose mon travail de stage. Ma mission pendant ces six mois était de développer une nouvelle méthode expérimentale pour la caractérisation de la DTS pour des écoulements diphasiques air-poudre grâce à des particules traçantes phosphorescentes.

Concrètement mon travail concerne les phases initiales de l'expérimentation : la caractérisation de la phosphorescence, le développement du traçant phosphorescent et les premières essais dans le réacteur.



Figure1. Le Centre de Recherches de l'UTC.

## 2. Introduction

### 2.1 La Distribution de Temps de Séjour (DTS)

Les réacteurs chimiques sont des équipements très importants dans le domaine de l'industrie chimique. En quelques occasions on peut approcher le comportement hydrodynamique des réacteurs réels à des réacteurs idéaux, comme par exemple le Réacteur Piston (RP), le Réacteur Parfaitement Agité (RPA) ou même avec le modèle de flux laminaire. Toutefois, la plupart des réacteurs réels n'ont pas un comportement approchable aux idéaux, et alors un nouvel outil pour les modéliser est nécessaire.

Ce nouvel outil, introduit par Danckwerts pendant les années 50, est appelé DTS et est représenté par la fonction  $E(t)$ .

La fonction  $E(t)$  peut être calculée expérimentalement, tout en injectant une concentration connue de traçant à l'entrée, et tout de suite en mesurant l'évolution de la concentration de ce traçant à la sortie en fonction du temps  $C(t)$ . De cette façon, si on fait la relation entre la concentration à la sortie sur la concentration totale, on peut définir  $E(t)$  comme :

$$E(t) = \frac{c(t)}{\int_0^{\infty} c(t)dt} \quad (2.1)$$

La fonction  $E(t)$  donne l'information sur le temps durant lequel le traçant est resté dans le réacteur avant de sortir.

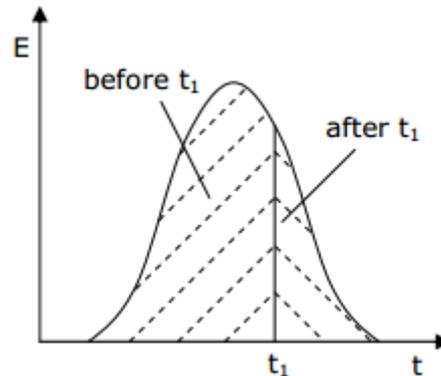


Figure2. Typique fonction  $E(t)$  pour un R.P. non idéal.

La fonction  $E(t)$  doit être toujours positive, normée, homogène et avoir une densité de probabilité égale à l'unité.

Un autre outil très utile est la Distribution Cumulée des Temps de Séjours,  $F(t)$ . Cette fonction indique la quantité de traceur qui est déjà sortie du réacteur à l'instant  $t$ . Elle est définie comme :

$$F(t) = \int_0^t E(t)dt \quad (2.2)$$

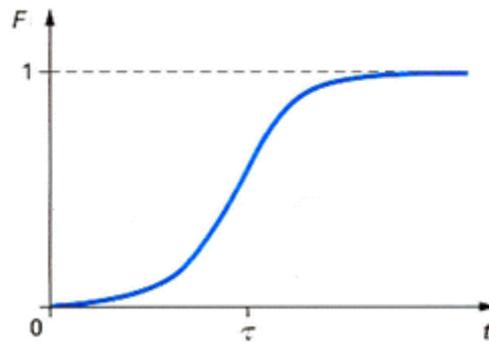


Figure3. Typique fonction  $F(t)$  pour un R.P. non idéal.

De plus, on peut calculer la moyenne des temps de séjours comme ci-dessous:

$$\bar{t}_{sm} = \int_0^{\infty} t \cdot E(t) dt \quad (2.3)$$

Concernant l'étude de réacteurs, la DTS permet de déterminer le niveau de réalisation d'un certain type de réaction chimique, elle permet de tirer des informations concernant les défauts d'écoulement internes, comme par exemple les volumes stagnants, les zones de court-circuit ou les écoulements internes de recyclage.

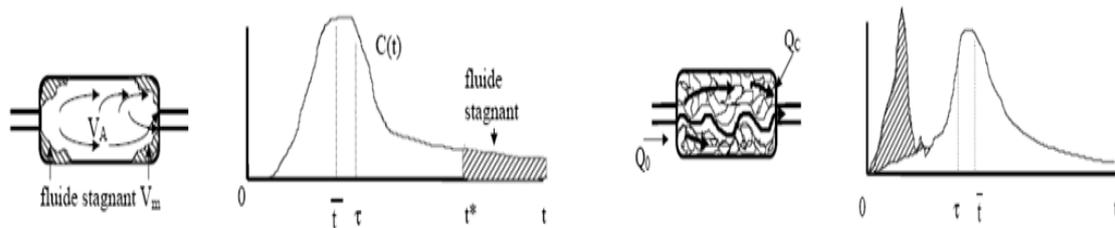


Figure4. DTS typiques de volumes stagnants (à gauche) et court-circuit (à droite).

## 2.2 Détermination expérimentale de la DTS

### 2.2.1 Détermination de la DTS gaz

Pour déterminer expérimentalement la DTS, une fraction des molécules entrantes dans le réacteur est marquée (traçants), puis injectée dans l'écoulement. Pour bien réaliser l'expérience, ces molécules doivent avoir les mêmes propriétés physiques que le fluide principal, elles ne doivent pas perturber le comportement hydrodynamique de l'écoulement et doivent avoir une caractéristique mesurable et différente au fluide principal à fin de les différencier.

Généralement, la détermination de la DTS de fluides homogènes comme le gaz est déjà assez étudiée et par conséquent ne pose pas beaucoup de problèmes; il y a une grande quantité de bibliographie disponible, les traceurs employés sont très accessibles et très identiques à l'écoulement principal (gaz hélium principalement) et l'instrumentation nécessaire à la mesure est très efficace.

## 2.2.2 Détermination DTS solide

À la différence de la DTS gaz, la détermination de la DTS solide a été beaucoup moins étudiée. En effet, le calcul de ce paramètre devient plus complexe par rapport à la DTS gaz, à cause de la complexité des écoulements diphasiques gaz-solide, le comportement de ces derniers n'est pas au jour d'aujourd'hui bien connu.

Au niveau expérimental, le principal problème rencontré pendant la détermination de la DTS est de trouver un traceur adéquat, donc ils peuvent perturber l'écoulement et fausser les résultats obtenus. À cause de cela, on peut classer les différentes méthodes en perturbatrices, qui perturbent l'écoulement, et les non perturbatrices, lesquelles ne le perturbent pas.

### 2.2.2.1 Méthodes perturbatrices

#### 2.2.2.1.1 Traceur chimique

Dans cette méthode, le traceur est le chlorure de sodium, lequel est mélangé avec le solide à l'entrée du réacteur. La taille et la densité du chlorure de sodium doivent être identiques à celles du solide. On collecte immédiatement différents échantillons à la sortie du réacteur à différents temps. Finalement on dissout chaque échantillon et on mesure ensuite la conductivité de la solution, ce qui va donner la concentration en sel dans la mélange récolté pour chaque instant  $t$ .

Les principaux problèmes de cette méthode sont que la mesure n'est pas effectuée en continu et que l'écoulement est très perturbé lorsque le prélèvement des échantillons est mis en place.

#### 2.2.2.1.2 Traceur radioactif

Cette méthode consiste à irradier des particules solides avec un canon à neutrons, qui serviront de traceur. Les particules obtenues doivent avoir une demi-vie assez courte (moins d'une heure). Elles sont injectées par pulsation dans le courant gaz-solide puis les rayons gamma émis par ces particules sont détectés en sortie du réacteur par un compteur adéquat. Ensuite, il faut tenir compte de la décroissance radioactive, connue, des particules irradiées, pour obtenir la DTS.

Cette méthode est très répandue car c'est l'une des plus fiables. Néanmoins, elle présente un inconvénient majeur : l'utilisation de particules radioactives, qui portent atteinte à la santé. Elle nécessite donc des conditions de sécurité très élevées et n'est pas à la portée de tout le monde. De plus, les particules traçantes laissent toujours une radiation résiduelle dans le système, qui oblige à attendre longtemps entre essai et essai.

#### 2.2.2.1.3 Traceurs magnétiques

On peut aussi déterminer la DTS avec des traceurs magnétiques. Le principe de base de cette méthode repose sur la mesure, grâce à une bobine accolée autour de la section, de la modification de la perméabilité magnétique du milieu. Toute modification de la perméabilité du milieu situé dans la zone qui influence le champ, entraîne donc une variation de la tension, facile à mesurer en continu.

Cette technique présente l'avantage d'une détection totalement non perturbatrice et en continu. Cependant l'injection est réalisée de façon pulsée, ce qui induit inévitablement une perturbation de l'écoulement. De plus, l'inconvénient majeur de cette technique est la différence de sensibilité de la détection selon que la particule est proche des parois ou au cours de l'écoulement.

#### 2.2.2.1.4 Traceurs par taille granulométrique

En cette technique, les traceurs sont des particules de la même espèce que celles de l'écoulement principal mais avec une taille supérieure. À la sortie du réacteur on prend de différents échantillons à différents temps, puis ils sont tamisés et finalement on mesure la masse de chaque traceur pour déterminer la concentration à chaque instant  $t$ .

Les inconvénients de cette technique sont en premier lieu que le comportement de l'écoulement d'essai n'est pas identique au réel, en deuxième lieu que tant l'injection que la détection sont fortement perturbatrices et finalement on a une détection qui n'est pas continue.

#### 2.2.2.2 Méthodes non perturbatrices

##### 2.2.2.2.1 Traceur thermique

Dans cette technique, les traceurs s'agitent des particules identiques à celles de l'écoulement normal, mais elles ont été préchauffées en avant. La détection est possible grâce à un système de thermomètres placés à la sortie.

Le principal problème de cette technique est la complexité de relier la variation de la température à une DTS, car elle a besoin de nombreuses hypothèses assez difficiles.

##### 2.2.2.2.2 Absorption lumineuse

On peut aussi déterminer la DTS en calculant la différence d'absorption lumineuse de l'écoulement. Ainsi, en entrée et en sortie, on place un dispositif constitué d'une lampe et d'un détecteur de lumière qui mesure l'intensité d'un rayonnement traversé par un nuage de particules. Généralement, on emploie des radiations UV, car de cette façon on n'a pas de signal parasite.

Grâce à la loi de Beer-Lambert, on peut calculer la absorption en fonction du temps pour après la rapporter à la concentration avec la relation suivante :

$$A(t) = -\ln \frac{I(t)}{I_0} \quad (2.4)$$

Cette technique a l'avantage d'être très facile à mettre en œuvre, permet de faire une acquisition de données en continu et d'avoir un temps de réponse assez court.

##### 2.2.2.2.3 Traceur phosphorescent

Cette technique ressemble beaucoup à celle des traceurs radioactifs, mais elle utilise des traçants phosphorescentes au lieu des radioactifs.

Le principe de fonctionnement est le suivant. L'écoulement de particules phosphorescentes est injecté à l'entrée et puis excitées avec une source de lumière. En sortie, un détecteur détecte la luminosité émise par l'écoulement.

Pendant le parcours des particules au sein du réacteur, l'intensité de la luminosité du pigment phosphorescent diminue, donc pour pouvoir rapporter le signal détecté au signal à l'entrée, une étude de caractérisation de la phosphorescence doit être mise en oeuvre au préalable. C'est précisément cette méthode qui est employée dans le projet CEGASET.

Les principaux avantages de cette technique sont les suivants :

- L'activation des traceurs pour la lumière est assimilable à une entrée de Dirac. Ce fait là simplifie beaucoup l'interprétation de données.
- Le traceur est identique au solide d'usage général, donc l'hydrodynamique interne n'est pas perturbée.
- Il n'y a pas de perturbation ni à l'entrée ni à la sortie.
- Les coûts matériels, d'opération et sécurité sont basés pour apporter à la technique avec traceurs radioactifs.

Toutefois, cette méthode présente aussi quelques inconvénients:

- Le phénomène de décroissance phosphorescent limite l'utilisation de ce technique à systèmes avec un temps de séjours court.
- Pour les écoulements concentrés la technique ne marche pas à cause de la superposition de particules, car la source lumineuse n'excite pas toutes les particules et le détecteur ne les détecte pas toutes.

### 3. Fabrication des particules traçantes

#### 3.1 Approche théorique

Pour que les résultats obtenus avec la technique de détection de la DTS soient valables, il est impératif que les particules traçantes aient une caractéristique physique identique aux particules d'utilisation habituelle au réacteur, car au contraire, l'écoulement du premier serait différent du deuxième et l'expérience ne serait pas extrapolable.

Pour résoudre ce problème, on utilise la technique de l'enrobage. Cette technique consiste à appliquer une couche de liquide ou poudre (le pigment), sur la surface d'un produit de base (les particules de sable) afin de leur conférer des propriétés particulières (phosphorescence). L'adhésion du pigment au sable est possible grâce à un troisième agent appelé liant.

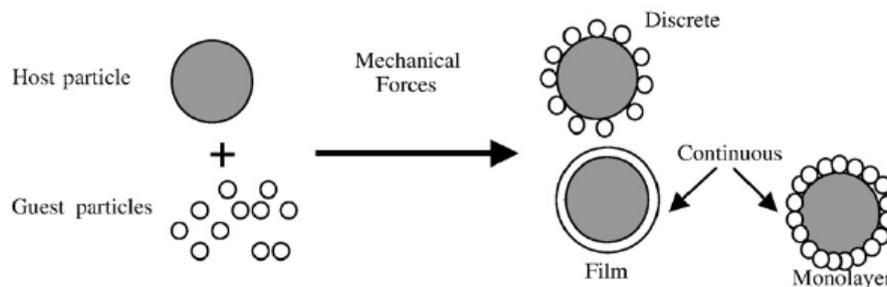


Figure5. Schéma d'enrobage d'une particule.

Si on veut maintenir la taille du diamètre constant il faudra respecter que  $d_{\text{sable}} \gg d_{\text{pigment}}$ .

L'enrobage de particules est particulièrement employé dans le domaine de l'industrie pharmaceutique et de l'industrie alimentaire.

#### 3.2 Expérience

##### 3.2.1 Caractérisation du sable.

Le sable enrobé s'agit d'un « Sable à enduire » de chez Axton, de masse volumétrique  $\rho=1.6 \text{ tonne/m}^3$ , employé généralement comme mortier de joints, enduit de façades, assemblage de briques parmi d'autres utilisations.

Avant de commencer à faire l'enrobage on a réalisé une étude granulométrique du sable afin de le caractériser :

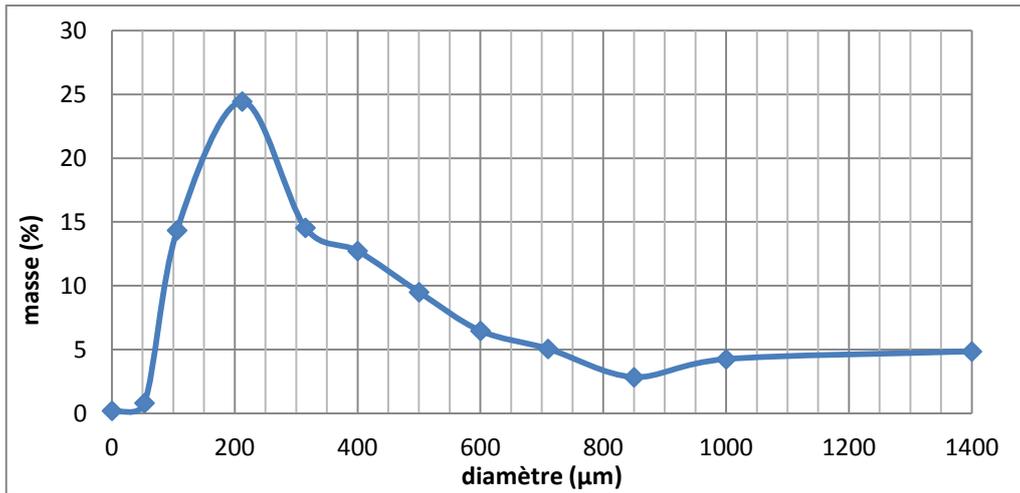


Figure6. Distribution granulométrique du sable Axton.

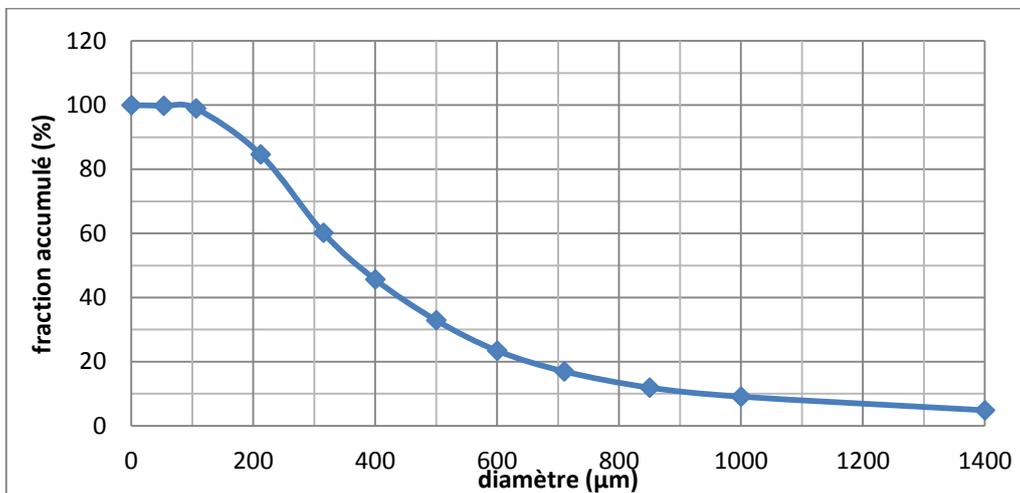


Figure7. Fraction accumulé du sable Axton.

Note : Les pertes pendant cet essai par rapport à la masse initiale de sable mesurée et le sable final mesuré après le tamisage sont de 1%.

Comme on peut observer dans les graphiques précédents, l'étendue de tailles du sable est très grande. Comme pour faire des écoulements diphasiques poudre-air, le diamètre ne doit pas être trop grand, il faudra éliminer les particules trop grandes. Concrètement on a décidé d'éliminer les particules avec un diamètre supérieur à 600 μm.

De plus, on a décidé d'éliminer aussi les particules trop petites (moins de 100 μm), car il faut respecter la condition  $d_{\text{sable}} \gg d_{\text{pigme}}$ . En théorie cela n'a pas d'importance de les éliminer avant ou après l'enrobage, mais pendant les premiers essais, on a constaté que le problème d'agglomération de particules enrobées est atténué quand elles sont éliminées avant.

De cette façon-là, on va utiliser environ 80% du sable, lesquels correspondent au rang des 100-600 μm.

### 3.2.2 Procédé d'enrobage

Le procédé employé pour faire l'enrobage est basé sur les indications que le stagiaire M.Tarik DRAH a données au début du stage, les indications dans la thèse de M.Tez HAMADOU et les différents essais réalisés pendant ce stage.

#### 3.2.2.1 Produits

Voici les différents produits et proportions pour faire l'enrobage.

- Sable Axton de granulométrie 100-500  $\mu\text{m}$ .
- Pigment phosphorescent (25% en masse par rapport à la masse de sable).
- Silicate de sodium,  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ , qui agira comme liant (10% en masse par rapport à la masse de sable).

Note1 : Il faut prendre les mesures de sécurité pertinentes (gants, blouse, lunettes) à cause de la corrosivité du  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ .

Note2 : M.DRAH et M. HAMADOU conseillent d'utiliser un 15% de pigment, toutefois pendant les essais on a constaté que l'enrobage est plus effectif et plus homogène si on ajoute un peu plus (25%).

#### 3.2.2.2 Méthode

Tout d'abord, le pigment et le sable sont mélangés dans un mélangeur de cuisine jusqu'à l'homogénéisation du mélange. Ensuite on ajoute le liant tout en essayant de mouiller le mélange sable-pigment de la façon la plus homogène.

Le principal problème qu'on rencontre est la formation d'agglomérations entre les différentes particules de sable. Pour éviter ce problème, il faut réaliser un mélange attentif à une puissance sur les positions 4 ou 5 du mélangeur pendant 1h 20min approximativement. Le but de ce mélange assez long n'est pas seulement d'homogénéiser le mélange, mais de le sécher tout en essayant de désagglomérer les particules de sable grâce à la force centrifuge du mélangeur.

Finalement, le sable enrobé est mis dans l'étuve à 80°C pour sécher les restes de liant.

### 3.2.3 Résultats

#### 3.2.3.1 Analyse granulométrique

Une fois que le sable enrobé est sorti de l'étuve, on procède à l'analyse granulométrique afin de voir si la taille des nouvelles particules est assez différente par rapport au sable naturel. Pour faire ce tamisage, il est très recommandé de le faire de façon manuelle, car pendant les essais réalisés à la colonne, on a constaté qu'un certain nombre de particules se frottent entre elles tout en cassant leur surface (attrition) et en détachant une partie du pigment collé. De plus, pendant le tamisage on contribuera à réduire les particules agglomérées.

Les données collectées sont représentées ci-dessous:

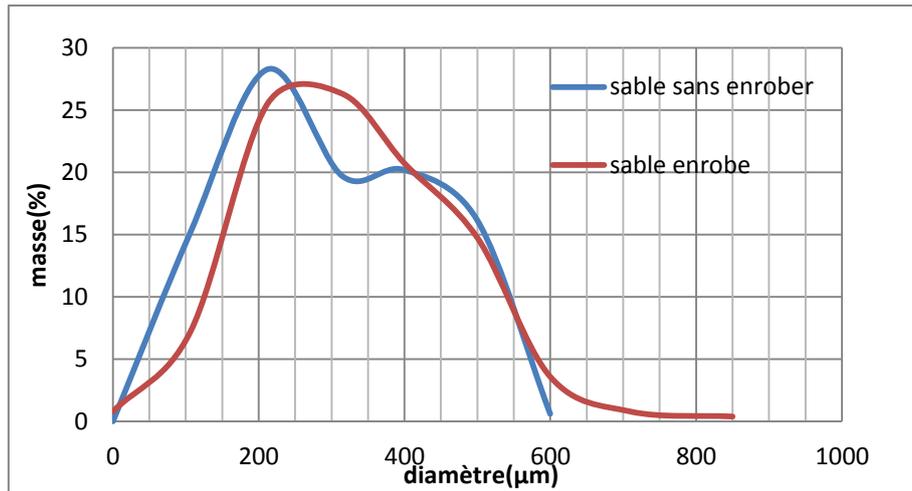


Figure8. Distribution granulométrique du sable naturel et enrobé.

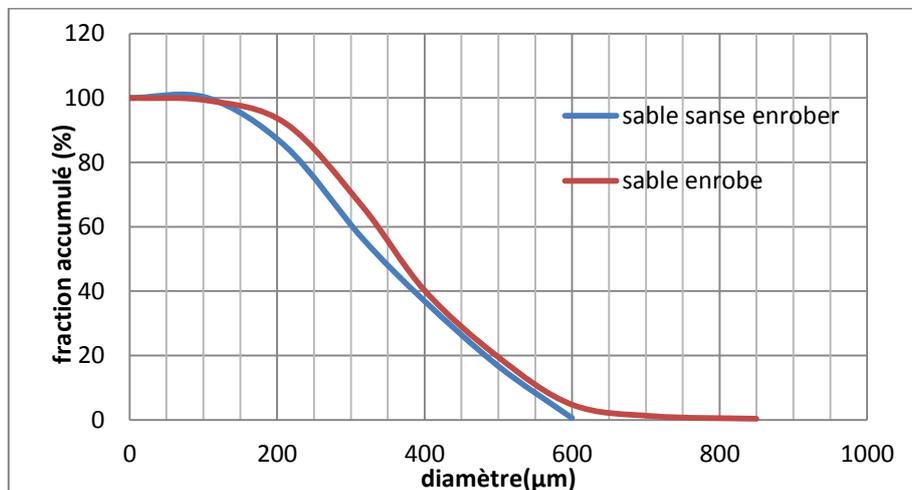


Figure9. Fraction accumulée du sable naturel et enrobé.

Note : Les pertes pendant cet essai par rapport à la masse initiale de sable mesurée et le sable final mesuré après le tamisage est de 1.56%.

Malgré le fait que l'allure théorique du sable enrobé devrait avoir la même allure que le sable naturel, mais un peu décalée à droite, on peut observer que effectivement le sable enrobé est décalé à droite mais n'a pas un pic relatif proche de 400 μm contrairement au sable naturel. Cela s'explique par le phénomène d'agglomération entre quelques particules.

Un indicateur qui montre que le phénomène d'agglomération a été assez atténué est le fait qu'il y a seulement 5% de particules supérieures à 600 μm. De toute façon, si on voulait fabriquer du sable enrobé avec une proportion plus petite d'agglomération, cela serait possible en utilisant un lit fluidisé afin de faire un séchage à convection forcé en même temps que l'agitation permet la non-agglomération des différents particules. L'inconvénient de cette technique est qu'il faut utiliser une grande quantité de sable (1 kg minimum) et pour les besoins de cette étude seulement quelques grammes suffisent.

Dans le graphique de fraction accumulée, on peut observer que la taille des particules enrobés et sans enrobés est très similaire, en étant la taille moyenne de ce premier à peu près 375  $\mu\text{m}$  et par le deuxième 325  $\mu\text{m}$ .

Un autre facteur qui indique la qualité de l'enrobage est la presque inexistence de particules plus petites que 100  $\mu\text{m}$  (environ 0.8%). Cette quantité correspond à de pigment qui n'a pas été collé et possiblement à de la poudre résiduelle qui n'a pas pu être séparée pendant le tamisage du sable naturel.

### 3.2.3.2 Analyse de phosphorescence

Une fois qu'on a vérifié que la granulométrie du sable enrobé est bonne, on va analyser leur phosphorescence. Pour cela, on va utiliser le banc d'essais du chapitre 4.3 et on va le comparer avec le sable qui était déjà enrobé pour le stagiaire M.Tarik DRAH.

Pour réaliser cette comparaison, on a pris un échantillon circulaire de rayon 2.7cm et le sable enrobé de granulométrie 315  $\mu\text{m}$  et on a mesuré l'intensité de la phosphorescence pendant 10s à différentes hauteurs.

Pendant tous les essais, on a constaté que les deux sables ont plus ou moins la même intensité, comme on peut le constater sur les figures suivantes :

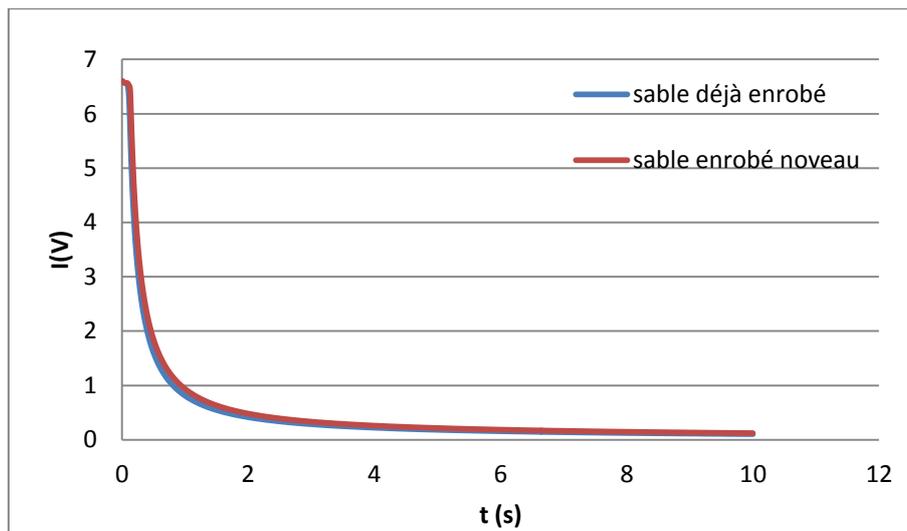


Figure10. Comparaison de la phosphorescence du sable enrobé de M. DRAH et du nouveau à h=10cm.

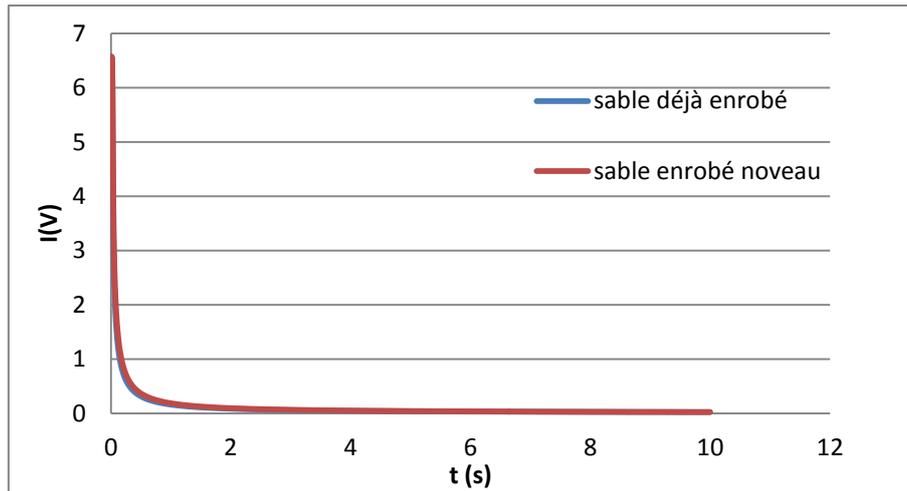


Figure11. Comparaison de la phosphorescence du sable enrobé de M.DRAH et du nouveau à h=25cm.

De toute façon, il faut rappeler que M.DRAH a utilisé 10% moins de pigment et a obtenu les mêmes valeurs d'intensités. De plus, quand on a employé les mêmes proportions que lui, on a obtenu des intensités plus basses.

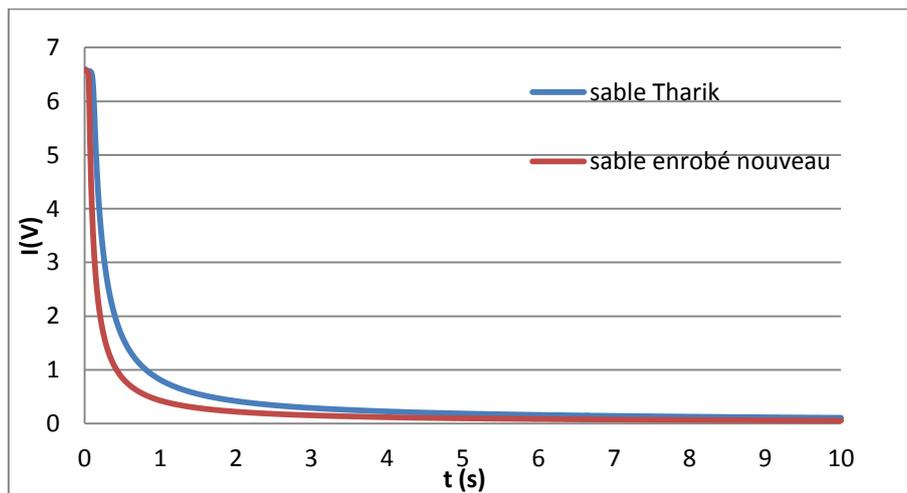


Figure12. Comparaison de la phosphorescence du sable enrobé de M.DRAH et du nouveau avec les mêmes proportions de pigment à h=10cm.

La cause de cette différence d'intensité entre un sable et l'autre est probablement le type de sable naturel que M. DRAH a employé (composition, distribution granulométrique...) ou il est possible aussi que le pigment pendant tout le temps de stockage ait perdu un peu de ces propriétés lumineuses. C'est précisément pour compenser ce phénomène qu'on ajoute 10% de pigment en plus.

D'après la comparaison entre les deux sables et le pigment pur, on constate une grande différence d'intensité. En effet, la comparaison de façon quantitative est impossible à effectuer avec les appareils disponibles, donc pour enregistrer tout le signal du pigment il est nécessaire de changer la valeur du gain. Toutefois, cela n'est pas grave, car le but de l'enrobage était de conférer des propriétés phosphorescentes mesurables au sable, objectif qui a bien été réalisé.

## 4. Caractérisation du phénomène de phosphorescence

Le but de cette partie est de caractériser les différentes variables qui affectent l'acquisition du signal reçu par le photomultiplicateur pour après extrapoler les résultats aux essais avec le réacteur.

### 4.1 Approche théorique

#### 4.1.1 Unités de grandeur

La lumière est formée par des radiations électromagnétiques dont la longueur d'onde est comprise entre 400nm et 700nm. La singularité de ce type de radiation, qui est l'unique perceptible par l'homme, fait qu'existe tout une branche de la radiologie qui s'intéresse à elle, appelée photométrie et qui utilise différentes grandeurs.

- Energie lumineuse ( $Q_v$ ) [lm·s]: C'est la fraction d'énergie reçue/émise transportée par la lumière. Son équivalent en radiologie est l'énergie radiant.
- Flux lumineuse ( $\varphi$ ) [lm]: Puissance lumineuse total reçue/émise. Son équivalent en radiologie est le flux radiant.
- Intensité lumineuse (I) [lm/sr]: C'est la quantité de flux lumineux autour d'un angle solide  $d\Omega$ . Son équivalent en radiologie est l'intensité radiant.

$$I = \frac{d\varphi}{d\Omega} \quad (4.1)$$

- Luminance (L) [lm/ sr · m<sup>2</sup>]: Intensité d'un rayonnement autour d'une direction donnée d'angle  $\theta$  divisée par la surface apparente. Son équivalent en radiologie est la radiance.

$$L = \frac{d^2\varphi}{dw dS_0 \cos\theta} = \frac{d^2\varphi}{dw dS} \quad (4.2)$$

- Éclairement lumineux (E) [lm/m<sup>2</sup>]: Flux de lumière reçu par une surface. Son équivalent en radiologie est l'irradiance.

$$E = \frac{d\varphi}{dS} \quad (4.3)$$

- Emittance (M) [lm/m<sup>2</sup>]: Flux lumineux émis par une surface. Son équivalent en radiologie est l'existence.

$$M = \frac{d\varphi}{dS} \quad (4.4)$$

De plus, il faut introduire les deux concepts suivants, qui ne sont typiquement pas de photométrie, mais qui auront beaucoup d'importance pendant la caractérisation de la phosphorescence:

- Angle solide ( $\Omega$ ) [sr]: Il s'agit de l'angle spatial que comprend un objet vu depuis un point concret. On peut le définir de la façon suivante. Soit O le point à partir duquel on regarde la surface S. Soit une sphère de rayon R centrée sur O.

Alors l'angle solide est la projection de S sur la sphère rapportée au rayon de la sphère au carré.

$$d\Omega = \frac{dS'}{R^2} \quad (4.5)$$

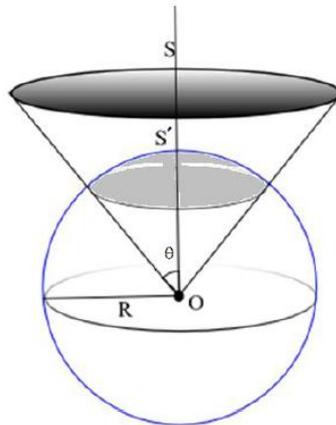


Figure13. Angle solide.

- Facteur de forme ( $F_{ij}$ ) [adim]: C'est la proportion de lumière émise par  $S_i$  reçue par  $S_2$ . Ce facteur dépend entièrement de la géométrie du système à étudier. La figure suivante présente le cas général :

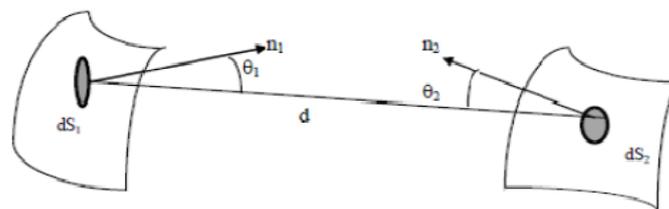


Figure14. Géométrie pour la détermination du facteur de forme.

On peut l'écrire comme cela :

$$F_{1 \rightarrow 2} = \frac{1}{\pi S_1} \iint_{S_1 S_2} \frac{\cos \theta_1 \cos \theta_2}{d^2} dS_1 dS_2 \quad (4.6)$$

Il faut aussi noter la propriété suivante du facteur de forme, qui permet de rapporter  $F_{12}$  avec  $F_{21}$  :

$$F_{12} S_1 = F_{21} S_2 \quad (4.7)$$

#### 4.1.2 Détermination théorique de l'équation de flux de lumière reçu

De façon générale on peut écrire la quantité échangée entre une surface  $S_1$  et une autre  $S_2$  de la façon suivante :

$$\varphi_{1 \rightarrow 2} = S_1 F_{1 \rightarrow 2} (M_1^\beta - M_2^\beta) \quad (4.8)$$

Dans notre étude de caractérisation, on peut assimiler la surface  $S_1$  à l'échantillon de poudre phosphorescente et  $S_2$  au photomultiplicateur. Ensuite on peut simplifier

l'expression précédente tout en négligeant  $M_2^\beta$ , car le photomultiplicateur n'émet pas de lumière.

La variable  $M_1^\beta$  est très difficile à déterminer théoriquement, mais elle est fonction seulement du type de pigment, lequel sera toujours le même, et de l'intensité d'excitation du flash, lequel restera aussi toujours constant. Ainsi on considère  $M_1^\beta$  constant aussi.

La surface  $S_1$  est l'échantillon, dont on peut connaître la valeur.

Finalement il reste à connaître la valeur du facteur de forme  $F_{1 \rightarrow 2}$ . Pour cela, il faut d'abord définir le système géométriquement. Aussi bien pour les essais de caractérisation que pour le réacteur, le photomultiplicateur sera placé de façon perpendiculaire soit à l'échantillon, soit à la direction de l'écoulement. De cette façon, et en sachant que l'ouverture du photomultiplicateur et les différents échantillons ont une forme circulaire, la géométrie aura la forme de deux cercles parallèles et coaxiaux.

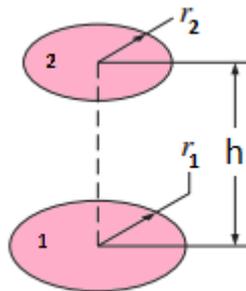


Figure15. Géométrie pour le facteur de forme.

Le facteur de forme est un sujet très étudié, car il est appliqué dans différentes disciplines, comme par exemple le transfert de chaleur. Ceci fait que de nombreux auteurs ont déjà tabulé différentes équations de facteur de forme en fonction de la configuration géométrique. Concrètement, pour le cas précédent on a l'expression suivante :

$$F_{12} = \frac{1 + R_1^2 + R_2^2 - \sqrt{(1 + R_1^2 + R_2^2)^2 - 4R_1^2 R_2^2}}{2R_1^2} \quad (4.9)$$

Avec  $R_1^2 = r_1/h$  et  $R_2^2 = r_2/h$ .

#### 4.1.2.1 Simplification de l'équation de facteur de forme $F_{12}$

Comme on peut le constater, l'équation précédente est assez complexe et elle n'est pas facilement manipulable. L'objectif de ce sous-chapitre est de trouver une expression plus simple de forme similaire. Dans ce but là on va trouver  $F_{21}$  pour un système géométrique comme celui de la figure suivante:

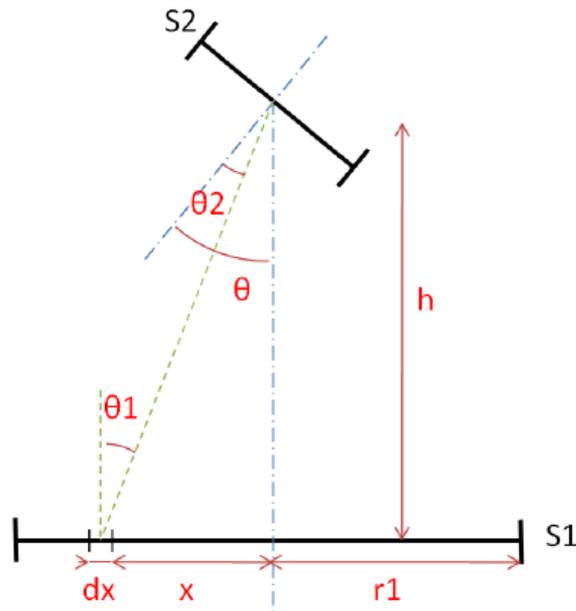


Figure16. Schéma calcul  $F_{21}$ .

Ce schéma est assimilable au banc d'essais qu'on utilisera pour caractériser la phosphorescence. La surface  $S_1$  correspond à l'échantillon de poudre et  $S_2$  au photomultiplicateur.

Tout d'abord on va considérer une portion infinitésimale  $dx$  de n'importe quel  $S_1$  et on va faire la supposition que  $S_2$  est infinitésimale, donc pendant les essais le rayon du détecteur est beaucoup plus petit que le rayon de l'échantillon ( $r_{\text{PMT}}=0.4\text{cm}$  et  $r_{\text{échant.}}=1.5-4.5\text{cm}$ ). De cette manière on peut écrire l'équation de facteur sous cette forme :

$$F_{21} = \frac{1}{\pi} \int_{S_1} \frac{\cos\theta_1 \cos\theta_2}{l^2} dS_1 \quad (4.10)$$

Avec  $l \equiv$  distance entre  $dx$  et  $dS_2$ .

Sachant que  $\theta = \theta_1 + \theta_2$ , on a l'expression suivante :

$$F_{21} = \frac{1}{\pi} \int_{S_1} \frac{\cos\theta_1 \cos(\theta - \theta_1)}{l^2} dS_1 = \frac{1}{\pi} \int_{S_1} \frac{\cos^2\theta_1 \cos\theta + \cos\theta_1 \sin\theta_1 \sin\theta}{l^2} dS_1$$

On sait que :

$$l^2 = h^2 + x^2$$

$$\cos\theta_1 = \frac{h}{l} = \frac{h}{\sqrt{h^2 + x^2}}$$

$$\sin\theta_1 = \frac{x}{l} = \frac{x}{\sqrt{h^2 + x^2}}$$

$$dS_1 = 2\pi x dx$$

Alors si on fait la substitution et qu'on intègre :

$$\begin{aligned}
 F_{21} &= \frac{2\pi}{\pi} \int_0^{r_1} \frac{\cos\theta \left(\frac{h}{\sqrt{h^2+x^2}}\right)^2 x + \sin\theta \frac{h}{\sqrt{h^2+x^2}} \frac{x}{\sqrt{h^2+x^2}}}{h^2+x^2} dx = \\
 &= 2 \int_0^{r_1} \frac{\cos\theta h^2 x + \sin\theta h x^2}{(h^2+x^2)^2} dx = \\
 &= 2\cos\theta \left[ -\frac{h^2}{2(h^2+x^2)} \right]_0^{r_1} + 2\sin\theta \left[ \frac{\operatorname{tg}^{-1}\left(\frac{x}{h}\right)}{2} - \frac{hx}{2(h^2+x^2)} \right]_0^{r_1} = \\
 F_{21} &= \cos\theta + \sin\theta \operatorname{tg}^{-1}\left(\frac{r_1}{h}\right) - \frac{\sin\theta hr_1 + \cos\theta h^2}{h^2+r_1^2} \quad (4.11)
 \end{aligned}$$

Finalement si on considère que  $\theta=0$ , comme à la figure15 on a la définition suivante de  $F_{21}$  :

$$F_{21} = 1 - \frac{h^2}{h^2+r_1^2} = \frac{r_1^2}{h^2+r_1^2} \quad (4.12)$$

Il faut se rappeler que dans l'équation de flux de lumière reçu il n'apparaît pas  $F_{21}$ , mais  $F_{12}$ . Grâce à la relation vue dans le chapitre précédent on peut le calculer de la façon suivante :

$$\begin{aligned}
 F_{12} &= \frac{S_2}{S_1} F_{21} = \frac{\pi r_2^2}{\pi r_1^2} \frac{r_1^2}{h^2+r_1^2} \\
 F_{12} &= \frac{r_2^2}{h^2+r_1^2} \quad (4.13)
 \end{aligned}$$

En effet en comparant cette équation de  $F_{12}$  avec l'équation fournie par la bibliographie on obtient une erreur inférieure à 0.6% pourvu que  $r_1 \gg r_2$ .

Une fois qu'on a vu toutes les variables de l'équation de flux de lumière reçu on peut la réécrire comme suit :

$$\varphi_{1 \rightarrow 2} = S_1 \frac{r_2^2}{h^2+r_1^2} M_1^\beta \quad (4.14)$$

Si on regroupe les termes, on peut la réécrire comme suit :

$$\begin{aligned}
 \varphi_{1 \rightarrow 2} &= \pi r_1^2 \frac{r_2^2}{h^2+r_1^2} M_1^\beta = \pi r_2^2 M_1^\beta \frac{r_1^2}{h^2+r_1^2} \\
 \varphi_{1 \rightarrow 2} &= K \frac{r_1^2}{h^2+r_1^2} \quad (4.15)
 \end{aligned}$$

Avec  $K = \pi r_2^2 M_1^\beta$

Finalement il faut considérer que l'intensité lumineuse émise par le pigment ne sera pas constante dans le temps, c'est-à-dire, que l'équation précédente n'est valide qu'à

l'instant initial de l'excitation avec le flash, après on observera une diminution jusqu'à une valeur nulle.

Pendant cette étude on va représenter cette diminution comme une fonction expérimentale indépendante appelée fonction de décroissance phosphorescente  $f_{\text{déc}}(t)$  ajouté à l'expression du flux reçu, laquelle aura du être déterminée expérimentalement:

$$\varphi_{1 \rightarrow 2}(t) = K \frac{r_1^2}{h^2 + r_1^2} \cdot f_{\text{déc}}(t) \quad (4.16)$$

Toutefois, il faut dire que cette fonction de décroissance est en réalité liée au terme  $M_1^\beta$ , car l'émittance n'est pas constante au cours du temps.

## 4.2 Description du matériel

### 4.2.1 Le photomultiplicateur

Il s'agit d'un détecteur de lumière qui transforme le signal lumineux reçu en un signal électrique.

Le modèle utilisé est un HAMAMATSU H6780-20 dont les caractéristiques sont données à l'Annexe A.

Le fonctionnement de cet appareil est le suivant. Un photon est capté et touche la photocathode, lequel arrache un électron par effet photoélectrique. Cet électron est accéléré par un champ électromagnétique et se déplace à travers le photomultiplicateur tout en rebondissant de dynode en dynode. À chaque rebond de plus en plus d'électrons sont libérés jusqu'à former un courant électrique mesurable.

Un petit circuit électronique permet de modifier la tension de contrôle entre 0.25V et 1V, grâce à un potentiomètre. La tension de contrôle permet de régler le gain du photomultiplicateur entre  $10^2$  et  $2 \cdot 10^6$ , comme on peut voir sur la fiche technique fournie par le fabricant.

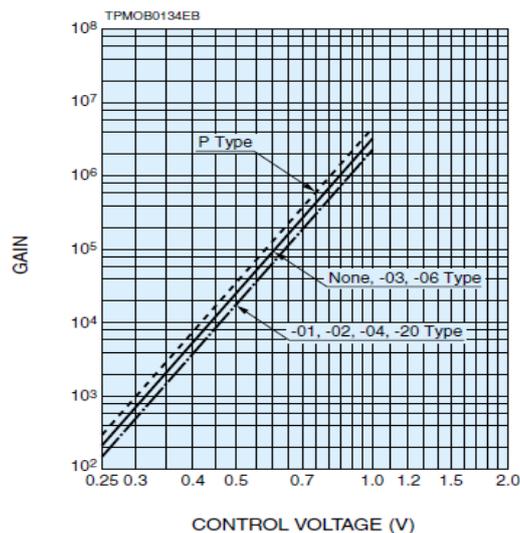


Figure17. Gain en fonction de la tension de contrôle.

Le bon réglage du gain doit être impérativement fait avant n'importe quel essai, doit rester constant pendant tous les essais postérieurs et doit être en adéquation avec la quantité de lumière à mesurer.

Pendant les essais de caractérisation on a pris un gain de 0.5V.

#### 4.2.2 La carte d'acquisition

Le signal analogique qui sort du photomultiplicateur doit être changé en un signal digital avant d'être capté par l'ordinateur. La carte d'acquisition est responsable de cet échange.

Concrètement on a utilisé une carte développée par le service électronique de l'UTC appelée ACQUSB, dont les caractéristiques techniques sont données à l'Annexe A.

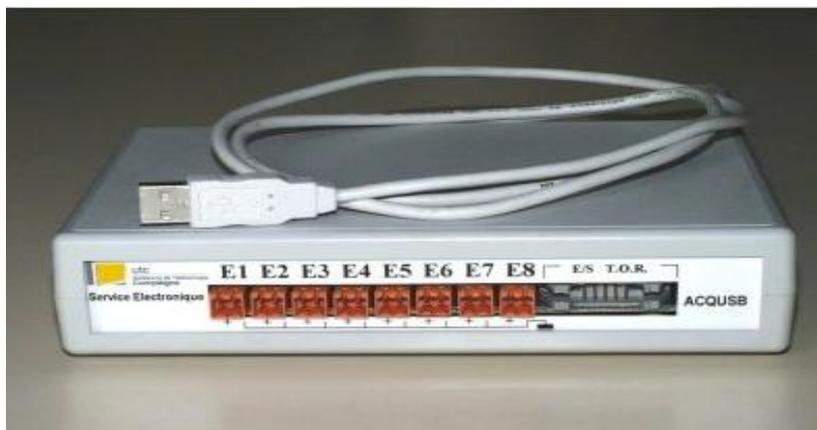


Figure18. Carte d'acquisition ACQUSB.

Il faut remarquer que pendant les premiers essais avec cette carte les données collectées étaient plafonnées à des signaux inférieurs à 5V et en conséquent, on n'avait pas tout le signal (on obtenait un pic coupé pour le pic).

Pour remédier à ce problème, le service électronique a fait une modification dans l'entrée correspondant au signal du photomultiplicateur tout en divisant le signal reçu par deux. Cela veut dire que dans l'ordinateur on aura besoin de multiplier par deux à fin d'avoir la valeur réelle. On peut schématiser cela de la façon suivante :

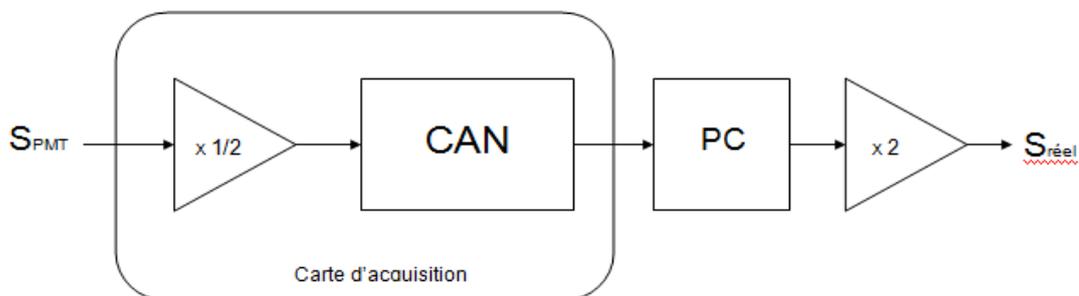


Figure19. Diagramme de la modification de la carte d'acquisition.

### 4.2.3 Le logiciel

Une fois que le signal a été transformé d'analogique à digital il est transmis à l'ordinateur grâce à un port USB.

De plus, grâce au logiciel fourni par l'UTC «Photomultiplicateur 2 voies», on peut contrôler l'acquisition des données.

Comme on peut l'observer dans la figure ci-dessous, le logiciel reçoit le signal du photomultiplicateur par la voie1 et le signal du flash par la voie2. De plus dans l'onglet «Période (s)» on peut contrôler l'intervalle de temps durant lequel on veut prendre des mesures et dans l'onglet «durée (s)» on peut modifier la durée totale de l'essai. Finalement, une fois l'essai fini, on peut voir le résultat de l'essai de façon graphique dans le panneau noir central.

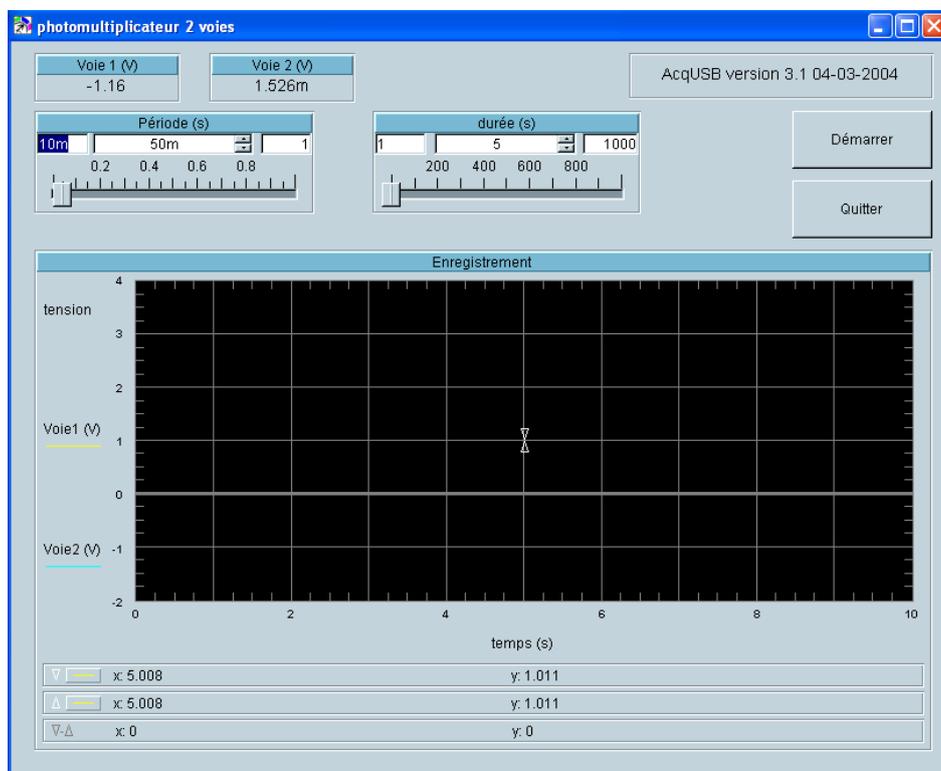


Figure20. Fenêtre de travail du logiciel «Photomultiplicateur 2 voies».

### 4.2.4 Le flash

Afin d'exciter le pigment, on va utiliser un flash d'un appareil photographique commercial «SUNPAK AUTO 140». Ce flash est alimenté par deux piles de 1.2V chacune et est actionnée de façon manuelle grâce à un interrupteur.

Pendant les premiers essais, on a observé que le flash, après 30-40 minutes d'utilisation, souffre d'une diminution de son intensité lumineuse qui affecte la reproductibilité des données acquises. C'est pour cette raison là qu'il est recommandable de changer les piles toutes les 30 à 40 minutes.

### 4.2.5 Le pigment

Le pigment utilisé est un sulfate de zinc dopé avec du cuivre (ZnS:Cu) de nom commercial « 50000 Lumilux effect green N » fourni par le fabricant Honeywell.

Il s'agit d'une poudre d'un diamètre de  $37\mu\text{m}$ , de couleur verte et de volume spécifique  $4.1\text{g/cm}^3$ . Il est généralement employé pour donner des effets optiques aux peintures ou aux différents plastiques.

Une propriété très utile de ce pigment est que le spectre de radiation excitant est presque totalement décalé du spectre de radiation émis par phosphorescence, cela veut dire qu'on peut considérer qu'une particule déjà excitée n'excite pas les autres, c'est-à-dire que toute source d'excitation doit être extérieure. Concrètement la radiation émise correspond à une longueur d'onde correspondant à la couleur verte (495-570 nm).

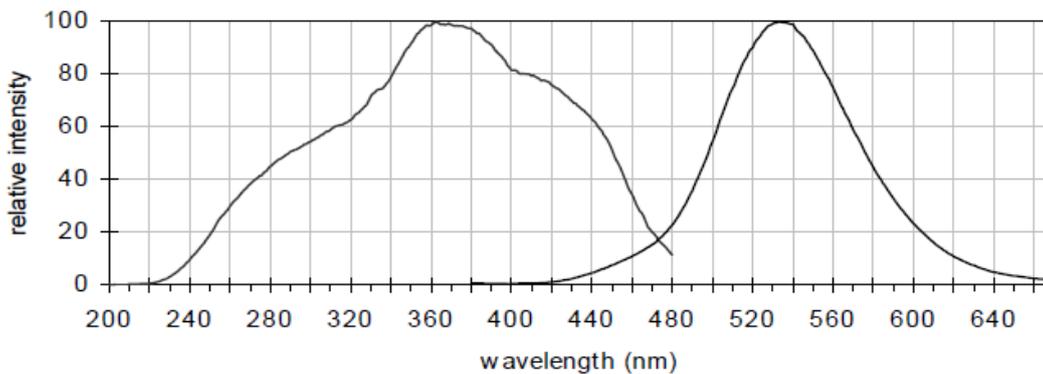


Figure21. Spectre d'excitation (gauche) et de phosphorescence (droite).

Note : On peut consulter la fiche technique fournie par le fabricant dans l'Annexe A.

### 4.3 Le banc d'essais

#### 4.3.1 Description de l'installation

La figure suivante montre un schéma de l'installation qu'on va utiliser pour faire la caractérisation de la phosphorescence :

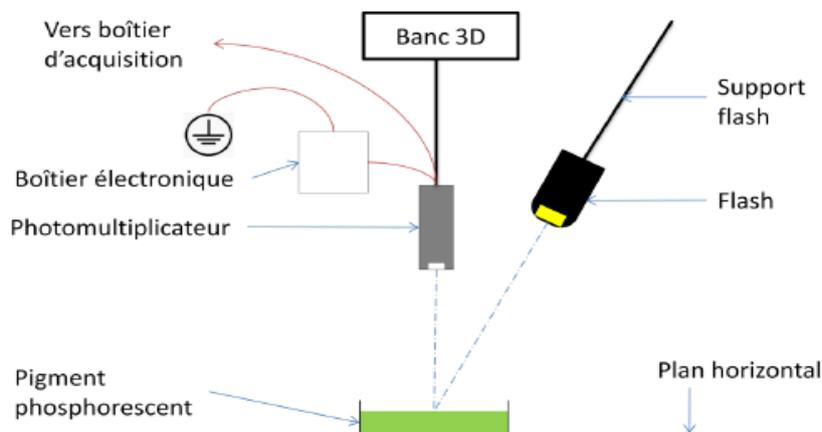


Figure22. Schéma du banc d'essais.

Comme on peut l'observer, la poudre phosphorescente est placée sur un échantillon situé sur un plan horizontal. La distribution de la poudre doit être la plus homogène possible et doit occuper toute la surface de l'échantillon.

Le photomultiplicateur est placé perpendiculairement juste au-dessus de l'échantillon, afin d'imiter les conditions qui auront lieu dans les essais de détection de la DTS dans le réacteur, où l'écoulement sera perpendiculaire au détecteur. La distance  $h$  entre l'échantillon et le photomultiplicateur est modifiable et mesurable grâce à une manivelle et des graduations présentes dans le banc d'essais.

La source de lumière choisie pour exciter la poudre phosphorescente est un flash photographique commercial à piles. Le flash est placé sur un support mobile qui permettra de changer sa position s'il y a besoin. Il faut s'assurer que le photomultiplicateur n'est pas dans la trajectoire du rayon lumineux émis par le flash et l'échantillon phosphorescent.

Finalement pour isoler toute l'expérience de la lumière extérieure afin de minimiser au maximum le bruit de fond, on va recouvrir tout le banc d'essai avec deux sacs noirs. Il faut faire attention à ce qu'aucun élément, spécialement les sacs, n'obstrue ni le signal lumineux du flash, ni le signal reçu par le photomultiplicateur.

## 4.4 Expériences

### 4.4.1 Détermination de la position du flash

Pour déterminer la hauteur ( $f$ ) par rapport au plan horizontal, où on mettra le flash, on s'est trouvé avec un rang de hauteurs assez limité, parce que comme on a dit précédemment, la trajectoire du rayon lumineux du flash doit éclairer tout l'échantillon. Le problème rencontré est que pour  $h$  petites le photomultiplicateur cache une portion de l'échantillon (spécialement avec les deux échantillons plus grands).

Pour cela on a tenté de trouver une hauteur  $f$  du flash optimale tout en mettant le photomultiplicateur à la plus basse hauteur ( $h$ ) possible et avec l'échantillon le plus grand. Ensuite on a changé successivement la position du flash, et s'il y avait besoin la hauteur  $h$ , jusqu'à trouver la combinaison qui permettait d'éclairer l'échantillon avec le maximum de hauteur. De cette façon, on a trouvé que la hauteur  $f$  qui convenait le plus est de 23cm avec une distance entre le flash et l'échantillon de 30cm.

Malgré qu'on ait constaté que si on change cette hauteur à peu près de 10cm il n'y a pas de modifications significatives sur le signal reçu, il est recommandé de garder la position du flash invariable pendant tous les essais postérieurs.

### 4.4.2 Contribution du flash au signal reçu.

L'objectif de cette étude est de voir le comportement du signal produit par le flash et s'il contribue au signal total reçu quand on opère avec des échantillons de poudre phosphorescente.

Pour faire cet essai, on réalisera le montage de la Figure 22, mais sans l'échantillon de poudre. Ensuite on réalisera quatre essais à différentes hauteurs ( $h = 5, 10, 15, 20$  et  $25$ cm) afin d'avoir une collecte de données significatives.

Théoriquement, on a fait l'hypothèse que la lumière émise par le flash à une façon d'impulsion, par conséquent on espère avoir un graphique avec seulement un pic très intense à  $t=0$ .

Toutefois le signal reçu, est le suivant :

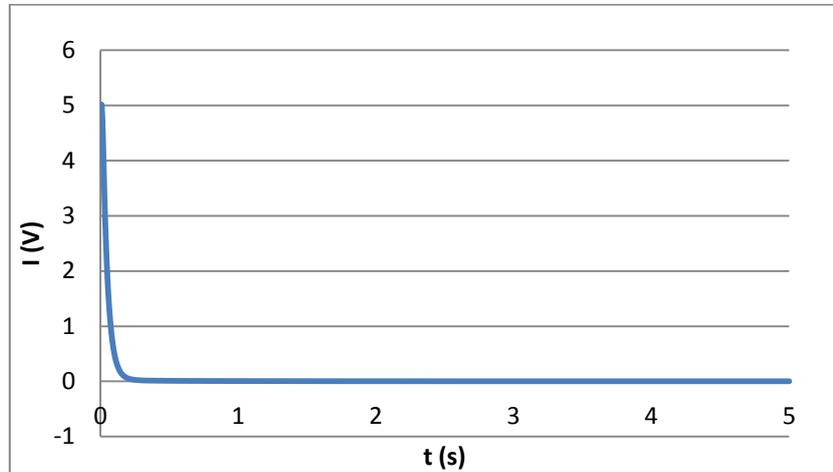


Figure23. Signal reçu du flash seul ( $h=15\text{cm}$ ).

Comme on peut observer, le pic à  $t=0$  est très intense, mais au lieu de retourner au repos de façon instantanée, il met un certain temps. Si on fait un zoom à ce temps de relaxation on obtient :

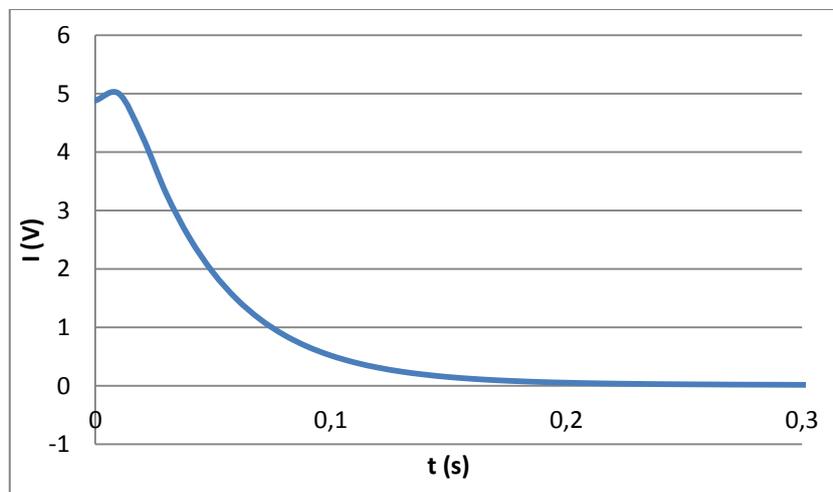


Figure24. Zoom du signal reçu du flash seul ( $h=15\text{cm}$ ).

Avec ce graphique on peut voir que le flash a requis d'environ 0.2s pour se relaxer. Ce phénomène n'a pas beaucoup d'importance par rapport aux essais dans le réacteur, car le flash et le photomultiplicateur seront placés à une distance qui annulera cet effet. Toutefois, par rapport aux expériences de caractérisation de la phosphorescence il faudra tenir compte que les données jusqu'à 0.2 secondes contiendront systématiquement une erreur.

Note : dans cette expérience on a constaté que le signal reçu est pratiquement pareil quel que soit la valeur de  $h$ .

#### 4.4.3 Contribution du bruit de fond au signal reçu

Afin d'avoir des données les plus significatives possibles, il faut faire attention à la possible contamination des essais par le bruit de fond. Malgré la protection que les sacs noirs apportent, il faut bien assurer son système de fermeture, donc parfois il y a de la lumière extérieure qui peut être détectée par le photomultiplicateur.

De plus, une autre précaution à prendre est de laisser un temps prudentiel entre chaque essai afin d'éviter que la lumière résiduelle du premier essai affecte les résultats du deuxième.

Malgré ces précautions prises, la réalité est qu'il était difficile de maîtriser ce paramètre. La solution qui est devenue finalement plus effective a été de mesurer pour chaque essai le bruit de fond initial, et d'éliminer tous les essais qui avaient un bruit de fond supérieur à 0.01V.

#### 4.4.4 Evolution du signal reçu par rapport à la distance h

Dans cette étude on s'intéresse à voir l'influence de la position du photomultiplicateur par rapport à l'échantillon. Selon l'équation obtenue dans le sous-chapitre 4.1.2.1, le signal suit une loi comme la suivante :

$$\varphi_{12}(t) = K \cdot \frac{r_1^2}{h^2 + r_1^2} \cdot f_{dec.}(t)$$

Alors il faut supposer que plus le photomultiplicateur est loin, plus le signal reçu est faible. Apparemment ce comportement est logique, car le rayonnement émis par l'échantillon sera plus intense si le détecteur est plus proche.

Pour faire cette étude on a mesuré à des hauteurs différentes, le signal reçu par trois échantillons différents (de rayonne 4.3cm, 2.7cm et 1.5cm).

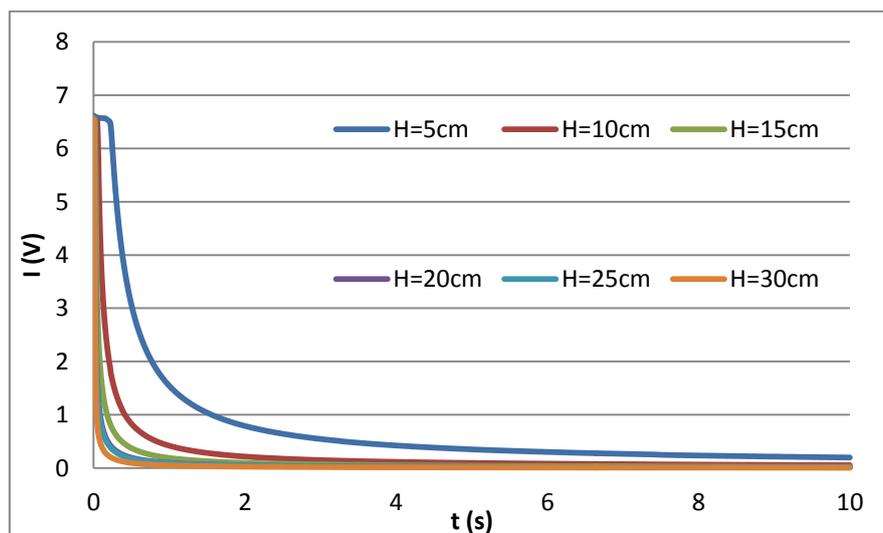


Figure25. Signal reçu en fonctions d'H pour une surface de r=1.5cm.

Comme on peut observer dans le graphique précédent, la théorie est confirmée par la pratique. En plus on peut observer que pour le cas concret de l'échantillon plus petit, le

signal à 20cm, 25 cm et 30cm est assez proche. Cela peut être très utile quand on fera les essais avec le réacteur, car si on place le photomultiplicateur à 25cm de l'axe central les particules détectées au-dessus ou en dessous contribueront avec la même intensité au même signal reçu.

#### 4.4.5 Evolution du signal reçu par rapport à la surface de l'échantillon

Maintenant on s'intéresse à l'évolution du signal reçu en fonction de la taille de la surface de pigment.

Dans une première approche, on peut supposer que plus la surface de l'échantillon sera grande plus le flux lumineux émis sera élevé. Ce comportement est aussi représenté de façon mathématique, car selon l'équation du flux lumineux, plus  $r$  est grand, plus le signal reçu est intense.

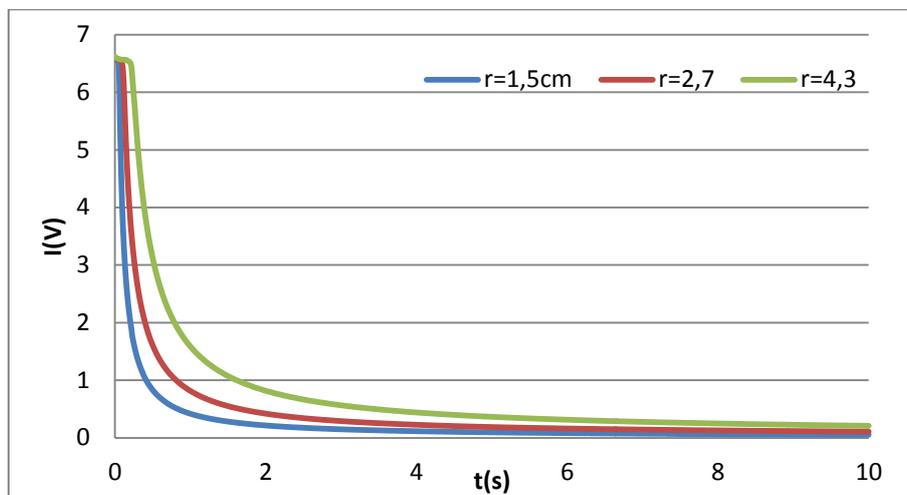
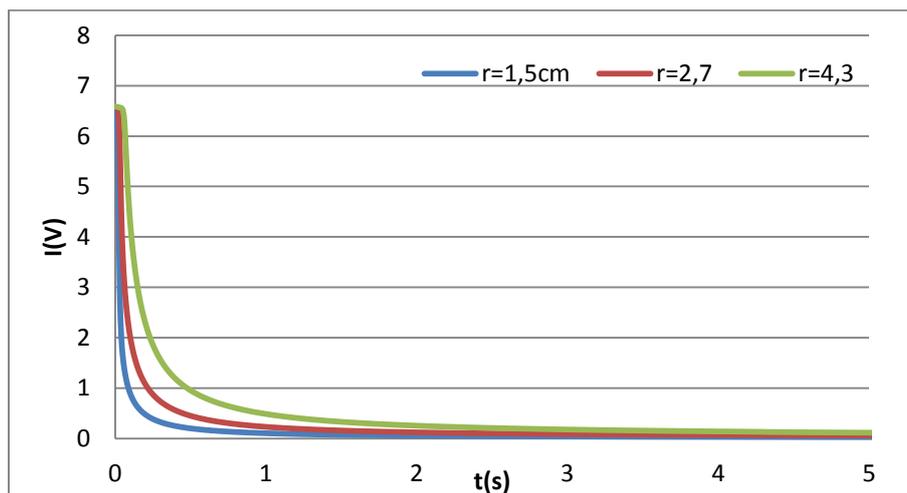


Figure26. Signal reçu en fonctions de  $r$  pour une hauteur  $h=10\text{cm}$ .



Figur27. Signal reçu en fonctions de  $r$  pour une hauteur  $h=20\text{cm}$ .

Comme on peut observer, la théorie est confirmée par la pratique, car à chaque hauteur le signal le plus fort correspond à l'échantillon le plus grand.

#### 4.4.6 Vérification de la fonction de flux de lumière.

Jusque là, on a vu que la surface et la distance h ont un comportement similaire par rapport à l'équation du flux de lumière, mais on n'a pas encore vérifié que le signal suit cette loi. Dans cette étude on va vérifier cela, en représentant l'intensité reçue par rapport à l'expression  $r^2/(r^2+h^2)$  à des temps de 2 secondes et 3 secondes après le démarrage du flash.

- Pour t=2s

Ensuite on montre une table avec les données pour cet instant :

Table1.

$r_{\text{surface}}$ (cm)	H (cm)	I(V)	$r^2/(r^2+h^2)$
4.3	10	0,816	0,15605
	15	0,3615	0,07594
	20	0,253	0,04418
	25	0,1855	0,02873
	30	0,09	0,02013
2.7	10	0,418	0,06795
	15	0,208	0,03138
	20	0,12	0,01790
	25	0,107	0,01153
	30	0,0565	0,00803
1.5	5	0,7915	0,08257
	10	0,2175	0,02200
	15	0,1	0,00990
	20	0,053	0,00559
	25	0,053	0,00359
	30	0,029	0,00249

La représentation graphique est la suivante :

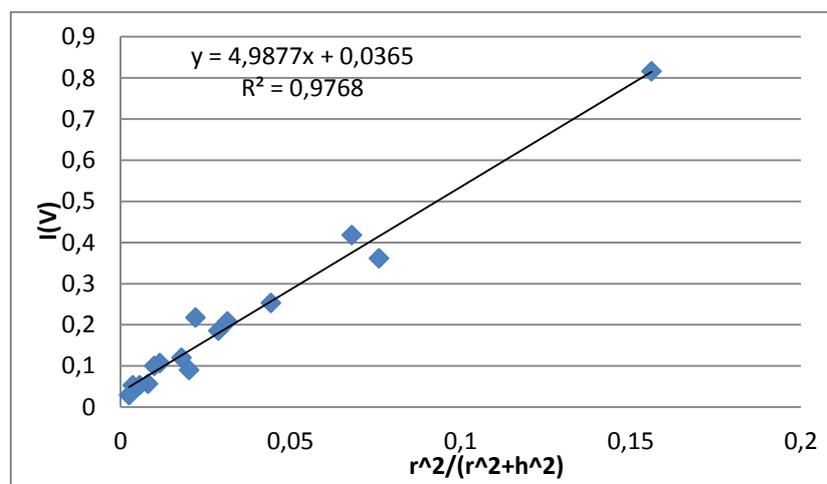


Figure28. Signal reçu en fonction de  $r^2/(r^2+h^2)$  à l'instant t=2s.

Comme on peut l'observer, la disposition des données s'ajuste très bien à une droite ( $R^2=0.9768$ ), cela confirme la validité de l'équation du flux de lumière.

- Pour  $t=3$

Ensuite on montre une table avec les données pour cet instant.

Table2.

$r_{\text{surface}}$ (cm)	H (cm)	I(V)	$r^2/(r^2+h^2)$
4.3	10	0,5645	0,15605
	15	0,25	0,07594
	20	0,178	0,04418
	25	0,1295	0,02873
	30	0,0615	0,02013
2.7	10	0,289	0,06795
	15	0,1435	0,03138
	20	0,085	0,0179
	25	0,0735	0,01153
	30	0,0395	0,00803
1.5	5	0,547	0,08257
	10	0,15	0,02200
	15	0,0685	0,00990
	20	0,038	0,00559
	25	0,038	0,00359
	30	0,021	0,00249

La représentation graphique est la suivante :

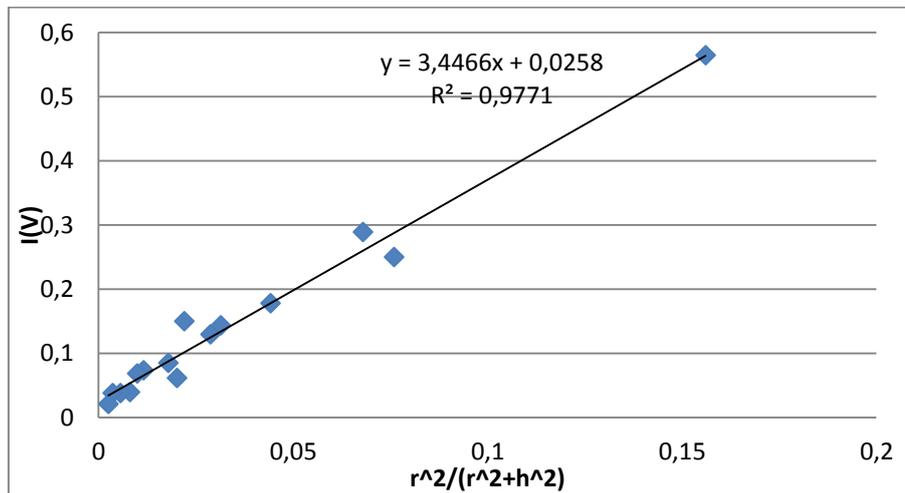


Figure29. Signal reçu en fonctions de  $r^2/(r^2+h^2)$  à l'instant  $t=3s$ .

Dans ce cas, les données s'adaptent bien aussi à une droite ( $R^2=0.9771$ ). Il faut noter que d'un instant à un autre la pente de la droite change. Cela est du au fait que la constante K de l'équation est multipliée par la fonction de décroissance qui dépend du temps, et alors à différents instants on aura la même valeur de K mais différentes valeurs de  $f_{\text{dec.}}(t)$ .

#### 4.4.7 Simplification de l'équation du flux de lumière.

On a vu que la fonction du flux de lumière s'adapte très bien au comportement réel du phénomène, mais dans cette partie on va essayer de la simplifier, donc il faut rappeler que cette expression est seulement valable si le facteur de vue est entre deux surfaces circulaires. Pendant les essais au réacteur la surface équivalente à l'échantillon sera une tranche du cylindre, donc elle n'aura pas une forme circulaire. Pour que l'équation soit valable pour n'importe quel type de surface il faut voir si en négligeant l'élément  $r_1^2$  présent dans le dénominateur les résultats sont très différents, car :

$$\varphi_{12}(t) = K \cdot \frac{r_1^2}{h^2 + r_1^2} \cdot f_{dec.}(t)$$

Si on écrit le développement de la constante K :

$$\varphi_{12}(t) = \pi M_1^\beta r_2^2 \cdot \frac{r_1^2}{h^2 + r_1^2} \cdot f_{dec.}(t)$$

En négligeant  $r_1^2$  on peut réécrire l'équation comme :

$$\varphi_{12}(t) = M_1^\beta r_2^2 \frac{\pi r_1^2}{h^2} \cdot f_{dec.}(t) = K' \frac{S_1}{h^2} \cdot f_{dec.}(t) \quad (4.17)$$

Avec  $K' = M_1^\beta r_2^2$

Dans la table suivante il y a représenté pour chaque surface et hauteur l'erreur commise en faisant cette simplification.

Table3.

r <sub>surface</sub> (cm)	H (cm)	r <sup>2</sup> /(r <sup>2</sup> +h <sup>2</sup> )	r <sup>2</sup> /h <sup>2</sup>	ε (%)
4.3	10	0,15605	0,18490	18,49
	15	0,07594	0,08218	8,22
	20	0,04418	0,04623	4,62
	25	0,02873	0,02958	2,96
	30	0,02013	0,02054	2,05
2.7	10	0,06795	0,07290	7,29
	15	0,03138	0,03240	3,24
	20	0,01790	0,01823	1,82
	25	0,01153	0,01166	1,17
	30	0,00803	0,00810	0,81
1.5	5	0,08257	0,09000	9,00
	10	0,02200	0,02250	2,25
	15	0,00990	0,01000	1,00
	20	0,00559	0,00563	0,56
	25	0,00359	0,00360	0,36
	30	0,00249	0,00250	0,25

La table précédente montre des résultats très différents. D'un côté on a des erreurs très petites quand la distance h tend à diminuer, mais de l'autre côté plus la surface augmente, plus l'erreur augmente. Par conséquent il faudra trouver pour une erreur

donnée, quelle relation entre  $r$  et  $h$  on doit avoir pour utiliser l'équation simplifiée ou non.

Pour cela, il faut simplifier l'équation de l'erreur :

$$\varepsilon = \frac{\left| \frac{r^2}{r^2+h^2} - \frac{r^2}{h^2} \right|}{\frac{r^2}{r^2+h^2}} = \frac{\left| r^2 - \frac{r^2(r^2+h^2)}{h^2} \right|}{r^2} = \frac{\left| r^2 - \frac{r^4}{h^2} - r^2 \right|}{r^2} = \frac{\left| -\frac{r^4}{h^2} \right|}{r^2} = \frac{r^2}{h^2}$$

Alors si par exemple on est disposé à commettre une erreur maximum de 1% pour apport à l'équation initiale, il faudra respecter la relation suivante :

$$\varepsilon \leq 0.01 \rightarrow r^2 \geq 0.01 h^2 \quad (4.18)$$

#### 4.4.8 Evolution du signal reçu par rapport à la masse de poudre

Dans cette étude on s'intéresse à connaître l'évolution du signal reçu en fonction de la masse de poudre contenue dans une surface déterminée.

Pour cela, on réalisera différents essais avec une même hauteur  $h$  avec différentes masses de poudre placées sur une même surface. Sur la figure suivante on peut voir les résultats pour une surface de  $r=4.3\text{cm}$  et une hauteur  $h=10\text{cm}$ .

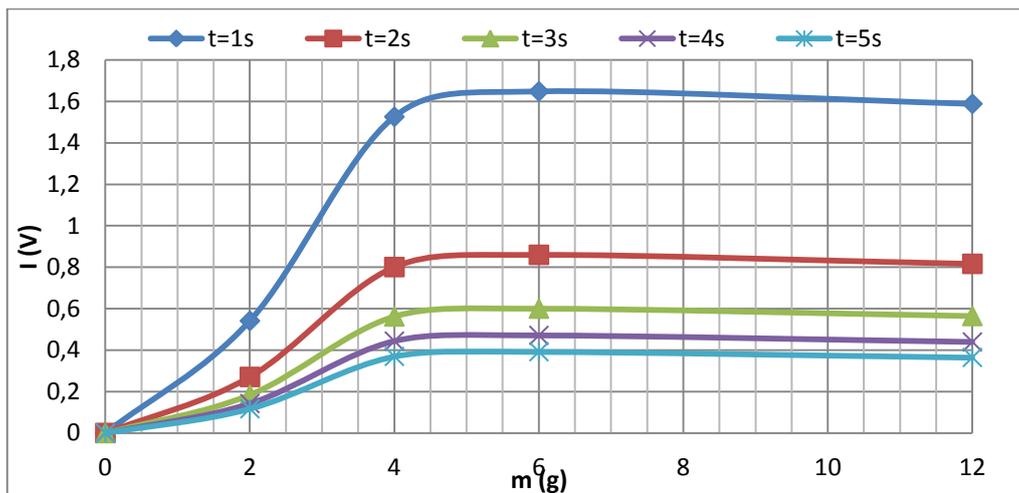


Figure30. Signal reçu par différentes masses à  $h=10\text{cm}$ .

Comme on peut observer, le signal reçu est proportionnel à la quantité de poudre pour des valeurs de  $m$  petites, mais qui atteint une saturation à partir d'une certaine masse critique ( $m_c$ ) (pour cette expérience la masse critique est de  $4,5\text{g}$ ).

Cette  $m_c$  correspond à la masse de solide nécessaire pour couvrir entièrement la surface de l'échantillon sous une forme de monocouche. En augmentant la masse au-dessus de  $m_c$ , le nouveau solide va cacher du flash des autres particules, lesquelles ne seront pas excitées et alors ne seront pas détectées par le photomultiplicateur.

D'une façon générale, on peut représenter le signal reçu avec l'équation suivante :

$$I = B \cdot \left( 1 - e^{-\frac{m}{m_c}} \right) \quad (4.19)$$

Ce phénomène a beaucoup d'importance, car c'est lui qui va limiter la concentration de poudre avec laquelle on peut opérer dans le réacteur.

D'un point de vue théorique, on peut quantifier cette concentration dans un récipient cylindrique et supposer que les particules sont sphériques :

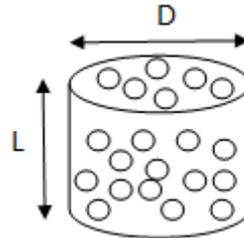


Figure31. Schéma de volume cylindrique avec des particules.

On sait que la surface de poudre vue par le détecteur doit être plus petite ou égale à la surface du cylindre :

$$S_{vue\ PMT} \leq \frac{\pi D^2}{4} \quad (4.20)$$

La surface détectée peut être écrite comme :

$$S_{vue\ PMT} = N_p \frac{\pi d_p^2}{4} \quad (4.21)$$

Avec  $N_p \equiv$  numéro de particules et  $d_p \equiv$  diamètre de la particule.

Alors si on substitue et on divise entre le volume pour avoir la concentration (en n° particules) on obtient :

$$N_p \frac{\pi d_p^2}{4} \leq \frac{\pi D^2}{4} \rightarrow N_p \leq \frac{D^2}{d_p^2}$$

$$\frac{N_p}{V} \leq \frac{4}{d_p^2 \pi L} \quad (4.22)$$

Habituellement, dans les études d'écoulements diphasiques un concept très utilisé est la porosité, définie comme la relation du volume de gaz sur le volume total.

$$\varepsilon = \frac{V_{gaz}}{V_{Tot}} = 1 - \frac{V_{solide}}{V_{Tot}} \quad (4.23)$$

Avec la relation de la concentration qu'on vient de voir et en écrivant le volume occupé par le solide et le volume total comme :

$$V_{solide} = N_p V_p = \frac{\pi d_p^3}{6} N_p \quad (4.24)$$

$$V_{Tot} = \frac{\pi D^2 L}{4} \quad (4.25)$$

On peut délimiter la porosité minimum nécessaire de l'écoulement pour assurer que toutes les particules sont excitées et détectées. De cette façon, le signal obtenu sera proportionnel au nombre de particules présentes dans l'écoulement.

$$\varepsilon = 1 - \frac{V_{solide}}{V_{Tot}} = 1 - \frac{2N_p d_p^3}{3D^2 L}$$

En remplaçant  $N_p$ , on obtient :

$$\varepsilon \geq 1 - \frac{2d_p}{3L} \quad (4.26)$$

Avec le sable enrobé de  $315\mu\text{m}$  et en prenant pour échelle caractéristique  $L$ , le diamètre du réacteur, soit  $L=10\text{cm}$ , on obtient :

$$\varepsilon \geq 0.998$$

Comme on peut observer, il y a besoin d'opérer avec des écoulements très dilués pour assurer que les données reçues sont valables. De plus, on peut remarquer que plus les particules sont petites, plus l'écoulement sera dilué, et par conséquent on aura moins de rangs de débits solides valables pour opérer. Cette limitation des rangs de débits est le principal inconvénient de cette technique.

#### 4.4.9 Détermination expérimentale de la fonction de décroissance de la phosphorescence

Le but de ce sous-chapitre est de déterminer quelle est la loi qui s'adapte le mieux à la décroissance de la phosphorescence.

En regardant la bibliographie, on peut trouver différentes expressions fournies par différents auteurs. Les plus courantes sont :

- de type exponentielle :

$$I_1(t) = Ae^{-\alpha t} \quad (4.27)$$

- de type parabolique :

d'ordre 2 : 
$$I_1(t) = \frac{A}{(1 + \gamma t)^2} \quad (4.28)$$

d'ordre général : 
$$I_1(t) = \frac{A}{(1 + \gamma t)^n} \quad (4.29)$$

- de type hyperbolique :

$$I_1(t) = At^{-\alpha} \quad (4.30)$$

La constante  $A$  correspond à la valeur de l'intensité lumineuse à l'instant initial et  $\alpha$  au coefficient de décroissance.

Dans le cas de la poudre enrobée avec le pigment Green N la loi qui s'adapte le mieux est l'hyperbolique. Pour vérifier cela, on a réalisé tout d'abord une régression linéaire de la loi :

$$\ln I_1(t) = \ln A - \alpha \ln t \quad (4.31)$$

Après on a représenté le logarithme du signal reçu en fonction du logarithme du temps pour chaque surface à différentes hauteurs h. Il faut rappeler qu'il faut éliminer les premiers 0.2s, car ils ont une erreur causée par l'effet du flash.

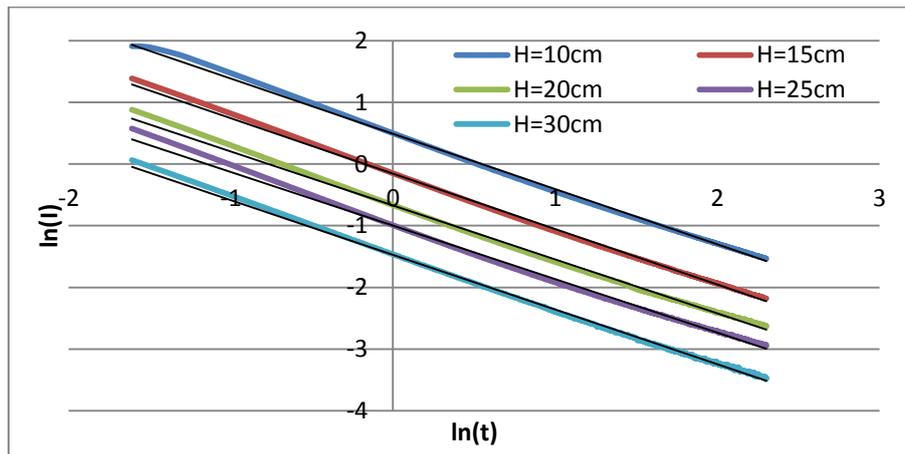


Figure32. Régression linéaire de la décroissance de la surface r=4.3cm.

Comme on peut observer le signal s'approche assez bien de la droite de régression ( $R^2=0.9967 - 0.9985$ ). De plus, on peut observer que la pente de chaque droite (coefficient  $\alpha$ ), est très similaire ( $\alpha=0.8674 - 0.8970$ ).

Comme on peut voir sur la table suivante, ce coefficient est très similaire aux deux autres surfaces.

Table4.

$r_{\text{surface}}$ (cm)	H(cm)	$R^2$	$\alpha$
4.3	10	0,9983	-0,8967
	15	0,9985	-0,8974
	20	0,9967	-0,8737
	25	0,9967	-0,8682
	30	0,9982	-0,8862
2.7	10	0,9981	-0,9003
	15	0,9977	-0,9000
	20	0,9957	-0,8506
	25	0,9978	-0,8823
	30	0,9970	-0,8576
1.5	10	0,9982	-0,8993
	15	0,9987	-0,8617
	20	0,9981	-0,8908
	25	0,9975	-0,8750
	30	0,9960	-0,8633
	5	0,9984	-0,9058

Si on fait la moyenne du paramètre  $\alpha$  pour les données précédentes on obtient :

$$\bar{\alpha} = 0.8818$$

Note : Les essais avec d'autres gains donnent des valeurs très similaires d' $\alpha$ .

#### 4.4.10 Equation globale du signal reçu

Une fois qu'on a vérifié que l'équation du flux de lumière s'adapte très bien au phénomène et une fois qu'on a déterminé quel type de loi de décroissance elle suit, on peut écrire une équation globale du signal reçu comme suit :

$$I(t) = KA \frac{r^2}{r^2+h^2} t^{-\alpha} \quad (4.32)$$

Ou avec la simplification du sous-chapitre 4.4.7 comme :

$$I(t) = K'A \frac{S}{h^2} t^{-\alpha} \quad (4.34)$$

Dans les deux cas, on connaît déjà toutes les variables sauf les deux constantes K et A. Il faut rappeler que la constante A vient de la fonction de décroissance du chapitre précédent. Elle est caractéristique du pigment et par conséquent sera constante quelles que soient les conditions d'opération (gain, position du détecteur, quantité de pigment collé pendant l'enrobage, etc.).

Par contre, l'origine de la constante K (ou K' pour la façon simplifiée) est l'équation du flux de lumière qu'on a développé théoriquement au sous-chapitre 4.1 et peut être écrite comme :

$$K = \pi M_1^\beta r_2^2$$

$$K' = M_1^\beta r_2^2$$

Comme on a dit précédemment, le terme  $M_1^\beta$  est l'émittance de l'échantillon à l'instant initial. L'inconvénient qu'on trouve est que le photomultiplicateur ne peut pas détecter les unités typiques de cette unité ( $\text{lm/m}^2$ ), mais il donne une valeur proportionnelle à l'émittance en volts (V). Ce signal proportionnel peut changer en fonction du gain élu et de plus, l'émittance dépendra de la quantité de pigment présent sur les particules. Comme on utilise le même sable, on n'aura pas à considérer ce dernier comme un inconvénient, mais on sera obligé de déterminer une constante K (ou K') pour chaque gain employé.

Pour calculer les deux constantes, tout d'abord on réalise une régression linéaire (?) de l'équation globale et en suite on regroupe les termes de la façon suivante :

$$I(t) = K'A \frac{S}{h^2} t^{-\alpha} \rightarrow \ln I(t) = \ln K'A + \ln \frac{S}{h^2} - \alpha \ln t \rightarrow$$

$$\ln I(t) - \ln \frac{S}{h^2} = \ln K'A - \alpha \ln t \quad (4.35)$$

Ensuite, on représente les ordonnées de l'équation précédente en fonction du logarithme du temps.

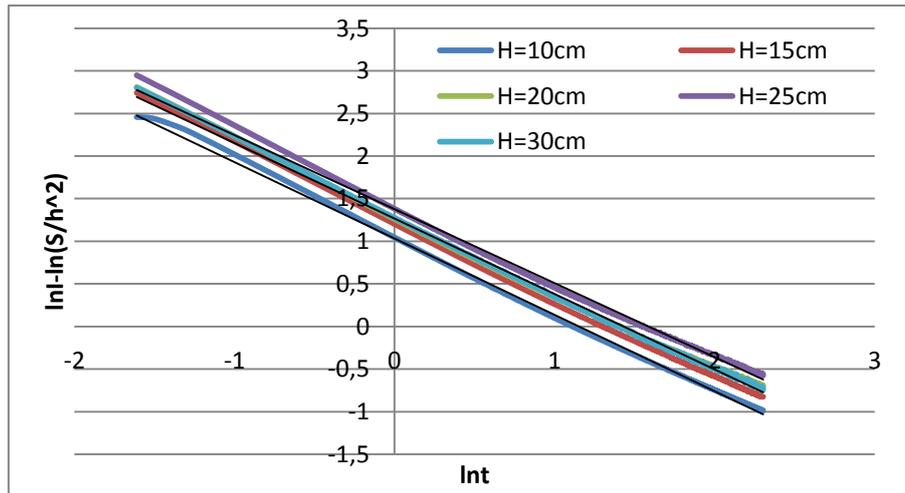


Figure33. Régression linéaire pour déterminer les constants K et A de la surface  $r=4.3\text{cm}$  pour un gain de 0.5V.

Comme on peut observer, tous les signaux avec n'importe quelle hauteur  $h$  ont tendance à se regrouper sur la même droite. Les petites variations qu'on voit sont causées par des petites erreurs expérimentales causées par des imprécisions pendant la mesure. Il faut remarquer que la pente de ces nouvelles droites de régression suivent étant le paramètre  $\alpha$ .

En rapportant chaque droite à l'abscisse égale à zéro, on trouve le  $\ln(K'A)$ . Pour le cas de l'exemple les valeurs trouvées sont entre 1.0328 – 1.3774. Finalement, pour trouver la valeur de  $K'A$ , il faudra simplement appliquer l'antilogarithme à chacun. À la table suivante, on peut voir les valeurs des constants  $KA$  pour chaque essai avec un gain de 0.5V.

Table5.

$r_{\text{surface}}$ (cm)	H(cm)	$R^2$	$\ln AK'$	$AK'$
4.3	10	0,9983	1,0328	2,80892
	15	0,9985	1,1966	3,308848
	20	0,9967	1,2576	3,516971
	25	0,9967	1,3774	3,96458
	30	0,9982	1,2689	3,556938
2.7	10	0,9981	1,2603	3,526479
	15	0,9977	1,3775	3,964977
	20	0,9957	1,3779	3,966563
	25	0,9978	1,4643	4,324515
	30	0,9970	1,4274	4,167849
1.5	10	0,9982	1,584	4,874415
	15	0,9987	1,4906	4,439759
	20	0,9981	1,5799	4,85447
	25	0,9975	1,8085	6,101289
	30	0,9960	1,6941	5,441746
	5	0,9984	1,5286	4,611716

Note : Comme pendant les essais au réacteur on va utiliser l'équation simplifiée, on a seulement calculé les constants pour le mode simplifié (AK').

Sur la table précédente, on peut observer que malgré les imprécisions des mesures les constants AK ont tendance à avoir une valeur de pou un gain de 0.5V :

$$\overline{AK'} = 4.0829$$

L'origine des imprécisions peut être atténuée à mesure qu'on travaille avec des gains plus grands, car les valeurs de l'intensité sont plus grandes et l'expérience s'approche plus de la théorie.

## 5. Détermination de la DTS sur le réacteur

Le but de cette partie est de réaliser la détection de la DTS pour un réacteur cylindrique horizontale avec la technique des traçants phosphorescents qu'on a décrite dans les chapitres précédents.

### 5.1 Description de l'installation

Le banc d'essais est constitué d'un tube en acier, dans lequel de l'air circule, fourni par un ventilateur. L'air est à température ambiante (25°C). Différents piquages ont été effectués de manière à pouvoir réaliser l'introduction du solide à l'intérieur du réacteur, à exciter les particules avec le flash et à placer le photomultiplicateur.

À la sortie du tube, on dispose d'un cyclone pour pouvoir séparer et récupérer le solide et un filtre à manche en finition. Un venturi fait en sorte que les particules soient injectées dans l'écoulement d'air. Il est indispensable que le régime d'écoulement dans la canalisation soit homogène, ainsi les échantillons flashés seront représentatifs des flux dans la canalisation.

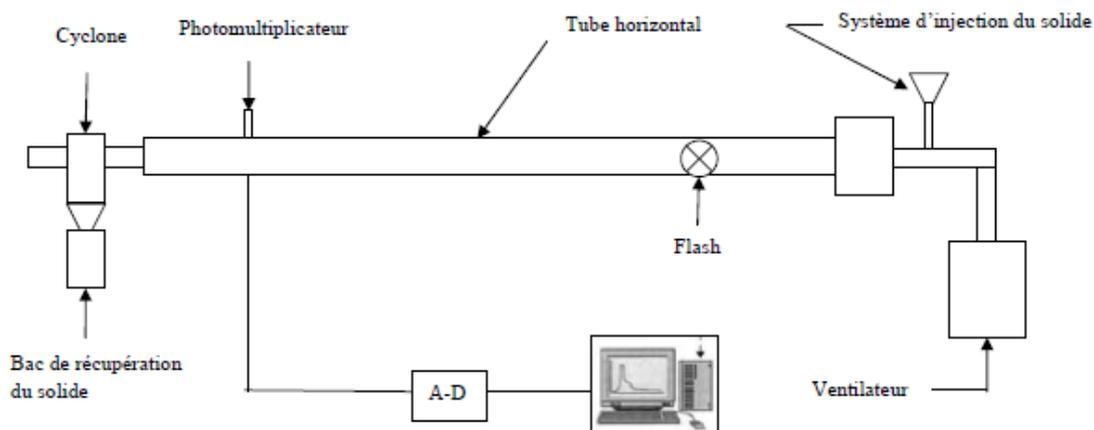


Figure34. Schéma du banc d'essais.

Le système d'injection du solide est constitué d'une trémie vibrante qui en théorie assure un débit constant des particules et un dispositif de pulvérisation qui assure la dispersion du solide grâce à l'effet venturi.

Toutefois, pendant les premiers essais on a vu que ce dispositif ne fonctionne pas bien, car il y avait beaucoup de particules qui sortaient du système. Ceci est dû au fait qu'on ait besoin que le débit d'air de l'écoulement principal soit très grand pour pouvoir avoir un transport pneumatique. Généralement ce débit est plus fort que l'air fourni par le venturi ce qui fait que ce dernier ne peut pas absorber le solide, au contraire il le pousse dehors.

Tout d'abord on a essayé de diminuer le débit d'air fourni par le ventilateur, mais alors il n'y avait pas de transport du solide. Ainsi l'unique solution possible a été de diminuer la taille des particules enrobées usés (on a essayé avec des particules de 106µm mais le problème n'a été pas éliminé).

## 5.2 Traitement du signal

Comme on l'a déjà vu, le photomultiplicateur fournit un signal électrique proportionnel à la concentration de pigment excité qu'il détecte, mais pour transformer ce signal en DTS il faut le soumettre à un traitement.

Pour cela on utilisera l'équation globale du sous-chapitre 4.4.10. Tout d'abord on va transformer l'intensité détecté en la surface équivalente de poudre détecté :

$$S(t) = \frac{I(t)h^2}{K'A} t^\alpha \quad (5.1)$$

Comme on connaît la taille des particules on peut calculer le nombre de particules équivalentes à S(t) avec l'expression suivante :

$$N_p(t) = \frac{4S(t)}{\pi d_p^2} \quad (5.2)$$

Que de façon développée reste :

$$N_p(t) = \frac{4h^2 I(t)}{\pi K'A d_p^2} t^\alpha \quad (5.3)$$

Finalement, si on applique la définition de DTS on obtient l'expression suivante :

$$E(t) = \frac{N_p(t)}{\int_0^\infty N_p(t) dt} \quad (5.4)$$

On peut utiliser le  $N_p$  au lieu de la concentration  $C(t)$  [ $n^0 \text{ part./m}^3$ ] parce que le volume d'enregistrement du détecteur est toujours le même, par conséquent est simplifiable au dénominateur et au numérateur.

De cette façon on peut résumer le traitement du signal avec le schéma suivant:



Figure35. Schéma du traitement du signal.

Comme on peut observer l'unique variable qu'il est nécessaire de définir au préalable est h, car on connaît K'A et  $\alpha$  respectivement des sous-chapitre 4.4.10 et 4.4.9, I(t) est la donnée du détecteur et on fixe  $d_p$  nous même.

Comme on a vu dans le sous-chapitre 4.4.4, le signal reçu est différent pour différentes hauteurs, même si la variation n'est pas trop grande (5cm).

Pour choisir la valeur de h, tout d'abord, on a pensé placer le détecteur à une hauteur assez élevée pour essayer d'avoir presque les mêmes valeurs à n'importe quelle hauteur, mais après quelques essais on a vu que les temps de passage des particules étaient supérieurs au temps que le photomultiplicateur prenait pour détecter le signal lumineux.

Alors on est obligé de commettre une erreur, donc on ne pourra pas savoir pour une intensité donnée quelle concentration de pigment dans quelle position axial du réacteur

elle se trouve. Par exemple, on peut avoir le cas d'une petite concentration de solide mais placée très proche du détecteur qui contribue au signal détecté avec la même intensité qu'une concentration très grande placée loin du photomultiplicateur.

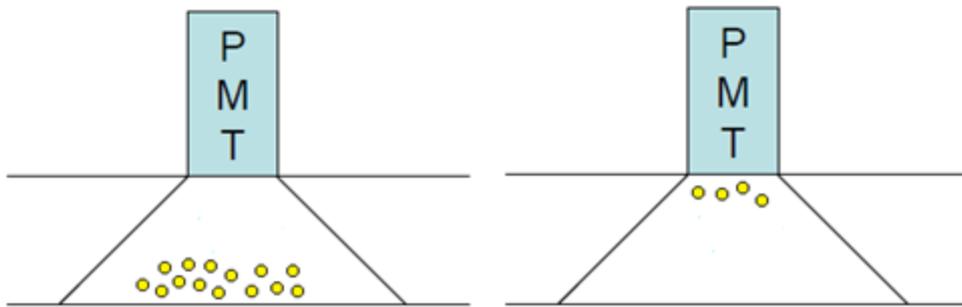


Figure 36. Un même signal donné peut être causé par différentes concentrations de pigment.

Comme la distribution du solide dans un transport pneumatique dilué est totalement aléatoire, l'option la plus adéquate est de fixer  $h$  comme la distance entre le détecteur et l'axe transversal du cylindre. Malgré le fait que cette erreur dénature le calcul du nombre de particules, si on a un écoulement homogène, l'allure de la DTS n'est pas affecté, donc en la divisant par la concentration initiale (le terme de l'intégral), on aura la même allure et magnitude quelle que soit la  $h$  choisie. En effet, si on développe l'équation (5.4) on peut arriver à la conclusion suivante :

$$E(t) = \frac{N_p(t)}{\int_0^\infty N_p dt} = \frac{\frac{4h^2 I(t)t^\alpha}{\pi K' A d_p^2}}{\int_0^\infty \frac{4h^2 I(t)t^\alpha}{\pi K' A d_p^2} dt} = \frac{\frac{4h^2 I(t)t^\alpha}{\pi K' A d_p^2}}{\frac{4h^2}{\pi K' A d_p^2} \int_0^\infty I(t)t^\alpha dt}$$

$$E(t) = \frac{I(t)t^\alpha}{\int_0^\infty I(t)t^\alpha dt} \quad (5.5)$$

Cette simplification est d'une grande utilité car en première lieu elle permet de travailler sans les constantes  $K'A$ , qui sont assez complexes à déterminer expérimentalement et en deuxième lieu car on peut placer le photomultiplicateur à n'importe quelle hauteur  $h$ . Finalement cette équation est valable pour n'importe quelle taille de particule. De cette façon, l'unique inconvénient est qu'on ne pourra pas connaître la concentration physique de particules solides.

### 5.3 Premiers essais

À cause de contretemps causés par des problèmes logistiques (retard dans l'acquisition de la trémie vibrante et du venturi) on a eu seulement disposé d'une semaine pour réaliser des expériences sur le réacteur. De plus, le problème de l'injection du solide et le fait qu'on n'avait pas l'instrumentation nécessaire pour calculer le débit d'air de l'écoulement principal a fait que l'acquisition de données a été très difficile. On a tout de même obtenu quelques résultats à mode de mise au point.

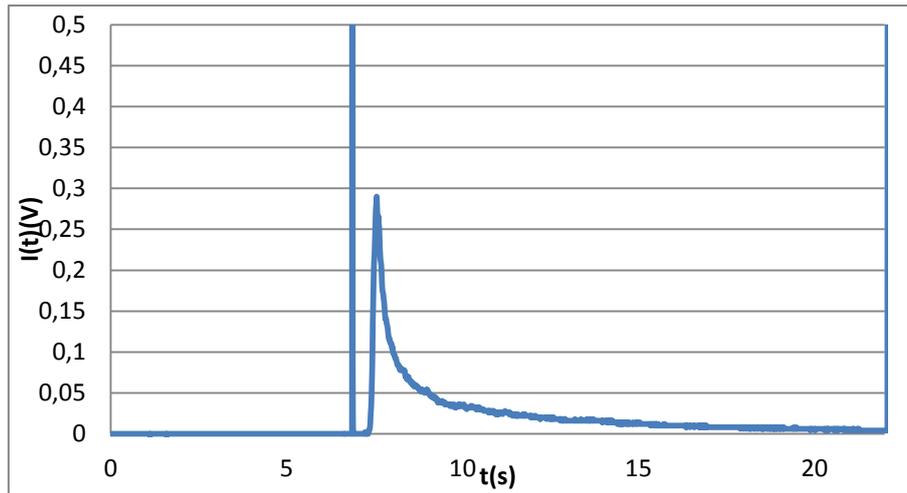


Figure37. Signal reçu par le détecteur dans le réacteur. Gain=0.9V.

Le graphique précédent montre le signal typique qu'on enregistre pendant les essais au réacteur. On peut observer un premier pic de hauteur très élevée et de largeur très faible qui correspond au déclenchement du flash. Ensuite un temps sans signal qui correspond au temps que prend la poudre active pour arriver au détecteur et finalement, le signal qui servira pour obtenir la DTS.

Si on déplace l'origine du graphique au moment d'activation du flash et qu'ensuite on applique l'équation 5.5 on obtient le graphique suivant :

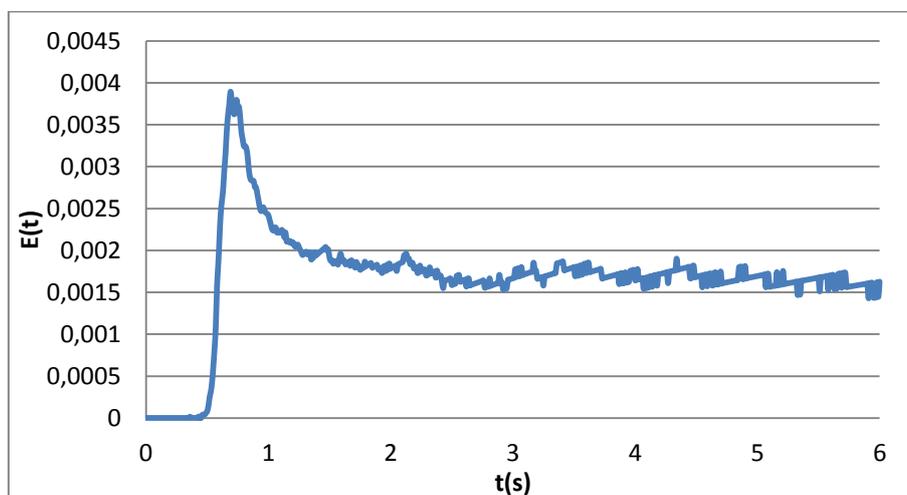


Figure38. Fonction E(t) avec gain=0.9V.

Comme on peut l'observer, au début le graphique présente un comportement typique de réacteur piston, il y a le temps sans signal au début, puis il y a le commencement d'une fonction similaire à la gaussienne, mais après l'instant 2s on peut voir un comportement anormal : il apparait un droite plafonnée à  $E(t)=0.0017$ . Ce type de signal est typique de volumes stagnants, et effectivement, quand on enlève le photomultiplicateur pour voir dans le réacteur on observe un dépôt de poudre important. En effet, quand on quantifie quelle proportion de solide reste plus de 2s dans le réacteur avant de sortir, on veut que ce soit environ le 67%.

Comme on vient de le dire, ces résultats ont été effectués pour développer la mise au point de l'installation, par conséquent ils n'ont pas de rigueur scientifique : on ne connaît pas le débit de solide ni d'air, le système d'injection ne marche pas bien, il n'y a pas de transport pneumatique efficace et on ne sait pas si on opère en régime dilué ou concentré. Ce sont sur ces aspects qu'il faudra travailler les prochaines semaines, particulièrement sur le système d'injection et l'étalonnage des débits solide et d'air. Toutefois, on peut constater que malgré cela, la détection du signal correspond à la DTS peut être acquise, tout en garantissant la viabilité de la méthode.

## 5.4 Amélioration de la technique

Un des principaux inconvénients de cette technique, est le fait que le temps de vie de la phosphorescence du pigment limite son utilisation. Le réacteur dont on dispose est de taille pilot, avec une longueur utile de 2m et 10 cm de diamètre. Toutefois, dans le domaine de l'industrie les dimensions sont généralement bien plus grandes.

Pour résoudre ce problème une variation de la technique a été proposée à la thèse d'A.GABNÉ tout en installant une canne de prélèvement du solide dans l'écoulement, et en plaçant la détecteur en dessous.

Avec ce nouveau système le calcul numérique de la DTS est un peu plus complexe, car il faudra connaître et considérer l'effet de la DTS de la canne pour arriver à calculer la DTS du réacteur.

Le gros problème de cette méthode est que le fait d'introduire la canne dans le système perturbe localement l'écoulement et fausse légèrement la mesure.

D'un autre côté, cette méthode permet d'ajouter facilement d'autres systèmes de mesure, par exemple, ceux nécessaires à la détermination d'une DTS gaz, ce qui permettrait ainsi de coupler les mesures DTS solide / DTS gaz, et donc, à force de manipulations, de déterminer la mécanique des écoulements gaz/solide dans le système étudié.

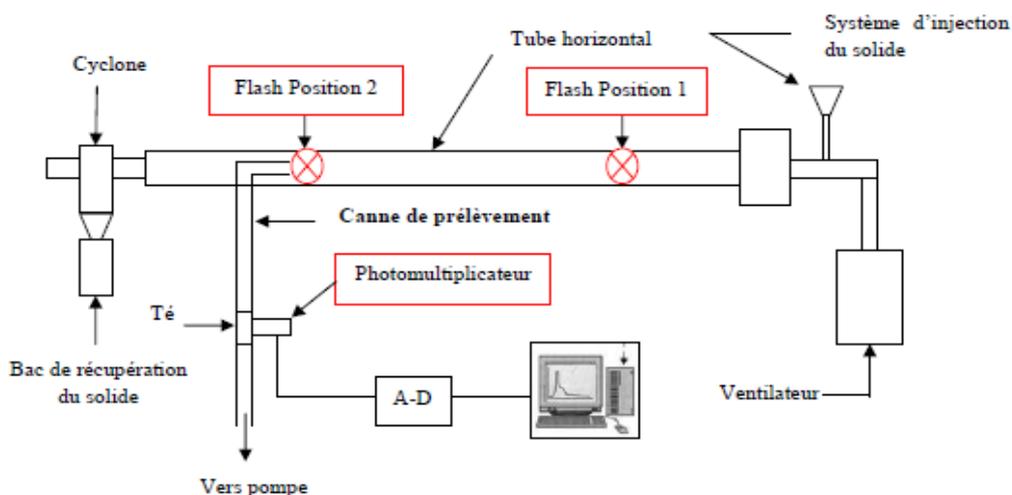


Figure39. Schéma du banc d'essais avec le système de prélèvement.

## 6. Conclusions

Ainsi, j'ai effectué mon stage de fin d'étude de Génie Chimique au sein du centre de Recherches de l'UTC. Lors de ce stage j'ai pu mettre en pratique mes connaissances théoriques acquises durant ma formation, de plus, je me suis confrontée aux difficultés réelles du monde du travail.

Pendant la durée de ce stage j'ai eu l'opportunité de travailler dans un projet d'investigation de trois ans. Malgré que ma présence a été seulement de six mois, j'ai constaté que dans ce type de travail, l'expérience est assez différente de la théorie et que le chercheur est constamment confronté à des situations et des paramètres non considérés par la théorie.

Avoir l'opportunité de travailler dans un laboratoire d'échelle pilote pour la première fois dans ma vie, m'a permis de comprendre à quel point il est important d'avoir une formation plus multidisciplinaire que la formation d'ingénieur que j'ai reçu, quand par exemple j'ai réalisé que beaucoup de techniques et méthodes pour la mise en œuvre du réacteur m'étaient complètement étrangères.

J'ai également appris que dans des projets de cette envergure une présence continue et une coordination efficace entre les différents acteurs ( l'équipe de chercheurs, les techniciens, ou le personnel administratif par exemple) sont fondamentales pour le bon développement du projet.

En ce qui concerne la communication entre les collègues du centre, je dois avouer qu'avant de commencer le stage j'étais un peu soucieux à cause de mon niveau de français, mais après les premier jours d'adaptation, je n'ai eu aucun problème important, en effet j'ai trouvé une équipe de personnes très gentille et un bon environnement de travail.

Finalement, je pense que ce stage m'a offert une bonne préparation à mon insertion professionnelle car il a été pour moi une expérience enrichissante dans un pays étranger qui conforte mon souhait d'exercer mon futur métier d'ingénieur.

## 7. Bibliographie

### ➤ Livres consultés:

- O.LEVENSPIEL, Chemical reaction engineering, second edition.
- S. FOGLER, Elements of Chemical Reaction Engineering, third edition.
- H.DELMAS, A.M. WILHELM, Ecoulements dans les réacteurs. Distribution des temps de séjour.

### ➤ Sites d'internet consultés:

- <http://www.fs.fed.us/pnw/pubs/journals/haggerty-powerlaw.pdf>
- [http://ocw.mit.edu/courses/chemical-engineering/10-37-chemical-and-biological-reaction-engineering-spring-2007/lecture-notes/lec10\\_03092007\\_w.pdf](http://ocw.mit.edu/courses/chemical-engineering/10-37-chemical-and-biological-reaction-engineering-spring-2007/lecture-notes/lec10_03092007_w.pdf)
- [http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TCS-31\\_web.pdf](http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TCS-31_web.pdf)
- [http://zeus.plmsc.psu.edu/~manias/MatSE447/22\\_ResidenceTime.pdf](http://zeus.plmsc.psu.edu/~manias/MatSE447/22_ResidenceTime.pdf)
- <http://www.che.iitb.ac.in/courses/uglab/cl431/ms401-rtd.pdf>
- <http://web.archive.org/web/20110101065414/http://www.erpt.org/014Q/rhoe-04.htm>
- [http://www.inp-toulouse.fr/\\_resources/documents/TICE/G%25C3%25A9nie%2520des%2520proc%25C3%25A9d%25C3%25A9s/10Extrait\\_reacteurs\\_non\\_ideaux.PDF?download=true](http://www.inp-toulouse.fr/_resources/documents/TICE/G%25C3%25A9nie%2520des%2520proc%25C3%25A9d%25C3%25A9s/10Extrait_reacteurs_non_ideaux.PDF?download=true)

### ➤ Articles et thèses consultés :

- A. GBANÉ, Développement d'une méthode d'analyse DTS solide. [8-11-2010]
- T.DRAH, Développement d'une méthode de traçage phosphorescent pour la caractérisation de la distribution des temps de séjour dans les procédés industriels. [29-7-2011]
- F.CLABAU, Mécanismes et nouveaux matériaux. [18-3-2005]
- F.OUHADDAD, Caractérisation d'enceintes de traitement thermique par analyse des DTS des phases gaz et solides, [24-1-2008]
- A.T. HARRIS, J.F. DAVIDSON et R.B. THORPE, A novel method for measuring the residence time distribution in short time scale particulate systems, *Department of Chemical Engineering, University of Cambridge, Pembroke Street, Cambridge, [Chemical Engineering journal 89]*
- P.V. DANCKWERTS, Continuous flow systems distribution residence time. *Department of Chemical Engineering, Tennis Court Road, Cambridge, England, U.K. [24-10-1952]*

- J. M. LOPES <sup>a</sup>, F. LEMOS <sup>a</sup>, C. PINHEIRO <sup>a</sup>, F. RAMOÃ A RIBEIRO <sup>a</sup>, F. D. MAGALHAES <sup>b</sup>, A. MENDES <sup>b</sup>, C. COSTA <sup>b</sup>, Teaching Residence Time Distributions in the Laboratory. <sup>a</sup>*Instituto Superior Técnico, Dep. Engenharia Química, Av. Rovisco Pais, 1049-001 Lisboa, Portugal.*; <sup>b</sup>*Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto, Portugal.* [Int. J. Engng. vol.18]
- G. GENIN <sup>a</sup>, J.L.HOUZELOT <sup>a</sup>, A. KOTRO <sup>a</sup>, G.MARTIN <sup>b</sup>, Nouvelles méthodes de mesure des distributions de temps de séjour d'une phase solide transportée. <sup>a</sup>*Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, CNRS-ENSIC, BP 451, 54001 Nancy Cedex, France* ; <sup>b</sup>*Institut Français du Pétrole, CEDI "René Navarre", BP 3, 69390 Vernaison Cedex.* [Chemical Engineering journal 81]
- Y.Ouabbas <sup>a b</sup>, L.Galet <sup>a</sup>, S.Patry <sup>a</sup>, L.Devrient <sup>a</sup>, .Accart <sup>a</sup>, C.Rolland <sup>a</sup>, A. Chamayou <sup>a</sup>, M.Baron <sup>a</sup>, J.A.Dodds <sup>a</sup>, Ph.Grosseau <sup>b</sup>, B.Guilhot <sup>b</sup>, G.Thomas <sup>b</sup>, Modification des propriétés des poudres par enrobage à sec dans un mélangeur Cyclomix. <sup>a</sup>*Centre RAPSODEE, UMR-CNRS-EMAC 2392 Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, Campus Jarlard, 81013 Albi*, <sup>b</sup>*Centre SPIN, LPMG –UMR 5148 CNRS- ENSM.SE.* [12es journées du Groupe Formulation de la Société française de chimie, 1-10-2009].

➤ **Autres documents consultés :**

- Présentation de projet CEGASET [2010]

## 8. Annexe A. Fiche techniques du matériel employé

### Fiche technique du photomultiplicateur.

## Metal Package PMT

### Photosensor Modules H5773/H5783/H6779/H6780 Series



The H5773/H5783/H6779/H6780 series are photosensor modules housing a metal package PMT and high-voltage power supply circuit. The metal package PMTs have a metallic package with the same diameter as a TO-8 package used for semiconductor photodetectors, and deliver high gain, wide dynamic range and high-speed response while maintaining small dimensions identical to those of photodiodes. The internal high-voltage power supply circuit is also compact, making the module easy to use.

Considering the mounting methods, a cable output type and a pin output type are provided, and a total of 7 types are available according to the wavelength range to be measured. A P-type is also available with selected gain and dark count ideal for photon counting under extremely low light conditions.

### Product Variations

Suffix Type No.	None	-01	-02	-03	-04	-06	-20	Output Type	Features
H5773	yes	yes	yes	yes	yes	yes	yes	On-board	Low power consumption
H5783	yes	yes	yes	yes	yes	yes	yes	Cable output	For photon counting
H5773P	yes	no	no	no	no	no	no	On-board	
H5783P	yes	no	no	no	no	no	no	Cable output	Low power consumption
H6779	yes	yes	yes	yes	yes	yes	yes	On-board	Low ripple noise
H6780	yes	yes	yes	yes	yes	yes	yes	Cable output	Fast settling time

Suffix	Spectral Response
None	300 nm to 650 nm
-01	300 nm to 850 nm
-02	300 nm to 880 nm
-03	185 nm to 650 nm
-04	185 nm to 850 nm
-06	185 nm to 650 nm
-20	300 nm to 900 nm

The suffix -06 type (synthetic silica window) has higher sensitivity than the -03 type below 300 nm in wavelength range.

### Specifications

Parameter		H5773 / H5783 / H6779 / H6780 Series					Unit		
Suffix		None	-03, -06	-01, -04	-02	-20	—		
Input Voltage		+11.5 to +15.5					V		
Max. Input Voltage		+18					V		
Max. Input Current		H5773 / H5783 Series: 9 H6779 / H6780 Series: 30					mA		
Max. Output Signal Current		100					µA		
Max. Control Voltage		+1.0 (Input impedance 100 kΩ)					V		
Recommended Control Voltage Adjustment Range		+0.25 to +0.9					V		
Effective Area		±8					mm		
Sensitivity Adjustment Range		1: 10 <sup>4</sup>					—		
Peak Sensitivity Wavelength		420	420	400	500	630	nm		
Cathode	Luminous Sensitivity	Min.	40	40	80	200	350	µA/lm	
		Typ.	70	70	150	250	500		
	Blue Sensitivity Index (CS 5-58)		8	8	—	—	—	—	
	Red/White Ratio		—	—	0.2	0.25	0.45	—	
Radiant Sensitivity *1			62	62	60	58	78	mA/W	
Anode	Standard Type	Luminous Sensitivity	Min.	10	10	15	25	35	A/lm
			Typ.	50	50	75	125	250	
	P Type	Radiant Sensitivity *1 *2		4.3 × 10 <sup>4</sup>	4.3 × 10 <sup>4</sup>	3.0 × 10 <sup>4</sup>	2.9 × 10 <sup>4</sup>	3.9 × 10 <sup>4</sup>	A/W
			Dark Current *2 *3	Typ.	0.2	0.2	0.4	2	
			Max.	2	2	4	20	20	nA
			Gain *2	Min.	7.5 × 10 <sup>5</sup>	—	—	—	—
			Typ.	1 × 10 <sup>6</sup>	—	—	—	—	
		Radiant Sensitivity *1 *2		6.2 × 10 <sup>4</sup>	—	—	—	A/W	
		Dark Count *2 *3	Typ.	80	—	—	—	s <sup>-1</sup>	
			Max.	400	—	—	—	—	
Rise Time *2		0.78					ns		
		H5773 Series	H5783 Series	H6779 Series	H6780 Series				
Ripple Noise *2 *4 (peak to peak) Max.		1.2		0.6		mV			
Settling Time *5		2		0.2		s			
Operating Ambient Temperature		+5 to +50		+5 to +45		°C			
Storage Temperature		-20 to +50					°C		
Weight		60	80	60	80		g		

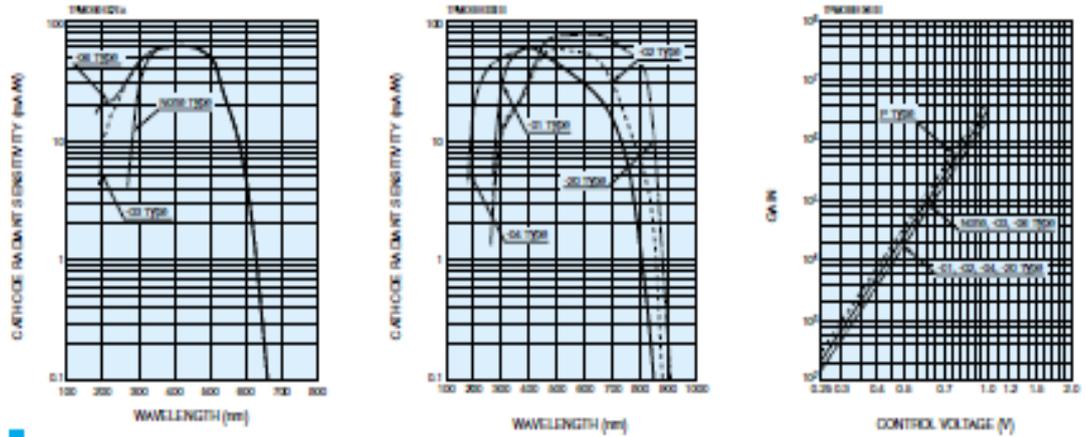
\*1: Measured at the peak sensitivity wavelength \*2: Control voltage = +0.8 V \*3: After 30 minute storage in darkness

\*4: Cable RG-174U, Cable length 450 mm, Load resistance = 1 MΩ, Load capacitance = 22 pF

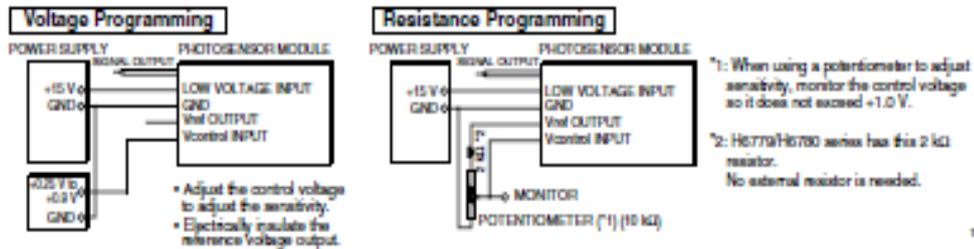
\*5: The time required for the output to reach a stable level following a change in the control voltage from +1.0 V to +0.5 V.

# Current Output Type Photosensor Modules

## Characteristics (Cathode radiant sensitivity, Gain)

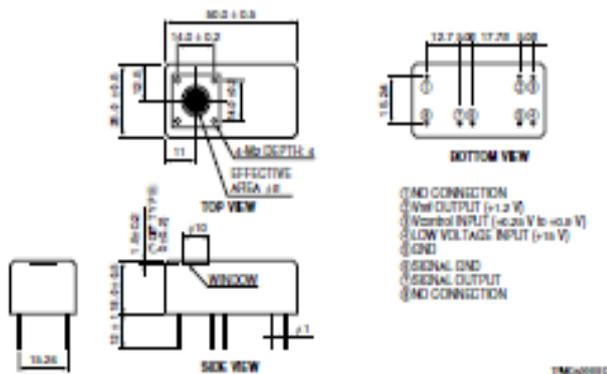


## Sensitivity Adjustment Method

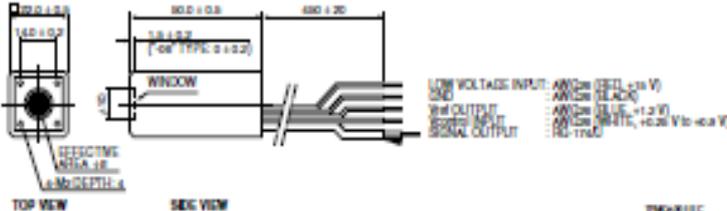


## Dimensional Outlines (Unit: mm)

### H5779/H5779 Series

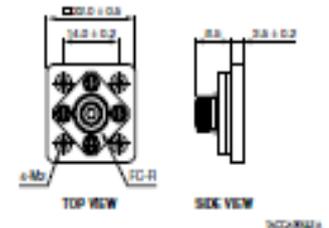


### H5783/H5780 Series

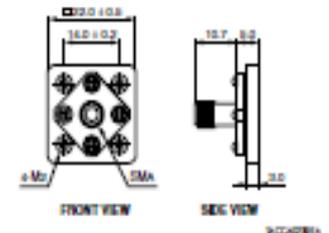


## Option (Optical Fiber Adaptor) (Unit: mm)

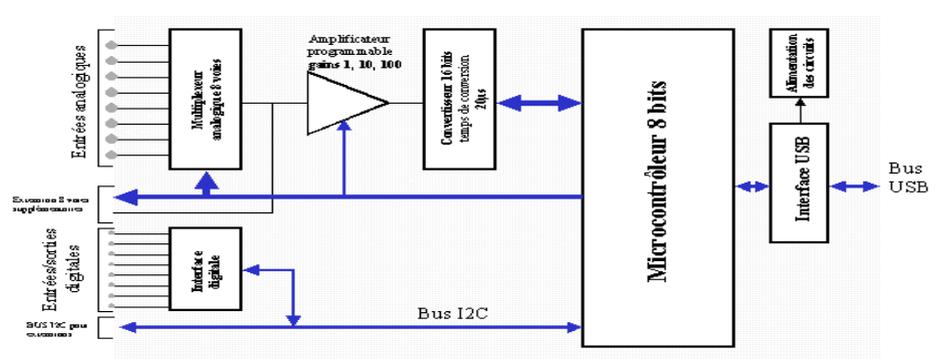
### E5776 (FC Type)



### E5776-51 (SMA Type)



## Fiche technique de la carte d'acquisition.

<b>Module d'acquisition sur bus USB "ACQUSB"</b>		
<b>Caractéristiques principales</b>		
<b>Entrées analogiques</b>		
8 voies d'entrées analogiques, extensible à 16.	Résolution: 16 bits (65536 points)	Période d'échantillonnage mini. 10ms (quelque-soit le nombre de voies utilisées)
Chaque entrée peut être utilisée en courant ou en tension (configuration par cavalier)	3 gammes programmables par logiciel: <ul style="list-style-type: none"> <li>tension : +/-5V ; +/-500mV ; +/-50mV</li> <li>courant : +/- 50mA ; +/- 5mA ; +/- 500µA</li> </ul>	
<b>Entrées et sorties digitales</b>		
8 voies utilisables en entrée ou en sortie	Niveaux logiques LV (3.3V)	Courant de sortie: <ul style="list-style-type: none"> <li>30µA à l'état 1</li> <li>&gt;10mA à l'état 0</li> </ul>
<b>Extensions possibles:</b>		
8 voies d'entrées analogiques supplémentaires.	Sorties analogiques.	Tout circuit utilisant le bus I2C.
<b>Compatibilité logicielle</b>		
Windows 98, Windows Me, Windows 2000.	LABVIEW	HPVEE
<b>Applications:</b>		
Mesures automatisées (températures, pressions, forces, déformations etc...).	Automatismes et contrôle de procédés industriels.	
Mesures biomédicales (ECG, respiration, température etc.)	Système d'acquisition portable.	
<b>Diagramme simplifié</b>		
		

## Fiche technique du pigment.

**Honeywell**

### Product Data Sheet 50000 Lumilux® effect green N

Europe : Phone : + 49 (5137) 999-525  
 Fax : + 49 (5137) 999-121  
 USA : Phone : + 1 (281) 298-6323  
 Fax : + 1 (281) 298-6393  
 Asia : Phone : + 65-6355-2828  
 Fax : + 65-6783-6054  
[www.honeywell.com/sites/milumilux/](http://www.honeywell.com/sites/milumilux/)

**Main use** Afterglow plastic sheets and paints for optical effects  
**Useable for** Solvent-based paints and inks, water-based paints, thermoplastics, thermosetting plastics, enamel, ceramics  
**Law / regulation** Permitted by the European norm EN 71-3: Safety of toys - Part 3: Migration of certain elements

#### Typical chemical properties

Composition	ZnS:Cu
Insoluble in	water, alkalis, organic solvents
Decomposition by	acids
pH-value of a waterbased slurry	min. 11

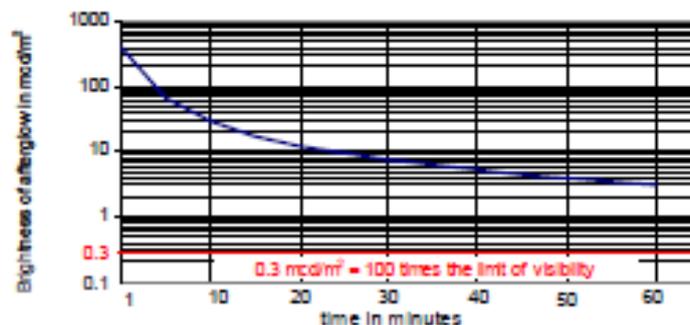
#### Typical physical properties

Appearance	yellow-green powder
Specific gravity	4.1 g/cm <sup>3</sup>
Particle size distribution	d <sub>50</sub> = 37 µm ± 3 µm as determined by micromeritics® Sedigraph 5100
Screen analysis	max. 1 % oversized particles on 125 µm testing screen

#### Typical luminescent properties

Excitation	white light, UV radiation
Color of fluorescence	green
Color of phosphorescence	green

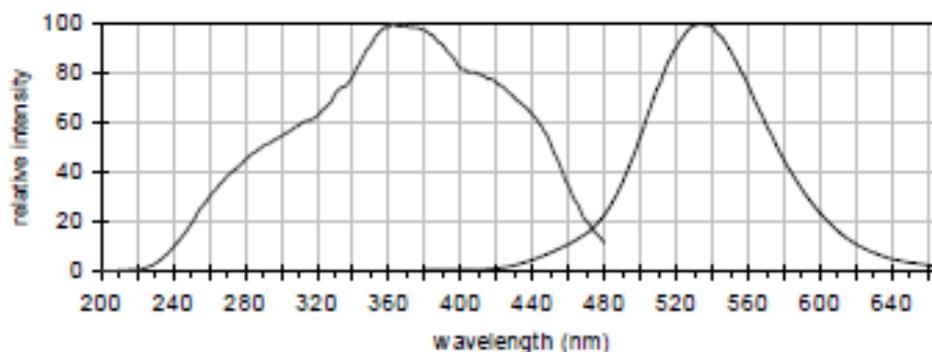
#### Typical decay curve



Typical intensity of afterglow according to the German norm DIN 87610-1: Photoluminescent pigments and products - Part 1: Measurement and marking at the producer

after 2 minutes	190 mcd/m <sup>2</sup>
after 5 minutes	66 mcd/m <sup>2</sup>
after 10 minutes	28 mcd/m <sup>2</sup>
after 30 minutes	7.3 mcd/m <sup>2</sup>
after 60 minutes	3.1 mcd/m <sup>2</sup>

#### Typical excitation (left) and phosphorescence (right) spectra



Lumilux® is a registered trademark of Honeywell International Inc.

Disclaimer: Although all statements and information in this Product Data Sheet are believed to be accurate and reliable, they are presented without guarantee or warranty of any kind, express or implied, and risks and liability for results obtained by use of the products or application of the suggestions described are assumed by the user. Statements or suggestions concerning possible use of the products are made without representation or warranty that any such use is free of patent infringement and are not recommendations to infringe any patent. The user should not assume that toxicity data and safety measures are indicated or that other measures may not be required. Further information concerning safe handling procedures can be obtained at <http://www.honeywell.com/sites/en/milumilux/> or by contacting Honeywell.

pds\_50000\_e

March 2006

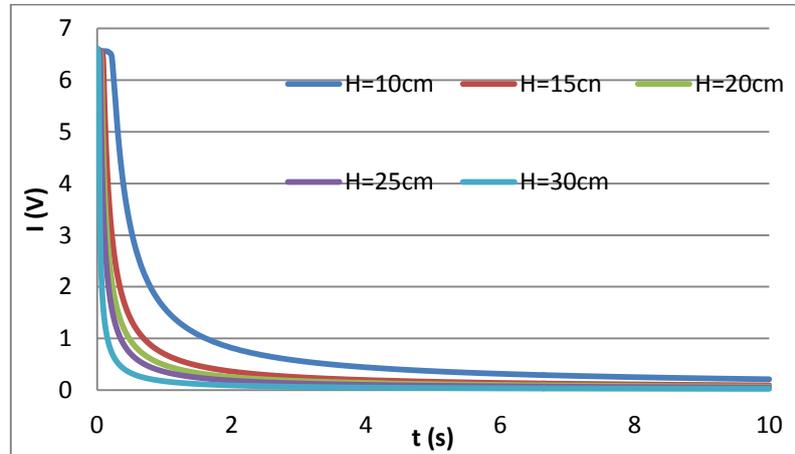
[www.honeywell.com](http://www.honeywell.com)

© 2006 Honeywell International Inc.

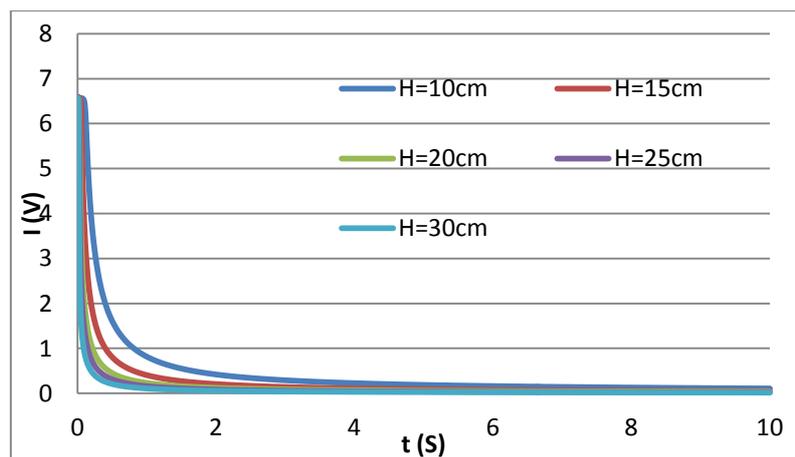
## 9. Annexe B. Exemples d'essais

### Décroissance lumineuse

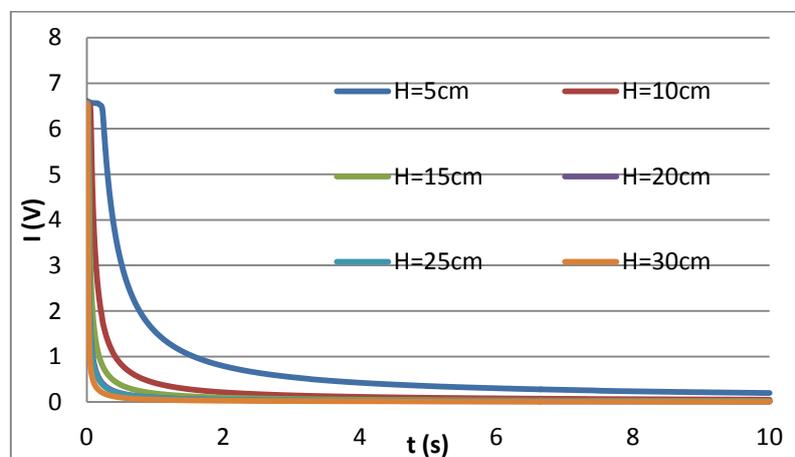
Gain 0.5V.



$r=4.3\text{cm}$

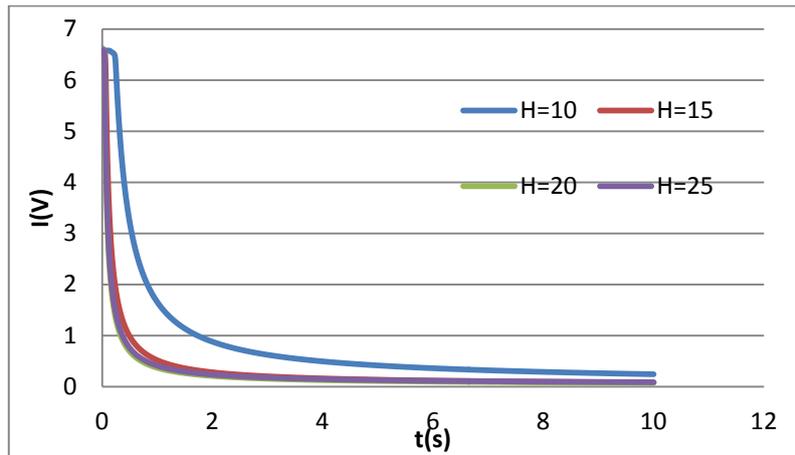


$r=2.7\text{cm}$



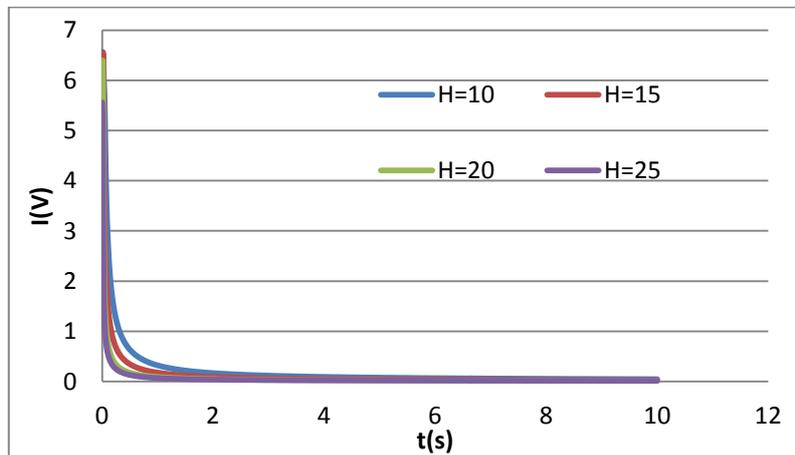
$r=1.5\text{cm}$

Gain 0.6V.



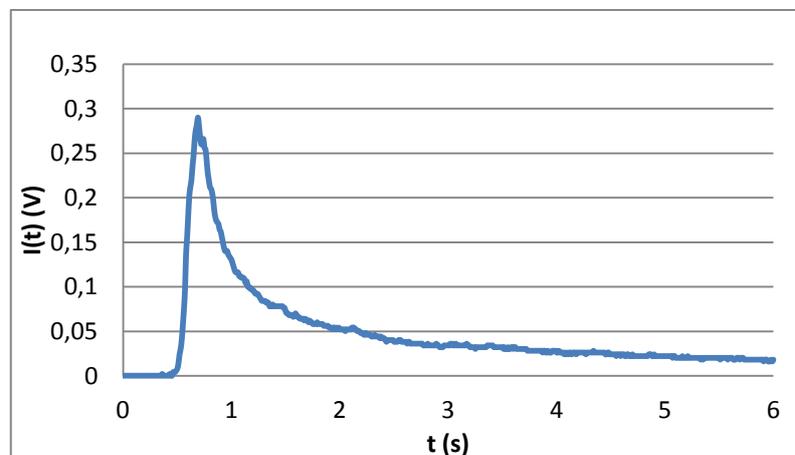
$r=1.5\text{cm}$

Gain 0.4V



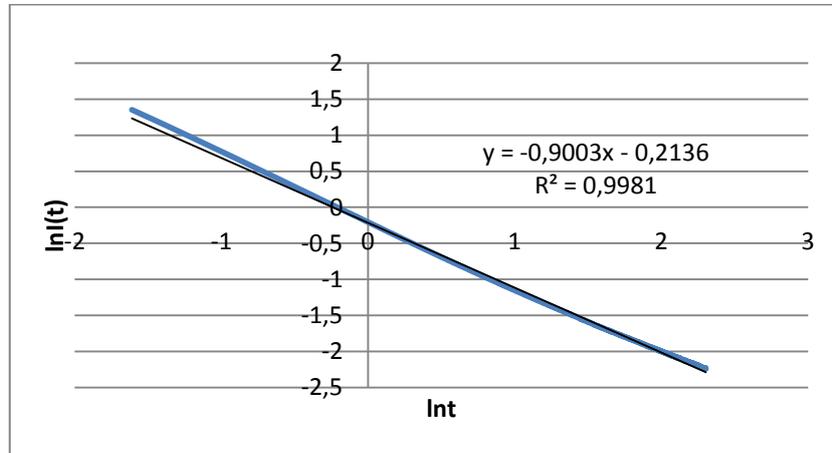
$r=4.5\text{cm}$

**DTS sur le réacteur (signal brut)**

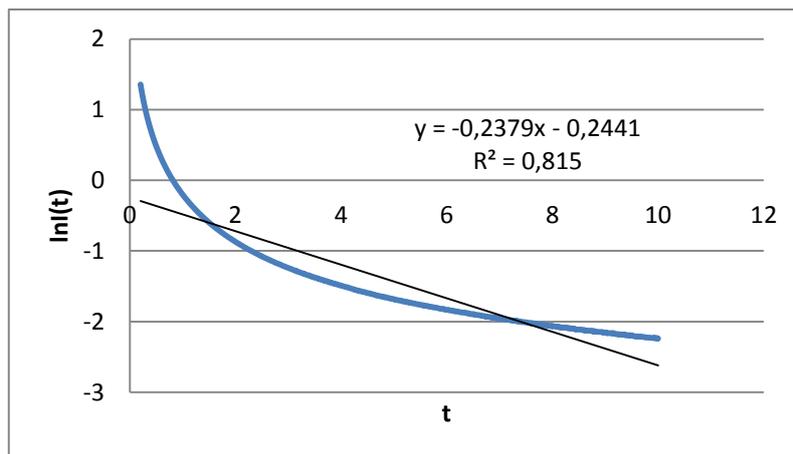


## Lois de décroissance lumineuse

Loi hyperbolique



Loi exponentielle



Loi parabolique

