



Université
de Toulouse

THÈSE

**En vue de l'obtention du
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

Délivré par :
Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité :
Hydrologie, Hydrochimie, Sols, Environnement

Présentée et soutenue par :
Cyprien Soulainé

le : mardi 23 octobre 2012

Titre :

Modélisation des écoulements dans les garnissages structurés : de l'échelle du pore à l'échelle de la colonne

Ecole doctorale :
Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)

Unité de recherche :
Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse

Directeur(s) de Thèse :
Michel Quintard, Directeur de Recherche, IMFT
Gérald Debenest, Maître de conférences, IMFT, co-directeur de thèse

Rapporteurs :
HuaiZhi Li, Professeur des Universités, ENSIC
Benoit Goyeau, Professeur des Universités, EM2C

Membre(s) du jury :
Véronique Roig, Professeur des Universités, IMFT (présidente du jury)
Didier Lasseux, Chargé de Recherche, I2M (examineur)
Guillaume Mougín, Ingénieur, Air Liquide (examineur)
Gérald Debenest, Maître de Conférences, IMFT (examineur)
Ludovic Raynal, Ingénieur, IFP Energies Nouvelles (invité)

Modélisation des écoulements dans les garnissages structurés :
de l'échelle du pore à l'échelle de la colonne

Cyprien Soullain

4 décembre 2012

Résumé

Une colonne de séparation d'air réalise un écoulement liquide-gaz à contre courant dans une structure complexe, le garnissage. Au sein de ce garnissage, l'écoulement du liquide est du type film drainé par gravité, alors que l'écoulement du gaz est turbulent. La fonction de ces contacteurs est de développer une surface d'échange interfaciale aussi grande que possible pour favoriser le transfert d'un composé chimique de la phase liquide vers la phase vapeur (et inversement) tout en offrant des pertes de charge raisonnables. Ces dispositifs sont constitués par l'assemblage de plaques métalliques ondulées, avec ou sans perforations, où deux plaques adjacentes sont respectivement inclinées d'un angle et son opposé par rapport à l'axe de la colonne. Ce type de contacteur peut être considéré comme un *milieu poreux bi-structuré* avec un taux de porosité élevé. Les écoulements peuvent être décrits à deux échelles : une échelle du pore et une échelle macroscopique. À cause de cette double structuration, la modélisation macroscopique des écoulements dans ce type de structure reste un problème difficile. En particulier, les mécanismes macroscopiques qui entraînent l'étalement d'un jet dans les garnissages sont incompris. Par ailleurs, une difficulté de modélisation supplémentaire est due aux effets liés à la turbulence.

Au cours de cette thèse, nous avons développé, à partir d'une méthode de changement d'échelle, un modèle complet pour simuler les écoulements et le transfert de matière dans les colonnes équipées de garnissages structurés. Notre étude se focalise sur les trois points suivants. Premièrement, nous avons obtenu, à l'aide d'une prise de moyenne volumique, une loi de Darcy-Forchheimer qui inclue les effets de la turbulence. Ensuite, pour modéliser la dispersion radiale du liquide dans la colonne, nous avons trouvé pratique de séparer la phase liquide en deux films distincts, qui s'écoulent sur chaque plaque ondulée selon des directions préférentielles différentes. Ces phases fictives ne sont pas indépendantes puisque de la matière peut passer de l'une à l'autre au niveau des points de contact entre les feuilles ondulées. Finalement, nous avons proposé un modèle macroscopique pour simuler le transport d'espèces chimiques dans un système diphasique, multiconstituants. Tous les paramètres effectifs qui apparaissent dans ce modèle sont évalués à partir de solutions analytiques ou numériques de l'écoulement à la petite échelle. Les résultats de simulation ont été comparés avec succès à des mesures expérimentales

obtenues en laboratoire ou sur pilote industriel.

Abstract

Structured packings play a large role in chemical engineering processes involving gas-liquid separation such as air distillation unit or CO_2 absorption columns. Such structures maximize the exchange surface between gas and liquid while pressure drops remain low enough. Generally, the columns are operated in the counter-current flow mode : a liquid gravity film is sheared by the turbulent flow of a gas phase. The packings are made of an assembly of corrugated sheets where two adjacent sheets are respectively inclined by an angle and the opposite of this angle from the vertical axis. We can apprehend such a device as a *bi-structured porous medium* with high porosity defining two scales of description : a pore-scale and a macro-scale assimilated to the packing scale. Due to this peculiar structured geometry, the flow modeling from a macroscopic point of view, remains a challenging problem that has to be overcome to design enhanced devices. In particular, the macroscopic phenomena that leads to the spreading of a liquid point source at the top of a packing are still unknown, and the classical two-phase flow models in porous media failed to properly catch the liquid distribution within the column. Moreover, turbulence effects lead to additional difficulties.

We developed a comprehensive mathematical model based on a multi-scale analysis to simulate gas-liquid flow through the distillation columns. We investigate three main points. First, we derived a Darcy-Forchheimer law that includes turbulence effects using the method of volume averaging. Then, to model the liquid spreading, we found convenient to split the liquid phase into two fictitious phases flowing along each sheet with a preferential direction. Moreover, these phases are not (except perhaps at very low saturation) completely independent since adjacent sheets are in contact and the liquid can flow from one sheet to the other. Finally, we proposed a macro-scale dispersion model to simulate two-phase, multicomponent transport in structured packing. All the effective properties that appear in this model are evaluated from either simulations or analytical solutions of the flow at the pore-scale. Simulation results have been successfully compared to laboratory-scale experiments and industrial-scale measurements.

Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans ce document ont été effectués à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse dans le Groupe d'Etude sur les Milieux Poreux et financés par le Centre de Recherche Claude-Delorme d'Air Liquide. Je tiens donc tout naturellement à remercier l'ensemble des personnes de ces deux organismes qui ont contribué à la réalisation de ce travail.

A la suite de mon diplôme d'ingénieur, j'ai débuté ma carrière professionnelle chez Air Liquide. Ma mission consistait alors à modéliser les procédés de séparation des gaz par adsorption. Ce fut ma première expérience (et non la dernière!) sur les milieux poreux. Une de mes tâches consistait à améliorer les modèles thermiques présents dans un des codes internes à la société. Au cours de l'étude bibliographique associée à ce travail, un nom revenait sans cesse : Michel Quintard. C'est donc tout naturellement vers lui que je me suis tourné lorsque j'ai émis le souhait d'approfondir mes connaissances en modélisation des milieux poreux par un doctorat. Michel, ça a été un véritable honneur de travailler avec toi. J'ai énormément apprécié la confiance avec laquelle tu m'as laissé mener à bien ce projet, les phases de réflexion sur la mise en place des modèles et plus généralement toutes les discussions que l'on a pu avoir. J'ai beaucoup appris au cours de ces trois années! Merci encore.

En tant que numéricien, on mésestime très (trop?) souvent les difficultés rencontrées lors de la mise en place des réalisations expérimentales (« la vraie vie »)... même les plus simples... en apparence... L'expérience « simple » qui a permis de confronter notre modèle avec la réalité n'aurait pu voir le jour sans la patience et le savoir-faire de Ruddy Soeparano. Ruddy, je m'en suis souvent voulu de t'avoir impliqué dans cette tâche parfois pénible, notamment lors des très longues phases de polissage. Merci encore d'avoir réalisé, avec autant de minutie, cette maquette qui, je l'espère, sera utile pour la suite de ce projet.

En parallèle de mes travaux, et dans le même laboratoire (groupe Interface) mais financée par IFP Energies Nouvelles, Manel Fourati, avec l'aide de Véronique Roig, a également effectué sa thèse sur l'étude et la modélisation des écoulements dans les garnissages structurés. Merci à vous deux pour les nombreuses discussions que l'on a pu avoir sur ce sujet. De nombreuses idées présentes dans ce manuscrit de thèse sont directement issues de ces échanges scientifiques.

Je tiens en particulier à vous remercier pour m'avoir transmis, avant leur publication, vos magnifiques images tomographiques qui m'ont permis d'illustrer avec succès le modèle diphasique que j'ai mis en place dans cette thèse.

Chez Air Liquide, l'avancée de cette thèse a été suivie périodiquement par Guillaume Mougin et Fabrice Mathey. J'ai beaucoup apprécié leur expertise sur la modélisation de la turbulence et les nombreuses discussions que l'on a eu à ce sujet. Plus largement, je tiens à saluer tous les collègues que j'ai eu la chance de côtoyer dans les groupes Modélisation et Séparation Physique des Gaz. En particulier, je tiens à remercier Pluton Pullumbi et Frédéric Belencontre pour m'avoir encouragé à me lancer dans l'aventure du doctorat ! Je serais véritablement passé à côté de quelque chose ! Je salue également Alexandre Naudin, Guillaume Rodrigues, Caroline Soleilhac, Christine Dervin, Catherine Fauconnier, Karine Bellucci, Thierry Désaleux, Grégory Ciapa, Nicolas Kahhali... Désolé pour tous ceux que je ne mentionne pas : il y a beaucoup de monde au CRCO ;-). C'est toujours un véritable plaisir de vous retrouver.

Je souhaite également adresser mes plus sincères remerciements à Huai-Zhi Li et Benoit Goyeau pour avoir rapporté sur ce travail, ainsi qu'à Véronique Roig, Didier Lasseux, Ludovic Raynal, Guillaume Mougin et Gérard Debenest pour avoir accepté de participer au jury de mes travaux de thèse. Merci pour le temps que vous avez consacré à la lecture de ce document et pour la discussion scientifique de qualité que nous avons eue à la suite de l'exposé de mes travaux.

Le remerciement suivant peut paraître inhabituel, mais il me tient à cœur. Une des contraintes de cette thèse a été l'utilisation de la plateforme numérique OpenFOAM pour développer mes différents modèles mathématiques. Ce code de calcul, qui est devenu mon cheval de bataille pendant ces trois années de thèse et qui m'a permis de nombreuses collaborations, a le fâcheux inconvénient d'être très peu documenté. Son appropriation n'aurait pu être possible sans tous les membres de la communauté OpenFOAM qui m'ont aidé de près ou de loin lors de la phase d'apprentissage parfois laborieuse ! Merci à vous tous ! Parmi ces collaborations, je tiens à remercier Laurent Orgogozo, Florent Hénon et leur *richardFoam*, ainsi que Hervé Allain et ses problématiques superfluides ! C'est toujours un plaisir de travailler avec vous.

Ma découverte du monde merveilleux du changement d'échelle, au début de cette thèse, a été grandement facilitée grâce à l'aide de Yohan Davit, alors doctorant au GEMP. Yohan, j'ai beaucoup aimé la persévérance dont tu sais faire preuve, même si quelques fois ta stratégie est de tirer dans tous les coins pour atteindre ta cible ! (Je me demande toujours où tu as été chercher ton idée farfelue avec les déterminants et les comatrices !;-)). Je me souviens avec beaucoup de nostalgie de nos discussions passionnées sur les « m point » et les « pi étoile », discussions qui nous poursuivaient jusque dans les cavités les plus profondes de nos sorties spéléo. La mise en place de notre théorie sur nos fameux milieux bi-structurés a été bien longue, et je ne sais pas si j'aurai trouvé la clé du changement d'échelle sans ta persévérance ! J'espère

qu'on parlera encore de ce « concept novateur » pendant de nombreuses années !

Ces trois années de thèse ont également été l'occasion de découvrir un autre monde merveilleux, celui de la spéléo. Un grand merci à Michel et Brigitte Quintard pour nous accueillir si souvent à Combelasais et pour m'avoir initié à ces aventures souterraines. Un grand merci également à toute la « Quintard's team » (Stéphanie Véran-Tisseoires, Yohan Davit, Arnaud Pujol, Alexandre et Milène Lapene, Damien Chenu, Guilhem Quintard) qui font de ces « week-end spéléo » des évènements si attendus !

Pour continuer, je tiens à remercier tous mes camarades du GEMP pour leur présence quotidienne, les débats animés de la pause café et leur bonne humeur en générale ! Sophie Roman, Arnaud Pujol, Alexandre Lapene, Gérald Debenest, Suzy Bernard, Ruddy Soeparo, HaiShan Luo, Yohan Davit, Yohann Le Gac, Laurent Libert, Stéphanie Véran-Tissoires, Hossein Davarzani, Florent Hénon, Pierre Horgue, Paul Sapin, Philippe Lefort, Laetitia Mottet, Benjamin Straubhaar, Samuel Corman, Ninon Moura, Mauricio Duenas Velasco, merci à vous !

Bien que étant également du GEMP, je ne pourrais terminer cette page sans une mention spéciale pour Sophie. Merci pour ta présence quotidienne, pour les nombreuses relectures et avis qui ont permis d'améliorer la qualité de ce manuscrit. Merci à toi !

Pour finir je tiens à remercier tous mes amis, ma famille, mes parents et ma sœur pour m'avoir suivi et soutenu depuis toutes ces années !

Table des matières

Résumé	iii
Abstract	v
Remerciements	vii
Introduction	1
1 Distillation de l'air et garnissages structurés	5
1.1 Les procédés de séparation par voie cryogénique	5
1.1.1 Généralité sur le procédé de distillation de l'air	6
1.1.2 Les garnissages structurés	8
1.1.3 Problématiques et enjeux de la modélisation	9
1.2 Etat de l'art de la modélisation des garnissages structurés	10
1.2.1 Calcul de perte de charge	10
1.2.2 Epaisseur de film et instabilité du film	14
1.2.3 Les modèles macroscopiques d'écoulement dans les garnissages	15
1.2.4 Modélisation du transfert de matière	17
1.3 Objectifs et organisation de la thèse	18
1.3.1 Programme de recherche	18
1.3.2 Choix de la plateforme de calcul	19
2 Outils mathématiques de changement d'échelle pour les milieux poreux	21
2.1 Description microscopique / macroscopique	21
2.2 Les méthodes de changement d'échelle	24
2.3 Notion de moyenne et premières définitions	24
2.3.1 Volume Élémentaire Représentatif, repère local et repère global	24
2.3.2 Fractions volumiques, porosité et saturations	25
2.3.3 Définitions des moyennes	26
2.4 Théorèmes de changement d'échelle	27

2.4.1	Cas d'un écoulement monophasique	27
2.4.2	Cas d'un écoulement diphasique	28
2.4.3	Décomposition en déviations	30
2.5	La méthode de prise de moyenne volumique	31
3	Modèle d'écoulement turbulent dans les garnissages structurés	35
3.1	Introduction	38
3.2	Pore-scale problem	40
3.3	Volume averaging	42
3.3.1	Continuity equation	44
3.3.2	Momentum conservation	45
3.4	Mathematical problem governing the deviations	46
3.4.1	Continuity equation	47
3.4.2	Momentum equation	47
3.4.3	Boundary conditions	49
3.4.4	Deviation representations	49
3.5	Closure problem	50
3.6	Closed form of the averaged momentum equation	51
3.7	Validation of the approach	53
3.7.1	Principle of the validation	53
3.7.2	Turbulent flow through a straight tube	54
3.7.3	Turbulent flow through a simple array of beads	56
3.8	Application to structured packings	58
3.8.1	Calculation of the intrinsic permeability	60
3.8.2	Laminar simulations	60
3.8.3	Turbulent simulations	63
3.9	Conclusions and perspectives	66
4	Modélisation de l'écoulement gaz-liquide dans les contacteurs par une approche à deux liquides	67
4.1	Généralité sur les écoulements diphasiques en milieu poreux	68
4.1.1	Modèle à l'échelle du pore	68
4.1.2	Modèle de Darcy généralisé	68
4.1.3	Modèle de Darcy généralisé avec termes de couplage	70
4.1.4	Pression capillaire	71
4.1.5	Extension au régime inertiel	72
4.1.6	Autres modèles d'écoulement diphasique en milieu poreux	73
4.1.7	Quelques régimes d'écoulements polyphasiques en milieu poreux	73
4.2	Pourquoi séparer la phase liquide en deux phases fictives ?	75

4.3	Modèle mathématique de l'écoulement à l'échelle de la colonne	79
4.3.1	Equations de conservation de la masse	79
4.3.2	Etude préliminaire et discussion concernant le terme d'échange entre les pseudo-phases liquides	80
4.3.3	Equations de quantité de mouvement	84
4.4	Caractérisation de l'écoulement à grande échelle	85
4.4.1	Calcul des perméabilités liquides par analogie avec un écoulement sur plan incliné	85
4.4.2	Calcul de la perméabilité diphasique de la phase gazeuse	88
4.5	Résolution numérique du modèle diphasique à 2 liquides	89
4.5.1	Equation en pression	89
4.5.2	Equations en saturation	90
4.5.3	Condition de stabilité	91
4.6	Comparaisons entre le modèle numérique et des résultats expérimentaux	92
4.6.1	Expérience n°1 : Ecoulement film entre deux plaques ondulées adjacentes	92
4.6.2	Expérience n°2 : Comparaison de la distribution liquide obtenue par simulation et par tomographie en situation quasi-industrielle (Fourati et al. (2012))	95
4.7	Conclusions	100
5	Modèle de transport multiconstituant dans les contacteurs gaz-liquide	103
5.1	Introduction	105
5.2	Pore scale problem	108
5.3	Volume averaging	110
5.3.1	Total mass balance equations	112
5.3.2	Species mass balance equation	113
5.4	Closure	114
5.4.1	Differential equation for the concentration deviations	115
5.4.2	Closure problems	116
5.4.3	Simplified closure problems	122
5.5	Closed form of the averaged equations	125
5.6	Closed form of the mass rate of evaporation	126
5.7	Discussion	127
5.8	Application to a two-phase film flow	128
5.8.1	Analytical solutions of the closure problems	128
5.8.2	Numerical validation	131
5.9	Conclusion	134
	Conclusion et perspectives	137

A	Écoulement dans les milieux poreux bi-structurés saturés	153
A.1	Introduction	155
A.2	Preliminaries	157
A.2.1	Pore-scale problem	157
A.2.2	Phase splitting	158
A.2.3	Definitions and theorems	159
A.2.4	Slightly compressible approximation and thermodynamics	161
A.3	One-pressure model (Darcy's law)	162
A.3.1	Volume averaging	163
A.3.2	Deviations	164
A.3.3	Macroscale equations	165
A.4	Two-pressure model	166
A.4.1	Volume averaging	166
A.4.2	Deviations	167
A.4.3	Equations for the closure variables	169
A.4.4	Macroscale models	173
A.5	Validation against direct numerical simulations for a simplified particle filter	176
A.5.1	Microscale geometry and models	176
A.5.2	Effective properties, macroscale geometry and models	178
A.5.3	Results for the incompressible flow	178
A.5.4	Results for the slightly compressible flow	179
A.6	Conclusion	179
.1	Simplifications of closure problems : one-pressure model	182
.2	Simplifications of closure problems : two-pressure model	184
.2.1	Mapping onto $\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta$ and $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$	184
.2.2	Mapping onto $\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma$	186

Introduction

Au milieu du 18^e siècle, lors de la publication de l'Encyclopédie de Diderot et d'Alembert, nous pouvions lire à la page de la définition de l'*Air*, les commentaires suivants : *"Quant à la nature et la substance de l'air, nous n'en savons que bien peu de choses, ce que les Auteurs en ont dit jusqu'à présent n'étant que de pures conjonctures. Il n'y a pas moyen d'examiner l'air seul et épuré de toutes les matières qui y sont mêlées"* (Diderot and d'Alembert (1751)). Quelques temps plus tard, avec les découvertes d'Antoine Laurent de Lavoisier, la constitution de l'air est bien connue (l'air sec est approximativement composé de 78,08 % d'azote, 20,98 % d'oxygène, 0,93 % d'argon, 0,038 % de dioxyde de carbone, les autres gaz rares tels l'hélium, le xénon, le néon ou le krypton étant présents sous forme de trace) et des méthodes pour séparer les différents constituants d'un mélange gazeux ont vu le jour. D'ailleurs, depuis le début de l'ère industrielle dont ils ont été un des acteurs essentiels, ces différents composés gazeux sont des denrées très appréciées par nos sociétés modernes qu'elles consomment en très grande quantité. Leurs applications sont multiples. Ainsi, l'azote est utilisé comme gaz inerte pour protéger et préserver les aliments. Il est d'ailleurs le fluide cryogénique le plus utilisé pour refroidir, congeler ou stocker des produits alimentaires. En électronique, il permet également de supprimer l'oxygène afin de diminuer l'oxydation. L'oxygène est quant-à-lui utilisé pour améliorer le rendement d'un grand nombre de procédés pétrochimiques. Associé à l'acétylène, il permet de décupler les propriétés des flammes des chalumeaux et des brûleurs. Dans le domaine de la santé, il sert entre autre pour traiter les insuffisances respiratoires. Enfin, l'argon est recherché pour ses propriétés de gaz inerte où il peut remplacer l'azote dans la plupart des applications sous atmosphère contrôlée, en agro-alimentaire ou dans les procédés de fabrication des semi-conducteurs. Il est aussi utilisé pour ses capacités d'isolation thermique qui sont mises à profit pour la conception des fenêtres à double vitrage. Au début du 21^e siècle, 150 millions de tonnes d'azote, 100 millions de tonnes d'oxygène et 700000 tonnes d'argon sont produits chaque année.

Pour répondre à cette demande sans cesse croissante, de nombreux procédés ont émergé. A l'heure actuelle, cependant, la séparation des gaz de l'air par voie cryogénique est la seule technologie disponible pour produire de gros volumes d'azote et d'oxygène. Cette technologie,

utilisée depuis plus de cent ans, ne cesse de s'améliorer pour s'adapter aux besoins des marchés en croissance, tels que les marchés de transformation du charbon en produits chimiques ou en énergie et le captage du CO_2 . Aujourd'hui, les capacités de production peuvent aller jusqu'à plus de 40 000 tonnes par jour. Ce procédé de séparation gaz-liquide fait intervenir la circulation à contre-courant d'une phase liquide et d'une phase vapeur à l'intérieur de contacteurs. Une des grosses avancées technologiques a été le remplacement progressif des plateaux qui équipaient ces colonnes de distillation par des garnissages structurés. La fonction de ces contacteurs est de développer une surface d'échange interfaciale aussi grande que possible pour favoriser le transfert d'un composé chimique de la phase liquide vers la phase vapeur, et inversement. Ces contacteurs ont également l'avantage de réduire les pertes de charge des colonnes. Ils présentent cependant certains inconvénients, comme une mauvaise distribution de la phase liquide ou des phénomènes d'engorgement dont la dynamique exacte est encore à l'étude. Ces phénomènes font chuter drastiquement les rendements des unités de production. Un outil de simulation numérique pertinent, résultant d'une analyse fine de la physique mise en jeu, permettrait donc de concevoir des contacteurs plus performants tout en limitant les recours systématiques à l'expérience.

Plusieurs échelles de description existent pour modéliser ces dispositifs assimilés à un milieu poreux : une échelle locale, dont la physique est résolue de façon très détaillée et donc restreinte à de très petits volumes, et une échelle macroscopique décrite par des approches moyennées permettant de simuler l'écoulement dans l'intégralité de la colonne. En principe, un lien devrait exister entre ces diverses modélisations. Cette thèse a pour objectifs d'établir les bases théoriques d'une modélisation milieux poreux appliquée à l'écoulement et à l'échange de matière dans un garnissage structuré. Si de nombreux éléments de modélisation sont déjà présents dans la littérature, les obstacles restent cependant nombreux : Comment modéliser la turbulence dans les milieux poreux ? Comment capturer l'étalement d'un jet liquide dans un pack de garnissage structuré d'un point de vue macroscopique ? Quels modèles peut-on utiliser pour simuler le transport de composés chimiques dans les colonnes de distillation ? Surtout, comment évaluer les propriétés effectives de tous ces modèles macroscopiques à partir de simulations précises de l'écoulement sur un volume élémentaire représentatif de l'ensemble de la colonne ?

Le document présenté ici est le fruit d'une collaboration entre le Groupe d'Etude sur les Milieux Poreux de l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse et le centre de recherche d'Air Liquide pour tenter de répondre à cette problématique. Il est organisé en 5 parties. Dans le Chapitre 1, nous présentons le procédé de séparation des gaz de l'air par distillation, les garnissages structurés qui équipent les colonnes et un état de l'art de la modélisation des écoulements dans ce type de structure. Dans le Chapitre 2, nous exposons les outils mathématiques de changement d'échelle que nous utiliserons pour créer les modèles macroscopiques simulant

l'écoulement au sein de ces contacteurs. Le Chapitre 3 est consacré à la théorie que nous avons développée pour simuler les écoulements turbulents dans les milieux poreux, théorie que nous appliquons ensuite à l'étude des garnissages structurés. Dans le Chapitre 4 nous présentons une approche originale basée sur la théorie des milieux poreux bi-structurés saturés (présentée quant-à-elle en Annexe A) pour simuler l'écoulement diphasique dans les colonnes de distillation. Enfin, dans le Chapitre 5, nous construisons un modèle macroscopique pour le transport d'espèces dans ce type de procédé.

Chapitre 1

Distillation de l'air et garnissages structurés

Plus de 95% de la production d'oxygène est effectuée par voie cryogénique à partir de la liquéfaction puis de la distillation de l'air. Ce procédé, utilisé depuis plus d'un siècle pour satisfaire les demandes croissantes en gaz purs, a connu de nombreuses améliorations lui permettant ainsi de réduire sa consommation énergétique et d'augmenter ses capacités de production. L'une d'elles est l'utilisation de garnissages structurés pour remplacer les plateaux équipant les colonnes de distillation. Dans ce chapitre, nous présentons le fonctionnement général d'une unité de séparation de l'air par voie cryogénique, les garnissages structurés et les problématiques qui leur sont associées, ainsi qu'un état de l'art de la modélisation des écoulements dans ce type de structure. Enfin, nous introduisons les objectifs de la présente thèse et les outils numériques que nous avons utilisés.

1.1 Les procédés de séparation par voie cryogénique

L'oxygène et l'azote ont des températures d'ébullition différentes : l'azote est plus volatil car il bout à $-195,8\text{ }^{\circ}\text{C}$ alors que la température d'ébullition de l'oxygène est de $-182,9\text{ }^{\circ}\text{C}$ (valeur à la pression atmosphérique). A partir de ces différences thermodynamiques, Carl von Linde d'un côté et Georges Claude de l'autre ont imaginé et commercialisé, au tout début du 20^e siècle des procédés pour produire de l'azote et de l'oxygène purs à partir d'air préalablement liquéfié (Baillot (2010)). Si elles n'ont cessé de se moderniser depuis ces cent dernières années, les étapes de base du procédé restent sensiblement les mêmes. Nous les décrivons dans le paragraphe suivant, puis nous présenterons une des innovations dans le domaine, *i.e.*, les contacteurs sous forme de garnissages structurés qui sont le sujet principal de notre étude.

1.1.1 Généralité sur le procédé de distillation de l'air

Le schéma de fonctionnement général d'une unité de séparation des gaz de l'air par voie cryogénique (souvent nommée ASU pour *Air Separation Unit*) et une photographie d'un site industriel sont respectivement présentés aux Figs. 1.1 et 1.2.

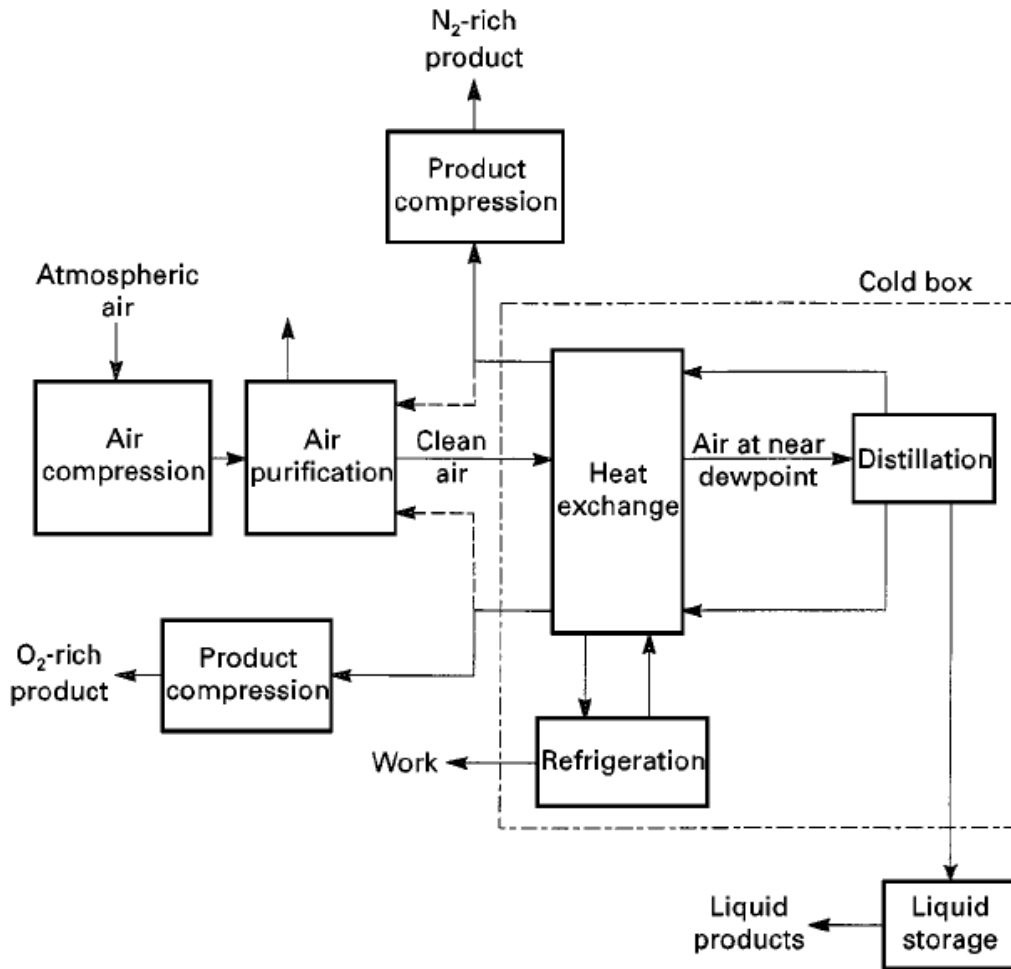


FIGURE 1.1: Schéma de fonctionnement d'une unité de séparation des gaz de l'air par voie cryogénique. Le procédé de séparation suit plusieurs étapes : (i) L'air ambiant est récupéré, comprimé puis mis à la température ambiante ; (ii) Il est ensuite lavé de ses impuretés via une étape de purification ; (iii) Il est refroidi à une température proche de son point de rosée puis envoyé dans le système de distillation où il est condensé puis chauffé. Deux phases sont alors en présence : une vapeur ascendante enrichie en azote et un liquide s'écoulant par gravité enrichi en oxygène ; (iv) Les composés séparés sont alors distribués ou stockés à l'état liquéfié. Schéma issu de Agrawal and Herron (2000)

L'air ambiant est tout d'abord récupéré, mis sous pression à l'aide d'un compresseur puis refroidi jusqu'à une température proche de celle de l'air ambiant. Compte tenu des températures d'ébullition de l'oxygène et de l'azote, il est clair que l'air doit être refroidi à des températures



FIGURE 1.2: Photographie d'une unité de séparation de l'air. On reconnaît en bas à gauche les compresseurs, en bas à gauche les cuves de stockage des gaz liquéfiés, au milieu les colonnes de distillation ainsi que le système de purification.

extrêmement basses avant qu'il puisse être distillé. Cependant, oxygène, azote et argon ne sont pas les seuls constituants de l'air. En effet, il contient de nombreuses impuretés comme du dioxyde de carbone, des hydrocarbures (acétylène, méthane, éthylène, éthane...), des sulfures ou encore du monoxyde de carbone. Par ailleurs, après l'étape de compression, l'air est saturé en humidité. A ces températures cryogéniques, ces nombreuses impuretés gèleraient et détérioreraient les installations. L'air compressé est alors purifié via des technologies de séparation des gaz par adsorption (technologie PSA, TSA, VPSA...). Il est alors lavé d'une grande partie des impuretés, notamment de l'eau, du dioxyde de carbone, de l'acétylène et des sulfures.

L'air propre et compressé est ensuite refroidi jusqu'à une température proche de son point de rosée grâce à un échangeur de chaleur avant d'être envoyé vers la colonne de distillation. Il est alors condensé puis distillé, générant ainsi une phase vapeur ascendante enrichie en azote et une phase liquide enrichie en oxygène s'écoulant par gravité vers le bas de la colonne. Ces dernières sont ensuite récupérées puis réchauffées jusqu'à la température ambiante. Par souci d'efficacité énergétique, cette étape du processus est réalisée conjointement avec le refroidissement de l'air de la première étape, les échanges de chaleur s'effectuant à contre-courant. Ces produits peuvent également être stockés sous forme liquide directement en sortie de la colonne de distillation.

Les premiers systèmes de séparation des gaz de l'air utilisaient une seule colonne de distillation. Si ces dernières permettaient d'obtenir de l'oxygène à très hauts degrés de pureté, le rendement et l'efficacité énergétique restaient cependant très faibles. L'invention de la double

colonne de distillation et son déploiement dès 1910 par Carl von Linde a révolutionné l'industrie chimique. A l'heure actuelle, elle est toujours la solution privilégiée pour les unités de séparation cryogéniques modernes. Si le principe général de la distillation a peu changé en près d'un siècle, il n'en est pas de même pour l'intérieur des colonnes qui, quant à lui, a été et continue d'être la source de nombreuses innovations technologiques.

1.1.2 Les garnissages structurés

Jusque dans les années 1980, pratiquement toutes les distillations de l'air étaient réalisées à l'aide de colonnes contenant des plateaux. Les colonnes pouvaient alors être équipées d'une centaine de plateaux espacés de quelques cm , ce qui entraîne en conséquence d'importantes pertes de charge. Depuis, ils ont été remplacé par des garnissages. Leur objectif est de produire une surface de contact aussi grande que possible pour améliorer l'échange entre la phase gazeuse et la phase liquide. Ils sont de formes variables et peuvent-être classés en deux grandes familles : les garnissages en vrac (comme les anneaux Raschig, les anneaux Pall ou les selles de Berl) ou les garnissages structurés (comme les Mellapak de Sulzer ou les Montz-Pak). Ces contacteurs ont l'avantage de générer moins de pertes de charge. Il existe ainsi un facteur allant de 5 à 10 entre les pertes de charge dans une colonne équipée de garnissages structurés par rapport à une colonne contenant des plateaux (Agrawal and Herron (2000)).

Dans ce travail de thèse, nous nous sommes focalisés sur l'étude des garnissages structurés, bien que les approches et outils que nous avons développés peuvent facilement être adaptés à d'autres types de contacteurs. Ces dispositifs sont constitués par l'assemblage de plaques métalliques ondulées avec ou sans perforations, où deux plaques adjacentes sont respectivement inclinées d'un certain angle θ par rapport à l'axe vertical pour l'une et de l'opposé de cet angle pour l'autre. En pratique, cet angle d'inclinaison est souvent de 45° ou de 30° . Ces assemblages sont mis sous la forme de packs cylindriques dont le diamètre est égal à celui de la colonne et dont la hauteur est, d'après Roustan (2004), comprise entre 0,15 et 0,30 m (voir Fig. 1.3). Les packs sont empilés dans la colonne, chaque pack étant tourné d'un angle de rotation (le plus souvent 90°) par rapport à l'axe de la colonne (voir la coupe de la colonne de la Fig. 1.3). Cette disposition assure ainsi une meilleure distribution du liquide.

Les garnissages structurés sont assimilés à des matériaux avec un très haut taux de vide (plus de 95%) qui possèdent une surface spécifique, *i.e.*, la surface par unité de volume, allant de 125 à 500 m^2m^{-3} . Cette dernière information quantifie la surface d'échange entre le gaz et le liquide. Schématiquement ils peuvent être vus comme la jonction de canaux inclinés d'un angle θ par rapport à l'axe de la colonne pour les uns et d'un angle $-\theta$ pour les autres (cf Fig. 1.3). Par cette double structuration, ce type de contacteur appartient à la catégorie des milieux poreux *bi-structuré* (voir l'Annexe A pour la théorie de l'écoulement dans ce type de

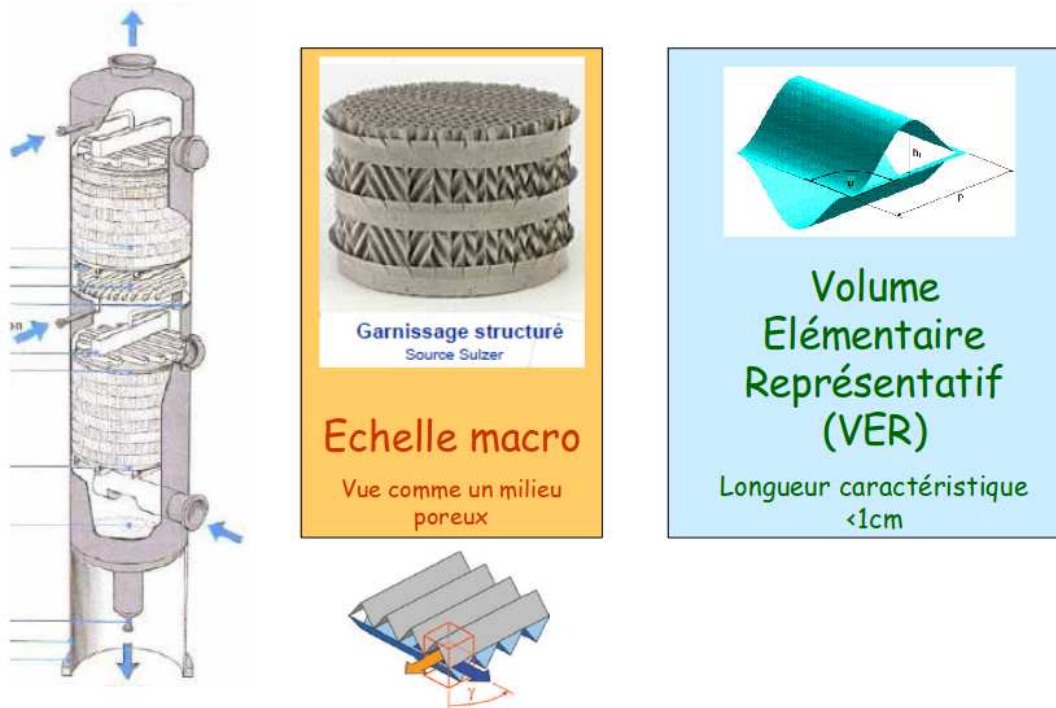


FIGURE 1.3: Colonne de distillation munie de garnissage structuré. (i) A gauche, il s'agit d'une coupe de colonne avec ses entrées et ses sorties. On remarque plusieurs tronçon empilés les uns sur les autres. On note également la présence de redistributeur en haut et au milieu. (source : les techniques de l'ingénieur). (ii) Exemple d'un pack de garnissage structuré fabriqué par l'empilement de plaques métalliques ondulées (source : Sulzer). (iii) Motif élémentaire du garnissage. Il s'agit du croisement de deux canaux appartenant chacun à une plaque ondulée. Ce volume est représenté des millions de fois sur l'ensemble de la colonne.

milieu). La géométrie particulière de ces garnissages génère une anisotropie de l'écoulement à grande échelle et nécessite des modélisations particulières.

1.1.3 Problématiques et enjeux de la modélisation

Spiegel and Meier (2003) et Olujić et al. (2009) ont listé les différentes voies à suivre pendant les prochaines décennies pour améliorer les procédés de distillation. Parmi les nombreux points énumérés, la modélisation numérique de l'écoulement dans les colonnes occupe une place de choix. Les défis scientifiques pour caractériser ce système de manière fiable sont multiples. Tout d'abord, un facteur d'échelle important existe entre les dimensions caractéristiques de l'unité de production et celles des structures locales de l'écoulement qui pilotent le transfert. La géométrie des contacteurs guident les écoulements selon des directions préférentielles et introduisent ainsi une anisotropie des propriétés macroscopiques. Les écoulements sont diphasiques et subissent des comportements très différents selon le régime d'écoulement, avec des effets de saturation distribués de manière hétérogène dans l'espace. La turbulence et le

transfert de matière apportent également leur part de difficulté. L'application d'un formalisme de type milieux poreux à ce type de procédé permettrait de représenter des effets macroscopiques tels que la distribution liquide dans le système ou les instabilités de grande échelle. Ces effets représentent des paramètres clés de la performance d'un appareil de séparation et sont inaccessibles par une simulation directe des équations à l'échelle du pore, qui représente dans ce contexte le motif élémentaire du contacteur.

1.2 Etat de l'art de la modélisation des garnissages structurés

L'objectif ultime, *i.e.*, simuler l'écoulement diphasique dans les garnissages structurés où une phase gazeuse cisaille à contre-courant un film drainé par gravité est loin d'avoir reçu des réponses théoriques satisfaisantes. Depuis leur mise en fonctionnement, les tentatives pour modéliser l'écoulement dans les colonnes de séparation contenant des garnissages structurés sont nombreuses et variées. En effet, ces dispositifs, vus comme des milieux poreux, peuvent être décrits à deux échelles différentes : l'échelle du pore où la géométrie du garnissage est finement représentée et l'échelle de la colonne où l'écoulement résulte d'une description moyennée. Bien que formulée différemment, la physique à ces deux échelles de description communique : les modèles de la grosse échelle peuvent être alimentés par ceux de l'échelle du pore. Des stratégies d'analyse en cascade d'échelle ont alors émergées. La Fig. 1.4 représente la stratégie multi-échelle imaginée par Raynal and Royon-Lebeaud (2007).

Nous proposons dans cette partie une revue non-exhaustive des modélisations réalisées à ces différentes échelles pour simuler les écoulements dans les colonnes équipées de garnissage.

1.2.1 Calcul de perte de charge

Les pertes de charge dans les colonnes de distillation contenant des garnissages structurés, données essentielles pour le fonctionnement et l'optimisation des dispositifs utilisant ce type de contacteurs, ont reçu beaucoup d'attention dans la littérature du génie des procédés. Dans les premières approches, les pertes de charge de l'écoulement gazeux sur l'ensemble de la colonne, souvent qualifiées de pertes de charge sèches par opposition aux pertes de charge en régime diphasique, sont corrélées selon des lois d'écoulements inertiels dans les milieux poreux de type Darcy-Forchheimer. Ces lois relient la perte de charge dans la colonne de séparation au débit moyen en suivant des relations polynomiales. Les coefficients qui apparaissent dans ces relations, également appelés coefficients d'Ergun, ainsi que les lois en puissances sont ajustés empiriquement à partir de résultats obtenus à la fois en laboratoire et sur sites industriels (Bravo et al. (1986); Stichlmair et al. (1989); Rocha et al. (1993); Billet and Schultes (1999)). Ils dépendent de la géométrie des garnissages, et notamment du volume de l'espace poral. En régime

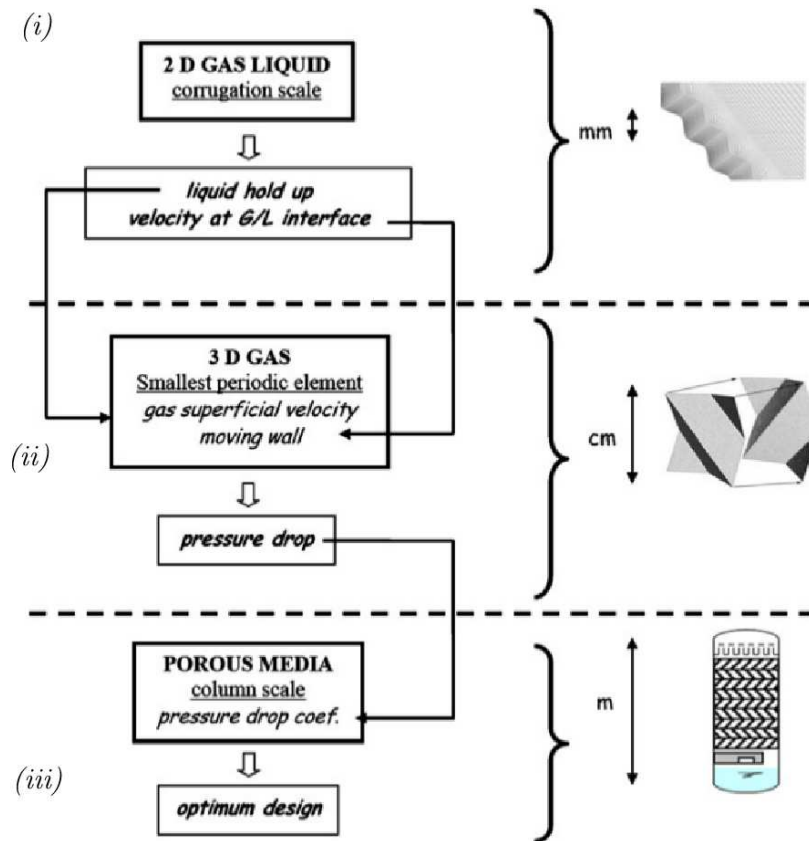


FIGURE 1.4: Stratégie multi-échelles proposée par Raynal and Royon-Lebeaud (2007). (i) Une première simulation diphasique 2D permet d'évaluer l'épaisseur du film liquide le long d'une paroi ondulée et donc le taux de présence de liquide dans un VER. (ii) Dans une seconde étape, la perte de charge sèche dans la colonne est obtenue à partir d'un calcul 3D turbulent sur un VER. La perte de charge irriguée est déduite en pondérant le résultat par le taux de liquide dans le VER. (iii) Enfin, l'écoulement est simulé dans la colonne assimilée à un milieu poreux à l'aide de modèles continus. Les paramètres effectifs qui apparaissent dans ces modèles sont déduits de la seconde étape (Image issue de Raynal and Royon-Lebeaud (2007)).

diphasique, les plaques ondulées sont intégralement mouillées par des films liquides qui réduisent ce volume de vide. Les pertes de charge en régime gaz-liquide sont alors obtenues en étendant les corrélations des pertes de charge sèches en les pondérant par le taux d'occupation du liquide. Tous ces modèles sont donc basés sur des corrélations empiriques ou semi-empiriques. Leur répétabilité n'est pas assurée et par conséquent le chemin amenant à la création de nouveaux garnissages passe souvent par une recherche entièrement expérimentale, lourde, longue et parfois hasardeuse.

L'utilisation de la CFD pour étudier l'écoulement au sein de garnissages structurés est relativement récente comparée à son utilisation dans d'autres secteurs industriels. Pour capturer le détail du comportement des fluides dans la colonne tels que les structures tourbillonnaires ou les instabilités à l'interface gaz-liquide, un maillage très raffiné de la géométrie au niveau des

pores est nécessaire. Même avec les moyens de calcul actuels, la simulation de l’écoulement sur un pack entier prendrait un temps astronomiquement long. Les simulations sont donc réduites à des zones de petites dimensions du garnissage et la démarche est donc de développer des méthodes permettant d’extrapoler les résultats de ces simulations à l’ensemble du garnissage, voire à l’intégralité de la colonne de distillation. Un des papiers précurseurs est probablement celui de Hodson et al. (1997). Dans ce travail, les auteurs proposent une méthode multi-échelles entièrement numérique. Ils simulent l’écoulement tridimensionnel du gaz à travers un canal constitué d’une succession de jonctions. Cependant, l’extrapolation des résultats vers l’échelle du garnissage, notamment le calcul de la perte de charge reste approximative, ce qui, dans leur cas, peut s’expliquer par le choix des conditions aux limites d’entrée et de sortie choisies pour l’écoulement dans le “canal”. Dans le même état d’esprit, Petre et al. (2003) remarquent qu’un pack de garnissage peut-être vu comme la combinaison de cinq Volumes Élémentaires Représentatifs (VER) correspondants à différentes régions du garnissage : *(i)* la zone d’entrée, *(ii)* la zone de sortie, *(iii)* le croisement entre 2 canaux, *(iv)* la zone proche des parois de la colonne et *(v)* la zone de transition entre 2 packs successifs. Ils ont développé une méthode pour prédire la perte de charge sèche de la colonne, c’est à dire en absence d’écoulement liquide, ou lorsque celui-ci existe sous forme d’un film si fin qu’il n’impacte pas le calcul de perte de charge. A chaque région est associée un mécanisme de dissipation de l’énergie du fluide qui se traduit par une résistance à l’écoulement. La somme de ces contributions fournit la perte de charge totale. Leur étude réalisée sur différents types de garnissages structurés disponibles sur le marché montre que la perte de charge totale est principalement pilotée par la dissipation liée à l’intersection de 2 canaux (jusqu’à 72%). Viennent ensuite les résistances associées à la zone de transition entre deux packs successifs (17-21%), à la paroi (9-12%) et finalement à la zone d’entrée (moins de 2%). Si l’on étudie les propriétés macroscopiques d’un seul pack de diamètre suffisamment grand pour négliger les effets de bord, la perte de charge totale de l’écoulement à travers un tronçon de garnissage est seulement gouvernée par le mécanisme de dissipation d’énergie associé au croisement de 2 canaux. Par la suite, les différents travaux s’intéressant à l’évaluation des pertes de charge dans les garnissages structurés via la CFD se focaliseront essentiellement sur ce mécanisme. Pour la prédiction de cette perte de charge, le VER utilisé par Petre et al. (2003) est dessiné par l’union de deux prismes triangulaires, chacun étant respectivement incliné d’un angle et de son opposé par rapport à la verticale. Or, comme le remarque judicieusement Raynal et al. (2004), une telle géométrie ne correspond pas au plus petit volume représentatif du pack et la perte de charge évaluée sur cette cellule ne peut donc pas être extrapolée à l’échelle de la colonne. En effet, elle est constituée d’une zone d’entrée et d’une zone de sortie dotées de leurs parois respectives qui génèrent des pertes de charges supplémentaires comparées au seul mécanisme de croisement entre canaux. Par ailleurs, une telle géométrie pose également le problème du choix des conditions aux limites aux entrées et sorties des canaux. Pour palier à cette difficulté, les études suivantes considéreront des géométries

parfaitement périodiques où les valeurs de champs de vitesses en entrée et en sortie seront égales. Le choix du volume élémentaire représentatif est souvent une question délicate dans les stratégies multi-échelles : faut-il simuler l'écoulement microscopique sur un large domaine ou peut-on se contenter d'un volume formé par l'intersection de quelques canaux seulement ? Pour répondre à cette question, Said et al. (2011) ont réalisé des campagnes de calculs pour différents débits et tailles de VER. Leur étude montre que les pertes de charge sèches obtenue dans les différentes configurations sont sensiblement les mêmes. Ils concluent alors qu'un VER formé par la jonction de 2*2 canaux est suffisant pour prédire les pertes de charge sur l'ensemble de la colonne.

Ces procédés de séparation par distillation impliquent le plus souvent l'écoulement d'une phase vapeur en régime turbulent. La précision des profils de vitesse résultants de simulations numériques dans un VER, et par conséquent des pertes de charge prédites, dépend donc très fortement du modèle de turbulence utilisé. Les premières prédictions de perte de charge à partir de simulations numériques sur un VER utilisaient un modèles RNG $k - \epsilon$ (Petre et al. (2003), Raynal et al. (2004)). Depuis, plusieurs études ont comparé les pertes de charge obtenues par différents modèles RANS proposés dans la littérature. Ainsi, Nikou and Ehsani (2008) ont testé quatre modèles de turbulence : $k - \epsilon$, RNG $k - \epsilon$, $k - \omega$ et le modèle BSL $k - \omega$. Ils montrent que les modèles de la famille des $k - \omega$, avec une erreur relative de l'ordre de 17% sont plus représentatifs des valeurs expérimentales que les modèles du type $k - \epsilon$ dont l'écart à l'expérience se situe aux alentours de 31%. Ces conclusions ont été confirmées par des travaux ultérieurs comme ceux de Rafati Saleh et al. (2011), de Hosseini et al. (2012) ou encore ceux de Said et al. (2011) qui comparent les modèles "realizable $k - \epsilon$ " et SST- $k - \omega$. De la même manière, ils obtiennent que les modèles du type $k - \omega$ sont plus adaptés à la modélisation des écoulements turbulents dans les garnissages structurés que ceux de la famille des $k - \epsilon$.

En régime de charge, un film liquide mouille intégralement la structure métallique du garnissage. Bien que ce film soit très mince, c'est-à-dire d'une épaisseur de quelques dizaines de micronmètre, il peut impacter les valeurs de pertes de charge du débit gazeux dans la colonne. Ces pertes de charge supplémentaires ont deux origines différentes. D'un côté, l'espace poral occupé par la phase gazeuse est réduit par la présence du film liquide ce qui, en conséquence, augmente la perte de charge. D'un autre côté, le cisaillement du liquide à contre-courant par la phase gaz en régime turbulent génère une dissipation supplémentaire de l'énergie du fluide. Afin de prédire les pertes de charge dans les garnissages irrigués, des corrélations analytiques basées sur les expressions de pertes de charge sèches ont été développées dès les années 80 (Bravo et al. (1986); Stichlmair et al. (1989); Rocha et al. (1993); Billet and Schultes (1999); Woerlee et al. (2001)). Avec le déploiement de la mécanique des fluides numérique, d'autres approches ont vu le jour. Ces dernières consistent en grande partie à évaluer la hauteur du film liquide puis de pondérer la perte de charge obtenue à partir d'une simulation de l'écoulement du gaz

dans un VER. Afin de prendre en compte l'effet du cisaillement à l'interface gaz-liquide, cette simulation tridimensionnelle peut être précisée en considérant non plus une vitesse nulle aux parois du VER, mais en imposant la vitesse à l'interface gaz-liquide calculée par ailleurs. Nous proposons dans le paragraphe suivant une courte revue des modèles utilisés pour simuler le film liquide et son interaction avec le gaz à la plus petite échelle, permettant ainsi l'évaluation de la hauteur du film liquide et de la vitesse interfaciale.

1.2.2 Epaisseur de film et instabilité du film

Les modèles les plus simples permettant d'évaluer l'épaisseur de film et la vitesse à l'interface entre les phases gaz et liquide sont basés sur l'étude d'écoulement laminaire de film liquide s'écoulant sur un plan incliné par l'effet de la gravité. Nusselt (1916) propose une solution analytique 1D exacte dans le cas d'un écoulement à surface libre. Dans le même esprit, il est possible de calculer analytiquement l'écoulement liquide sur plan incliné en prenant en compte le cisaillement de la phase gaz à contre-courant en régime laminaire (Woerlee et al. (2001)). Les hypothèses menant à ces solutions sont cependant fortes et les résultats ne sont pas toujours représentatifs des situations industrielles. Ainsi, Raynal et al. (2004) montrent que la solution de Nusselt sous-évalue jusqu'à 70 % la valeur de l'épaisseur du film. En effet, ces modèles sont restreints à des écoulements à faibles débits et supposent que l'épaisseur du film est constante le long du plan incliné. L'analogie avec le plan incliné est également une hypothèse forte puisqu'elle néglige complètement la topologie ondulée des feuilles métalliques constituant le garnissage.

Pour calculer une épaisseur de film plus proche de la réalité, Szulczewska et al. (2003) simulent en 2D l'écoulement diphasique le long d'une paroi ondulée verticale à l'aide d'une méthode de suivi d'interface (VOF). Cette configuration sera ensuite reprise dans de nombreuses études pour évaluer le taux de présence de liquide dans une cellule unitaire permettant alors de pondérer la perte de charge sèche calculée par ailleurs lors d'un calcul 3D monophasique turbulent dans un VER (Raynal et al. (2004); Raynal and Royon-Lebeaud (2007); Raynal et al. (2009); Haroun et al. (2010); Hosseini et al. (2012)). Avec cette méthode 2D, Raynal et al. (2004) note un écart relatif concernant l'épaisseur du film de l'ordre de 20% par rapport aux données expérimentales obtenues par tomographie. Dans la même optique, on peut noter le modèle de film développé par Valluri et al. (2005) à partir de l'intégration des équations de Naviers-Stokes 2D écrites dans un système de coordonnées curvilignes en supposant que le profil de vitesse dans la direction orthogonale à la paroi est parabolique. Pour un coût de calcul moindre, ce modèle permet d'étudier l'instabilité du film liquide, et notamment la formation des ondes solitaires qui sont probablement à l'origine du phénomène d'engorgement. Ces approches cependant utilisent une analogie 2D pour représenter l'écoulement diphasique 3D et la vitesse interfaciale reste approximative.

Une méthode plus exacte consisterait à simuler l'écoulement diphasique sur la géométrie exacte du VER. Plusieurs approches peuvent être envisagées. On pourrait par exemple simuler l'écoulement liquide par des modèles de film surfacique et utiliser ensuite la valeur du champ de vitesse surfacique comme condition à la limite en paroi pour le calcul de l'écoulement gazeux à contre-courant. Ou bien, on pourrait réaliser des calculs diphasiques volumiques, avec la méthode VOF par exemple. Cette dernière approche permettrait d'appréhender la situation aux points de contact entre les plaques où des ménisques se forment et qui, comme nous le verrons par la suite, jouent un rôle primordial dans la redistribution locale du liquide au sein des garnissages (Alekseenko et al. (2008)). Cependant, ce type de simulations sur l'intégralité d'un VER en est encore à son balbutiement...

1.2.3 Les modèles macroscopiques d'écoulement dans les garnissages

Les modèles présentés dans les sections précédentes permettent de renseigner des valeurs globales comme la perte de charge de la colonne. Cependant, ils ne précisent pas la distribution de l'écoulement au sein des garnissages et ces informations sont nécessaires pour appréhender l'hydrodynamique gaz-liquide à l'intérieur des contacteurs et caractériser les phénomènes qui conduisent aux effets de mal-distribution à l'échelle de la colonne. Une telle connaissance sera ainsi précieuse pour concevoir de nouveaux types de garnissage. Deux approches différentes ont vu le jour au cours de la dernière décennie. D'un côté, les avancées en imagerie, notamment grâce à l'utilisation de la tomographie, permettent une visualisation détaillée de la distribution liquide à l'intérieur d'un tronçon de garnissage (Roy et al. (2004); Raynal et al. (2004); Sidi-Boumedine and Raynal (2005); Viva et al. (2011); Fourati et al. (2012)). De l'autre, des modèles macroscopiques continus ou discrets issus des techniques de modélisation des écoulements dans les milieux poreux sont de plus en plus précis.

Par analogie avec les écoulements diphasiques dans les lits fixes, des modèles macroscopiques monodimensionnels ont vu le jour. C'est le cas de celui proposé par Iliuta et al. (2004) qui se présente sous la forme d'un modèle Euler-Euler avec des termes de résistance à l'écoulement supplémentaire. Ces termes traduisent l'interaction des fluides avec la structure solide du garnissage, ainsi que le cisaillement du gaz et du liquide. Ils dépendent des vitesses moyennes de chaque fluide et font intervenir des paramètres effectifs (coefficients d'Ergun) évalués à partir des solutions de l'écoulement à la petite échelle. Si la prédiction des pertes de charge par ce type de modèles est satisfaisante, ils ne permettent pas, cependant, d'évaluer la dispersion radiale du liquide. Pour simuler ce phénomène, des auteurs du génie chimique font appel à des modèles dit de "dispersion" (Cihla and Schmidt (1958); Porter and Jones (1963); Bemmer and Zuiderweg (1978); Hoek et al. (1986)). Il s'agit en fait d'une équation d'advection-diffusion de l'écoulement résolue sur un cylindre vertical. Fourati et al. (2012) a montré expérimentalement que le coefficient de diffusion de cette équation ne dépend pas de l'écoulement. Ces modèles de

dispersion, bien que très répandus dans le génie chimique n'ont pas de justification théorique satisfaisante.

Parmi les approches originales développées pour représenter cette dispersion radiale du liquide dans les garnissages, on peut noter le modèle de Aroonwilas and Tontiwachwuthikul (2000), amélioré par la suite dans Aroonwilas et al. (2003). Leur modélisation de la distribution du liquide repose sur une méthode discrète du type "réseaux de pores" : ils considèrent un maillage formé par les points de contacts de deux feuilles ondulées adjacentes. Au niveau de ces noeuds, les auteurs identifient quatre directions possibles pouvant être empruntées par le liquide pour aller d'un noeud à l'autre. Ces directions, au nombre de deux par plaque ondulée, correspondent à l'angle d'inclinaison des canaux et d'un angle de plus grande pente lié à l'effet de la gravité. Les débits dans chaque direction sont évalués par une loi de probabilité, dont dépendra fortement la distribution liquide.

Un autre modèle intéressant, celui développé par Mahr and Mewes (2007), se base également sur le fait qu'au sein de l'espace confiné entre deux feuilles ondulées, le liquide suit des directions préférentielles différentes : un film liquide s'écoule sur chacune des deux feuilles selon un angle de plus grande pente à déterminer. De plus, ces deux films distincts peuvent échanger de la matière au niveau des points de contacts. Partant de ce constat, les auteurs ont proposé de traiter ces deux films indépendamment d'un point de vue macroscopique. A partir de l'intégration volumique des équations régissant le système au sein d'un volume élémentaire représentatif d'un garnissage, et en suivant les développements de Mewes et al. (1999) concernant la modélisation d'écoulement diphasique dans les structures anisotropes, ils obtiennent un jeu de six équations macroscopiques : trois pour la conservation de la quantité de mouvement et trois pour la conservation de la masse. Leur modèle d'écoulement diphasique simule donc en 3D une phase gazeuse s'écoulant à contre-courant de deux phases liquides. Le transfert de matière entre les films est pris en compte via des termes d'échange dans les équations de conservation de masse et de quantité de mouvement des deux phases liquides. Les effets d'anisotropie entraînant notamment l'étalement du liquide dans ces contacteurs sont, quant à eux modélisés par des termes de résistances à l'écoulement dans la structure poreuse exprimés sous forme de tenseurs. Leur modèle est ensuite confronté avec succès à des expériences d'injection ponctuelle dans les garnissages. Si l'idée paraît séduisante et permet de bien capturer cette dispersion radiale du liquide, les équations obtenues, dont la structure présente les ingrédients intéressants compte tenu de la phénoménologie que l'on veut reproduire, sont largement basées sur des passages heuristiques. Un développement théorique complémentaire basé sur une méthode de changement d'échelle adéquate permettrait de justifier ou de proposer d'autres formes pour ces termes. Convaincus de la pertinence de l'idée de séparer la phase liquide en deux phases distinctes, nous reviendrons en détail sur cette étude dans le cadre de cette thèse.

1.2.4 Modélisation du transfert de matière

Le but final de la modélisation est de disposer d'outils fiables pour dimensionner au mieux les contacteurs. Une fois les modèles d'écoulement microscopique et macroscopique établis, le point le plus important concerne la description des phénomènes de transfert d'espèces chimiques au niveau de l'interface gaz-liquide. Pour mesurer l'efficacité du procédé, un des objectifs est d'évaluer le plus précisément possible le taux de transfert d'une espèce A de la phase gazeuse vers la phase liquide, et inversement. Pour un composé donné, les conditions thermodynamiques d'équilibre sont obtenues lorsque les potentiels chimiques à l'interface sont les mêmes. En partant d'hypothèses simplificatrices, cet équilibre entre phase est le plus souvent décrit par une loi de partitionnement du type Henry ou Raoult. En pratique, le problème est ramené à évaluer les résistances au transfert localisées dans des films minces de part et d'autre de l'interface (Roustan (2004)). Une résistance globale, K_{OV} , est alors définie par l'association en série d'une résistance au transfert dans la phase gazeuse ($k_{\gamma A}$) et une résistance dans le film liquide ($k_{\beta A}$). L'enjeu est donc de connaître $k_{\gamma A}$ et $k_{\beta A}$. A l'instar des paramètres effectifs caractérisant l'hydrodynamique, de nombreux modèles existent dans la littérature. Le plus simple et le plus facile à utiliser est probablement celui de la théorie du double film de Lewis and Whitman (1924) qui suggère que dans chacun de ces films le phénomène de transfert est piloté par la diffusion moléculaire en régime permanent. Au delà, l'écoulement est tel que les compositions sont considérées comme uniformes. Dans ce cas, les deux résistances dépendent seulement du coefficient de diffusion moléculaire rapporté à l'épaisseur de film. D'autres modèles supposent que les composés chimiques d'une phase viennent à l'interface, y séjournent un certain temps puis échangent de la matière par diffusion moléculaire avant de retourner se mélanger dans le coeur de la phase en question. C'est notamment le cas du modèle de pénétration de Higbie (1935) ou de celui de renouvellement de l'interface de Danckwerts (1970). D'un point de vue plus spécifique aux garnissages structurés irrigués, on trouve dans la littérature de nombreuses corrélations semi-empiriques basées sur ces théories (voir par exemple Rocha et al. (1996); Billet and Schultes (1999)).

Comme pour la caractérisation de l'écoulement dans les garnissages structurés, des méthodes utilisant des outils de mécanique des fluides numérique ont été développés pour évaluer les coefficients de transfert. Parmi ces approches, nous pouvons citer celle de Haroun et al. (2010, 2012) qui simulent l'écoulement et le transfert d'espèces à l'échelle locale sur une géométrie 2D assimilée aux garnissages structurés. L'écoulement diphasique est établi à partir d'une méthode de suivi d'interface et les champs de concentration par des équations d'advection-diffusion. La condition à l'interface gaz-liquide est une relation de partitionnement entre les concentrations gazeuse et liquide. La résistance, $k_{\beta A}$, au transfert de matière dans le film liquide est déduite par intégration des flux de matière sur l'épaisseur du film. Les auteurs montrent que leurs résultats sont très comparables à ceux fournis par la théorie de Danckwerts (1970).

Les modèles macroscopiques dédiés au transport d’espèces dans les garnissages structurés sont quant à eux plus rare dans la littérature. Aroonwilas and Tontiwachwuthikul (2000); Aroonwilas et al. (2003) ajoutent un modèle de transport d’espèce à leur modèle hydrodynamique que nous avons détaillé dans la section précédente. Ce modèle se présente sous la forme d’un modèle formé de deux équations d’advection stationnaires, une pour la concentration de l’espèce A dans le gaz, l’autre pour sa concentration dans la phase liquide. Ces deux équations sont couplées par un terme d’échange exprimé comme la différence des concentrations moyennes de chaque phase facteur d’un coefficient de transfert évalué par les modèles de la littérature cités précédemment. Cette modélisation est typique des situations dites de *non-équilibre local* en milieu poreux, *i.e.*, que les concentrations moyennes sont différentes de celles données par la loi de Henry. La physique à l’échelle macroscopique est simplifiée et les auteurs supposent que seuls l’advection et l’échange entre les phases pilotent le transfert.

1.3 Objectifs et organisation de la thèse

Cette thèse a pour objectifs d’établir les bases théoriques d’une modélisation milieu poreux appliquée à l’écoulement et à l’échange de matière dans un garnissage structuré, et de mettre en place un outil de simulation numérique pertinent. La modélisation s’inscrit dans une logique de cascade d’échelle en lien avec les approches expérimentales ou numériques développées par ailleurs à l’échelle du pore.

1.3.1 Programme de recherche

La première étape de la thèse consiste à définir le formalisme mathématique des équations macroscopiques de l’écoulement diphasique et inertiel dans une structure géométriquement anisotrope. A ce stade, les effets de transport d’espèces chimiques et de leur transfert entre phases ne sont pas encore pris en compte. Cette étape s’appuie sur une recherche bibliographique exhaustive. Dans un premier temps, nous considérons que le film liquide est suffisamment mince pour ne pas impacter l’écoulement gazeux turbulent qui est alors traité comme un écoulement monophasique en milieux poreux. Une étude basée sur des techniques de changement d’échelle est utilisée pour obtenir une forme plausible des équations macroscopiques dans ce cas anisotrope. Les propriétés effectives dans ces équations macroscopiques sont alors estimées à partir de résultats de simulations à l’échelle du pore réalisées dans d’autres équipes.

Dans un second temps, nous nous sommes attachés à développer un modèle macroscopique pertinent pour l’écoulement diphasique dans les garnissages structurés. Compte tenu de leur aspect bi-structuré, une modélisation particulière a été développée. Il s’agit d’une extrapolation semi-heuristique aux écoulements gaz-liquide dans les garnissages structurés d’un modèle

d'écoulement dans les milieux bi-structurés saturés que nous avons également développé au cours de cette thèse. Le modèle est ensuite validé par comparaison avec des expériences réalisées en laboratoire.

Nous avons ensuite développé le modèle de transport pour les constituants du système étudié : équations macroscopiques et problèmes de fermeture donnant les propriétés effectives. La structure des équations macroscopiques est typique de situations dites de non-équilibre local (les concentrations moyennes sont différentes de celles données par la loi de Henry). Parmi les diverses propriétés effectives qui apparaissent, on trouve deux termes particulièrement importants : le tenseur de dispersion et le coefficient volumique d'échange. Ceux-ci sont déterminés par la résolution des problèmes de fermeture.

1.3.2 Choix de la plateforme de calcul

Au cours de cette thèse, nous allons être amenés à réaliser un certain nombre de simulations. Si l'objectif final est de développer un code de calcul résolvant des équations macroscopiques, les paramètres effectifs (tenseur de dispersion, tenseur de perméabilité multiphasique, coefficients d'échange...) qui apparaissent dans ces équations doivent être évalués via de nombreuses simulations à la petite échelle. Pour ce niveau de description, nous effectuerons deux types de simulations. Dans les premières, nous cherchons à établir l'écoulement à travers la structure poreuse. Compte tenu des conditions hydrodynamiques dans les garnissages, la modélisation de cet écoulement à la petite échelle est relativement complexe. Dans le second type de simulations, nous résolvons à partir du champ de vitesse ainsi obtenu, des problèmes mathématiques que nous qualifierons dans le chapitre suivant de problèmes de fermeture. Ces derniers permettent d'évaluer les différentes propriétés effectives du système macroscopique.

Parmi les solutions envisagées (implémentation dans un code multiphysique commercial ou dans son équivalent open-source, ou bien développement complet de codes en FORTRAN ou C/C++), notre choix s'est porté sur la plate-forme de calcul OpenFOAM®. Outre son aspect financier évident (ce code est open-source et disponible gratuitement sur internet), cette plateforme offre de nombreux avantages. Il s'agit d'un outil numérique résolvant les équations différentielles par la méthode des volumes finis et gérant par défaut les géométries tridimensionnelles. Il permet de traiter une large variété de problèmes physiques, notamment des problèmes de mécanique des fluides, grâce aux nombreux solveurs fournis lors de l'installation. L'utilisateur peut ainsi simuler des écoulements incompressibles, compressibles ou multiphasiques.

Son avantage principal, du point de vue de la présente thèse, est très certainement sa facilité pour implémenter de nouvelles équations différentielles. Développé en C/C++, OpenFOAM® peut-être vu comme une librairie C++ dédiée au calcul scientifique où les opérateurs mathématiques usuels sont déjà programmés. Grâce à une utilisation astucieuse de la programmation

orientée objet et du polymorphisme des opérateurs, l'implémentation informatique reste très proche de l'écriture mathématique (Weller et al. (1998)). Ainsi, l'équation de transport de température suivante,

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot (\phi T) = \nabla \cdot (D_T \nabla T) \quad (1.1)$$

se programme sous OpenFOAM® simplement par,

```

solve
(
    fvm::ddt(T) + fvm::div(phi,T) == fvm::laplacian(DT,T)
);

```

Dans cet exemple, l'inconnue T peut-être un champ scalaire, un champ de vecteur ou un champ de tenseur. De même, le coefficient de diffusion DT peut-être soit un scalaire soit un tenseur.

Cependant, les simulations du Chapitre 5 ayant été réalisées avant ce choix stratégique, elles ont été effectuées à l'aide du code COMSOL Multiphysics™3.5a.

Chapitre 2

Outils mathématiques de changement d'échelle pour les milieux poreux

Une représentation fine de l'espace poral est souvent délicate et restreinte à des domaines de calcul petits. Une des voies possibles pour étudier les écoulements et les phénomènes de transport dans les milieux poreux est de décrire le comportement moyen du système considéré à l'aide de modèles macroscopiques. Ces modèles sont obtenus en appliquant, au problème mathématique décrivant la physique à la petite échelle, une méthode de changement d'échelle. Dans ce chapitre, nous présentons la technique de prise de moyenne volumique (*volume averaging* en anglais), la terminologie et les théorèmes qui lui sont associés. Cette démarche de changement d'échelle sera utilisée dans tous les autres chapitres de la thèse pour créer des modèles macroscopiques à partir de la physique à l'échelle du pore.

2.1 Description microscopique / macroscopique

La description des phénomènes physiques dans un milieu poreux peut être appréhendée à différents niveaux. Cet aspect multi-échelle est illustré sur la Figure 2.1. On distingue :

- l'**échelle microscopique** de longueur caractéristique l_α est la plus petite échelle à partir de laquelle un système peut-être vu comme un continuum. En dessous de ce niveau de description, les phénomènes physiques doivent être modélisés par des méthodes discrètes (comme les automates cellulaires ou modélisation moléculaire par exemple). A l'échelle microscopique, que l'on nommera également l'échelle du pore dans la suite de ce document, la matrice poreuse et l'espace vide où circule le fluide sont finement représentés. La notion de fluide est ici à prendre au sens large : il peut s'agir d'un écoulement monophasique (liquide ou gaz) ou polyphasique (gas/liquide ou liquide/liquide

par exemple). Chaque point du maillage est associé à l'une de ces phases. A cette échelle, les interactions entre phases (à la fois fluide-solide, mais aussi fluide-fluide dans le cas d'un écoulement diphasique) sont prises en compte via les conditions à l'interface des dites phases. Par exemple, un transfert de chaleur entre un fluide et la structure poreuse sera simulé par la résolution de l'équation de la chaleur dans chaque phase en prenant en compte les continuités des flux et de la température à l'interface fluide/solide. On parle dans ce cas de problème aux limites. Il est clair que malgré la puissance grandissante des moyens de calcul, un tel niveau de détail est restreint à de très petits domaines et serait trop coûteux pour des simulations sur de larges domaines.

- une échelle plus grande que l'on nommera l'**échelle macroscopique** de longueur caractéristique L est quant à elle de l'ordre de grandeur des dimensions du système. Les mesures expérimentales effectuées en laboratoire ou sur site industriel correspondent le plus souvent à cette échelle : c'est le cas par exemple des pertes de charge mesurées sur une colonne de distillation ou d'adsorption. A ce niveau de description, chaque point du maillage est occupé par l'ensemble des phases présentes dans le système. Le détail de la géométrie du solide et le comportement exact de l'interface fluide-fluide ne sont plus représentés. Chaque phase devient ainsi un continuum, c'est-à-dire un milieu continu occupant le système dans son entier. On parle de continua superposés (Bear (1972)), chaque continuum correspondant à l'une des phases. Si l'on reprend l'exemple précédent du transfert de chaleur dans un milieu poreux, les températures du fluide et du solide sont définies en chaque point du maillage. Elles peuvent être calculées via la résolution d'équations différentielles faisant intervenir des fractions volumiques, des tenseurs de dispersion et un terme d'échange entre les deux phases. Cette approche à deux équations sera explicitée dans les chapitres suivants.

Les deux niveaux de détails présentés ci-dessus diffèrent généralement de plusieurs ordres de grandeur. Par exemple, la longueur caractéristique de l'écoulement microscopique dans une colonne d'absorption est de l'ordre du millimètre alors que l'ordre de grandeur de l'échelle macroscopique est celui de la colonne, c'est-à-dire du mètre. Mathématiquement, cela se traduit par la relation :

$$l_\alpha \ll L. \quad (2.1)$$

Cette hypothèse de séparation des échelles, permettra par la suite d'évaluer le « poids » des différents termes qui apparaissent dans les modèles mathématiques et d'effectuer des simplifications adéquates. En effet, si l'on considère une variable f_α définie à l'échelle microscopique et à valeurs dans la phase α , ses variations spatiales peuvent être évaluées par :

$$\nabla f_\alpha = O\left(\frac{\max(f_\alpha)}{l_\alpha}\right). \quad (2.2)$$

Au contraire, les variations spatiales d'un champ macroscopique F sont de l'ordre de grandeur de la grande échelle et sont donc évaluées par

$$\nabla F = O\left(\frac{\max(F)}{L}\right). \quad (2.3)$$

Dans certains cas, comme l'étude des milieux hétérogènes, l'introduction d'une échelle intermédiaire peut s'avérer utile. Dans cette logique de cascade d'échelles, le passage de la plus petite à la plus grande échelle s'effectue via des changements d'échelles successifs, chaque échelle macroscopique étant vue comme la petite échelle pour la dimension supérieure. Le plus souvent dans ce cas, on effectue un premier changement vers une échelle dite de Darcy qui comme son nom le suggère est une échelle où la loi de Darcy (ou l'une de ses multiples extensions) régissant l'écoulement est valable. Dans le cadre de l'étude des garnissages structurés, nous nous intéresserons au passage de l'échelle microscopique à cette échelle de Darcy que l'on nommera indifféremment échelle de la colonne ou échelle macroscopique, en effectuant un seul changement d'échelle.

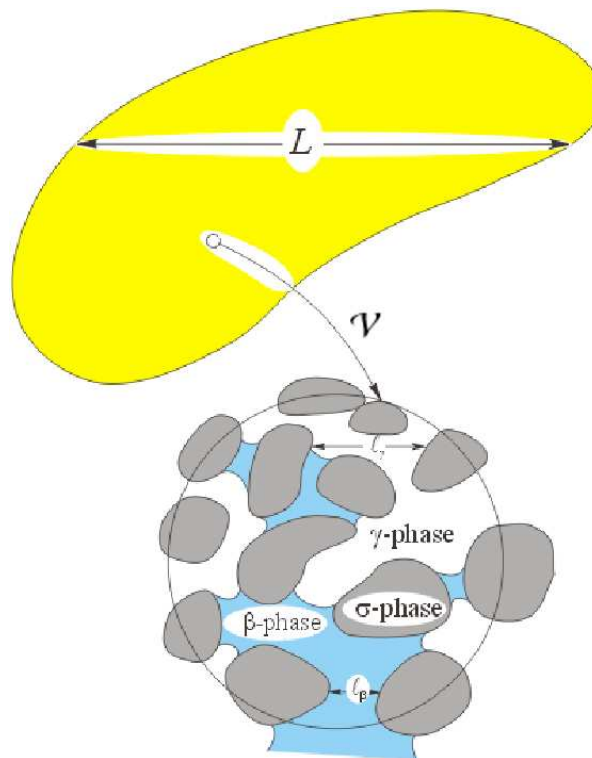


FIGURE 2.1: Exemple d'un milieu poreux type où une phase β et une phase γ s'écoulent à travers une structure solide notée σ .

2.2 Les méthodes de changement d'échelle

Les méthodes de changements d'échelle permettent d'obtenir les équations différentielles qui régissent les variables macroscopiques. Plusieurs techniques ont vu le jour au cours de ces cinq dernières décennies. On en distingue deux grandes familles :

- les **méthodes stochastiques** (Matheron (1965), Dagan (1989)) basées sur une approche statistique. Très adapté à la variabilité des milieux naturels, ce type d'approche est utilisé par exemple dans l'industrie pétrolière lors de l'analyse des résultats expérimentaux (mesures sur carotte, sismiques...) afin de caractériser la structure des réservoirs.
- les **méthodes déterministes** telles que la prise de moyenne volumique (Whitaker (1967), Marle (1967), Slattery (1967)) ou la méthode dite asymptotique ou d'homogénéisation (Bensoussan et al. (1978), Sanchez-Palencia (1980)). Ces méthodes consistent à intégrer le problème mathématique local sur un Volume Élémentaire Représentatif (VER) du milieu pour obtenir les équations de l'échelle supérieure.

Nous utiliserons la méthode de la prise de moyenne volumique pour établir les modèles macroscopiques de l'écoulement dans les garnissages structurés.

2.3 Notion de moyenne et premières définitions

Dans cette section, nous introduisons des concepts et la terminologie relatifs aux techniques de changement d'échelle et à l'étude des milieux poreux.

2.3.1 Volume Élémentaire Représentatif, repère local et repère global

Au coeur de la méthode de la prise de moyenne volumique réside la notion même de moyenne. Elle se base sur un Volume Élémentaire Représentatif dont le choix est propre à la géométrie du milieu ainsi qu'aux phénomènes que l'on souhaite étudier. Ce VER noté V et assimilé à une boule de rayon r_0 est représenté sur le schéma Fig.2.2. Le centre de cette cellule est repéré par le vecteur \mathbf{x} défini dans un système de coordonnées de la grande échelle. La position d'un point situé à l'intérieur de ce volume peut-être déterminée de deux manières différentes : soit dans ce repère dit global par le vecteur \mathbf{r}_α , soit par un vecteur \mathbf{y}_α exprimé dans un système de coordonnées dont l'origine est le centre du VER.

Les variables macroscopiques sont exprimées dans le repère global. Elles sont définies à partir de l'intégration de champs microscopiques sur des VER. La définition exacte des moyennes est discutée dans les paragraphes suivants.

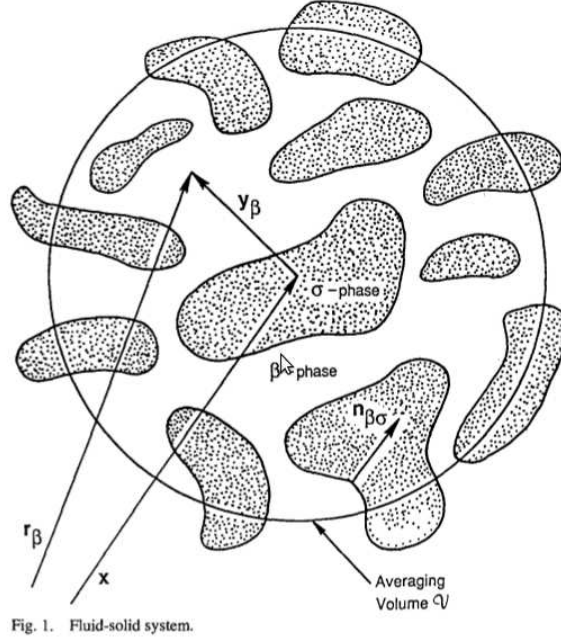


FIGURE 2.2: Exemple de volume élémentaire représentatif contenant du solide et du fluide. Les points à l'intérieur de ce volume peuvent être localisés par \mathbf{r}_α dans le repère global ou par \mathbf{y}_α dans le repère local.

2.3.2 Fractions volumiques, porosité et saturations

Les concepts de fractions volumiques, porosité et champs de saturation sont très largement utilisés dans l'étude des milieux poreux. Ces valeurs numériques sont en fait des variables macroscopiques résultant de l'intégration sur le VER de la fonction indicatrice de phase

$$\gamma_\alpha(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 & \text{si } \mathbf{r} \in V_\alpha \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (2.4)$$

qui vaut 1 dans la phase α et 0 partout ailleurs. Son intégration évalue le volume V_α de la phase α dans le VER.

La fraction volumique de la phase α , c'est-à-dire le volume occupé par cette phase fluide rapporté au volume total du VER est définie par

$$\varepsilon_\alpha = \frac{V_\alpha}{V}. \quad (2.5)$$

Dans le cadre d'un écoulement monophasique, cette fraction volumique représente le taux de vide dans le VER et s'apparente donc à la porosité ε du milieu ($\varepsilon_\alpha \equiv \varepsilon$). Dans notre étude, le milieu poreux étant supposé immobile et indéformable, ε ne varie pas au cours du temps et dépend seulement de la géométrie du pore. Au contraire, si deux phases ou plus s'écoulent à

travers l'espace poral, alors la fraction volumique de chaque phase fluide évolue au cours du temps. Dans le cas d'un écoulement diphasique où une phase β et une phase γ sont en présence, alors la relation suivante reste toujours valable,

$$\varepsilon = \varepsilon_\beta(t) + \varepsilon_\gamma(t). \quad (2.6)$$

Lors de l'étude des écoulements polyphasiques en milieu poreux, il est commode d'introduire la notion de saturation S_α . Cette variable macroscopique correspond au taux d'occupation de l'espace poral par la phase α . On la définit par

$$S_\alpha = \frac{\varepsilon_\alpha}{\varepsilon}. \quad (2.7)$$

Cette dernière a l'avantage d'être normalisée : ses valeurs varient entre 0 et 1.

2.3.3 Définitions des moyennes

Dans la méthode de la prise de moyenne volumique, les variables macroscopiques sont définies comme des champs microscopiques moyennés sur un volume de contrôle (le VER). Soit un champ tensoriel ψ_α d'ordre 0, 1 ou 2 et à valeur dans la phase α , on définit alors deux moyennes :

- la **moyenne superficielle** notée $\langle \cdot \rangle$ où l'intégrale volumique d'une fonction est pondérée par le volume total V du VER. Mathématiquement, cela se traduit par la définition

$$\langle \psi_\alpha \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_\alpha} \psi_\alpha dV. \quad (2.8)$$

Cette moyenne peut être vue comme un opérateur $\langle \cdot \rangle$ que l'on applique à une équation de la petite échelle. La vitesse qui apparaît dans la loi de Darcy est en fait une moyenne superficielle.

- la **moyenne intrinsèque** à la phase α notée $\langle \cdot \rangle^\alpha$ où l'intégrale volumique d'une fonction est pondérée par le volume V_α de cette phase. On définit

$$\langle \psi_\alpha \rangle^\alpha = \frac{1}{V_\alpha} \int_{V_\alpha} \psi_\alpha dV. \quad (2.9)$$

C'est cette moyenne qui est utilisée pour définir les variables macroscopiques comme les champs de température ou de concentration.

On remarque que ces deux définitions sont reliées par la relation triviale

$$\langle \psi_\alpha \rangle = \varepsilon_\alpha \langle \psi_\alpha \rangle^\alpha, \quad (2.10)$$

ce qui permet de passer rapidement d'une définition à l'autre dans les développements mathématiques du processus de changement d'échelle.

2.4 Théorèmes de changement d'échelle

Avec la méthode de la prise de moyenne volumique, la recherche d'un modèle macroscopique débute par l'application de l'opérateur moyenne $\langle \cdot \rangle$ sur les équations différentielles du problème mathématique de la petite échelle. Si l'opération s'avère évidente pour la moyenne d'une fonction ψ_α , la situation est plus compliquée en ce qui concerne ses dérivées spatiales et temporelles. En effet, la moyenne d'un gradient (opérateur au sens large de la dérivée) est dans la plupart des cas différente du gradient de la moyenne. L'interversion de l'opérateur moyenne et des dérivées s'effectue par

- les théorèmes de transport d'une part (Marle (1967); Gray et al. (1993)) qui permettent d'évaluer la moyenne d'une dérivée temporelle.
- les théorèmes de prise de moyenne volumique d'autre part (Marle (1965, 1967); Gray et al. (1993); Whitaker (1999)) qui déterminent la moyenne d'une dérivée spatiale.

Nous listons dans cette partie les théorèmes d'interversion "moyenne-dérivée" dans le cas d'écoulements monophasique et polyphasique à travers un milieu poreux non déformable et immobile (ce qui est bien sur le cas des garnissages).

2.4.1 Cas d'un écoulement monophasique

Nous exposons dans cette partie les théorèmes de changement d'échelle pour l'écoulement d'une phase α à travers un milieu poreux.

Théorème temporel de prise de moyenne volumique

La structure poreuse étant fixe et indéformable, le théorème de transport de Reynolds permet directement d'intervertir la moyenne et la dérivée temporelle :

$$\left\langle \frac{\partial \psi_\alpha}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle \psi_\alpha \rangle}{\partial t}. \quad (2.11)$$

Théorèmes spatiaux de prise de moyenne volumique

L'inversion de l'opérateur moyenne $\langle \cdot \rangle$ et de la dérivée spatiale ∇ s'effectue à l'aide du théorème suivant

$$\langle \nabla \psi_\alpha \rangle = \nabla \langle \psi_\alpha \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_{\alpha\sigma} \psi_\alpha d\mathcal{A}. \quad (2.12)$$

L'intégrale qui apparait dans cette relation traduit à grande échelle, les effets interfaciaux entre la phase fluide et la matrice solide notée σ . On trouve plusieurs démonstrations de ce théorème dans la littérature, certaines partent du théorème de Gauss (Marle (1965); Howes and Whitaker (1985)), d'autres plus élégantes utilisent la théorie des distributions de Schwartz (Marle (1967); Gray et al. (1993); Quintard and Whitaker (1994b)).

Si \mathbf{A}_α est un champ tensoriel d'ordre 1 ou 2 à valeur dans la phase α , un théorème analogue permet l'interversion entre la divergence ($\nabla \cdot$) et l'opérateur moyenne :

$$\langle \nabla \cdot \mathbf{A}_\alpha \rangle = \nabla \cdot \langle \mathbf{A}_\alpha \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_{\alpha\sigma} \cdot \mathbf{A}_\alpha d\mathcal{A}. \quad (2.13)$$

Lemme utile

Si le théorème spatial de prise de moyenne volumique Eq (2.12) est appliqué à la fonction scalaire qui vaut 1 dans la phase α et 0 partout ailleurs, on obtient alors une relation exprimant les variations de la porosité (nulle dans le cas de notre étude car le milieu est homogène) sous une forme intégrale :

$$\nabla \varepsilon_\alpha = -\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_{\alpha\sigma} d\mathcal{A} = 0. \quad (2.14)$$

Cette relation, forte utile, permet le plus souvent de simplifier l'écriture des équations macroscopiques.

2.4.2 Cas d'un écoulement diphasique

Nous exposons dans cette partie les théorèmes de changement d'échelle utilisés lors de l'écoulement diphasique d'une phase β et d'une phase γ à travers un milieu poreux. Le plus souvent dans notre étude, les variables d'indice β seront assimilées à la phase liquide et celles indicées par γ feront référence à la phase gazeuse.

Théorème temporel de prise de moyenne volumique

Dans le cas général d'un écoulement diphasique au sein d'une structure poreuse, la relation simple Eq (2.11) pour intervertir l'opérateur $\langle \cdot \rangle$ et la dérivée par rapport au temps n'est plus valide. En effet, la vitesse de l'interface entre les deux phases fluides (notée $\mathbf{w}_{\beta\gamma}$) doit-etre prise en considération. Le théorème de transport de Reynolds appliqué à l'intégration volumique d'une dérivée temporelle s'écrit alors :

$$\left\langle \frac{\partial \psi_\beta}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle \psi_\beta \rangle}{\partial t} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{w}_{\beta\gamma} \psi_\beta d\mathcal{A} \quad (2.15)$$

Cette relation reste valide quel que soit l'ordre du tenseur ψ_β .

Théorèmes spatiaux de prise de moyenne volumique

Dans le cas de l'étude d'écoulement polyphasique Les intégrales traduisent ici les effets à l'interface entre la phase β et le solide ainsi qu'entre la phase β et l'autre phase fluide (γ).

$$\langle \nabla \psi_\beta \rangle = \nabla \langle \psi_\beta \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \psi_\beta d\mathcal{A} + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \psi_\beta d\mathcal{A}. \quad (2.16)$$

Cette notation bien qu'explicite est souvent lourde dans les développements. Nous lui préférons la notation allégée suivante

$$\langle \nabla \psi_\beta \rangle = \nabla \langle \psi_\beta \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \psi_\beta d\mathcal{A}, \quad (2.17)$$

où \mathcal{A}_β représente toutes les surfaces en contact avec la phase β , et la normale \mathbf{n}_β vaut $\mathbf{n}_{\beta\sigma}$ lorsque β est en contact avec la phase solide σ , $\mathbf{n}_{\beta\gamma}$ si elle est en contact avec γ . On peut se référer à Marle (1982); Cushman (1982) pour une démonstration du théorème spatial de changement d'échange pour un écoulement polyphasique.

Comme pour le cas monophasique, un théorème analogue à Eq (2.17) relie la divergence ($\nabla \cdot$) et l'opérateur moyenne :

$$\langle \nabla \cdot \mathbf{A}_\beta \rangle = \nabla \cdot \langle \mathbf{A}_\beta \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \mathbf{A}_\beta d\mathcal{A}. \quad (2.18)$$

Lemmes utiles

Les variations spatiales et temporelles du taux de remplissage du pore par la phase β peuvent s'exprimer simplement sous forme intégrale. Ainsi, en utilisant le théorème temporel de prise de moyenne volumique Eq (2.15) avec la fonction indicatrice de phase de β (qui vaut 1 dans β , 0 ailleurs), on obtient

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{w}_{\beta\gamma} d\mathcal{A}. \quad (2.19)$$

De la même manière, en utilisant le théorème spatial de prise de moyenne volumique Eq (2.17) on a

$$\nabla \varepsilon_\beta = -\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta d\mathcal{A}. \quad (2.20)$$

Bien évidemment, des relations similaires existent pour évaluer l'évolution de la fraction volumique de la phase γ . Ces relations simplifient l'écriture des équations macroscopiques.

2.4.3 Décomposition en déviations

Dans le cadre de la prise de moyenne volumique, un champ tensoriel (d'ordre quelconque) ψ_α est décomposé en une valeur moyenne et une déviation, notée $\tilde{\psi}_\alpha$ (Gray (1975)). Cette décomposition est illustrée sur la Figure 2.3. L'approche est analogue à celle utilisée dans l'analyse des écoulements turbulents où une variable est décomposée en une moyenne statistique et une fluctuation en temps. On parle souvent de décomposition de Gray. On écrit,

$$\psi_\alpha = \langle \psi_\alpha \rangle^\alpha + \tilde{\psi}_\alpha. \quad (2.21)$$

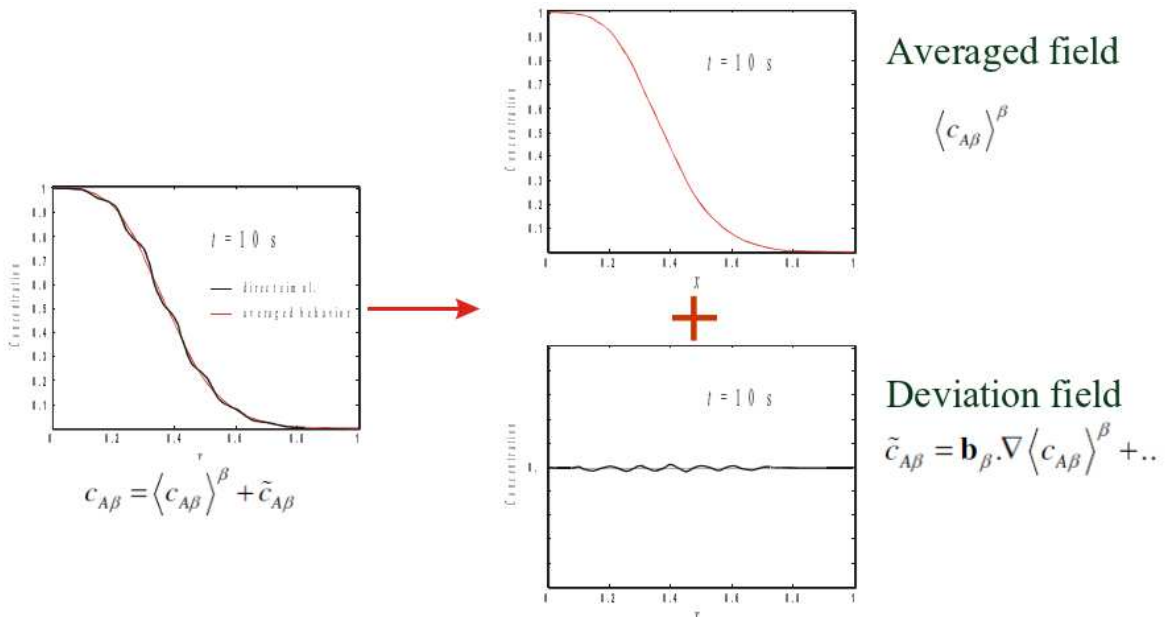


FIGURE 2.3: D'un point de vue macroscopique, un champs tensoriel de la petite échelle peut-être décomposé en terme de grandeur moyenne et de déviation.

On remarque qu'à partir de cette décomposition et des relations Eq (2.10) et Eq (2.20), les théorèmes spatiaux de prise de moyenne volumique Eq (2.12) et Eq (2.17) peuvent être approximés par

$$\langle \nabla \psi_\alpha \rangle^\alpha \approx \nabla \langle \psi_\alpha \rangle^\alpha + \frac{1}{V_\alpha} \int_{\mathcal{A}_\alpha} \mathbf{n}_\alpha \tilde{\psi}_\alpha d\mathcal{A}, \quad (2.22)$$

et définir ainsi un théorème d'interversion entre l'opérateur $\langle \cdot \rangle^\alpha$ exprimant la moyenne intrinsèque à la phase α et la dérivée spatiale.

Pour que la moyenne de la relation Eq (2.21) soit cohérente, on doit s'assurer que l'approximation suivante est satisfaite (Gray (1975), Quintard and Whitaker (1994d), Whitaker (1999))

$$\langle \tilde{\psi}_\alpha \rangle \simeq 0. \quad (2.23)$$

A partir de cette condition de moyenne nulle, on peut énoncer différentes relations qui seront fort utiles dans les développements mathématiques du processus de changement d'échelle. Ainsi, en appliquant directement le théorème spatial à un champ perturbé $\tilde{\psi}_\alpha$, on montre que

$$\langle \nabla \tilde{\psi}_\alpha \rangle \simeq \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\alpha} \mathbf{n}_\alpha \tilde{\psi}_\alpha d\mathcal{A}. \quad (2.24)$$

En utilisant cette même condition de moyenne nulle Eq (2.23) et la décomposition en perturbation Eq (2.21) de deux champs locaux ϕ_α et ψ_α à valeurs dans la phase α , on peut aisément démontrer que

$$\langle \phi_\alpha \psi_\alpha \rangle \simeq \varepsilon_\alpha \langle \phi_\alpha \rangle^\alpha \langle \psi_\alpha \rangle^\alpha + \langle \tilde{\phi}_\alpha \tilde{\psi}_\alpha \rangle. \quad (2.25)$$

D'après cette relation, la moyenne d'un produit de fonctions n'est donc pas le produit des moyennes de ces fonctions. La moyenne du produit des perturbations qui apparait dans cette relation n'est pas toujours négligeable. C'est par exemple ce terme qui traduit la dispersion à grande échelle dans le cas du transport d'une espèce chimique dans un milieu poreux (Quintard and Whitaker (1994a)).

De la même manière, on évalue la moyenne du produit d'un champ ϕ_α et de la dérivée spatiale d'un champ ψ_α par

$$\langle \phi_\alpha \nabla \psi_\alpha \rangle \simeq \varepsilon_\alpha \langle \phi_\alpha \rangle^\alpha \nabla \langle \psi_\alpha \rangle^\alpha + \langle \tilde{\phi}_\alpha \nabla \tilde{\psi}_\alpha \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\alpha} \mathbf{n}_\alpha \langle \phi_\alpha \rangle^\alpha \tilde{\psi}_\alpha d\mathcal{A}. \quad (2.26)$$

2.5 La méthode de prise de moyenne volumique

La méthode de la prise de moyenne volumique qui permet de trouver les équations macroscopiques correspondant à un problème aux limites définis à la petite échelle se réalise en plusieurs étapes successives. L'algorithme que nous présentons ici est utilisé dans la majorité des papiers de changement d'échelles. La Figure 2.4 schématise la méthodologie que nous adopterons dans les chapitres suivants pour former nos modèles macroscopiques.

1. La première étape du processus de changement d'échelles est de bien définir la petite échelle (et donc le VER) et le problème mathématique qui régit le phénomène que l'on cherche à étudier. Une attention particulière doit être portée sur le choix des conditions aux limites car elles détermineront la forme du modèle macroscopique.
2. La seconde étape consiste à moyenniser sur un volume de contrôle représentatif la ou les équation(s) différentielle(s) qui régissent(nt) le système à la petite échelle en appliquant l'opérateur moyenne $\langle \cdot \rangle$. L'intervention entre l'opérateur moyenne et les dérivées spatiale et temporelle s'effectue avec les théorèmes énoncés dans la section précédente. Les effets

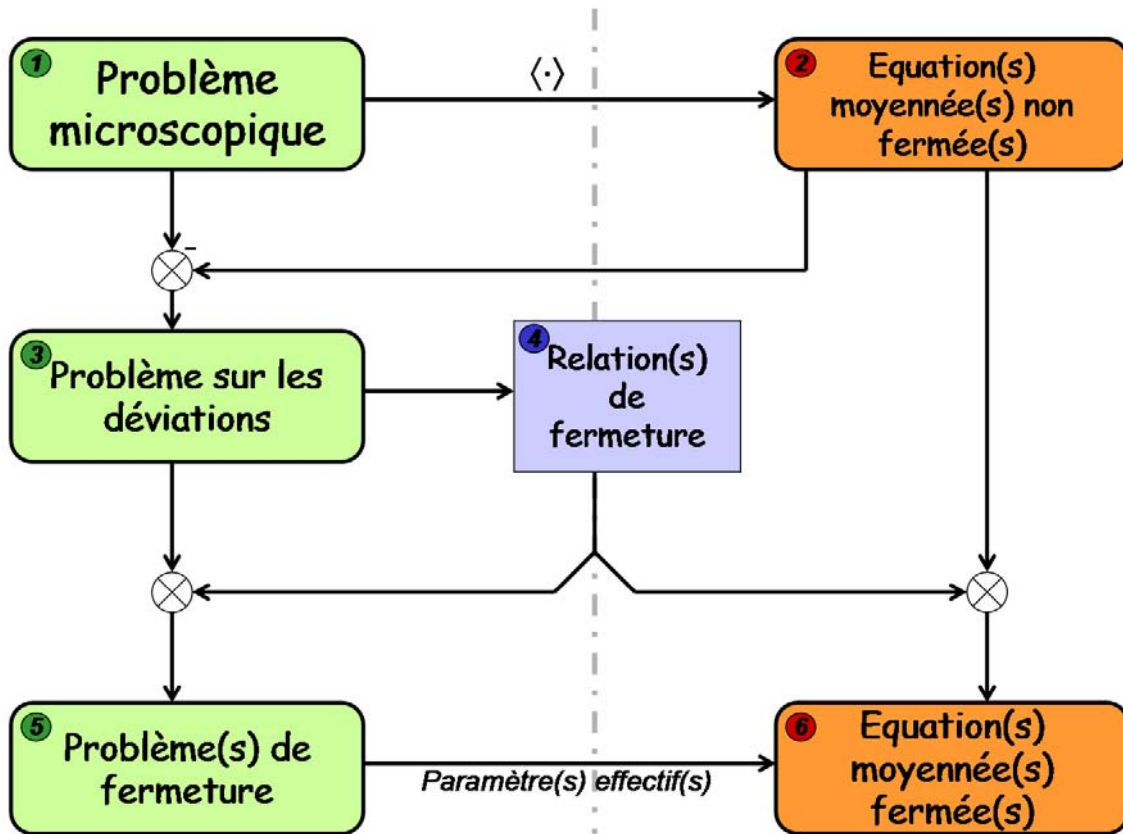


FIGURE 2.4: Schématisation de la méthode de la prise de moyenne volumique. Les problèmes mathématiques à gauche (en vert) sont des problèmes aux limites et sont définis à l'échelle microscopique. Les équations moyennées à droite (en orange) sont valables à l'échelle macroscopique

interfaciaux entre deux phases (par exemple entre un fluide et la structure poreuse) interviennent alors sous forme d'intégrales et non plus sous forme de conditions aux limites. On cherche ensuite à exprimer cette équation en terme de moyenne intrinsèque à chaque phase en utilisant les relations Eq (2.10) et Eq (2.21). A ce stade, **les équations moyennées** se présentent sous une forme **non-fermée** puisqu'elles font généralement apparaître des données microscopiques, notamment des champs microscopiques perturbés à l'intérieur des intégrales. On rappelle ici, que l'objectif du procédé de changement d'échelle est d'obtenir des équations différentielles régissant des valeurs macroscopiques sans faire appel aux données de l'échelle inférieure. Pour s'affranchir de ces variables microscopiques, la stratégie est d'établir le problème mathématique qui régit ces perturbations afin de les estimer.

3. **Le problème qui régit les perturbations** est obtenu en soustrayant de l'équation moyenne non-fermée (étape 2) à l'équation différentielle microscopique (étape 1). Les perturbations agissant à la petite échelle, le problème ainsi obtenu est un problème aux limites. Ces dernières sont définies en utilisant la décomposition en perturbation Eq (2.21)

dans les conditions aux limites du problème mathématique de la petite échelle. Le problème ainsi obtenu fait intervenir des termes sources issus de l'échelle supérieure. Ces données macroscopiques qui apparaissent le plus souvent au niveau des conditions aux limites, traduisent un transfert d'information de la grande échelle à la petite échelle.

4. A ce stade du développement, nous avons d'un côté une équation macroscopique faisant intervenir des termes de la petite échelle et de l'autre un problème qui régit les perturbations et où interviennent des termes sources issus de l'échelle macroscopique. Dans la méthode de la prise de moyenne volumique, ce transfert réciproque d'informations est exprimé en reliant linéairement les perturbations aux variables moyennées et leurs dérivées. On parle de **relation de fermeture**. Par exemple, dans le cas du transport d'un polluant dans une nappe phréatique, les perturbations du champs de concentration peuvent être exprimées selon la relation (Quintard and Whitaker (1994a))

$$\tilde{c}_\beta = \mathbf{b}_\beta \cdot \nabla \langle c_\beta \rangle^\beta - s_\beta \left(\langle c_\beta \rangle^\beta - C_{eq} \right). \quad (2.27)$$

Les nouvelles variables \mathbf{b}_β et s_β sont appelées **variables de fermeture**. Elles sont définies à la petite échelle. Dans l'expression Eq (2.27), les variables macroscopiques et leurs dérivées forment une base (au sens de l'algèbre linéaire). A ce titre, il est indispensable que les "vecteurs" de cette base soient linéairement indépendants. L'évaluation des champs perturbés est donc ramenée à l'évaluation de variables de fermeture.

5. Pour définir les problèmes mathématiques dont sont solutions les variables de fermeture, la méthode consiste à insérer la relation de fermeture dans le problème mathématique de l'étape 3, c'est-à-dire celui qui régit les champs perturbés. L'identification des termes correspondant à chaque "vecteur" de la base donne alors plusieurs nouveaux problèmes mathématiques. On parle de **problèmes de fermeture**. Ces derniers ne font intervenir que des données microscopiques. Ainsi, les variables de fermeture sont entièrement déterminées à l'échelle du pore par la résolution de ces problèmes mathématiques. Ainsi, si l'on reprend l'exemple du transport de polluant, en insérant la relation de fermeture Eq (2.27) dans le problème mathématique dont l'inconnue principale est \tilde{c}_β (étape 3) et en identifiant les termes en facteur de $\nabla \langle c_\beta \rangle^\beta$ et ceux en facteur de $(\langle c_\beta \rangle^\beta - C_{eq})$, on obtient deux nouveaux problèmes mathématiques. L'un a comme inconnue principale \mathbf{b}_β , l'autre s_β . Ces problèmes sont parfois couplés entre eux (Golfier et al. (2002), Davit et al. (2010)). Dans la pratique, à cause du caractère intégral-différentiel de ces problèmes, un changement de variable permet généralement une résolution numérique plus aisée.
6. En injectant la relation de fermeture de l'étape 4 dans les équations moyennées non-fermées de l'étape 2, on obtient des équations macroscopiques ne contenant que des valeurs macroscopiques. On parle d'**équations macroscopiques fermées**. On peut alors réarranger ces équations en introduisant des paramètres dits effectifs. Ainsi, la perméabi-

lité d'un milieu poreux, les tenseurs de dispersion ou encore le coefficient d'échange dans un modèle à deux équations sont des paramètres effectifs qui retranscrivent des effets microscopiques à une plus grande échelle. Par exemple, la perméabilité, qui est une variable macroscopique, est évaluée à partir de la géométrie de l'espace poral (qui lui n'est pas représenté à la grande échelle). Dans la méthode de prise de moyenne volumique, ces variables effectives sont évaluées à partir des intégrales des variables de fermetures calculées à l'étape précédente. Ainsi, dans le cas du transport d'un polluant évoqué précédemment, le tenseur de dispersion $\mathbf{D}_{\beta A}$ s'écrit

$$\mathbf{D}_{\beta A} = D_{\beta A} (\varepsilon_{\beta} \mathbf{I} + \langle \nabla \mathbf{b}_{\beta} \rangle) - \langle \tilde{\mathbf{v}}_{\beta} \mathbf{b}_{\beta} \rangle, \quad (2.28)$$

et le coefficient d'échange α_A est défini par

$$\alpha_A = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta}} \mathbf{n}_{\beta} \cdot D_{\beta A} \nabla s_{\beta} d\mathcal{A}. \quad (2.29)$$

7. Comme tout travail de modélisation, le modèle macroscopique obtenu par cette démarche de changement d'échelles doit être validé. Plusieurs solutions s'offrent à nous pour s'assurer de la cohérence du modèle. Une première solution que nous qualifierons de "méthode DNS¹" (le lecteur peut se référer à Cherblanc et al. (2007) ou Davit et al. (2010) pour des exemples d'utilisation) consiste à résoudre dans un premier temps le problème mathématique microscopique sur une succession de VER (souvent plusieurs dizaines pour s'affranchir des zones d'entrée et de sortie qui ne satisfont pas les conditions de périodicité) puis de moyennner les résultats sur chaque VER, afin d'obtenir un résultat de référence qui permettra d'évaluer la pertinence du modèle macroscopique. Dans la seconde étape de cette méthode, les différents paramètres effectifs qui apparaissent dans les équations macroscopiques sont calculés via la résolution des problèmes de fermeture sur le VER. Enfin, une comparaison direct des résultats macroscopiques avec ceux de la DNS moyennée valide (ou invalide...) le modèle macroscopique. Nous utiliserons cette méthode dans le Chapitre 5 et l'Annexe A. La DNS étant rapidement très coûteuse en temps de calcul, elle est donc restreinte à des géométries simples comme le tube, les milieux stratifiées ou les réseaux de billes, de cylindres, de sphère, etc... Nous verrons dans le Chapitre 3 que dans le cadre de la prise de moyenne d'une équation de quantité de mouvement, une solution alternative consiste à comparer la perte de charge obtenue par le modèle macroscopique à celle générée par la simulation microscopique. Enfin et surtout, la dernière méthode consiste à comparer directement les résultats de simulation du modèle macroscopique avec des résultats expérimentaux, ce que nous ferons dans le Chapitre 4.

1. Direct Numerical Simulation

Chapitre 3

Modèle d'écoulement turbulent dans les garnissages structurés

En régime de charge dans les colonnes de distillation, un film liquide s'écoule par gravité à contre-courant d'une phase gazeuse à hauts débits, ces derniers atteignant souvent les régimes de la turbulence. Pour simplifier la problématique, on peut considérer, dans un premier temps, que le film liquide est tellement mince qu'il n'impacte pas la valeur de la perte de charge dans la colonne. Cette hypothèse simplificatrice revient donc à modéliser l'écoulement monophasique du gaz à hauts débits dans ces structures anisotropes que sont les garnissages.

Si la modélisation des écoulements inertiels dans les milieux poreux est relativement bien connue, la prise en compte de la turbulence d'un point de vue macroscopique est une problématique encore ouverte. En régime inertiel, les auteurs ont observé, dès sa formulation, une déviation aux prédictions de la fameuse loi de Darcy (Darcy (1856)). Pour prendre en compte cet écart aux prédictions darcéennes, Forchheimer (1901) a corrigé la loi de Darcy en lui ajoutant un terme supplémentaire dû aux effets inertiels. De nos jours, cette loi d'écoulement que l'on qualifie de Darcy-Forchheimer peut, le plus généralement possible, en 3D, s'écrire sous la forme suivante,

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}}{\mu_{\gamma mol}} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}) - \mathbf{F} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle, \quad (3.1)$$

où $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle$ correspond à la vitesse superficielle de l'écoulement, $\langle p_\gamma \rangle^\gamma$ à la pression moyenne, $\mu_{\gamma mol}$ et ρ_γ sont respectivement la viscosité et la densité du fluide, \mathbf{K} est le tenseur de perméabilité intrinsèque au milieu (il dépend des caractéristiques géométriques du milieu poreux comme la taille des pores et la surface effective) et \mathbf{F} correspond au tenseur de Forchheimer. Ce dernier est clairement fonction de l'écoulement, mais la forme de cette dépendance reste très controversée dans la littérature. Pour les milieux 1D homogènes, une forme couramment utilisée pour ce terme inertiel est $F \langle v_\gamma \rangle = \beta \rho_\gamma \| \langle v_\gamma \rangle \|^{p-1} \langle v_\gamma \rangle$. Une valeur proche de 2 est souvent admise pour

l'exposant p et des corrélations, comme celle proposée par Ergun (1952), permettent d'évaluer le coefficient β . Cependant, cette formulation en correction quadratique n'est pas démontrée théoriquement, et de nombreuses situations requièrent un exposant p différent de 2. Ainsi, pour les débits qui dépassent juste le domaine de validité de la loi de Darcy il a été démontré que $p = 3$ (Mei and Auriault (1991)). Ce régime particulier est qualifié de *régime inertiel faible* par opposition au *régime inertiel fort*. Dans ce dernier, des études expérimentales comme celle de Chauveteau and Thirriot (1965) ont montré que des valeurs de p comprises entre 1 et 2 étaient plus adaptées pour simuler l'écoulement à haut débit dans des structures poreuses simples. Par ailleurs, Lasseux et al. (2011) ont noté une différence selon que le milieu est ordonné ou désordonné, p tendant vers 2 dans ce dernier cas. Ils ont également évalué le tenseur de Forchheimer \mathbf{F} sur une cellule unitaire 2D simple en régime inertiel à partir de la méthode mise au point par Whitaker (1996) et ont montré que, contrairement à ce qui est généralement admis, \mathbf{F} n'est pas toujours symétrique : les coefficients de ce tenseur dépendent alors de l'orientation et de l'amplitude de l'écoulement à la petite échelle. Qu'en est-il dans le cas des garnissages structurés ? Quelle est la valeur de l'exposant p dans ce cas ? Qu'elle est la dépendance de \mathbf{F} à l'orientation de l'écoulement ? Afin de répondre à ces questions, nous avons appliqué la méthode de Whitaker (1996) aux cellules 3D formant un motif élémentaire de nos garnissages où l'écoulement a été simulé en régime laminaire dans une large gamme de débit. Les résultats sont présentés dans la partie 3.8.2 du projet d'article qui suit cette introduction. Il se trouve que $p = \frac{1}{2}$ semble la valeur la plus adaptée aux écoulements inertiels dans le type de cellule que nous avons étudié, que les coefficients non-diagonaux du tenseur \mathbf{F} sont négligeables, et que l'orientation du champ de vitesse impacte peu \mathbf{F} .

Nous avons vu que les débits dans les colonnes de distillation atteignaient souvent les régimes de la turbulence, et que la modélisation macroscopique de ces écoulements à très hauts débits était encore un problème ouvert. D'un côté, des expériences réelles comme celles de Chauveteau and Thirriot (1967) ou numériques comme celles de Kuwahara et al. (2006) étendent la validité d'une loi de type Darcy-Forchheimer aux régimes turbulents, ce modèle étant repris par l'ingénierie chimique qui l'utilise pour dimensionner et simuler leurs unités, de l'autre côté, de nombreux modèles numériques spécifiques à la prise en compte de la turbulence dans les milieux poreux ont émergé (voir les ouvrages de de Lemos (2006, 2012) pour une revue des différentes approches mises en oeuvre). Ces modèles numériques se présentent souvent sous la forme de modèles de turbulence classiques auxquels des termes de résistance à l'écoulement liée au milieu poreux sont ajoutés. Par ailleurs, la prise en compte de l'anisotropie de l'écoulement à grande échelle n'est pas toujours assurée avec ces approches. Dans le projet d'article que nous introduisons dans ce chapitre, nous présentons le modèle que nous avons développé pour simuler d'un point de vue macroscopique les écoulements à très hauts débits dans les milieux poreux. Le point de départ de notre analyse est un système de Naviers-Stokes que nous avons moyenné en temps. A partir d'une approximation de type Boussinesq, la viscosité de l'équation

de conservation de la quantité de mouvement devient alors une viscosité effective qui dépend de l'énergie et du taux de dissipation de la turbulence. Les méthodes RANS développées à partir d'une moyenne statistique des équations de Naviers-Stokes évaluent l'énergie et le taux de dissipation de la turbulence à partir d'équations supplémentaires qui, combinées aux équations de continuité et de quantité de mouvement temporellement moyennées, forment alors un système fermé (Wilcox (1994)). Dans nos développements cependant, nous supposons que cette viscosité spatialement distribuée résulte d'une simulation turbulente préalable, et le système microscopique que nous cherchons à moyenniser (d'un point de vue volumique) est seulement constitué des lois de conservation de quantité de mouvement et de la masse. Ceci a l'avantage d'étendre notre méthode à toutes les approches de turbulence basées sur une approximation de Boussinesq. La seconde étape consiste donc à appliquer la méthode de la prise de moyenne volumique au système d'équations ainsi obtenu. Il en résulte une équation macroscopique du type Darcy-Forchheimer semblable à l'Eq (3.1) où le tenseur de Forchheimer est évalué à partir d'un problème mathématique où le champ de vitesse statistiquement moyenné et la viscosité effective sont des données d'entrée. En résumé, nous avons développé une méthode pour évaluer \mathbf{F} à partir de l'interprétation de l'écoulement microscopique issu de simulations en régime turbulent à la petite échelle, quelque soit le modèle de turbulence RANS utilisé. Cette méthode peut-être vue comme une extension aux très hauts débits de celle de Whitaker (1996) pour les régimes inertiels. Notre théorie a ensuite été validée grâce à des simulations 2D et 3D puis appliquée à la caractérisation macroscopique de l'écoulement turbulent dans les garnissages. Les résultats que nous avons obtenus montrent que $p = 2$ pour les très hauts débits et que, à l'instar du régime purement inertiel, les coefficients non-diagonaux du tenseur \mathbf{F} sont négligeables et l'orientation du champ de vitesse semble peu impacter les valeurs de \mathbf{F} .

An anisotropic Darcy-Forchheimer equation including turbulence and its application to structured packings

Received ??; accepted after revision ??

abstract

In this paper, we propose a methodology to derive a macro-scale momentum equation that is free from the turbulence model chosen for the pore-scale simulations and that accounts for large-scale anisotropy. In our method, Navier-Stokes equations are first time-averaged to form a new set of equations involving an effective viscosity. The resulting balance equations are then up-scaled using a volume averaging methodology. This procedure gives a macro-scale Darcy-Forchheimer equation to which is associated a closure problem that can be used to evaluate the apparent permeability tensor. This approach is validated through 2D and 3D calculations. Finally, the method is used to evaluate the tensorial macro-scale properties for a gas flow through structured packings.

3.1 Introduction

Structured packings play a large role in chemical engineering processes involving gas-liquid separation such as air distillation unit or CO_2 absorption columns (Spiegel and Meier (2003); Olujic et al. (2009)). Such structures maximize the exchange surface between gas and liquid while pressure drops remain low enough. Generally, the columns are operated in the counter-current flow mode : a thin liquid gravity film is sheared by the turbulent flow of a gas phase. We can apprehend such a structure as a high porosity porous medium for which the pore-scale is the elementary pattern that constitutes the structure packing while the macro-scale may be assimilated to the packing scale. Due to this structured geometry, the relationship between pressure drop within the packing and velocity may be anisotropic and may depend not only on the gas velocity but also on the flow direction. Moreover, gas can flow at very high Reynolds number at the pore scale and the generated turbulence effects may lead to additional anisotropic behaviors at larger scales.

Attempts to model three-dimensional gas flow patterns at the packing scale are still scarce in the chemical engineering literature. Mostly, the classical approach consists in empirical correlations based on one-dimensional Darcy-Forchheimer's law (Bravo et al. (1986), Stichlmair et al. (1989), Billet and Schultes (1999)). In these works, authors evaluated the Ergun's coefficients (Ergun (1952)) as well as the exponent of the Forchheimer inertial correction by fitting

the pressure losses provided by laboratory-scale or industrial experiments. During the last decade, with the perspective of developing new types of column internal organs, researchers and manufacturers have used CFD simulations over a Representative Elementary Volume (REV) to evaluate the flow resistance in the direction of the column (Petre et al. (2003), Raynal et al. (2004)). To account for the anisotropy induced from the structured packing geometry, Mewes et al. (1999) introduced a flow resistance tensor that depends on the velocity magnitude. In the case of a packing made by corrugated sheets with an angle shift of 90° between two successive sheets, Raynal and Royon-Lebeaud (2007) assume that the flow resistance in the horizontal axis is equivalent to the one calculated in the column vertical axis. From measurements and CFD simulations over cut-out segments of packing with different orientations, Mahr and Mewes (2007) interpolate the anisotropic gas flow resistance tensor as a function of direction and magnitude of the gas velocity. When increasing the mass flow rate, eddies are generated and accurate turbulent simulations must be performed. In such structures, the $k - \epsilon$ model is known to result in erroneous gas flow patterns and models that account for turbulent anisotropy such as the $k - \omega$ family are preferred (Nikou and Ehsani (2008); Said et al. (2011); Rafati Saleh et al. (2011); Hosseini et al. (2012)).

However all these approaches involving pore-scale turbulent CFD simulations attempt to predict the overall pressure loss in the industrial columns but not to determine the full anisotropic flow macro-properties. Firstly, it is not granted that a Darcy-Forchheimer's law is still acceptable for high pore-scale Reynolds numbers. Secondly, direct numerical simulations are not handy to analyze full anisotropic effects. Let us examine the first problem. Indeed, the question of turbulence modeling in porous media remains a challenging field of study and has not received a complete, comprehensive theoretical solution. Experimental investigations (Chauveteau and Thirriot (1967)) performed over simple and complex porous media are in favor of a Darcy-Forchheimer model even in the case of pore-scale turbulence. Moreover, most of the empirical correlations that evaluate the overall dry pressure drop of distillation columns (Bravo et al. (1986), Stichlmair et al. (1989), Billet and Schultes (1999)) are based on such a formalism. Kuwahara et al. (2006) conducted numerical experiments for turbulent flows through a periodic array of square cylinders using Large Eddy Simulations (LES). They showed that, in such case, Darcy-Forchheimer equation may well predict the pressure losses. From a purely theoretical point of view, numerous attempts to model turbulence effects in porous media have emerged in the literature this last decade. One can find an exhaustive review in de Lemos (2006, 2012). Basically, two opposite approaches can be found in the literature concerning the derivation of macro-scale equations that model turbulence in a porous medium : either the use of volume averaging operator before time averaging is applied (Antohe and Lage (1997), Getachew et al. (2000)) or the application of time averaging followed by volume averaging (Masuoka and Takatsu (1996); Pinson et al. (2006); Chandesris et al. (2006)). Using the double decomposition concept introduced in Pedras and de Lemos (2000), Pedras and de Lemos (2001) demonstrate

that these two approaches are mathematically equivalent¹, i.e., the two additional viscous and drag terms in the momentum balance equation have identical final forms after the application of both operators. On this basis they proposed a macroscopic $k - \epsilon$ model. However, this model can neither account for anisotropic porous media nor for anisotropic turbulence, which is the case of structured packing for example. How can we upscale a $k - \omega$ SST model to account for turbulence anisotropy, for example?

In this paper, we propose a methodology to derive a macro-scale momentum equation that is free from the turbulence model chosen for the pore-scale simulations. In our method, Navier-Stokes equations are classically first time-averaged to form a new set of equations involving a variable viscosity. The resulting balance equations are then up-scaled in a restrictive sense developed later in this paper, using the volume averaging methodology as depicted in Whitaker (1999). This approach is then validated through 2D and 3D calculations. Finally, we will apply the method to evaluate the tensorial macro properties of gas flow through structured packings.

3.2 Pore-scale problem

The following development consider the flow of an incompressible single-phase (denoted γ -phase) in a saturated, rigid porous medium (denoted σ -phase). If the time and space mesh scales are small enough to represent all the flow patterns, including turbulence, then the Navier-Stokes equations may be used to simulate the flow through the solid structure

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_\gamma = 0 \text{ in } V_\gamma, \quad (3.2)$$

$$\rho_\gamma \frac{\partial \mathbf{v}_\gamma}{\partial t} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{v}_\gamma = -\nabla p_\gamma + \rho_\gamma \mathbf{g} + \nabla \cdot (\mu_{\gamma mol} \nabla \mathbf{v}_\gamma) \text{ in } V_\gamma, \quad (3.3)$$

$$\mathbf{v}_\gamma = \mathbf{0} \text{ at } \mathcal{A}_{\sigma\gamma}. \quad (3.4)$$

Up-scaling of this pore-scale problem has received a lot of attention in the literature . It has already been shown that the volume averaging of such a system at moderate Reynolds numbers leads to a Darcy-Forchheimer equation (Whitaker (1996)), in which the Forchheimer correction is not necessarily of the quadratic type, as previously suggested empirically by cite-Forchheimer. Indeed, it has been found that the first correction to Darcy's law, i.e., very small Reynolds number for classical porous media, is of cubic type (Wodié and Lévy (1991), on the basis of numerical simulations by Barrère (1990)). Subsequent investigations taking into account larger Reynolds numbers suggested various dependence for the Forchheimer correction (Skjetne and Auriault (1999); Lasseux et al. (2011)). The work of Lasseux et al. (2011) shows that these different behaviors can be retrieved following the derivation in Whitaker (1996), i.e., under the

1. This is not necessarily the case if one develop two successive "closures". The approximations involved may differ depending on the order of the two averaging procedures.

form of a generalized Darcy-Forchheimer equation. Here the word "generalized" emphasizes the fact that the correction is not necessarily of the quadratic type, and we will come back on this notion at the end of the paper. However in the case of turbulent regimes, Direct Numerical Simulations of the Navier-Stokes equations would require very small mesh sizes and time steps, which is often inaccessible because of heavy computer resources requirements. This has called for the development of turbulence models as discussed below.

Many turbulence models have been developed. A typical example is the Reynolds Averaged Navier-Stokes (RANS) model. This approach consists to time-average the Navier-Stokes equations Eqs (3.2)-(3.4). These equations are then transformed using the Reynolds decomposition of each field into the time-averaged contribution and a fluctuating quantity. The resulting equations involve more unknown variables (essentially in the term called the Reynolds stress tensors) than equations and consequently a closure is needed. The Boussinesq approximation introduces the eddy diffusivity concept to model the Reynolds stress tensor resulting from the time-averaging operation. All the RANS turbulence models ($k - \epsilon$, $k - \omega$..) attempt to evaluate this new viscosity using extra transport equations to represent the turbulent properties of the flow.

For example, the "Standard" $k - \epsilon$ model (Launder and Sharma (1974)), which is one of the most common turbulence models, adds to the Reynolds averaged momentum and continuity equations two additional equations to account for effects like convection and diffusion of turbulent energy. The first variable is the turbulent kinetic energy k and the second one is the turbulent dissipation ϵ . This latter variable determines the scale of the turbulence, whereas the first variable determines the turbulence energy. This model is formulated as

$$\nabla \cdot \bar{\mathbf{v}}_\gamma = 0 \quad \text{in } V_\gamma, \quad (3.5)$$

$$\rho_\gamma \left(\frac{\partial \bar{\mathbf{v}}_\gamma}{\partial t} + \bar{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma \right) = -\nabla \left(\bar{p}_\gamma + \frac{2}{3} \rho k \right) + \rho_\gamma \mathbf{g} + \nabla \cdot \left((\mu_{\gamma mol} + \mu_{\gamma turb}(\mathbf{r})) \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma \right) \quad \text{in } V_\gamma, \quad (3.6)$$

$$\rho_\gamma \left(\frac{\partial k}{\partial t} + \bar{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla k \right) = \nabla \cdot \left(\left(\mu_{\gamma mol} + \frac{\mu_{\gamma turb}(\mathbf{r})}{\sigma_k} \right) \nabla k \right) + \mu_{\gamma turb}(\mathbf{r}) \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma : \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma - \rho_\gamma \epsilon \quad \text{in } V_\gamma, \quad (3.7)$$

$$\rho_\gamma \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \bar{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \epsilon \right) = \nabla \cdot \left(\left(\mu_{\gamma mol} + \frac{\mu_{\gamma turb}(\mathbf{r})}{\sigma_\epsilon} \right) \nabla \epsilon \right) + C_1 \frac{\epsilon^2}{k} \mu_{\gamma turb}(\mathbf{r}) \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma : \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma - \rho_\gamma C_2 \frac{\epsilon^2}{k} \quad \text{in } V_\gamma. \quad (3.8)$$

In these equations, the overlines depict the statistical averaged quantities. The turbulent viscosity is then evaluated from the k and ϵ values through the relation

$$\mu_{\gamma turb}(\mathbf{r}) = \rho_\gamma C_\mu \frac{k^2}{\epsilon}. \quad (3.9)$$

This system of equations requires some additional values to be entirely closed. A common set

of values is (Wilcox (1994)) : $C_\mu = 0.09$; $C_1 = 1.44$; $C_2 = 1.92$; $\sigma_k = 1$; $\sigma_\epsilon = 1$.

Some authors (see Pedras and de Lemos (2001) for instance) attempt to volume average this set of equations in order to propose a macroscopic version of the $k - \epsilon$ turbulence model in porous media. However, their methods are restricted to isotropic media and cannot account for large scale anisotropy. Moreover, they are fully dependent of the chosen model for the microscopic calculations, i.e., the $k - \epsilon$ model. The developments should be carried on again if one wishes to up-scale one of the numerous versions of the $k - \epsilon$ or a $k - \omega$ SST model.

In this paper, we propose a complementary and original approach assuming that all the turbulence properties required to fully represent the flow are incorporated within the variable viscosity $\mu_\gamma(\mathbf{r})$ resulting from turbulent simulations at the scale of the REV. In this analysis, we do not take into consideration the energy and dissipation equations, which brings an important simplification to the problem that will allow us to investigate more deeply anisotropic effects by up-scaling only the momentum and continuity equations (this time with a spatially variable viscosity). Hence, the mathematical boundary value problem can be summed up as

$$\nabla \cdot \bar{\mathbf{v}}_\gamma = 0 \text{ in } V_\gamma, \quad (3.10)$$

$$\rho_\gamma \frac{\partial \bar{\mathbf{v}}_\gamma}{\partial t} + \rho_\gamma \bar{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma = -\nabla \bar{p}_\gamma^* + \rho_\gamma \mathbf{g} + \nabla \cdot (\mu_\gamma(\mathbf{r}) \nabla \bar{\mathbf{v}}_\gamma) \text{ in } V_\gamma, \quad (3.11)$$

$$\bar{\mathbf{v}}_\gamma = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\sigma\gamma}. \quad (3.12)$$

Here we have introduced the notion of turbulent pressure such as $\bar{p}_\gamma^* = \bar{p}_\gamma + \frac{2}{3}k$.

It is important to notice that all RANS models can be written following such a formulation. We also note that, despite a different origin of the derivation, the momentum equation in Large Eddy Simulations (LES) models can also be written under this effective viscosity formulation. In short, our approach offers a general framework to *interpret* turbulence modeling in porous media in terms of a macro-scale model.

3.3 Volume averaging

The problem formed by Eqs (3.10)-(3.12) is reminiscent of the problem studied in Whitaker (1996) with the additional difficulty that viscosity varies in space. Therefore, we will follow the lines of development of this paper, with the necessary modifications. We will not detail all steps relevant to the volume averaging procedure and we refer the reader, for instance to Whitaker (1999), for further general details. We recall in this section the main definitions and theorems necessary to develop the macroscopic model from the pore-scale equations using the volume averaging methodology. We consider the averaging volume as illustrated in Fig. 3.1.

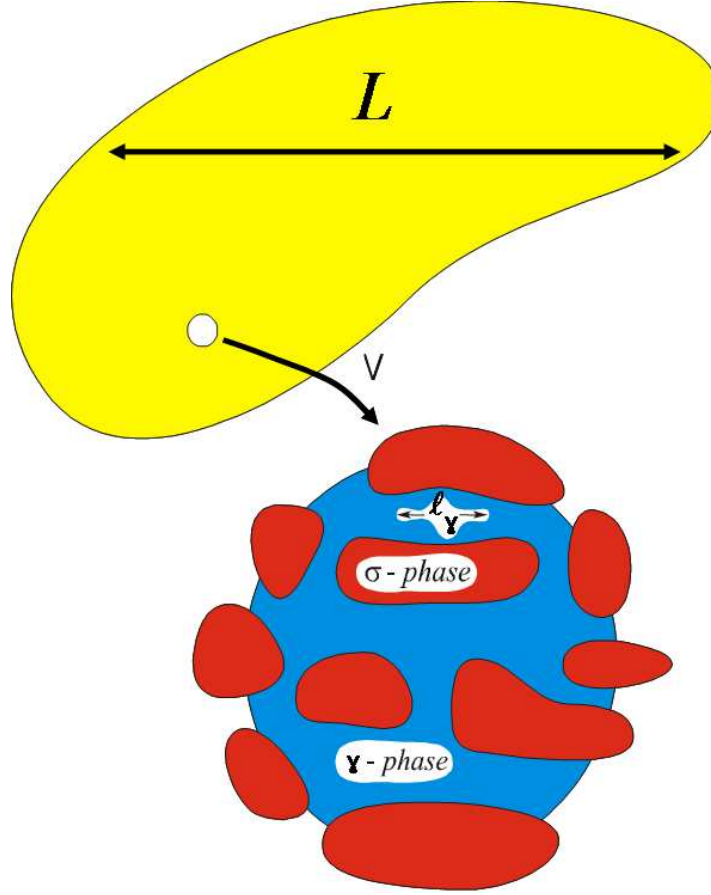


FIGURE 3.1: Schematic representation of the hierarchy of length scales of a model porous medium and of a typical representative volume. This figure illustrates the three characteristic length-scales involved in this system : (1) the macro-scale, L ; (2) the radius of the averaging volume, R ; and (3) the average pore size, l_γ . Throughout this paper we use the following assumption : $l_\gamma \ll R \ll L$.

For a tensor ψ_γ (order 0, 1 or 2) associated with the γ -phase, we define the superficial average as

$$\langle \psi_\gamma \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_\gamma} \psi_\gamma dV, \quad (3.13)$$

and the corresponding intrinsic phase average as

$$\langle \psi_\gamma \rangle^\gamma = \frac{1}{V_\gamma} \int_{V_\gamma} \psi_\gamma dV. \quad (3.14)$$

Both are connected by

$$\langle \psi_\gamma \rangle = \varepsilon_\gamma \langle \psi_\gamma \rangle^\gamma \quad \text{with} \quad \varepsilon_\gamma = \frac{V_\gamma}{V}, \quad (3.15)$$

where V_γ is the volume of the γ -phase and ε_γ is the porosity of the medium. Throughout this paper, the porous medium is homogeneous and ε_γ does not vary.

The phase variable ψ_γ is classically expressed using the following decomposition

$$\psi_\gamma = \langle \psi_\gamma \rangle^\gamma + \tilde{\psi}_\gamma. \quad (3.16)$$

Further, from Eq (3.16) and Eq (3.13) we approximatively have

$$\langle \tilde{\psi}_\gamma \rangle \simeq 0. \quad (3.17)$$

To interchange integrals and derivatives, we will use the following two theorems. For spatial averaging, we have

$$\langle \nabla \psi_\gamma \rangle = \nabla \langle \psi_\gamma \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \psi_\gamma d\mathcal{A}, \quad (3.18)$$

for the gradient operator and a similar expression for the divergence operator. The integrals in this equality express the interfacial effects typical of porous media physics. For time derivatives, direct application of the Reynolds transport theorem for static boundaries yields

$$\left\langle \frac{\partial \psi_\gamma}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle \psi_\gamma \rangle}{\partial t}. \quad (3.19)$$

Applying the spatial averaging theorem Eq (A.14) to $\psi_\gamma = 1$ and considering that the porosity is constant leads to the very useful lemma

$$\nabla \varepsilon_\gamma = -\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} d\mathcal{A} = 0. \quad (3.20)$$

3.3.1 Continuity equation

The mere application of the volume averaging theorem Eq (3.18) to the continuity equation Eq (3.10) leads to

$$\nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mathbf{v}_\gamma d\mathcal{A} = 0. \quad (3.21)$$

Moreover, from the no-slip velocity boundary condition at the fluid-solid interface and the relation Eq (3.15), we deduce that

$$\nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma = 0, \quad (3.22)$$

Note that, for sake of clarity, we have removed the overline notations that depict the time-averaged values. The reader must keep in mind that the pressure and velocity fields considered in the rest of the development are in reality time-averaged fields.

3.3.2 Momentum conservation

We now form the averaged momentum balance equation by successive applications of the volume averaging theorem. We start from the conservative form of Eq (3.11) for the γ -phase

$$\underbrace{\frac{\partial \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \mathbf{v}_\gamma)}_{(LHS)} = \underbrace{-\nabla p_\gamma + \rho_\gamma \mathbf{g} + \nabla \cdot (\mu_\gamma(\mathbf{r}) \nabla \mathbf{v}_\gamma)}_{(RHS)} \text{ in } V_\gamma. \quad (3.23)$$

We remind the reader that, in this equation, the velocity and pressure fields are time averaged and that we have defined an effective viscosity $\mu_\gamma(\mathbf{r})$ that combines both molecular ($\mu_{\gamma mol}$) and turbulent ($\mu_{\gamma turb}(\mathbf{r})$) viscosities. This latter viscosity is a known field obtained from micro-scale turbulent simulations. Hence, in our analysis, $\mu_\gamma(\mathbf{r})$ is an input scalar field that may strongly vary within the REV.

The average of the left hand side leads to

$$\langle LHS \rangle = \frac{\partial \rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \mathbf{v}_\gamma \rangle), \quad (3.24)$$

with the decomposition $\mathbf{v}_\gamma = \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma$ and $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = \varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$, it becomes

$$\langle LHS \rangle = \frac{\partial \varepsilon_\gamma \rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle), \quad (3.25)$$

using the macroscopic continuity equation Eq (3.22) it can be transformed to a non-conservative form :

$$\langle LHS \rangle = \varepsilon_\gamma \rho_\gamma \frac{\partial \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} + \varepsilon_\gamma \rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle). \quad (3.26)$$

We continue the development with the averaging of the right hand side. This part is close to the derivation of Darcy's law from the Stokes problem proposed by Whitaker (1986a) and extensively presented in other works (Quintard and Whitaker (1994b,c,d); Valdès-Parada et al. (2009)). Since, in our analysis, we account for a variable viscosity, the derivation of the averaged equation from the micro-scale problem is a little bit different than usual. The application of the volume averaging theorem Eq (3.18) gives

$$\langle RHS \rangle = -\nabla \langle p_\gamma \rangle - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_\gamma p_\gamma d\mathcal{A} + \langle \rho_\gamma \mathbf{g} \rangle + \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \mathbf{v}_\gamma \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_\gamma \nabla \mathbf{v}_\gamma d\mathcal{A}. \quad (3.27)$$

In this relation we can note that

$$\langle \mu_\gamma \nabla \mathbf{v}_\gamma \rangle = \varepsilon_\gamma \langle \mu_\gamma \rangle^\gamma \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle, \quad (3.28)$$

and

$$\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_{\gamma} \nabla \mathbf{v}_{\gamma} d\mathcal{A} = \langle \nabla \tilde{\mu}_{\gamma} \rangle \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} - \langle \mu_{\gamma} \rangle^{\gamma} \nabla \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} \cdot \nabla \varepsilon_{\gamma} + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_{\gamma} \nabla \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} d\mathcal{A}, \quad (3.29)$$

where we have used the relation,

$$\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \tilde{\mu}_{\gamma} d\mathcal{A} = \langle \nabla \tilde{\mu}_{\gamma} \rangle. \quad (3.30)$$

We search an averaged equation in terms of the intrinsic average velocity and pressure $\langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma}$ and $\langle p_{\gamma} \rangle^{\gamma}$. Using the spatial decomposition, Eq (3.16) for \mathbf{v}_{γ} and p_{γ} and the relation Eq 3.15 that relates intrinsic and superficial averages, one can eventually obtain :

$$\begin{aligned} \langle RHS \rangle = & -\varepsilon_{\gamma} \nabla \langle p_{\gamma} \rangle^{\gamma} + \varepsilon_{\gamma} \rho_{\gamma} \mathbf{g} + \varepsilon_{\gamma} \nabla \cdot (\langle \mu_{\gamma} \rangle^{\gamma} \nabla \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma}) + \nabla \cdot \langle \mu_{\gamma} \nabla \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \rangle + \langle \nabla \tilde{\mu}_{\gamma} \rangle \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} \\ & + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\tilde{p}_{\gamma} \mathbf{I} + \mu_{\gamma} \nabla \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma}] d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (3.31)$$

Combining LHS and RHS gives us the averaged equation :

$$\begin{aligned} \rho_{\gamma} \frac{\partial \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma}}{\partial t} + \rho_{\gamma} \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} + \varepsilon_{\gamma}^{-1} \nabla \cdot (\rho_{\gamma} \langle \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \rangle) \\ = -\nabla \langle p_{\gamma} \rangle^{\gamma} + \rho_{\gamma} \mathbf{g} + \nabla \cdot (\langle \mu_{\gamma} \rangle^{\gamma} \nabla \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma}) + \varepsilon_{\gamma}^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_{\gamma} \nabla \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \rangle + \varepsilon_{\gamma}^{-1} \langle \nabla \tilde{\mu}_{\gamma} \rangle \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} \\ + \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\tilde{p}_{\gamma} \mathbf{I} + \mu_{\gamma} \nabla \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma}] d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (3.32)$$

We notice that, if we assume that $\tilde{\mu}_{\gamma} = 0$, then we recover the formulation proposed by Whitaker (1996) in the case of inertial flow where the viscosity is constant.

At this stage of the development, the averaged momentum equations are not under a closed form since velocity and pressure deviations having microscopic length-scale are still present. The classical strategy is to derive a problem that governs the deviations, then to represent them in terms of average quantities (the so-called closure problem), and, finally, to insert these representations into the conservation equation Eq (3.32) to get the closed form of the averaged equations.

3.4 Mathematical problem governing the deviations

The aim of this section is to develop the relationships between spatial deviations and average quantities in order to close the macroscopic model.

3.4.1 Continuity equation

We form the equation that governs the deviation continuity equation in γ -phase by subtracting Eq (3.22) from Eq (3.10). We obtain,

$$\nabla \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\gamma = 0 \text{ in } V_\gamma. \quad (3.33)$$

3.4.2 Momentum equation

We can now follow an equivalent procedure for the momentum balance. Subtracting Eq (3.32) from Eq (3.23) and considering the decompositions yields in

$$\begin{aligned} \rho_\gamma \frac{\partial \tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\partial t} + \rho_\gamma (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{v}_\gamma - \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) - \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) \\ = -\nabla \tilde{p}_\gamma + \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \mathbf{v}_\gamma - \langle \mu_\gamma \rangle^\gamma \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) - \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle - \varepsilon_\gamma^{-1} \langle \nabla \tilde{\mu}_\gamma \rangle \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \\ - \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\tilde{p}_\gamma \mathbf{l} + \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma] d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (3.34)$$

Considering that

$$\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{v}_\gamma - \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma = \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma, \quad (3.35)$$

and that

$$\nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \mathbf{v}_\gamma - \langle \mu_\gamma \rangle^\gamma \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) = \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \tilde{\mu}_\gamma \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) = \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma) + (\nabla \tilde{\mu}_\gamma) \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \tilde{\mu}_\gamma \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma, \quad (3.36)$$

one can reformulate Eq (3.35) as

$$\begin{aligned} \rho_\gamma \frac{\partial \tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\partial t} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \rho_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma - \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) \\ = -\nabla \tilde{p}_\gamma + \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma) + (\nabla \tilde{\mu}_\gamma - \langle \nabla \tilde{\mu}_\gamma \rangle^\gamma) \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \tilde{\mu}_\gamma \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma - \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle \\ - \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\tilde{p}_\gamma \mathbf{l} + \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma] d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (3.37)$$

We can realize some simplifications based on the assumption of length-scale separation. Indeed, if we note l_γ and L respectively the characteristic dimensions associated to microscopic and macroscopic spatial variations, we have the length scale constraint

$$l_\gamma \ll L. \quad (3.38)$$

Under these circumstances, the convective and the dispersive terms that appear in the left hand

side of Eq (3.37) can be estimated by

$$\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma = O\left(\rho_\gamma \frac{\max(\mathbf{v}_\gamma)^2}{l_\gamma}\right), \quad (3.39)$$

$$\rho_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma = O\left(\rho_\gamma \frac{\max(\mathbf{v}_\gamma)^2}{L}\right), \quad (3.40)$$

$$\varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) = O\left(\rho_\gamma \frac{\max(\mathbf{v}_\gamma)^2}{L}\right). \quad (3.41)$$

Therefore, from the length-scale separation assumption Eq (3.38) we deduce

$$\rho_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \sim \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) \ll \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma. \quad (3.42)$$

Moreover, according to Quintard and Whitaker (1994a), we can assume time scales separation as well, which leads us to neglect the accumulation term in Eq (3.37).

The terms in the right hand side of Eq (3.37) can be estimated by

$$\nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma) = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{l_\gamma^2}\right), \quad (3.43)$$

$$(\nabla \tilde{\mu}_\gamma - \langle \nabla \tilde{\mu}_\gamma \rangle^\gamma) \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{l_\gamma L}\right), \quad (3.44)$$

$$\tilde{\mu}_\gamma \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{L^2}\right), \quad (3.45)$$

$$\varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{l_\gamma L}\right), \quad (3.46)$$

$$\frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma d\mathcal{A} = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{l_\gamma^2}\right). \quad (3.47)$$

Then we deduce that

$$\tilde{\mu}_\gamma \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \ll (\nabla \tilde{\mu}_\gamma - \langle \nabla \tilde{\mu}_\gamma \rangle^\gamma) \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \sim \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle \ll \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma) \sim \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma d\mathcal{A}. \quad (3.48)$$

Finally, after these simplifications, the closure equation for the momentum balance takes the form

$$\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma = -\nabla \tilde{p}_\gamma + \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma) - \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\tilde{p}_\gamma \mathbf{I} + \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma] d\mathcal{A}. \quad (3.49)$$

It must be noticed that, in spite of the apparent similarity with the equation derived by Whitaker (1996) in the case of laminar flow, the above equation deals with time-averaged quantities and variable viscosity.

3.4.3 Boundary conditions

The boundary condition associated with this deviation problem is obtained using $\mathbf{v}_\gamma = \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma$ into Eq (3.12)

$$\tilde{\mathbf{v}}_\gamma = -\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}. \quad (3.50)$$

In addition, we have the condition Eq (3.17) which says that average of the deviations must be zero

$$\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle^\gamma = 0 ; \langle \tilde{p}_\gamma \rangle^\gamma = 0. \quad (3.51)$$

In order to solve the closure problem in a representative region of the porous medium instead of considering the entire macro-structure, we consider the model of a spatially periodic system. Hence, we add the following periodic conditions to this deviation problem,

$$\tilde{\mathbf{v}}_\gamma(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i) = \tilde{\mathbf{v}}_\gamma(\mathbf{r}) ; \tilde{p}_\gamma(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i) = \tilde{p}_\gamma(\mathbf{r}) ; i = 1, 2, 3. \quad (3.52)$$

3.4.4 Deviation representations

Clearly $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$ appears as a nonhomogeneous terms in the boundary conditions for the closure problem, and this needs to be considered in the representation for the spatial deviations. We assume that the averaged velocity $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$ generates perturbations in each direction. The generated deviations can be very different with regards to the direction. Hence, to account for this potential anisotropy, we propose the following mapping :

$$\tilde{\mathbf{v}}_\gamma = \mathbf{B}_\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma ; \tilde{p}_\gamma = \mathbf{b}_\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma. \quad (3.53)$$

where \mathbf{B}_γ is a tensor while \mathbf{b}_γ is a vector. This representation differs slightly from the one usually proposed in the literature (Whitaker (1986a, 1996); Valdès-Parada et al. (2009)) since the viscosity is not included in the pressure representation. We could have, of course, introduced a reference viscosity in the second equation in Eq (3.53) to recover the notations of the cited authors. However, that would not bring any interesting simplifications in the closure problem which is marked by the spatial variations of $\mu_\gamma(\mathbf{r})$, contrary to the cited literature. Authors use such a representation to obtain a permeability tensor that is independent from the fluid properties. However, in our study, the viscosity is space-dependent and consequently cannot be pulled out from integrals.

3.5 Closure problem

The next step of our development is to establish the mathematical problem that will allow us to determine the closure variable \mathbf{B}_γ and \mathbf{b}_γ . This problem will be solved over a periodic representative unit-cell. It is obtained by substituting the above suggested mapping Eq (3.53) into the deviations problem of Section 3.4. The identification of each term involving $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$ provides the following closure problem

$$\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{B}_\gamma = -\nabla \mathbf{b}_\gamma + \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \mathbf{B}_\gamma) - \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\mathbf{b}_\gamma \mathbf{I} + \mu_\gamma \nabla \mathbf{B}_\gamma] d\mathcal{A} \quad \text{in } V_\gamma, \quad (3.54)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}_\gamma = \mathbf{0} \quad \text{in } V_\gamma, \quad (3.55)$$

$$\mathbf{B}_\gamma = -\mathbf{I} \quad \text{at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (3.56)$$

$$\mathbf{B}_\gamma(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i) = \mathbf{B}_\gamma(\mathbf{r}) ; \quad \mathbf{b}_\gamma(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i) = \mathbf{b}_\gamma(\mathbf{r}) ; \quad i = 1, 2, 3, \quad (3.57)$$

$$\langle \mathbf{B}_\gamma \rangle^\gamma = \mathbf{0} ; \quad \langle \mathbf{b}_\gamma \rangle^\gamma = \mathbf{0}. \quad (3.58)$$

At this point of the development, we derived an integro-differential boundary value problem. We recognize a Navier-Stokes-like problem that involves additionnal source terms.

The resolution of such a problem can be simplified using a special change of variables. This will allow to free oneself from the presence of integrals and other source terms within the governing equations. We propose the following change of variables :

$$\mathbf{B}_\gamma^0 = (\mathbf{B}_\gamma + \mathbf{I}) \cdot \mathbf{C}_\gamma^{-1} ; \quad \mathbf{b}_\gamma^0 = \mathbf{b}_\gamma \cdot \mathbf{C}_\gamma^{-1}, \quad (3.59)$$

where we have defined \mathbf{C}_γ as

$$\mathbf{C}_\gamma = \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\mathbf{b}_\gamma \mathbf{I} + \mu_\gamma \nabla \mathbf{B}_\gamma] d\mathcal{A}. \quad (3.60)$$

Finally, we obtain the following closure problem

$$\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{B}_\gamma^0 = -\nabla \mathbf{b}_\gamma^0 + \nabla \cdot (\mu_\gamma \nabla \mathbf{B}_\gamma^0) - \mathbf{I} \quad \text{in } V_\gamma, \quad (3.61)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}_\gamma^0 = \mathbf{0} \quad \text{in } V_\gamma, \quad (3.62)$$

$$\mathbf{B}_\gamma^0 = \mathbf{0} \quad \text{at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (3.63)$$

$$\mathbf{B}_\gamma^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i) = \mathbf{B}_\gamma^0(\mathbf{r}) ; \quad \mathbf{b}_\gamma^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i) = \mathbf{b}_\gamma^0(\mathbf{r}) ; \quad i = 1, 2, 3. \quad (3.64)$$

The tensor \mathbf{C}_γ is a result of the simulation and can be evaluated through the average value of \mathbf{B}_γ^0 . Moreover, to insure uniqueness of the solution, we must constrain the \mathbf{b}_γ^0 field, which gives :

$$\langle \mathbf{B}_\gamma^0 \rangle^\gamma = \mathbf{C}_\gamma^{-1} ; \langle \mathbf{b}_\gamma^0 \rangle^\gamma = 0. \quad (3.65)$$

3.6 Closed form of the averaged momentum equation

We form the macroscopic equation by introducing the representation of the deviation as a function of the average velocity, Eq (3.53) within the non-closed averaged momentum equation, Eq (3.32). However, before to carry out such an operation, we will analyze the order of magnitude of each term in order to simplify this equation. We recall here the non-closed macroscopic equation,

$$\begin{aligned} \rho_\gamma \frac{\partial \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} + \rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) \\ = -\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma + \rho_\gamma \mathbf{g} + \nabla \cdot (\langle \mu_\gamma \rangle^\gamma \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) + \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle + \varepsilon_\gamma^{-1} \langle \nabla \tilde{\mu}_\gamma \rangle \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \\ + \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\tilde{p}_\gamma \mathbf{l} + \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma] d\mathcal{A}, \end{aligned} \quad (3.66)$$

For the term in the right hand side of Eq (3.66) we have the following estimations

$$\frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma d\mathcal{A} = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{l_\gamma^2}\right), \quad (3.67)$$

$$\nabla \cdot (\langle \mu_\gamma \rangle^\gamma \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{L^2}\right), \quad (3.68)$$

$$\varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{l_\gamma L}\right), \quad (3.69)$$

$$\varepsilon_\gamma^{-1} \langle \nabla \tilde{\mu}_\gamma \rangle \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma = O\left(\frac{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)}{l_\gamma L}\right). \quad (3.70)$$

Consequently, based on the length-scale separation assumption Eq (3.38) and the estimation Eq (3.47) we deduce that

$$\nabla \cdot (\langle \mu_\gamma \rangle^\gamma \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) \ll \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle \sim \varepsilon_\gamma^{-1} \langle \nabla \tilde{\mu}_\gamma \rangle \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \ll \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma d\mathcal{A}. \quad (3.71)$$

We now focus on the evaluation of the order of magnitude of the term in the left hand side of Eq (3.66) in front of the integral Eq (3.67)

$$\rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma / \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma d\mathcal{A} = O \left(\rho_\gamma \frac{\max(\mathbf{v}_\gamma)^2}{L} \frac{l_\gamma^2}{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)} \right) = O \left(Re_{\gamma_{turb}} \frac{l_\gamma}{L} \right), \quad (3.72)$$

$$\varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) / \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \mu_\gamma \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\gamma d\mathcal{A} = O \left(\rho_\gamma \frac{\max(\mathbf{v}_\gamma)^2}{L} \frac{l_\gamma^2}{\max(\mu_\gamma) \max(\mathbf{v}_\gamma)} \right) = O \left(Re_{\gamma_{turb}} \frac{l_\gamma}{L} \right). \quad (3.73)$$

Clearly, these terms can be neglected when the constraint,

$$Re_{\gamma_{turb}} = \frac{\rho_\gamma \max(\mathbf{v}_\gamma) l_\gamma}{\max(\mu_\gamma)} \ll \frac{L}{l_\gamma}, \quad (3.74)$$

is satisfied, which is often true if the length scales are separated enough. From similar arguments, we can also neglect the accumulation term. All these simplifications give,

$$0 = -\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma + \rho_\gamma \mathbf{g} + \left(\frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\sigma}} \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot [-\mathbf{b}_\gamma \mathbf{I} + \mu_\gamma \nabla \mathbf{B}_\gamma] d\mathcal{A} \right) \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma. \quad (3.75)$$

Identifying the integral as \mathbf{C}_γ it becomes,

$$0 = -\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma + \rho_\gamma \mathbf{g} + \varepsilon_\gamma^{-1} \mathbf{C}_\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle. \quad (3.76)$$

We can decompose the tensor \mathbf{C}_γ as

$$\varepsilon_\gamma^{-1} \mathbf{C}_\gamma = -\mu_{\gamma_{mol}} \mathbf{K}^{-1} \cdot (\mathbf{I} + \mathbf{F}), \quad (3.77)$$

to obtain a similar form of Darcy-Forchheimer equation derived by Whitaker (1996). However, in our case, \mathbf{F} not only accounts for inertial effects but for turbulence effects as well.

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}}{\mu_{\gamma_{mol}}} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}) - \mathbf{F} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle \quad (3.78)$$

In this equation,

- one must keep in mind that $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle$ depicts the volume average of a local time-averaged velocity field and that $\langle p_\gamma \rangle^\gamma$ is the volume average of a local time-averaged local field described as a turbulent pressure,
- \mathbf{K} is the permeability tensor and has the dimension of m^2 . It is intrinsic to the porous medium pore-scale geometry. It is symmetric and positive definite (Ene and Sanchez-Palencia (1975)). It can be evaluated using the closure problem Eq (3.61) to Eq (3.65) when $\mathbf{v}_\gamma = 0$ and $\mu_\gamma(\mathbf{r}) = \mu_{\gamma_{mol}}$,
- \mathbf{F} is the Forchheimer correction tensor (dimensionless) that can be evaluated through

the closure problem once \mathbf{K} is already computed and \mathbf{v}_γ and with $\mu_\gamma(\mathbf{r})$ resulting from turbulent microscopic simulations. Note that \mathbf{F} may strongly depend on these input fields and is not necessarily proportional to the velocity, as in the classical Forchheimer equation. Therefore, it must be tabulated based on several microscopic simulation. There is not in general a simple relationship allowing to extrapolate \mathbf{F} between two different velocity field realizations. Therefore, tabulation must account for velocity magnitude and its orientation. At the opposite of what is generally believed, Lasseux et al. (2011) proved that \mathbf{F} is not always symmetric.

We can also directly evaluate an apparent permeability tensor \mathbf{K}^* (Edwards et al. (1990)) defined as

$$\varepsilon_\gamma^{-1} \mathbf{C}_\gamma = -\mu_{\gamma mol} \mathbf{K}^{*-1} \quad (3.79)$$

From this definition, one can easily note that \mathbf{K}^* varies continuously with regards to the Reynolds number. This point is consistent with the experimental studies by Chauveteau and Thirriot (1967). Moreover, all the remarks concerning \mathbf{F} are also available for \mathbf{K}^* . With such a definition, the macroscale momentum equation becomes,

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}^*}{\mu_{\gamma mol}} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}) \quad (3.80)$$

Note that, at this point, we could have chosen another reference viscosity and that this would have changed the definition of \mathbf{K}^* .

We insist on the fact that to a microscopic velocity and a microscopic viscosity fields correspond an apparent permeability tensor \mathbf{K}^* . Therefore, all the tensor components depend on these local fields. They are consequently functions of the velocity magnitude and orientation and must be tabulated with regards to these two parameters.

3.7 Validation of the approach

We present in this section two-dimensional simulations with the objective to validate the mathematical up-scaling procedure developed in this paper. Reference 3D simulations will be introduced in the next section.

3.7.1 Principle of the validation

To validate an up-scaling methodology, a common method consists in a comparison between the pore-scale numerical simulations of the flow over a geometry made of several representative unit-cells and the macro-scale model. Because of the computing cost, this method is often restricted to simple unit cell geometry like stratified media or arrays of beads. We

propose another methodology, that, to our knowledge has never been used to validate an up-scaling process. The main point of this validation is centered upon the direct evaluation of the linear pressure drop itself as will be described later. This pressure drop can be estimated from two different manners. The first one directly results from the simulation of the Reynolds Average Naviers-Stokes equations over a Representative Elementary Volume. Due to the cyclic feature of the REV, this pressure loss corresponds to the overall macro-scale pressure drop. We will call it "*direct pressure drop*". The second one derives from an application of the Darcy-Forchheimer's law Eq (3.80) resulting from the up-scaling analysis. In this case, we will talk about "*reconstructed pressure drop*". This validation method itself suggests that the closure problem Eq (3.61) to Eq (3.65) is somehow an interpretation of the RANS simulation results. From a practical point of view, simulations performed to validate our method are realized in two steps :

1. First, we carry out what we call a direct simulation over the REV in order to obtain the local velocity and viscosity fields. We impose a macroscopic pressure drop per unit length by adding a vector source term $\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{direct} \mathbf{e}_0$ into the momentum equation of the turbulence model. The vector \mathbf{e}_0 determines the local fields orientation. Direct simulations are performed using the finite volume CFD toolbox OpenFOAM®. Gas flow is assumed to be steady-state within the REV. Therefore, we use the SIMPLE pressure-velocity coupling procedure proposed by Patankar (1980) to solve the RANS problem. We adapt the existing *simpleFoam* solver to integrate the pressure drop source term in the momentum equation. The resulting velocity field is then volume averaged to obtain $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle_{direct}$.
2. In a second stage, the closure problem, as defined by Eqs (3.61) - (3.65), is solved from the previous velocity and viscosity fields to evaluate \mathbf{K}^* . As for the first step, we program the equations in the framework of the OpenFOAM® platform using a SIMPLE procedure. The inputs are the velocity and turbulent viscosity fields computed at the first step. The output consists in the apparent permeability tensor \mathbf{K}^* .

Finally, to validate the results, we compare the direct pressure drop of step (1) (i.e., $\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{direct} \mathbf{e}_0$) with regards to the pressure drop reconstructed from Eq (3.80). Hence, the relation

$$\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{direct} \mathbf{e}_0 = \left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{reconstructed} \mathbf{e}_0 = -\mu_{\gamma mol} \left(\mathbf{K}^{*-1} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle_{direct} \right) \quad (3.81)$$

must be satisfied. The principle of the validation is sketched in Fig.3.2.

3.7.2 Turbulent flow through a straight tube

The first validation test consists in the up-scaling of a turbulent flow through a straight tube. In 2D, the tube is assimilated to a rectangle 1 *cm* thick. For this simple geometry, we define the REV as the vertical cross-sections. Although the apparent permeability is well-known

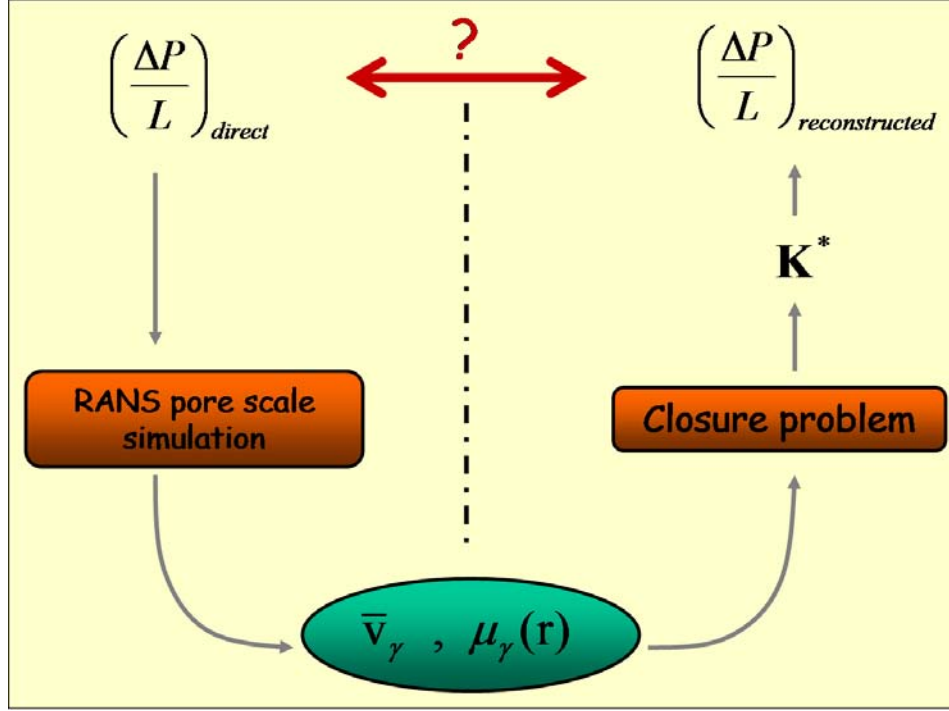


FIGURE 3.2: Principle of the validation methodology. In one hand, the local fields are computed from numerical simulations with a pressure drop as source term. In another hand, the apparent permeability tensor is obtained from the calculation of the closure problem, and the pressure drop is then reconstructed using Darcy-Forchheimer law. Both pressure loss values should match to validate the upscaling.

and can be easily calculated in the range of inertial flows, it is not possible to obtain analytical calculations when turbulence is present. Consequently, even for as simple geometries as straight tubes, numerical simulations are necessary to account for turbulence effects. The turbulent flow is statistically steady and oriented along the x -axis.

We use the "Standard" $k - \epsilon$ model as described in Section 3.2 to obtain the microscopic fields. We use the following fluid properties, $\rho_\gamma = 1 \text{ kg/m}^3$, $\mu_{\gamma_{mol}} = 10^{-5} \text{ kg/m/s}$ and we carry out calculations for pressure drops in the range $[14; 70 \text{ Pa/m}]$, which corresponds to Reynolds numbers between 2600 and 7000.

Then, in a second time, the calculation of the closure problem, Eqs (3.61)-(3.65), provides the apparent permeability tensor. As expected from the geometry shape, only the diagonal coefficients are non-zero. Hence, we can reconstruct the pressure drop with

$$\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{reconstructed} = -\mu_{\gamma_{mol}} \frac{\langle v_{\gamma_x} \rangle_{direct}}{K_{xx}^*} \quad (3.82)$$

The comparison between both results is shown in Fig.3.3. We can observe that the "direct" and "reconstructed" pressure drops are in fairly good agreement, which is an argument toward the validation of the macroscale model proposed in this paper.

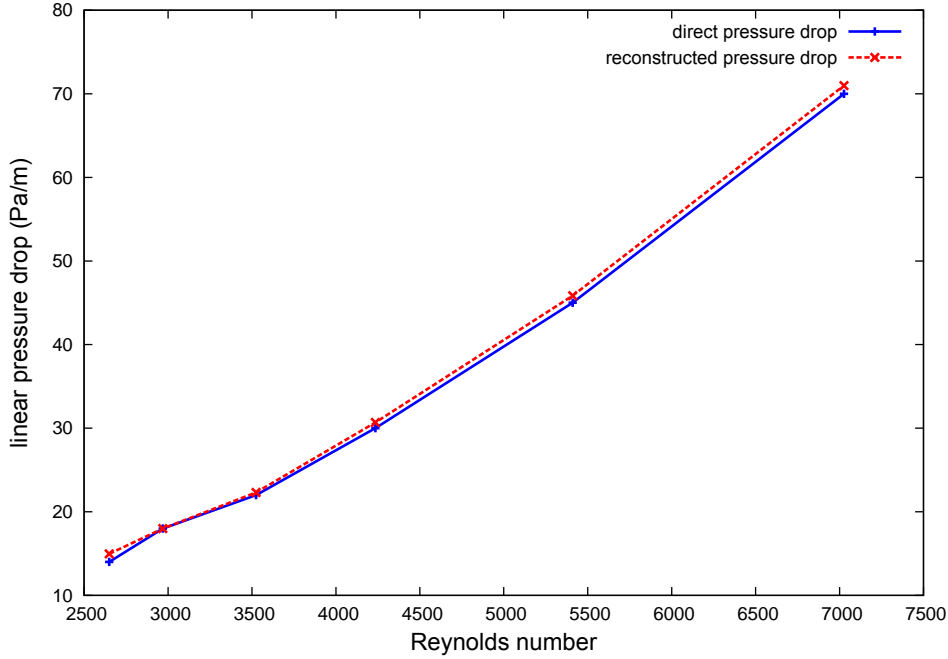


FIGURE 3.3: Comparison of the linear pressure drops, $\frac{\Delta P}{L}$, evaluated through the direct and the reconstructed methodologies for the case of the tube. Both results are in good agreement

3.7.3 Turbulent flow through a simple array of beads

In this section we analyse the upscaling of turbulent flows through a two-dimensional array of beads. The equations for the microscopic flow and the closure problem are numerically solved inside the REV depicted in Fig.3.4. With such a geometry, the porosity is $\varepsilon_\gamma \approx 0.8$. Cyclic boundary conditions are defined on vertical patches and wall conditions are defined on both horizontal patches and bead outline. As previously, simulations of the fully turbulent flow regime are performed using the $k - \epsilon$ method. Calculations are carried out for Reynolds number from 10^4 up to $5 \cdot 10^4$.

The apparent permeability tensor is then evaluated from the resolution of the closure problem, Eqs (3.61)-(3.65). As expected from the geometry shape, the non-diagonal coefficients are zero and the pressure drop can be reconstructed using Eq (3.82). Both *direct* and *reconstructed* pressure drops are shown in Fig.3.5. As in the previous example, they are in good agreement, so we can consider that the methodology developed hereby to interpret turbulent local fields in term of a Darcy-Forchheimer law is validated. In the next section, simulations will provide additional validations for 3D geometries characteristic of structured packings.

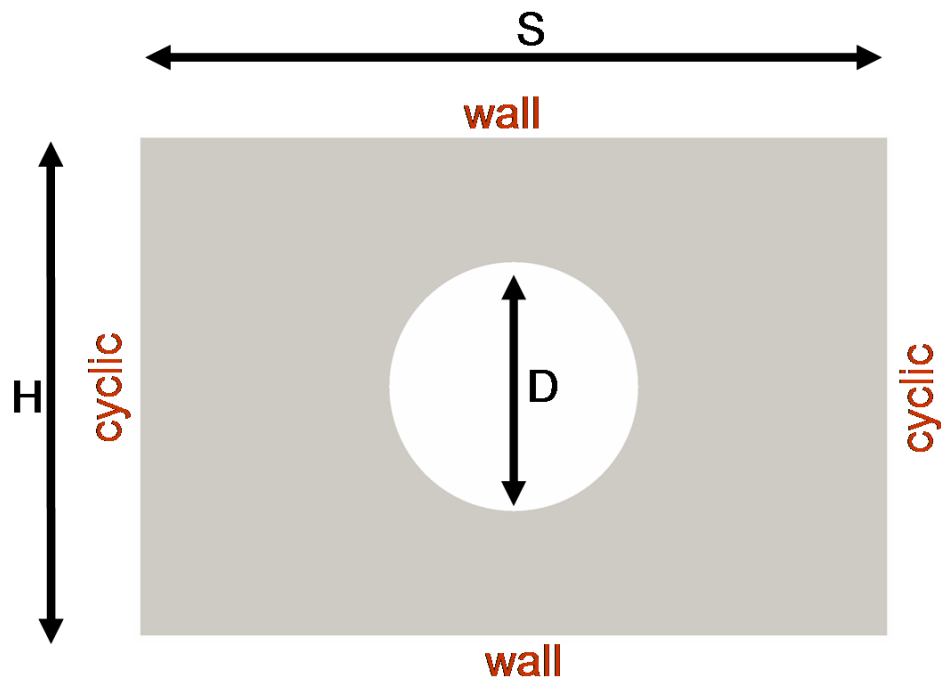


FIGURE 3.4: Figure of the Representative Elementary Volume used to simulate flow in a simple array of beads. In this geometry, $D = cm$, $R = mm$ and $S = mm$. The grid is made of 10000 cells.

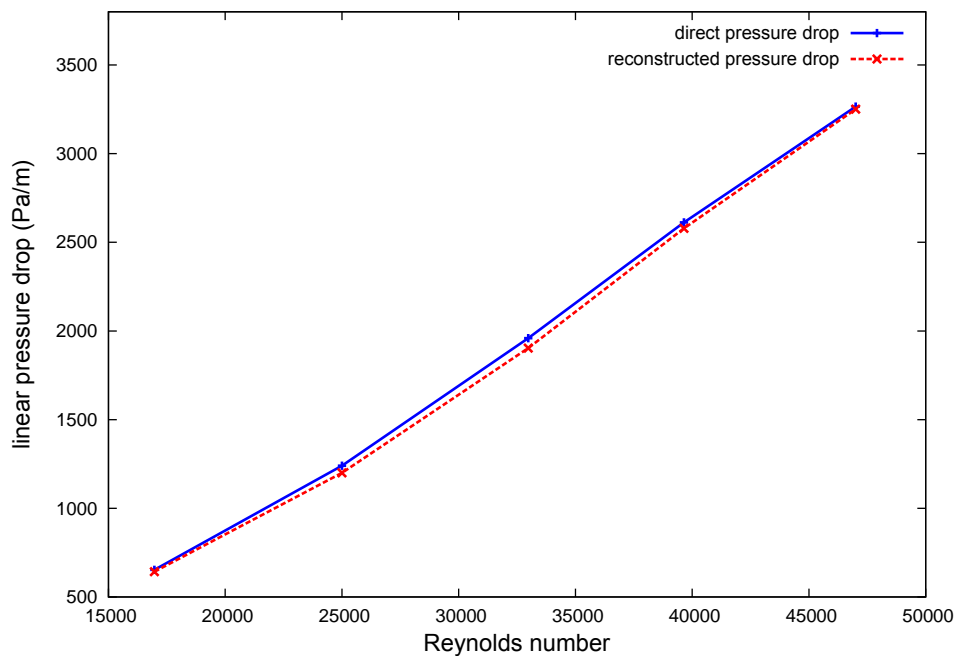


FIGURE 3.5: Comparison of the linear pressure drops, $\frac{\Delta P}{L}$, evaluated through the direct and the reconstructed methodologies for the case of a simple array of beads. Both results are in good agreement

3.8 Application to structured packings

In this section, we apply our methodology to structured packings used in chemical engineering reactors. These devices are made up of an assembly of corrugated sheets where two adjacent sheets are respectively inclined by an angle and the opposite of this angle from the vertical axis (see Fig. 3.6). In our example, this angle is equal to 45 degrees. The crossing junction of two “channels” forms the Representative Elementary Volume as depicted in Fig. 3.6. This pattern is repeated million times within the packing. The flow through this microscopic pattern leads to anisotropic flows at larger scales and this anisotropy must be characterized to design enhanced materials.

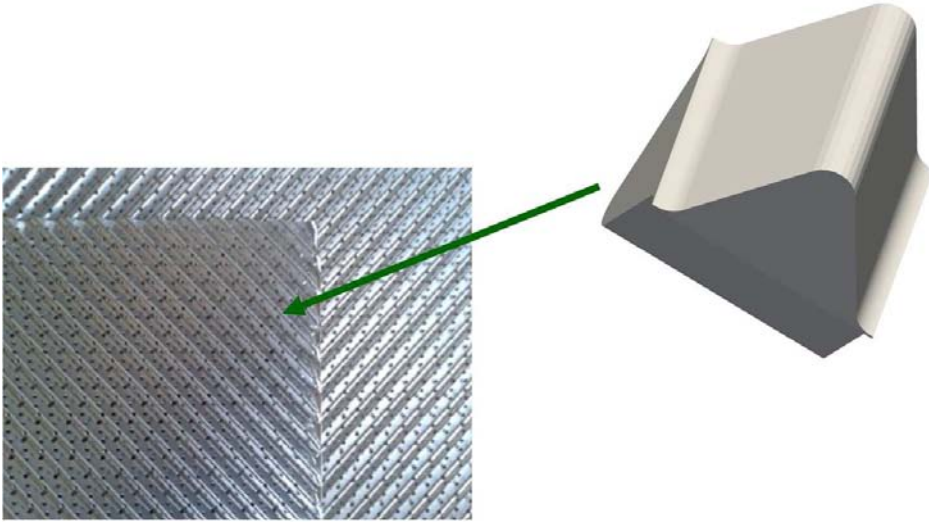


FIGURE 3.6: (a) Picture of a structured packing made of an assembly of corrugated sheets where two adjacent sheets are respectively inclined by an angle and the opposite of this angle from the vertical axis. In the case under study, this angle is equal to 45°. (b) The Representative Elementary Volume made of the crossing junction of two adjacent corrugated sheets. The grid is made of more than 700000 cells to ensure good results in turbulence flow regime.

According to the present theory, the macro-scale momentum equation can be modeled by a Darcy-Forchheimer law where the superficial velocity is related to the pressure gradient through an apparent permeability tensor \mathbf{K}^* . This tensor involves 9 components that depend on both the orientation and the magnitude of the velocity field. This representation, complex in appearance, can be simplified as described below. Indeed, although the microscopic flow field confined between two adjacent corrugated sheets is three dimensional, as depicted in Fig.3.7, the macroscopic flow is essentially 2D. Therefore, if y denotes the vertical axis and if neglecting gravity effects, the macro-scale momentum equation, for one packing element oriented in the

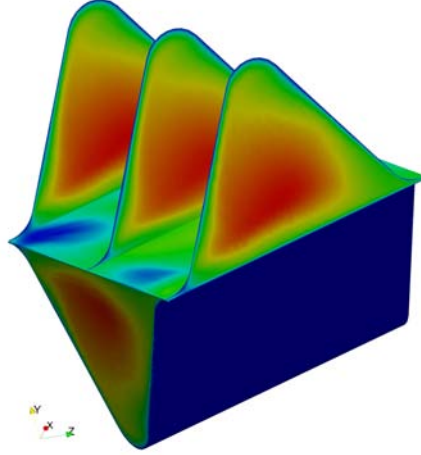


FIGURE 3.7: Plot of the local velocity field in the REV. Although the microscopic field is 3D, the corresponding macro-scale velocity profile is essentially 2D. To investigate turbulence effects, the grid is made of more than 700000 hexahedral cells.

x -direction, reads

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{1}{\mu_{\gamma mol}} \begin{pmatrix} K_{xx}^* & K_{xy}^* & 0 \\ K_{yx}^* & K_{yy}^* & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma. \quad (3.83)$$

Usually, distillation columns are filled with several layers of structured packings which are alternatively rotated around the column axis by 90° relative to each other in order to improve liquid distribution. Consequently, the next packing is oriented in the z direction and the macroscale momentum equation becomes :

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{1}{\mu_{\gamma mol}} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & K_{yy}^* & K_{yz}^* \\ 0 & K_{zy}^* & K_{zz}^* \end{pmatrix} \cdot \nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma. \quad (3.84)$$

Due to the packings rotation, K_{xx}^* and K_{zz}^* must obey the same law. Same arguments yield in $K_{xy}^* = K_{zy}^*$ and $K_{yx}^* = K_{yz}^*$. Therefore, the evaluation of the apparent permeability tensor in one packing is necessary to simulate the flow through industrial columns made of several packings. Mahr and Mewes (2007) and Raynal and Royon-Lebeaud (2007) state that the non-diagonal terms are negligible. Moreover, Raynal and Royon-Lebeaud (2007) assumes that since the geometry of the REV does not vary if it is seen with regards to the x - or the y -axis, then the diagonal coefficients must be equal. To analyze these statements, we perform simulations in a large range of mass flow rate to scan the different macro-scale flow regimes, from the creeping flow regime to the fully turbulent flow regime :

- We start with the creeping flow regime. From a macro-scale point of view, it corresponds to the Darcy's regime, i.e., the pressure drop is strictly proportional to the superficial

average velocity,

- Then, laminar simulations are performed up to the apparition of turbulence effects.
- Finally, the turbulent flow is simulated with the $k\Omega$ -SST method.

To insure good results, specially in the investigation of the turbulent flow regime, we have used a very fine grid made of more than 700000 hexahedral cells. For the simulations we have used the following set of fluid properties : $\rho_\gamma = 4 \text{ kg/m}^3$, $\mu_{\gamma_{mol}} = 5 \text{ kg/m/s}$.

3.8.1 Calculation of the intrinsic permeability

We first evaluate the permeability tensor by solving the boundary value problem Eq (3.61) to Eq (3.65) with $\mathbf{v}_\gamma = 0$ and $\mu_\gamma(\mathbf{r}) = \mu_{\gamma_{mol}}$. From the symmetry of the REV, we clearly deduce that the non-diagonal coefficients are zeros. This point is validated by the simulations. Moreover since the shape of the REV is invariant if one examines it with regards to the x - or the y -axis, it was also expected to find that $K_{xx} = K_{yy}$. We obtain $K_{xx} = K_{yy} = K_0 = 6 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2$. Hence, for this particular packing, the permeability tensor \mathbf{K} is isotropic in the 2D plan xOy and we have :

$$\mathbf{K} = \begin{pmatrix} K_0 & 0 & 0 \\ 0 & K_0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.85)$$

3.8.2 Laminar simulations

Then, we perform laminar simulations to investigate the form of the apparent permeability tensor \mathbf{K}^* in inertial flow regimes. In normal functioning service, the gas flows through the distillation columns along the vertical axis. We study this configuration by imposing a macroscopic pressure drop in the vertical axis ($\mathbf{e}_0 = \mathbf{e}_y$) with $\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{direct}$ varying in the range $[0.01; 2 \text{ Pa/m}]$ that corresponds to Reynolds numbers in the range $[5; 550]$. The apparent permeability tensor is evaluated by solving the boundary value problem Eq (3.61) to Eq (3.65) with $\mu_\gamma(\mathbf{r}) = \mu_{\gamma_{mol}}$ and \mathbf{v}_γ obtained from the flow simulations in the REV. It appears that there is a several orders of magnitude difference between the diagonal and the other terms. So, these latter terms can be neglected and the *reconstructed pressure drop* is evaluated using

$$\left(\frac{\Delta P}{L}\right)_{reconstructed} = -\mu_{\gamma_{mol}} \frac{\langle v_{\gamma_y} \rangle_{direct}}{K_{yy}^*}. \quad (3.86)$$

Following the methodology introduced in Section A.5 we compare the *direct* and the *reconstructed pressure drops*. From their representations in Fig. 3.8 we can observe that they are in good agreement. This point validate the current approach for laminar flows in a three-dimensional geometry.

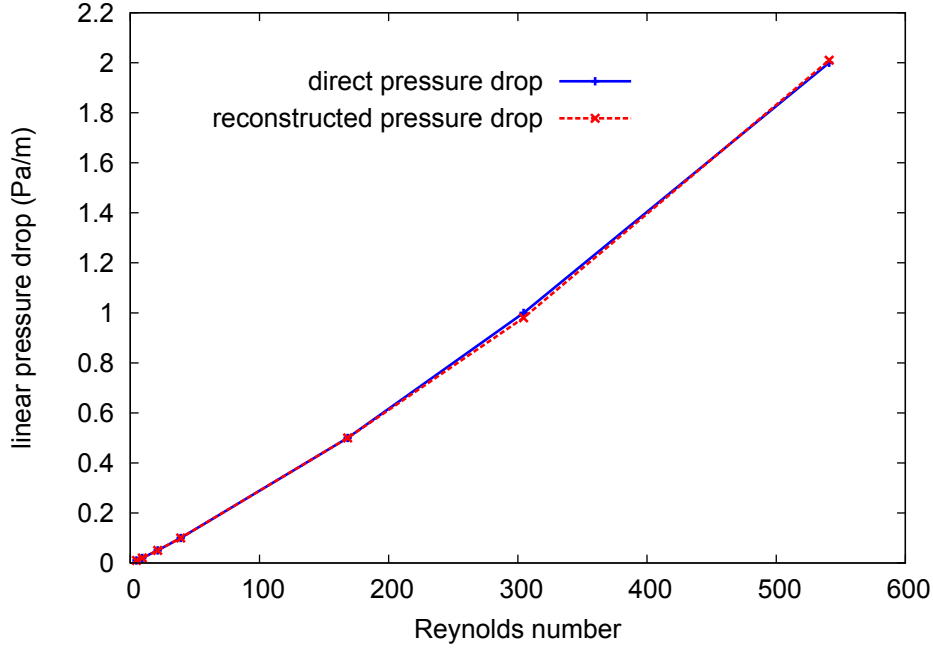


FIGURE 3.8: Plot of the *direct* and *reconstructed pressure drops* in laminar flow regime. Both results are in good agreement which is a validation point of the present theory.

The resulting apparent permeability coefficient in the streamwise direction is plotted in Fig. 3.9 for different mass flow rates. We noticed that the permeability coefficient in the main flow direction can be correlated by

$$K_{yy}^* = \frac{K_0}{1 + \gamma_l \sqrt{Re}}, \quad (3.87)$$

where γ_l is a dimensionless fitting coefficient. This correlation is reminiscent of Chauveteau and Thirriot (1965) proposal. It is also in agreement with the work by Skjetne and Auriault (1999) who derived a similar law from the homogenization of the laminar, incompressible steady flow problem. We may also note that the correlation proposed by Stichlmair et al. (1989) to predict dry pressure drops in structured packings involves a correction term in \sqrt{Re} , as well.

In case of malfunction of the distillation process like the flooding of pores by the liquid phase, the orientation of the velocity fields in the neighborhood of the flooding area may be highly impacted. In such cases, the local velocity field is deflected from the vertical axis. In order to study the flow orientation-dependency of the permeability tensor \mathbf{K}^* , we have made several simulations imposing a macroscopic pressure drop with $(\frac{\Delta P}{L})_{direct} = 0.5 \text{ Pa/m}$ (which corresponds to $Re \approx 170$) and a flow orientation $\mathbf{e}_0 = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \\ 0 \end{pmatrix}$ with θ varying in the range $[0; \frac{\pi}{4}]$. We plot in Fig. 3.10 the values of the permeability coefficients K_{xx}^* , K_{xy}^* , K_{yx}^* and K_{yy}^*

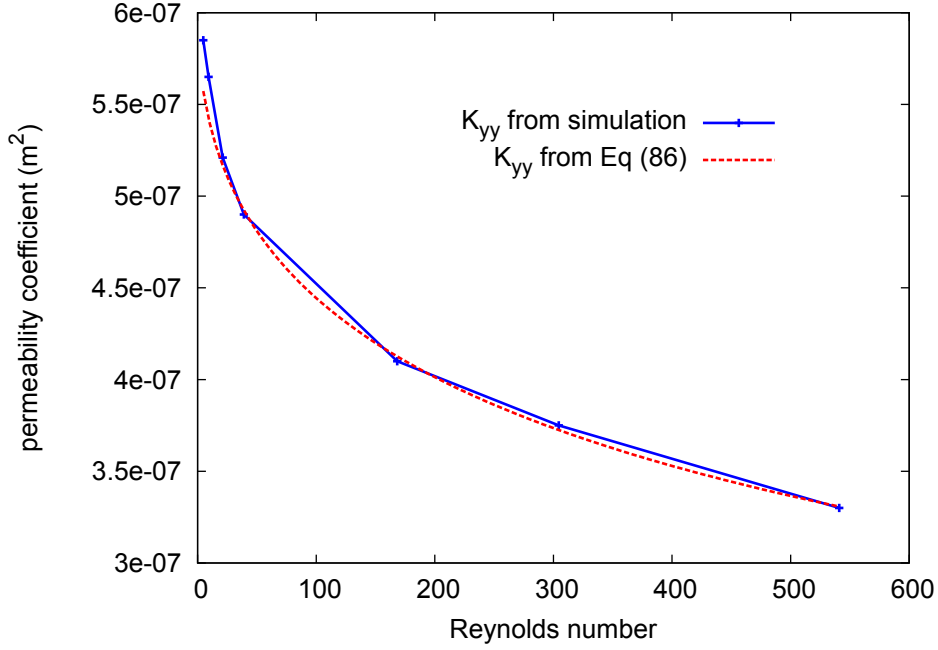


FIGURE 3.9: Plot of the apparent permeability value in the vertical direction with regards to the mass flow rate in laminar regime. Results may be correlated by $K_{yy}^* = \frac{K_0}{1 + \gamma_l \sqrt{Re}}$.

with respect to the flow orientation angle. These results suggest the following remarks : (i) the non-diagonal coefficients are clearly negligible in comparison with the diagonal terms. (ii) the value of the permeability coefficients is almost constant and we can conclude that the flow orientation has no impact on the value of \mathbf{K}^* . (iii) finally, we notice that the diagonal terms are almost equal ($K_{xx}^* \approx K_{yy}^*$). Although the initial problem seems quite complex (9 coefficients that depend on the flow magnitude and the flow orientation), it has been simplified and the apparent permeability tensor \mathbf{K}^* may be described by the following simple expressions

$$\mathbf{K}^*(Re, \theta) \approx \begin{pmatrix} \frac{K_0}{1 + \gamma_l \sqrt{Re}} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{K_0}{1 + \gamma_l \sqrt{Re}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.88)$$

These conclusions however are restricted to the particular case of packings where the corrugated sheet are inclined by 45° from the column axis. One should start the overall investigation again to characterize the macro-scale properties of other devices.

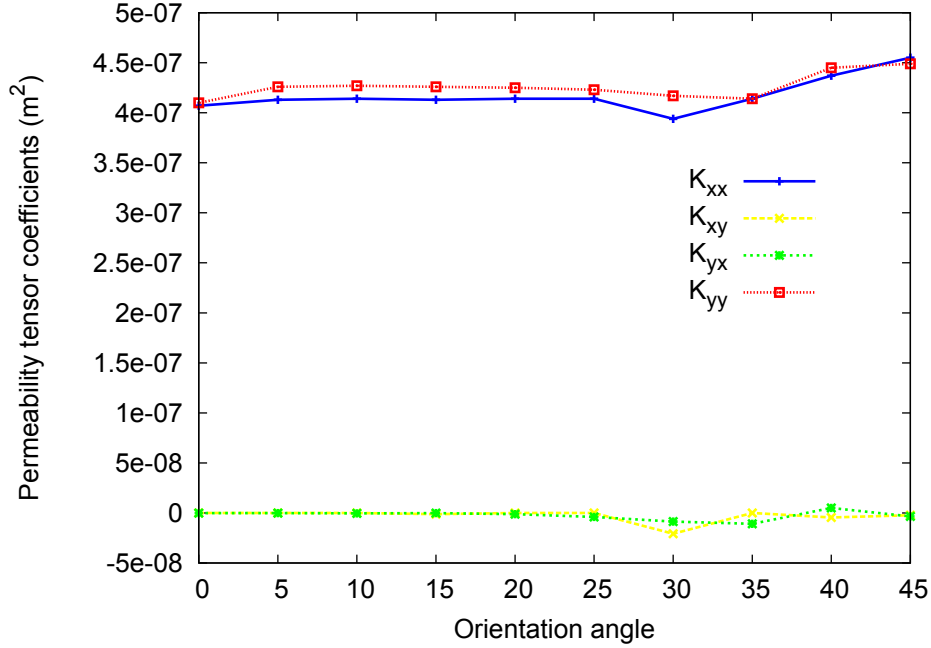


FIGURE 3.10: Plot of the permeability coefficients value with respect to the flow orientation. The simulations correspond to $Re \approx 170$. We note that (i) the non-diagonal coefficients are negligible, (ii) the permeability coefficients do not strongly vary with the orientation angle, and (iii) we approximately have $K_{xx}^* \approx K_{yy}^*$.

3.8.3 Turbulent simulations

We now carry out simulations in the turbulent regime. We choose the $k\Omega$ -SST model which has proved to give good results in the literature to simulate turbulent flows in structured packings (Nikou and Ehsani (2008); Said et al. (2011); Rafati Saleh et al. (2011); Hosseini et al. (2012)). The apparent permeability tensor is evaluated by solving the boundary value problem Eq (3.61) to Eq (3.65) with $\mu_\gamma(\mathbf{r})$ and \mathbf{v}_γ obtained from the turbulent flow simulations in the REV. As previously, to determine the full apparent permeability tensor \mathbf{K}^* in the turbulent flow regime, we investigate the influence of the local fields with regards to, (i) the flow magnitude, and (ii) the flow orientation.

To study this first point, we perform flow simulations by imposing a macroscopic pressure drop in the vertical axis ($\mathbf{e}_0 = \mathbf{e}_y$) with $(\frac{\Delta P}{L})_{direct}$ varying in the range [35; 120 Pa/m], which corresponds to Reynolds numbers in the range [3500; 5000]. As for the laminar case, it appears that differences of several orders of magnitude exist between the diagonal and the other terms. So, these latter terms can be neglected and the *reconstructed pressure drop* is evaluated using Eq (3.86). We plot in Fig. 3.11 the *direct* and *reconstructed pressure drops* we got from these simulations. Both are in very good agreement, which is an additional validation point for the theory introduced in the present paper. The resulting apparent permeability coefficient in the

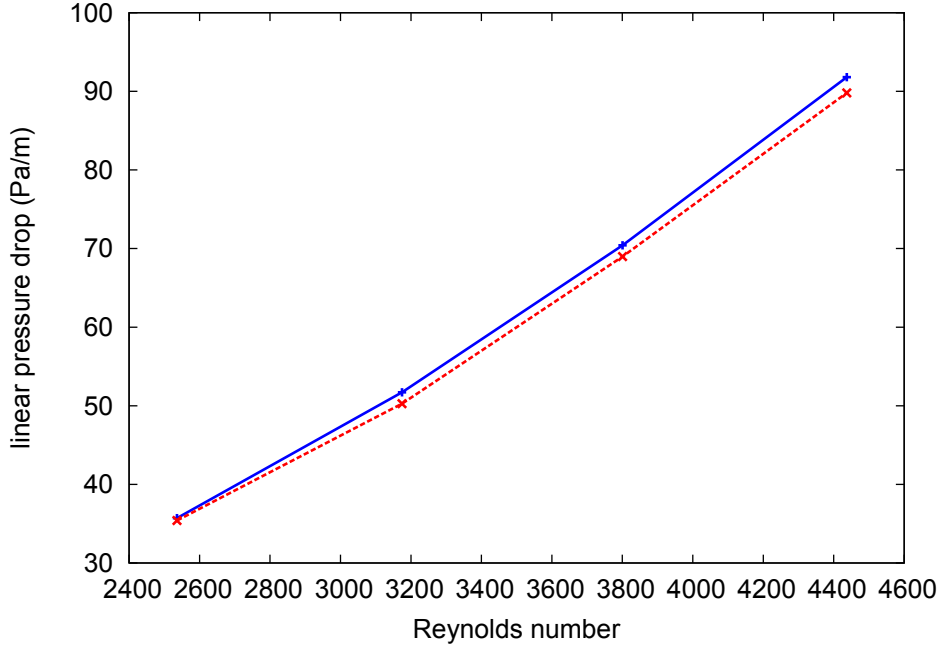


FIGURE 3.11: Plot of the *direct* and *reconstructed pressure drops* in turbulent flow regime. Both results are in good agreement which is a validation point of the present theory.

vertical direction is plotted in Fig. 3.12 as a function of the Reynolds number. We note that it can be correlated by

$$K_{yy}^* = \frac{K_1}{1 + \gamma_t Re}, \quad (3.89)$$

where γ_t is a dimensionless fitting coefficient, and K_1 has the dimension of permeability (m^2) but, as pointed out by Skjetne and Auriault (1999), it does not necessarily refer to the intrinsic permeability value. This formulation is reminiscent of Ergun (1952) works as well as most of the empirical structured packing dry pressure drop correlations (Bravo et al. (1986); Billet and Schultes (1999); Rocha et al. (1993)).

In a second step, we investigate the value of the apparent permeability tensor with regards to the local velocity field orientation by imposing a macroscopic pressure drop with $(\frac{\Delta P}{L})_{direct} = 90 \text{ Pa/m}$ (which correspond to $Re \approx 4300$) and a flow orientation $\mathbf{e}_0 = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \\ 0 \end{pmatrix}$ with θ varying in the range $[0; \frac{\pi}{4}]$. Once again, we can observe in Fig. 3.13 that, (i) the non-diagonal coefficients are negligible, (ii) the permeability coefficients do not strongly vary with regards to the orientation angle, and (iii) we approximatively have $K_{xx}^* \approx K_{yy}^*$.

Finally, to model high flow rate in structured packing, we can use the following permea-

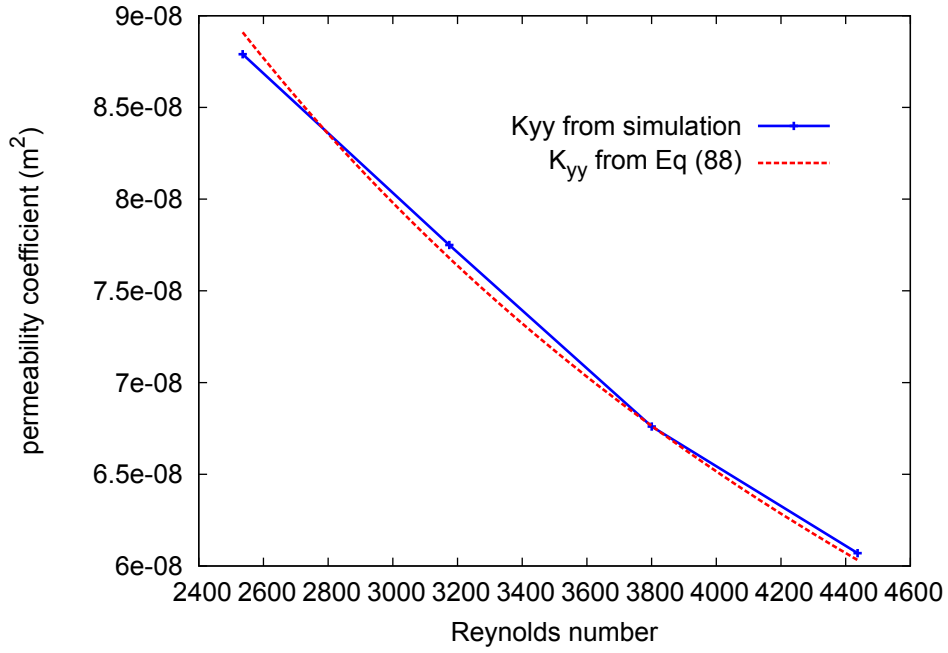


FIGURE 3.12: Plot of the apparent permeability value in the vertical direction with regards to the mass flow rate in turbulent regime. Results may be correlated by $K_{yy}^* = \frac{K_1}{1+\gamma_t Re}$.

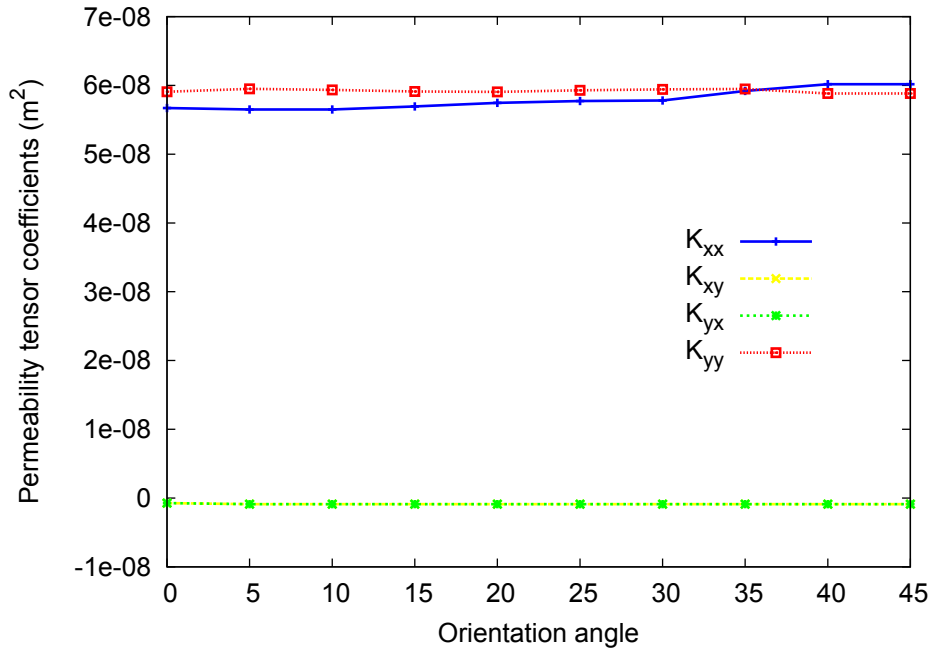


FIGURE 3.13: Plot of the permeability coefficients value with regards to the flow orientation. The simulations correspond to $Re \approx 4300$. We note that (i) the non-diagonal coefficients are negligible, (ii) the permeability coefficients do not strongly vary with regards to the orientation angle, and (iii) we approximatively have $K_{xx}^* \approx K_{yy}^*$.

bility tensor :

$$\mathbf{K}^*(Re, \theta) \approx \begin{pmatrix} \frac{K_1}{1 + \beta_t Re} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{K_1}{1 + \beta_t Re} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.90)$$

As it was indicated in the laminar case, this relation is restricted to the particular case of structured packings with corrugated sheets rotated by 45° with regards to the vertical axis and conclusion may be different in other configurations.

3.9 Conclusions and perspectives

At this point, we have developed a macro-scale model with closure for an incompressible single phase flow in a porous medium in the presence of turbulence. We volume averaged the momentum and continuity equations of a general RANS model assuming that all the turbulent information is included in a variable viscosity. The resulting macro-scale momentum balance equation has the form of a Darcy-Forchheimer law with tensorial effective properties. These tensors can be evaluated through a provided closure problem where the required inputs are the velocity and turbulent viscosity fields that results from the turbulent simulations. Basically, we have developed a method to evaluate Ergun coefficients in a large range of Reynold's number from the creeping flow to the turbulent flow regimes.

The theory has been successfully validated through 2D and 3D simulations and has been applied to the macro-scale characterization of gas flow through columns equipped with structured packings. We have investigated the dependency of the apparent permeability tensor with the orientation and the magnitude of the flow in a large range of mass flow rates. In the particular case we studied, the flow orientation seems to have a very low impact on the permeability tensor values. The same methodology should be used to characterize effective properties of structured packings with a stronger anisotropy.

Chapitre 4

Modélisation de l'écoulement gaz-liquide dans les contacteurs par une approche à deux liquides

La modélisation de la distribution de la phase liquide au sein des garnissages structurés reste un enjeu majeur pour les fabricants et industries utilisatrices de ce type de contacteur (Spiegel and Meier (2003); Olujić et al. (2009)). La connaissance des profils tridimensionnels de saturation et de vitesse de la phase liquide leur permettrait ainsi de prédire les zones d'engorgement et les phénomènes de maldistribution à l'origine d'importantes chutes de productivité. Le développement d'un outil numérique capable de prédire cette distribution liquide autoriserait ainsi l'optimisation des dispositifs actuels, voire la création de nouvelles géométries tout en limitant l'approche expérimentale, souvent lourde et coûteuse, aussi bien en investissement financier qu'en temps. Cet outil, en plus de prédire la répartition et la hauteur du liquide dans les colonnes de séparation devrait évaluer la perte de charge liée à l'écoulement du gaz à contre-courant de la phase liquide.

Après un rappel des modèles couramment utilisés pour simuler les écoulements diphasiques en milieu poreux, nous montrerons dans ce chapitre qu'ils sont inadaptés pour capturer correctement la distribution liquide dans les garnissages et que les mécanismes macroscopiques induisant les phénomènes de dispersion radiale requièrent une modélisation différente. Partant du constat qu'entre deux feuilles ondulées adjacentes, deux films liquides s'écoulent dans des directions opposés, nous présentons dans ce chapitre la possibilité de traiter, à la grande échelle, ces films de façon indépendante par une approche à deux liquides. Le modèle obtenu est finalement comparé à des résultats expérimentaux.

4.1 Généralité sur les écoulements diphasiques en milieu poreux

Les modèles d'écoulement diphasique dans les milieux poreux sont nombreux et variés. En effet, le problème du changement d'échelle de l'écoulement diphasique est loin d'avoir reçu des réponses théoriques satisfaisantes, ce qui explique que beaucoup de résultats heuristiques sont utilisés. Le problème le plus connu est celui d'écoulements lents, à faible nombre de Bond et faible nombre capillaire.

4.1.1 Modèle à l'échelle du pore

A la petite échelle, en négligeant l'écriture des équations sur les lignes triples et les variations de densité et de viscosité, les lois de conservation de la masse et de la quantité de mouvement peuvent s'écrire

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_i = 0 \text{ dans } V_i \text{ où } i = \beta, \gamma, \quad (4.1)$$

$$0 = \nabla p_i + \rho_i \mathbf{g} + \mu_i \nabla^2 \mathbf{v}_i \text{ dans } V_i \text{ où } i = \beta, \gamma. \quad (4.2)$$

Ces équations différentielles sont complétées par des conditions aux limites, notamment des conditions de non-glissement des fluides à la paroi de la structure solide,

$$\mathbf{v}_i = 0 \text{ sur } \mathcal{A}_{i\sigma} \text{ où } i = \beta, \gamma, \quad (4.3)$$

mais également des conditions de continuité à l'interface entre les deux fluides comme la continuité des vitesses,

$$\mathbf{v}_\beta = \mathbf{v}_\gamma \text{ sur } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (4.4)$$

et la continuité des contraintes,

$$\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot [-\mathbf{l}p_\beta + \mu_\beta (\nabla \mathbf{v}_\beta + \nabla^t \mathbf{v}_\beta)] = \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot [-\mathbf{l}p_\gamma + \mu_\gamma (\nabla \mathbf{v}_\gamma + \nabla^t \mathbf{v}_\gamma)] + 2\sigma H_{\beta\gamma} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \text{ sur } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \quad (4.5)$$

Dans cette dernière équation, σ représente le coefficient de tension superficielle et $H_{\beta\gamma}$ est la courbure de la surface interfaciale.

4.1.2 Modèle de Darcy généralisé

Le problème de changement d'échelle apparaît compliqué, notamment avec la difficulté de prendre en compte une interface mobile entre les deux phases fluides β et γ . Il est source de nombreuses discussions dans la littérature. Un des modèles macroscopiques le plus couramment utilisé est celui dit de Darcy généralisé, initialement proposé par Muskat (1949). Dans ce modèle,

l'évolution de la quantité de fluide est décrite par les équations de continuité moyennes, Eq (4.6) et Eq (4.7),

$$\varepsilon \frac{\partial S_\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = 0 \quad (4.6)$$

$$\varepsilon \frac{\partial S_\beta}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle = 0 \quad (4.7)$$

Le second membre de ces équations est nul, ce qui veut dire que, d'un point de vue macroscopique le taux de changement de phase est nul. Ceci est généralement vrai lors de l'étude de la séparation de composés chimiques par distillation (Taylor and Krishna (1993)). En d'autres termes, au sein d'un VER, la quantité de liquide évaporé est équivalente à la quantité de vapeur condensée.

Dans le modèle de Darcy généralisé, la vitesse superficielle de chaque fluide est estimée par une loi de Darcy,

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\gamma}{\mu_\gamma} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}), \quad (4.8)$$

$$\langle \mathbf{v}_\beta \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\beta}{\mu_\beta} \cdot (\nabla \langle p_\beta \rangle^\beta - \rho_\beta \mathbf{g}). \quad (4.9)$$

Cette vision suppose que l'espace poral à travers lequel s'écoule la phase β est réduit par la présence de la phase γ , et inversement. Les tenseurs de perméabilité multiphasique qui apparaissent dans les relations Eq (4.8) et Eq (4.9) correspondent en fait à la perméabilité intrinsèque du milieu poreux pondérée de manière heuristique par une fonction du taux d'occupation des fluides. Ils sont donc fonctions des champs de saturation dans le milieu poreux. Cette dépendance peut s'exprimer à l'aide de perméabilités relatives. On écrit souvent

$$\mathbf{K}_\beta = \mathbf{K} k_{r\beta}(S_\beta) \quad \text{et} \quad \mathbf{K}_\gamma = \mathbf{K} k_{r\gamma}(S_\gamma). \quad (4.10)$$

Les modèles estimant ces perméabilités relatives, $k_{r\beta}$ et $k_{r\gamma}$, sont nombreux dans la littérature, les plus utilisés étant celui de Brooks and Corey (1964) et celui de van Genuchten (1980). Pour les systèmes anisotropes, l'écriture des tenseurs \mathbf{K}_β et \mathbf{K}_γ à l'aide de perméabilités relatives est toutefois à utiliser avec précaution. En effet, Bear et al. (1987) et Quintard and Whitaker (1988) expliquent que selon la relation Eq (4.10), l'anisotropie de l'écoulement à grande échelle est seulement pilotée par la structure poreuse et ne dépend donc pas de l'écoulement, affirmation qui peut s'avérer inexacte.

4.1.3 Modèle de Darcy généralisé avec termes de couplage

Partant de ce constat, d'autres formulations faisant intervenir des termes de couplage entre les deux phases mobiles ont été proposées. Pour les écoulements laminaires, Raats and Klute (1968) et Baveye and Sposito (1984) postulent, sur la base de résultats expérimentaux, la forme suivante pour les équations de quantité de mouvement moyennées :

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\gamma}{\mu_\gamma} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}) + \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle \quad (4.11)$$

$$\langle \mathbf{v}_\beta \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\beta}{\mu_\beta} \cdot (\nabla \langle p_\beta \rangle^\beta - \rho_\beta \mathbf{g}) + \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle \quad (4.12)$$

Ces lois de Darcy généralisées avec terme de couplage ont ensuite été montrées théoriquement en appliquant une méthode de changement d'échelle au problème de Stokes diphasique écrit à l'échelle du pore (Eq (4.1) à Eq (4.5)). On peut se référer par exemple à Whitaker (1986b, 1994) qui aboutit aux équations Eq (4.11) et Eq (4.12) en utilisant la méthode de prise de moyenne volumique appliquée aux équations de Stokes, ou encore à Auriault (1987) qui obtient un modèle macroscopique similaire en utilisant la méthode d'homogénéisation spatiale.

Ces termes de couplage visqueux supplémentaires sont souvent négligés (Zarcone and Lenormand (1994)) lors de l'étude des écoulements diphasiques en milieu poreux. Cette simplification se justifie alors par le fait que, dans un milieu poreux classique, peu perméable, la surface de contact entre les fluides est faible, et que, par conséquent, les effets d'entraînement visqueux d'un fluide sur l'autre le sont également. Qu'en est-il dans le cas des garnissages structurés ? Ces derniers sont, rappelons-le, fabriqués de façon à maximiser la surface d'échange entre le gaz et le liquide. En régime de charge, le film liquide est fortement cisailé par la phase gazeuse turbulente qui s'écoule à contre-courant. Des études récentes à l'échelle du pore (Ruyer-Quil and Manneville (1998, 2000, 2002); Valluri et al. (2005)) montrent que ce cisaillement génère des instabilités à la surface du film, et que ce processus est à l'origine du phénomène d'engorgement. Un modèle mathématique pertinent se doit donc de prendre en compte ces couplages visqueux lorsque le cisaillement est important. A bas débit, cependant, l'interaction hydrodynamique entre le gaz et le film liquide est faible et les termes de couplage visqueux qui apparaissent à l'échelle macroscopique sont probablement négligeables. Ceci explique en partie que, malgré l'existence théorique de ces termes de couplage, le modèle de Darcy généralisé Eq (4.8) et Eq (4.9) est souvent comparable aux résultats expérimentaux de l'étude des écoulements diphasiques dans les milieux poreux.

D'autres formulations, équivalentes aux lois moyennées de conservation de la quantité de mouvement Eq (4.11) et Eq (4.12), existent dans la littérature. Par exemple, Marle (1982) puis Lasseux et al. (1996) montrent, à partir d'une prise de moyenne volumique du problème de Stokes diphasique, que le lien entre la vitesse superficielle d'une phase et les gradients de

pression moyenne des deux phases est explicite, *i. e.*, que les équations de quantité de mouvement macroscopiques peuvent se formuler par :

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*}{\mu_\gamma} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}) - \frac{\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*}{\mu_\beta} \cdot (\nabla \langle p_\beta \rangle^\beta - \rho_\beta \mathbf{g}) \quad (4.13)$$

$$\langle \mathbf{v}_\beta \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\beta\gamma}^*}{\mu_\gamma} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}) - \frac{\mathbf{K}_{\beta\beta}^*}{\mu_\beta} \cdot (\nabla \langle p_\beta \rangle^\beta - \rho_\beta \mathbf{g}) \quad (4.14)$$

Les tenseurs de perméabilité multiphasique qui apparaissent dans ces équations peuvent être directement évalués par les problèmes de fermeture obtenus par Lasseux et al. (1996). Cependant, si cette méthode utilisant les problèmes de fermeture pour caractériser les paramètres effectifs des équations macroscopiques fournit de bons résultats dans le cadre d'écoulement monophasique, la situation est plus compliquée pour les écoulements diphasiques. En effet, l'estimation numérique, *i. e.*, la résolution des problèmes de fermeture, repose sur l'existence d'une solution de l'écoulement diphasique dans le VER, et donc de la position de l'interface entre les deux fluides. Les paramètres effectifs doivent donc être tabulés selon la position de cette interface, ce qui, en pratique, ne peut-être réalisé que pour des géométries et des écoulements simples, comme, par exemple, le cas de films liquides dans des tubes capillaires.

On remarque également qu'à partir de simples transformations mathématiques, les équations Eq (4.11) et Eq (4.12) peuvent-être réécrites avec un terme de couplage faisant intervenir les différences des vitesses moyennes :

$$0 = -\nabla \langle p_\beta \rangle^\beta + \rho_\beta \mathbf{g} - \mu_\beta \mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\beta\gamma}) \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle + \mu_\beta \mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot (\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle - \langle \mathbf{v}_\beta \rangle) \quad (4.15)$$

$$0 = -\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma + \rho_\gamma \mathbf{g} - \mu_\gamma \mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\gamma\beta}) \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle - \mu_\gamma \mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot (\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle - \langle \mathbf{v}_\beta \rangle) \quad (4.16)$$

D'après la relation $\mu_\beta \mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma} = \mu_\gamma \mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta}$ démontrée dans Lasseux et al. (1996), on déduit que les termes d'échange de quantité de mouvement qui apparaissent dans ces deux équations sont opposés et égaux. Ce type de formalisme est très apprécié par les auteurs des modèles mathématiques simulant l'écoulement gaz-liquide dans les contacteurs (Attou et al. (1999), Iliuta et al. (2004)) et également dans d'autres domaines comme la sûreté nucléaire (Tung and Dhir (1988)). Il a en effet l'avantage, lors de l'évaluation des pertes de charge totales, d'explicitier la contribution du cisaillement du film liquide par l'écoulement de la phase gaz à contre-courant.

4.1.4 Pression capillaire

Qu'elles soient avec ou sans terme de couplage visqueux, les équations de Darcy généralisées à un système diphasique font intervenir les gradients de pressions moyennes $\langle p_\gamma \rangle^\gamma$ et $\langle p_\beta \rangle^\beta$. Le problème mathématique est le plus souvent complété en introduisant la notion de pression

capillaire, p_c . Dans les milieux poreux, la présence des pores engendre la création d'interfaces courbes entre les phases liquide et gazeuse. A l'échelle microscopique, cette condition s'exprime par la relation de continuité des contraintes Eq (4.5) du problème de Stokes diphasique. D'un point de vue macroscopique, Whitaker (1986b) et Torres (1987) montrent qu'en homogénéisant cette condition interfaciale à l'aide d'une moyenne surfacique et sous certaines restrictions (nombre capillaire et nombre de Bond petits par rapport à l'unité), la différence de pressions moyennes entre les phases s'écrit,

$$-\left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma\right) = 2\sigma H_{\beta\gamma}, \quad (4.17)$$

conformément à la loi de Young-Laplace. On définit le membre de droite de cette équation comme la pression capillaire. Leverett (1940) propose que cette dernière est fonction de la saturation du fluide mouillant et de la direction du changement de saturation. En considérant que β est la phase liquide, on a alors,

$$p_c(S_\beta) = \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \langle p_\beta \rangle^\beta. \quad (4.18)$$

Comme pour la perméabilité relative, les courbes de pression capillaire selon la saturation peuvent rapidement devenir très complexes. Afin de représenter au mieux le comportement diphasique au sein des milieux poreux qu'ils étudient, les chercheurs et les ingénieurs ont proposé de nombreuses corrélations, les plus couramment utilisées étant celles de Leverett (1940), Brooks and Corey (1964) et de van Genuchten (1980).

Lors de l'étude de la dynamique des fluides dans les garnissages structurés, et d'une façon plus générale dans les contacteurs gaz-liquide au travers desquels le liquide est dispersé sous forme de films, de nombreux auteurs supposent que la pression capillaire est quasi-nulle (Attou et al. (1999), Mewes et al. (1999), Iliuta et al. (2004)) et que, par conséquent, la pression moyenne dans la phase liquide est identique à celle de la phase gazeuse. Cette hypothèse repose sur le fait que la dérivée spatiale de la pression capillaire est proportionnelle au gradient de la saturation,

$$\nabla p_c = \left(\frac{\partial p_c}{\partial S}\right) \nabla S, \quad (4.19)$$

et qu'en régime de charge l'épaisseur du film liquide est supposée constante ($\nabla S \approx 0$). Nous verrons dans la suite de ce chapitre que cette affirmation est peut-être trop restrictive.

4.1.5 Extension au régime inertiel

Nous complétons cette revue (non-exhaustive) des écoulements diphasiques en milieu poreux en évoquant la prise en compte des effets inertiels. Lasseux et al. (2008) proposent une extension du modèle de Darcy généralisé avec terme de couplage. Dans ce modèle, obtenu

par une prise de moyenne volumique des équations de Navier-Stokes diphasique, les équations moyennées de conservation de la quantité de mouvement font intervenir des tenseurs de perméabilité multiphasique qui dépendent de l'amplitude et de l'orientation des champs de vitesse.

D'autres modèles tentent également de représenter l'écoulement à haut débit dans les milieux poreux. C'est notamment le cas de ceux proposés par Fourar and Lenormand (2001) et Fourar et al. (2001) qui généralisent le modèle de Darcy-Forchheimer monophasique en introduisant une fonction F qui dépend de la saturation et des propriétés du fluide. Ces modèles ont l'avantage de réduire le nombre de paramètres effectifs, et donc de faciliter un ajustement sur des courbes expérimentales.

4.1.6 Autres modèles d'écoulement diphasique en milieu poreux

Les hypothèses menant au modèle de Darcy généralisé, comme celle de la quasi-stationnarité de l'interface, sont cependant très fortes. De nombreux travaux ont tenté de mettre en place des modèles plus dynamiques. On ne peut en faire ici une présentation exhaustive. On citera par exemple les travaux de Hassanizadeh and Gray (1980, 1997) ou encore ceux de Kalaydjian (1987). Afin de limiter la perte d'information induite par le changement d'échelle, ces modèles sont développés à partir des lois de conservation de l'entropie. Ils font intervenir une inconnue macroscopique supplémentaire correspondant à la surface interfaciale entre les fluides qui est transportée dans le milieu poreux. A ce jour, les modèles dynamiques sont encore du domaine de la recherche et leur développement reste un challenge difficile.

Des approches différentes comme la technique de percolation d'invasion permettent également de simuler les phénomènes diphasiques comme le drainage ou le séchage dans les milieux poreux. Cette méthode a été développée pour modéliser le déplacement d'un fluide par un autre dans un milieu poreux (Chatzis and Dullien (1982); Wilkinson and Willemsen (1983)) et se base sur la théorie de la percolation introduite par Broadbent and Hammersley (1957). Cette dernière est en fait un modèle statique qui traite des propriétés de milieux aléatoires représentés par des sites connectés. Les garnissages, sujet de notre étude, sont quant-à-eux parfaitement structurés et ces méthodes de réseau de pores ne sont probablement pas les plus adaptées. Par ailleurs, la prise en compte par ces méthodes d'écoulements plus dynamiques, à grand nombre capillaire et de Bond, est encore relativement récente et du domaine de la recherche (Horgue (2012)).

4.1.7 Quelques régimes d'écoulements polyphasiques en milieu poreux

La physique des écoulements diphasiques dans les contacteurs est particulière. Si on s'appuie sur la formulation macroscopique du type Darcy généralisé, on distingue, entre autres,

deux types de régime selon la vitesse d'injection :

- Si la vitesse d'injection ne dépasse pas une certaine valeur seuil, alors la phase liquide est entièrement pilotée par l'accélération de pesanteur. On parle dans ce cas d'écoulement gravitaire. Dans cette configuration coexistent au sein des pores, à la fois du liquide et du gaz. Les écoulements sous forme de films liquides, caractéristiques d'un régime de charge dans les colonnes de distillation appartiennent clairement à cette catégorie. Cette situation est illustrée sur la Figure 4.1 qui représente le champ macroscopique de saturation.
- En revanche, si la vitesse d'injection est suffisamment élevée, la progression de la phase liquide dans le milieu poreux n'est plus contrôlée uniquement par la pesanteur, mais par la surpression engendrée par l'injection de la phase liquide, c'est-à-dire que le gradient de pression est prédominant sur le terme de gravité. On parle alors d'écoulement piston. Cette situation est illustrée sur la Figure 4.2.

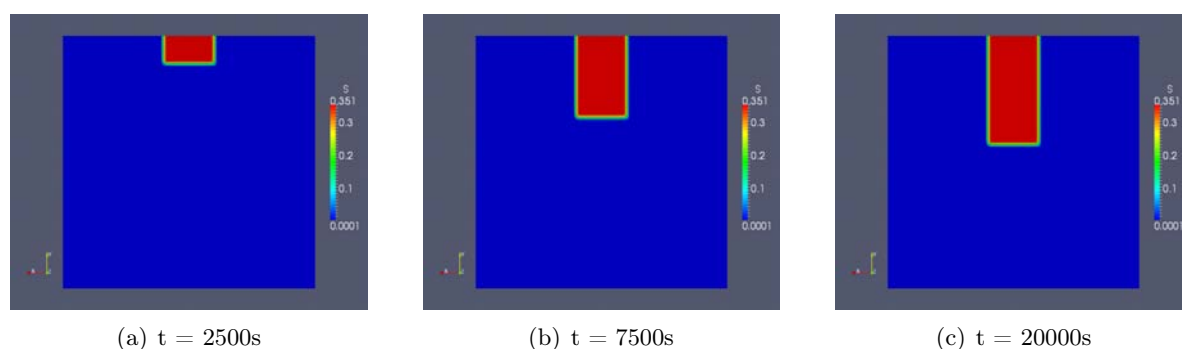


FIGURE 4.1: Exemple d'écoulement gravitaire dans un milieu poreux isotrope ($K = 10^{-11}m^2$) de dimension $1m * 1m$. La vitesse d'injection du liquide est égale à $10^{-5}m/s$

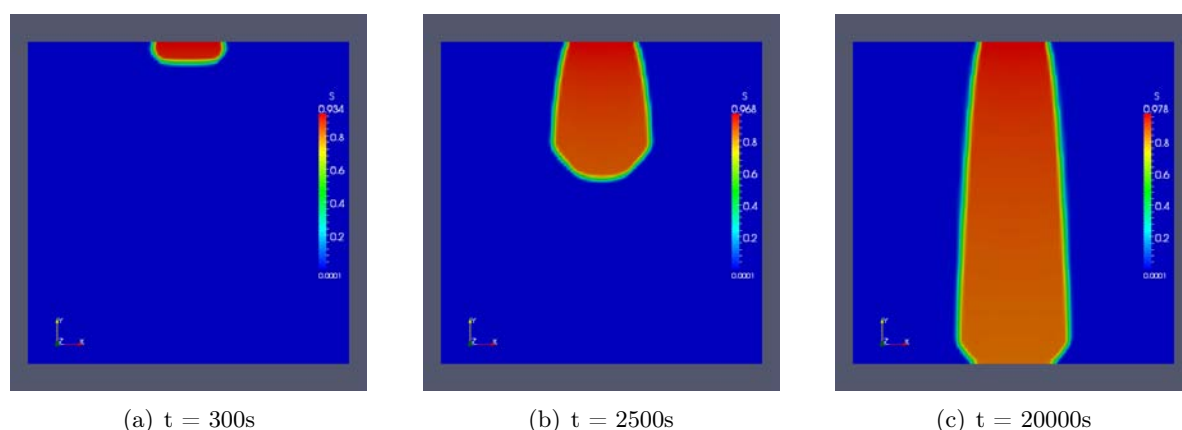


FIGURE 4.2: Exemple d'écoulement piston dans un milieu poreux isotrope ($K = 10^{-11}m^2$) de dimension $1m * 1m$. La vitesse d'injection du liquide est égale à $10^{-4}m/s$

Les simulations exposées dans les Figures 4.1 et 4.2 ont été réalisées sous la plateforme de mécanique des fluides open-source OpenFOAM® en résolvant à l'aide d'une méthode IMPES (Aziz and Settari (1979)) les équations de Darcy généralisées Eq (4.8) et Eq (4.9) où la pression capillaire est supposée négligeable. Nous reviendrons sur la méthode IMPES dans la suite de ce chapitre.

4.2 Pourquoi séparer la phase liquide en deux phases fictives ?

Nous allons voir dans cette partie que les modèles usuels d'écoulement diphasiques dans les milieux poreux tels que nous les avons brièvement exposés en première partie de ce chapitre sont inadaptés pour représenter la distribution de la phase liquide dans les garnissages structurés. L'expérience d'une injection ponctuelle de liquide en haut d'un pack de garnissage illustre bien la difficulté à prédire la distribution liquide d'un point de vue macroscopique. Dans la littérature, de nombreuses études expérimentales ont montré que ce type d'injection entraîne un étalement de la phase liquide au sein du garnissage. Cet étalement est mis en évidence via l'utilisation de collecteurs, où la quantité de liquide obtenue dans chacun donne alors une idée de la distribution du liquide à la sortie du pack (Olujic et al. (2006)). Des études plus récentes utilisent la tomographie à rayon γ (Sidi-Boumedine and Raynal (2005); Mahr and Mewes (2008); Viva et al. (2011); Fourati et al. (2012)) pour cartographier la présence de liquide à l'intérieur du garnissage. Cette technologie a l'avantage d'offrir une visualisation complète de la distribution liquide dans la structure poreuse sans perturber l'écoulement. De plus, elle permet d'évaluer l'épaisseur des films liquides, donnée très recherchée lors de l'étude des garnissages structurés et qui reste inaccessible via les mesures à l'aide de collecteurs en sortie de pack. Un des résultats obtenus par Mahr and Mewes (2008) lors de l'étude d'une injection ponctuelle de liquide dans un dispositif constitué de deux plaques ondulées orientées de 42 degrés par rapport à la verticale est exposé à la Fig 4.3. Les caractéristiques géométriques de leur maquette correspondent à celle du MellaPak 250.Y commercialisé par Sulzer Chemtech. Cette étude expérimentale amène à plusieurs observations fondamentales pour la compréhension de l'hydrodynamique dans les garnissages structurés. Tout d'abord, on remarque que l'écoulement liquide suit clairement deux directions préférentielles, symétriques par rapport à l'axe vertical. Ces directions correspondent à un angle dit de plus grande pente lié à la géométrie 3D, en prisme, des canaux. La valeur de cet angle est comprise entre l'angle d'inclinaison d'une feuille ondulée et l'axe vertical associé à la gravité, et peut être estimée analytiquement. Dans leurs expériences, les auteurs l'évaluent à 19 degrés par rapport à la verticale. On remarque également une quantité de liquide, moins importante, qui s'écoule de façon rectiligne le long des canaux. L'étalement du liquide suivant deux directions préférentielles distinctes suggère que, globalement, deux films différents s'écoulent à travers l'espace confiné entre les deux plaques ondulées, chacun étant associé à une des plaques. Par ailleurs, la situation au niveau des points

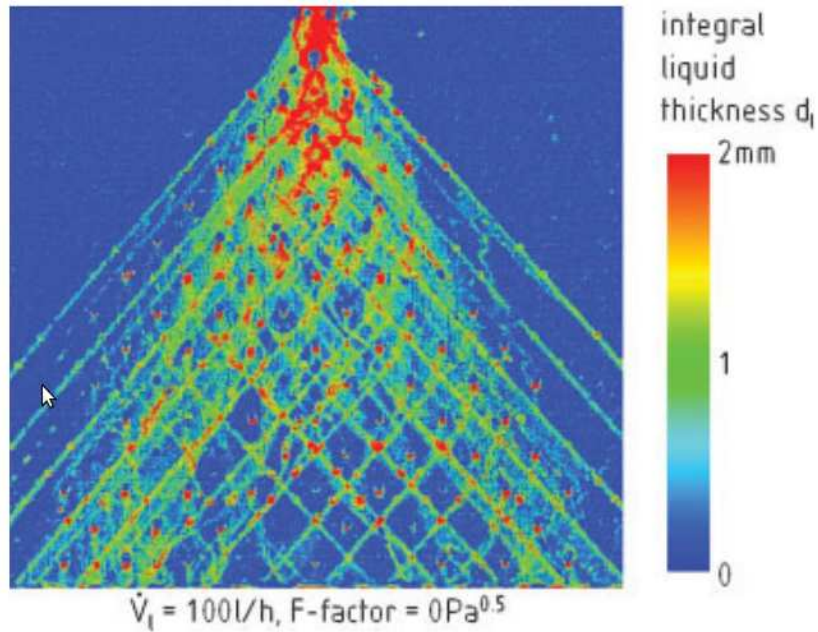


FIGURE 4.3: Distribution liquide dans le cas d'une injection ponctuelle de liquide en haut d'un dispositif constitué de deux plaques ondulées adjacentes (Image issue de l'étude de Mahr and Mewes (2008)).

de contact entre les deux plaques entraîne deux remarques. On note, d'un côté, une épaisseur de liquide plus importante dans ces zones et d'un autre côté des changements de direction soudain du liquide au niveau de ces points de contact. Ce changement de direction traduit en fait un transfert de liquide : une partie du film liquide présent sur la plaque dont les ondes sont inclinées de 42° passe alors sur l'autre plaque, dont les ondes sont quant-à-elles inclinées de -42° .

La physique de l'écoulement à l'échelle du pore, i.e., dans l'espace confiné entre deux plaques ondulées adjacentes, et notamment au niveau des points de contact est précisée expérimentalement par Alekseenko et al. (2008). Les auteurs ont mesuré l'épaisseur d'un film d'éthanol s'écoulant dans un tronçon de garnissage à l'aide d'une méthode utilisant des capteurs en fibre-optique. Ils ont confirmé le fait que le liquide mouille la surface de chacune des plaques, formant ainsi deux films (un par plaque) s'écoulant selon des directions préférentielles différentes, avec un échange de liquide au niveau des points de contacts entre ces plaques. On remarque sur la photographie issue de leur étude (Fig. 4.4) que le liquide forme deux ménisques au niveau de ces singularités (points A et B de la figure). C'est à ces endroits de redistribution locale que l'épaisseur du film liquide est maximale, le ménisque du haut (A) étant légèrement plus important que celui du bas (B). Les auteurs assimilent cette différence à l'action de la gravité. On peut également noter la présence d'un léger ménisque au creux des canaux (zone C de la Fig. 4.4).

Le comportement du film liquide n'est pas forcément symétrique sur les deux surfaces

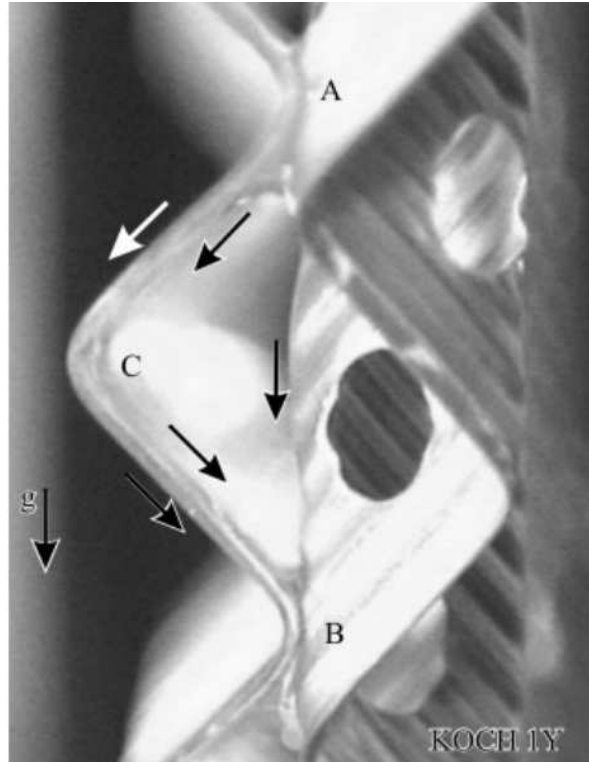


FIGURE 4.4: Photographie de l'écoulement liquide dans les garnissages structurés. Des ménisques sont formés aux zones de contact entre les plaques, (points A et B) ainsi qu'au creux des canaux (point C). (Image issue de l'étude de Alekseenko et al. (2008)).

opposées formant une cellule élémentaire. Par exemple, dans la situation où le garnissage structuré est alimenté par une injection ponctuelle de liquide, une des faces de la cellule peut-être complètement mouillée alors que l'autre face ne contient pas de liquide. Cette asymétrie de l'écoulement à la petite échelle est à l'origine du cône d'étalement du liquide observé sur la Fig. 4.3. D'un point de vue plus général, il peut exister des situations où les débits de chaque film, et par conséquent leur épaisseur, peuvent être sensiblement différents. C'est le cas par exemple pour les cellules proches des bords du tronçon de garnissage ou celles au voisinage d'une zone engorgée.

Comment capturer cette asymétrie d'un point de vue macroscopique ? Nous avons vu dans la première partie de ce chapitre que les écoulements diphasiques en milieu poreux peuvent être représentés par un modèle de Darcy généralisé, avec ou sans terme de couplage visqueux. Dans ces modèles, les vitesses superficielles des phases gaz et liquide sont linéairement reliées au gradient de pression moyenne via un tenseur de perméabilité multiphasique, fonction de la saturation liquide. Cette dépendance est directement reliée à la position de l'interface gaz-liquide de l'écoulement à la petite échelle. Pour une position de l'interface donnée correspond donc une valeur du tenseur de perméabilité multiphasique. La dépendance complète en saturation

peut donc être obtenue en tabulant toutes les positions de l'interface possibles ainsi que les directions de changement de saturation. La tâche, bien que possible, s'avère laborieuse...

L'utilisation des modèles diphasiques usuels est également discutable si l'on s'intéresse au transport d'espèces chimiques dans les garnissages. Considérons, par exemple, la situation où les deux plaques ondulées adjacentes sont intégralement mouillées, formant ainsi deux films s'écoulant selon des directions opposées par rapport à l'axe vertical. Cette configuration des écoulements de films en paroi est représentée sur la Fig. 4.5. Considérons maintenant un composé chimique transporté par le film liquide en contact avec une des plaques ondulées. Ce composé circule selon l'angle de plus grande pente évoqué précédemment. Un modèle de transport macroscopique pertinent doit retranscrire le plus fidèlement possible la direction empruntée par ce composé. Cependant, en utilisant les approches diphasiques classiques, la concentration moyenne de ce composé sera transportée selon la vitesse superficielle du liquide... dont la direction est verticale, comme illustré sur la Fig. 4.5.

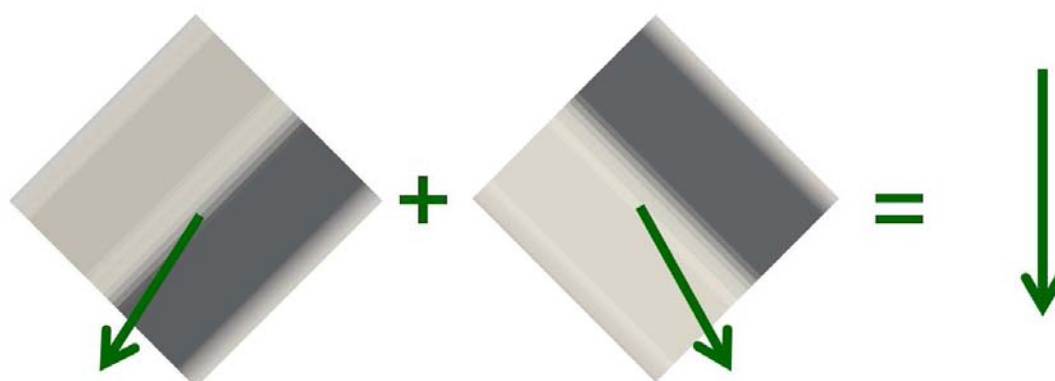


FIGURE 4.5: Schématisation de l'écoulement de film surfacique sur une cellule élémentaire représentative. La vitesse moyenne est dirigée selon l'axe vertical, et ne capture pas les directions préférentielles empruntées par chaque film.

Pour résumer, ces différentes études expérimentales montrent qu'entre deux plaques ondulées adjacentes,

- deux films s'écoulent (un par plaque) avec des directions préférentielles moyennes différentes,
- par un phénomène de redistribution locale au niveau des points de contacts, une quantité de liquide présente sur une plaque peut-être transférée sur l'autre plaque, entraînant ainsi un changement soudain de la direction de l'écoulement de cette quantité de fluide.

Partant de ces constats, Mahr and Mewes (2008) ont proposé de traiter chaque film comme une phase distincte, ces deux phases liquides pouvant échanger de la matière au niveau des points de contacts. Si l'idée paraît séduisante, leur modèle d'écoulement gaz-liquide dans les contacteurs par une approche à deux liquides, basé sur un changement d'échelle, reste incomplet.

Par ailleurs, certains termes sont introduits de façon heuristique, comme c'est le cas pour le taux de transfert de masse entre les deux plaques. Convaincu par la souplesse supplémentaire que la séparation de la phase liquide en deux offre à la modélisation de l'écoulement diphasique dans les garnissages structurés, nous reprenons cette idée avec un formalisme milieu poreux. La partie suivante explicite le modèle macroscopique d'écoulement gaz-liquide par une approche à deux liquides que nous avons développé.

4.3 Modèle mathématique de l'écoulement à l'échelle de la colonne

Dans cette partie, nous développons le modèle mathématique de l'écoulement gaz-liquide à l'échelle de la colonne en considérant une phase gaz γ et deux films liquides notés β_1 et β_2 , de propriétés physiques identiques pouvant échanger de la matière entre eux. Une approche rigoureuse de l'établissement des équations macroscopiques consisterait à appliquer la méthode de la prise de moyenne volumique sur un problème aux conditions aux limites, à l'échelle du pore, où l'on aurait arbitrairement séparé la phase liquide en deux phases distinctes. Ce travail, fort complexe et lourd, requiert de nombreux développements mathématiques. Attaquer frontalement le changement d'échelle d'un problème pseudo triphasique (gaz-liquide-liquide) paraît prématuré compte tenu des connaissances actuelles. Une étape intermédiaire consiste à effectuer le changement d'échelle d'un écoulement monophasique arbitrairement séparé en deux. Cette étude préliminaire nous renseigne sur la forme du terme d'échange entre les deux pseudos-phases liquides et nous donne les pistes nécessaires pour réaliser le changement d'échelle complet du système gaz-liquide-liquide. Dans le cadre de cette thèse, seule cette première étape a été réalisée. Le détail de cette étude préliminaire se situe en Annexe A, nous en exposerons ici les points essentiels. Le modèle mathématique final que nous proposons en est une extrapolation quasi-heuristique.

4.3.1 Equations de conservation de la masse

Dans notre modèle, la phase liquide est séparée en deux phases fictives distinctes. La vitesse superficielle du liquide est donc vue comme la contribution des vitesses superficielles du liquide dans chaque région β_1 et β_2 ,

$$\langle \mathbf{v}_\beta \rangle = \langle \mathbf{v}_{\beta 1} \rangle + \langle \mathbf{v}_{\beta 2} \rangle. \quad (4.20)$$

Les taux de présence de β_1 et β_2 au sein d'un volume élémentaire représentatif sont notés S_{β_1} et S_{β_2} . Ils satisfont la relation évidente,

$$S_\beta = S_{\beta_1} + S_{\beta_2}. \quad (4.21)$$

A l'échelle de la colonne et en supposant un écoulement incompressible, ces saturations obéissent aux équations de continuité pour le gaz et les deux pseudo-phases liquides. Ces dernières s'obtiennent en découplant la loi de conservation de la masse liquide Eq (4.7). On écrit simplement,

$$\varepsilon \frac{\partial S_\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = 0, \quad (4.22)$$

$$\varepsilon \frac{\partial S_{\beta_1}}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle = \dot{m}, \quad (4.23)$$

$$\varepsilon \frac{\partial S_{\beta_2}}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle = -\dot{m}. \quad (4.24)$$

Dans ces équations, nous avons supposé qu'à l'échelle de la colonne de distillation, le taux changement de phase gaz-liquide était nul, c'est-à-dire qu'au niveau d'un VER, la quantité de liquide qui s'évapore est égale à la quantité de vapeur qui se condense (Taylor and Krishna (1993); Iliuta et al. (2004); Mahr and Mewes (2008)). Par ailleurs, nous laissons la possibilité aux deux films liquides de passer d'une plaque à l'autre au niveau des points de contact entre deux plaques adjacentes. D'un point de vue macroscopique, cet échange se traduit par le terme de transfert de masse \dot{m} dans les équations Eq (4.23) et Eq (4.24).

Ce découpage de la phase liquide en deux est cohérent avec la formulation purement diphasique présentée au début de ce chapitre. En effet, on remarque qu'en sommant Eq (4.23) et Eq (4.24) on retrouve l'équation Eq (4.7) de conservation de la masse de liquide du modèle diphasique classique.

4.3.2 Etude préliminaire et discussion concernant le terme d'échange entre les pseudo-phases liquides

Dans leur papier, Mahr and Mewes (2008) proposent un modèle diphasique gaz-liquide où la phase liquide a été séparée en 2 phases liquides fictives. Si l'idée de traiter les deux films liquides de façon indépendante paraît séduisante voire incontournable pour modéliser la dispersion radiale du liquide dans le cas d'une injection ponctuelle par exemple, le modèle qu'ils développent est quant à lui plus discutable. Notamment le terme d'échange de matière entre les deux films et qui apparaît à la fois dans les lois de conservation de la masse liquide et dans les lois de conservation de la quantité de mouvement est introduit de manière heuristique comme

une différence de fractions volumiques :

$$\dot{m} = h(S_{\beta_1} - S_{\beta_2}). \quad (4.25)$$

Or, cette formulation, en plus de ne s'appuyer sur aucune théorie physique peut poser certains problèmes. Imaginons que nous nous intéressons à l'hydrodynamique d'un système bi-structuré constitué de deux canaux parallèles ouverts et de largeur différente. Une coupe transverse de ce type de structure est schématisée sur la Figure 4.6. En suivant la théorie de Mahr and Mewes (2008), on définit arbitrairement deux zones : une à gauche, l'autre à droite. Le liquide s'écoulant dans le canal de gauche est noté β_1 , celui de droite β_2 . D'après cette configuration, si l'on considère la situation schématisée sur la Fig. 4.6a, il y a clairement plus de liquide du côté gauche que du côté droit, la différence de fraction volumique est donc strictement positive : $(S_{\beta_1} - S_{\beta_2}) > 0$. Dans cette situation, le liquide s'écoule du canal de gauche vers le canal de droite. Si l'on considère maintenant la situation décrite sur la Fig. 4.6b, le transfert de liquide s'effectue également de la gauche vers la droite, mais la quantité de liquide dans la zone de droite est dorénavant plus importante que dans celle de gauche. On a pour cette deuxième situation $(S_{\beta_1} - S_{\beta_2}) < 0$. Ce contre-exemple montre, à travers une situation simple, que le terme d'échange ne peut s'exprimer a priori comme un écart de saturation, puisque, dans les deux situations considérées, \dot{m} a un signe opposé alors que le transfert de liquide s'effectue dans le même sens.

L'échange de liquide aux points de contact entre deux plaques de garnissage adjacentes a été peu étudié, et souvent négligé en supposant qu'un film restait préférentiellement sur une plaque. A partir d'images tomographiques 3D d'un garnissage structuré irrigué, Mahr and Mewes (2008) évaluent à moins de 2,5% le taux de liquide transféré d'une plaque à l'autre. L'impact macroscopique est probablement réduit à très basse saturation (film mince) mais non négligeable lorsque l'épaisseur du film liquide augmente. Nous avons cherché la forme théorique de ce terme d'échange. Comme nous l'avons évoqué dans l'introduction de cette partie, le changement d'échelle direct d'un problème gas-liquide-liquide avec de l'échange de matière entre les fluides est actuellement très difficile. Afin d'améliorer la compréhension de la dynamique d'échange à grande échelle d'un milieu poreux bi-structuré, nous nous sommes intéressés à l'écoulement macroscopique dans les milieux bi-structurés complètement saturés. Cette étude est détaillée dans l'Annexe A et nous en rappelons ici les étapes et conclusions essentielles.

Le point de départ de cette étude est un problème d'écoulement lent monophasique dans un milieu poreux. Le problème mathématique associé est un problème de Stokes avec condition de non-glissement à la paroi solide. Le milieu poreux est supposé bi-structuré, c'est-à-dire que le fluide a un comportement différent selon la zone de la structure solide où il s'écoule. Ainsi, le champ de vitesse microscopique peut avoir des valeurs très différentes au sein du

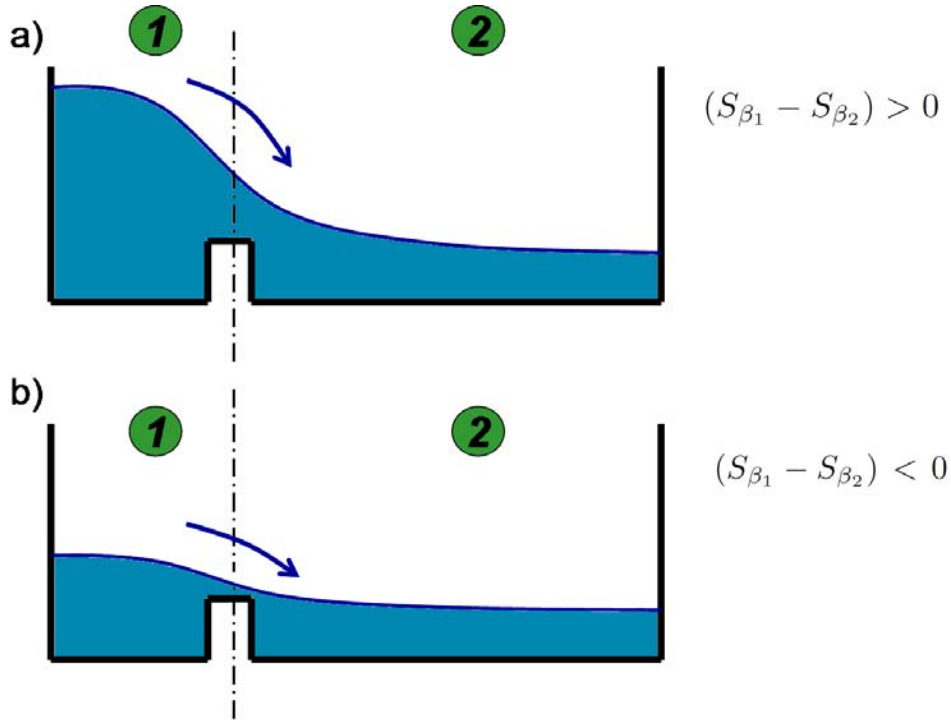


FIGURE 4.6: Illustration des limites d'un terme d'échange vu comme une différence de fraction volumique. Le système est constitué de deux canaux parallèles ouverts et de largeur différente. Dans le premier cas (a), l'écoulement se fait du canal 1 vers le canal 2 et $\dot{m} > 0$. Dans le second cas (b), le transfert de liquide s'effectue dans le même sens, mais $\dot{m} < 0$, ce qui est contradictoire.

même VER. Par conséquent, les valeurs moyennées sur l'ensemble de la cellule peuvent ne pas être représentatives de l'écoulement et entraîner de mauvaises prédictions en ce qui concerne l'hydrodynamique mais aussi le transport d'espèces à l'échelle macroscopique. Pour limiter ces résultats approximatifs, l'idée est de considérer deux fluides distincts ayant les mêmes propriétés physiques, chacun s'écoulant à travers une région différente. Ce découpage de la phase fluide en deux phases est illustré sur la Fig. 4.7. Le découpage est arbitraire, l'interface entre les deux phases fictives est donc immobile et ces deux fluides échangent de la matière au niveau de cette interface. La notion d'interface est ici différente des interfaces séparant un gaz et un liquide ou deux liquides différents. En effet, les propriétés physiques du fluide étant identiques de part et d'autre de cette interface, il n'y a pas de condition de sauts, caractéristique des écoulements diphasiques, mais des conditions de continuité des différents champs tensoriels (vitesse et pression). Par ailleurs, dans chacune des deux régions ainsi délimitées, chaque phase reste modélisée par un problème de Stokes.

Afin d'obtenir les équations différentielles moyennées qui régissent un tel système à l'échelle macroscopique, la méthode de la prise de moyenne volumique, détaillée au Chapitre 2, a été appliquée au problème mathématique de la petite échelle. Dans ce contexte particulier d'un écoulement monophasique traité comme deux phases distinctes qui échangent de la

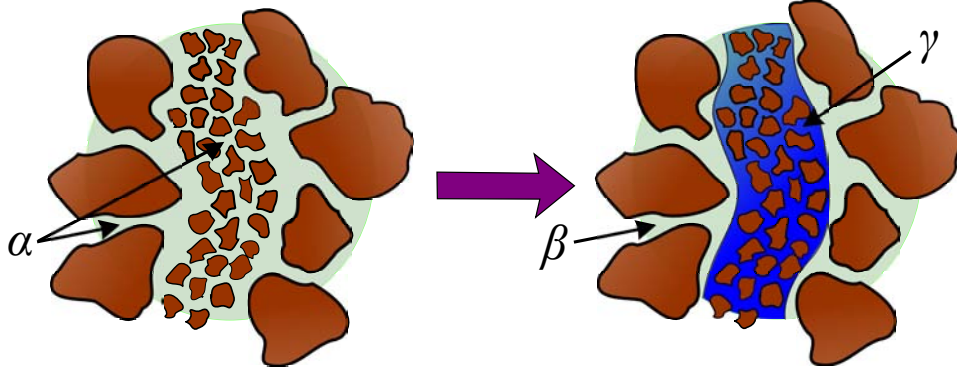


FIGURE 4.7: Schéma représentatif d'un milieu poreux bi-structuré. Dans cet exemple, appartenant à la classe des milieux à double porosité, le fluide β qui s'écoule à travers le milieu est séparé en deux phases fictives : il est noté β_1 dans la région de faible porosité et β_2 dans l'autre région. Ce découpage est le point de départ pour obtenir un modèle macroscopique pertinent dans les milieux bi-structurés saturés.

matière, l'inversion entre l'opérateur moyenne $\langle \cdot \rangle$ et les opérateurs de dérivée spatiale et temporelle est réalisée à l'aide des théorèmes de changement d'échelle polyphasique où la vitesse de l'interface et les variations des fractions volumiques sont nulles (en effet, la séparation entre les deux phases est un choix arbitraire qui n'évolue pas). Une des originalités et clé de ce travail est de considérer un terme d'échange de masse dans les équations de continuité du problème mathématique dont sont solutions les champs perturbés.

Le modèle macroscopique obtenu après cette étape de changement d'échelle est constitué de deux équations de continuité ainsi que de deux équations de conservation de la quantité de mouvement que l'on qualifera de lois de Darcy régionales. Ces différentes équations font intervenir des paramètres effectifs qui peuvent être déterminés à partir de problèmes de fermeture résolus sur un VER. Les lois de conservation de la masse sont couplées par un terme d'échange en différence de pression moyenne,

$$\dot{m} = h \left(\langle p_{\beta_1} \rangle^{\beta_1} - \langle p_{\beta_2} \rangle^{\beta_2} \right). \quad (4.26)$$

Contrairement au terme d'échange piloté par un différentiel de saturation, un échange sous forme de différence de pression est compatible avec la situation diphasique décrite sur la figure Fig. 4.6. Avec une telle formulation, l'échange se fait toujours dans le sens de l'écoulement, et le signe de \dot{m} reste le même dans les deux situations représentées sur la Fig. 4.6. En étendant de façon heuristique l'étude d'un fluide monophasique séparé en deux phases fictives à l'étude d'un écoulement gaz-liquide où la phase liquide est découpée en deux phases de propriétés physiques identiques, les pressions moyennes de chacune des phases liquides peuvent-être reliées à la pression du gaz par l'intermédiaire d'une pression capillaire,

$$p_c(S_i) = \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \langle p_i \rangle^i \quad \text{avec } i = \beta_1, \beta_2. \quad (4.27)$$

Conformément aux modèles d'écoulement diphasique en milieu poreux, ces pressions capillaires dépendent de la saturation. Le terme d'échange \dot{m} peut alors s'écrire comme une différence de p_c ,

$$\dot{m} = h(p_c(S_{\beta_1}) - p_c(S_{\beta_2})). \quad (4.28)$$

Stricto sensu, le coefficient d'échange h qui apparait dans l'expression Eq (4.28) doit dépendre des taux de présence de liquide S_{β_1} et S_{β_2} . En première approximation, cependant, nous le supposons constant. En considérant une saturation réduite nulle, les formulations de Brooks and Corey (1964) pour la pression capillaire permettent d'exprimer le terme d'échange de masse sous la forme :

$$\dot{m} = hp_{c0} \left(S_{\beta_1}^{\frac{1}{\lambda}} - S_{\beta_2}^{\frac{1}{\lambda}} \right). \quad (4.29)$$

où p_{c0} et λ sont des constantes du modèle.

4.3.3 Equations de quantité de mouvement

Lors de l'étude préliminaire menant aux équations macroscopiques pour les écoulements dans les milieux bi-structurés complètement saturés, les vitesses de Darcy régionales s'expriment sous la forme (cf. Annexe A) :

$$\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\beta_1}}{\mu_{\beta_1}} \cdot \left(\nabla \langle p_{\beta_1} \rangle^{\beta_1} - \langle \rho_{\beta_1} \rangle^{\beta_1} \mathbf{g} \right) + \mathbf{K}_{\beta_1 \beta_2} \cdot \langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle + \mathbf{\Pi}_{\beta_1} \left(\langle p_{\beta_1} \rangle^{\beta_1} - \langle p_{\beta_2} \rangle^{\beta_2} \right), \quad (4.30)$$

$$\langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\beta_2}}{\mu_{\beta_2}} \cdot \left(\nabla \langle p_{\beta_2} \rangle^{\beta_2} - \langle \rho_{\beta_2} \rangle^{\beta_2} \mathbf{g} \right) + \mathbf{K}_{\beta_2 \beta_1} \cdot \langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle + \mathbf{\Pi}_{\beta_2} \left(\langle p_{\beta_1} \rangle^{\beta_1} - \langle p_{\beta_2} \rangle^{\beta_2} \right). \quad (4.31)$$

On reconnait des lois de Darcy avec des termes de couplage additionnels entre les deux pseudo-phases. Bien que ces termes aient une existence théorique, on peut supposer qu'ils n'ont pas d'impact sur le calcul de l'écoulement, et qu'on peut les négliger. Cette hypothèse a été vérifiée dans l'application numérique de l'Annexe A.

A partir d'une extrapolation du modèle macroscopique de l'écoulement monophasique dans les milieux poreux bi-structurés et en supposant que les différents termes de couplage sont négligeables, les lois de conservation de quantité de mouvement peuvent-être décrites par un modèle de type Darcy généralisé. Dans une telle approche, on suppose que la vitesse superficielle dans chaque phase (où plutôt dans chaque pseudo-phase dans notre cas) peut-être vue comme

une loi de Darcy :

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\gamma}{\mu_\gamma} \cdot (\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \rho_\gamma \mathbf{g}), \quad (4.32)$$

$$\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\beta_1}}{\mu_\beta} \cdot (\nabla \langle p_{\beta_1} \rangle^{\beta_1} - \rho_\beta \mathbf{g}), \quad (4.33)$$

$$\langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\beta_2}}{\mu_\beta} \cdot (\nabla \langle p_{\beta_2} \rangle^{\beta_2} - \rho_\beta \mathbf{g}). \quad (4.34)$$

Ce modèle reste cependant simplifié. Une des améliorations possibles serait de considérer des termes de couplage visqueux supplémentaires pour prendre en compte l'impact macroscopique du cisaillement des films liquides par le gaz, comme discuté dans la partie 4.1.3 de ce Chapitre.

Les tenseurs de perméabilité multiphasique qui relient les vitesses superficielles aux gradients de pression moyenne dans le système ne sont pas constants. En effet, ces derniers dépendent fortement des saturations liquides. Nous allons voir dans la partie suivante comment évaluer ces tenseurs de perméabilité.

4.4 Caractérisation de l'écoulement à grande échelle

Le modèle mathématique que nous venons de présenter fait intervenir des perméabilités multiphasiques sous forme de tenseurs. Ces tenseurs doivent être évalués à partir de la géométrie et de l'écoulement à l'échelle du pore. Nous présentons dans cette section une méthode pour les évaluer analytiquement à partir de l'analogie avec un écoulement sur plan incliné.

4.4.1 Calcul des perméabilités liquides par analogie avec un écoulement sur plan incliné

Le calcul des perméabilités multiphasiques requiert la connaissance de l'écoulement diphasique et, par conséquent, de la position de l'interface gaz-liquide au sein d'un volume élémentaire représentatif du garnissage. La solution à ce problème apparemment complexe peut-être approximée par des solutions analytiques simples moyennant quelques hypothèses. On suppose, premièrement, qu'une plaque ondulée sur laquelle s'écoule un film liquide est assimilée à un plan incliné d'un angle θ^* par rapport à la verticale (voir Fig. 4.8). Cet angle souvent qualifié d'angle de plus grande pente est en fait un paramètre effectif permettant de prendre en compte les aspects tridimensionnels dus à l'ondulation des plaques lorsque celles-ci sont assimilées à des plans. θ^* peut-être estimé analytiquement à partir des paramètres géométriques d'un canal

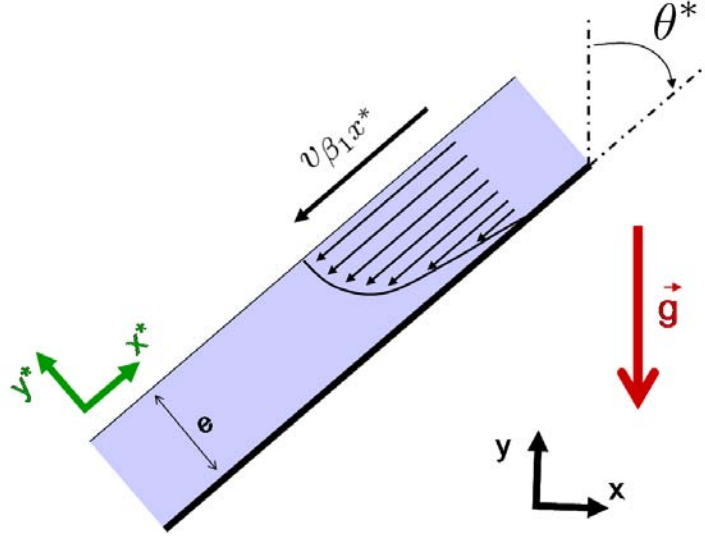


FIGURE 4.8: Ecoulement laminaire sur plan incliné d'un angle de plus grande pente compris entre l'axe vertical et l'orientation des ondes du garnissage. Le profil de vitesse est évalué analytiquement par la solution de Nusselt.

de section triangulaire. Si l'on note β l'angle d'ouverture d'une onde et χ tel que,

$$\cos \chi = \cos \frac{\beta}{2} \cos \theta, \quad (4.35)$$

alors, on peut montrer que (Leclerc (2008)),

$$\theta^* = \arccos \left(\frac{\sin^2 \chi}{\sqrt{\sin^4 \chi + \sin^2 \theta \cos^2 \theta \cos^4 \frac{\beta}{2}}} \right) \quad (4.36)$$

Ainsi, pour le garnissage simulé dans le Chapitre 3, on a $\beta = 60^\circ$ et $\theta = 45^\circ$, ce qui donne un angle de plus grande pente $\theta^* \approx 31^\circ$.

Ce modèle simplifié de l'écoulement sur un plan incliné a été utilisé par de nombreux ingénieurs et chercheurs afin de caractériser l'écoulement liquide dans les garnissages structurés (voir par exemple Rocha et al. (1993); Woerlee et al. (2001); Shilkin and Kenig (2005); Mahr and Mewes (2008)). Dans le cadre de cette thèse, nous considérons une approximation supplémentaire. En effet, en régime laminaire on peut supposer que l'épaisseur e du film est constante. Dans cette configuration l'écoulement admet alors une solution analytique simple, la solution de Nusselt (Nusselt (1916)). Cette dernière est obtenue par la résolution de l'équation de Stokes dans le repère local x^*Oy^* lié à l'écoulement. Ainsi, pour le film liquide noté β_1 , on a,

$$\mu_\beta \frac{\partial^2 v_{\beta_1 x^*}}{\partial y^{*2}} = \frac{\Delta P_{x^*}}{L}. \quad (4.37)$$

Deux conditions à la limite sont associées à cette équation différentielle. La première traduit le non-glissement du fluide au contact avec le garnissage :

$$v_{\beta_1 x^*} |_{y=0} = 0, \quad (4.38)$$

alors que la seconde est une condition d'écoulement à surface libre à l'interface entre le gaz et le liquide

$$\mu_\beta \frac{\partial v_{\beta_1 x^*}}{\partial y^*} |_{y=e} = 0. \quad (4.39)$$

De l'intégration de ce problème résulte la solution de Nusselt,

$$v_{\beta_1 x^*} = \frac{1}{\mu_\beta} y(y-2e) \frac{\Delta P_{x^*}}{L}. \quad (4.40)$$

En moyennant cette formule analytique sur la hauteur du film, on obtient une relation entre la vitesse superficielle et la perte de charge qui s'écrit alors,

$$\langle v_{\beta_1 x^*} \rangle = -\frac{K_{x^* x^*}}{\mu_\beta} \frac{\Delta P_{x^*}}{L}, \quad (4.41)$$

où $K_{x^* x^*}$ est le coefficient de résistance à l'écoulement, relatif au repère local. Il est défini par

$$K_{x^* x^*} = \frac{2\varepsilon_{\beta_1} e^2}{3}. \quad (4.42)$$

Toutefois, afin d'obtenir une formulation plus générale, nous écrivons

$$K_{x^* x^*} = \frac{K_0 S_{\beta_1}^3}{2} \quad (4.43)$$

où K_0 correspond à la perméabilité que l'on obtiendrait si $\theta^* = 0$, c'est-à-dire si les deux plaques adjacentes ondulées étaient assemblées de manière à former des canaux verticaux. On peut alors se référer à la littérature pour l'évaluation de cette valeur selon la géométrie de la section des tubes ainsi formés.

D'un point de vue matriciel, toujours dans le repère $x^* O y^*$, la relation Eq (4.41) peut donc s'écrire en 3D sous la forme :

$$\langle \mathbf{v}_{\beta_1}^* \rangle = -\frac{K_0 S_{\beta_1}^3}{2\mu_\beta} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \Delta P_{x^*}/L \\ \Delta P_{y^*}/L \\ \Delta P_z/L \end{pmatrix}. \quad (4.44)$$

Le calcul que nous présentons ici à pour objectif de caractériser l'écoulement du film liquide sur une des plaques ondulées d'un point de vue macroscopique. Les lois que l'on cherche

à obtenir sont donc définies dans le système de coordonnées globales xOy lié à la colonne de distillation. Grâce à un changement de repère effectué à l'aide de matrices de rotation, la relation Eq (4.44) devient la loi de Darcy multiphasique relative au film liquide β_1 ,

$$\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\beta_1}}{\mu_\beta} \cdot \begin{pmatrix} \Delta P_x/L \\ \Delta P_y/L \\ \Delta P_z/L \end{pmatrix}. \quad (4.45)$$

où la perméabilité multiphasique \mathbf{K}_{β_1} dans le plan xOy est définie en 3D par le tenseur d'ordre 2 suivant,

$$\mathbf{K}_{\beta_1} = \frac{K_0}{2} S_{\beta_1}^3 \begin{pmatrix} \cos^2(\theta^*) & \cos(\theta^*) \sin(\theta^*) & 0 \\ \cos(\theta^*) \sin(\theta^*) & \sin^2(\theta^*) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (4.46)$$

On reconnaît une perméabilité relative en $S_{\beta_1}^3$, conformément aux propositions de Brooks and Corey (1964). Le coefficient $K_{zz} = 0$ indique que, d'un point de vue macroscopique, il n'y a pas d'écoulement dans cette direction. Comme nous l'avons longuement discuté au Chapitre 3, cette expression est valable pour un tronçon de garnissage. Le tronçon suivant ayant subi une rotation de 90° par rapport à l'axe de la colonne, il faudrait intervertir dans Eq (4.46) les coefficients d'indice x avec ceux d'indice z pour caractériser cet autre tronçon.

Par rotation, on obtient un résultat analogue pour la perméabilité \mathbf{K}_{β_2} associée au film liquide β_2 s'écoulant quant-à-lui sur la feuille ondulée adjacente,

$$\mathbf{K}_{\beta_2} = \frac{K_0}{2} S_{\beta_2}^3 \begin{pmatrix} \cos^2(\theta^*) & -\cos(\theta^*) \sin(\theta^*) & 0 \\ -\cos(\theta^*) \sin(\theta^*) & \sin^2(\theta^*) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (4.47)$$

4.4.2 Calcul de la perméabilité diphasique de la phase gazeuse

Le tenseur de perméabilité de la phase vapeur peut-être obtenu en appliquant la théorie du Chapitre 3 et en pondérant le résultat par une perméabilité relative du type Brooks and Corey (1964). Cette perméabilité relative exprime une réduction de l'espace dans lequel s'écoule le gaz, cet espace étant occupé par le film liquide. En absence de liquide, elle tend vers 1 et l'on retrouve alors la valeur de la perméabilité du milieu poreux. Nous proposons ici une méthode alternative, conséquence de la théorie des milieux bi-structurés (voir Annexe A), pour déterminer le tenseur de perméabilité intrinsèque à partir des paramètres géométriques du garnissage. Nous considérons donc que le garnissage est constitué d'une double structure : l'une est formée de "canaux" inclinés d'un angle θ par rapport à la verticale, l'autre d'un angle $-\theta$.

En omettant les perméabilités relatives, l'écoulement gazeux à grande échelle sur chacune des plaques peut-être caractérisé par une perméabilité analogue aux Eqs (4.46) et (4.47). Il est judicieux dans ce cas de considérer un équilibre des pressions dans le VER. Ainsi, le tenseur de perméabilité intrinsèque au garnissage s'obtient alors en sommant ces deux perméabilités régionales. Finalement, on a,

$$\mathbf{K}_\gamma = K_0 S_\gamma^3 \begin{pmatrix} \cos^2(\theta) & 0 & 0 \\ 0 & \sin^2(\theta) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (4.48)$$

On notera que ce tenseur de perméabilité dépend de l'angle d'inclinaison des feuilles ondulées, alors que pour les phases liquides les tenseurs de perméabilité dépendent de l'angle de plus grande pente. Bien évidemment, cette expression est restreinte aux écoulements lents du régime de Darcy.

4.5 Résolution numérique du modèle diphasique à 2 liquides

D'un point de vue numérique, le modèle que nous présentons dans ce chapitre peut être vu comme un modèle d'écoulement triphasique où une phase gaz et deux phases liquides s'écoulent dans un milieu poreux anisotrope, modèle bien connu des pétroliers. Puisque la somme des champs de saturations vaut l'unité et que les pressions moyennes de liquide peuvent s'exprimer selon la pression du gaz via la notion de pression capillaire, le problème est réduit à évaluer les champs de saturation S_{β_1} et S_{β_2} ainsi que la pression du gaz $\langle p_\gamma \rangle^\gamma$. La méthode que nous avons retenue pour implémenter notre modèle dans la plateforme de mécanique des fluides OpenFOAM® est une méthode hybride dite méthode IMPES (IMplicit Pressure Explicit Saturations) décrite en détail pour les écoulements diphasiques et étendue au cas polyphasique dans Aziz and Settari (1979). Selon cette méthode, la pression de la phase gazeuse est résolue de façon implicite à chaque pas de temps en utilisant les valeurs des saturations obtenues au pas de temps précédent. Les saturations liquides sont ensuite évaluées explicitement en utilisant les valeurs du champ de pression calculées implicitement. Les variables telles que les tenseurs de perméabilité multiphasique ou les pressions capillaires qui dépendent de ces champs de saturation sont actualisées à chaque pas de temps.

4.5.1 Equation en pression

La première étape de la méthode IMPES consiste à prédire le champ de pression de la phase gazeuse. Nous cherchons donc une équation différentielle dont cette pression est solution. Pour cela, nous reformulons les vitesses superficielles de chaque phase en fonction de $\langle p_\gamma \rangle^\gamma$.

En faisant l'hypothèse que les gradients des différentes pressions sont relativement proches ($\nabla\langle p_\gamma \rangle^\gamma \approx \nabla\langle p_{\beta_1} \rangle^{\beta_1} \approx \nabla\langle p_{\beta_2} \rangle^{\beta_2}$), nous pouvons décrire les vitesses superficielles par,

$$\langle \mathbf{v}_i \rangle = -\mathbf{M}_i \cdot \nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma + \mathbf{L}_i \cdot \mathbf{g} \quad \text{où } i = \gamma, \beta_1, \beta_2, \quad (4.49)$$

où le tenseur \mathbf{M}_i représente la mobilité et \mathbf{L}_i a la dimension d'une unité de temps. Sous cette écriture générale, des modèles plus complexes, faisant intervenir par exemple des termes de couplage liés au cisaillement du liquide par le gaz pourront être pris en compte ultérieurement.

Afin de développer l'équation différentielle qui gouverne l'évolution de la pression, nous introduisons la notion de vitesse totale $\langle \mathbf{v}_T \rangle$ définie comme la somme des vitesses superficielles de chaque phase :

$$\langle \mathbf{v}_T \rangle = \sum_i \langle \mathbf{v}_i \rangle \quad \text{où } i = \gamma, \beta_1, \beta_2. \quad (4.50)$$

En sommant les trois équations de continuité Eq (4.22), Eq (4.23) et Eq (4.24) on remarque que la vitesse totale $\langle \mathbf{v}_T \rangle$ satisfait une divergence nulle,

$$\nabla \cdot \langle \mathbf{v}_T \rangle = 0. \quad (4.51)$$

Par ailleurs, d'après l'écriture générique Eq (4.49), cette vitesse totale peut s'écrire sous la forme,

$$\langle \mathbf{v}_T \rangle = -\mathbf{M} \cdot \nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma + \mathbf{L} \cdot \mathbf{g}, \quad (4.52)$$

avec

$$\mathbf{M} = \sum_i \mathbf{M}_i \quad \text{et} \quad \mathbf{L} = \sum_i \mathbf{L}_i \quad \text{où } i = \gamma, \beta_1, \beta_2, \quad (4.53)$$

ce qui nous permet d'écrire l'équation différentielle qui régit le champ de pression $\langle p_\gamma \rangle^\gamma$:

$$\nabla \cdot (-\mathbf{M} \cdot \nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{L} \cdot \mathbf{g}) = 0. \quad (4.54)$$

Dans cette équation, résolue de façon implicite, les tenseurs \mathbf{M} et \mathbf{L} dépendent des différentes saturations. Ils sont donc ré-évalués explicitement à chaque pas de temps.

4.5.2 Equations en saturation

La seconde étape de l'algorithme de résolution de l'écoulement triphasique consiste à évaluer les différents champs de saturation. D'après la relation Eq (4.21), la saturation de la phase gazeuse peut être déduite des saturations liquides S_{β_1} et S_{β_2} . Ces dernière sont calculées à partir d'une résolution explicite et séquentielle des lois de conservation des masses liquides Eq (4.23) et Eq (4.24).

Dans le cas où les deux phases liquides n'échangent pas ($\dot{m} = 0$), ces deux équations sont indépendantes, et l'approche séquentielle est légitime. La situation se complique lorsque l'échange de liquide entre deux plaques adjacentes doit être pris en compte. En effet, les équations de continuité Eq (4.23) et Eq (4.24) deviennent alors fortement couplées et il peut être nécessaire d'utiliser une boucle itérative du type boucle Picard au sein même du pas de temps pour assurer une bonne convergence du calcul. En pratique, cependant, les simulations que nous avons réalisées ont montré qu'une seule itération était nécessaire.

Les équations Eq (4.23) et Eq (4.24) ont un caractère hyperbolique. La résolution numérique de ce type d'équation nécessite la mise en place de schémas de discrétisation adaptés pour prédire correctement la propagation de "chocs" ou de "front" dans le milieu poreux. En effet, les schémas centrés génèrent des oscillations au niveau de la discontinuité formée par le front de saturation. Une meilleure stabilité de la solution peut-être assurée en utilisant des schémas amonts d'ordre 1. Or, ces types de schéma numérique sont intrinsèquement diffusifs et la stabilité est obtenue au détriment de la précision de la solution. Afin de capturer correctement l'avancée des fronts tout en diminuant la diffusion numérique, de nombreuses alternatives aux schémas de discrétisation classiques existent. Dans cette étude, nous utilisons un limiteur de pente de type van Leer (Van Leer (1977)) qui appartient à la catégorie des schémas TVD (Total Variation Diminishing).

4.5.3 Condition de stabilité

De par son caractère explicite, la résolution des deux équations de saturation nécessite de petits pas de temps, contraints par une condition de type CFL. Celle-ci permet en fait de contrôler que la quantité totale de fluide qui traverse une maille est inférieure au volume poreux de la maille. Pour une résolution tridimensionnelle, Aziz and Settari (1979) proposent le critère suivant :

$$\Delta t < \frac{\varepsilon \Delta x \Delta y \Delta z}{\langle v_{T_x} \rangle \Delta y \Delta z + \langle v_{T_y} \rangle \Delta x \Delta z + \langle v_{T_z} \rangle \Delta x \Delta y}, \quad (4.55)$$

où Δx , Δy et Δz expriment la taille d'une maille dans chaque direction de l'espace.

Ce critère peut s'avérer trop restrictif et, par conséquent, entraîner des temps de calculs très importants, notamment dans le cas de longues durées de simulation ou de maillages très fins. Afin de réduire ce temps de calcul tout en gardant une bonne stabilité des solutions, nous utilisons la méthode proposée par Chen et al. (2004). Partant de l'observation que l'intégration implicite du champ de pression prenait beaucoup plus de temps que la résolution explicite de la saturation, que le pas de temps était contraint par le caractère explicite de l'équation pour la saturation et que le champ de pression variait peu entre 2 pas de temps successifs, ils ont imaginé une méthode IMPES améliorée qui consiste simplement à résoudre implicitement la pression sur un pas de temps grand et de résoudre explicitement la saturation sur des sous pas

de temps plus petits permettant de garantir la stabilité du système.

4.6 Comparaisons entre le modèle numérique et des résultats expérimentaux

Maintenant que nous avons présenté les bases conceptuelles, mathématiques et numériques de notre modèle d'écoulement diphasique dans les garnissages structurés, nous allons illustrer le fonctionnement de l'outil que nous venons de développer en comparant des simulations avec des résultats expérimentaux. La première expérience auquel a été confronté notre modèle consiste en l'injection d'un film liquide dans un dispositif formé par l'assemblage de deux feuilles ondulées. Elle a été réalisée à l'IMFT dans le cadre de cette thèse. La seconde, plus proche des situations industrielles, correspond à l'écoulement diphasique à contre-courant dans une colonne constituée de l'empilement de plusieurs tronçons de garnissage. La distribution liquide y est cartographiée par tomographie. Elle est issue de la littérature (Fourati et al. (2012)).

4.6.1 Expérience n°1 : Ecoulement film entre deux plaques ondulées adjacentes

Afin de visualiser la dynamique des films liquides dans les garnissages structurés nous avons reproduit un garnissage à l'aide de deux plaques ondulées transparentes. Ces plaques sont parfaitement identiques. Pour les fabriquer, nous avons usiné, puis poli une feuille ondulée de $15 \times 30 \text{ cm}$ en plexiglas dont les caractéristiques représentent le garnissage étudié au Chapitre 3 (canaux orientés d'un angle $\theta = 45^\circ$ par rapport à l'axe vertical, et l'angle d'ouverture d'une onde vaut $\beta = 60^\circ$). Une résine thermodurcissable transparente (RTV615) a ensuite été coulée dans ce moule, puis cuite pendant 4h à 65°C , et finalement démoulée afin d'obtenir une plaque ondulée transparente. L'opération a été répétée pour obtenir la plaque jumelle. Les deux plaques (Fig. 4.9c) sont ensuite assemblées dans le dispositif présenté à la Fig. 4.9a. Il contient, en entrée, un injecteur contrôlé par un pousse-seringue ou une pompe, et des collecteurs en sortie. Pour obtenir une injection ponctuelle, un tube métallique est placé précisément au niveau du point de contact, au milieu et en haut, des deux feuilles ondulées (voir Fig. 4.9c)

La résine que nous avons utilisée pour fabriquer les plaques ondulées transparentes est très hydrophobe. Ainsi, pour reproduire au mieux le caractère très mouillant de l'air liquide, nous avons utilisé une huile dont la tension de surface est très faible (Lubrilog LY F 15). Sa densité et sa viscosité sont respectivement $\rho_\beta = 1870 \text{ kg/m}^3$ et $\mu_\beta = 28 \cdot 10^{-3} \text{ kg/m/s}$. Le gaz n'est autre que l'air ambiant ($\rho_\gamma = 1,17 \text{ kg/m}^3$, $\mu_\gamma = 1,85 \cdot 10^{-5} \text{ kg/m/s}$). On injecte l'huile à un débit de 20 mL/min . Au niveau du point de contact où l'injection est effectuée, le liquide

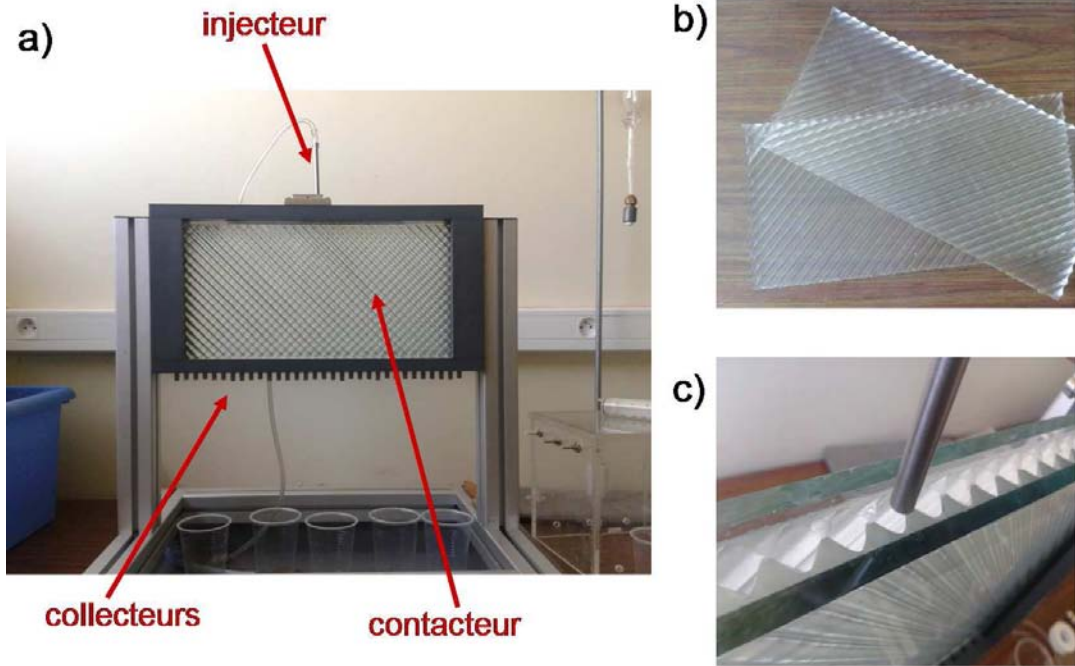


FIGURE 4.9: Dispositif expérimental réalisé pour étudier la dynamique des films liquides dans les garnissages structurés. (a) Le liquide est injecté en haut du contacteur via un pousse-seringue ou une pompe et récupéré ensuite à l'aide de collecteurs. (b) Le contacteur est constitué de deux plaques ondulées identiques en résine transparente. (c) L'injection ponctuelle est réalisée à l'aide d'un tube métallique positionné précisément au niveau d'un point de contact entre les deux plaques.

est immédiatement distribué sur les deux plaques. Sur la photographie Fig. 4.10, on observe deux filets de liquide distincts s'écoulant du point d'injection jusqu'à la sortie du dispositif. Ils passent d'un canal à l'autre en suivant un angle de plus grande pente d'environ $\theta^* \approx 31,4^\circ$ par rapport à l'axe vertical, ce qui est conforme à la valeur prédite par Eq (4.36) ($\theta^* \approx 30,96^\circ$). Cette forme de filet rectiligne stipule que, pour ces conditions opératoires, chaque film reste sur la plaque où il a été initialement injecté, sans qu'aucune quantité de liquide ne soit transférée d'une plaque à l'autre. En d'autre terme, $\dot{m} \approx 0$.

Afin d'illustrer le fonctionnement du modèle que nous avons développé, nous avons reproduit cette expérience d'un point de vue numérique. En accord avec les résultats expérimentaux, nous supposons que $\dot{m} = 0$. La géométrie consiste en un rectangle, de dimensions identiques à celles du dispositif expérimental, pavé à l'aide de 13600 hexaèdres. L'injection est réalisée au milieu du bord supérieur, sur quelques cellules, avec $\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle = \langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle = 0,005 \text{ m/s}$. Le calcul est ensuite lancé jusqu'à obtenir un état stationnaire de la solution (de l'ordre de 2 secondes). Les champs de saturation liquide S_β obtenus pour différents temps sont présentés sur la Fig. 4.11. La distribution liquide en régime établi est conforme à l'expérience (Fig. 4.10)

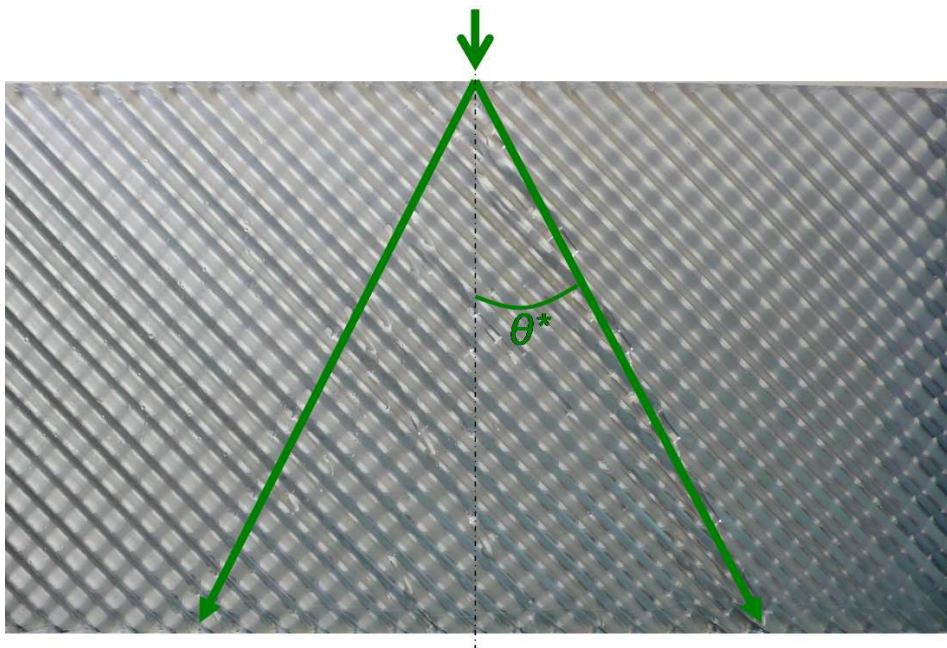


FIGURE 4.10: Ecoulement film dans le contacteur. On observe deux filets liquides (mis en valeur par les flèches vertes), distincts, qui s'écoulent du point d'injection à la sortie du dispositif. L'angle de plus grande pente mesuré vaut $\theta^* \approx 31,4^\circ$, conformément à la valeur prédite par le modèle.

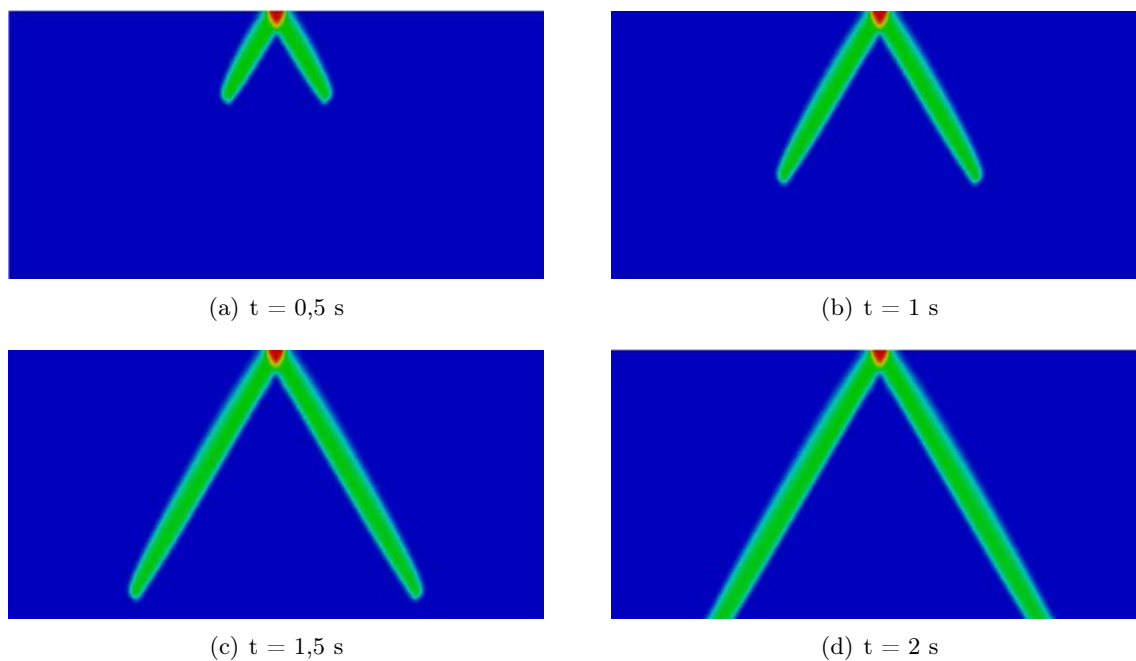


FIGURE 4.11: Champs de saturation liquide obtenus par simulation. La distribution liquide en régime établi est conforme aux résultats expérimentaux.

4.6.2 Expérience n°2 : Comparaison de la distribution liquide obtenue par simulation et par tomographie en situation quasi-industrielle (Fourati et al. (2012))

A l'occasion d'une récente étude, fruit d'une collaboration entre l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse et IFP Energies Nouvelles, Fourati et al. (2012) ont visualisé, par tomographie à rayon gamma, l'écoulement diphasique à contre-courant dans une colonne contenant des garnissages structurés. L'objectif de ces travaux était l'étude de l'étalement dans une colonne alimentée par une source liquide quasi-ponctuelle. La colonne, d'une hauteur de 1,5m et de 40 cm de diamètre, est composée de 6 tronçons de garnissages structurés MellaPak 250.X manufacturés et commercialisés par Sulzer Chemtech (Fig. 4.12). La géométrie de ce type de garnissage diffère en plusieurs points de ceux que nous avons étudiés dans la partie précédente et dans le Chapitre 3. Premièrement, les feuilles ondulées sont inclinées d'un angle de 30° par rapport à l'axe vertical (contre 45° pour les cas précédents). Ensuite, les dimensions d'un canal sont plus grandes : on a $b = 2,4 \text{ cm}$ et $H = 1,2 \text{ cm}$. Enfin, pratique très répandue chez les fabricants de contacteurs, ces garnissages sont perforés. Ces perforations ont plusieurs objectifs : elles permettent, d'un côté, d'alléger considérablement le poids de la colonne, ce qui a des conséquences immédiates au niveau de l'ingénierie, et, d'un autre côté, de désengorger plus rapidement, via un rééquilibrage des pressions, les zones de la colonne saturées en liquide. Les packs, d'une hauteur de 22 cm, sont empilés les uns sur les autres, deux packs voisins étant tournés, l'un par rapport à l'autre dans l'axe de la colonne, d'un angle de 90° . Le liquide est injecté en tête de colonne à l'aide d'un distributeur quasi-ponctuel. Ainsi, la section d'entrée alimentée correspond à un disque d'environ 50 mm de diamètre. Le gaz est, quant à lui, injecté par le bas de la colonne. La distribution liquide est cartographiée par imagerie tomographique pour différentes sections de la colonne (les plans Z_1 , Z_2 , Z_3 et Z_4 de la Figure 4.12a). Les auteurs utilisent un système air/eau et étudient la dispersion radiale du liquide pour plusieurs débits d'eau et d'air. Ils montrent que cette dispersion ne varie pas significativement avec les débits de fluide, et concluent donc qu'elle dépend principalement de la géométrie du garnissage.

Nous avons cherché à reproduire ces résultats expérimentaux à l'aide du modèle que nous avons développé. Nous n'avons cependant pas respecté tout le protocole expérimental de Fourati et al. (2012), et nous avons procédé à quelques hypothèses simplificatrices. Premièrement, nous n'avons pas considéré d'injection de gaz dans la colonne en plus de la quantité initialement présente. D'après les conclusions de Fourati et al. (2012), cette simplification impacte peu la dispersion radiale du liquide. Deuxièmement, nous avons supposé que les garnissages n'étaient pas perforés. Les perforations devraient modifier la valeur de θ^* , et l'analogie avec l'écoulement sur plan incliné n'est plus valable. L'angle de plus grande pente pourrait être précisé à l'aide de simulation, à la petite échelle, de films liquides s'écoulant sur la topologie exacte des feuilles

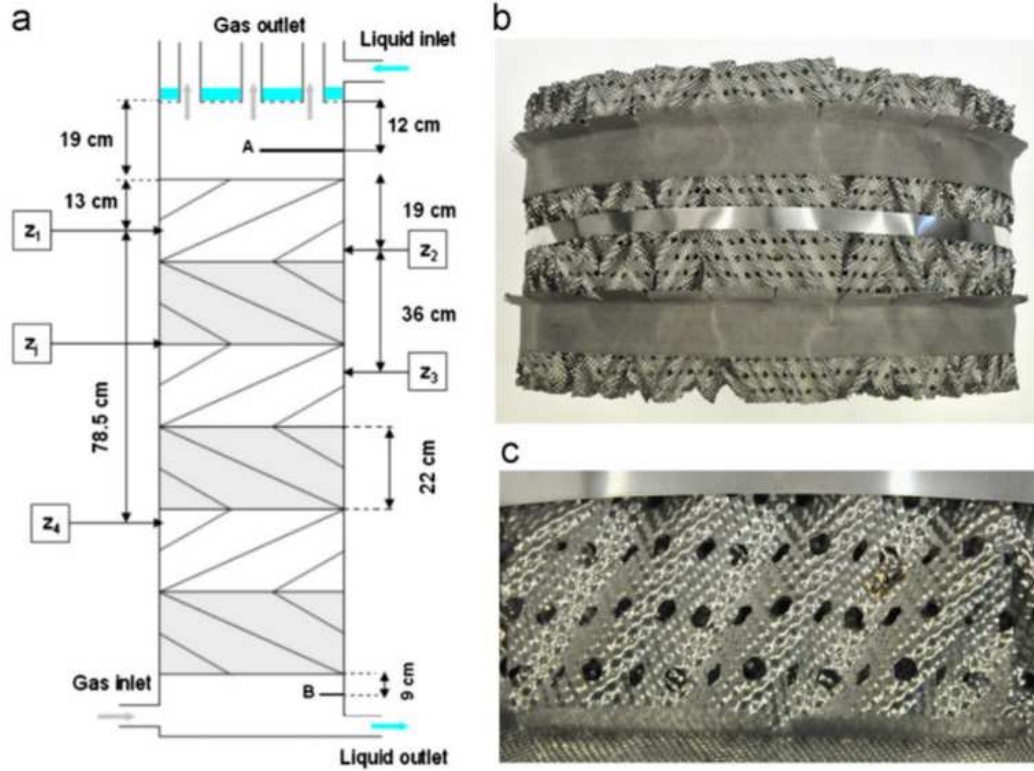


FIGURE 4.12: Colonne utilisée par Fourati et al. (2012) pour étudier la distribution liquide par tomographie. (a) Schéma de la colonne contenant 6 packs empilés les uns sur les autres, chacun étant tourné d'un angle de 90° par rapport à son voisin. Le liquide et le gaz sont respectivement injectés en haut et en bas de colonne. Des images tomographiques représentant la saturation liquide sont acquises aux sections Z_1 , Z_2 , Z_3 et Z_4 . (b) et (c) Photographie d'un Mellapak 250.X (Image issue de Fourati et al. (2012))

ondulées perforées. Ce type de résultat (θ^* en fonction du taux de perforation) est une indication intéressante qui mériterait d'être approfondie, mais qui dépasse le cadre de cette thèse. A partir des dimensions du MellaPak 250.X, nous obtenons que $K_0 \approx 10^{-5} m^2$ et que $\theta^* \approx 20^\circ$. Notre modèle requiert des données supplémentaires, notamment les valeurs des paramètres h et λ qui caractérisent le terme d'échange de liquide (\dot{m}) entre deux plaques adjacentes, Eq (4.29). N'ayant pas de méthode pour fermer ces variables, nous avons réalisé une étude de sensibilité afin de les ajuster le plus précisément possible. Les plans les plus hauts (Z_1 et Z_2) sont particulièrement intéressants pour notre étude car ils fournissent une visualisation de la répartition du liquide dans un seul pack, avant la redistribution liée à la rotation du pack du dessous. Ainsi, nous avons simulé l'écoulement dans le premier pack pour différentes valeurs de h et de λ . La géométrie consiste en un cylindre de 22 cm de haut et de 40 cm de diamètre, maillé par 72000 hexaèdres (voir Figure 4.13). L'injection liquide quasi-ponctuelle est effectuée au centre de la section la plus haute, avec $\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle = \langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle = 0,015 m/s$. Les propriétés physiques de l'air et de l'eau que nous avons utilisées sont respectivement $\rho_\gamma = 1,17 kg/m^3$,

$\mu_\gamma = 1,85 \cdot 10^{-5} \text{ kg/m/s}$ et $\rho_\beta = 998 \text{ kg/m}^3$, $\mu_\beta = 10^{-3} \text{ kg/m/s}$. Après avoir atteint le régime stationnaire (de l'ordre de quelques secondes), nous avons comparé qualitativement la distribution liquide au niveau de la section Z_2 . Dans ce plan situé en fin de pack, l'étude de Fourati et al. (2012) montre que la distribution liquide, initialement circulaire, s'est étalée dans la direction des feuilles ondulées et que la saturation liquide la plus élevée est au centre de la section (voir Fig. 4.14a). Sur la Fig. 4.14, nous présentons les résultats obtenus pour $\lambda = 1$, fixé,

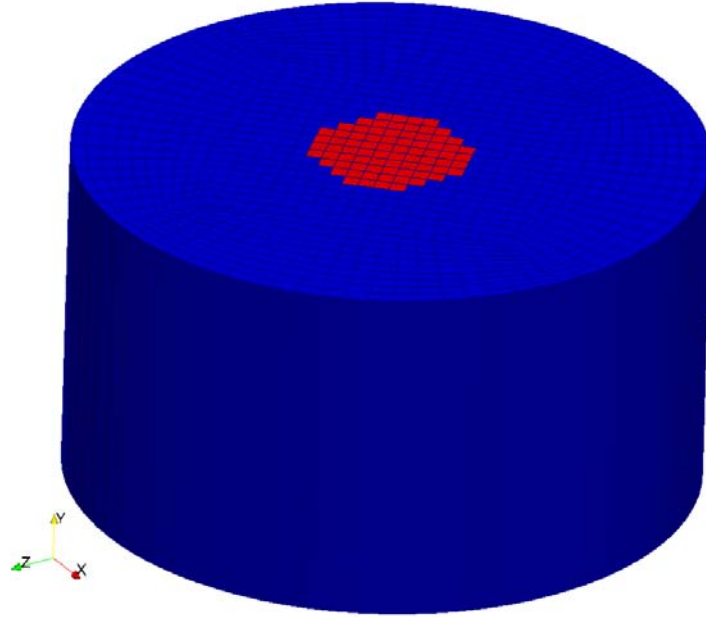


FIGURE 4.13: Géométrie d'un pack de garnissage. Elle est constituée d'un cylindre de 22 cm de haut, de 40 cm de diamètre, et maillé avec 72000 hexaèdres. Pour le premier pack de la colonne, l'injection du liquide est effectuée au centre de la plus haute section (disque rouge sur la figure)

et h variant de 0 à 10 s^{-1} . Pour $h = 0 \text{ s}^{-1}$ (Fig. 4.14b), on remarque deux distributions liquides distinctes. Dans ce cas, il n'y a pas de transfert de liquide ($\dot{m} = 0$) et chaque film reste sur une seule plaque. Pour des valeurs plus élevées, allant jusqu'à $h = 3 \text{ s}^{-1}$ (Fig. 4.14c,d,e), l'étalement est plus conforme au résultat expérimental de la Fig. 4.14a. Cependant, on remarque deux pics de saturation de part et d'autre du centre de la section. Les valeurs de h comprises entre 4 et 5 s^{-1} (Fig. 4.14f,g) semblent mieux correspondre au résultat attendu. Pour la suite de nos simulations, nous avons choisi $h = 4 \text{ s}^{-1}$. Enfin, on remarque que, pour $h = 10 \text{ s}^{-1}$ (Fig. 4.14h), l'étalement est faible, et que la distribution liquide est quasiment la même en sortie qu'en entrée de pack. On est dans ce cas, *i.e.*, h suffisamment grand, en situation d'équilibre local, et on retrouve alors le comportement des modèles diphasiques en milieu poreux classiques, tels qu'ils ont été exposés au début de ce chapitre. Cette analyse de sensibilité illustre que, en plus de la géométrie des garnissages, la dispersion radiale est également pilotée par le taux d'échange de liquide au niveau des points de contact entre deux feuilles ondulées adjacentes. Sur la Fig. 4.15,

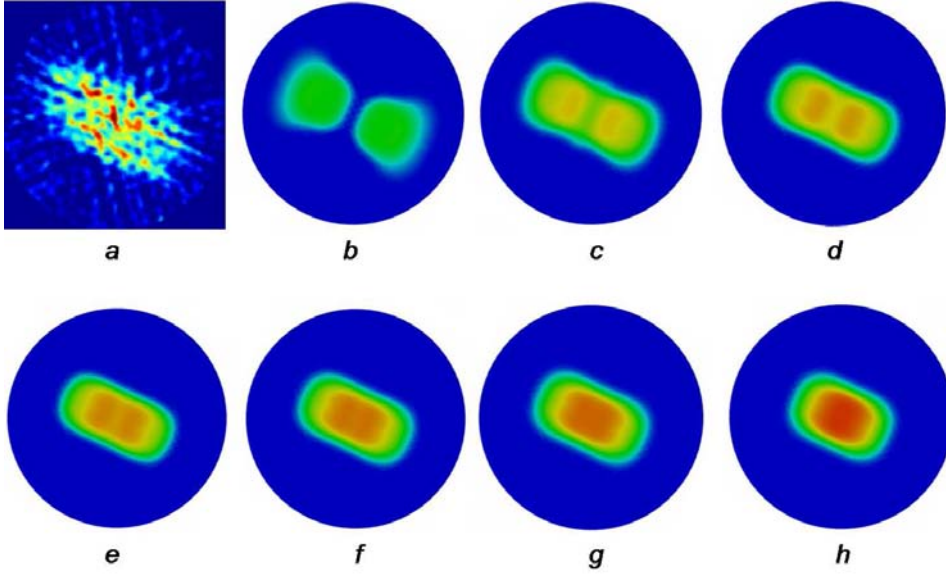


FIGURE 4.14: Distribution liquide dans le premier pack (section Z_2) pour différentes valeurs de h et $\lambda = 1$. On a : (a) Résultat expérimental (Fourati et al. (2012)); (b) $h = 0 \text{ s}^{-1}$; (c) $h = 1 \text{ s}^{-1}$; (d) $h = 2 \text{ s}^{-1}$; (e) $h = 3 \text{ s}^{-1}$; (f) $h = 4 \text{ s}^{-1}$; (g) $h = 5 \text{ s}^{-1}$; (h) $h = 10 \text{ s}^{-1}$. Pour des valeurs de h trop faibles (0 à 3 s^{-1}), on remarque deux pics de saturation, de part et d'autre du centre de la section, qui n'apparaissent pas sur l'image (a). Les valeurs de h comprises entre 4 et 5 s^{-1} semblent mieux correspondre au résultat attendu. Pour des valeurs plus élevées, le modèle tend vers équilibre local. Pour la suite des simulations, nous avons choisi $h = 4 \text{ s}^{-1}$.

nous présentons les résultats obtenus pour $h = 4 \text{ s}^{-1}$, fixé, et λ variant de 0.1 à 10 . L'effet de λ semble aller dans le sens inverse que celui de h : plus λ est petit et plus l'on tend vers un équilibre local. Pour la suite de notre étude, nous utiliserons la valeur $\lambda = 1$.

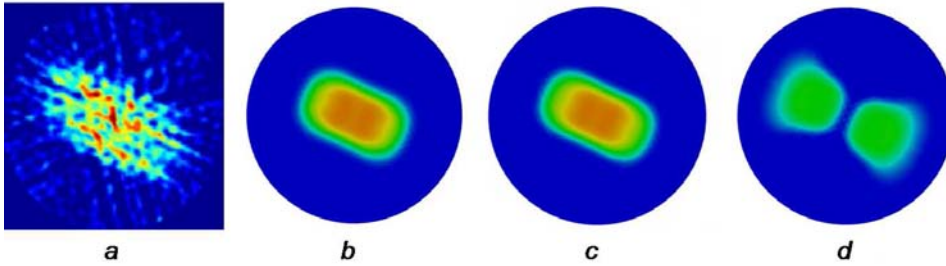


FIGURE 4.15: Distribution liquide dans le premier pack (section Z_2) pour différentes valeurs de λ et $h = 4 \text{ s}^{-1}$. On a : (a) Résultat expérimental (Fourati et al. (2012)); (b) $\lambda = 0.1$; (c) $\lambda = 1$; (d) $\lambda = 10$. L'effet de λ semble aller dans le sens inverse que celui de h : plus λ est petit et plus l'on tend vers un équilibre local. Pour la suite de notre étude, nous utiliserons la valeur $\lambda = 1$.

Une fois les paramètres d'échange calibrés ($h = 4 \text{ s}^{-1}$ et $\lambda = 1$), nous avons simulé l'écoulement dans les trois premiers packs. Les premier et troisième tronçons sont caractérisés par les tenseurs de perméabilité \mathbf{K}_{β_1} , \mathbf{K}_{β_2} et \mathbf{K}_{γ} définis par les relations Eqs (4.46), (4.47) et (4.48). Les perméabilités du deuxième pack sont obtenues en interchangeant les indices x et z de

ces équations. L'écoulement dans chaque pack est simulé indépendamment et successivement, ce qui a l'avantage de réduire les temps de calcul et d'utiliser le code tel que nous l'avons présenté dans ce chapitre, sans modification supplémentaire. Une fois le régime stationnaire établi dans le premier pack, nous avons récupéré les valeurs des champs de vitesse en sortie de pack pour les imposer en tant que conditions d'entrée pour le pack suivant, via la relation,

$$\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle_{\text{entrée}}^{n+1} = \langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle_{\text{entrée}}^{n+1} = \frac{\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle_{\text{sortie}}^n}{2} + \frac{\langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle_{\text{sortie}}^n}{2}, \quad (4.56)$$

où $\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle_{\text{entrée}}^{n+1}$ et $\langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle_{\text{entrée}}^{n+1}$ sont les valeurs des champs de vitesse en entrée d'un pack, alors que $\langle \mathbf{v}_{\beta_1} \rangle_{\text{sortie}}^n$ et $\langle \mathbf{v}_{\beta_2} \rangle_{\text{sortie}}^n$ sont les valeurs de ces champs en sortie du pack précédent. Cette relation stipule qu'à la jonction entre deux tronçons successifs, un canal du pack $n + 1$ est alimenté à moitié par le film noté β_1 dans le pack précédent, et à moitié par celui noté β_2 . Le calcul est alors effectué jusqu'à obtenir un état stationnaire. On réitère ensuite l'opération pour le pack suivant.

Le champ de saturation liquide résultant de cette simulation est présenté sur la Fig. 4.16 par une coupe selon le plan xOy et une autre selon zOy . On remarque que le liquide s'étale dans la direction x dans les premier et troisième packs, et dans la direction z dans le second pack. Sur la Fig. 4.17, nous avons comparé les résultats de la simulation aux images tomographiques de Fourati et al. (2012). Les simulations sont qualitativement comparables aux résultats expérimentaux : on retrouve bien dans chaque tronçon un étalement dans une direction privilégiée (x ou z selon le pack), de manière à obtenir une distribution presque homogène au bout de quelques packs. On remarque toutefois un facteur $\times 2$ entre les valeurs des champs de saturation expérimentaux et ceux issus de simulations. Cette différence peut s'expliquer par une trop forte approximation de la condition d'injection dans la colonne. Par ailleurs, dans le troisième pack (plan Z_3), l'étalement est sous-estimé par rapport à l'expérience. Nous avons identifié plusieurs points pouvant conduire à cette sous-estimation. Premièrement, comme nous l'avons précisé précédemment dans ce chapitre, l'angle de plus grande pente est en fait fonction du taux de perforation, et une étude de l'écoulement à la petite échelle sur la véritable topologie du garnissage permettrait d'obtenir une valeur plus précise de θ^* . Ensuite, le modèle d'écoulement à la petite échelle que nous avons utilisé pour évaluer les perméabilités multiphasiques résultent d'approximations fortes (écoulement laminaire, épaisseur de film constante...) qui peuvent se répercuter à l'échelle de la colonne. Troisièmement, les paramètres du taux de transfert de liquide d'une plaque à l'autre (\dot{m}) sont ajustés approximativement, et une étude plus poussée mériterait d'être réalisée. Enfin, la condition de jonction entre les packs que nous avons utilisée est une vision simplifiée qui pourrait également entraîner une mauvaise redistribution du liquide dans les zones de jonctions. Le problème de la condition aux interfaces entre deux milieux poreux pour des écoulements diphasiques a été très peu étudié. La condition classique correspond à une continuité des pressions capillaires qui est inappropriée dans notre cas. Un

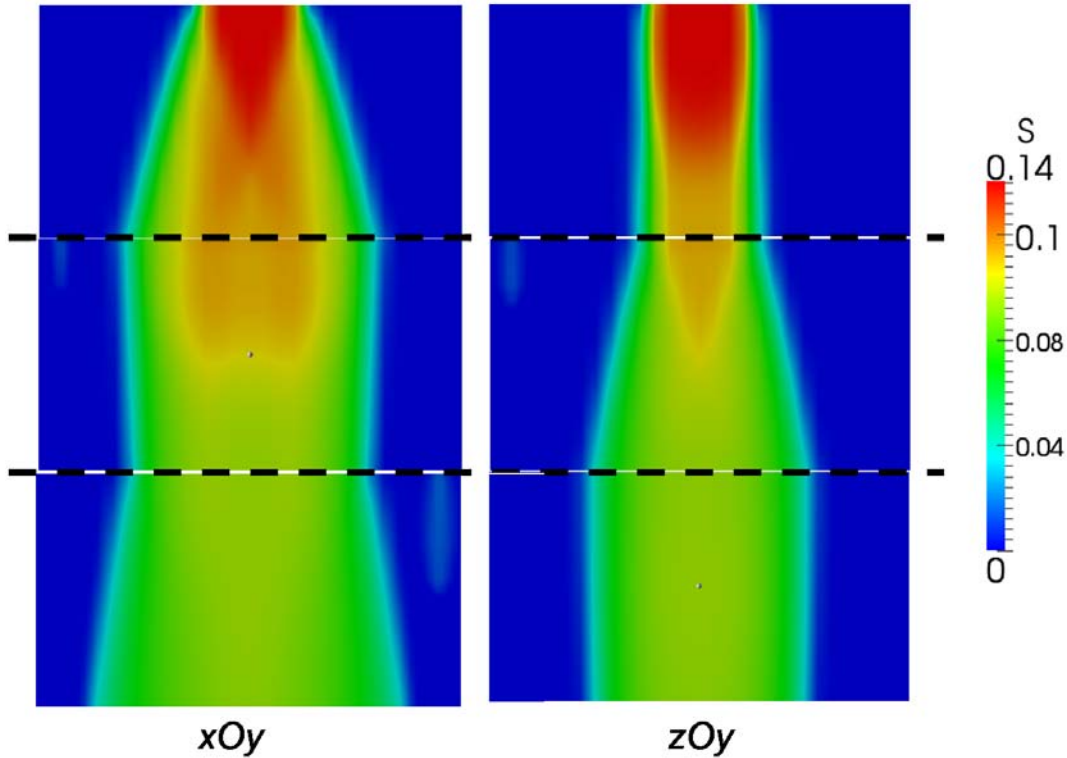


FIGURE 4.16: Distribution liquide à travers les 3 premiers packs de la colonne dans les plans xOy et zOy . On remarque alternativement un étalement dans la direction x (pack 1 et 3) et dans la direction z (pack 2).

travail spécifique serait nécessaire pour clarifier ce point pour des milieux très perméables, pour des milieux structurés, et dans le cas d'un "splitting" de la phase liquide. Nous n'avons pas eu le temps d'entamer cette étude dans le cadre de cette thèse.

4.7 Conclusions

Nous avons vu dans ce chapitre que les modèles classiques d'écoulement diphasique en milieu poreux ne sont pas adaptés pour simuler la distribution liquide dans les colonnes équipées de garnissages structurés. Nous avons identifié que le mécanisme d'étalement du liquide dans ce type de garnissage est une conséquence de sa double structure et que la situation aux points de contact entre deux feuilles ondulées adjacentes joue un rôle important dans la dynamique de l'écoulement.

Le modèle que nous avons développé est une extrapolation aux systèmes diphasiques, de la théorie des écoulements dans les matériaux poreux bi-structurés complètement saturés (voir Annexe A). Dans cette modélisation, la phase liquide est séparée en deux films distincts (chacun étant associé à une feuille ondulée du garnissage) qui échangent de la matière au niveau des

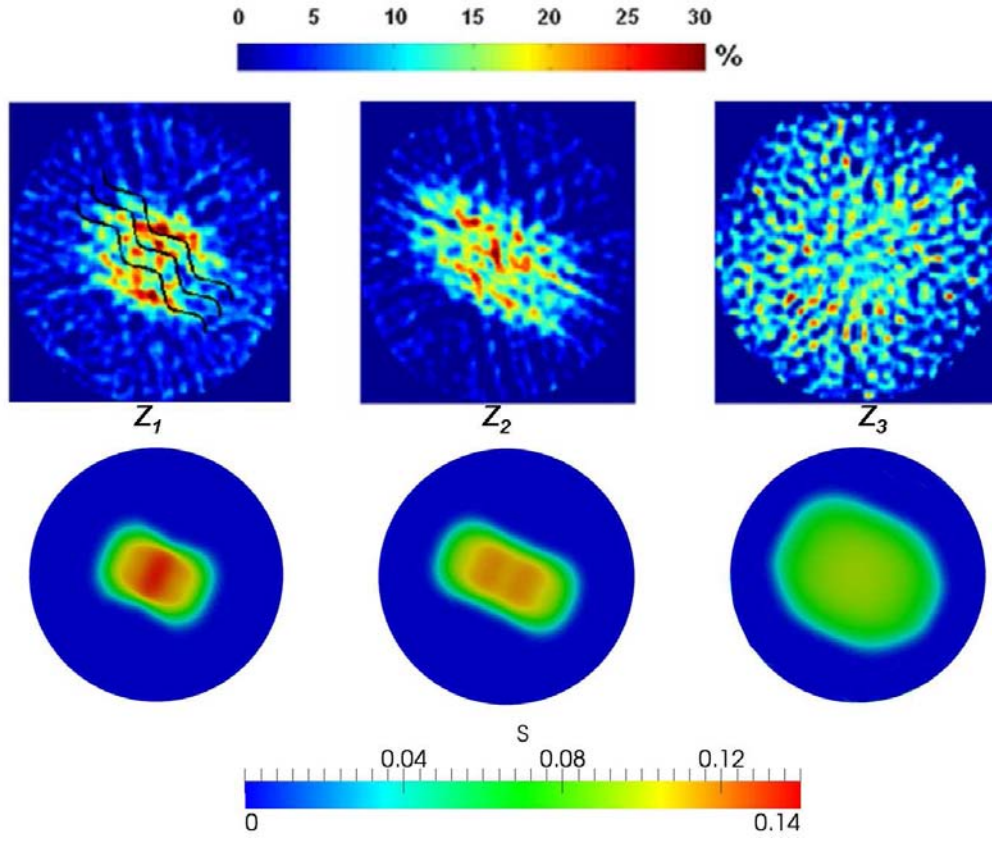


FIGURE 4.17: Comparaison entre les champs de saturation liquide obtenus par tomographie (*en haut*, Fourati et al. (2012)) et par simulation (*en bas*) pour les sections Z_1 , Z_2 et Z_3 .

points de contact entre deux feuilles adjacentes. Cet échange est caractérisé par une différence de pression moyenne entre les deux liquides, et donc par une différence de pression capillaire. Le modèle final est constitué de trois équations de continuité ainsi que de trois équations de conservation de la quantité de mouvement, qui se présentent sous la forme de lois de Darcy généralisées. Les tenseurs de perméabilité multiphasique sont évalués analytiquement à partir de l'analogie avec l'écoulement d'un film sur un plan incliné.

Nous avons finalement comparé avec succès notre théorie à des résultats expérimentaux issus d'une expérience réalisée au laboratoire et d'images tomographiques provenant de la littérature (Fourati et al. (2012)).

Chapitre 5

Modèle de transport multiconstituant dans les contacteurs gaz-liquide

Nous avons établi dans les chapitres précédents des modèles macroscopiques pour simuler l'écoulement diphasique dans les garnissages structurés où un film liquide, guidé par la géométrie du contacteur, s'écoule par gravité, et où une phase vapeur s'écoule vers le haut de la colonne à très haut débit. Un modèle complet, pour simuler le procédé, et évaluer son rendement et sa productivité, se doit d'intégrer un modèle pertinent et fiable de transport pour les constituants du système étudié.

Pour développer ce modèle macroscopique, nous avons appliqué la méthode de prise de moyenne volumique aux équations décrivant la physique à l'échelle du pore. A ce niveau de description, le problème est extrêmement complexe, couplé notamment par la vitesse de l'interface gaz-liquide qui est déterminée aussi par le problème d'échange entre phase. Pour simplifier l'homogénéisation, la stratégie est de découpler le problème diphasique du problème d'échange entre phases. Des simplifications supplémentaires se produisent en considérant que l'équilibre thermodynamique à l'interface gaz-liquide est assuré par une relation de partitionnement du type loi de Henri ou loi de Raoult.

Le papier qui suit et qui constitue ce chapitre (article publié dans la revue *Chemical Engineering Science*, Soullaine et al. (2011)) s'inscrit dans la continuité des travaux de Quintard and Whitaker (1994a) et de Coutelieis et al. (2006). Dans le premier article, un modèle macroscopique décrivant le transfert de masse d'un mélange binaire est obtenu à partir des équations à l'échelle du pore en utilisant la méthode de prise de moyenne volumique. Cette théorie est étendue dans la seconde publication à des mélanges multiconstituants dont l'équilibre thermodynamique à l'interface entre une phase liquide non-aqueuse immobile et une phase aqueuse mobile est assurée par une relation de partitionnement. Dans le présent travail, nous étendons

ces résultats théoriques pour le cas d'un écoulement diphasique et multiconstituants où les deux phases sont en mouvement. Par ailleurs, une des originalités de ce travail est la prise en compte de la vitesse de l'interface.

Le modèle macroscopique que nous obtenons est du type *non-équilibre local*, c'est-à-dire que, au sein d'un VER, les concentrations moyennées ne sont pas nécessairement liées par la relation d'équilibre thermodynamique à l'interface gaz-liquide. Il se présente sous la forme d'un modèle à deux équations reliées par un terme d'échange, exprimé quant à lui comme la différence entre les concentrations moyennes de chaque phase. Les équations moyennées ainsi obtenues impliquent des tenseurs de dispersion relatifs à chaque phase, des termes supplémentaires de transport convectif et un terme d'échange de matière. Ces termes sont influencés par le processus de transfert de masse. Tous ces coefficients effectifs sont entièrement déterminés par des problèmes de fermeture résolus à l'échelle d'un VER. Nous proposons également une forme fermée du taux total de transfert de masse.

Pour valider et illustrer notre approche, nous avons considéré le cas d'un film s'écoulant le long d'une plaque plane. Dans ce cas, les problèmes de fermeture peuvent être résolus analytiquement. Les coefficients de dispersion ainsi trouvés sont en bon accord avec les résultats de la théorie des films tombants, et le coefficient de changement de phase correspond à la théorie du double film de Lewis and Whitman (1924). De plus, nous avons comparé avec succès notre modèle macroscopique avec une simulation numérique directe à l'échelle du pore.

Le modèle que nous avons développé est cependant restreint à des écoulements laminaires. La turbulence de la phase vapeur pourrait être prise en compte en remplaçant dans le problème microscopique, le coefficient de diffusion moléculaire par une diffusivité effective résultant d'un calcul de turbulence (Cherblanc et al. (2007); Pinson et al. (2007))

Upscaling multi-component two-phase flow in porous media with partitioning coefficient

Received 10 June 2011 ; accepted after revision 30 August 2011

abstract

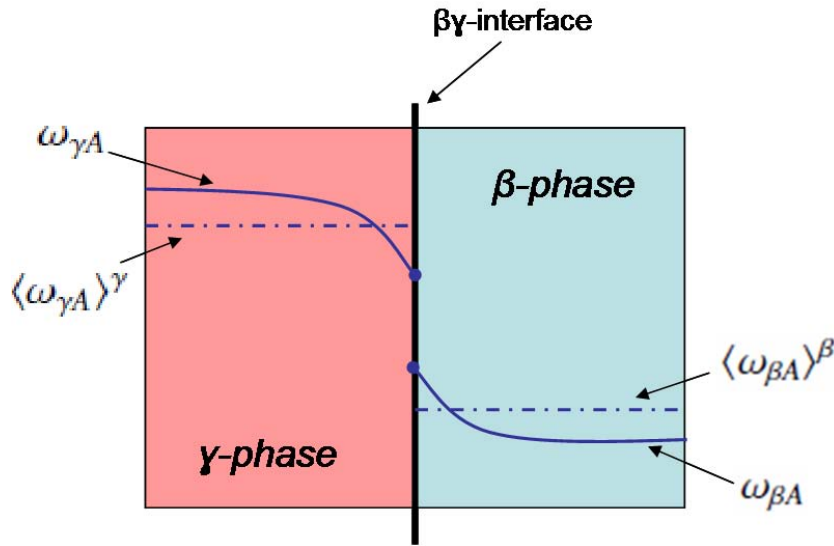
This paper deals with the upscaling of multicomponents two-phase flow in porous media. In this paper, chemical potential equilibrium at the interface between both phases is assumed to be described by a linear partitioning relationship such as Raoult or Henry's law. The resulting macro-scale dispersion model is a set of two equations related by a mass transfer coefficient and which involves several effective coefficients. These coefficients can be evaluated by solving closure problems over a representative unit-cell. The proposed model is successfully validated through direct analytical and numerical calculations.

5.1 Introduction

Two-phase flows in porous media with liquid-liquid or liquid-vapor phase exchange appear in a large number of situations such as chemical reactors, nuclear safety devices, transport in petroleum reservoirs, aquifer contamination, desalination processes by way of distillation...

In such a system, a liquid phase β is in contact with another phase, referred to as the γ -phase. Molecules may be exchanged at the $\beta\gamma$ -interface, and we will assume that, at this boundary, the phases are at thermodynamic equilibrium. This equilibrium generally leads to a concentration jump at the $\beta\gamma$ -interface. Transfer in the interface neighborhood leads to concentration fields as schematically depicted in Fig.5.1

In this paper we are interested in the macro-scale description of such flows in a porous medium, as represented in Fig.5.2. More precisely, we will narrow our interests to the averaging of the mass transport equation for a given species, A . A complete description would also requires to develop the macro-scale momentum balance equations, etc... We will assume that density and viscosity variations are small so the two-phase flow problem can be decoupled from the transport problem of the chosen chemical species, provided the change in saturation is very slow so a quasi-static analysis may be carried on for momentum transport. This two-phase flow problem has received a lot of attention in the literature, and we refer the reader to Whitaker (1986b), Auriault (1987) for some indication on the averaging problem. At this point, we may focus our attention on the transport problem for a given species in order to develop a macro-scale dispersion equation taking into account the mass exchange at the interface. In a previous

FIGURE 5.1: Concentration field near the $\beta\gamma$ -interface for species A

paper on such a problem (Quintard and Whitaker (1994a)), we called it "active dispersion" by opposition to "passive dispersion" corresponding to the flow of a chemical species without exchange or reaction at the phase interface.

In the case of film flow, the mass transfer modelling at the interface liquid-gas has received a lot of attention. To characterize this mass transfer, the authors usually define local mass transfer resistances within each phase and an overall mass exchange coefficient (Taylor and Krishna (1993)). The latter is a combination of both local resistances according to an association in series. Numerous models evaluating the local resistance exist in the literature. Among the most widely used in chemical engineering, we can quote the Lewis and Whitman double film theory (Lewis and Whitman (1924)) who postulated that the local mass transfers occur in a thin layer on each side of the interface, the Higbie's penetration model (Higbie (1935)) or also the Danckwerts surface renewal theory (Danckwerts (1970)). In these two last models, the mass transfer is assumed to be controlled by the rate of surface renewal : after a time the surface elements are swept away and replaced by a fresh surface. Both models involve unsteady-state diffusion. These models are commonly used in regular engineering practice. They are even relatively accurate if the real conditions (especially geometry and flow parameters) are compatible with the film flow picture. However, in many complex geometries, it is impossible to predict an independent picture of the flow along the interfaces. The boundary layers, if this concept itself is relevant, are the results of a complex flow that must be solved accurately. Therefore, a porous medium theory cannot make the prior assumption that a simple film flow exists, or a simple boundary layer exist.

We will not make such assumptions here and will develop a more general theory in the

continuity of the works of Quintard and Whitaker (1994a) and of Coutelieis et al. (2006). In a sense it is also an extension of the paper by Bousquet-Melou et al. (2002) that studied active dispersion in mushy zones (in the case of the solidification of a binary mixture). We mention here that Bekri and Adler (2002) tackle the dispersion problem in multiphase flow with a different approach based on the combination of an Immiscible Lattice Boltzmann algorithm and random walks. In the first paper, a macroscopic model describing the flow of a two-phase, binary mixture was obtained from the pore-scale equations using a volume averaging upscaling method. Since thermodynamic equilibrium for a binary mixture forces the concentration at the interface to be a function of temperature and pressure only, and not of the composition, transport of species A in one phase can be solved almost independently from the other phase problem. The resulting averaged equation is a dispersion equation with a mass exchange coefficient. The main effective parameters are the dispersion tensor and the mass-exchange coefficient. However, some additional terms such as velocity-like coefficients are also introduced in the macro-model. They suggest in particular, that the macroscopic convective velocity is modified by the presence of the other phase. An important limitation of the model that we will try to overcome in this paper is that the development was limited to the case of a quasi-steady $\beta\gamma$ -interface.

This theory was extended in the paper by Coutelieis et al. (2006) to multicomponent mixtures through the introduction of partitioning equilibrium condition at the $\beta\gamma$ -interface, in the limited case of an immobile non-aqueous liquid phase and a flowing aqueous phase. Coutelieis et al. (2006) focused their attention on the mass exchange coefficient. It is calculated through a multi-region closure problem involving partitioning relationships at the interface of these regions. In both papers, one phase is treated as a rigid phase. In addition, the interface velocity is assumed to be very small and negligible so the flow of matter relative to the interface velocity may be neglected in comparison with the interfacial diffusive flux.

In the present paper, we extend these theoretical results to a more general case of two-phase, multicomponent systems. The two phases are mobile, contrary to the above cited papers, and we fully develop the dispersion and the mass exchange effects. In addition, in the spirit of the work by Chella et al. (1998), the upscaling methodology is improved with respect to the interface movement, which is not neglected in the proposed full model.

The paper is organized as follows. The volume averaging method is applied to the microscopic, pore-scale equations that govern the system in order to develop a macro-scale model for a homogeneous porous medium. We consider that local mass non-equilibrium, i.e. averaged concentrations are not necessarily linked by the micro-scale equilibrium interface relationship. This results into two macroscopic equations involving dispersion tensors, additional convective transport terms and a mass exchange term ; all these effective properties being influenced by the mass transfer process. These effective coefficients can entirely be determined by three closure problems defined over a unit-cell representative of the porous medium. A closed form of the

total mass transfer rate is also proposed.

To better understand the results and validate the approach, in the last section we consider the case of the falling film along a vertical fixed wall. In this case, the closure problems can be solved analytically in the fully developed film regime. The obtained effective dispersion coefficients in the literature are in good agreement with the falling film theory results and the mass exchange coefficient corresponds to the Lewis and Whitman double film theory (Lewis and Whitman, 1924). Moreover, we compared with success the macro-scale model with a direct numerical simulation of the pore-scale model.

5.2 Pore scale problem

The pore-scale problem under consideration corresponds to the mass transfer of a component A in a two-phase flow system. The two phases, β and γ , flow through a porous medium (the σ -phase is the solid phase). The general problem is in fact composed of momentum equations, mass balance equations for each species and an energy equation. In principle there is a full coupling between these balance equations, especially through terms involving the velocity of the interface. One may imagine situations for which this coupling is very strong : for instance, intense boiling of water in a nuclear debris bed with very rapid thermal transient is likely to produce a big rate of phase change that may corresponds to huge exchange of enthalpy and momentum between phases. To our knowledge this full problem has not been solved from an upscaling point of view. For instance, how the mass exchange rate affects the macro-scale momentum balance equation is an open question. However, there are also situations for which the interface may be quasi-static for the relaxation phenomena associated to momentum and energy exchanges. This is the case in distillation columns for which the industrial target tends to reach quasi-steady situations. In such cases, one may admit that

1. the temperature is quasi-uniform over a representative unit-cell
2. for a given interface position, the viscous relaxation of the velocity fields is rapid compared to the interface characteristic velocity.

As a consequence, the mass, momentum and energy equations may be solved in a sequential manner. In this case, the unit-cell velocity fields and the temperature are known input variables for the multicomponent mass balance problem. Therefore, the two velocity fields are supposed to be known in this section development and we will not consider the resolution of the two-phase flow problem. One can refer to Whitaker (1986b), Auriault (1987), Whitaker (1994), Lasseux et al. (1996) or Lasseux et al. (2008) for further details on the upscaling of two-phase flows in porous media with quasi-static interfaces. For small mass exchange rates as discussed above, the resulting equations, i.e, generalized Darcy's law and the various improvements, may be probably used as such. We leave open in this paper the upscaling in the case of big mass exchange rates.

The total mass transfer process is described by the following boundary value problem

$$\frac{\partial \rho_\beta}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\beta \mathbf{v}_\beta) = 0 \text{ in } V_\beta, \quad (5.1)$$

$$\text{BC1 } \mathbf{v}_\beta = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.2)$$

$$\text{BC2 } \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\beta (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma})) = \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\gamma (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma})) \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.3)$$

$$\text{BC3 } \mathbf{v}_\gamma = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.4)$$

$$\frac{\partial \rho_\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma) = 0 \text{ in } V_\gamma. \quad (5.5)$$

In this problem, we assume a no-slip boundary condition at the interface with the rigid porous structure. In these equations, $\mathbf{w}_{\beta\gamma}$ represents the velocity of $\mathcal{A}_{\beta\gamma}$, the interface between the β -phase and the γ -phase.

Many approaches can be found in the literature to model diffusion problems for multi-component gas mixtures (Taylor and Krishna (1993)). Indeed, Maxwell-Stefan equations were used in a previous paper to deal with multicomponent "passive" dispersion in porous media (Quintard et al. (2006)). As an intermediate step in the upscaling process, the diffusive fluxes were written under the form of generalized Fick's law, which may be obtained from Maxwell-Stefan equations (Taylor and Krishna (1993), Quintard et al. (2006)) but also from irreversible thermodynamics consideration (see for instance Giovangigli (1999)). However, the complexity of such equations make their resolution and their upscaling difficult in the perspective of this paper about two-phase flow situations. To avoid these difficulties, in this paper we will use an effective diffusivity method, which offers a good approximation in many situations of practical interest. It consists in the definition of an effective diffusivity $D_{\beta A}$ such that the rate of diffusion $\mathbf{J}_{\beta A}$ of species A in the β -phase depends on the species concentration gradients through the simple expression

$$\mathbf{J}_{\beta A} = -\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A}; \quad A = 1, 2, 3, \dots \quad (5.6)$$

where $D_{\beta A}$ is some characteristic diffusion coefficient of species A in the β -phase mixture. Therefore, the transport of the component A is described by the following convection-diffusion problem

$$\frac{\partial \rho_\beta \omega_{\beta A}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\beta \omega_{\beta A} \mathbf{v}_\beta) = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A}) \text{ in } V_\beta, \quad (5.7)$$

$$\text{BC4 } \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A} = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.8)$$

$$\text{BC5 } \mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \omega_{\gamma A} = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.9)$$

$$\text{BC6 } \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\beta \omega_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A}) = \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\gamma \omega_{\gamma A} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \omega_{\gamma A}) \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.10)$$

$$\text{BC7 } \mu_{\beta A}(\omega_{\beta A}) = \mu_{\gamma A}(\omega_{\gamma A}) \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.11)$$

$$\frac{\partial \rho_\gamma \omega_{\gamma A}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\gamma \omega_{\gamma A} \mathbf{v}_\gamma) = \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \omega_{\gamma A}) \text{ in } V_\gamma, \quad (5.12)$$

where $\mu_{\beta A}$ is the chemical potential associated to species A in the β -phase. It is assumed in our development that the chemical potential equilibrium at the interface is linearized to a partitioning relationship (like for instance Henry's law or Raoult's law),

$$\omega_{\beta A} = H_A \omega_{\gamma A}. \quad (5.13)$$

In this paper, the molecular effective diffusivity coefficients ($D_{\beta A}$ and $D_{\gamma A}$) and the partitioning coefficient (H_A) are considered constant in space and in time. This question (at least for the variation of the diffusion coefficients with composition) has been discussed in Quintard et al. (2006). Moreover, it is assumed that all the physical properties of the fluids do not change strongly with temperature. Therefore, the coupling with the energy equation is not discussed here and belongs to the sequential treatment outlined in the introduction of this section.

5.3 Volume averaging

In this paper, we follow the developments in Quintard and Whitaker (1994a) and Couetieris et al. (2006) that used the method of volume averaging (Whitaker (1999)) to derive the macro-scale equations. We recall in this section the main definitions and theorems necessary to develop the macroscopic model from the pore-scale equations. We consider the averaging volume as illustrated in Fig. 5.2.

For a function ψ_β associated with the β -phase, we define the average as

$$\langle \psi_\beta \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_\beta} \psi_\beta dV, \quad (5.14)$$

and the intrinsic phase average as

$$\langle \psi_\beta \rangle^\beta = \frac{1}{V_\beta} \int_{V_\beta} \psi_\beta dV. \quad (5.15)$$

Both are linked by

$$\langle \psi_\beta \rangle = \varepsilon_\beta \langle \psi_\beta \rangle^\beta \text{ with } \varepsilon_\beta = \frac{V_\beta}{V}, \quad (5.16)$$

where V_β is the volume of the β -phase contained in the volume V and ε_β is the volume fraction of the β -phase.

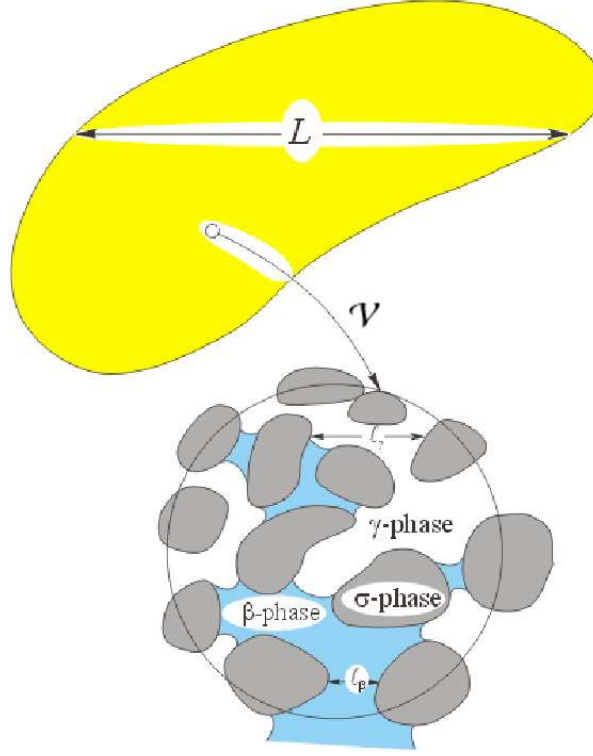


FIGURE 5.2: averaging volume

The phase variable ψ_β can be expressed following Gray's decomposition (Gray (1975)) as

$$\psi_\beta = \langle \psi_\beta \rangle^\beta + \tilde{\psi}_\beta. \quad (5.17)$$

The volume averaging theory requires the use of the following approximation

$$\langle \tilde{\psi}_\beta \rangle = 0. \quad (5.18)$$

In order to get the macro-scale equations in terms of intrinsic phase averages, we will apply the following spatial and temporal averaging theorems

$$\langle \nabla \psi_\beta \rangle = \nabla \langle \psi_\beta \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \psi_\beta d\mathcal{A} + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \psi_\beta d\mathcal{A}, \quad (5.19)$$

$$\left\langle \frac{\partial \psi_\beta}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle \psi_\beta \rangle}{\partial t} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \mathbf{w}_{\beta\sigma} \psi_\beta d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{w}_{\beta\gamma} \psi_\beta d\mathcal{A}. \quad (5.20)$$

The integrals in the equalities express the interfacial effects typical of porous media physics. The solid phase is considered to be inert in our analysis, therefore $\mathbf{w}_{\beta\sigma} = 0$. Moreover, applying

the spatial averaging theorem Eq. 5.19 to $\psi_\beta = 1$ leads to the very useful lemma,

$$\nabla \varepsilon_\beta = -\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta d\mathcal{A}. \quad (5.21)$$

Here, \mathcal{A}_β denotes all the surfaces in contact with the β -phase (i.e. $\mathcal{A}_{\beta\sigma}$ and $\mathcal{A}_{\beta\gamma}$) and the normal \mathbf{n}_β represents either $\mathbf{n}_{\beta\gamma}$ or $\mathbf{n}_{\beta\sigma}$. These notations will be adopted for the rest of this paper.

5.3.1 Total mass balance equations

The mere application of the volume averaging theorems to the continuity equations Eq. 5.1 and Eq. 5.5 leads to

$$\frac{\partial \langle \rho_\beta \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot (\langle \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \rangle) + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} = 0 \quad \text{in } V_\beta, \quad (5.22)$$

$$\frac{\partial \langle \rho_\gamma \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot (\langle \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \rangle) + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} = 0 \quad \text{in } V_\gamma. \quad (5.23)$$

As indicated in the introduction, we suppose the fluid densities ρ_β and ρ_γ constant within the averaging volume V ($\rho_\beta = \langle \rho_\beta \rangle^\beta$ and $\rho_\gamma = \langle \rho_\gamma \rangle^\gamma$). It must be remembered that this does not mean that the fluid densities will not vary at the macro scale. Moreover, we define the total mass exchange rate \dot{m} according to

$$\dot{m} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A}. \quad (5.24)$$

Hence, using the boundary condition Eq. 5.3, we obtain the following macroscopic form of the total mass transport equation

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta \rho_\beta}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \mathbf{v}_\beta \rangle) = -\dot{m} \quad \text{in } V_\beta, \quad (5.25)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\gamma \rho_\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle) = \dot{m} \quad \text{in } V_\gamma. \quad (5.26)$$

In the next sections, we will propose a closed form of the mass rate of evaporation \dot{m} .

5.3.2 Species mass balance equation

We will now form the average transport equation for Eq.5.7 by successive applications of the volume averaging theorems. We have

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \mathbf{v}_\beta \rangle) + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \omega_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} \\ &= \nabla \cdot \left(\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta D_{\beta A} \omega_{\beta A} d\mathcal{A} \right) + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.27)$$

We search a transport equation in terms of the intrinsic average mass fraction $\langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta$. Using Gray's spatial decomposition for $\omega_{\beta A}$ and \mathbf{v}_β and the definition $\langle \omega_{\beta A} \rangle = \varepsilon_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta$, one can eventually obtain for the left hand side of Eq. 5.27

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\beta \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta) + \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle) + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \omega_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A}. \quad (5.28)$$

A similar operation for the right hand side leads to

$$\begin{aligned} \nabla \cdot D_{\beta A} \left[\varepsilon_\beta \rho_\beta \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \nabla \varepsilon_\beta \right] + \nabla \cdot D_{\beta A} \left[\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta d\mathcal{A} + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A} \right] \\ + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.29)$$

Considering now the spatial lemma Eq. 5.21 and defining the mass transfer rate for the component A by

$$\dot{m}_A = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\beta \omega_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A}) d\mathcal{A}. \quad (5.30)$$

The previous equation can be written as

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \varepsilon_\beta \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\beta \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta) + \underbrace{\nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle)}_{\text{dispersion term}} \\ &= \nabla \cdot \left(\varepsilon_\beta \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \underbrace{\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta D_{\beta A} \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A}}_{\text{tortuosity term}} \right) - \dot{m}_A. \end{aligned} \quad (5.31)$$

A similar development for the convection-diffusion equation in the γ -phase gives

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_\gamma \rho_\gamma \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \rho_\gamma \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\omega}_{\gamma A} \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) \\ = \nabla \cdot \left(\varepsilon_\gamma \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \rho_\gamma D_{\gamma A} \tilde{\omega}_{\gamma A} d\mathcal{A} \right) + \dot{m}_A. \end{aligned} \quad (5.32)$$

At this stage of the development, the averaged transport equations are not under a closed form since mass fraction deviations having microscopic length-scale are still present. The classical strategy is to derive a problem that governs the deviations, then to represent them in terms of average quantities (the so-called closure problem), and, finally, to insert these representations into the conservation equations Eq. 5.31-5.32 to get the closed form of the averaged equations. In order to obtain a convenient form for the closure problem, we continue the development by the introduction of the Gray's decomposition of $\omega_{\beta A}$ in the evaporation rate of species A . The right hand side of Eq. 5.31 becomes,

$$\begin{aligned} \varepsilon_\beta \nabla \cdot (D_{\beta A} \rho_\beta \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta) + (\nabla \varepsilon_\beta) \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \\ + \nabla \cdot \left[D_{\beta A} \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A} \right] - \dot{m} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta - (\nabla \varepsilon_\beta) \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \\ - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.33)$$

Using the macroscopic form of the continuity equation Eq. 5.25 in the left hand side of Eq.5.31 leads to

$$\varepsilon_\beta \rho_\beta \frac{\partial \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta}{\partial t} + \varepsilon_\beta \rho_\beta \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle) - \dot{m} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta. \quad (5.34)$$

Finally we obtain :

$$\begin{aligned} \rho_\beta \frac{\partial \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta}{\partial t} + \rho_\beta \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \varepsilon_\beta^{-1} \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle) \\ = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta) + \varepsilon_\beta^{-1} \nabla \cdot \left[D_{\beta A} \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A} \right] \\ - \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} + \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.35)$$

5.4 Closure

The aim of this section is to develop the relationships between spatial deviations and average quantities in order to close the macroscopic model.

5.4.1 Differential equation for the concentration deviations

We are now ready to derive a governing differential equation for the deviations. We first recall the original convection-diffusion equation in a non-conservative form,

$$\rho_\beta \frac{\partial \omega_{\beta A}}{\partial t} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \omega_{\beta A} = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A}). \quad (5.36)$$

By subtracting Eq. 5.35 from Eq. 5.36 and considering Gray's decomposition Eq. 5.17, we obtain the following equation for the spatial deviation of the mass fraction,

$$\begin{aligned} \rho_\beta \frac{\partial \tilde{\omega}_{\beta A}}{\partial t} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} + \rho_\beta \tilde{\mathbf{v}}_\beta \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta - \varepsilon_\beta^{-1} \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle) \\ = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A}) - \varepsilon_\beta^{-1} \nabla \cdot \left(\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta D_{\beta A} \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A} \right) \\ + \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.37)$$

When the pore scales and the macroscopic scales are separated, the classical following assumption is available,

$$\nabla \cdot \left(\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta D_{\beta A} \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A} \right) \ll \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A}. \quad (5.38)$$

Numerous other simplifications such as stationarity or the omission of the dispersion term are generally made in the literature. However, in our development, we will keep these terms and make assumptions later. Therefore, we consider the following differential equation for the β -phase,

$$\begin{aligned} \rho_\beta \frac{\partial \tilde{\omega}_{\beta A}}{\partial t} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} + \overbrace{\rho_\beta \tilde{\mathbf{v}}_\beta \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta}^{\text{source}} - \varepsilon_\beta^{-1} \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle) - \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A}) \\ = \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.39)$$

Similarly for the γ -phase, we have,

$$\begin{aligned} \rho_\gamma \frac{\partial \tilde{\omega}_{\gamma A}}{\partial t} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{\omega}_{\gamma A} + \overbrace{\rho_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma}^{\text{source}} - \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\omega}_{\gamma A} \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) - \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \tilde{\omega}_{\gamma A}) \\ = \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma \tilde{\omega}_{\gamma A} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \tilde{\omega}_{\gamma A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.40)$$

We can use the decomposition given by Eq.5.17 with Eq.5.8, Eq.5.9, Eq.5.11 and Eq.5.13 in order to develop the following boundary conditions for this deviation problem,

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_{\beta} D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} = \underbrace{-\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_{\beta} D_{\beta A} \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^{\beta}}_{source} \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.41)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_{\gamma} D_{\gamma A} \nabla \tilde{\omega}_{\gamma A} = \underbrace{-\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_{\gamma} D_{\gamma A} \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^{\gamma}}_{source} \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.42)$$

$$\tilde{\omega}_{\beta A} = H_A \tilde{\omega}_{\gamma A} + \underbrace{(H_A \langle \omega_{\gamma A} \rangle^{\gamma})}_{source} - \underbrace{\langle \omega_{\beta A} \rangle^{\beta}}_{source} \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.43)$$

$$\begin{aligned} & \underbrace{\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_{\beta} \langle \omega_{\beta A} \rangle^{\beta} (\mathbf{v}_{\beta} - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_{\beta} D_{\beta A} \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^{\beta})}_{source} + \underbrace{\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_{\beta} \tilde{\omega}_{\beta A} (\mathbf{v}_{\beta} - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_{\beta} D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A})}_{source} \\ = & \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_{\gamma} \tilde{\omega}_{\gamma A} (\mathbf{v}_{\gamma} - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_{\gamma} D_{\gamma A} \nabla \tilde{\omega}_{\gamma A}) + \underbrace{\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_{\gamma} \langle \omega_{\gamma A} \rangle^{\gamma} (\mathbf{v}_{\gamma} - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_{\gamma} D_{\gamma A} \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^{\gamma})}_{source} \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \end{aligned} \quad (5.44)$$

In addition, we have the additional condition that the averages of the deviations must be zero

$$\langle \tilde{\omega}_{\beta A} \rangle^{\beta} = 0; \quad \langle \tilde{\omega}_{\gamma A} \rangle^{\gamma} = 0. \quad (5.45)$$

In order to solve the closure problem in a representative region of the porous medium instead of considering the entire macro-structure, we consider the model of a spatially periodic system. Hence, we add the following periodic conditions to this deviation problem

$$\tilde{\omega}_{\beta A}(r + l_i) = \tilde{\omega}_{\beta A}(r); \quad \tilde{\omega}_{\gamma A}(r + l_i) = \tilde{\omega}_{\gamma A}(r); \quad i = 1, 2, 3. \quad (5.46)$$

At this point, it is important to remember that, by comparison to the work by Coutelieis et al. (2006), we have kept the following important features :

- terms involving $(\mathbf{v}_{\beta} - \mathbf{w}_{\beta\gamma})$ have been kept in the analysis,
- velocity in the γ -phase is not neglected.

5.4.2 Closure problems

There are four non homogeneous terms ($\nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^{\beta}$, $\nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^{\gamma}$, $\langle \omega_{\beta A} \rangle^{\beta}$ and $\langle \omega_{\gamma A} \rangle^{\gamma}$) in the previous equations. Following the work by Quintard and Whitaker (1994a) and Coutelieis et al.

(2006), it is possible to depict the mass fraction deviations in terms of a linear combination of these source terms thus providing the following representation

$$\tilde{\omega}_{\beta A} = \mathbf{b}_{\beta\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \mathbf{b}_{\beta\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + s_{\beta\beta} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + s_{\beta\gamma} \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma, \quad (5.47)$$

$$\tilde{\omega}_{\gamma A} = \mathbf{b}_{\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{\gamma\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + s_{\gamma\gamma} \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + s_{\gamma\beta} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta, \quad (5.48)$$

where the closure variables $\mathbf{b}_{\beta\beta}$, $\mathbf{b}_{\beta\gamma}$, $\mathbf{b}_{\gamma\gamma}$, $\mathbf{b}_{\gamma\beta}$, $s_{\beta\beta}$, $s_{\beta\gamma}$, $s_{\gamma\gamma}$ and $s_{\gamma\beta}$ satisfy four closure problems.

The next step of our development is to establish the mathematical problems that will allow us to determine all the closure variables. These closure problems will be solved over a periodic representative unit-cell. They are found out by substituting of the previous closure forms Eq. 5.47 and Eq. 5.48 into the deviations problem of section 5.4.1.

Here we focus on the treatment of the $\nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle)$ term. The insertion of the closure form of $\tilde{\omega}_{\beta A}$ in this term yields

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle) &= \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta) + \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\gamma} \rangle \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma) \\ &\quad + \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \mathbf{b}_{\beta\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta) + \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \mathbf{b}_{\gamma\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma). \end{aligned} \quad (5.49)$$

We notice that the first term of this sum can be written as

$$\nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta) = \rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle). \quad (5.50)$$

From the assumption of separation of scales one can deduce that

$$\langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle) \ll \rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta, \quad (5.51)$$

and

$$\nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \mathbf{b}_{\beta\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta) \ll \rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta. \quad (5.52)$$

Finally, we can consider the following approximations

$$\nabla \cdot (\rho_\beta \langle \tilde{\omega}_{\beta A} \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle) = \rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\gamma} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma, \quad (5.53)$$

$$\nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \tilde{\omega}_{\gamma A} \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \rangle) = \rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_{\gamma\gamma} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + \rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_{\gamma\beta} \rangle \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta. \quad (5.54)$$

The identification of each term involving $\nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta$, $\nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma$, $\langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta$ and $\langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma$ provides the four following closure problems :

Problem I (Mapping onto $\nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta$) :

$$\rho_\beta \frac{\partial \mathbf{b}_{\beta\beta}}{\partial t} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta s_{\beta\beta} - \rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\beta} \rangle^\beta + \rho_\beta \tilde{\mathbf{v}}_\beta = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta}) + \varepsilon_\beta^{-1} \mathbf{u}_{\beta\beta}, \quad (5.55)$$

and

$$\rho_\gamma \frac{\partial \mathbf{b}_{\gamma\beta}}{\partial t} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma s_{\gamma\beta} - \rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_{\gamma\beta} \rangle^\gamma = \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta}) + \varepsilon_\gamma^{-1} \mathbf{u}_{\gamma\beta}, \quad (5.56)$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta} = -\mathbf{n}_{\beta\sigma} \rho_\beta D_{\beta A} \quad \text{at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.57)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta} = 0 \quad \text{at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.58)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\beta} = H_A \mathbf{b}_{\gamma\beta} \quad \text{at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.59)$$

$$\begin{aligned} -\mathbf{n}_{\beta\gamma} \rho_\beta D_{\beta A} + \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\beta \mathbf{b}_{\beta\beta} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta}) \\ = \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\gamma \mathbf{b}_{\gamma\beta} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta}) \quad \text{at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \end{aligned} \quad (5.60)$$

$$\langle \mathbf{b}_{\beta\beta} \rangle^\beta = 0; \quad \langle \mathbf{b}_{\gamma\beta} \rangle^\gamma = 0, \quad (5.61)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\beta}(r + l_i) = \mathbf{b}_{\beta\beta}(r); \quad \mathbf{b}_{\gamma\beta}(r + l_i) = \mathbf{b}_{\gamma\beta}(r); \quad i = 1, 2, 3, \quad (5.62)$$

and

$$\mathbf{u}_{\beta\beta} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \mathbf{b}_{\beta\beta} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta} d\mathcal{A}, \quad (5.63)$$

$$\mathbf{u}_{\gamma\beta} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma \mathbf{b}_{\gamma\beta} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta} d\mathcal{A}. \quad (5.64)$$

The integration of the $\beta\gamma$ -interface boundary conditions Eq. 5.60 results in

$$-\mathbf{u}_{\gamma\beta} = \mathbf{u}_{\beta\beta} + \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \varepsilon_\beta. \quad (5.65)$$

Problem II (Mapping onto $\nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma$) :

$$\rho_\beta \frac{\partial \mathbf{b}_{\beta\gamma}}{\partial t} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta s_{\beta\gamma} - \rho_\beta \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_{\beta\gamma} \rangle^\beta = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma}) + \varepsilon_\beta^{-1} \mathbf{u}_{\beta\gamma}, \quad (5.66)$$

and

$$\rho_\gamma \frac{\partial \mathbf{b}_{\gamma\gamma}}{\partial t} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma s_{\gamma\gamma} - \rho_\gamma \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_{\gamma\gamma} \rangle^\gamma + \rho_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma = \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma}) + \varepsilon_\gamma^{-1} \mathbf{u}_{\gamma\gamma}, \quad (5.67)$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma} = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.68)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma} = -\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \rho_\gamma D_{\gamma A} \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.69)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\gamma} = H_A \mathbf{b}_{\gamma\gamma} \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\beta}, \quad (5.70)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \rho_\gamma D_{\gamma A} + \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot (\rho_\gamma \mathbf{b}_{\gamma\gamma} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\gamma\beta}) - \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma}) \\ = \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot (\rho_\beta \mathbf{b}_{\beta\gamma} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma}) \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\beta} \end{aligned} \quad (5.71)$$

$$\langle \mathbf{b}_{\beta\gamma} \rangle^\beta = 0; \quad \langle \mathbf{b}_{\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0, \quad (5.72)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\gamma}(r + l_i) = \mathbf{b}_{\beta\gamma}(r); \quad \mathbf{b}_{\gamma\gamma}(r + l_i) = \mathbf{b}_{\gamma\gamma}(r); \quad i = 1, 2, 3, \quad (5.73)$$

and

$$\mathbf{u}_{\beta\gamma} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\beta}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \mathbf{b}_{\beta\gamma} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\gamma\beta}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma} d\mathcal{A}, \quad (5.74)$$

$$\mathbf{u}_{\gamma\gamma} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\beta}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma \mathbf{b}_{\gamma\gamma} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\gamma\beta}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma} d\mathcal{A}. \quad (5.75)$$

The integration of the $\beta\gamma$ -interface boundary conditions Eq. 5.71 results in

$$-\mathbf{u}_{\beta\gamma} = \mathbf{u}_{\gamma\gamma} + \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \varepsilon_\gamma. \quad (5.76)$$

Problem III (Mapping onto $\langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta$) :

$$\rho_\beta \frac{\partial s_{\beta\beta}}{\partial t} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla s_{\beta\beta} = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\beta}) + \varepsilon_\beta^{-1} X_{\beta\beta}, \quad (5.77)$$

and

$$\rho_\gamma \frac{\partial s_{\gamma\beta}}{\partial t} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla s_{\gamma\beta} = \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\beta}) + \varepsilon_\gamma^{-1} X_{\gamma\beta}, \quad (5.78)$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\beta} = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.79)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\beta} = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.80)$$

$$s_{\beta\beta} = H_A s_{\gamma\beta} - 1 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.81)$$

$$\begin{aligned} & \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) + \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\beta s_{\beta\beta} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\beta}) \\ & = \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\gamma s_{\gamma\beta} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\beta}) \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \end{aligned} \quad (5.82)$$

$$\langle s_{\beta\beta} \rangle^\beta = 0; \quad \langle s_{\gamma\beta} \rangle^\gamma = 0, \quad (5.83)$$

$$s_{\beta\beta}(r + l_i) = s_{\beta\beta}(r); \quad s_{\gamma\beta}(r + l_i) = s_{\gamma\beta}(r); \quad i = 1, 2, 3, \quad (5.84)$$

and

$$X_{\beta\beta} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta s_{\beta\beta} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\beta} d\mathcal{A}, \quad (5.85)$$

$$X_{\gamma\beta} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma s_{\gamma\beta} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\beta} d\mathcal{A}. \quad (5.86)$$

The integration of the $\beta\gamma$ -interface boundary conditions Eq. 5.82 results in

$$-X_{\gamma\beta} = X_{\beta\beta} + \dot{m}. \quad (5.87)$$

Problem IV (Mapping onto $\langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma$) :

$$\rho_\beta \frac{\partial s_{\beta\gamma}}{\partial t} + \rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla s_{\beta\gamma} = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\gamma}) + \varepsilon_\beta^{-1} X_{\beta\gamma}, \quad (5.88)$$

and

$$\rho_\gamma \frac{\partial s_{\gamma\gamma}}{\partial t} + \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla s_{\gamma\gamma} = \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\gamma}) + \varepsilon_\gamma^{-1} X_{\gamma\gamma}, \quad (5.89)$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\gamma} = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.90)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\gamma} = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.91)$$

$$s_{\gamma\gamma} = H_A^{-1} s_{\beta\gamma} - 1 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.92)$$

$$\begin{aligned} & \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) + \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot (\rho_\gamma s_{\gamma\gamma} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\gamma}) \\ & = \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot (\rho_\beta s_{\beta\gamma} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\gamma}) \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \end{aligned} \quad (5.93)$$

$$\langle s_{\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 ; \langle s_{\beta\gamma} \rangle^\beta = 0, \quad (5.94)$$

$$s_{\gamma\gamma}(r + l_i) = s_{\gamma\gamma}(r) ; s_{\beta\gamma}(r + l_i) = s_{\beta\gamma}(r) ; i = 1, 2, 3, \quad (5.95)$$

and

$$X_{\gamma\gamma} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\beta}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma s_{\gamma\gamma} (\mathbf{v}_\gamma - \mathbf{w}_{\gamma\beta}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\gamma} d\mathcal{A}, \quad (5.96)$$

$$X_{\beta\gamma} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\beta}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta s_{\beta\gamma} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\gamma\beta}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\gamma} d\mathcal{A}. \quad (5.97)$$

The integration of the $\beta\gamma$ -interface boundary conditions Eq. 5.93 results in

$$X_{\beta\gamma} = -X_{\gamma\gamma} + \dot{m}. \quad (5.98)$$

At this point, we have achieved the following tasks :

- we have obtained macro-scale equations in which several properties appear which depend on some pore-scale closure problem,
- the closure problems allow to map the concentration deviations onto macro-scale concentrations and gradients (similar relations exist for the velocity deviations).

The closure problems are time-dependent because of the evolution of the interface (term involving $\mathbf{w}_{\beta\gamma}$ and $\mathcal{A}_{\beta\gamma}(x, t)$), and, also, because of the accumulation terms. Macro-scale equations and pore-scale closure problems are fully coupled, which in fact leads to memory (history) effects. Is it possible to simplify these closure problems in order to decouple macro and pore-scale problems? Considering that the diffusion term near the interface is dominant versus the flux proportional to $\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma})$ and that the mass fraction field relaxes faster than the evolution of the interface, a first possibility could be to discard all terms involving $\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma})$ and the accumulation term in the closure problems. The coupling between the macro and pore-scale equations remains through the evolution of the interface $\mathcal{A}_{\beta\gamma}(x, t)$. Therefore, even after having removed the $\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma})$ and the accumulation terms, the effective properties are associated to a specific time and the underlying realisation of the pore-scale geometry. This way is a classical difficulty found in geochemistry, or for any other applications involving changing pore-scale geometry. However, if various positions of the interface can be identified in the process in an univoque manner, for instance as a function of the phase volume fractions, then the closure-problems can be solved independently from the macro-scale equations and the effective properties may be *tabulated* as a function of the volume fractions. In this way, the macro-scale equations can be solved using these correlations for the effective properties without the need for a fully coupled solution of the macro-scale equations and the micro-scale closure problems.

This kind of development, which is the one practically usable, is detailed in the next section.

5.4.3 Simplified closure problems

For the moment, only few assumptions have been made. First, we have considered that the volume density of both β and γ phases does not vary within the representative volume V . Then, according to the assumption of separation of scales, we simplified the differential equation for the mass fraction deviations considering Eq. 5.51.

We now consider additional assumptions in order to simplify the closure problems as described at the end of the preceding section. First, we neglect the spatial and temporal variations of the volume fractions. Then, since the time scales are also separated, it is convenient to consider quasi-steady closure problems. Moreover, in the closure problems flux terms involving $\cdot(\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma})$ are neglected in front of the diffusive fluxes. For instance, Eq. 5.82 in Problem III becomes,

$$\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_{\beta\beta} = \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_{\gamma\beta} \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \quad (5.99)$$

According to this last hypothesis, the liquid-vapor mass exchange rate \dot{m} is neglected in the closure problems. As an important consequence, Problems III and IV are identical with respect to the factor H_A . Therefore, we can easily demonstrate that,

$$s_\beta = -s_{\beta\beta} = H_A^{-1} s_{\beta\gamma}, \quad (5.100)$$

$$s_\gamma = H_A^{-1} s_{\gamma\gamma} = -s_{\gamma\beta}. \quad (5.101)$$

We also have

$$\alpha_A = X_{\gamma\beta} = H_A^{-1} X_{\beta\gamma}, \quad (5.102)$$

in which α_A will appear in the macro-scale equation as a *mass exchange coefficient*, as detailed in the next section. Because of the definition of α_A , the problem defining the s_β and s_γ mapping variables involves integro-differential equations. To solve this kind of problem, it is convenient, following ideas put forth in Quintard and Whitaker (1994a), to carry out the following decompositions,

$$s_\beta = 1 + s_\beta^0 \alpha_A, \quad (5.103)$$

$$s_\gamma = s_\gamma^0 \alpha_A. \quad (5.104)$$

The new variable s_β^0 and s_γ^0 satisfy the following Problem A

Problem A

$$\rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla s_\beta^0 = \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_\beta^0) + \varepsilon_\beta^{-1}, \quad (5.105)$$

and

$$\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla s_\gamma^0 = \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_\gamma^0) - \varepsilon_\gamma^{-1}, \quad (5.106)$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_\beta^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.107)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_\gamma^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.108)$$

$$s_\beta^0 = H_A s_\gamma^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.109)$$

$$\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla s_\beta^0 = \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla s_\gamma^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (5.110)$$

$$s_\beta^0(r + l_i) = s_\beta^0(r); \quad s_\gamma^0(r + l_i) = s_\gamma^0(r); \quad i = 1, 2, 3, \quad (5.111)$$

$$\langle s_\beta^0 \rangle^\beta = -\frac{1}{\alpha_A}; \quad \langle s_\gamma^0 \rangle^\gamma = 0. \quad (5.112)$$

With the above assumptions, and considering that $\mathbf{v}_\gamma = 0$, we recover the problem studied by Coutelieis et al. (2006). The condition that the average of s_β is zero allows to determine the mass exchange coefficient α_A (Eq. 5.112).

A similar strategy is adopted for the $\mathbf{b}_{\beta\beta}$ and $\mathbf{b}_{\gamma\beta}$ fields by introducing the following decompositions in Problem I,

$$\mathbf{b}_{\beta\beta} = \mathbf{b}_{\beta\beta}^0 - \psi_{\beta\beta} \mathbf{u}_{\gamma\beta}, \quad (5.113)$$

$$\mathbf{b}_{\gamma\beta} = \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0 - \psi_{\gamma\beta} \mathbf{u}_{\gamma\beta}. \quad (5.114)$$

We can easily verify that $\psi_{\beta\beta}$ and $\psi_{\gamma\beta}$ are solutions of the previous problem A and $\mathbf{b}_{\beta\beta}^0$ and $\mathbf{b}_{\gamma\beta}^0$ satisfy the following boundary value problem

Problem B :

$$\rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta}^0 - \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta}^0) + \rho_\beta \tilde{\mathbf{v}}_\beta = \rho_\beta \mathbf{v}_\beta + \rho_\beta \alpha_A \left(\mathbf{v}_\beta s_\beta^0 - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_\beta^0 \rangle^\beta \right), \quad (5.115)$$

and

$$\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0 - \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0) = \rho_\gamma \alpha_A \left(\mathbf{v}_\gamma s_\gamma^0 - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_\gamma^0 \rangle^\gamma \right), \quad (5.116)$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta}^0 = -\mathbf{n}_{\beta\sigma} \rho_\beta D_{\beta A} \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.117)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.118)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\beta}^0 = H_A \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\beta}, \quad (5.119)$$

$$\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\beta}^0 - \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0 = -\mathbf{n}_{\beta\gamma} \rho_\beta D_{\beta A} \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\beta}, \quad (5.120)$$

$$\langle \mathbf{b}_{\beta\beta}^0 \rangle^\beta = -\frac{\mathbf{u}_{\gamma\beta}}{\alpha_A}; \quad \langle \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0 \rangle^\gamma = 0, \quad (5.121)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\beta}^0(r + l_i) = \mathbf{b}_{\beta\beta}^0(r); \quad \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0(r + l_i) = \mathbf{b}_{\gamma\beta}^0(r); \quad i = 1, 2, 3. \quad (5.122)$$

Similarly, the following decomposition applied to Problem II,

$$\mathbf{b}_{\gamma\gamma} = \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0 + \psi_{\gamma\gamma} \mathbf{u}_{\beta\gamma}, \quad (5.123)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\gamma} = \mathbf{b}_{\beta\gamma}^0 + \psi_{\beta\gamma} \mathbf{u}_{\beta\gamma}, \quad (5.124)$$

leads to the following problem

Problem C :

$$\rho_\beta \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma}^0 - \nabla \cdot (\rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma}^0) = \rho_\beta H_A \alpha_A \left(\langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_\beta^0 \rangle^\beta - \mathbf{v}_\beta s_\beta^0 \right) - \rho_\beta H_A \mathbf{v}_\beta, \quad (5.125)$$

and

$$\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0 - \nabla \cdot (\rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0) + \rho_\gamma \tilde{\mathbf{v}}_\gamma = \rho_\gamma H_A \alpha_A \left(\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_\gamma^0 \rangle^\gamma - \mathbf{v}_\gamma s_\gamma^0 \right), \quad (5.126)$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma}^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (5.127)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0 = -\mathbf{n}_{\gamma\sigma} \rho_\gamma D_{\gamma A} \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (5.128)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\gamma}^0 = H_A \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\beta}, \quad (5.129)$$

$$\mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \mathbf{b}_{\beta\gamma}^0 - \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\gamma D_{\gamma A} \nabla \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0 = -\mathbf{n}_{\beta\gamma} \rho_\gamma D_{\gamma A} \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\beta}, \quad (5.130)$$

$$\langle \mathbf{b}_{\beta\gamma}^0 \rangle^\beta = \frac{\mathbf{u}_{\beta\gamma}}{\alpha_A}; \quad \langle \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0 \rangle^\gamma = 0, \quad (5.131)$$

$$\mathbf{b}_{\beta\gamma}^0(r + l_i) = \mathbf{b}_{\beta\gamma}^0(r); \quad \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0(r + l_i) = \mathbf{b}_{\gamma\gamma}^0(r); \quad i = 1, 2, 3. \quad (5.132)$$

As previously, one can check that $\psi_{\beta\gamma}$ and $\psi_{\gamma\gamma}$ satisfy Problem A.

The constraints Eq. 5.112, Eq. 5.121 and Eq. 5.131 in the previous problems allow the

calculation of the mass exchange coefficient α and the velocity-like coefficients $\mathbf{u}_{\beta\gamma}$ and $\mathbf{u}_{\gamma\beta}$.

5.5 Closed form of the averaged equations

Given representations Eq. 5.47 and Eq. 5.48 for the deviations $\tilde{\omega}_{\beta A}$ and $\tilde{\omega}_{\gamma A}$ and the above simplifications, we can now obtain a closed form of the macroscopic transport equations of the species A. For that purpose, we inject these representations in the Eq. 5.31 and Eq. 5.32. The macroscopic β -phase equation in a conservative form is

$$\begin{aligned} \underbrace{\frac{\partial \varepsilon_\beta \rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta}{\partial t}}_{\text{accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot (\rho_\beta \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \langle \mathbf{v}_\beta \rangle)}_{\text{convection}} + \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\beta \rho_\beta \mathbf{E}_\beta (H_A \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma - \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta))}_{\text{convection correction}} \\ = \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\beta \rho_\beta \mathbf{D}_{\beta\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta)}_{\text{dispersion}} + \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\beta \rho_\beta \mathbf{D}_{\beta\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma)}_{\text{dispersion correction}} - \underbrace{\dot{m}_A}_{\text{mass exchange}}. \end{aligned} \quad (5.133)$$

In this equation the velocity-like coefficient, \mathbf{E}_β , is defined by ,

$$\mathbf{E}_\beta = \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_\beta \rangle^\beta - \frac{1}{V_\beta} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta D_{\beta A} s_\beta d\mathcal{A}, \quad (5.134)$$

and the effective dispersion tensors take the following form,

$$\mathbf{D}_{\beta\beta} = D_{\beta A} \mathbf{I} + \frac{1}{V_\beta} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta D_{\beta A} \mathbf{b}_{\beta\beta} d\mathcal{A} - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \mathbf{b}_{\beta\beta} \rangle^\beta, \quad (5.135)$$

$$\mathbf{D}_{\beta\gamma} = \frac{1}{V_\beta} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta D_{\beta A} \mathbf{b}_{\beta\gamma} d\mathcal{A} - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \mathbf{b}_{\beta\gamma} \rangle^\beta. \quad (5.136)$$

The closed form of the mass rate of evaporation of the A-component reads,

$$\dot{m}_A = -\mathbf{u}_{\gamma\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \mathbf{u}_{\beta\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + \alpha_A (H_A \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma - \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta). \quad (5.137)$$

The establishment of this result will be detailed in the next section.

For the γ -phase, we obtain

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_\gamma \rho_\gamma \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\gamma \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle) + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \rho_\gamma \mathbf{E}_\gamma (H_A \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma - \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta)) \\ = \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \rho_\gamma \mathbf{D}_{\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \rho_\gamma \mathbf{D}_{\gamma\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta) + \dot{m}_A, \end{aligned} \quad (5.138)$$

where

$$\mathbf{E}_\gamma = \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_\gamma \rangle^\gamma - \frac{1}{V_\gamma} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma D_{\gamma A} s_\gamma d\mathcal{A}, \quad (5.139)$$

$$\mathbf{D}_{\gamma\gamma} = D_{\gamma A} \mathbf{I} + \frac{1}{V_\gamma} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma D_{\gamma A} \mathbf{b}_{\gamma\gamma} d\mathcal{A} - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{\gamma\gamma} \rangle^\gamma, \quad (5.140)$$

$$\mathbf{D}_{\gamma\beta} = \frac{1}{V_\gamma} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma D_{\gamma A} \mathbf{b}_{\gamma\beta} d\mathcal{A} - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{\gamma\beta} \rangle^\gamma. \quad (5.141)$$

All these effective coefficients are entirely determined by the resolution of the three closure problems detailed in the previous section. Note that some cross terms appear in these macro-scale equations. They suggest that the transport process in one phase is influenced by the presence of the other phase.

5.6 Closed form of the mass rate of evaporation

In this section, we develop a closed form of the mass rate of evaporation. We recall the definition of the mass exchange rate of species, A

$$\dot{m}_A = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot (\rho_\beta \omega_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) - \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A}) d\mathcal{A}. \quad (5.142)$$

We note that it can also be written as,

$$\dot{m}_A = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \omega_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \omega_{\beta A} d\mathcal{A}. \quad (5.143)$$

The insertion of Gray's decomposition in this relationship leads to

$$\begin{aligned} \dot{m}_A &= \dot{m} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \rho_\beta D_{\beta A} (\nabla \varepsilon_\beta) \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \\ &\quad + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \tilde{\omega}_{\beta A} (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}_{\beta\gamma}) d\mathcal{A} - \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot \rho_\beta D_{\beta A} \nabla \tilde{\omega}_{\beta A} d\mathcal{A}. \end{aligned} \quad (5.144)$$

When we replace the deviations $\tilde{\omega}_{\beta A}$ and $\tilde{\omega}_{\gamma A}$ by their representations Eq. 5.47 and Eq. 5.48 and by using the definition of $X_{\beta\beta}$, $X_{\beta\gamma}$, $\mathbf{u}_{\beta\beta}$ and $\mathbf{u}_{\beta\gamma}$ we have,

$$\begin{aligned} \dot{m}_A &= \dot{m} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \rho_\beta D_{\beta A} (\nabla \varepsilon_\beta) \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta \\ &\quad + \mathbf{u}_{\beta\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \mathbf{u}_{\beta\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + X_{\beta\beta} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + X_{\beta\gamma} \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma. \end{aligned} \quad (5.145)$$

Using the relations Eq. 5.65 and Eq. 5.87 we finally get

$$\dot{m}_A = -\mathbf{u}_{\beta\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \mathbf{u}_{\beta\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma - X_{\gamma\beta} \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + X_{\beta\gamma} \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma. \quad (5.146)$$

It must be emphasized that this expression is the full expression that can be used if one wants to solve the coupled averaged equations / closure problems. If we now consider the simplifications

previously discussed, the volume mass exchange rate of species A becomes

$$\dot{m}_A = -\mathbf{u}_{\gamma\beta} \cdot \nabla \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta + \mathbf{u}_{\beta\gamma} \cdot \nabla \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma + \alpha_A (H_A \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma - \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta). \quad (5.147)$$

Here we see that the exchange term is not only calculated by the somehow classical term $\alpha_A (H_A \langle \omega_{\gamma A} \rangle^\gamma - \langle \omega_{\beta A} \rangle^\beta)$, but requires also the introduction of the extra convective terms. These terms are not necessarily negligible, especially for simple unit cells, as was illustrated by Golfier et al. (2002) in the case of flow in a capillary tube.

If necessary, we can calculate the total mass transfer rate, \dot{m} , by summing the mass exchange rate of all the species in the system

$$\dot{m} = \sum_A \dot{m}_A \quad (5.148)$$

5.7 Discussion

At this point, we have developed a comprehensive macro-scale model and the associated closure problems from the microscopic problem describing the transport of a chemical species in a two-phase system obeying a partitioning relationship. In fact two-models are available :

1. A fully macro-scale / micro-scale coupled model in which no particular assumption is made on the evolution of the $\beta\gamma$ -interface. Of course, while solving these problems is a very complicated task, this result is of fundamental importance because it gives information on the potential impact of non negligible interface movements on macro-scale transport equations. This represents an important extension of the work by Quintard and Whitaker (1994a) and Coutelieiris et al. (2006).
2. A simplified version in which this interface velocity terms have been discarded. The large-scale transport equation for species A has the same structure as in the previous model. However, the macro-scale / micro-scale equations are somehow uncoupled this time, in the sense that effective properties may be calculated from the closure problem provided the position of the interface is know.

Concerning the comparison of this work with the results of Quintard and Whitaker (1994a) and Coutelieiris et al. (2006), we may add the following comments :

- Like in Coutelieiris et al. (2006), the overall upscaling procedure yields two-macro scale equations linked by a mass exchange term. We developed a full closure to determine this term : it depends on a classical exchange term as pointed out by Coutelieiris et al. (2006) and also on additional convective terms. The existence of such extra terms when dealing with active dispersion was already suggested in Quintard and Whitaker (1994a). They indicate that the macroscopic convective velocity is modified by the

presence of the other phase. In this work we have emphasized the importance of these extra terms in the mass rate of evaporation of each species and therefore in the overall mass transfer process.

- Moreover, the averaged equations involve dispersion cross terms, which were not present in the previous works.

5.8 Application to a two-phase film flow

In order to understand the implications of the theoretical developments presented in this paper from a quantitative point of view, we analyze below the classical film two-phase flow problem. Only the simplified version of the closure problems will be used here.

5.8.1 Analytical solutions of the closure problems

In this section we consider the 2D stratified flow of two phases as represented in Fig.5.3. In this case, the velocity fields correspond to the classical Poiseuille two-phase flow. The unit-cell is simply a cross-section of the system, with the velocity fields perpendicular to the section and the three closure problems A, B and C can be solved analytically.

First we focus on the mass exchange coefficient α_A . The resolution of Problem A gives the following relationship

$$\frac{1}{\alpha_A} = \frac{2L}{3} \left(\frac{H_A \varepsilon_\gamma L}{\rho_\gamma D_{\gamma A}} + \frac{\varepsilon_\beta L}{\rho_\beta D_{\beta A}} \right). \quad (5.149)$$

This result has to be compared to the overall mass exchange coefficient K_{OV} for the interface transfer (Taylor and Krishna (1993)). It can be estimated as the association in series of the mass transfer coefficients $k_{\beta A}$ and $k_{\gamma A}$ in the β -phase and in the γ -phase

$$\frac{1}{K_{OV}} = \frac{H_A}{k_{\gamma A}} + \frac{1}{k_{\beta A}}. \quad (5.150)$$

The form of our mass transfer coefficient given by relation Eq. 5.149 is coherent with the Lewis and Whitman double film theory. Indeed, according to their theory, the resistance to the mass transfer is located in two films on each side of the interface where the thermodynamic equilibrium occurs. The thickness of each film is respectively δ_γ and δ_β . They estimate the transfer coefficients $k_{\beta A}$ and $k_{\gamma A}$ by the following equations

$$k_{\beta A} = \frac{\rho_\beta D_{\beta A}}{\delta_\beta} ; k_{\gamma A} = \frac{\rho_\gamma D_{\gamma A}}{\delta_\gamma}. \quad (5.151)$$

However, it must be noticed here that δ_γ and δ_β are not known a priori. They are in fact solutions of the transport problem. The advantage of the theory proposed in this paper is that the closure problems offer a way to incorporate the transport characteristics, for any unit-cell shape, without relying on a priori solutions like the ones postulated in many film theories.

Table 5.1 compares the mass transport coefficient obtained in the present case (Eq.5.149) with the ones found by Quintard and Whitaker (1994a) and Coutelieis et al. (2006). Since the closure problem introduced by Quintard and Whitaker (1994a) accounts for only one phase, the resulting coefficient is only a function of the mass transfer resistance within this phase. Moreover, we note that in this special configuration, the results are similar for the exchange coefficient calculated by Coutelieis et al. (2006) and the one given by Eq.5.149. Indeed in this special case of a stratified unit-cell $\rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla s_\gamma^0 = 0$ in Eq.5.106, and, therefore both closure problems by Coutelieis et al. (2006) and Problem A are identical. We must emphasize that most of the time it is not the case.

	Quintard and Whitaker (1994a)	Coutelieis et al. (2006)	Present work
Coupled phase	no	yes	yes
γ -phase mobile	no	no	yes
$\frac{1}{\alpha_A}$	$\frac{2L}{3} \frac{\varepsilon_\beta L}{\rho_\beta D_{\beta A}}$	$\frac{2L}{3} \left(\frac{H_A \varepsilon_\gamma L}{\rho_\gamma D_{\gamma A}} + \frac{\varepsilon_\beta L}{\rho_\beta D_{\beta A}} \right)$	$\frac{2L}{3} \left(\frac{H_A \varepsilon_\gamma L}{\rho_\gamma D_{\gamma A}} + \frac{\varepsilon_\beta L}{\rho_\beta D_{\beta A}} \right)$

TABLE 5.1: Comparison of the mass exchange coefficient expression in the case of the stratified unit-cell

Then, we solve Problems B and C in order to obtain analytical expressions for the dispersion tensors $\mathbf{D}_{\beta\beta}$, $\mathbf{D}_{\gamma\beta}$, $\mathbf{D}_{\beta\gamma}$ and $\mathbf{D}_{\gamma\gamma}$. The solution being very complex, we solve using Taylor's series expansions assuming that the thickness of the β -phase is very small in comparison with the one of the γ -phase. This simplification correspond to the assumption of a β -phase film flow, i.e.,

$$\varepsilon_\beta \ll \varepsilon_\gamma. \quad (5.152)$$

We introduce the dimensionless parameter ϕ as

$$\phi = \frac{\rho_\gamma D_{\gamma A}}{\rho_\beta D_{\beta A}}, \quad (5.153)$$

and the Péclet numbers of the β and γ phases as

$$Pe_\beta = \frac{\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta L}{D_{\beta A}} ; Pe_\gamma = \frac{\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma L}{D_{\gamma A}}. \quad (5.154)$$

We obtain,

- $\mathbf{D}_{\beta\beta}$:

$$\frac{\mathbf{i}\cdot\mathbf{D}_{\beta\beta}\cdot\mathbf{i}}{D_{\beta A}} = 1 + \frac{2}{105}Pe_{\beta}^2\varepsilon_{\beta}^2 + O(\varepsilon_{\beta}^3), \quad (5.155)$$

$$\frac{\mathbf{i}\cdot\mathbf{D}_{\beta\beta}\cdot\mathbf{j}}{D_{\beta A}} = -\frac{1}{8}Pe_{\beta}\varepsilon_{\beta} + O(\varepsilon_{\beta}^2), \quad (5.156)$$

$$\frac{\mathbf{j}\cdot\mathbf{D}_{\beta\beta}\cdot\mathbf{i}}{D_{\beta A}} = -\frac{7}{120}Pe_{\beta}\varepsilon_{\beta} + O(\varepsilon_{\beta}^2), \quad (5.157)$$

$$\frac{\mathbf{j}\cdot\mathbf{D}_{\beta\beta}\cdot\mathbf{j}}{D_{\beta A}} = \frac{3}{2} + O(\varepsilon_{\beta}). \quad (5.158)$$

Note that Eq. 5.155 is similar to the dispersion relationship calculated by Asbjørnsen (1973) and Prenosil (1973) in the case of the Taylor diffusion in falling liquid films. The additional dispersion tensors are given below.

- $\mathbf{D}_{\gamma\beta}$:

$$\frac{\mathbf{i}\cdot\mathbf{D}_{\gamma\beta}\cdot\mathbf{i}}{D_{\gamma A}} = \frac{7\varepsilon_{\beta}^2}{4800H_A} \left(9Pe_{\beta}^2 \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right) - 2Pe_{\beta}Pe_{\gamma} \right) + O(\varepsilon_{\beta}^3), \quad (5.159)$$

$$\frac{\mathbf{i}\cdot\mathbf{D}_{\gamma\beta}\cdot\mathbf{j}}{D_{\gamma A}} = -\frac{\varepsilon_{\beta}}{120H_A} \left(9Pe_{\beta} \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right) - 2Pe_{\gamma} \right) + O(\varepsilon_{\beta}^2), \quad (5.160)$$

$$\frac{\mathbf{j}\cdot\mathbf{D}_{\gamma\beta}\cdot\mathbf{i}}{D_{\gamma A}} = \frac{7\varepsilon_{\beta}^2}{\varepsilon_{\gamma}80H_A} Pe_{\beta} + O(\varepsilon_{\beta}^3), \quad (5.161)$$

$$\frac{\mathbf{j}\cdot\mathbf{D}_{\gamma\beta}\cdot\mathbf{j}}{D_{\gamma A}} = -\frac{\varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\gamma}2H_A} + O(\varepsilon_{\beta}^2). \quad (5.162)$$

- $\mathbf{D}_{\beta\gamma}$:

$$\frac{\mathbf{i}\cdot\mathbf{D}_{\beta\gamma}\cdot\mathbf{i}}{D_{\beta A}} = \frac{7\varepsilon_{\gamma}\varepsilon_{\beta}}{4800\phi^{-1}} \left(58Pe_{\beta}Pe_{\gamma} - 51Pe_{\beta}^2 \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right) \right) + O(\varepsilon_{\beta}^2), \quad (5.163)$$

$$\frac{\mathbf{i}\cdot\mathbf{D}_{\beta\gamma}\cdot\mathbf{j}}{D_{\beta A}} = -\frac{7\varepsilon_{\beta}}{120\phi^{-1}} Pe_{\beta} + O(\varepsilon_{\beta}^2), \quad (5.164)$$

$$\frac{\mathbf{j}\cdot\mathbf{D}_{\beta\gamma}\cdot\mathbf{i}}{D_{\beta A}} = \frac{\varepsilon_{\gamma}}{80\phi^{-1}} \left(58Pe_{\gamma} - 51Pe_{\beta} \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right) \right) + O(\varepsilon_{\beta}), \quad (5.165)$$

$$\frac{\mathbf{j}\cdot\mathbf{D}_{\beta\gamma}\cdot\mathbf{j}}{D_{\beta A}} = -\frac{1}{2\phi^{-1}} + O(\varepsilon_{\beta}^2), \quad (5.166)$$

- $\mathbf{D}_{\gamma\gamma}$:

$$\frac{\mathbf{i} \cdot \mathbf{D}_{\gamma\gamma} \cdot \mathbf{i}}{D_{\gamma A}} = 1 - \frac{\varepsilon_\gamma^2}{11200} \left(1444 Pe_\gamma^2 - 2049 \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right)^2 Pe_\beta^2 - 704 \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right) Pe_\beta Pe_\gamma \right) + O(\varepsilon_\beta), \quad (5.167)$$

$$\frac{\mathbf{i} \cdot \mathbf{D}_{\gamma\gamma} \cdot \mathbf{j}}{D_{\gamma A}} = -\frac{\phi}{120 H_A} \varepsilon_\beta \left(-9 Pe_\beta \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right) + 2 Pe_\gamma \right) + O(\varepsilon_\beta^2), \quad (5.168)$$

$$\frac{\mathbf{j} \cdot \mathbf{D}_{\gamma\gamma} \cdot \mathbf{i}}{D_{\gamma A}} = -\frac{1}{80} \varepsilon_\gamma \left(-179 Pe_\beta \left(\frac{D_{\beta A}}{D_{\gamma A}} \right) + 182 Pe_\gamma \right) + O(\varepsilon_\beta), \quad (5.169)$$

$$\frac{\mathbf{j} \cdot \mathbf{D}_{\gamma\gamma} \cdot \mathbf{j}}{D_{\gamma A}} = 1 + \frac{\phi}{\varepsilon_\gamma 2 H_A} \varepsilon_\beta + O(\varepsilon_\beta^2). \quad (5.170)$$

5.8.2 Numerical validation

In this section we control the validity of the approach developed in this paper by a comparison between our macro-scale model and a direct numerical simulation (DNS) of the pore-scale model. For our simulations, we used the COMSOL MultiphysicsTM3.5a finite elements toolbox. First, we consider the geometry depicted in Fig. 5.3. The unit-cells are the vertical cross section

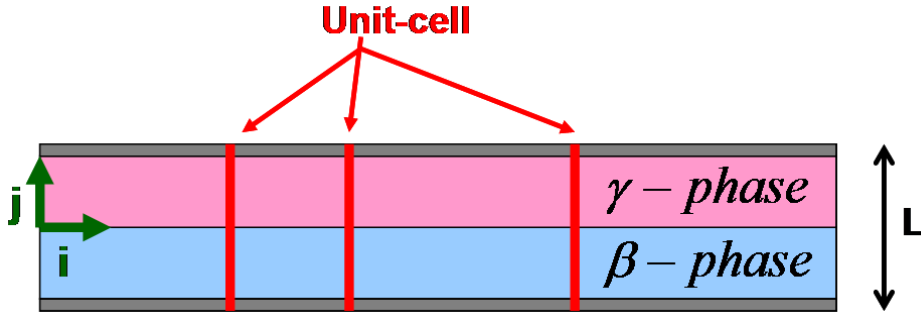


FIGURE 5.3: geometry

of this geometry. We consider an established two-phase flow, and the $\beta\gamma$ -interface is assumed to be motionless. Initially, the mass fractions are equal to zero. The boundary conditions are

- at the inlet : $\omega_{\beta A} = 0.2$ and $\omega_{\gamma A} = 0.15$
- at the outlet : a convective flux condition
- at the wall : a zero flux condition

In these numerical simulations, the velocity field and the mass fraction fields are respectively computed by solving the steady-state Navier-Stokes equations (using quadratic Lagrange elements for the velocities and linear for pressure) and the pore-scale problem Eq.5.7 - Eq.5.12. The advection-diffusion equations are solved using a quadratic Lagrange element formulation. The linear systems are solved using the direct solver UMFPACK based on the Unsymmetric

MultiFrontal method. The resulting fields are plotted in Fig. 5.4 for the steady state and particular choices of various parameters. One may identify here two regions : one entrance region near the inlet where the concentration field evolution is rapid, with a characteristic length-scale smaller than the unit-cell characteristic length. Elsewhere, one see a much smoother solutions which is more appropriate for the periodicity boundary conditions used in the closure problems. This point will be discussed again later, when comparing the macro-scale predictions.



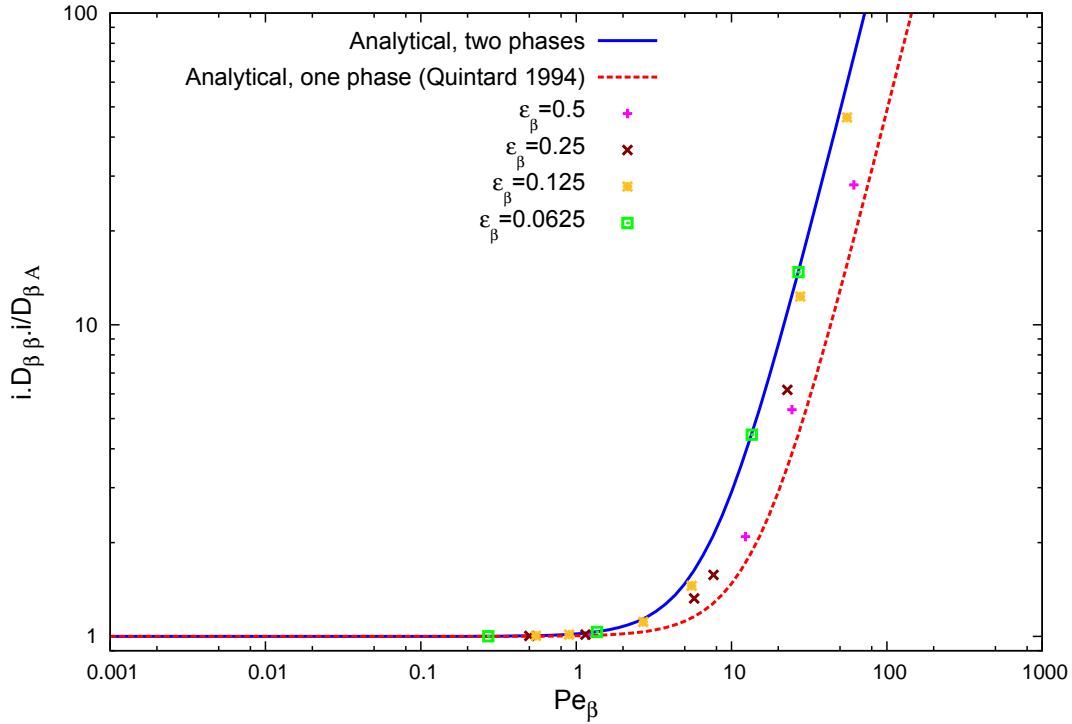
FIGURE 5.4: Direct Numerical Simulation at steady-state for $H_A = 1.0$, $Pe_\beta = 3.8$, $Pe_\gamma = 35$

The fields are averaged over cross sections to provide the 1D evolution of macro-scale mass fractions. These averaged fields are then compared to the ones obtained from the macro-scale model. Before solving the macro-scale equations, we solved the closure problems on a unit-cell as described in Fig. 5.3.

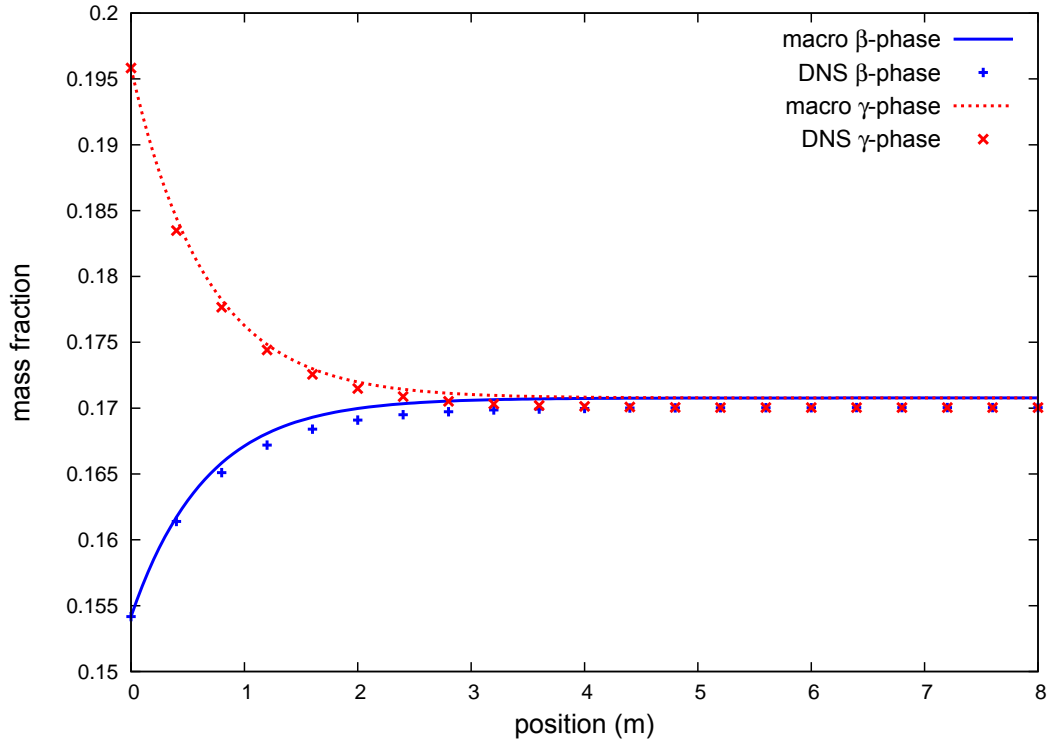
First, we have investigated the dispersion value $\frac{\mathbf{i} \cdot \mathbf{D}_{\beta\beta} \cdot \mathbf{i}}{D_{\beta A}}$ according to the β -phase thickness by solving the closure problems for different Péclet numbers. Results are plotted in Fig.5.5. They are compared to the analytical formula obtained in the previous section (Eq.5.155) and to the Taylor-Aris dispersion coefficient when the phases are treated separately (Quintard and Whitaker (1994a)). As was expected for small liquid-phase thicknesses, the analytical result and the simulations fit well. Then, since all the effective properties are known, we can finally solve the macro-scale equations over a one dimensional geometry with the same length and boundary conditions as the one of the DNS geometry. For the first simulation, the Péclet numbers considered are respectively $Pe_\beta = 1.2$ and $Pe_\gamma = 11.2$. The mass fractions along the x -axis when the steady state is reached are plotted in Fig. 5.7 and Fig. 5.6 is an elution curve in both DNS and macro-model cases. The actual (DNS) and theoretically predicted mass fraction fields are in very good agreement.

We redo the same operations for higher Péclet number ($Pe_\beta = 12$ and $Pe_\gamma = 112$). Simulation results are exposed in Fig.5.8 and Fig.5.9 . While the overall agreement is fairly good, one sees an increasing discrepancy between the theoretical model and the DNS results, for the phase at high Péclet numbers, and near the domain entrance. These phenomena suggest the following remarks :

1. It is well known that the mass exchange coefficient calculated from DNS varies sharply near the entrance to reach a constant value after a characteristics length depending on the Péclet number,

FIGURE 5.5: Dispersion coefficient in the β -phase

2. Using periodicity conditions for the closure problems implies that we are working in the established regime. The resulting constant effective properties do not catch the effects occurring near the entrance region. Indeed, by definition, the volume averaging procedure assumes slow variation of the averaged properties which is definitely not the case in such area. Better approximation of the macro-scale mass fraction field in the entrance region would require introducing some *non-local theory* that would express the mass exchange coefficient (and possibly change the other effective properties) as a function of the distance from the inlet boundary. For instance this kind of approach has been developed in Kechagia et al. (2002). An alternate solution could be to keep a micro-scale description in the entrance area coupled to the macro-scale model far enough from the entrance boundary (see an example for heat transfer in Batsale et al. (1996)). Another approach could be to modify the entrance boundary condition to reflect the impact of the entrance boundary. In this latter example the macro-scale concentration field in the entrance region is less accurate than with the two others proposed techniques.
3. In terms of time evolution, it is well known that a first-order two-equation model has some limitations and that it does not catch all the characteristic times of the real flow. A more thorough discussion of these questions can be found in Davit et al. (2010).

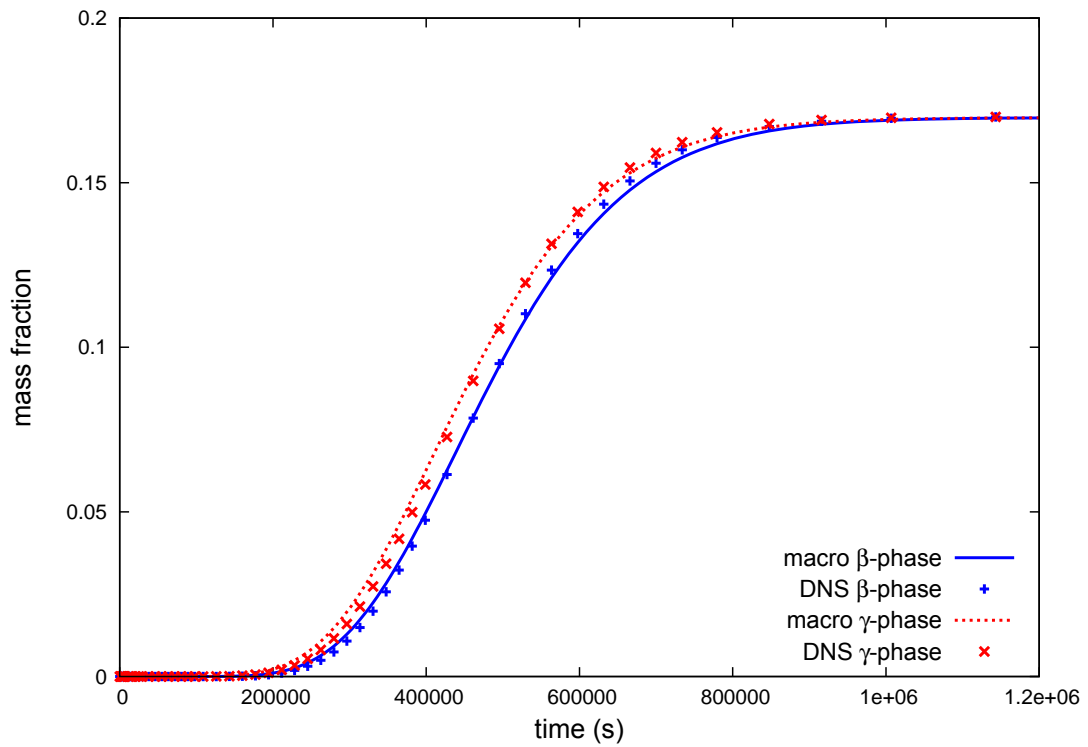
FIGURE 5.6: Concentration profiles along the tube at steady state ($H_A = 1.0$, $Pe_\beta = 1.2$, $Pe_\gamma = 11.2$)

5.9 Conclusion

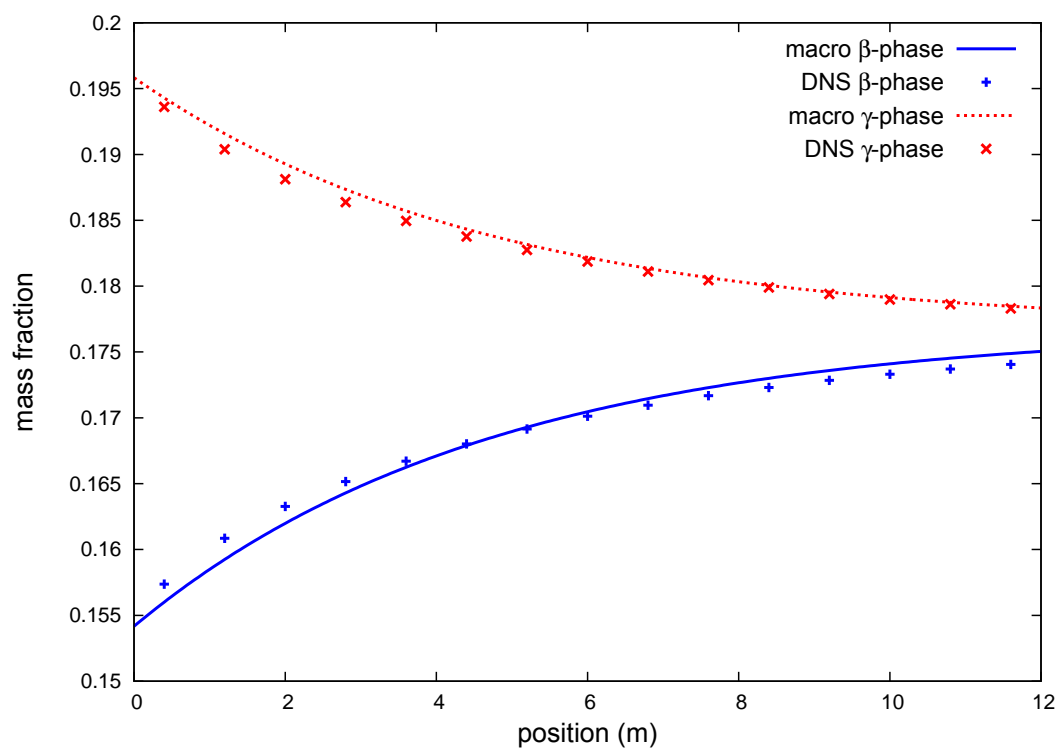
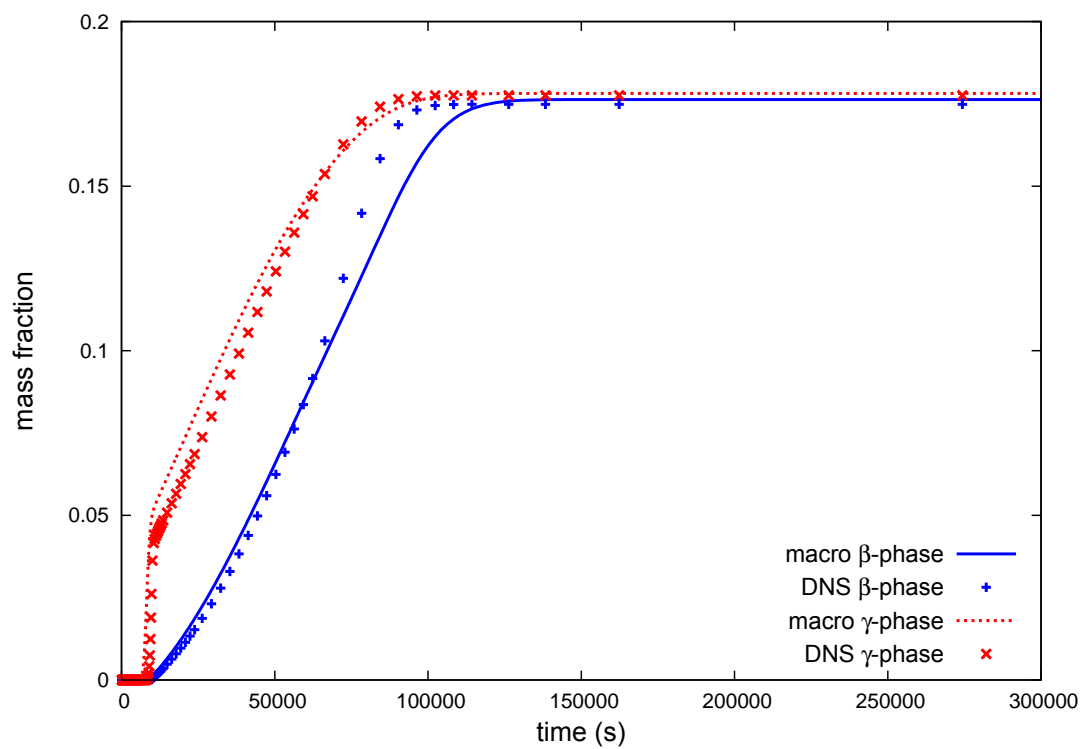
At this point, we have developed a comprehensive macro-scale model with closure for the general case of the multicomponent flow of two phases in a porous medium, with the restriction that equilibrium is described by a partitioning coefficient. The initial structure of the coupled macro/micro problems has been obtained with a minimum of assumptions, in particular retaining transient terms and terms involving the velocity of the interface. Decoupled solutions were obtained by specifically neglecting these terms. These results represent a generalization of the work by Quintard and Whitaker (1994a) and Coutelieis et al. (2006). Moreover, the present model takes into account the motion of both phases. In addition, some new effective terms appear in the macro-scale equations.

The theory was successfully tested against pore-scale DNS results for the simplified case of a stratified two-phase flows in a 2D tube and we have recovered some classical laws used in chemical engineering.

However, all the developments made in this work used the underlying assumptions that the flow regime is laminar. We know that turbulent regimes could modify the results obtained herein. We could tackle this problem using the ideas put forth in Cherblanc et al. (2007) and Pinson et al. (2007), who include turbulence effects inside a non linear dispersion coeffi-

FIGURE 5.7: Elution curve ($H_A = 1.0$, $Pe_\beta = 1.2$, $Pe_\gamma = 11.2$)

cient. This will be done later in a forthcoming paper where closure problems will be solved on more realistic pore scale geometries. Moreover, it should be interesting to confront the present upscaling process with a case involving a moving interface.

FIGURE 5.8: Concentration profiles along the tube at steady state ($H_A = 1.0$, $Pe_\beta = 12$, $Pe_\gamma = 112$)FIGURE 5.9: Elution curve ($H_A = 1.0$, $Pe_\beta = 12$, $Pe_\gamma = 112$)

Conclusion et perspectives

Les travaux réalisés pendant cette thèse ont permis d'établir les bases théoriques d'une modélisation milieux poreux appliquée à l'écoulement et à l'échange de matière dans une colonne équipée de garnissages structurés. Le modèle obtenu a été développé à partir d'une analyse multi-échelle. Dans notre étude, nous nous sommes focalisés sur trois points : les effets de la turbulence dans un milieu poreux, les écoulements diphasiques dans les garnissages structurés, et le transport d'espèces dans les systèmes diphasiques.

L'étude de la turbulence dans les milieux poreux reste un problème ouvert. Nous avons développé une théorie complémentaire aux nombreux modèles existants. Elle montre que, sous certaines conditions, comme la séparation des échelles, les écoulements turbulents dans les milieux poreux peuvent être modélisés par une loi du type Darcy-Forchheimer étendue. Cette formulation présente plusieurs avantages : son application est plus aisée que les modèles de turbulence de la littérature, elle reste en continuité avec les lois d'écoulements inertiels en milieux poreux, elle permet de prendre en compte l'anisotropie du matériau poreux et de l'écoulement, et, surtout, elle est conforme aux corrélations empiriques utilisées dans la littérature du génie chimique. La méthode que nous avons développée permet, via la résolution de problèmes de fermeture, d'interpréter, sous forme de paramètres effectifs, des résultats de simulations en régime turbulent à la petite échelle. Elle est valable quelle que soit la méthode RANS utilisée, et peut être, probablement, étendue à l'interprétation de calculs LES. Nous avons appliqué cette méthode à l'étude de garnissages structurés dont deux feuilles ondulées adjacentes forment un angle de 45° avec l'axe vertical. Contrairement à ce que nous attendions, le tenseur de perméabilité apparente que nous obtenons ne dépend pas de l'orientation de l'écoulement à la petite échelle. Il serait intéressant, par la suite, de voir si ces conclusions sont toujours valables dans le cas d'un garnissage présentant un angle d'orientation des ondes différents. L'impact des perforations sur les valeurs du tenseur de perméabilité apparente serait également un renseignement intéressant.

Nous avons vu que les modèles d'écoulement diphasique usuellement utilisés pour l'étude des milieux poreux ne sont pas adaptés pour simuler les écoulements dans les garnissages structurés. Notamment, ils ne permettent pas de représenter correctement l'étalement d'un jet

dans ce type de structure. Nous avons identifié que le mécanisme d'étalement du liquide dans ces contacteurs est une conséquence de sa double structure, et qu'il est contrôlé par la situation aux points de contact entre deux feuilles ondulées. Afin d'obtenir une souplesse supplémentaire pour représenter la physique de l'écoulement microscopique à l'échelle de la colonne, la phase liquide a été divisée en deux films distincts (chacun étant associé à une feuille ondulée du garnissage), qui échangent de la matière au niveau des points de contacts. Ce modèle est une extrapolation heuristique, aux systèmes diphasiques, de la théorie des écoulements dans les matériaux bi-structurés complètement saturés, que nous avons développée pour l'occasion. L'échange de liquide entre les plaques s'exprime comme une différence de pression. Les tenseurs de perméabilité multiphasique, qui apparaissent dans les équations macroscopiques, ont été évalués analytiquement à partir de l'analogie avec l'écoulement d'un film sur un plan incliné. Le modèle a été comparé avec succès à des résultats expérimentaux. Les hypothèses qui ont mené à ce modèle sont nombreuses. Il serait intéressant d'obtenir rigoureusement un modèle d'écoulement diphasique dans les milieux bi-structurés à partir d'une analyse multi-échelle. Les éléments théoriques développés dans cette thèse permettront de lever une partie des difficultés pour atteindre cet objectif. Les paramètres effectifs du modèle pourraient être précisés à partir de l'interprétation d'un modèle de film s'écoulant sur la topologie exacte d'une feuille ondulée. Ceci permettrait notamment d'étudier l'impact des perforations sur l'angle de plus grande pente. Dans nos travaux, nous avons volontairement négligé les termes de couplage visqueux du modèle diphasique. Il serait intéressant d'évaluer l'impact de cette hypothèse, notamment en cas de fort cisaillement. Enfin, il faudrait étendre ce modèle diphasique aux régimes inertiels voire turbulents (en se basant sur les connaissances établies au premier point) et comparer les résultats de simulations à des mesures de perte de charge et de dispersion radiale effectuées sur des pilotes industriels.

Enfin, le troisième point que nous avons étudié concerne la modélisation, d'un point de vue macroscopique, du transport de composés chimiques dans les garnissages structurés. Nous avons développé un modèle décrivant le transfert de masse de mélanges multiconstituants dont l'équilibre thermodynamique à l'interface entre une phase liquide et une phase vapeur est assuré par une relation de partitionnement. Une des originalités de ce travail est la prise en compte de la vitesse de l'interface dans le processus de changement d'échelle. Le modèle macroscopique que nous avons obtenu est du type *non-équilibre local* : il se présente sous la forme d'un modèle à deux équations reliées par un terme d'échange. Les équations moyennées impliquent des paramètres effectifs, comme des tenseurs de dispersion, qui sont évalués à partir de problèmes de fermeture. Ces derniers ont été résolus analytiquement et numériquement dans le cas d'un film s'écoulant le long d'une plaque plane. Nos résultats concernant les tenseurs de dispersion sont en accord avec la théorie des films tombants et ceux concernant le coefficient de changement de phase correspondent à la théorie du double film. Ce modèle est ici restreint aux écoulements inertiels. Il pourrait être étendu aux régimes turbulents en utilisant une diffusivité

effective qui résulterait d'un calcul turbulent à la petite échelle. Par ailleurs, pour rester dans le même état d'esprit que le modèle diphasique que nous avons développé, il serait intéressant de reprendre cette étude théorique en considérant le garnissage comme un milieu bi-structuré.

Bibliographie

- Agrawal, R. and D. Herron (2000). Air liquefaction : Distillation. In I. D. Wilson (Ed.), *Encyclopedia of Separation Science*, pp. 1895 – 1910. Oxford : Academic Press.
- Ahmadi, A., M. Quintard, and S. Whitaker (1998). Transport in chemically and mechanically heterogeneous porous media v : Two-equation model for solute transport with adsorption. *Advances in Water Resources* 22(1), 59–86.
- Alekseenko, S. V., D. M. Markovich, A. R. Evseev, A. V. Bobylev, B. V. Tarasov, and V. M. Karsten (2008). Experimental investigation of liquid distribution over structured packing. *AIChE Journal* 54(6), 1424–1430.
- Antohe, B. and J. Lage (1997). A general two-equation macroscopic turbulence model for incompressible flow in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 40(13), 3013 – 3024.
- Aroonwilas, A., A. Chakma, P. Tontiwachwuthikul, and A. Veawab (2003). Mathematical modelling of mass-transfer and hydrodynamics in co2 absorbers packed with structured packings. *Chemical Engineering Science* 58(17), 4037 – 4053.
- Aroonwilas, A. and P. Tontiwachwuthikul (2000). Mechanistic model for prediction of structured packing mass transfer performance in co2 absorption with chemical reactions. *Chemical Engineering Science* 55(18), 3651 – 3663.
- Asbjørnsen, O. A. (1973). Taylor diffusion in falling liquid films. *Chemical Engineering Science* 28, 1699–1706.
- Attou, A., C. Boyer, and G. Ferschneider (1999). Modelling of the hydrodynamics of the cocurrent gas-liquid trickle flow through a trickle-bed reactor. *Chemical Engineering Science* 54(6), 785 – 802.
- Auriault, J.-L. (1987). Nonsaturated deformable porous media : Quasistatics. *Transport in Porous Media* 2, 45–64. 10.1007/BF00208536.
- Aziz and Settari (1979). *Petroleum Reservoir Simulation*. Applied Science Publishers LTD.

- Baillet, R. (2010). *Georges Claude, le génie fourvoyé*. Sciences & histoire. EDP Sciences.
- Barenblatt, G., I. Zheltov, and I. Kochina (1960). Basic concepts in the theory of homogeneous liquids in fissured rocks. *J. Applied Mathematics (USSR)* 24(5), 1286–1303.
- Barrère, J. (1990). *Modélisation des écoulements de Stokes et de Navier-Stokes en milieu poreux*. Ph. D. thesis, Université de Bordeaux 1.
- Batsale, J., C. Gobbé, and M. Quintard (1996). Local non-equilibrium heat transfer in porous media. *Recent Research Developments in Heat, Mass & Momentum Transfer Research Signpost, India* 1, 1–24.
- Baveye, P. and G. Sposito (1984). The operational significance of the continuum hypothesis in the theory of water movement through soils and aquifers. *Water Resour. Res.* 20(5), 521–530.
- Bear, J. (1972). *Dynamics of fluids in porous media*. New York : Elsevier.
- Bear, J., C. Braester, and P. C. Menier (1987). Effective and relative permeabilities of anisotropic porous media. *Transport in Porous Media* 2, 301–316. 10.1007/BF00165786.
- Bekri, S. and P. M. Adler (2002). Dispersion in multiphase flow through porous media. *International Journal of Multiphase Flow* 28(4), 665–697.
- Belfort, G., R. H. Davis, and A. L. Zydney (1994). The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration. *Journal of Membrane Science* 96(1–2), 1 – 58.
- Bemer, G. and F. J. Zuiderweg (1978). Radial liquid spread and maldistribution in packed columns under different wetting conditions. *Chem. Eng. Sci.* 33, 1637–1643.
- Bensoussan, A., J. Lions, and G. Papanicolaou (1978). *Asymptotic Analysis for Periodic Structures*. AMS Chelsea Publishing.
- Billet, R. and M. Schultes (1999). Prediction of mass transfer columns with dumped and arranged packings : Updated summary of the calculation method of billet and schultes. *Chemical Engineering Research and Design* 77(6), 498 – 504.
- Bourbié, T., O. Coussy, and B. Zinszner (1987). *Acoustics of porous media*. Institut français du pétrole publications.
- Bousquet-Melou, P., A. Neculae, B. Goyeau, and M. Quintard (2002). Averaged solute transport during solidification of a binary mixture : Active dispersion in dendritic structures. *Metallurgical and Materials Transactions B* 33, 365–376. 10.1007/s11663-002-0048-8.
- Bravo, J. L., J. A. Rocha, and J. R. Fair (1986). Pressure drop in structured packings. *Hydrocarbon processing* 65.

- Broadbent, S. R. and J. M. Hammersley (1957). Percolation processes. *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* 53, 629–641.
- Brooks, R. and A. Corey (1964). Hydraulic properties of porous media. *Hydrology Papers* 3.
- Brusseau, M. and P. Rao (1990). Modeling solute transport in structured soils : a review. *Geoderma* 46(1–3), 169 – 192.
- Chandesris, M., G. Serre, and P. Sagaut (2006). A macroscopic turbulence model for flow in porous media suited for channel, pipe and rod bundle flows. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 49, 2739–2750.
- Chatzis, I. and F. A. L. Dullien (1982). Mise en oeuvre de la théorie de la percolation pour modéliser le drainage des milieux poreux et la perméabilité relative au liquide non mouillant injecté. *Revue de l'Institut Français du Pétrole* 37, 183–205.
- Chauveteau, G. and C. Thirriot (1965). Sur les pertes de charge en écoulement laminaire dans quelques géométries simples et dans le milieu poreux. Trieste, pp. 1–7.
- Chauveteau, G. and C. Thirriot (1967). Régimes d'écoulement en milieu poreux et limite de la loi de darcy. *La Houille Blanche* 2, 141–148.
- Chella, R., D. Lasseux, and M. Quintard (1998). Ecoulement de fluides multiconstituants polyphasiques dans des milieux poreux homogènes et hétérogènes. *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP* 53(3), 335–346.
- Chen, Z., G. Huan, and B. Li (2004). An improved impes method for two-phase flow in porous media. *Transport in Porous Media* 54, 361–376. 10.1023/B :TIPM.0000003667.86625.15.
- Cherblanc, F., A. Ahmadi, and M. Quintard (2003). Two-medium description of dispersion in heterogeneous porous media : Calculation of macroscopic properties. *Water Resources Res.* 39(6), 1154.
- Cherblanc, F., A. Ahmadi, and M. Quintard (2007). Two-domain description of solute transport in heterogeneous porous media : Comparison between theoretical predictions and numerical experiments. *Advances in Water Resources* 30(5), 1127 – 1143.
- Cihla, Z. and O. Schmidt (1958). A study of the flow of liquid when freely trickling over the packing in a cylindrical tower. *Collec. Czechosl. Chem. Commun.* 23, 569–577.
- Coats, K. and B. Smith (1964). Dead-end pore volume and dispersion in porous media. *Society of Petroleum Engineers Journal* 4, 73–84.
- Coutelieris, F., M. Kainourgiakis, A. Stubos, E. Kikkinides, and Y. Yortsos (2006). Multi-phase mass transport with partitioning and inter-phase transport in porous media. *Chemical Engineering Science* 61(14), 4650 – 4661.

- Cushman, J. H. (1982). Proofs of the volume averaging theorems for multiphase flow. *Advances in Water Resources* 5(4), 248 – 253.
- Dagan, G. (1989). *Flow and Transport in Porous Formations*. Heidelberg Berlin New York : Springer-Verlag.
- Danckwerts (1970). *Gas-Liquid Reactions*.
- Darcy, H. (1856). *Fontaines publiques de la ville de Dijon*. Librairie des Corps Impériaux des Ponts et Chaussées et des Mines.
- Davit, Y., G. Debenest, B. D. Wood, and M. Quintard (2010). Modeling non-equilibrium mass transport in biologically reactive porous media. *Advances in Water Resources* 33(9), 1075 – 1093.
- Davit, Y., M. Quintard, and G. Debenest (2010). Equivalence between volume averaging and moments matching techniques for mass transport models in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 53(21-22), 4985 – 4993.
- de Lemos, M. J. (2006). *Turbulence in porous media : Modelling and Applications*. Pergamon, Tarrytown.
- de Lemos, M. J. (2012). *Turbulence in porous media : Modelling and Applications (2nd Edition)*. Pergamon, Tarrytown.
- Diderot and d’Alembert (1751). *Encyclopédie, ou dictionnaire raisonné des sciences, des arts et des métiers, par une société de gens de lettres*.
- Edwards, D. A., M. Shapiro, P. Bar-Yoseph, and M. Shapira (1990). The influence of reynolds number upon the apparent permeability of spatially periodic arrays of cylinders. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics* 2(1), 45–55.
- Ene, H. and E. Sanchez-Palencia (1975). Equations et phénomènes de surface pour l’écoulement dans un modèle de milieu poreux. *J. Mécanique* 14.
- Ergun, S. (1952). Fluid flow through packed columns. *Chem. Eng. Prog.* 48(2), 89–94.
- Forchheimer, P. (1901). Wasserbewegung durch boden. *Z. Ver. Deutsch. Ing.* 45, 1782–1788.
- Fourar, M. and R. Lenormand (2001). A new model for two-phase flows at high velocities through porous media and fractures. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 30(2), 121 – 127.
- Fourar, M., R. Lenormand, and F. Larachi (2001). Extending the f-function concept to two-phase flow in trickle beds. *Chem Eng Sci* 56, 21–22.

- Fourati, M., V. Roig, and L. Raynal (2012). Experimental study of liquid spreading in structured packings. *Chemical Engineering Science* 80(0), 1 – 15.
- Gerke, H. H. and M. T. VanGenuchten (1993). A dual-porosity model for simulating the preferential movement of water and solutes in structured porous media. *Water Resources Research* 29, 305–319.
- Getachew, D., W. Minkowycz, and J. Lage (2000). A modified form of the $k - \epsilon$ model for turbulent flows of an incompressible fluid in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 43(16), 2909 – 2915.
- Giovangigli, V. (1999). *Multicomponent Flow Modeling*. Modeling and Simulation in Science, Engineering and Technology. Springer.
- Golfier, F., M. Quintard, and S. Whitaker (2002). Heat and mass transfer in tubes : An analysis using the method of volume averaging. *Journal of Porous Media* 5, 169–185.
- Gray (1975). A derivation of the equations for multiphase transport. *Chemical Engineering Science* 30, 229–233.
- Gray, W. G., A. Leijnse, R. L. Kolar, and C. A. Blain (1993). *Mathematical tools for changing spatial scales in the analysis of physical systems*. CRC Press.
- Haroun, Y., D. Legendre, and L. Raynal (2010). Direct numerical simulation of reactive absorption in gas–liquid flow on structured packing using interface capturing method. *Chemical Engineering Science* 65(1), 351 – 356.
- Haroun, Y., L. Raynal, and D. Legendre (2012). Mass transfer and liquid hold-up determination in structured packing by cfd. *Chemical Engineering Science* 75(0), 342 – 348.
- Hassanizadeh, M. and W. G. Gray (1980). General conservation equations for multi-phase systems : 3. constitutive theory for porous media. *Adv. Water Resour.* 3, 25–40.
- Hassanizadeh, S. M. and W. G. Gray (1997). Recent advances in theories of two-phase flow in porous media, chap. 3. In J. P. D. Plessis (Ed.), *Fluid Transport in Porous Media*, Volume 13, pp. 105–160. Boston : Computational Mechanics Publications.
- Higbie (1935). The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure. *Trans. AIChE* 35.
- Hodson, J. S., J. P. Fletcher, and K. E. Porter (1997). Fluid mechanical studies of structured distillation packings. *I Chem E. Distillation and Absorption* 2(142), 999–1007.
- Hoek, P. J., J. P. Wesselingh, and F. J. Zuiderweg (1986). Small scale and large scale liquid maldistribution in packed columns. *Chem. Eng. Res. Des.* 64, 431–449.

- Horgue, P. (2012). *Modélisation multi-échelle d'un écoulement gaz-liquide dans un lit fixe de particules*. Ph. D. thesis, Mécanique, Energétique, Génie civil et Procédés (MEGeP), Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT).
- Hosseini, S. H., S. Shojaee, G. Ahmadi, and M. Zivdar (2012). Computational fluid dynamics studies of dry and wet pressure drops in structured packings. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* (0), –.
- Howes, F. A. and S. Whitaker (1985). The spatial averaging theorem revisited. *Chemical Engineering Science* 40(8), 1387 – 1392.
- Iliuta, I., C. F. Petre, and F. Larachi (2004). Hydrodynamic continuum model for two-phase flow structured-packing-containing columns. *Chemical Engineering Science* 59(4), 879 – 888.
- Issa (1985). Solution of the implicitly discretised fluid flow equations by operator-splitting. *Journal of Computational Physics* 62, 40–65.
- Kalaydjian, F. (1987). A macroscopic description of multiphase flow in porous media involving spacetime evolution of fluid/fluid interface. *Transport in Porous Media* 2(6), 537–552.
- Kechagia, P. E., I. N. Tsimpanogiannis, Y. C. Yortsos, and P. C. Lichtner (2002). On the upscaling of reaction-transport processes in porous media with fast or finite kinetics. *Chemical Engineering Science* 57(13), 2565 – 2577.
- Kuwahara, F., T. Yamane, and A. Nakayama (2006). Large eddy simulation of turbulent flow in porous media. *International Communications in Heat and Mass Transfer* 33, 411–418.
- Lasseux, D., A. Ahmadi, and A. Arani (2008, December). Two-phase inertial flow in homogeneous porous media : A theoretical derivation of a macroscopic model. *Transport in Porous Media* 75(3), 371–400.
- Lasseux, D., A. A. A. Arani, and A. Ahmadi (2011). On the stationary macroscopic inertial effects for one phase flow in ordered and disordered porous media. *Physics of Fluids* 23(7), 073103.
- Lasseux, D., M. Quintard, and S. Whitaker (1996). Determination of permeability tensors for two-phase flow in homogeneous porous media : Theory. *Transport in Porous Media* 24, 107 – 137.
- Launder, B. E. and B. I. Sharma (1974, Nov.-Dec.). Application of the energy-dissipation model of turbulence to the calculation of flow near a spinning disc. *Letters in Heat and Mass Transfer* 1, 131–137.
- Leclerc (2008). Calcul de l'angle de plus grande pente. Technical report, Air Liquide.

- Leverett, M. C. (1940, december). Capillary behavior in porous solids. *Transactions of the AIME* 142(1), 152–169.
- Lewis and Whitman (1924). Principles of gas absorption. *Ind. Eng. Chem.* 16, 1215–1220.
- Mahr, B. and D. Mewes (2007). Cfd modelling and calculation of dynamic two-phase flow in columns equipped with structured packing. *Chemical Engineering Research and Design* 85(8), 1112 – 1122.
- Mahr, B. and D. Mewes (2008). Two-phase flow in structured packings : Modeling and calculation on a macroscopic scale. *AIChE J.* 54(3), 614–626.
- Marle (1965). Application de la méthode de la thermodynamique des processus irréversible à l'écoulement d'un fluide à travers un milieu poreux. *Bulletin RILEM* 29, 1066–1071.
- Marle, C. M. (1967). Ecoulements monophasiques en milieu poreux. pp. 1471–1509.
- Marle, C. M. (1982). On macroscopic equations governing multiphase flow with diffusion and chemical reactions in porous media. *Journal of Engineering Sciences* 20(5), 643–662,.
- Masuoka, T. and Y. Takatsu (1996). Turbulence model for flow through porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 39(13), 2803 – 2809.
- Matheron, G. (1965). *Les variables régionalisées et leur estimation : une application de la théorie des fonctions aléatoires aux sciences de la nature*. Paris : Masson.
- Mei, C. C. and J.-L. Auriault (1991). The effect of weak inertia on flow through a porous medium. *Journal of Fluid Mechanics* 222, 4729–4747.
- Mewes, D., T. Loser, and M. Millies (1999). Modelling of two-phase flow in packings and monoliths. *Chemical Engineering Science* 54(21), 4729 – 4747.
- Muskat, M. (1949). *Physical principles of oil production*. McGraw-Hill, New York.
- Nikou, M. K. and M. Ehsani (2008). Turbulence models application on cfd simulation of hydrodynamics, heat and mass transfer in a structured packing. *International Communications in Heat and Mass Transfer* 35(9), 1211 – 1219.
- Nusselt, W. (1916). Die oberflächenkondensation des wasserdampfes. *Ver.Deut.Ingr.* 60.
- Olujic, Z., R. V. Baak, J. Haaring, B. Kaibel, and H. Jansen (2006). Liquid distribution properties of conventional and high capacity structured packings. *Chemical Engineering Research and Design* 84(10), 867 – 874.
- Olujic, Z., M. Jödecke, A. Shilkin, G. Schuch, and B. Kaibel (2009). Equipment improvement trends in distillation. *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification* 48(6), 1089 – 1104.

- Oxarango, L., P. Schmitz, and M. Quintard (2004). Laminar flow in channels with wall suction or injection : a new model to study multi-channel filtration systems. *Chemical Engineering Science* 59(5), 1039 – 1051.
- Patankar (1980). *Numerical Heat Transfer And Fluid Flow*. Tay.
- Pedras, M. H. and M. J. de Lemos (2000). On the definition of turbulent kinetic energy for flow in porous media. *International Communications in Heat and Mass Transfer* 27(2), 211 – 220.
- Pedras, M. H. J. and M. J. S. de Lemos (2001). Macroscopic turbulence modeling for incompressible flow through undeformable porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 44(6), 1081 – 1093.
- Petre, C. F., F. Larachi, I. Iliuta, and B. P. A. Grandjean (2003). Pressure drop through structured packings : Breakdown into the contributing mechanisms by cfd modeling. *Chemical Engineering Science* 58(1), 163 – 177.
- Pinson, F., O. Gregoire, M. Quintard, M. Prat, and O. Simonin (2007). Modeling of turbulent heat transfer and thermal dispersion for flows in flat plate heat exchangers. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 50(7-8), 1500 – 1515.
- Pinson, F., O. Grégoire, and O. Simonin (2006). $k - \epsilon$ macro-scale modeling of turbulence based on a two scale analysis in porous media. *International Journal of Heat and Fluid Flow* 27(5), 955 – 966. <ce :title>Special issue of the 6th International Symposium on Engineering Turbulence Modelling and Measurements – ETMM6</ce :title>.
- Porter, K. E. and M. C. Jones (1963). A theoretical prediction of liquid distribution in a packed column with wall effect. *Trans. Instn Chem. Engrs* 41.
- Prat, M. (1989). On the boundary conditions at the macroscopic level. *Transport in Porous Media* 4, 259–280. 10.1007/BF00138039.
- Prenosil, J. (1973). Taylor diffusion in a laminar falling film. *Chemical Engineering Science* 28(9), 1763 – 1764.
- Quintard and Whitaker (1988). Two-phase flow in heterogeneous porous media : The method of large-scale averaging. *Transport in Porous Media*.
- Quintard, M., L. Bletzacker, D. Chenu, and S. Whitaker (2006). Nonlinear, multicomponent, mass transport in porous media. *Chemical Engineering Science* 61(8), 2643 – 2669.
- Quintard, M. and S. Whitaker (1994a). Convection, dispersion, and interfacial transport of contaminants : Homogeneous porous media. *Advances in Water Resources* 17(4), 221 – 239.

- Quintard, M. and S. Whitaker (1994b). Transport in ordered and disordered porous media i : The cellular average and the use of weighting functions. *Transport in Porous Media* 14, 163–177. 10.1007/BF00615199.
- Quintard, M. and S. Whitaker (1994c). Transport in ordered and disordered porous media ii : Generalized volume averaging. *Transport in Porous Media* 14, 179–206. 10.1007/BF00615200.
- Quintard, M. and S. Whitaker (1994d). Transport in ordered and disordered porous media iii : Closure and comparison between theory and experiment. *Transport in Porous Media* 15, 31–49. 10.1007/BF01046157.
- Quintard, M. and S. Whitaker (1996). Transport in chemically and mechanically heterogeneous porous media. i : Theoretical development of region-averaged equations for slightly compressible single-phase flow. *Advances in Water Resources* 19(1), 29 – 47.
- Quintard, M. and S. Whitaker (1998). Transport in chemically and mechanically heterogeneous porous media—iii. large-scale mechanical equilibrium and the regional form of darcy’s law. *Advances in Water Resources* 21(7), 617 – 629.
- Raats, P. A. C. and A. Klute (1968). Transport in soils : The balance of momentum. *Soil Science Society of America Journal* 32, 452–456.
- Rafati Saleh, A., S. H. Hosseini, S. Shojaee, and G. Ahmadi (2011). Cfd studies of pressure drop and increasing capacity in mellapakplus 752.y structured packing. *Chemical Engineering & Technology* 34(9), 1402–1412.
- Raynal, L., J.-P. Ballaguet, and C. Barrere-Tricca (2004). Determination of mass transfer characteristics of co-current two-phase flow within structured packing. *Chemical Engineering Science* 59(22-23), 5395 – 5402. <ce :title>ISCRE18</ce :title>.
- Raynal, L., C. Boyer, and J.-P. Ballaguet (2004). Liquid holdup and pressure drop determination in structured packing with cfd simulations. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 82(5), 871–879.
- Raynal, L., F. B. Rayana, and A. Royon-Lebeaud (2009). Use of cfd for co2 absorbers optimum design : from local scale to large industrial scale. *Energy Procedia* 1(1), 917 – 924. Greenhouse Gas Control Technologies 9, Proceedings of the 9th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-9), 16-20 November 2008, Washington DC, USA.
- Raynal, L. and A. Royon-Lebeaud (2007). A multi-scale approach for cfd calculations of gas-liquid flow within large size column equipped with structured packing. *Chemical Engineering Science* 62(24), 7196 – 7204. 8th International Conference on Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Reactor Engineering.
- Rocha, J. A., J. L. Bravo, and J. R. Fair (1993). Distillation columns containing structured

- packings : a comprehensive model for their performance. 1. hydraulic models. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 32(4), 641–651.
- Rocha, J. A., J. L. Bravo, and J. R. Fair (1996). Distillation columns containing structured packings : A comprehensive model for their performance. 2. mass-transfer model. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 35(5), 1660–1667.
- Roustan, M. (2004). Absorption en traitement d'air. *Techniques de l'Ingénieur*.
- Roy, S., A. Kemoun, M. H. Al-Dahhan, M. P. Dudukovic, T. B. Skourlis, and F. M. Dautzenberg (2004). Countercurrent flow distribution in structured packing via computed tomography. *Chemical Engineering and Processing* 44(1), 59 – 69.
- Ruyer-Quil, C. and P. Manneville (1998). Modeling film flows down inlined planes. *The European Physical Journal B* 6, 277–292.
- Ruyer-Quil, C. and P. Manneville (2000). Improved modeling of flows down inclined planes. *The European Physical Journal B* 15, 357–369.
- Ruyer-Quil, C. and P. Manneville (2002). Further accuracy and convergence results on the modeling of flows down inclined planes by weighted-residual approximations. *Physics of Fluids* 14, 170–183.
- Said, W., M. Nemer, and D. Clodic (2011). Modeling of dry pressure drop for fully developed gas flow in structured packing using cfd simulations. *Chemical Engineering Science* 66(10), 2107 – 2117.
- Sanchez-Palencia, E. (1980). *Non-homogeneous media and vibration theory*, Volume 127. New York : Springer.
- Shilkin, A. and E. Kenig (2005). A new approach to fluid separation modelling in the columns equipped with structured packings. *Chemical Engineering Journal* 110(1-3), 87 – 100.
- Sidi-Boumedine, R. and L. Raynal (2005). Influence of the viscosity on the liquid hold-up in trickle-bed reactors with structured packings. *Catalysis Today* 105(3–4), 673 – 679.
- Skjetne, E. and J.-L. Auriault (1999). High-velocity laminar and turbulent flow in porous media. *Transport in Porous Media* 36, 131–147. 10.1023/A :1006582211517.
- Skopp, J., W. Gardner, and E. Tyler (1981). Miscible displacement in structured soils : Two-region model with small interaction. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 45, 837–842.
- Slattery, J. C. (1967). Flow of viscoelastic fluids through porous media. *AIChE J.* 13, 1066–1071.

- Soulaine, C., G. Debenest, and M. Quintard (2011). Upscaling multi-component two-phase flow in porous media with partitioning coefficient. *Chemical Engineering Science* (0), –.
- Spiegel, L. and W. Meier (2003). Distillation columns with structured packings in the next decade. *Chemical Engineering Research and Design* 81(1), 39 – 47. International Conference on Distillation and Absorption.
- Stichlmair, J., J. L. Bravo, and J. R. Fair (1989). General model for prediction of pressure drop and capacity of countercurrent gas/liquid packed columns. *Gas Separation & Purification* 3(1), 19 – 28.
- Szulczewska, B., I. Zbicinski, and A. Górak (2003). Liquid flow on structured packing : Cfd simulation and experimental study. *Chemical Engineering & Technology* 26(5), 580–584.
- Taylor, R. and R. Krishna (1993). *Multicomponent mass transfer*. John Wiley & Sons, inc.
- Torres, F. E. (1987). Closure of the governing equations for immiscible, two-phase flow : A research comment. *Transport in Porous Media* 2, 383–393.
- Tung, V. and V. Dhir (1988). A hydrodynamic model for two-phase flow through porous media. *International Journal of Multiphase Flow* 14, 47–65.
- Valdès-Parada, F. J., J. A. Ochoa-Tapia, and J. Alvarez-Ramirez (2009). Validity of the permeability carman–kozeny equation : A volume averaging approach. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* 388(6), 789 – 798.
- Valluri, P., O. K. Matar, G. F. Hewitt, and M. Mendes (2005). Thin film flow over structured packings at moderate reynolds numbers. *Chemical Engineering Science* 60(7), 1965 – 1975.
- van Genuchten, M. T. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 44(5), 892–898.
- Van Leer, B. (1977). Towards the ultimate conservative scheme : Iv. a new approach to numerical convection. *J. Comp. Phys.* 23, 276–299.
- Viva, A., S. Aferka, D. Toye, P. Marchot, M. Crine, and E. Brunazzi (2011). Determination of liquid hold-up and flow distribution inside modular catalytic structured packings. *Chemical Engineering Research and Design In Press, Corrected Proof*, –.
- Weller, H. G., G. Tabor, H. Jasak, and C. Fureby (1998). A tensorial approach to computational continuum mechanics using object-oriented techniques. *COMPUTERS IN PHYSICS* 12.
- Whitaker, S. (1967). Diffusion and dispersion in porous media. *AICHE J.* 13, 420–427.
- Whitaker, S. (1986a). Flow in porous media i : A theoretical derivation of darcy’s law. *Transport in Porous Media* 1, 3–25. 10.1007/BF01036523.

- Whitaker, S. (1986b). Flow in porous media ii : The governing equations for immiscible two-phase flow. *Transport in Porous Media* 1, 105–125.
- Whitaker, S. (1987). The role of the volume-averaged temperature in the analysis of non-isothermal, multiphase transport phenomena. *Chem. Eng. Comm.* 58, 171–183.
- Whitaker, S. (1994). The closure problem for two-phase flow in homogeneous porous media. *Chemical Engineering Science* 49(5), 765 – 780.
- Whitaker, S. (1996). The forchheimer equation : A theoretical development. *Transport in Porous Media* 25, 27–61. 10.1007/BF00141261.
- Whitaker, S. (1999). *The Method of Volume Averaging*, Volume 13 of *Theory And Applications of Transport in Porous Media*. Kluwer Academic Publishers.
- Wilcox, D. C. (1994). *Turbulence Modeling for CFD*. DCW Industrie, Inc.
- Wilkinson, D. and J. F. Willemsen (1983). Invasion percolation : a new form of percolation theory. *J. Phys. A : Math. Gen.* 16, 3365–3376.
- Wodié, J.-C. and T. Lévy (1991). Correction non-linéaire de la loi de darcy. *C. R. Acad. Sci. Paris* 312, 157–161.
- Woerlee, G. F., J. Berends, Z. Olujić, and J. de Graauw (2001). A comprehensive model for the pressure drop in vertical pipes and packed columns. *Chemical Engineering Journal* 84(3), 367 – 379.
- Zarcone, C. and R. Lenormand (1994). Détermination expérimentale du couplage visqueux dans les écoulements diphasiques en milieu poreux. *Comptes Rendus de l'Académie Des Sciences* 318, 1429–1435.
- Zeman, L. and A. Zydney (1996). *Microfiltration and Ultrafiltration : Principles and Applications*. Marcel Dekker Inc.

Annexe A

Écoulement dans les milieux poreux bi-structurés saturés

L'article présenté dans cette annexe (et soumis à publication pour le journal *Chemical Engineering Science*) expose la théorie que nous avons développée pour simuler les écoulements dans les milieux poreux bi-structurés complètement saturés. Cette théorie a servi de base au modèle diphasique que nous présentons dans le Chapitre 4. La terminologie *matériaux bi-structurés* concerne les milieux comportant deux régions de caractéristiques physiques (porosité, perméabilité, tortuosité, etc.) différentes. Elle englobe les notions de milieux à double porosité ainsi que les milieux fracturés, c'est-à-dire à la fois fissurés et poreux. Elle permet également de qualifier certains dispositifs industriels comme les filtres à particules ou encore les garnissages structurés équipant des colonnes de distillation.

En raison de cette double structure, la loi de Darcy, qui permet habituellement d'évaluer les pertes de charge d'un fluide traversant un milieu poreux saturé à faible débit, peut s'avérer inadéquate. Des modèles plus élaborés distinguant les pressions et les vitesses moyennes dans chaque structure sont alors nécessaires pour une meilleure prédiction de l'écoulement. Le point de départ de cette étude théorique est un problème d'écoulement lent dans un milieu poreux, modélisé par un problème de Stokes. Le fluide est ensuite arbitrairement séparé en deux phases fictives, de propriétés physiques identiques, selon les régions dans lesquels il se situe. Les différentes variables (vitesses, pressions..) sont continues au niveau de la délimitation de ces deux pseudo-phases.

Les lois macroscopiques qui régissent un tel système sont obtenues en appliquant la méthode de la prise de moyenne volumique. Elles se présentent comme la combinaison de deux lois de Darcy régionales et de deux équations de continuité couplées par un terme d'échange entre les deux phases fictives. Ce taux de transfert de masse s'exprime comme un écart de pres-

sion moyenne. L'association des équations de quantité de mouvement moyennée aux équations de conservation de la masse donne un modèle à deux équations en pression couplées, du type Barenblatt and Zheltov dérivé empiriquement par Barenblatt et al. (1960) et démontré ensuite par Quintard and Whitaker (1996) à partir d'un double changement d'échelle. Le passage du problème microscopique aux équations macroscopiques étant effectué à partir d'un seul changement d'échelle, la présente étude étend donc le modèle de Barenblatt et al. (1960) à des échelles plus petites. Les paramètres effectifs de ces équations macroscopiques, comme les tenseurs de perméabilités régionales et le coefficient d'échange, sont entièrement déterminés à partir de trois problèmes de fermeture résolus sur un volume élémentaire représentatif. La théorie a été appliquée avec succès à l'étude d'un filtre à particule simplifié.

A two-pressure model for slightly compressible single phase flow in bi-structured porous media

Received 04 June 2012 ; accepted after revision ??

abstract

Problems involving flow in porous media are ubiquitous in many natural and engineered systems. Mathematical modeling of such systems often relies on homogenization of pore-scale equations and macroscale continuum descriptions. For single phase flow, Stokes equations at the pore-scale are generally approximated by Darcy's law at a larger scale. In this work, we develop an alternative model to Darcy's law that can be used to describe slightly compressible single phase flow within bi-structured porous media. We use the method of volume averaging to upscale mass and momentum balance equations with the fluid phase split into two fictitious domains. The resulting macroscale model combines two coupled equations for average pressures with *regional* Darcy's laws for velocities. In these equations, effective parameters are expressed via integrals of mapping variables that solve boundary value problems over a representative unit cell. Finally, we illustrate the behaviour of these equations for a two-dimensional model porous medium and validate our approach by comparing solutions of the homogenized equations with computations of the exact microscale problem.

A.1 Introduction

Porous media are intrinsically highly complex materials, with the consequence that transport phenomena generally occur over a broad spectrum of spatial and temporal scales. Even for single phase flow, this variety of characteristic time and length scales may preclude the use of a one-equation continuum representation. For instance, the advection and diffusion of a single species in a system with stagnant zones or dead-end pores is better represented macroscopically by a two-equation model in which the species concentration is divided into mobile and immobile fractions (Coats and Smith (1964)). In many applications, the porous medium itself exhibits a distinct two-region topology, e.g., as a consequence of a contrast of porosity or a difference in the pore structure geometry. Herein, we will use the term bi-structured to describe these porous media; a term which represents a more general definition than the traditional dual-media or dual-porosity terminology. With this definition, one may differentiate each region according to a number of different properties including the topology of the fluid flow. For example, in fractured media, the fractures represent a zone of preferential flow whereas the amplitude of the velocity field in the matrix blocks is often orders of magnitude smaller. In the literature, solute

transport in such systems is often described using mobile/immobile models. Rapid advective transport in the mobile domain is accompanied by diffusive mass transfer of the solute in the immobile domains. This contrast of time scales may strongly impact the concentration field and it is well known that breakthrough curves, in such configurations, typically exhibit strong tailing effects.

More generally, if time and length scales characterizing the two regions differ significantly, non-equilibrium models may be mandatory. An example of one such model is a generic two-equation formulation (see Coats and Smith (1964); Brusseau and Rao (1990)) in which average concentrations are defined over each region separately. In this model, each equation involves the average velocity within each region; velocity fields that are also known as "regional velocities". The situation simplifies for mobile/immobile systems since the regional velocity of one region is negligible and, therefore, the net superficial velocity corresponds to the superficial velocity of the mobile region. However, bi-structured systems are not necessarily of the mobile/immobile type. If advection cannot be neglected in the slower region, a mobile/mobile model (Skopp et al. (1981); Gerke and VanGenuchten (1993); Ahmadi et al. (1998); Cherblanc et al. (2003)) with two different regional velocities may be necessary. In practice, experimental measurements of these regional velocities are difficult and one can often access only the total imposed filtration velocity. Regional velocities may therefore be determined indirectly by inverse optimization techniques, although such approaches will be primarily useful in large-scale 1D cases. For interpreting a complete 3D macroscale problem, the momentum transport equations are needed along with mass transport equations. This issue has been addressed theoretically in Quintard and Whitaker (1996) using the volume averaging technique. In this cited paper, large-scale momentum transport equations are determined via a two-step upscaling procedure : Stokes equations are first averaged to obtain a Darcy-scale description within each region and, then, a regional averaging is performed in order to obtain the large-scale equations. This was done in Quintard and Whitaker (1996) for the flow of a slightly compressible fluid and led to a large-scale two-equation model involving two average pressures ; a result thus generalizing the classical two-equation model of Barenblatt and Zheltov (Barenblatt et al. (1960)). Further, average velocities can be determined via regional Darcy's laws in which regional permeability tensors are expressed as integrals of mapping variables that solve the so-called closure problems as detailed in Quintard and Whitaker (1998).

There are many industrial applications involving bi-structured porous media where it may be useful to split the flow of a single phase into two coupled continuum equations. This is the case, for instance, in tangential filters in which two sets of channels are exchanging via small holes or porous walls (Belfort et al. (1994); Zeman and Zydny (1996); Oxarango et al. (2004)). Recently, in an attempt to model the liquid distribution within structured packings used in chemical engineering processes, Mahr and Mewes (2008) have found convenient to split the

(physically homogeneous) liquid phase into two fictitious phases. This approach was motivated by the fact that the structured packings are made of an assembly of corrugated sheets where two-adjacent sheets are inclined by a given angle with respect to the vertical axis and the opposite of this angle, respectively. As a consequence, the liquid phase behaves as if split into two pseudo-phases flowing along each sheet with a preferential direction. These phases are not (except perhaps at very low saturation) completely independent since adjacent sheets are in contact and the liquid can flow from one sheet to the other. In the paper referenced above, this transfer between the two liquid phases is treated using a heuristic function involving the difference between the volume fraction of fluid in each phase. Although theoretical arguments based on a volume averaging theory are discussed by the authors, the developments are at some point heuristic and we believe that a complete theoretical derivation of the macroscale models is still necessary. The goal of this paper is to devise such a macroscale theory in the case of a fully saturated porous medium.

The paper is organized as follows. In Section A.2, we present the equations that govern the fluid motion through a bi-structured porous medium. The flow of the single phase is divided into two fictitious phases defined by the topology of the problem. In Section A.3, we derive Darcy's law as a pedagogical exercise that facilitates later comparison with the two-pressure model. In Section A.4, we present theoretical developments for the derivation of the two-pressure model with phase splitting. In Section A.5, we solve numerically the flow through a simplified particulate filter using Darcy's law and the two-pressure model. The macroscale models are then compared with direct numerical simulations of the pore-scale problem in the absence of adjustable parameters.

A.2 Preliminaries

In this Section, we present the pore-scale mass and momentum transport equations, the two-phase splitting methodology and several preliminary results concerning the averaging method.

A.2.1 Pore-scale problem

Herein, we will use the index α to denote the fluid phase (domain V_α) and σ to denote the solid phase. The mass balance equation in the fluid phase can be expressed as the following partial differential equation

$$\frac{\partial \rho_\alpha}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\alpha \mathbf{v}_\alpha) = 0, \quad \text{in } V_\alpha, \quad (\text{A.1})$$

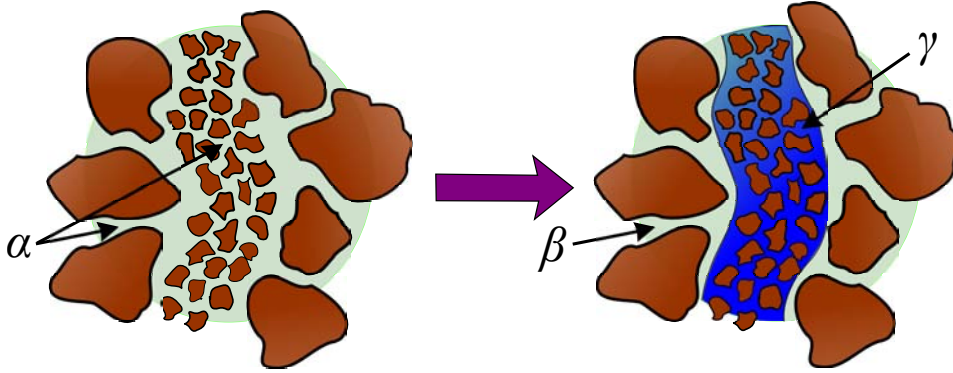


FIGURE A.1: Schematic representation of a model bi-structured porous medium. In this example, the average amplitude of the flow within the γ -region is significantly larger than the average amplitude of the flow within the β -region. Therefore, the α -phase may be split into two fictitious phases, β and γ , for upscaling purposes.

where ρ_α is the density in the α -phase and \mathbf{v}_α is the velocity field. Further, we will focus on laminar conditions; so that the momentum balance equation simplifies to the following Stokes equation

$$0 = -\nabla p_\alpha + \rho_\alpha \mathbf{g} + \mu \nabla^2 \mathbf{v}_\alpha, \quad \text{in } V_\alpha, \quad (\text{A.2})$$

where p_α is the pressure, \mathbf{g} the gravitational acceleration and μ is the dynamic viscosity. At the fluid-solid interface, $\mathcal{A}_{\alpha\sigma}$, we impose the no-slip boundary condition

$$\mathbf{v}_\alpha = 0, \quad \text{at } \mathcal{A}_{\alpha\sigma}. \quad (\text{A.3})$$

A.2.2 Phase splitting

As discussed in the Introduction of this paper, we are interested in bi-structured porous media that typically exhibit a bi-modal distribution of one of the flow properties, e.g., the amplitude or direction of the velocity field, as illustrated in Fig A.2.1. This topology suggests that splitting the phase (α) into two fictitious domains (γ) and (β) may be a useful operation. Further, we will consider that these regions are static and can be defined arbitrarily (although there is probably an optimal way to split the domain).

Eq (A.1) yields

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_i \mathbf{v}_i) = 0, \quad \text{in } V_i, \quad \text{with } i = \beta \text{ or } \gamma. \quad (\text{A.4})$$

Similarly, Stokes equation may be written as

$$0 = -\nabla p_i + \rho_i \mathbf{g} + \mu \nabla^2 \mathbf{v}_i, \text{ in } V_i, \quad i = \beta \text{ or } \gamma. \quad (\text{A.5})$$

Since we are considering the same fluid within phases (γ) and (β), we have identical physical properties on both sides of the boundary $\mathcal{A}_{\beta\gamma}$. For instance, we have considered that the viscosity, μ , is constant and the density obeys the same thermodynamical laws in phases (γ) and (β) (see details in Section A.2.4 in the case of a slightly compressible fluid).

The no-slip boundary condition on the fluid/solid surface area, $\mathcal{A}_{i\sigma}$, supplies

$$\mathbf{v}_i = 0, \text{ at } \mathcal{A}_{i\sigma}, \quad i = \beta \text{ or } \gamma. \quad (\text{A.6})$$

On the interface between the two fluid phases, $\mathcal{A}_{\beta\gamma}$, we will use continuity conditions for the velocity and pressures :

$$\mathbf{v}_\beta = \mathbf{v}_\gamma, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (\text{A.7})$$

and

$$p_\beta = p_\gamma, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \quad (\text{A.8})$$

A priori, the boundary conditions, Eqs (A.7) and (A.8), suggest that a two-equation model with an exchange term based on averaged pressures and/or velocities differences may be adapted to the macroscale description of this system.

A.2.3 Definitions and theorems

In this Section, we present the definitions and theorems that are needed to perform volume averaging. We will only give a brief outline of the technique and the reader is referred to Whitaker (1999) for a more detailed presentation.

For a tensor ψ_i (order 0, 1 or 2) defined in the i -phase, we will use the average notation

$$\langle \psi_i \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_i} \psi_i dV, \quad (\text{A.9})$$

and the corresponding *intrinsic* average,

$$\langle \psi_i \rangle^i = \frac{1}{V_i} \int_{V_i} \psi_i dV. \quad (\text{A.10})$$

These two expressions are connected by

$$\langle \psi_i \rangle = \varepsilon_i \langle \psi_i \rangle^i, \text{ with } \varepsilon_i = \frac{V_i}{V}, \quad (\text{A.11})$$

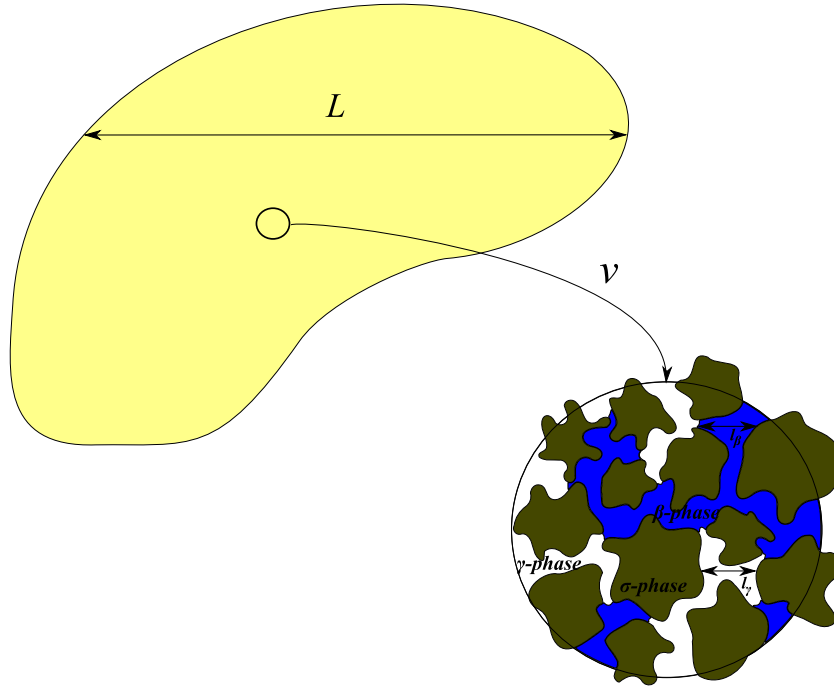


FIGURE A.2: Schematic representation of the hierarchy of length scales of a model porous medium and of a typical representative volume. This figure illustrates the three characteristic length-scales that are involved in this system : (1) the macroscale, L ; (2) the radius of the averaging volume, R ; and (3) the average pore size for regions γ and β , l_γ and l_β . Throughout this paper, we use the following assumption : $\ell \ll R \ll L$.

where V_i is the volume of the i -phase and ε_i is the volume fraction of the i -phase. Throughout this paper, the porous medium is homogeneous and ε_i is constant.

To perform the perturbation analysis, we will use Gray's decomposition (see in Gray (1975)) :

$$\psi_i = \langle \psi_i \rangle^i + \tilde{\psi}_i, \tag{A.12}$$

and we will impose the following separation of length scales, $\ell \ll R \ll L$, which yields (see in Whitaker (1999)) :

$$\langle \tilde{\psi}_i \rangle = 0. \tag{A.13}$$

To interchange integrals and derivatives, we will use the following theorems. For spatial averaging, we have

$$\langle \nabla \psi_i \rangle = \nabla \langle \psi_i \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \psi_i dA, \tag{A.14}$$

and a similar expression for the divergence of a tensor field \mathbf{A}_i (order 1 or 2),

$$\langle \nabla \cdot \mathbf{A}_i \rangle = \nabla \cdot \langle \mathbf{A}_i \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{A}_i dA. \tag{A.15}$$

In these theorems, \mathcal{A}_i denotes all the interfaces in contact with the i -phase and \mathbf{n}_i is the outwards normal vector. On averaging over the phase (α), this theorem reads

$$\langle \nabla \psi_\alpha \rangle = \nabla \langle \psi_\alpha \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_{\alpha\sigma} \psi_\alpha dA. \quad (\text{A.16})$$

On averaging over the phases (β) or (γ), the interface \mathcal{A}_i contains both the fluid/solid and fluid/fluid interfaces. Consequently, Eq (A.14) may be written as

$$\langle \nabla \psi_\beta \rangle = \nabla \langle \psi_\beta \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \psi_\beta dA + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \psi_\beta dA. \quad (\text{A.17})$$

Finally, we will use the following simplifications. We will consider that the volume fractions are constant, so that

$$\nabla \varepsilon_i = -\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i dA = 0, \quad (\text{A.18})$$

and that the interfaces are static, so that

$$\left\langle \frac{\partial \psi_i}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle \psi_i \rangle}{\partial t}. \quad (\text{A.19})$$

A.2.4 Slightly compressible approximation and thermodynamics

Throughout this paper, we will work under isothermal conditions so that the pressure completely defines the thermodynamical state of the system. We will consider that the fluid density can be written as a function of the pressure,

$$\rho_\alpha = F(p_\alpha). \quad (\text{A.20})$$

Further, on injecting Eq (A.12) into Eq (A.20) and assuming that perturbations remain small enough to perform a zeroth order approximation, we obtain the following macroscale relationship

$$\langle \rho_\alpha \rangle^\alpha = F(\langle p_\alpha \rangle^\alpha). \quad (\text{A.21})$$

Similar developments have been proposed previously, see for example in Whitaker (1987) and Quintard and Whitaker (1996).

In this work, we neglect non-linear density variations and write

$$\langle \rho_\alpha \rangle^\alpha = \rho^0 [1 + c (\langle p_\alpha \rangle^\alpha - p^0)], \quad (\text{A.22})$$

where p^0 is a reference pressure; ρ^0 is the corresponding reference density; and c is a compress-

sibility coefficient given by

$$c = \frac{1}{\rho^0} \left(\frac{\partial F}{\partial p} \right)_{p=p^0}, \quad \text{with } \rho^0 = F(p^0). \quad (\text{A.23})$$

Following Quintard and Whitaker (1996), we simplify notations using hydrostatic pressures,

$$P_\alpha = p_\alpha - p^0 + \rho^0 \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}_\alpha, \quad (\text{A.24})$$

where \mathbf{r}_α is the position vector. With these definitions, we remark that

$$\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma = \langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma. \quad (\text{A.25})$$

Further, as shown in Quintard and Whitaker (1996) for disordered porous media, we have

$$\nabla \langle P_\alpha \rangle^\alpha = \nabla \langle p_\alpha \rangle^\alpha - \rho^0 \mathbf{g}. \quad (\text{A.26})$$

On using Eq (A.22) into Eq (A.26), we obtain

$$\nabla \langle P_\alpha \rangle^\alpha = \nabla \langle p_\alpha \rangle^\alpha - \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \mathbf{g} + \rho^0 c (\langle p_\alpha \rangle^\alpha - p^0) \mathbf{g}. \quad (\text{A.27})$$

We further simplify these equations by limiting our study to slightly compressible fluids, defined here by the following inequalities

$$c (\langle p_\alpha \rangle^\alpha - p^0) \ll 1 \quad \text{and} \quad \rho^0 c (\langle p_\alpha \rangle^\alpha - p^0) \mathbf{g} \ll \nabla \langle P_\alpha \rangle^\alpha. \quad (\text{A.28})$$

Consequently, we will approximate Eq (A.26) using

$$\nabla \langle P_\alpha \rangle^\alpha \approx \nabla \langle p_\alpha \rangle^\alpha - \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \mathbf{g}. \quad (\text{A.29})$$

Following a similar approach, the evolution rates can also be approximated as

$$\frac{\partial \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha}{\partial t} = c \rho^0 \frac{\partial \langle p_\alpha \rangle^\alpha}{\partial t} = c \rho^0 \frac{\partial \langle P_\alpha \rangle^\alpha}{\partial t}. \quad (\text{A.30})$$

A.3 One-pressure model (Darcy's law)

In this Section, we will very briefly present results obtained in Whitaker (1986b) which led to the derivation of the one-pressure model, i.e., Darcy's law. Our goal, here, is to facilitate the comparison between Darcy's law and the two-pressure model developed in the next Section.

A.3.1 Volume averaging

To obtain the macroscale equations, we average Eqs (A.1) and (A.2). For the mass balance equation, it yields

$$\frac{\partial \langle \rho_\alpha \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \rho_\alpha \mathbf{v}_\alpha \rangle = 0. \quad (\text{A.31})$$

Stokes equation becomes

$$0 = -\nabla \langle p_\alpha \rangle + \langle \rho_\alpha \rangle \mathbf{g} + \mu \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle + \mu \nabla \cdot \left(\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_\alpha} \mathbf{n}_\alpha \mathbf{v}_\alpha dA \right) + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_{\alpha\sigma} \cdot (-p_\alpha \mathbf{I} + \mu \nabla \mathbf{v}_\alpha) dA. \quad (\text{A.32})$$

To facilitate solution, we combine the perturbation decomposition, Eq (A.12), the average relations, Eq (A.11), the scale constraints, $\ell \ll R \ll L$, and the thermodynamical relationships, to obtain the following two equations (for further details, see in Whitaker (1986b)) :

$$\frac{\partial \varepsilon_\alpha \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\alpha \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha) + \nabla \cdot \langle \tilde{\rho}_\alpha \tilde{\mathbf{v}}_\alpha \rangle = 0, \quad (\text{A.33})$$

and

$$0 = -\nabla \langle p_\alpha \rangle^\alpha + \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \mathbf{g} + \mu \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha + \frac{\varepsilon_\alpha^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_{\alpha\sigma} \cdot (-\tilde{p}_\alpha \mathbf{I} + \mu \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\alpha) dA. \quad (\text{A.34})$$

In addition, we will assume that deviations of the density are relatively small, $\tilde{\rho}_\alpha \ll \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha$, and that the Brinkman's term, $\mu \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha$, can be neglected. These assumptions supply

$$\varepsilon_\alpha \frac{\partial \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha}{\partial t} + \nabla \cdot (\langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha) = 0, \quad (\text{A.35})$$

and

$$0 = -\nabla \langle p_\alpha \rangle^\alpha + \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \mathbf{g} + \frac{\varepsilon_\alpha^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_{\alpha\sigma} \cdot (-\tilde{p}_\alpha \mathbf{I} + \mu \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\alpha) dA. \quad (\text{A.36})$$

A.3.2 Deviations

Rearranging Eq (A.12) in the form $\tilde{\psi}_i = \psi_i - \langle \psi_i \rangle^i$ suggests that the initial boundary value problem that describes the behaviour of the perturbations can be obtained by subtracting Eqs (A.33)-(A.34) from Eqs (A.1)-(A.2), respectively. On assuming quasi-stationarity of $\tilde{\rho}_\alpha$ and imposing $\tilde{\rho}_\alpha \ll \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha$, the continuity equation yields

$$\nabla \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\alpha = 0, \quad \text{in } V_\alpha, \quad (\text{A.37})$$

and the original Stokes problem may be written as

$$0 = -\nabla \tilde{p}_\alpha + \mu \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_\alpha - \frac{\varepsilon_\alpha^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_\alpha \cdot (-\tilde{p}_\alpha \mathbf{I} + \mu \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\alpha) dA, \quad \text{in } V_\alpha, \quad (\text{A.38})$$

with the no-slip boundary condition giving

$$\tilde{\mathbf{v}}_\alpha = -\langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha, \quad \text{at } \mathcal{A}_{\alpha\sigma}. \quad (\text{A.39})$$

Given the linearity of the above spatial operators, we can decompose the deviation fields for the velocity and pressure as

$$\tilde{\mathbf{v}}_\alpha = \mathbf{A}_\alpha \cdot \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha, \quad (\text{A.40})$$

$$\tilde{p}_\alpha = \mu \mathbf{a}_\alpha \cdot \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha. \quad (\text{A.41})$$

We will refer to the tensor fields \mathbf{A}_α and \mathbf{a}_α as closure parameters or mapping tensors. Substituting Eqs (A.40) and (A.41) into Eqs (A.37) and (A.38), we obtain the following boundary value problem

$$\nabla \cdot \mathbf{A}_\alpha = 0, \quad \text{in } V_\alpha, \quad (\text{A.42})$$

$$0 = -\nabla \mathbf{a}_\alpha + \nabla^2 \mathbf{A}_\alpha + \varepsilon_\alpha \mathbf{K}_\alpha^{-1}, \quad \text{in } V_\alpha, \quad (\text{A.43})$$

$$\mathbf{A}_\alpha = -\mathbf{I}, \quad \text{at } \mathcal{A}_{\alpha\sigma}, \quad (\text{A.44})$$

where we have used the definition

$$\varepsilon_\alpha \mathbf{K}_\alpha^{-1} = -\frac{\varepsilon_\alpha^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\alpha\sigma}} \mathbf{n}_\alpha \cdot (-\mathbf{l}\mathbf{a}_\alpha + \nabla \mathbf{A}_\alpha) dA. \quad (\text{A.45})$$

We will assume that the porous medium structure can be represented locally by a periodic geometry, which leads us to introduce the following periodicity conditions,

$$\mathbf{A}_\alpha(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{A}_\alpha(\mathbf{r}) \quad \text{and} \quad \mathbf{a}_\alpha(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{a}_\alpha(\mathbf{r}) \quad \text{with} \quad k = 1, 2, 3, \quad (\text{A.46})$$

In addition we impose zero-average constraints,

$$\langle \mathbf{A}_\alpha \rangle = 0 \quad \text{and} \quad \langle \mathbf{a}_\alpha^0 \rangle = 0, \quad (\text{A.47})$$

to ensure that the averages of deviations is zero.

For computational purposes, this integro-differential formulation can be simplified to develop a purely differential form where \mathbf{K}_α^{-1} disappears (see .1).

A.3.3 Macroscale equations

Using Eqs (A.40) and (A.41) into Eq (A.36) yields

$$0 = -\nabla \langle p_\alpha \rangle^\alpha + \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \mathbf{g} - \mu \varepsilon_\alpha \mathbf{K}_\alpha^{-1} \cdot \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle^\alpha, \quad (\text{A.48})$$

which can be rearranged to form Darcy's law :

$$\langle \mathbf{v}_\alpha \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\alpha}{\mu} \cdot (\nabla \langle p_\alpha \rangle^\alpha - \langle \rho_\alpha \rangle^\alpha \mathbf{g}). \quad (\text{A.49})$$

This may be written, with the hydrostatic pressure defined in Section A.2.4, as

$$\langle \mathbf{v}_\alpha \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\alpha}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\alpha \rangle^\alpha. \quad (\text{A.50})$$

We consider the thermodynamical constraint Eq (A.28) and the relation Eq (A.30), to obtain

$$c \frac{\partial \langle P_\alpha \rangle^\alpha}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\alpha \rangle = 0. \quad (\text{A.51})$$

Finally, combining Darcy's law with the continuity equation gives the following one-pressure

equation

$$c \frac{\partial \langle P_\alpha \rangle^\alpha}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_\alpha}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\alpha \rangle^\alpha \right). \quad (\text{A.52})$$

A.4 Two-pressure model

In this Section, balance equations are averaged over each region separately (see Section A.2.2). The upscaling technique itself is very similar to the one presented above for the derivation of Darcy's law, except that our equations involve additional boundaries and source terms.

A.4.1 Volume averaging

Averaging Eq (A.4) leads to the following macroscale equation

$$\frac{\partial \langle \rho_i \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \rho_i \mathbf{v}_i \rangle + \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_i \cdot \rho_i \mathbf{v}_i dA = 0, \quad (\text{A.53})$$

where we have used the index i to represent either the phase γ or β . In this equation, we have simplified the interface integral by using the no-slip boundary condition on $\mathcal{A}_{i\sigma}$. For the momentum balance equation, averaging Eq (A.5) leads to (see Whitaker (1986a,b, 1994) for more details)

$$0 = -\nabla \langle p_i \rangle^i + \langle \rho_i \rangle^i \mathbf{g} + \mu \nabla^2 \langle \mathbf{v}_i \rangle^i + \frac{\varepsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \cdot (-\tilde{p}_i \mathbf{l} + \mu \nabla \tilde{\mathbf{v}}_i) dA, \quad \text{where } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.54})$$

An important feature of this splitting operation is that both regions may exchange mass. This flux between the two regions is characterized by the quantity \dot{m} , which is defined by

$$\dot{m} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \rho_\beta \mathbf{v}_\beta dA = -\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \rho_\gamma \mathbf{v}_\gamma dA. \quad (\text{A.55})$$

We can further expand this expression using the average-perturbation decomposition to obtain

$$\dot{m} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \tilde{\rho}_\beta \tilde{\mathbf{v}}_\beta dA + \frac{\langle \rho_\beta \rangle^\beta}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\beta dA + \left(\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \tilde{\rho}_\beta dA \right) \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta. \quad (\text{A.56})$$

Formally, one should keep all terms involving $\tilde{\rho}_i$ and link these perturbations to average values during the closure process. However, similarly to what was done for Darcy's law, we will facilitate the analysis by imposing the order of magnitude slightly compressible constraint $\tilde{\rho}_i \ll \langle \rho_i \rangle^i$

and neglecting terms involving $\tilde{\rho}_i$. With these considerations, the mass exchange rate may be expressed as

$$\dot{m} = \frac{\rho^0}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\beta dA = -\frac{\rho^0}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\gamma dA. \quad (\text{A.57})$$

Using the above expressions in conjunction with Eq (A.30), we obtain the two coupled continuity equations

$$c \frac{\partial \langle P_\beta \rangle^\beta}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta = -\varepsilon_\beta^{-1} \frac{\dot{m}}{\rho^0}, \quad (\text{A.58})$$

$$c \frac{\partial \langle P_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma = \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{\dot{m}}{\rho^0}. \quad (\text{A.59})$$

At this point of the developments, we have obtained the macroscale equations that describe mass and momentum transport within bi-structured porous media. However, these equations are not in a closed form since Eqs (A.58)-(A.59) and (A.54) contain terms involving the velocity and pressure fluctuations, \tilde{p}_i and $\tilde{\mathbf{v}}_i$. In order to eliminate these quantities from the macroscale equations, we will follow a procedure based on closure variable decompositions (similar to Darcy's law derivation).

A.4.2 Deviations

The first step towards solution is to determine the boundary value problems that describe the perturbations behaviour. This may be done by subtracting Eq (A.58) from Eq (A.4) in order to obtain

$$\nabla \cdot \tilde{\mathbf{v}}_i = \frac{\varepsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \cdot \tilde{\mathbf{v}}_i dA, \quad \text{in } V_i, \quad \text{where } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.60})$$

In this equation, we have neglected terms involving $\tilde{\rho}_i$. We remark that, in the upscaling literature, most derivations make the assumption that mass exchange can be neglected at the microscale and, therefore, \dot{m} may be discarded in these developments. For instance, this is the case in Whitaker (1986b), Whitaker (1994), Lasseux et al. (1996) and Lasseux et al. (2008) in which the right-hand side of Eq (A.60) has been eliminated. In this work, our goal is to develop a model that may be used to describe mass exchange processes so that we have kept these terms in the developments.

We can use a similar procedure for the momentum balance equation. This is done by subtracting Eq (A.34) from Eq (A.5) and neglecting higher order terms. The result of this

operation is

$$0 = -\nabla \tilde{p}_i + \mu \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_i - \frac{\varepsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \cdot (-\tilde{p}_i \mathbf{l} + \mu \nabla \tilde{\mathbf{v}}_i) dA, \quad \text{in } V_i \text{ with } i = \beta, \gamma, \quad (\text{A.61})$$

and the no-slip boundary condition reads

$$\tilde{\mathbf{v}}_i = -\langle \mathbf{v}_i \rangle^i \quad \text{at } \mathcal{A}_{i\sigma}, \quad i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.62})$$

Continuity conditions for pressures and velocities at the interface $\mathcal{A}_{\beta\gamma}$ supply

$$\tilde{\mathbf{v}}_\beta = \tilde{\mathbf{v}}_\gamma - \left(\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta - \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad \text{at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (\text{A.63})$$

$$\tilde{p}_\beta = \tilde{p}_\gamma - \left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad \text{at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \quad (\text{A.64})$$

To ensure uniqueness of solutions, we impose the solvability condition

$$\langle \tilde{\mathbf{v}}_i \rangle^i = 0 \quad \text{and} \quad \langle \tilde{p}_i \rangle^i = 0, \quad \text{with } i = \beta, \gamma, \quad (\text{A.65})$$

and use local periodic conditions for the deviations

$$\tilde{\mathbf{v}}_i(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \tilde{\mathbf{v}}_i(\mathbf{r}) \quad \text{and} \quad \tilde{p}_i(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \tilde{p}_i(\mathbf{r}), \quad \text{with } i = \beta, \gamma \quad \text{and } k = 1, 2, 3. \quad (\text{A.66})$$

At this stage, we may identify three macroscale source terms in the above boundary value problem ($\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta$, $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$ and $\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma$). Given the linearity of the spatial operators, we can express velocity perturbations as

$$\tilde{\mathbf{v}}_\beta = \mathbf{A}_{\beta\beta} \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta + \mathbf{A}_{\beta\gamma} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \frac{\mathbf{B}_\beta}{\mu} \left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad (\text{A.67})$$

and

$$\tilde{\mathbf{v}}_\gamma = \mathbf{A}_{\gamma\beta} \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta + \mathbf{A}_{\gamma\gamma} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \frac{\mathbf{B}_\gamma}{\mu} \left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma \right). \quad (\text{A.68})$$

A similar decomposition for pressure perturbations can be written as

$$\tilde{p}_\beta = \mu \left[\mathbf{a}_{\beta\beta} \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta + \mathbf{a}_{\beta\gamma} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right] + b_\beta \left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad (\text{A.69})$$

$$\tilde{p}_\gamma = \mu \left[\mathbf{a}_{\gamma\beta} \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta + \mathbf{a}_{\gamma\gamma} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right] + b_\gamma \left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma \right). \quad (\text{A.70})$$

Similarly to Darcy's law, we will refer to \mathbf{A}_{ij} , \mathbf{B}_i , \mathbf{a}_{ij} and b_i as mapping or closure variables. In these equations, \mathbf{A}_{ij} are second order tensors; \mathbf{B}_i and \mathbf{a}_{ij} are first order tensors; and b_i are scalars. For simplicity, we have used notations similar to those adopted in Whitaker (1994) and Lasseux et al. (1996). We will see in Section A.4.4 and .2.1 that connections exist between these works and the present study; so that the corresponding boundary value problems can be expressed in a similar form and readily compared.

A.4.3 Equations for the closure variables

At this point, we have obtained an explicit decomposition of the perturbations that can be substituted into Eqs (A.67) to (A.70) and into Eqs (A.60) to (A.66) in order to decouple the mapping variables from the macroscale equations. Assuming linear independence of the source terms, we can collect terms involving $\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta$, $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$ and $\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma$ separately. The corresponding boundary value problems are detailed below.

Mapping onto $\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta$ and $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$

Identification of terms involving $\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta$ yields

Problem I

$$0 = -\nabla \mathbf{a}_{i\beta} + \nabla^2 \mathbf{A}_{i\beta} - \frac{\varepsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \cdot (-\mathbf{l}_{i\beta} + \nabla \mathbf{A}_{i\beta}) dA, \quad \text{in } V_i, \quad \text{with } i = \beta, \gamma, \quad (\text{A.71})$$

and

$$\nabla \cdot \mathbf{A}_{i\beta} = \frac{\varepsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\beta}} \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{A}_{i\beta} dA, \quad \text{in } V_i, \quad \text{with } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.72})$$

The boundary conditions may be written as

$$\mathbf{A}_{\beta\beta} = -\mathbf{I}, \quad \text{at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (\text{A.73})$$

$$\mathbf{A}_{\gamma\beta} = 0, \quad \text{at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (\text{A.74})$$

$$\mathbf{A}_{\beta\beta} = \mathbf{A}_{\gamma\beta} - \mathbf{I}, \quad \text{at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (\text{A.75})$$

and

$$\mathbf{a}_{\beta\beta} = \mathbf{a}_{\gamma\beta}, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \quad (\text{A.76})$$

To ensure uniqueness of solutions, we also have the periodicity conditions

$$\mathbf{A}_{i\beta}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{A}_{i\beta}(\mathbf{r}) \text{ and } \mathbf{a}_{i\beta}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{a}_{i\beta}(\mathbf{r}) \text{ with } i = \beta, \gamma \text{ and } k = 1, 2, 3, \quad (\text{A.77})$$

and the solvability conditions

$$\langle \mathbf{A}_{i\beta} \rangle^i = 0 \text{ and } \langle \mathbf{a}_{i\beta} \rangle^i = 0 \text{ with } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.78})$$

Similarly, identification of terms involving $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$ yields

Problem II

$$0 = -\nabla \mathbf{a}_{i\gamma} + \nabla^2 \mathbf{A}_{i\gamma} - \frac{\varepsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \cdot (-\mathbf{l} \mathbf{a}_{i\gamma} + \nabla \mathbf{A}_{i\gamma}) dA, \text{ in } V_i, \text{ with } i = \beta, \gamma, \quad (\text{A.79})$$

and

$$\nabla \cdot \mathbf{A}_{i\gamma} = \frac{\varepsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_{\gamma\beta}} \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{A}_{i\gamma} dA, \text{ in } V_i, \text{ with } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.80})$$

The boundary conditions may be written as

$$\mathbf{A}_{\beta\gamma} = 0, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\sigma}, \quad (\text{A.81})$$

$$\mathbf{A}_{\gamma\gamma} = -\mathbf{l}, \text{ at } \mathcal{A}_{\gamma\sigma}, \quad (\text{A.82})$$

$$\mathbf{A}_{\beta\gamma} = \mathbf{A}_{\gamma\gamma} + \mathbf{l}, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (\text{A.83})$$

and

$$\mathbf{a}_{\beta\gamma} = \mathbf{a}_{\gamma\gamma}, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \quad (\text{A.84})$$

To ensure uniqueness of solutions, we also have the periodicity conditions

$$\mathbf{A}_{i\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{A}_{i\gamma}(\mathbf{r}) \text{ and } \mathbf{a}_{i\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{a}_{i\gamma}(\mathbf{r}) \text{ with } i = \beta, \gamma \text{ and } k = 1, 2, 3, \quad (\text{A.85})$$

and the solvability conditions

$$\langle \mathbf{A}_{i\gamma} \rangle^i = 0; \quad \langle \mathbf{a}_{i\gamma} \rangle^i = 0 \quad \text{with } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.86})$$

Apart from the additional exchange terms in the continuity equations, these closure problems are similar to those derived by Whitaker (1994) in the case of two-phase flow in homogeneous porous media. Following this paper, we define permeabilities \mathbf{K}_β and \mathbf{K}_γ and coupling tensors $\mathbf{K}_{\gamma\beta}$ and $\mathbf{K}_{\beta\gamma}$ as

$$\varepsilon_\beta \mathbf{K}_\beta^{-1} = -\frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot (-\mathbf{l}\mathbf{a}_{\beta\beta} + \nabla \mathbf{A}_{\beta\beta}) dA, \quad (\text{A.87})$$

$$\varepsilon_\gamma \mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma} = \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\beta} \mathbf{n}_\beta \cdot (-\mathbf{l}\mathbf{a}_{\beta\gamma} + \nabla \mathbf{A}_{\beta\gamma}) dA, \quad (\text{A.88})$$

$$\varepsilon_\beta \mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta} = \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \cdot (-\mathbf{l}\mathbf{a}_{\gamma\beta} + \nabla \mathbf{A}_{\gamma\beta}) dA, \quad (\text{A.89})$$

and

$$\varepsilon_\gamma \mathbf{K}_\gamma^{-1} = -\frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_\gamma} \mathbf{n}_\gamma \cdot (-\mathbf{l}\mathbf{a}_{\gamma\gamma} + \nabla \mathbf{A}_{\gamma\gamma}) dA. \quad (\text{A.90})$$

These definitions, although not necessarily obvious at first, significantly facilitate future mathematical developments of the macroscale equations. Further, following Lasseux et al. (1996), we will use $\mathbf{K}_{\beta\beta}^*$, $\mathbf{K}_{\beta\gamma}^*$, $\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*$ and $\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*$ which are defined by

$$\mathbf{K}_{\beta\beta}^* = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta})^{-1} \cdot \mathbf{K}_\beta, \quad (\text{A.91})$$

$$\mathbf{K}_{\beta\gamma}^* = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta})^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{K}_\gamma, \quad (\text{A.92})$$

$$\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^* = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma})^{-1} \cdot \mathbf{K}_\gamma, \quad (\text{A.93})$$

and

$$\mathbf{K}_{\gamma\beta}^* = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma})^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot \mathbf{K}_\beta. \quad (\text{A.94})$$

We will also use

$$\chi_{ij} = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{i\beta}} \mathbf{n}_i \cdot \mathbf{A}_{ij} dA, \quad \text{with } i, j = \beta, \gamma, \quad (\text{A.95})$$

and the relations

$$\chi_{\beta\beta} = -\chi_{\gamma\beta} \quad \text{and} \quad \chi_{\beta\gamma} = -\chi_{\gamma\gamma}. \quad (\text{A.96})$$

Mapping onto $\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma$

Collecting terms involving $\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma$ yields

Problem III

$$0 = -\nabla b_i + \nabla^2 \mathbf{B}_i - \mathbf{K}_i^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_i, \text{ in } V_i, \text{ with } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.97})$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}_\beta = \epsilon_\beta^{-1} h, \text{ in } V_\beta, \quad (\text{A.98})$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}_\gamma = -\epsilon_\gamma^{-1} h, \text{ in } V_\gamma, \quad (\text{A.99})$$

with the boundary conditions

$$\mathbf{B}_i = 0, \text{ at } \mathcal{A}_{i\sigma}, \text{ with } i = \beta, \gamma, \quad (\text{A.100})$$

$$\mathbf{B}_\beta = \mathbf{B}_\gamma, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (\text{A.101})$$

$$b_\beta = b_\gamma - 1, \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}. \quad (\text{A.102})$$

Uniqueness of solutions is also ensured by local periodicity, i.e.,

$$\mathbf{B}_i(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{B}_i(\mathbf{r}) \text{ and } b_i(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = b_i(\mathbf{r}) \text{ with } i = \beta, \gamma \text{ and } k = 1, 2, 3, \quad (\text{A.103})$$

and the solvability conditions

$$\langle \mathbf{B}_i \rangle^i = 0; \langle b_i \rangle^i = 0 \text{ with } i = \beta, \gamma. \quad (\text{A.104})$$

In these equations, we have used the notations

$$\mathbf{K}_i^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_i = -\frac{\epsilon_i^{-1}}{V} \int_{\mathcal{A}_i} \mathbf{n}_i \cdot (-b_i \mathbf{l} + \nabla \mathbf{B}_i) dA, \quad (\text{A.105})$$

and

$$h = \frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{B}_\beta dA = -\frac{1}{V} \int_{\mathcal{A}_{\beta\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\beta} \cdot \mathbf{B}_\gamma dA. \quad (\text{A.106})$$

We have also defined $\mathbf{\Pi}_i^*$ as

$$\mathbf{\Pi}_\beta^* = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta})^{-1} \cdot (\mathbf{\Pi}_\beta + \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma), \quad (\text{A.107})$$

and

$$\mathbf{\Pi}_\gamma^* = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma})^{-1} \cdot (\mathbf{\Pi}_\gamma + \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta). \quad (\text{A.108})$$

A.4.4 Macroscale models

Herein, we use the above developments and the expressions of the deviations to obtain closed forms of the macroscale equations.

Macroscale equations for regional velocities

To obtain macroscale equations for regional velocities, we use Eqs (A.67) to (A.70) into Eq (A.54) and multiply each equation by \mathbf{K}_i . The result of this operation is

$$\langle \mathbf{v}_\beta \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\beta}{\mu} \cdot \left(\nabla \langle p_\beta \rangle^\beta - \langle \rho_\beta \rangle^\beta \mathbf{g} \right) + \mathbf{K}_{\beta\gamma} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle + \mathbf{\Pi}_\beta \left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad (\text{A.109})$$

and

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}_\gamma}{\mu} \cdot \left(\nabla \langle p_\gamma \rangle^\gamma - \langle \rho_\gamma \rangle^\gamma \mathbf{g} \right) + \mathbf{K}_{\gamma\beta} \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle + \mathbf{\Pi}_\gamma \left(\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma \right). \quad (\text{A.110})$$

Further, we can use hydrostatic pressures and simple linear algebra to obtain

$$\langle \mathbf{v}_\beta \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\beta\beta}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta - \frac{\mathbf{K}_{\beta\gamma}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma + \mathbf{\Pi}_\beta^* \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad (\text{A.111})$$

and

$$\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = -\frac{\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta - \frac{\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma + \mathbf{\Pi}_\gamma^* \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right). \quad (\text{A.112})$$

We remark that these equations are similar to those derived in Quintard and Whitaker (1998) for the large scale averaging of Darcy's law in heterogeneous porous media.

Macroscale continuity equations and mass exchange rate

Recall that the mass exchange equations derived in Section A.4 read

$$\varepsilon_\beta c \frac{\partial \langle P_\beta \rangle^\beta}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle = -\frac{\dot{m}}{\rho^0}, \quad (\text{A.113})$$

and

$$\varepsilon_\gamma c \frac{\partial \langle P_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle = \frac{\dot{m}}{\rho^0}. \quad (\text{A.114})$$

A closed form of the mass exchange rate, \dot{m} , can be obtained by substituting Eq (A.67)

into Eq (A.57) :

$$\frac{\dot{m}}{\rho^0} = -\boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta} \cdot \langle \mathbf{v}_\beta \rangle + \boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma} \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle + \frac{h}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right). \quad (\text{A.115})$$

We can further use the expressions of the regional velocities, Eqs (A.111)-(A.112), to obtain

$$\frac{\dot{m}}{\rho^0} = -\boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta}^* \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta + \boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma}^* \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma + \frac{h^*}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad (\text{A.116})$$

where

$$h^* = h - \mu \varepsilon_\beta^{-1} \boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta} \cdot \boldsymbol{\Pi}_\beta^* + \mu \varepsilon_\gamma^{-1} \boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma} \cdot \boldsymbol{\Pi}_\gamma^*, \quad (\text{A.117})$$

$$\boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta}^* = -\varepsilon_\beta^{-1} \boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta} \cdot \frac{\mathbf{K}_{\beta\beta}^*}{\mu} + \varepsilon_\gamma^{-1} \boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma} \cdot \frac{\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*}{\mu}, \quad (\text{A.118})$$

and

$$\boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma}^* = -\varepsilon_\beta^{-1} \boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta} \cdot \frac{\mathbf{K}_{\beta\gamma}^*}{\mu} + \varepsilon_\gamma^{-1} \boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma} \cdot \frac{\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*}{\mu}. \quad (\text{A.119})$$

Macroscale equations for the pressure

We form the macroscale equations that govern the pressure fields by using Eqs (A.111), (A.112) and (A.116) into Eqs (A.58) and (A.59). This leads to the following two-pressure model with mass exchange

$$\begin{aligned} \varepsilon_\beta c \frac{\partial \langle P_\beta \rangle^\beta}{\partial t} - \boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta}^* \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta + \boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma}^* \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma + \nabla \cdot \left(\boldsymbol{\Pi}_\beta^* (\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma) \right) \\ = \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\beta\beta}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta \right) + \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\beta\gamma}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right) - \frac{h^*}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right), \end{aligned} \quad (\text{A.120})$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma c \frac{\partial \langle P_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} + \boldsymbol{\chi}_{\gamma\beta}^* \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta - \boldsymbol{\chi}_{\beta\gamma}^* \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma + \nabla \cdot \left(\boldsymbol{\Pi}_\gamma^* (\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma) \right) \\ = \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta \right) + \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right) + \frac{h^*}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right). \end{aligned} \quad (\text{A.121})$$

Effective properties of this model can be determined by resolution of the three integro-differential problems derived in Section A.4. Because of the complexity involved, we develop in the next Section a method to evaluate the effective properties for the simpler case in which the mass exchange term depends only on the average pressure difference.

Simplified macroscale model

In this Section, we propose further simplifications of the above macroscale equations. At leading order, \dot{m} is governed by the pressure difference and can be approximated, following Eq (A.116), by

$$\frac{\dot{m}}{\rho^0} \approx \frac{h}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right). \quad (\text{A.122})$$

In this case, χ_{ij} are neglected and the continuity equations in the closure problems I and II become divergence-free. Furthermore, we remark that several closure problems developed in this work (see .2.1) may simplify to those derived for the two-phase flow configuration (see Whitaker (1986a), Whitaker (1994) or Lasseux et al. (1996)), so that the macroscale parameters \mathbf{K}_{ij}^* can be determined directly from the mapping fields of the two-phase flow problem. In addition, the values of the exchange parameters h and $\mathbf{\Pi}_i^*$ may be directly determined using a transformation of the integro-differential problem III (see .2.2). With this approximation (Eq (A.122)) the macroscale model for the averaged pressures becomes

$$\begin{aligned} \varepsilon_\beta c \frac{\partial \langle P_\beta \rangle^\beta}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\mathbf{\Pi}_\beta^* (\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma) \right) \\ = \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\beta\beta}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta \right) + \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\beta\gamma}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right) - \frac{h}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right), \end{aligned} \quad (\text{A.123})$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma c \frac{\partial \langle P_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\mathbf{\Pi}_\gamma^* (\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma) \right) \\ = \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta \right) + \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right) + \frac{h}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right). \end{aligned} \quad (\text{A.124})$$

This model is reminiscent of the developments of Quintard and Whitaker (1996) for the problem of flow through heterogeneous porous media with a two-step upscaling procedure (Stokes to Darcy and Darcy to large-scale). An interesting feature of the present work is to provide a solid theoretical framework for the direct derivation of this model with a one-step averaging procedure from the pore-scale Stokes problem. Consequently, our work extends the domain of validity of this formulation to problems involving smaller intermediate scales.

Furthermore, if we consider a case for which the coupling terms are relatively small, i.e., if $\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*, \mathbf{K}_{\beta\gamma}^* \ll \mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*, \mathbf{K}_{\beta\beta}^*$, and the $\mathbf{\Pi}_i^*$ can be neglected, we recover exactly the model proposed empirically by Barenblatt et al. (1960) for larger scales :

$$c\varepsilon_\beta \frac{\partial \langle P_\beta \rangle^\beta}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_\beta}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\beta \rangle^\beta \right) - \frac{h}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right), \quad (\text{A.125})$$

$$c\varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle P_\gamma \rangle^\gamma}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{K}_\gamma}{\mu} \cdot \nabla \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right) + \frac{h}{\mu} \left(\langle P_\beta \rangle^\beta - \langle P_\gamma \rangle^\gamma \right). \quad (\text{A.126})$$

A.5 Validation against direct numerical simulations for a simplified particle filter

In order to illustrate this theory, we apply it here to a 2D model problem which may be thought of as a simplified particle tangential filter. Our goal is to examine numerically the applicability of the two-pressure model to the flow of an incompressible and a slightly compressible fluid within this particle filter. We will present solutions of the two- and one-pressure models and compare these macroscale results with the solution of the microscale problem. Computations were all performed with the finite volume CFD toolbox OpenFOAM®.

A.5.1 Microscale geometry and models

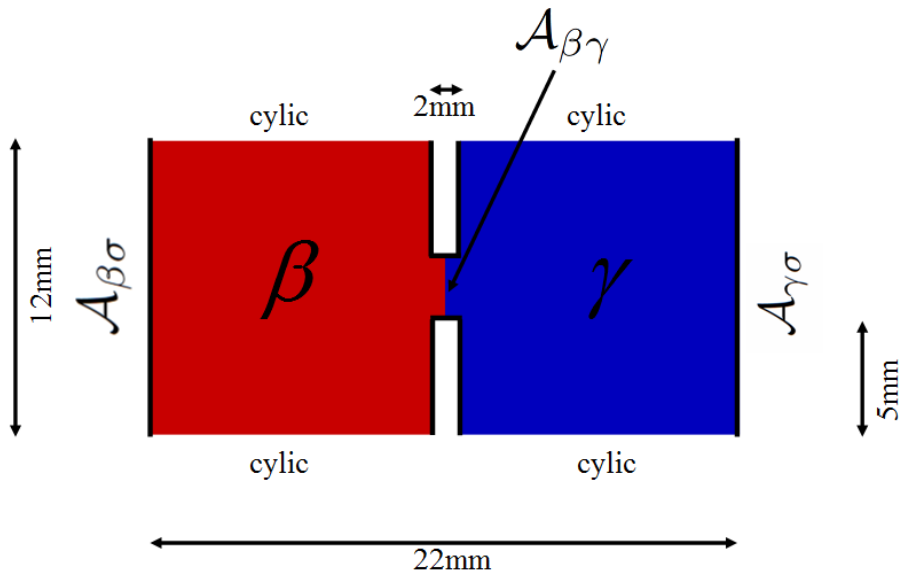


FIGURE A.3: Schematics of the unit-cell geometry, the two-regions and the boundaries.

The 2D geometry of the porous structure consists of a succession of 32 identical elements or unit-cells (see Fig A.3). The mesh contains 358400 hexahedral cells, i.e., 11200 cells per representative elementary volume. For boundary conditions, we impose a Dirichlet velocity \mathbf{v}_0 or pressure p_{inlet} (top left), a Dirichlet pressure p_0 (bottom right) and no-slip conditions (everywhere else). Note that, if the velocity and pressure conditions were applied to the entire top and bottom boundaries, we would generate a classical quasi-steady flow which could be described by a single macroscale Darcy-equation. In our case, the velocity and pressure boundary conditions

induce an exchange flux between both left and right domains. Therefore, we split the porous medium into two distinct regions : the left hand-side β -region with the input velocity condition and the right hand-side γ -region with the output pressure boundary condition.

Incompressible fluid We will first focus on the case of an incompressible fluid flow at steady-state. The purpose of these simulations is to illustrate that the two-pressure formulation may be necessary even at steady-state, in order to capture non-equilibrium effects induced by the boundary conditions. In conjunction with Stokes equation (with negligible gravitational effects) and the boundary conditions described above, we use the following continuity equation for an incompressible fluid,

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_\alpha = 0 \text{ in } V_\alpha, \quad (\text{A.127})$$

where \mathbf{v}_α is the velocity field in the whole domain. We use the following set of parameters $\mathbf{v}_0 = 10^{-5} \text{ m/s}$, $\rho = 10^3 \text{ kg/m}^3$, $\mu = 10^{-3} \text{ kg/m/s}$. For these parameters, we calculated a Reynold number of 0.1 which is in the creeping flow regime and is therefore in agreement with the assumptions of our model. Since the flow is assumed to be at steady-state, we used the SIMPLE pressure-velocity coupling procedure developed by Patankar (1980) to solve the Stokes problem.

Slightly compressible fluid We will then test our theory in the case of a slightly compressible fluid flowing through the particle filter. The pore-scale simulations are obtained by solving the transient boundary value problem described in Section A.2.1 by Eqs (A.1)-(A.3). The pore-scale thermodynamical law reads,

$$\rho_\alpha = \rho^0 [1 + c (p_\alpha - p^0)], \quad (\text{A.128})$$

where the reference pressure, the compressibility coefficient and the reference density are $p^0 = 0 \text{ kg/m/s}^2$, $c = 0.55$ and $\rho^0 = 10^3 \text{ kg/m}^3$, respectively. As for the incompressible case, the fluid viscosity is $\mu = 10^{-3} \text{ kg/m/s}$. The problem is solved using a PISO algorithm (Issa (1985)). To avoid complications regarding acoustic waves propagation in porous media, which is beyond the scope of this paper (readers interested in such phenomena can refer to Bourbié et al. (1987)), we consider a pressure ramp at the input of the device, $p_{inlet} = p_{inlet}^0 \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}\right)$ with $p_{inlet}^0 = 10^{-4} \text{ kg/m/s}^2$ and $\tau = 100 \text{ s}$. Initially, the velocity and pressure fields are set to zero. We run calculations up to 600 seconds which correspond to fully established steady state regimes.

A.5.2 Effective properties, macroscale geometry and models

The macroscale geometry that corresponds to the 2D filter is a 1D segment $0.384m$ long containing 32 cells. The first step towards solution is to evaluate the effective properties from the resolution of the closure Problems I', II' and III' provided in .2 over the unit-cell Fig A.3. OpenFOAM® and a SIMPLE algorithm were used to obtain : $\Pi_{\beta y}^* = -\Pi_{\gamma y}^* = 4 \cdot 10^{-16} m^2 s/kg$, $h = 7.8 \cdot 10^{-4} m^2$, $K_{\beta\beta yy}^* = K_{\gamma\gamma yy}^* = 4.1 \cdot 10^{-6} m^2$ and $K_{\beta\gamma yy}^* = K_{\gamma\beta yy}^* = 1.3 \cdot 10^{-9} m^2$ (where y is the streamwise direction). We remark that the terms $K_{\beta\gamma yy}^*$, $K_{\gamma\beta yy}^*$ and Π_{α}^* are relatively small and may be neglected in this case (something we have verified numerically). The macroscale equations are then reduced to the one-dimensional steady-state set of coupled equations in the incompressible case :

$$0 = \frac{K_{\beta\beta yy}^*}{\mu} \frac{\partial^2 \langle P_{\beta} \rangle^{\beta}}{\partial y^2} - \frac{h}{\mu} \left(\langle P_{\beta} \rangle^{\beta} - \langle P_{\gamma} \rangle^{\gamma} \right), \quad (\text{A.129})$$

$$0 = \frac{K_{\gamma\gamma yy}^*}{\mu} \frac{\partial^2 \langle P_{\gamma} \rangle^{\gamma}}{\partial y^2} + \frac{h}{\mu} \left(\langle P_{\beta} \rangle^{\beta} - \langle P_{\gamma} \rangle^{\gamma} \right), \quad (\text{A.130})$$

The transient formulation of the slightly compressible case read

$$c_{\varepsilon\beta} \frac{\partial \langle P_{\beta} \rangle^{\beta}}{\partial t} = \frac{K_{\beta\beta yy}^*}{\mu} \frac{\partial^2 \langle P_{\beta} \rangle^{\beta}}{\partial y^2} - \frac{h}{\mu} \left(\langle P_{\beta} \rangle^{\beta} - \langle P_{\gamma} \rangle^{\gamma} \right), \quad (\text{A.131})$$

$$c_{\varepsilon\gamma} \frac{\partial \langle P_{\gamma} \rangle^{\gamma}}{\partial t} = \frac{K_{\gamma\gamma yy}^*}{\mu} \frac{\partial^2 \langle P_{\gamma} \rangle^{\gamma}}{\partial y^2} + \frac{h}{\mu} \left(\langle P_{\beta} \rangle^{\beta} - \langle P_{\gamma} \rangle^{\gamma} \right), \quad (\text{A.132})$$

In both cases, these equations are solved sequentially and the regional velocities are obtained via Eqs (A.109) and (A.110). Boundary conditions are analogous to the microscopic ones. Their values are adjusted to correspond to the average values in the vicinity of the inlet and outlet of the microscale models (Prat (1989)).

A.5.3 Results for the incompressible flow

Results for the pressure and velocity fields are plotted in Fig A.4 and A.5, respectively. The average direct numerical simulation (DNS) curves were obtained by explicitly solving the microscale problem presented in Section A.5.1 and then volume averaging the pressure/velocity fields within the β and γ regions over each unit-cell. These results will be considered as an exact solution of the problem and serve as a reference for comparison. Macroscale pressures were obtained by solving Eqs (A.129)-(A.130) and velocities were determined using Eqs (A.109) and (A.110).

As mass, momentum and pressure are exchanged between the two domains, we see in Fig A.5 that the magnitude of the velocity field in the β -region decreases along the y -axis while it increases in the γ -region. In the middle, because of the symmetry of the problem, the

velocity fields of both region are equal. This situation is usually referred to as local equilibrium in the multiscale analysis literature. Similarly, the pressure also equilibrates in the middle (see Fig A.4). In both cases, we remark that the two-pressure model provides an excellent representation of the particle filter as average pressure and velocity fields are in very good agreement. This simulation also emphasizes the importance of the boundary conditions and illustrates the fact that non-equilibrium of velocity/pressure fields may result from a choice of particular boundary conditions, even at steady-state. This non-equilibrium effect is particularly obvious in Fig A.6 in which we have plotted the mass exchange rate, \dot{m} , defined by Eq (A.122), as a function of y . The largest values of the mass exchange rate are at the top and the bottom of the system, where boundary conditions are important, and we have $\dot{m} \approx 0$ in the middle where both average pressure/velocity fields are almost equal.

In addition, we also remark that such non-equilibrium effects cannot be captured by a one-pressure model and the corresponding single Darcy's law. Indeed, the Darcy velocity is constant along the particle filter because the velocity field is divergence free in the macroscale continuity equation. Hence, this model will fail to describe exchange phenomena between the two regions and is not adapted to the description of flow within this specific structure. This may further impact the evaluation of heat and solute dispersion within such systems ; informations that are particularly useful to engineers in the field.

A.5.4 Results for the slightly compressible flow

We finally analyze the case of a slightly compressible fluid and use a similar methodology to compare results of macroscale and microscale simulations. Since our goal here is to assess the behaviour of the two-pressure model in a transient situation, we will primarily focus on time representations of average values evaluated at a fixed point of space for the two-pressure, one-pressure and DNS models. Average pressure and velocity values are plotted in Figs A.7 and A.8 for the 30th cell. Results show that the overall agreement between the two-pressure model and the DNS results is excellent. In Fig A.9, we have plotted the mass exchange rate along the vertical axis for several times, to illustrate the evolution of the non-equilibrium conditions. Because of the zero initial conditions used here, we remark that local non-equilibrium rapidly appears in the vicinity of the input and the output boundary conditions.

A.6 Conclusion

In this paper, we have used the method of volume averaging to derive a macroscale model for the flow of a slightly compressible fluid within bi-structured porous media. The result of this procedure is a two-pressure equation model involving several permeability tensors, a mass

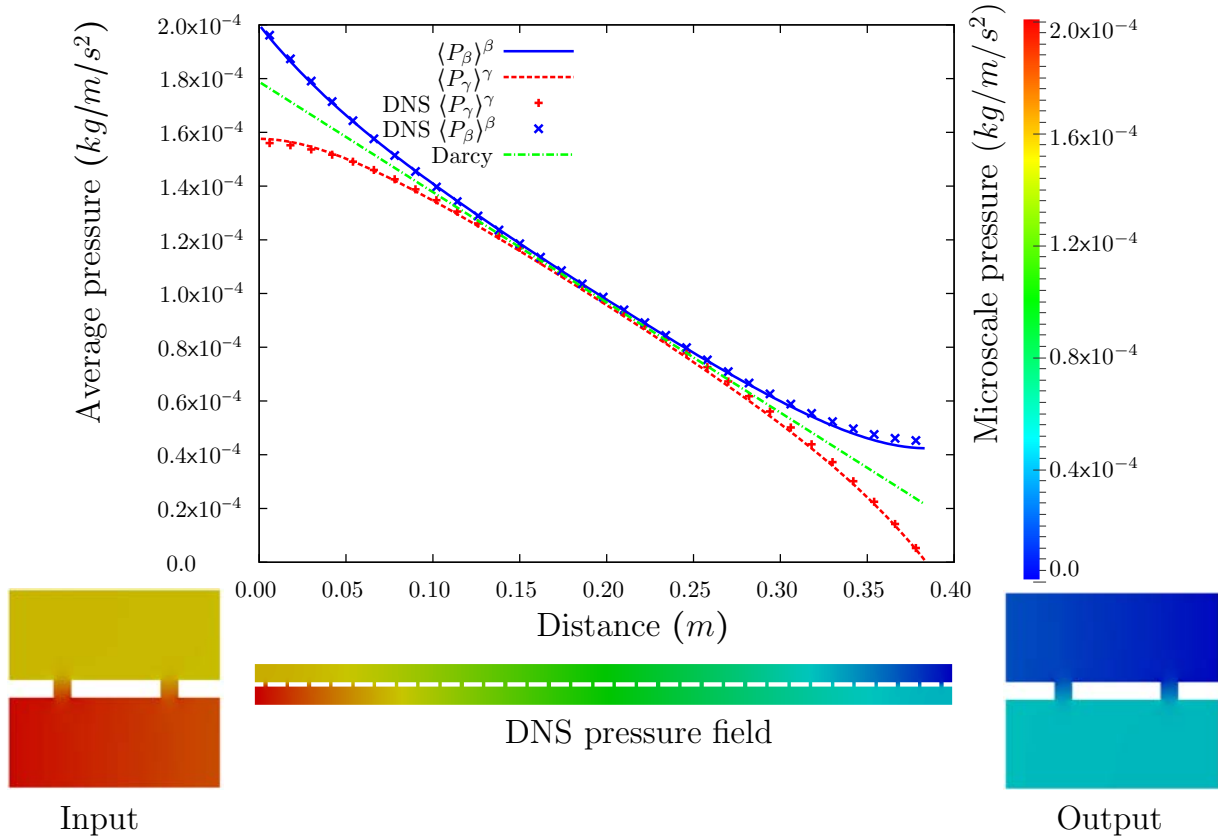


FIGURE A.4: Plots of the average pressure fields (top) and of the microscale pressure field (bottom) along the filter. This figure shows that : (1) both macroscale and average DNS results are in good agreement ; and (2) Darcy's model fails to describe non-equilibrium effects induced by boundary conditions.

exchange coefficient and additional convective transport terms entirely determined by three closure problems.

The main result of this paper is to provide a solid theoretical basis for the model that was derived empirically in Barenblatt et al. (1960) for the flow of a fluid in heterogeneous porous media. In addition, we have also extended the validity of the developments performed in Quintard and Whitaker (1996) for the large-scale homogenization of Darcy's law in heterogeneous media. While the initial starting points are different : Darcy's law in dual porous media on one side, Stokes equations in our case, it is remarkable that we finally obtain the same set of macroscale equations. However, it should be emphasized that the calculation of the regional permeabilities and the mass exchange terms is performed in a different way. The theoretical developments and models were then successfully compared to pore-scale direct numerical simulations for a simplified particle filter geometry.

Future work will focus on unsaturated flow in bi-structured porous media. Such extension of the present theory will supply a solid background to simulate, for instance, gas-liquid flow

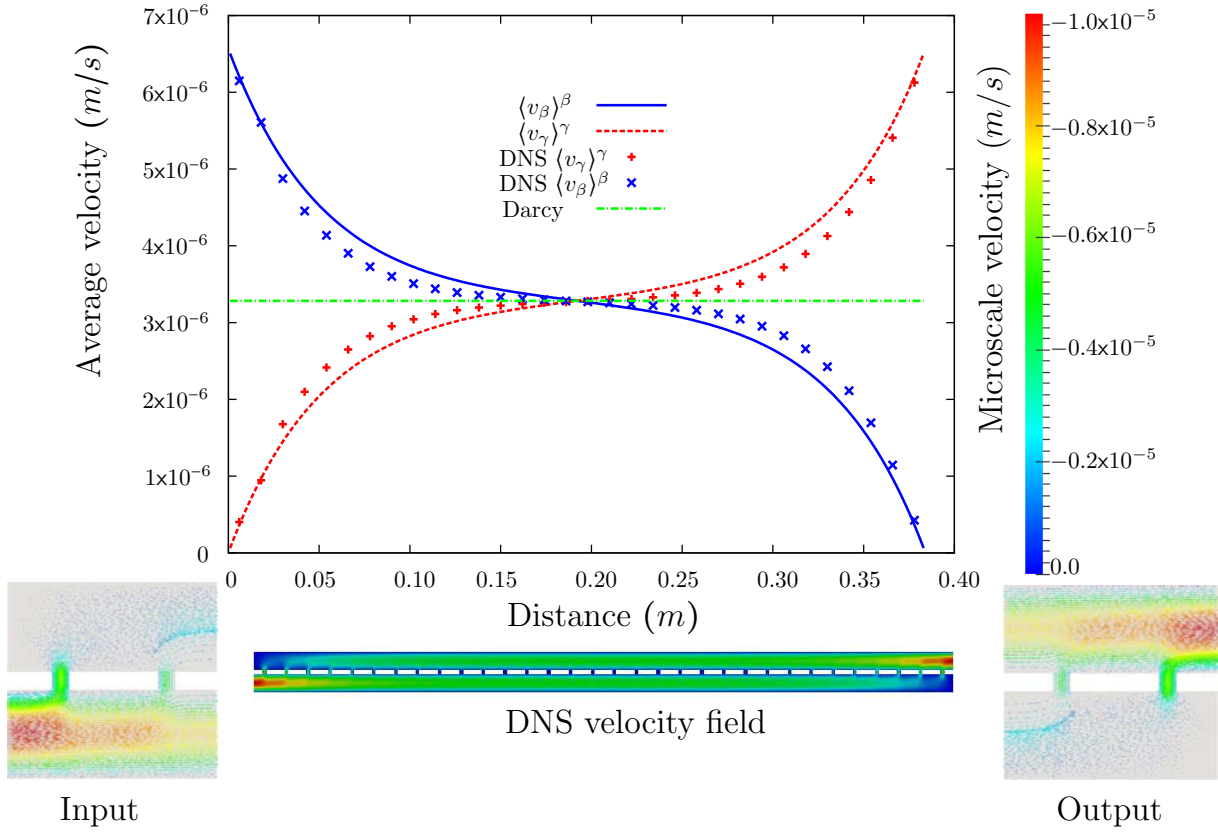


FIGURE A.5: Plots of the average velocity fields (top) and of the microscale velocity field (bottom) along the filter. This figure shows that : (1) both macroscale and average DNS results are in good agreement ; and (2) Darcy’s model fails to describe non-equilibrium effects induced by boundary conditions.

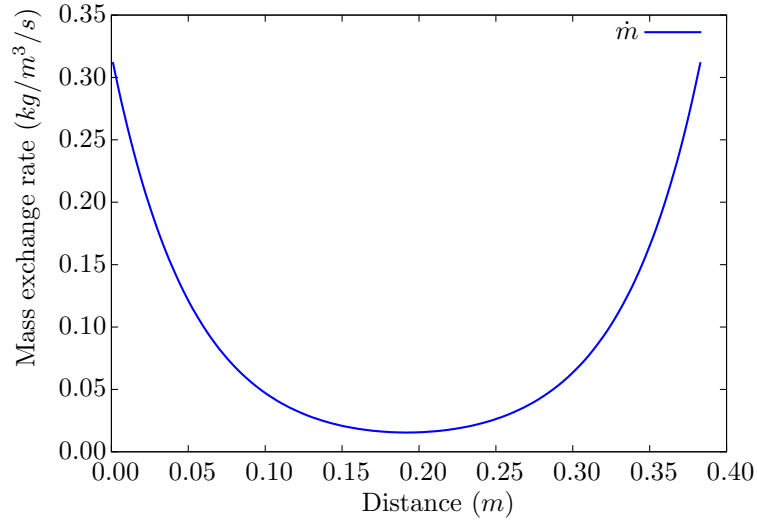


FIGURE A.6: Plot of the mass exchange term (\dot{m}) along the vertical axis. This figure shows that a local non-equilibrium situation is generated by the inlet and outlet boundaries.

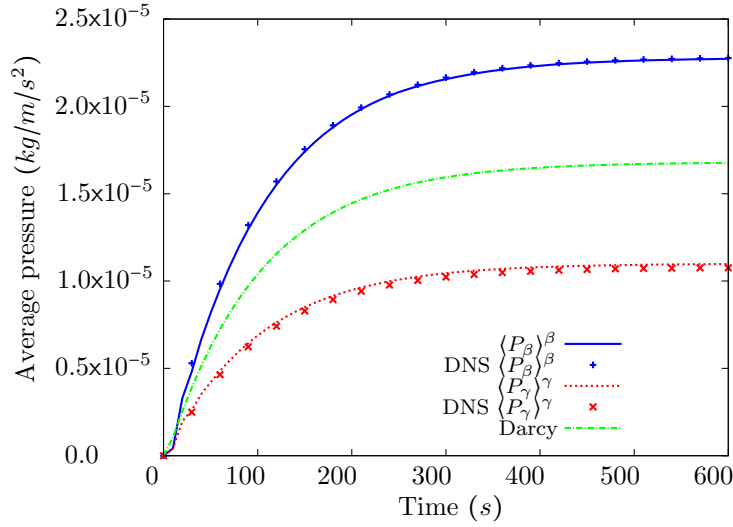


FIGURE A.7: Plots of the evolution of the average pressure for the 30th cell. This figure shows that the two-pressure model captures correctly the transient behaviour of the average pressure.

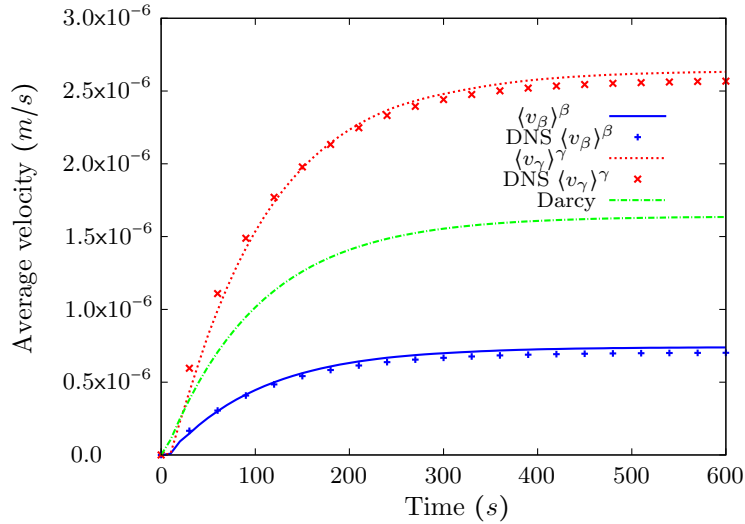


FIGURE A.8: Plots of the evolution of the average velocity magnitude for the 30th cell. This figure shows that the two-pressure model captures correctly the transient behaviour of the average velocity.

in structured packings.

.1 Simplifications of closure problems : one-pressure model

In this Section, we provide a simplified version of the closure problems, which is more suitable to perform numerical simulations. Our goal is to eliminate the integrals and obtain a purely local form of the boundary value problems. To this end, we use the following decompositions

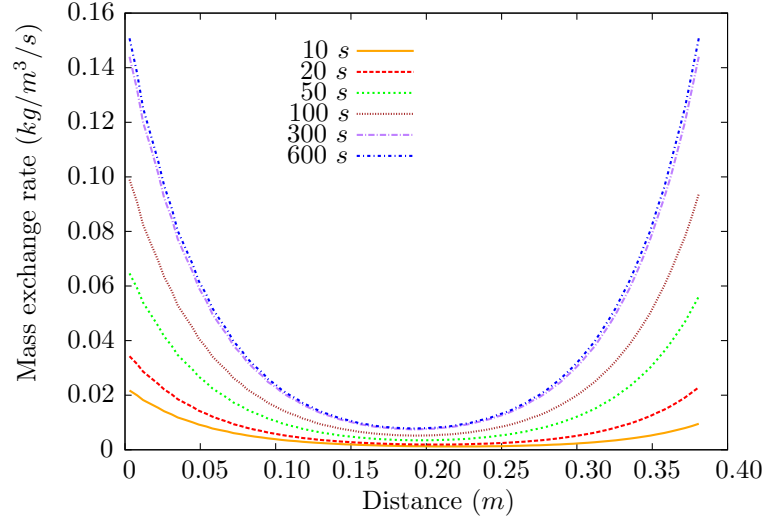


FIGURE A.9: Plot of the mass exchange coefficient, \dot{m} , along the vertical axis for several simulation times. This figure shows that non-equilibrium rapidly grows in the vicinity of the inlet and outlet boundaries.

$$\mathbf{a}_\alpha = -\mathbf{a}_\alpha^0 \cdot \varepsilon_\alpha^{-1} \mathbf{K}_\alpha^{-1}, \quad (133)$$

$$\mathbf{A}_\alpha = -\mathbf{A}_\alpha^0 \cdot \varepsilon_\alpha^{-1} \mathbf{K}_\alpha^{-1} + \mathbf{I}, \quad (134)$$

which, once substituted into Eqs (A.42) to (A.44), yield

$$\nabla \cdot \mathbf{A}_\alpha^0 = 0 \text{ in } V_\alpha, \quad (135)$$

and

$$0 = -\nabla \mathbf{a}_\alpha^0 + \nabla^2 \mathbf{A}_\alpha^0 + \mathbf{I} \text{ in } V_\alpha, \quad (136)$$

with

$$\mathbf{A}_\alpha^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{\alpha\sigma}. \quad (137)$$

In addition, since porous media are assumed to be cyclic, we have periodicity conditions

$$\mathbf{A}_\alpha^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{A}_\alpha^0(\mathbf{r}) \text{ and } \mathbf{a}_\alpha^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{a}_\alpha^0(\mathbf{r}) \text{ with } k = 1, 2, 3. \quad (138)$$

To ensure uniqueness of solutions, we have the solvability condition

$$\langle \mathbf{a}_\alpha^0 \rangle = 0 \quad (139)$$

The permeability tensor, \mathbf{K}_α , can be calculated using the relationship $\mathbf{K}_\alpha = \langle \mathbf{A}_\alpha^0 \rangle$.

.2 Simplifications of closure problems : two-pressure model

In this Section, we present a methodology to determine the effective parameters of the two-pressure model (\mathbf{K}_{ij}^* , h and $\mathbf{\Pi}_i$) in the case of the simplified mass exchange rate given by Eq (A.122). The continuity equations in Problem I and II become divergence free and we remark that these closure problems are equivalent to those derived in Whitaker (1986a, 1994) or Lasseux et al. (1996) for the classical two-phase flow problem (with a slight difference for the boundary conditions at $A_{\beta\gamma}$). Indeed, in their works they use the general continuity of the normal stress tensor at the fluid-fluid interface that can be expressed as

$$-\mathbf{n}_{\beta\gamma} p_\beta + \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \mu_\beta (\nabla \mathbf{v}_\beta + \nabla^T \mathbf{v}_\beta) = -\mathbf{n}_{\beta\gamma} p_\gamma + \mathbf{n}_{\beta\gamma} \cdot \mu_\gamma (\nabla \mathbf{v}_\gamma + \nabla^T \mathbf{v}_\gamma) + 2\sigma H \mathbf{n}_{\beta\gamma}, \quad \text{on } A_{\beta\gamma}, \quad (140)$$

where $\mathbf{n}_{\beta\gamma}$ is the normal unit vector pointing from β to γ ; σ is the surface tension; and H is the curvature. Herein, we consider continuity of pressure (see Eq (A.8)) at the fluid-fluid interface, we have continuity of the shear stress and surface tension terms disappear. We will make use of this analogy to eliminate the integrals in the Problems I, II and III and obtain a purely local form of the boundary value problems.

.2.1 Mapping onto $\langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta$ and $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$

Problems I and II are analogous to those derived by Whitaker (1994). To derive them, we first define the following change of variables

$$\mathbf{A}_{\alpha\beta} = -\mathbf{l}_{\delta_{\alpha\beta}} - \varepsilon_\beta \left[\mathbf{A}_{\alpha\beta}^0 \cdot \mathbf{K}_\beta^{-1} - \mathbf{A}_{\alpha\gamma}^0 \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta}) \right]; \quad \alpha = \beta, \gamma, \quad (141)$$

$$\mathbf{a}_{\alpha\beta} = -\varepsilon_\beta \left[\mathbf{a}_{\alpha\beta}^0 \cdot \mathbf{K}_\beta^{-1} - \mathbf{a}_{\alpha\gamma}^0 \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\gamma\beta}) \right]; \quad \alpha = \beta, \gamma, \quad (142)$$

$$\mathbf{A}_{\alpha\gamma} = -\mathbf{l}_{\delta_{\alpha\gamma}} - \varepsilon_\gamma \left[\mathbf{A}_{\alpha\gamma}^0 \cdot \mathbf{K}_\gamma^{-1} - \mathbf{A}_{\alpha\beta}^0 \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma}) \right]; \quad \alpha = \beta, \gamma, \quad (143)$$

and

$$\mathbf{a}_{\alpha\gamma} = -\varepsilon_\gamma \left[\mathbf{a}_{\alpha\gamma}^0 \cdot \mathbf{K}_\gamma^{-1} - \mathbf{a}_{\alpha\beta}^0 \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{K}_{\beta\gamma}) \right]; \quad \alpha = \beta, \gamma. \quad (144)$$

With similar considerations, one can show, following Lasseux et al. (1996) developments, that $\mathbf{K}_{\gamma\beta}^*$, $\mathbf{K}_{\beta\gamma}^*$, $\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^*$ and $\mathbf{K}_{\beta\beta}^*$ may be evaluated by solving the two following problems :

Problem I

$$0 = -\nabla \mathbf{a}_{i\beta}^0 + \nabla^2 \mathbf{A}_{i\beta}^0 - \delta_{\beta i} \mathbf{l} \quad \text{in } V_i; \quad i = \beta, \gamma, \quad (145)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{A}_{i\beta}^0 = 0 \quad \text{in } V_i; \quad i = \beta, \gamma, \quad (146)$$

with boundary conditions,

$$\mathbf{A}_{i\beta}^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{i\sigma} ; i = \beta, \gamma, \quad (147)$$

$$\mathbf{A}_{\beta\beta}^0 = \mathbf{A}_{\gamma\beta}^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (148)$$

$$\mathbf{a}_{\beta\beta}^0 = \mathbf{a}_{\gamma\beta}^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (149)$$

periodic conditions,

$$\mathbf{A}_{i\beta}^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{A}_{i\beta}^0(\mathbf{r}) ; i = \beta, \gamma ; k = 1, 2, 3, \quad (150)$$

$$\mathbf{a}_{i\beta}^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{a}_{i\beta}^0(\mathbf{r}) ; i = \beta, \gamma ; k = 1, 2, 3, \quad (151)$$

and the relationship

$$\langle \mathbf{A}_{i\beta}^0 \rangle = -\mathbf{K}_{i\beta}^* ; i = \beta, \gamma. \quad (152)$$

To ensure uniqueness of the solution, the following constraints have to be satisfied,

$$\langle \mathbf{a}_{i\beta}^0 \rangle = 0 \text{ with } i = \beta, \gamma. \quad (153)$$

Problem II'

$$0 = -\nabla \mathbf{a}_{i\gamma}^0 + \nabla^2 \mathbf{A}_{i\gamma}^0 - \delta_{\gamma i} \mathbf{l} \text{ in } V_i ; i = \beta, \gamma, \quad (154)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{A}_{i\gamma}^0 = 0 \text{ in } V_i ; i = \beta, \gamma, \quad (155)$$

with boundary conditions,

$$\mathbf{A}_{i\gamma}^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{i\sigma} ; i = \beta, \gamma, \quad (156)$$

$$\mathbf{A}_{\beta\gamma}^0 = \mathbf{A}_{\gamma\gamma}^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (157)$$

$$\mathbf{a}_{\beta\gamma}^0 = \mathbf{a}_{\gamma\gamma}^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (158)$$

periodic conditions,

$$\mathbf{A}_{i\gamma}^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{A}_{i\gamma}^0(\mathbf{r}) ; i = \beta, \gamma ; k = 1, 2, 3, \quad (159)$$

$$\mathbf{a}_{i\gamma}^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{a}_{i\gamma}^0(\mathbf{r}) ; i = \beta, \gamma ; k = 1, 2, 3, \quad (160)$$

and the relationship

$$\langle \mathbf{A}_{i\gamma}^0 \rangle = -\mathbf{K}_{i\gamma}^* ; i = \beta, \gamma. \quad (161)$$

To ensure uniqueness of the solution, the following constraint has to be satisfied,

$$\langle \mathbf{a}_{i\gamma}^0 \rangle = 0 \text{ with } i = \beta, \gamma. \quad (162)$$

.2.2 Mapping onto $\langle p_\beta \rangle^\beta - \langle p_\gamma \rangle^\gamma$

We now focus on the treatment of Problem III and the evaluation of h and $\mathbf{\Pi}_i$. We propose the following change of variables :

$$\mathbf{B}_\beta = \mathbf{B}_\beta^0 h + \mathbf{B}_\beta^1 \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \mathbf{B}_\beta^2 \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma), \quad (163)$$

$$b_\beta + 1 = b_\beta^0 h + \mathbf{b}_\beta^1 \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \mathbf{b}_\beta^2 \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma), \quad (164)$$

$$\mathbf{B}_\gamma = \mathbf{B}_\gamma^0 h + \mathbf{B}_\gamma^1 \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \mathbf{B}_\gamma^2 \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma), \quad (165)$$

$$b_\gamma = b_\gamma^0 h + \mathbf{b}_\gamma^1 \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \mathbf{b}_\gamma^2 \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma). \quad (166)$$

The closure variables denoted with the superscript "0" correspond to the effects of mass transfer on the deviations problem whereas the ones that wear the superscripts "1" and "2" depict the presence of integrals within the momentum equations. Moreover, in this decomposition b_i^0 are scalars, \mathbf{b}_i^1 , \mathbf{b}_i^2 and \mathbf{B}_i^0 are vectors while \mathbf{B}_i^1 and \mathbf{B}_i^2 are tensors.

It turns out that $(\mathbf{b}_i^1, \mathbf{B}_i^1)$ and $(\mathbf{b}_i^2, \mathbf{B}_i^2)$ satisfy Problems I' and II'. (b_i^0, \mathbf{B}_i^0) can be evaluated through the following problem

Problem III'

$$0 = -\nabla b_i^0 + \nabla^2 \mathbf{B}_i^0 \text{ in } V_i ; i = \beta, \gamma, \quad (167)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}_\beta^0 = \epsilon_\beta^{-1} \text{ in } V_\beta, \quad (168)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}_\gamma^0 = -\epsilon_\gamma^{-1} \text{ in } V_\gamma, \quad (169)$$

with the boundary conditions,

$$\mathbf{B}_i^0 = 0 \text{ at } \mathcal{A}_{i\sigma} ; i = \beta, \gamma, \quad (170)$$

$$\mathbf{B}_\beta^0 = \mathbf{B}_\gamma^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (171)$$

$$b_\beta^0 = b_\gamma^0 \text{ at } \mathcal{A}_{\beta\gamma}, \quad (172)$$

and the periodic conditions,

$$\mathbf{B}_i^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = \mathbf{B}_i^0(\mathbf{r}) ; b_i^0(\mathbf{r} + \mathbf{l}_k) = b_i^0(\mathbf{r}) ; i = \beta, \gamma ; k = 1, 2, 3. \quad (173)$$

Problems I', II' and III' are linked through the zero average constraints. Consequently,

the above closure variables b_α^0 , \mathbf{b}_α^1 and \mathbf{b}_α^2 have to satisfy

$$1 = \langle b_\beta^0 \rangle^\beta h + \langle \mathbf{b}_\beta^1 \rangle^\beta \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \langle \mathbf{b}_\beta^2 \rangle^\beta \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma), \quad (174)$$

$$0 = \langle b_\gamma^0 \rangle^\gamma h + \langle \mathbf{b}_\gamma^1 \rangle^\gamma \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \langle \mathbf{b}_\gamma^2 \rangle^\gamma \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma). \quad (175)$$

To insure uniqueness of the pseudo two-phase flow solution, we must constrain the pressure-like fields in one phase. We choose to impose $\langle \mathbf{b}_\beta^1 \rangle^\beta = \mathbf{0}$, $\langle \mathbf{b}_\beta^2 \rangle^\beta = \mathbf{0}$ and $\langle b_\gamma^0 \rangle^\gamma = 0$. With such conditions, the mass exchange rate h can be directly evaluated through the calculation of the single Problem III' and the following relation

$$h = \frac{1}{\langle b_\beta^0 \rangle^\beta}. \quad (176)$$

To obtain $\mathbf{\Pi}_i^*$ we use the equations Eq (163) and Eq (165) in the zero average relation Eq (A.104). This yields

$$0 = \langle \mathbf{B}_\beta^0 \rangle^\beta h + \langle \mathbf{B}_\beta^1 \rangle^\beta \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \langle \mathbf{B}_\beta^2 \rangle^\beta \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma), \quad (177)$$

$$0 = \langle \mathbf{B}_\gamma^0 \rangle^\gamma h + \langle \mathbf{B}_\gamma^1 \rangle^\gamma \cdot (\mathbf{K}_\beta^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\beta) + \langle \mathbf{B}_\gamma^2 \rangle^\gamma \cdot (\mathbf{K}_\gamma^{-1} \cdot \mathbf{\Pi}_\gamma). \quad (178)$$

Since \mathbf{B}_i^1 and \mathbf{B}_i^2 are solutions of Problems I' and II', we obtain

$$\langle \mathbf{B}_\beta^1 \rangle = -\mathbf{K}_{\beta\beta}^* ; \langle \mathbf{B}_\gamma^1 \rangle = -\mathbf{K}_{\gamma\beta}^* ; \langle \mathbf{B}_\beta^2 \rangle = -\mathbf{K}_{\beta\gamma}^* ; \langle \mathbf{B}_\gamma^2 \rangle = -\mathbf{K}_{\gamma\gamma}^* . \quad (179)$$

According to this remark, Eqs (177) and (178) become

$$\mathbf{\Pi}_i^* = h \langle \mathbf{B}_i^0 \rangle ; i = \beta, \gamma. \quad (180)$$

