



N° d'ordre : 2325

THÈSE

présentée
pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE

École doctorale : TYFEP

Spécialité : Dynamique des Fluides, Energétique et Transferts

Par Mademoiselle Caroline SAULNIER

Titre de la thèse **MODELISATION NUMERIQUE TRIDIMENSIONNELLE DE
L'ECOULEMENT REACTIF TRIPHASIQUE GAZ-GOUTTE-
PARTICULE AU SEIN D'UN REACTEUR A LIT FLUIDISE FCC**

Soutenue le 20 février 2006, devant le jury composé de :

M.	GABRIEL WILD	Président
MM.	OLIVIER SIMONIN	Ditecteur de thèse
	FRANÇOIS BERTRAND	Rapporteur
	JURAY DE WILDE	Rapporteur
	LUDOVIC DONNAT	Membre
	GILLES FERSCHEINDER	Membre

Modélisation numérique tridimensionnelle de l'écoulement
réactif triphasique gaz-goutte-particule au sein d'un réacteur à
lit fluidisé FCC

Caroline Saulnier

15 mai 2008

Remerciements

Ce travail n'aurait pas été possible sans la participation d'un certain nombre de personnes à qui cette page est dédiée.

Je tiens d'abord à remercier les rapporteurs François Bertrand et Juray de Wilde d'avoir relu avec attention ce manuscrit ; leurs remarques, leurs questions et leur présence lors de ma soutenance (malgré la distance qu'il leur a fallu parcourir) m'ont permis d'améliorer considérablement ce rapport et ma réflexion sur le sujet de recherche.

Je remercie aussi Gilles Ferschneider et Gabriel Wild d'avoir accepté de se porter juges de mon travail et d'avoir assisté à ma présentation.

J'adresse aussi mes plus sincères remerciements à Denis Védrine, initiateur et encadrant de ce projet, et Ludovic Donnat, qui lui a succédé. Tous deux m'ont permis de mieux appréhender la problématique de recherche et l'aspect industriel de ce projet. De manière générale, toutes les personnes du Centre de Recherche de Gonfreville l'Orcher de TOTAL, et parmi eux, Céline Derouin, Thierry Patureaux, Romain Delatour et Olivier Delsart, ont toujours su m'apporter leur aide lorsque je la sollicitais et ce, avec patience, gentillesse et pédagogie. J'espère que mon travail les intéressera.

Je n'oublie pas mon directeur de thèse, Olivier Simonin, grâce à qui j'ai beaucoup appris durant ces trois années.

En tant qu'utilisatrice acharnée des ressources informatiques du laboratoire, je dois remercier le service informatique de l'IMFT et en particulier Jean-Pierre Bombaud, Cille Martin, Yannick Exposito et Valéry Verhoeven pour leur efficacité et leur patience face à des utilisateurs parfois stressants. Grâce à leur compétence, leur sympathie et leur écoute toujours attentive, le service Cosinus m'a été d'une grande aide et particulièrement Hervé Neau, sans qui je n'aurais jamais su ce qui se passait sur la planète Saturne.

Merci à Georges Charnay pour son accueil chaleureux au sein du groupe EEC et merci aussi à tous ses membres (actuels, anciens et assimilés) pour leur convivialité et pour tout le reste : Livier, Jéôme le Grand, Hervé, Annaïg, Guillaume, Pascal, Vincent, Florence, Doris, Séverine, Maurice, Anne A.,

Jérôme H., Véronique, Anne G., Julien, Moïse, Gaspard, Benjamin, Mathieu, Xavier, Eléonore, Brice M., Thomas, Brice P., Arthur, Thierry, Mamour, Olivier, Gérard, Magali, Virginie, Anthony, Bernard, Yves, Jean-Luc, Olga, Geoffrey, Marine, Nathalie et Laure.

Je remercie enfin ceux qui ont eu la patience de relire le présent manuscrit : Alix et Robert, mais aussi ma famille, mon entourage et tous ceux qui, de près ou de loin, m'ont soutenu lorsque j'en avais besoin : ce travail est aussi le votre.

*Il est morne, il est taciturne,
Il préside aux choses du temps,
Il porte un joli nom, « Saturne »,
Mais c'est un dieu fort inquiétant.*
Georges Brassens

Table des matières

Nomenclature	9
Lettres latines	9
Lettres grecques	12
Indices	13
Opérateurs	14
Abréviations	14
Introduction	15
1 Position du problème	19
1.1 Généralités sur le raffinage	19
1.2 Le craquage catalytique FCC (Fluid Catalytic Cracking)	20
1.3 Les lits fluidisés	23
2 Transferts en écoulement gaz-particule	27
2.1 Transferts en écoulement gaz-particule solide	27
2.1.1 Transferts dynamiques en écoulement gaz-particule	27
2.1.2 Transferts thermiques en écoulement gaz-particule en régime dense	31
2.2 Transferts dans un écoulement gaz-goutte	36
2.2.1 Transferts pour une goutte isolée	36
2.2.2 Modèles utilisés pour les simulations de réacteur FCC	47
2.3 Transferts dans un écoulement gaz-goutte-particule	49
2.3.1 Analyse locale de l'interaction particule-goutte	49
2.3.2 Etudes expérimentales de l'évaporation d'un spray dans un lit fluidisé	53
2.3.3 Simulations numériques, modélisation globale	54
3 Modélisation de la réaction de craquage catalytique FCC	57
3.1 Description	57

3.2	Etude bibliographique des modèles de craquage catalytique	59
3.2.1	Modèle à 3 lumps de Weekman & Nace (1970)	59
3.2.2	Modèles à 4 lumps de Gupta	60
3.2.3	Modèles à 5 ou 6 lumps	60
3.2.4	Modèles plus complexes	63
3.3	Comparaison et sensibilité des différents modèles	63
3.3.1	Comparaison des modèles à 5 ou 6 familles	64
3.3.2	Influence de la charge utilisée	67
3.3.3	Influence de la température	70
3.3.4	Influence de la présence en catalyseur	70
3.4	Modèles utilisés dans les simulations de réacteur FCC	70
4	Modélisation des écoulements polyphasiques	75
4.1	Modélisation de la phase continue	75
4.1.1	Rappel des équations locales	75
4.1.2	Fonction indicatrice de phase	76
4.1.3	Opérateur de moyenne statistique	77
4.1.4	Equations de la phase continue en grandeurs moyennes principales	78
4.1.5	Bilan de masse	78
4.1.6	Bilan de fraction massique de vapeur	79
4.1.7	Bilan de quantité de mouvement	79
4.1.8	Bilan d'enthalpie	80
4.1.9	Modélisation de la turbulence de la phase continue	80
4.2	Modélisation des phases dispersées	82
4.2.1	Equation de transport de la fonction densité de probabilité des inclusions	82
4.2.2	Equations des moments des inclusions	85
4.2.3	Fermeture des termes de collision	89
4.2.4	Equation de la covariance des fluctuations de vitesse gaz-inclusion, q_{gk}	93
4.3	Fermeture des termes de transfert entre phases	94
4.3.1	Transfert de masse	95
4.3.2	Transfert de quantité de mouvement	95
4.3.3	Transfert d'enthalpie	96
5	Pénétration d'un jet gazeux horizontal dans un lit fluidisé par un gaz	99
5.1	Etude bibliographique	100
5.2	Protocole expérimental de Xuereb	102
5.2.1	Maquette de fluidisation	102

5.2.2	Simulation du protocole expérimental	104
6	Mise en place de la simulation de l'installation industrielle	111
6.1	L'installation de Grandpuits	111
6.1.1	Géométrie	111
6.1.2	Maillage	114
6.1.3	Phases en présence	114
6.1.4	Point de fonctionnement	116
6.2	Simulation effectuée	118
6.2.1	Le code <i>Saturne_Polyphasique@Tlse</i>	118
6.2.2	Conditions aux limites	119
6.2.3	Récapitulatif du jeu d'équation	119
6.2.4	Transferts modélisés	120
6.2.5	Aspects numériques	125
7	Simulation triphasique non réactive du réacteur FCC	127
7.1	Convergence des résultats	127
7.2	Analyse globale du lit	129
7.2.1	Pied de réacteur	129
7.2.2	Colonne principale	132
7.3	Comportement local de la zone d'injection	146
7.3.1	Oscillations des jets liquides	146
7.3.2	Comportement moyenné en temps	148
7.4	Analyse <i>a posteriori</i> des modèles de transfert	158
	Conclusion	160
8	Simulation triphasique réactive du réacteur FCC	161
8.1	Stratégie de calcul	161
8.2	Comportement global du lit	163
8.2.1	Analyse verticale moyennée en temps	163
8.2.2	Analyse radiale moyennée en temps	174
8.3	Zoom sur la zone d'injection	183
8.3.1	Influence de la réaction sur le comportement moyenné en temps des jets	183
8.3.2	Comportement moyenné en temps	184
8.4	Comparaison des résultats de simulation avec les mesures sur l'installation industrielle	196
8.4.1	Rendement du réacteur	196
8.4.2	Profils radiaux de composition	200

8.4.3	Mesure de densité du catalyseur	202
8.4.4	Profils de température	203
Conclusion	206
Conclusion		209
Bibliographie		210
Annexes		225
A	Modélisation à deux fluides du mélange gaz+gouttes et particules	225
A.1	Principe de la méthode	225
A.2	Equations de bilan	227
A.2.1	Bilan de masse	227
A.2.2	Bilan de quantité de mouvement	228
A.2.3	Bilan du nombre de gouttes de la phase continue	228
A.2.4	Bilan d'enthalpie	228
B	Test de sensibilité à la représentation bidimensionnelle dans le cas d'une injection pariétale de gaz dans une colonne verticale	231
B.1	Géométries étudiées	231
B.1.1	Cas « bidimensionnels »	231
B.1.2	Cas « tridimensionnel »	233
B.2	Paramètres de calcul	233
B.3	Résultats	234
C	Tests sur la précision du maillage utilisé	239
D	Paramètres numériques choisis dans Edamox	243
E	Convergence des calculs de moyenne	247

Nomenclature

Lettres latines

\mathcal{A}	Paramètre du modèle cinétique de Névicato (1996) (Eq. 3.12, p. 65).
\mathcal{A}_1	Paramètre du modèle cinétique de Névicato (1996) (Tab. 3.3, p. 66).
\mathcal{B}	Paramètre du modèle cinétique de Névicato (1996) (Eq. 3.13, p. 65).
c_p	Variable de l'espace des phases correspondant à la vitesse.
\vec{c}_{km}	Vitesse relative entre deux particules de type k et m en collision (cf. Eq. 4.44).
\mathbb{C}	Taux collisionnel moyen de variation des propriétés des inclusions.
C_d	Coefficient de traînée.
C_i	Concentration molaire de l'espèce i .
C_μ	Constante du modèle $k - \varepsilon$ (cf. Tab 4.1, p. 82).
$C_{\varepsilon,1}, C_{\varepsilon,2}, C_{\varepsilon,3}$	Constantes du modèle $k - \varepsilon$ (cf. Tab 4.1, p. 82).
CTO	Rapport massique catalyseur sur charge.
d_k	Diamètre moyen des inclusions de la phase dispersée k .
d_{km}	Diamètre moyen de deux particules de type k et m en collision (cf. Eq. 4.43).
D_g^t	Coefficient de diffusion turbulente de la phase gazeuse.
D_{gk}^t	Tenseur de dispersion turbulente gaz-inclusion k .
$D_{k,ij}^t$	Coefficient de dispersion efficace de la phase dispersée k .
e_c	Coefficient de restitution lors des collisions.
E	Paramètre du modèle cinétique de Névicato (1996) (Tab. 3.3, p. 66).
E_i	Energie d'activation de la réaction i .
F	Paramètre du modèle cinétique de Névicato (1996) (Tab. 3.3, p. 66).
$F_{r,i}$	Force de perturbation due à la présence de la particule dans la direction i .
g_i	Accélération de la pesanteur dans la direction i .
g_0	Fonction d'autocorrélation de paire (cf. Eq. 4.75, p. 4.75).
g_{km}	Fonction radiale de distribution au point de contact des particules de classe k et m en collision (cf. Eq. 4.85, p. 92).
h	Enthalpie locale instantanée.

H_k	Enthalpie totale moyenne de la phase k .
h_k''	Fluctuation de l'enthalpie de la phase k .
H_σ	Enthalpie moyenne de l'interface d'un type d'inclusions.
$I_{k,i}$	Transfert interfacial de quantité de mouvement obtenu après soustraction de la contribution de la pression moyenne de la phase continue, pour la phase k , dans la direction i .
$I'_{k,i}$	Force due à la perturbation locale de l'écoulement induite par la présence de l'inclusion de type k
$k_{i,0}$	Constante cinétique de référence de la réaction i .
k_i	Constante cinétique de la réaction i .
K_g^t	Coefficient de diffusion turbulente pour la phase gazeuse.
$K_{k,i,j}^t$	Tenseur de dispersion pour l'enthalpie des phases dispersées.
\mathcal{M}	Taux maximal de coke absorbé par le catalyseur dans le modèle cinétique de Névicato (1996) (Tab. 3.3, p. 66).
m_k	Masse d'une inclusion de type k .
Nu_k	Nombre de Nusselt de la phase k .
n_k	Nombre d'inclusions de type k par unité de volume du mélange polyphasique.
p	Pression instantanée locale .
P_g	Pression moyenne de la phase gazeuse .
Pr	Nombre de Prandtl (cf. Eq. 2.16, p. 32).
q_i	Flux de chaleur instantané local par conduction.
q_k^2	Energie cinétique turbulente de la phase k .
q_{gk}	Covariance des fluctuations de vitesse entre la phase porteuse et la phase dispersée k .
Q_k	Flux de chaleur par conduction pour la phase k .
R	Constante des gaz parfaits.
Re_k	Nombre de Reynolds de la phase k .
Re_S	Nombre de Reynolds superficiel.
Sc	Nombre de Schmidt de la phase porteuse.
Sh	Nombre de Sherwood.
S_{km}	Terme source dû aux collisions de la phase dispersée k avec les autres phases dispersées dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement de la phase k .
t	Temps.
T	Température instantanée locale.

$U_{k,i}$	Vitesse moyenne de la phase k dans la direction i .
$u''_{k,i}$	Fluctuation de vitesse de la phase k dans la direction i .
$U_{\sigma,i}$	Vitesse moyenne de l'interface d'un type d'inclusions dans la direction i .
$V_{d,k,i}$	Vitesse de dérive moyenne entre la phase porteuse et la phase k dans la direction i .
$V_{r,k,i}$	Vitesse relative moyenne entre la phase porteuse et la phase k dans la direction i .
W_i	Masse molaire de l'espèce i .
x_i	Variable d'espace dans la direction i .
Y_i	Fraction massique instantanée locale de l'espèce i .
Y_{CV}	Fraction massique moyenne de charge vaporisée.
y''_{CV}	Fluctuation de la fraction massique moyenne de charge vaporisée.
\mathcal{Y}_c	Fraction massique du constituant c au sein de la phase continue dans la modélisation triphasique homogène (cf. section ??, p. ??).

Lettres grecques

α_k	Fraction volumique de la phase k .
α_k^*	Taux de présence équivalent des phases dispersées autres que la phase k (cf. Eq. 4.57, p. 4.57).
Γ_k	Densité volumique des apports de masse à la phase k .
Γ_i^R	Densité volumique de création/disparition de masse de l'espèce i dans la réaction de craquage catalytique.
δ	Symbole de Kronecker.
ε	Taux de vide du réacteur pour le modèle de cinétique de Névicato (1996) .
ε_g	Taux de dissipation turbulente de la phase gazeuse.
ε_{gk}	Terme de destruction de la covariance (cf. Eq. 4.102, p. 94).
ζ_p	Variable de l'espace des phases correspondant à l'enthalpie.
θ_r	Température relative instantanée locale.
Θ_g	Tenseur des contraintes visqueuses de la phase gazeuse.
λ_g	Conductivité thermique de la phase gazeuse.
μ_g	Viscosité dynamique du mélange gazeux.
μ_p	Variable de l'espace des phases correspondant à la masse.
ν_g^f	Viscosité turbulente de la phase gazeuse.
ν_{gk}^f	Viscosité turbulente fluide-inclusion (cf. Eq. 4.100, p. 93).
ν_k^{kin}	Viscosité cinétique de la phase k (cf. Eq. 4.56, p. 88).
ν_k^{col}	Viscosité collisionnelle de la phase k .
Π_k	Densité volumique des apports d'enthalpie à la phase k résultant des échanges aux interfaces.
Π_k'	Echange d'enthalpie lié à la perturbation locale de l'écoulement induite par la présence de l'inclusion de type k .
$\Pi_{qg}, \Pi_{\varepsilon g}$	Termes sources représentant l'influence du mouvement fluctuant des inclusions sur la turbulence de la phase porteuse.
ρ	Masse volumique instantanée locale.
ρ_k	Masse volumique moyenne (au sens de moyenne de phase) de la phase k .
σ_c	Paramètre du modèle d'agitation des phases dispersées (Eq. 4.58, p. 88).
σ_{ij}	Tenseur des contraintes instantané local.
σ_g	Nombre de Schmidt turbulent de la phase gazeuse.
$\sigma_q, \sigma_\varepsilon$	Constante du modèle $k - \varepsilon$ (cf. Tab 4.1, p. 82).
τ_{ij}	Partie dissipative instantanée locale du tenseur des contraintes σ_{ij} .
τ_g^f	Temps caractéristique des échelles de la turbulence de la phase gazeuse.

τ_{gk}^F	Temps de relaxation moyen des inclusions de type k (cf. Eq. 4.27, p. 81).
τ_{gk}^t	Temps caractéristique de la turbulence du fluide vue par les inclusions de type k (cf. Eq. 4.101, p. 94).
τ_{gk}^T	Temps de relaxation moyen de la température des inclusions de type k (cf. Eq. 4.77, p. 91).
τ_{km}^c	Temps de collision entre les particules de classe k et celles de classes m .
$\tau_{k,poly}^c$	Temps effectif de collision entre les inclusions de type k et toutes les autres inclusions (cf. Eq. 4.60, p. 89).
Φ_c	Paramètre du modèle d'agitation des phases dispersées (Eq. 4.59, p. 88).
Φ, ϕ, ϕ_c	Fonctions d'activité du catalyseur.
χ_k	Fonction indicatrice de la phase k .
χ_k^d	Nombre d'inclusions par unité de masse de la phase k .
$x_k^{d''}$	Fluctuations du nombre d'inclusions par unité de masse de la phase k .
Ω	Volume de contrôle.

Indices

<i>CV</i>	Charge Vaporisée (vapeur d'hydrocarbure).
<i>ess</i>	Essence.
<i>FG</i>	Fuel Gas.
<i>injec</i>	Valeurs en injections au niveau des injecteurs de charge.
<i>g</i>	Mélange gazeux.
<i>k</i>	Indice générique de phase.
<i>l</i>	Phase liquide (gouttes d'hydrocarbure).
<i>lit</i>	Valeurs en injection au niveau de l'entrée du lit fluidisé dans l'installation de GrandPuits.
<i>LCO</i>	Light Cycle Oil.
<i>LPG</i>	Liquified Petroleum Gas.
<i>p</i>	Particules de catalyseur.
<i>VE</i>	Vapeur d'eau.
∞	Valeur à l'infini.

Opérateurs

$\langle . \rangle_k$	Moyenne phasique sur la phase k .
$\bar{\cdot}$	Moyenne temporelle.
$ \cdot $	Moyenne par section.
$\{\cdot\}$	Moyenne sur un ensemble de points de mesures.

Abréviations

CTO	Catalyst To Oil ratio.
DSV	Distillat sous vide.
FCC	Fluid Catalytic Cracking.
FG	Fuel Gas.
GP	Installation industrielle de GrandPuits.
LCO	Light Cycle Oil.
LPG	Liquified Petroleum Gas.
pdf	Probability density function.
qdm	Quantité de mouvement.

Introduction

Le pétrole est devenu, à partir des années 50, la première source d'énergie dans le monde. Sa forte densité énergétique en fait la matière première des carburants qui alimentent les transports (voitures, camions, avions, etc.). Si le pétrole est principalement utilisé en tant que carburant, c'est aussi une matière première irremplaçable utilisée par l'industrie de la pétrochimie pour un nombre incalculable de produits de la vie quotidienne : matières plastiques, peintures, colorants, cosmétiques, etc. Le pétrole sert aussi comme combustible dans le chauffage domestique et comme source de chaleur dans l'industrie, mais dans une moindre mesure. Le pétrole, qui représente le combustible liquide le plus abondant sur la planète, voit sa réserve diminuer au cours du temps pour n'être évaluée actuellement que pour une durée d'une quarantaine d'années au rythme actuel (Barbusiaux & Bauquis, 2005).

Pour économiser ce combustible, l'utilisation du pétrole est de plus en plus spécifique et son raffinage de plus en plus poussé.

La simulation des écoulements fluides dans des configurations industrielles est en pleine expansion. En effet, les modèles mis au point dans les laboratoires de recherche sont de plus en plus complets et performants et la puissance de calcul disponible ne cesse de croître et permet actuellement d'envisager de telles simulations. La simulation numérique est de ce fait devenu un outil prédictif incontournable pour le développement et l'optimisation de procédés industriels existants (aéronautique, automobile, dispersion de polluants, turbomachines).

La simulation numérique peut s'avérer être un outil utile à l'optimisation des procédés de raffinage du pétrole. Ainsi, ce travail de thèse financé par TOTAL s'intéresse à la simulation d'une installation industrielle de raffinage dans laquelle siège de nombreux mécanismes encore mal maîtrisés : une unité de craquage catalytique FCC (Fluid Catalytic Cracking) et plus particulièrement la partie réacteur¹. Ce procédé favorise le rendement en essence dont la demande est actuellement soutenue par le marché américain.

Dans un réacteur FCC, le catalyseur constitué de particules solides est transporté par de la va-

1. Une unité de craquage catalytique FCC se divise en plusieurs entités qui seront détaillées par la suite, la partie réacteur sera la problématique centrale de ce manuscrit.

peur d'eau sous forme d'un lit fluidisé². En pied de réacteur, les hydrocarbures lourds sont injectés sous forme d'un spray liquide de gouttes d'hydrocarbures. Ces gouttes s'évaporent et la réaction de craquage (transformation des hydrocarbures lourds en produits plus légers) se déroule ensuite grâce à l'action des particules de catalyseur. L'écoulement au sein du réacteur est donc triphasique (gaz-goutte-particule) et réactif.

Une telle installation met donc en jeu des mécanismes physiques très divers ; c'est pourquoi les sujets de recherche sur ce thème sont nombreux : étude de l'hydrodynamique, interaction du spray de gouttes avec le lit fluidisé, réaction de craquage, etc.

De nombreuses études numériques ont été consacrées à l'étude de ce procédé. Certaines se sont intéressées uniquement à l'hydrodynamique du système qui a une influence importante sur le rendement du réacteur ; on citera par exemple [Neri & Gidaspow \(2000\)](#), [Petit \(2005\)](#) ou [Hansen \(2005\)](#) qui ont étudié des écoulements gaz-particule au sein d'installations FCC dimensionnées à l'échelle du laboratoire. Ces études permettent de dégager les principales caractéristiques d'un lit fluidisé circulant de FCC et de valider les codes de simulation en comparaison à la mesure. Elles ont permis, en outre, de mettre en évidence la nécessité de simulations tridimensionnelles ([De Wilde *et al.*, 2003](#)).

La réaction de craquage catalytique ayant un impact fort sur l'hydrodynamique au sein d'un réacteur FCC, elle a été prise en compte par des auteurs comme [Theologos & Markatos \(1993\)](#), [Theologos *et al.* \(1997\)](#), [Gao *et al.* \(1999\)](#) et [Das \(2002\)](#). Cependant, ces simulations ne sont pas complètement représentatives puisqu'elles ne prennent pas en compte l'aspect triphasique gaz-goutte-particule de l'écoulement en supposant une vaporisation instantanée des gouttes de charge.

Dans les travaux de [Theologos *et al.* \(1999\)](#), [Gao *et al.* \(2001\)](#) et plus récemment [Nayak *et al.* \(2005\)](#), l'aspect triphasique de l'écoulement est pris en compte en plus de la réaction de craquage. Cependant, aucune étude considère la géométrie complète du réacteur et en particulier la zone spécifique d'injection de charge qui est cruciale pour la sélectivité du réacteur³ ([Mauléon & Courcelle, 1985](#)).

Une étude sur un réacteur FCC TOTAL a été menée à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse par [Albrecht \(2001\)](#). Elle a, dans un premier temps, permis de mettre en place une simulation eulérienne grâce au développement d'un modèle à deux fluides homogène⁴ sur une géométrie industrielle bidimensionnelle afin de caractériser la zone d'injection de charge du réacteur. Dans un

2. Lit fluidisé : technique dans laquelle un courant ascendant d'un fluide contrebalance le poids apparent des particules qui s'écoulent alors comme un fluide.

3. La sélectivité d'un réacteur FCC peut être définie comme la répartition en proportion des produits valorisables en sortie de réacteur.

4. La phase continue est constituée du mélange gazeux et des gouttes de charge sans vitesse de glissement entre ces deux phases, la phase dispersée sont les particules de catalyseur.

deuxième temps, l'expérimentation numérique⁵ a permis d'étudier les transferts dans cette zone. Cette deuxième partie a abouti à la conclusion qu'une modélisation triphasique complète était nécessaire.

Cette rapide présentation de l'état de l'art de la simulation des réacteurs à lit fluidisé FCC montre la multiplicité de phénomènes complexes mis en jeu et à prendre en compte dans une telle simulation. L'étude présentée dans ce mémoire a donc pour ambitieux objectif de mettre en place une simulation instationnaire tridimensionnelle triphasique gaz-goutte-particule avec prise en compte des transferts massiques et thermiques et de la réaction de craquage d'une unité industrielle FCC.

Ce mémoire s'articule en huit chapitres.

Le premier chapitre est dédié à la présentation générale du contexte industriel et du fonctionnement d'une unité de craquage catalytique FCC. Il permet de dégager les mécanismes physiques intervenants dans un réacteur de craquage catalytique FCC.

Le chapitre 2 présente les différents transferts massiques, dynamiques et thermiques que l'on peut rencontrer dans un réacteur FCC et la manière dont on peut les modéliser.

Le chapitre 3 présente la réaction de craquage catalytique, la façon dont on peut la modéliser et l'influence de différents paramètres sur son intensité.

Le chapitre 4 présente le modèle polyphasique (écoulement d'une phase continue comprenant des inclusions) utilisé et implanté dans le code *Saturne_Polyphasique@Tlse*. L'attention est portée sur l'intégration des modèles de transferts massiques, dynamiques et thermiques présentés aux chapitres précédents.

Le chapitre 5 constitue une validation du modèle polyphasique dans le cas particulier de l'injection pariétale horizontale d'un gaz dans un lit fluidisé par un gaz.

Le chapitre 6 présente le réacteur du FCC de la raffinerie de Grandpuits qui sera l'installation industrielle simulée.

Les chapitres 7 et 8 présentent les résultats des simulations non réactive et réactive de l'installation industrielle.

5. Simulation numérique directe pour le gaz avec suivi Lagrangien des inclusions (DNS/LES).

Chapitre 1

Position du problème

1.1 Généralités sur le raffinage

Le raffinage du pétrole est une industrie lourde destinée à transformer un mélange d'hydrocarbures (pétrole brut) en produits énergétiques, tels que carburants et combustibles, et en produits non énergétiques, tels que matières premières pétrochimiques, lubrifiants, paraffines et bitumes.

La transformation des pétroles bruts s'effectue dans les raffineries, usines à feux continus et très automatisées, qui sont plus ou moins complexes selon la gamme des produits fabriqués et selon la qualité des pétroles bruts. La complexité d'une raffinerie se traduit par le nombre d'unités de fabrication. Le schéma simplifié d'une raffinerie, présenté sur la figure 1.1, permet de localiser les différentes étapes du processus complet de raffinage ainsi que les produits finis et leur utilisation. Ces unités utilisent des procédés physiques ou chimiques que l'on peut classer en trois catégories :

1. les procédés de séparation,
2. les procédés de conversion,
3. les procédés d'épuration.

Les procédés de séparation ont pour principe de séparer deux phases ayant une composition en hydrocarbures différente. On peut citer par exemple la distillation atmosphérique, la distillation sous vide ou la cristallisation.

Les procédés de conversion utilisent des réactions chimiques purement thermiques ou bien catalysées : craquage thermique, craquage catalytique, hydrocraquage, etc.

Les procédés d'épuration ont pour but de débarrasser les produits obtenus des composants indésirables car nocifs pour les utilisateurs ou l'environnement. On citera parmi ces procédés la désulfuration ou le dessalage.

Cette étude traite plus particulièrement du procédé de conversion appelé craquage catalytique FCC pour Fluid Catalytic Cracking.

1.2 Le craquage catalytique FCC (Fluid Catalytic Cracking)

Le principal intérêt des procédés de craquage (qu'ils soient thermiques, catalytiques, avec ou sans apport d'hydrogène) est qu'ils augmentent la quantité de produits légers. Le craquage catalytique quant à lui présente l'avantage de pouvoir traiter des hydrocarbures ayant une teneur en soufre et en métaux relativement importante, tout en garantissant une forte proportion de produits légers en sortie. Il permet ainsi d'obtenir de l'essence ayant un indice d'octane supérieur à 90, du gazole et d'autres sous-produits (GPL, etc.).

Le catalyseur utilisé dans une unité FCC est un catalyseur solide (particules) au sein duquel la réaction de craquage a lieu.

Le procédé de craquage catalytique (ou FCC) fut la première application de fluidisation des poudres fines. Depuis sa commercialisation en 1936 par Eugène Houdry, le craquage catalytique est devenu l'un des plus importants procédés de raffinage. Le craquage en lit fluidisé circulant a été introduit en 1941. Il demeure jusqu'à nos jours la technologie dominante en raison de sa flexibilité. La première unité commerciale fut construite en 1942. Plus de cinquante ans plus tard, le FCC est encore l'application principale de la fluidisation avec plus de 350 unités en fonctionnement à travers le monde. Les unités FCC convertissent les hydrocarbures lourds et les résidus de pétrole en hydrocarbures plus légers comme l'essence, le diesel et les gaz légers.

La partie réactionnelle type d'une unité FCC est représentée Fig. 1.2. On distingue les différentes parties du procédé :

- le riser : lieu où se déroule la réaction de craquage grâce à l'injection de la charge lourde en pied de riser au sein d'un lit de catalyseur chaud et circulant. Dans cette partie, le coke, produit solide de la réaction se dépose sur le catalyseur et le désactive : c'est un produit indésirable de la réaction car il la ralentit.
- le désengageur : lieu de séparation des produits de craquage et du catalyseur usé qui comporte souvent une séparation primaire en sortie de riser et une séparation secondaire cyclonique. Les gaz craqués sont dirigés vers le fractionnement primaire pour distillation et traitement spécifique pour la valorisation,
- le stripper où a lieu la séparation ultime des gaz craqués et du catalyseur usé,
- le régénérateur dans lequel le catalyseur est régénéré, c'est-à-dire débarrassé du coke créé par la réaction, par combustion en lit fluidisé dense. Une fois régénéré, le catalyseur est renvoyé en pied de riser pour un nouveau cycle réactionnel.

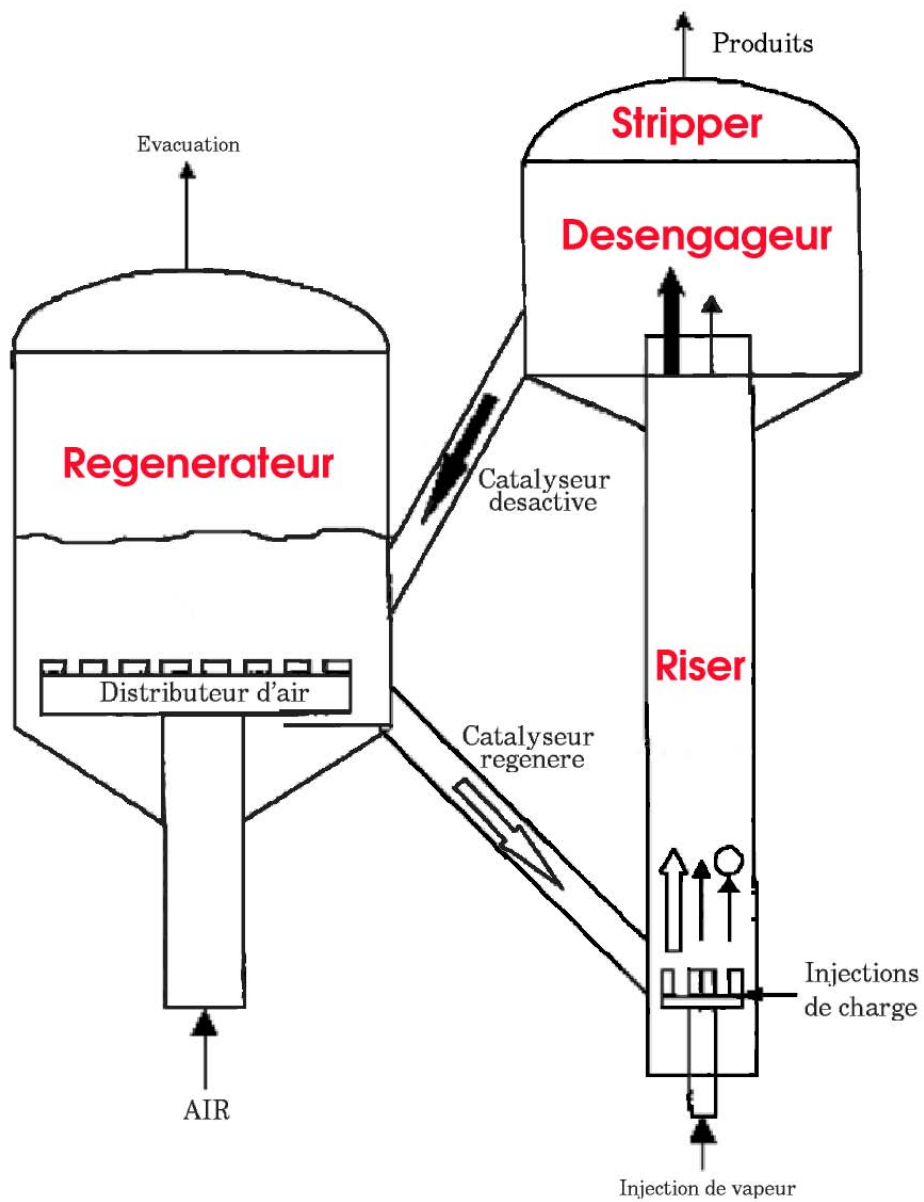


FIGURE 1.2 – Schéma d'une unité de craquage catalytique, d'après Gupta & Rao (2003).

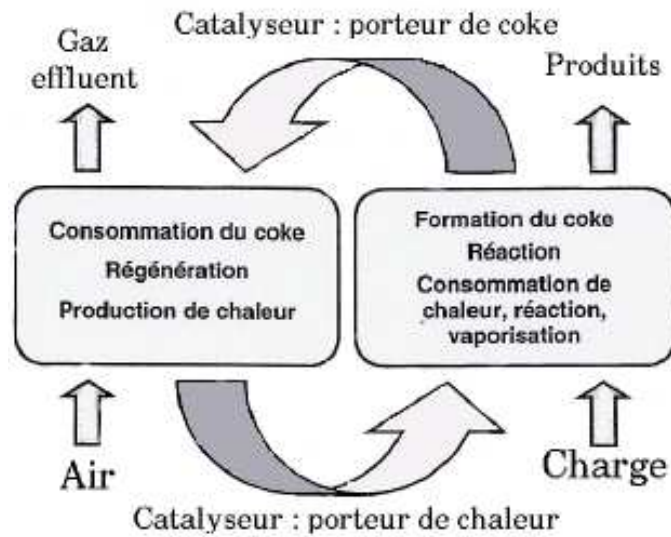


FIGURE 1.3 – Cycle réaction-régénération dans le procédé FCC, d'après Gauthier et al. (2000).

Le cycle réaction-régénération est représenté schématiquement sur la figure 1.3. Elle montre que la chaleur produite lors de la combustion du coke, emmagasinée par les particules de catalyseur, permet d'entretenir les réactions endothermiques et de compenser les fortes pertes thermiques de l'unité.

L'objectif du présent manuscrit est la modélisation des principaux phénomènes se déroulant dans la zone d'injection de charge en pied de riser.

La charge pétrolière est introduite à la base du riser sous forme de fines gouttelettes à une température voisine de 300°C . Au contact de l'écoulement chaud à l'intérieur du réacteur (température voisine de 750°C), les gouttelettes se vaporisent. La charge vaporisée constituée de chaînes carbonées longues se transforme en hydrocarbures plus légers (chaînes carbonées plus courtes) grâce à l'action des particules de catalyseur FCC.

Du point de vue de la modélisation physique, l'écoulement à l'intérieur du réacteur est un lit fluidisé circulant.

1.3 Les lits fluidisés

Les lits fluidisés sont couramment utilisés tant dans l'industrie énergétique (raffinage du pétrole, chaudières à charbon, combustion de biomasse) que dans l'industrie chimique (polymérisation) ou pharmaceutique (production de médicaments).

L'hydrodynamique des lits fluidisés a été analysée de manière très complète entre autres par [Lim et al. \(1995\)](#). On distingue, parmi les lits fluidisés, les lits fluidisés non circulants où les particules solides restent en permanence dans le réacteur et les lits fluidisés circulants où le solide circule en boucle fermée comme décrit section 1.2. Ce type de lits est surtout utilisé pour la production d'énergie.

La modélisation hydrodynamique des lits fluidisés circulants a intéressé de nombreux auteurs. Globalement, on distingue plusieurs approches de modélisation des lits fluidisés circulants classifiées de la manière suivante par [Marmo et al. \(1999\)](#) :

1. **les modèles piston** ou modèles monodirectionnels. Ce type de modèles plus ou moins complexes se rencontrent souvent dans la littérature, on citera pour exemple les travaux de [Kunii & Levenspiel \(2000\)](#). Ces modèles tentent de représenter la distribution axiale de solide dans le réacteur mais il leur manque le caractère polydimensionnel de l'écoulement dans un lit fluidisé circulant.
2. **les modèles cœur-anneau**. On citera parmi les études utilisant ce modèle les travaux de [Harris et al. \(2002a,b\)](#) ou, plus récemment, [Zhu et al. \(2005\)](#). Ces modèles ont été introduits pour tenir compte de l'hétérogénéité radiale de l'écoulement en divisant la section du riser en une zone diluée au centre et une zone dense près des parois. L'inconvénient de ces modèles est qu'ils nécessitent des données expérimentales, notamment sur le profil axial de pression, et de plus ne donnent pas accès à toutes les grandeurs qualifiant l'écoulement.
3. **les modèles locaux**. Ils découlent de l'écriture des équations locales de conservation classiques en mécanique des fluides et sont donc beaucoup moins empiriques. Ils présentent l'avantage de prendre en compte plus de physique que les deux catégories de modèles cités plus haut. On distingue deux types de modèles locaux :
 - (a) **les modèles Euler/Lagrange** ou modèles discrets. Dans ce type d'approche, le fluide est modélisé en terme d'équations de Navier-Stokes moyennées en volume. La résolution se fait soit par une méthode de discrétisation soit par une méthode statistique de Monte Carlo. Pour les particules, la modélisation est basée sur les équations des trajectoires de toutes les particules en tenant compte des effets de collisions interparticulaires et des forces du gaz agissant sur les particules. Parmi les auteurs utilisant cette modélisation pour les lits fluidisés, on citera [Hoomans et al. \(1996, 2001\)](#); [Helland et al. \(2000\)](#) ou bien encore [Zhou et al. \(2002\)](#). Cette approche ne nécessite que très peu d'hypothèses de modélisation et on la qualifie d'*expérience numérique*. Ainsi, ce type d'approche est particulièrement intéressant pour prédire le comportement des milieux diphasiques denses et peut guider et valider une modélisation eulérienne pour les phases dispersées. Toutefois, le temps

de calcul est fonction du nombre de particules considéré. Ainsi, le nombre de particules que ce modèle peut prendre en compte est nettement inférieur au nombre de particules rencontré dans la plupart des lits fluidisés industriels. Ce type de modélisation coûte donc particulièrement cher en temps de calcul, c'est pourquoi les modèles continus s'avèrent être un choix plus judicieux pour les simulations numériques de systèmes industriels tels que les lits fluidisés circulants.

- (b) **les modèles Euler/Euler** ou modèles continus. Ces modèles sont appelés aussi « modèles à deux fluides », et considèrent les différentes phases comme des phases continues s'interpénétrant. Il existe plusieurs méthodes pour obtenir le jeu d'équations eulériennes décrivant un écoulement polyphasique. La présente étude s'appuiera sur la théorie cinétique des milieux granulaires. L'avantage de cette catégorie de modèles est un coût moindre au niveau du temps de calcul : [Ibsen *et al.* \(2004\)](#) concluent à un temps de calcul 100 fois inférieur à une simulation de type Euler/Lagrange. Des modèles adaptés permettent toutefois d'obtenir des résultats pertinents et en accord avec l'expérience ([Batrak *et al.* \(2005\)](#), [Petit *et al.* \(2005\)](#)). Cette modélisation est détaillée au chapitre 4.

Ce chapitre a permis de situer le travail de recherche dans son contexte industriel mais aussi de mettre en évidence la complexité du procédé due aux nombreux mécanismes physiques mis en jeu. La compréhension des transferts en milieu triphasique gaz-goutte-particule n'est pas triviale et le chapitre 6.5 permet d'expliquer ces mécanismes et la façon dont on peut les prendre en compte dans le cadre d'une simulation numérique.

Chapitre 2

Transferts en écoulement gaz-particule

Comme expliqué au chapitre précédent, l'écoulement à l'intérieur d'un réacteur à lit fluidisé est complexe : tridimensionnel, instationnaire, multiphasique, réactif, turbulent avec transfert de masse et de chaleur.

La modélisation de ces transferts est cruciale pour la pertinence de la simulation mais non triviale à mettre en place. Ce chapitre a pour but d'introduire les différents modèles de transferts dynamique, massique et thermique disponibles dans la littérature, et de les comparer afin d'orienter le choix des modèles utilisés dans la simulation.

2.1 Transferts en écoulement gaz-particule solide

Dans cette section, nous nous intéressons aux transferts dynamique et thermique dans un écoulement gaz-particule. Nous détaillerons successivement la modélisation de ces transferts pour une particule isolée puis dans un écoulement gaz-particule dense.

2.1.1 Transferts dynamiques en écoulement gaz-particule

Le mouvement d'une inclusion dans un fluide est fortement influencé par la force qu'exerce le fluide sur cette particule. La force exercée par un fluide sur une particule contient deux composantes :

1. la poussée d'Archimède,
2. l'intégrale des contraintes à la surface du fluide.

La force exercée par un fluide sur un objet quelconque s'écrit donc :

$$\vec{F} = \int_S (\vec{\nabla}P + \bar{\bar{\sigma}} \cdot \vec{n}) dS \quad (2.1)$$

où :

- P est la pression moyenne dans le fluide,
- S est la surface extérieure de l'inclusion,
- $\bar{\sigma}$ est le tenseur des contraintes,
- \vec{n} est le vecteur normal sortant à la surface de l'inclusion.

Lorsque la vitesse moyenne du fluide est constante dans le temps, cette force est la force de traînée stationnaire. Elle est souvent exprimée sous la forme adimensionnelle suivante :

$$\vec{F} = \frac{1}{8} \pi d_p^2 \rho_g C_d \|\vec{U}_g - \vec{U}_p\| (\vec{U}_g - \vec{U}_p) \quad (2.2)$$

C_d est le coefficient de traînée qui est encore mal estimé dans le cas des lits fluidisés.

Coefficient de traînée pour une particule isolée

Pour exprimer le coefficient de traînée d'une inclusion isolée, sans évaporation¹, la littérature propose plusieurs corrélations basées sur le nombre de Reynolds particulaire. Ce nombre adimensionnel peut être défini comme le rapport de la viscosité sur l'inertie. Il s'exprime sous la forme :

$$\text{Re}_p = \frac{\rho_g d_p \|\vec{U}_g - \vec{U}_p\|}{\mu_g} \quad (2.3)$$

Les corrélations disponibles dans la littérature sont celles de :

- Schiller & Nauman (1935) :

$$\begin{aligned} C_d &= \frac{24}{\text{Re}_p} (1 + 0,15 \text{Re}_p^{0,687}) \quad \text{pour } \text{Re}_p < 1000 \\ &= 0,438 \quad \text{pour } \text{Re}_p \geq 1000 \end{aligned} \quad (2.4)$$

- Clift *et al.* (1978) :

$$C_d = \frac{24}{\text{Re}_p} (1 + 0,1935 \text{Re}_p^{0,6305}) \quad \text{pour } \text{Re}_p \leq 1000 \quad (2.5)$$

- Rudinger (Clift *et al.*, 1978) :

$$C_d = \frac{24}{\text{Re}_p} \left(1 + \frac{1}{6} \text{Re}_p^{2/3} \right) \quad \text{pour } \text{Re}_p \leq 1000 \quad (2.6)$$

- White (Clift *et al.*, 1978) :

$$C_d = \frac{24}{\text{Re}_p} \left(\frac{6}{1 + \text{Re}_p^{1/2}} \right) + 0,4 \quad \text{pour } \text{Re}_p \leq 200 \quad (2.7)$$

1. L'évaporation peut entraîner une modification du coefficient de traînée d'une inclusion, ce point sera discuté par la suite.

– Mulholland *et al.* (1988) :

$$C_d = \frac{24}{Re_p} (1 + 0,11Re_p^{0,687}) \text{ pour } 25 \leq Re_p \leq 300 \quad (2.8)$$

– Virepinte (1999) :

$$C_d = \frac{24}{Re_p} (1 + 0,12Re_p^{0,687}) \text{ pour } 20 \leq Re_p \leq 120 \quad (2.9)$$

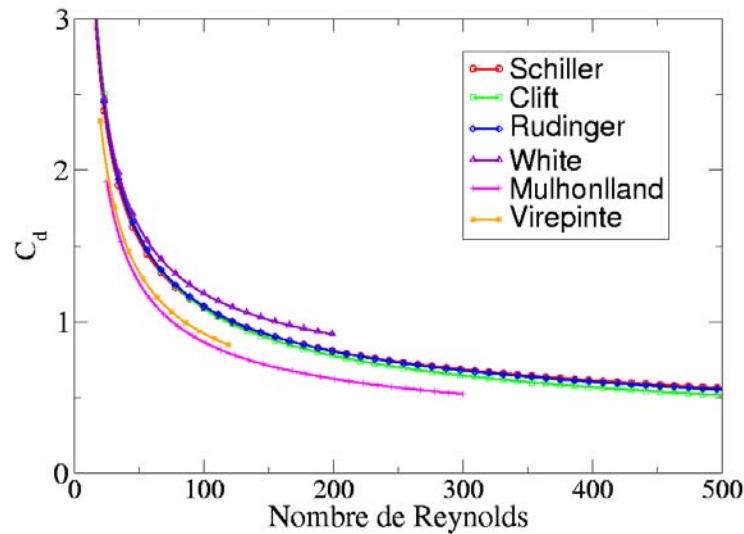


FIGURE 2.1 – Comparaison des corrélations pour le coefficient de traînée d’une particule isolée en fonction du nombre de Reynolds particulaire.

Comme le montre la figure 2.1, les corrélations proposées pour une particule isolée sont nombreuses, mais finalement peu différentes entre elles. On prendra donc comme référence la corrélation la plus ancienne et encore la plus utilisée : celle de Schiller & Nauman (1935).

Coefficient de traînée dans un écoulement gaz-particule

Si la littérature permet d’utiliser des corrélations bien définies pour une particule isolée, il n’en n’est pas de même pour un réseau de particules et en particulier pour les lits fluidisés. Massol (2004) a analysé précisément les données bibliographiques disponibles sur ce sujet.

Le coefficient de traînée dépend de deux paramètres principaux : le nombre de Reynolds et la fraction volumique de particules. De nombreuses études, la plupart du temps expérimentales, se sont intéressées à la détermination de ce coefficient. Cependant, des différences significatives sont constatées, surtout lorsque la fraction volumique de particules devient élevée.

La tendance est d'utiliser une corrélation de la littérature en fonction de l'écoulement étudié. Ainsi, parmi les corrélations les plus utilisées, on trouve celle de [Wen & Yu \(1966\)](#) pour des écoulements relativement dilués et/ou des nombres de Reynolds élevés. Pour des écoulements plus denses, c'est généralement la corrélation d'[Ergun \(1952\)](#) qui est utilisée.

Dans les études de lits fluidisés, l'écoulement peut être dense ou dilué selon les régions, il est courant d'utiliser l'une ou l'autre de ces corrélations suivant le taux de présence en solide². C'est le cas de [Gidaspow \(1994\)](#) qui utilise la corrélation de [Wen & Yu](#) lorsque $\alpha_p \leq 0,2$ et celle de [Ergun](#) sinon. Cependant, ce choix entraîne d'importantes discontinuités du coefficient de traînée lorsque l'on passe d'une corrélation à l'autre, ce qui peut conduire à des incohérences dans les simulations.

On note que pour les lits fluidisés, les coefficients de traînée sont généralement exprimés en fonction du nombre de Reynolds superficiel :

$$Re_S = (1 - \alpha_p)Re_p \quad (2.10)$$

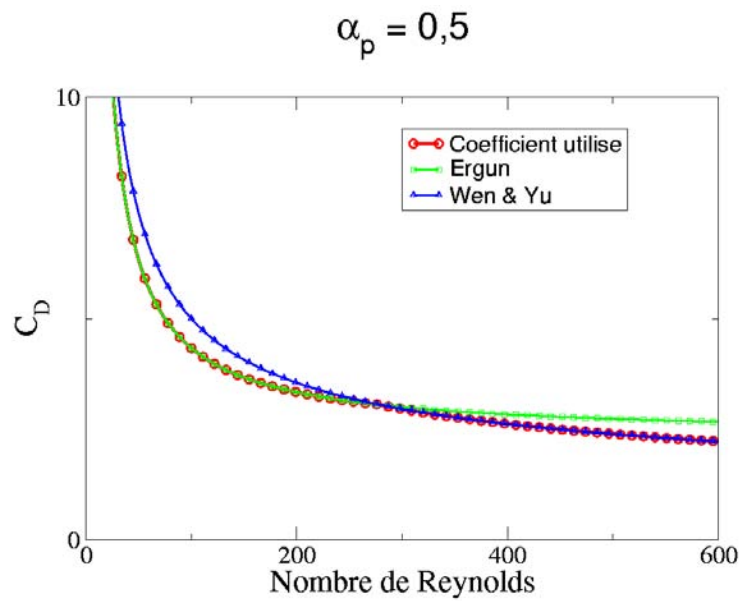


FIGURE 2.2 – Coefficient de traînée utilisé en fonction du nombre de Reynolds particulaire.

Pour éviter ce type de difficultés, nous suivrons la proposition de [Gobin et al. \(2003\)](#) et de [Petit et al. \(2005\)](#) en utilisant l'expression suivante du coefficient de traînée dans nos simulations :

$$\begin{aligned} C_d &= C_{d,Wen \& Yu} && \text{si } \alpha_p < 0,3 \\ &= \text{Min}(C_{d,Ergun}, C_{d,Wen \& Yu}) && \text{sinon} \end{aligned} \quad (2.11)$$

2. taux de présence en solide = fraction volumique de particules.

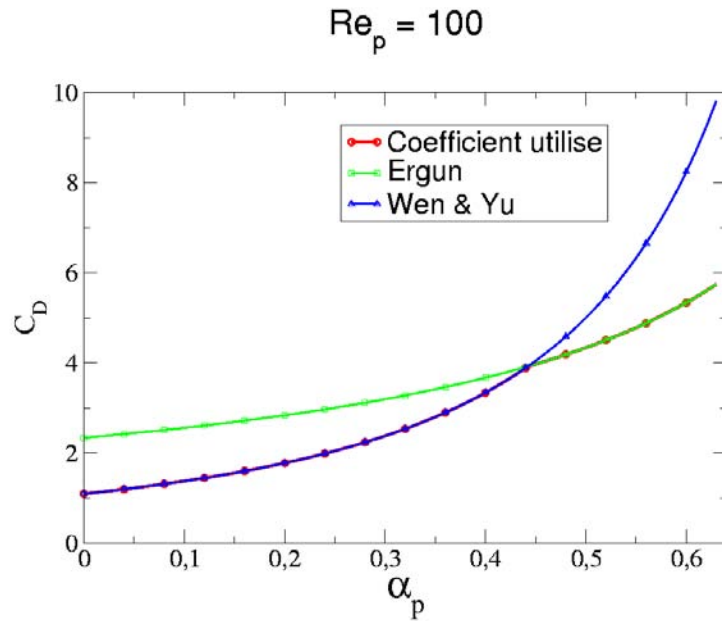


FIGURE 2.3 – Coefficient de traînée utilisé en fonction de la fraction volumique de particules.

avec

$$C_{d,Ergun} = 200 \frac{\alpha_p}{Re_S} + \frac{7}{3} \quad \text{Ergun (1952)} \quad (2.12)$$

$$C_{d,Wen \& Yu} = \frac{24}{Re_S} \left[1 + 0,15 Re_S^{0,687} \right] \alpha_g^{-1,7} \quad \text{pour } Re_S < 1000 \quad \text{Wen \& Yu (1966)}$$

$$= 0,44 \alpha_g^{-1,7} \quad \text{sinon} \quad (2.13)$$

Cette corrélation, validée par comparaison à l'expérience par [Gobin *et al.* \(2003\)](#), a par la suite été par les simulations DNS de [Massol \(2004\)](#) et de [Randrianarivelo \(2005\)](#).

Les figures 2.2 et 2.3 montrent la valeur du coefficient de traînée en fonction, respectivement, du nombre de Reynolds et du taux de présence en particules. La corrélation utilisée permet d'ajuster le coefficient de traînée au taux de présence en particules et au nombre de Reynolds particulaire sans créer de discontinuité.

2.1.2 Transferts thermiques en écoulement gaz-particule en régime dense

Echanges thermiques pour une inclusion isolée

L'intégration du bilan de flux thermique autour d'une particule isolée dans un fluide au repos permet d'écrire le flux thermique diffusif reçu par cette particule :

$$Q_p = \lambda_g \pi d_p Nu_p (T_{g,\infty} - T_p) \quad (2.14)$$

Les échanges thermiques sont généralement étudiés par la prise en compte du nombre adimensionnel de Nusselt qui compare les transferts de chaleur convectif et conductif :

$$\text{Nu}_p = \frac{d}{S(T_{g,\infty} - T_p)} \int_S \vec{\nabla}T \cdot \vec{n} dS \quad (2.15)$$

Dans les situations de diffusion pure (cas où la particule est immergée dans un gaz au repos), le nombre de Nusselt vaut 2. Pour prendre en compte les transferts dus à la convection, des auteurs ont proposé des corrélations utilisant les nombres de Prandtl et de Reynolds. Le nombre de Prandtl compare les transferts de quantité de mouvement associés aux forces visqueuses aux transferts de chaleur par conduction ; il s'exprime sous la forme :

$$\text{Pr} = \frac{\mu_g \rho_g C_{p,g}}{\lambda_g} \quad (2.16)$$

La corrélation pour le nombre de Nusselt la plus ancienne et toujours la plus utilisée est celle de [Ranz & Marshall \(1952\)](#) :

$$\text{Nu} = 2 + 0,55 \text{Re}_p^{1/2} \text{Pr}^{1/3} \quad (2.17)$$

valable pour :

$$\begin{aligned} 1 &\leq \text{Re}_p \leq 10000 \\ 0,6 &\leq \text{Pr} \leq 400 \end{aligned}$$

Une autre corrélation disponible est celle de [Clift *et al.* \(1978\)](#) :

$$\text{Nu} = \left[1 + (\text{Re}_p \text{Pr})^{-1} \right]^{1/3} \text{Re}^{0,41} \text{Pr}^{1/3} + 1 \quad (2.18)$$

valable pour :

$$\begin{aligned} 1 &\leq \text{Re}_p \leq 400 \\ 0,25 &\leq \text{Pr} \leq 1000 \end{aligned}$$

Dans ces deux corrélations, le nombre de Nusselt tend bien vers 2 lorsque le nombre de Reynolds particulaire est nul, c'est-à-dire lorsque l'inclusion se trouve en régime de diffusion pure. La figure 2.4 compare les valeurs du nombre de Nusselt obtenues avec ces deux corrélations. La tendance générale est la même pour les deux expressions, et les écarts entre les valeurs obtenues sont négligeables comparés aux ordres de grandeurs des nombres de Nusselt.

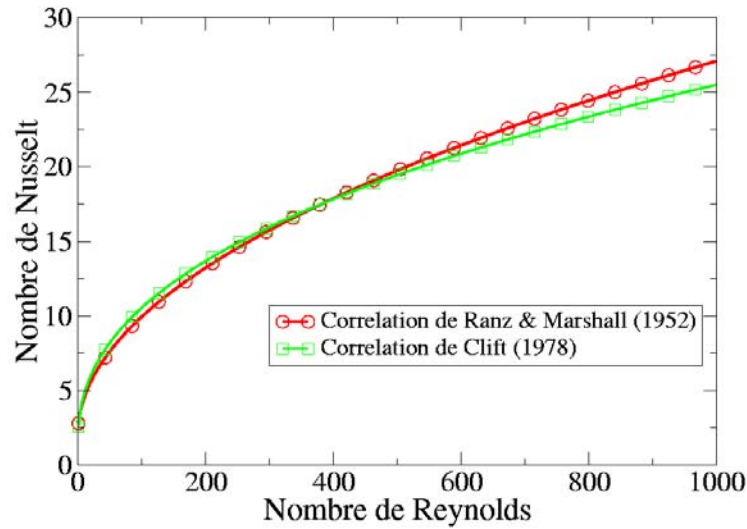


FIGURE 2.4 – Comparaison des corrélations de *Ranz & Marshall (1952)* et *Clift et al. (1978)* pour un nombre de Prandtl égal à 3.

Echanges thermiques dans un écoulement gaz-particule

Des travaux se sont intéressés à l'étude du transfert thermique entre les inclusions et le gaz environnant dans le cas de systèmes diphasiques à phases dispersées gaz-particule.

Pour un lit fixe, *Riquarts (1980)* reporte l'expression de Gnielinski :

$$\text{Nu} = (1 + 1,5\alpha_p) \text{Nu}_{\text{R\&M}} \quad (2.19)$$

où α_p est la fraction volumique de particules et $\text{Nu}_{\text{R\&M}}$ la corrélation de *Ranz & Marshall (1952)* pour une particule isolée.

Wakao et al. (1979) obtient la corrélation suivante pour les lits fixes :

$$\text{Nu} = 2 + 1,1 \text{Re}_s^{0,6} \text{Pr}^{1/3} \quad (2.20)$$

valable pour :

$$15 \leq \text{Re}_s \leq 8500$$

$$\text{Pr} = 0,7$$

Ranz & Marshall (1952) proposent la corrélation suivante pour un gaz s'écoulant avec une vitesse superficielle $U_S = \alpha_p U_r$ à travers un lit fixe de grosses particules :

$$\text{Nu} = 2 + 1,8 \text{Re}_s^{1/2} \text{Pr}^{1/3} \quad (2.21)$$

Rowe & Claxton (1965) ont mesuré expérimentalement le transfert thermique et de masse entre une sphère et un réseau de sphères identiques maintenues fixes les unes par rapport aux autres. Ils concluent à une corrélation de la forme :

$$\text{Nu} = A + B\text{Re}_S^n \text{Pr}^{1/3} \quad (2.22)$$

avec :

$$n = \frac{2 + 0,65\text{Re}_S^{-0,28}}{3(1 + 4,65\text{Re}_S^{-0,28})} \quad (2.23)$$

$$A = \frac{2}{1 - \alpha_p^{1/3}} \quad (2.24)$$

$$B = \frac{2}{3(1 - \alpha_p)} \quad (2.25)$$

Collier *et al.* (2004) propose un nombre de Nusselt pour quantifier le flux de chaleur reçu par une petite particule introduite dans un lit fluidisé de grosses particules de sable. Lorsque la vitesse de fluidisation est inférieure à la vitesse minimale de fluidisation, c'est-à-dire pour un lit fixe, il obtient la corrélation suivante :

$$\text{Nu} = 2 + 0,9\text{Re}_p^{0,62} \left(\frac{d_s}{d_p} \right)^{0,2} \quad (2.26)$$

Lorsque le lit est fluidisé, la valeur du nombre de Nusselt est constante et calculée avec la corrélation indiquée précédemment, le nombre de Reynolds étant calculé avec la vitesse minimum de fluidisation.

On remarque évidemment que cette corrélation ne prend pas en compte le taux de présence de particules. Asymptotiquement, lorsque le diamètre de la particule étudiée tend vers le diamètre des particules du lit fluidisé, on obtient la corrélation suivante :

$$\text{Nu} = 2 + 0,9\text{Re}_p^{0,62} \quad (2.27)$$

La comparaison des différentes corrélations montre qu'à nombre de Reynolds donné ou à fraction volumique de particule donnée, les corrélations diffèrent fortement (voir Fig. 2.5 et 2.6), et ne prédisent pas la même tendance. En effet, selon les corrélations de Ranz & Marshall en lit fixe et Wakao *et al.*, le nombre de Nusselt diminue avec l'augmentation du taux de présence de solide ; de leur côté, Rowe & Claxton et Gnielinski prédisent rigoureusement le contraire. Cependant tous les auteurs s'accordent sur le fait que le nombre de Nusselt augmente avec l'augmentation du nombre de Reynolds, mais ceci dans des proportions très variables suivant les auteurs (cf. Fig. 2.5).

Dans son étude du nombre de Nusselt dans un réseau de particules « cubique faces centrées », Massol (2004) conclut à une augmentation significative du nombre de Nusselt par rapport à une sphère

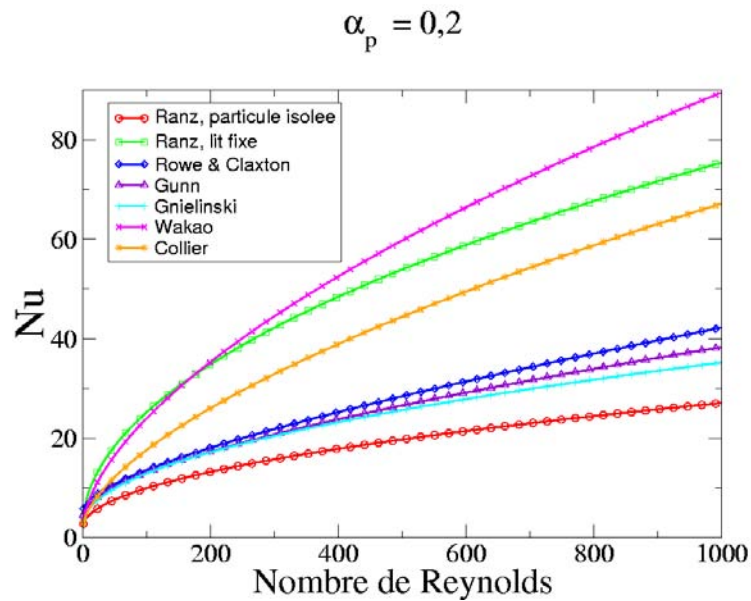


FIGURE 2.5 – Evolution du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds particulaire dans un système à phases dispersées gaz-particule, avec un taux de présence de particules égal à 0,1, selon différents auteurs.

isolée. Ce qui est en accord avec toutes les corrélations présentées. Il conclut aussi que le nombre de Nusselt augmente lorsque le taux de présence du solide augmente. Ceci permet de douter des corrélations de [Ranz & Marshall](#) en lit fixe et de [Wakao et al.](#). Par contre, l'augmentation du nombre de Reynolds particulaire et/ou du nombre de Prandtl entraîne une diminution du rapport du nombre de Nusselt sur le nombre de Nusselt d'une particule isolée, ce qui accrédite les corrélations de Gunn, Gnielinski et Rowe & Claxton.

Utilisation dans la simulation des lits fluidisés

Au vu des différences observées entre les diverses corrélations proposées, il semble intéressant d'étudier quelles sont celles utilisées pour la simulation des lits fluidisés et quels résultats elles permettent d'obtenir.

[Gao et al. \(2001\)](#) utilisent la corrélation de [Ranz & Marshall](#) pour une particule isolée dans ses simulations de réacteur FCC. C'est aussi le cas de [Albrecht \(2001\)](#).

[Dincer et al. \(1996\)](#) utilisent ce même modèle pour développer une modélisation analytique du transfert de chaleur reçu par une particule dans un lit fluidisé.

Dans leur étude lagrangienne de transport de particules dans un canal, [Li & Mason \(2000\)](#) s'inter-

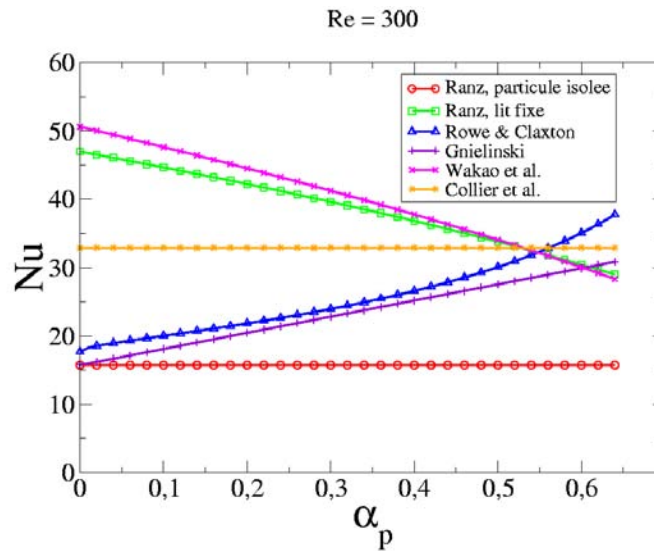


FIGURE 2.6 – Evolution du nombre de Nusselt en fonction de la fraction volumique de particules dans un système à phases dispersées gaz-particule, avec un nombre de Reynolds de 300, selon différents auteurs.

rogent sur la corrélation prédisant le Nusselt le plus adapté. Ils concluent à un compromis suivant le Reynolds et la fraction volumique de particules en présence. Cependant ces corrélations restent très empiriques.

Nayak *et al.* (2005) utilisent la corrélation de Ranz & Marshall (1952) pour une particule isolée dans leur simulation de réacteur FCC.

Beaucoup de corrélations sont disponibles, cependant les différences existant entre elles sont importantes et la validation de l'une d'entre elles par l'expérience fait défaut. A l'instar d'autres auteurs, nous choisirons donc d'utiliser la corrélation de Ranz & Marshall (1952) pour la simulation d'un réacteur FCC.

2.2 Transferts dans un écoulement gaz-goutte

2.2.1 Transferts pour une goutte isolée

Position du problème

Le flux de masse a une influence certaine sur le flux de chaleur reçu par une goutte qui s'évapore. Une approche analytique sur une goutte au repos permettra de comprendre le mécanisme.

Calcul analytique des flux de masse et de chaleur

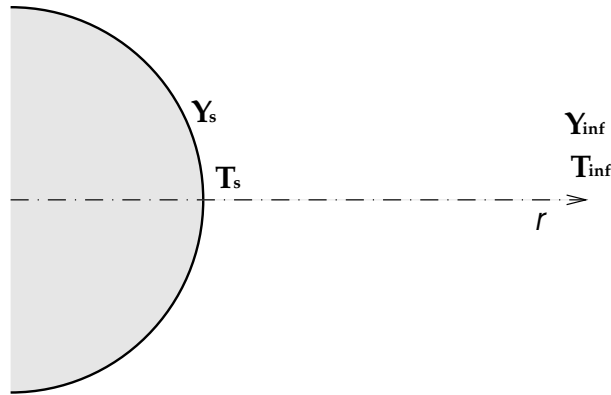


FIGURE 2.7 – Schéma d'une goutte isolée.

En suivant l'approche initiale de Spalding, on étudie ici l'évaporation d'une goutte isolée à pression et température constante. On fait l'hypothèse d'un état quasi-stationnaire. Les équations de conservation de la masse, des espèces et de l'énergie, discutées par Williams (1985) ou Kuo (1986), s'écrivent :

$$r^2 \rho v = r_s^2 \rho_s v_s \quad (2.28)$$

$$r^2 \rho v \frac{dY}{dr} = \frac{d}{dr} \left(r^2 \mathcal{D} \rho \frac{dY}{dr} \right) \quad (2.29)$$

$$r^2 \rho v C_p \frac{dT}{dr} = \frac{d}{dr} \left(r^2 \lambda \frac{dT}{dr} \right) \quad (2.30)$$

Calcul du flux de masse L'intégration de l'équation 2.29 en utilisant 2.28 donne :

$$r_s^2 \rho_s v_s Y = r^2 \mathcal{D} \rho \frac{dY}{dr} + A \quad (2.31)$$

Considérons une goutte de rayon r_s . Lorsque la goutte s'évapore, le fluide s'évapore par convection et par diffusion. Donc, juste au-dessous de la surface de la goutte, il y a uniquement des hydrocarbures, et le flux total de vapeur à la surface est égal à la somme des flux de masse de vapeur dus à la convection et à la diffusion (on néglige la vitesse de déplacement de l'interface) :

$$\rho_s v_s = \rho_s Y_s v_s - \rho_s \mathcal{D}_s \left(\frac{dY}{dr} \right)_s \quad (2.32)$$

En $r = r_s$, l'équation 2.31 s'écrit :

$$r_s^2 \rho_s v_s Y_s = r_s^2 \mathcal{D}_s \rho_s \left(\frac{dY}{dr} \right)_s + A \quad (2.33)$$

$$A = r_s^2 \rho_s v_s \quad (2.34)$$

En remplaçant la constante d'intégration par sa valeur dans l'équation 2.31, on obtient :

$$r_s^2 \rho_s v_s (Y - 1) = r^2 \mathcal{D} \rho \frac{dY}{dr} \quad (2.35)$$

On fait l'hypothèse que le produit $\rho \mathcal{D}$ est constant. On le prendra égal à sa valeur à la surface de la goutte $\rho_s \mathcal{D}_s$.

Sous cette hypothèse, on peut intégrer l'équation 2.35 entre la surface de la goutte et l'infini, ce qui donne :

$$-\frac{r_s^2 v_s}{\mathcal{D}_s r} = \ln \left(\frac{Y - 1}{Y_\infty - 1} \right) \quad (2.36)$$

L'équation 2.36 appliquée en $r = r_s$ donne la valeur de la vitesse de la vapeur d'hydrocarbures à la surface :

$$v_s = \frac{\mathcal{D}_s}{r_s} \ln \left(\frac{Y_\infty - 1}{Y_s - 1} \right) \quad (2.37)$$

On peut alors calculer le flux de masse de vapeur d'hydrocarbures à la surface de la goutte (qui est aussi le flux de masse à travers la surface de toute sphère ayant pour centre le centre de la goutte) :

$$\dot{m} = 4\pi r_s^2 \rho_s v_s \quad (2.38)$$

$$= 4\pi r_s \rho_s \mathcal{D}_s \ln \left(\frac{Y_\infty - 1}{Y_s - 1} \right) \quad (2.39)$$

En introduisant le nombre de Sherwood qui quantifie les effets de la convection sur les transferts de masse, on peut écrire :

$$\dot{m} = 2\pi r_s \rho_s \mathcal{D}_s \text{Sh} \ln \left(\frac{Y_\infty - 1}{Y_s - 1} \right) \quad (2.40)$$

Comme le nombre de Nusselt, le nombre de Sherwood est égal à 2 pour une goutte dans un fluide au repos.

Remarque : La fraction massique de vapeur à la surface de la goutte Y_s est calculée en utilisant la loi de mélange idéal (en indiquant g les grandeurs relatives au gaz environnant) :

$$Y_s = \frac{p_s W_{\text{vapeur}}}{p_s W_{\text{vapeur}} + (p_{g,s} - p_s) W_g} \quad (2.41)$$

Grâce à l'équilibre thermodynamique de saturation à la surface de la goutte, on utilise la relation de Clausius-Clapeyron qui permet d'évaluer la pression de vapeur saturante pour de faibles variations de températures pour obtenir :

$$p_s = p_{\text{ref}} \left(\frac{L_v W_{\text{vapeur}}}{R} \left(\frac{1}{T_{\text{ref}}} - \frac{1}{T_s} \right) \right) \quad (2.42)$$

où L_v est la chaleur latente de vaporisation et R la constante des gaz parfaits.

Calcul du flux de chaleur L'intégration de l'équation 2.30 entre la surface et r donne :

$$r_s^2 \rho_s v_s C_p (T - T_s) = \lambda r^2 \frac{dT}{dr} - \lambda r_s^2 \left(\frac{dT}{dr} \right)_s \quad (2.43)$$

$$r_s^2 \rho_s v_s C_p T - \lambda r^2 \frac{dT}{dr} = r_s^2 \rho_s v_s C_p T_s - \lambda r_s^2 \left(\frac{dT}{dr} \right)_s \quad (2.44)$$

On notera Q_r le flux de chaleur à la surface de la goutte, on a alors :

$$4\pi r_s^2 \rho_s v_s C_p T - 4\pi \lambda r^2 \frac{dT}{dr} = 4\pi r_s^2 \rho_s v_s C_p T_s - Q_r \quad (2.45)$$

$$\dot{m} C_p T - 4\pi \lambda r^2 \frac{dT}{dr} = \dot{m} C_p T_s - Q_r \quad (2.46)$$

L'intégration de cette équation entre l'infini et la surface donne :

$$\frac{\dot{m} C_p}{4\pi \lambda r_s} = \ln \left(\frac{\dot{m} C_p T_\infty - \dot{m} C_p T_s + Q_r}{Q_r} \right) \quad (2.47)$$

$$\exp \left(\frac{\dot{m} C_p}{4\pi \lambda r_s} \right) = \frac{\dot{m} C_p T_\infty - \dot{m} C_p T_s + Q_r}{Q_r} \quad (2.48)$$

On pose

$$\omega_s = \frac{\dot{m} C_p}{4\pi \lambda r_s} \quad (2.49)$$

on a alors :

$$\exp \omega_s = \frac{4\pi \lambda r_s \omega_s}{Q_r} (T_\infty - T_s) + 1 \quad (2.50)$$

$$Q_r = \frac{\omega_s}{\exp \omega_s - 1} 4\pi \lambda r_s (T_\infty - T_s) \quad (2.51)$$

Par analogie avec l'équation 2.14 et en identifiant le nombre 2 au nombre de Nusselt pour une inclusion au repos, on peut alors définir un nombre de Nusselt pour une goutte au repos :

$$\text{Nu}_{\text{evap}} = \frac{\omega_s}{\exp \omega_s - 1} \text{Nu} \quad (2.52)$$

où Nu est le nombre de Nusselt pour une particule isolée.

Ce phénomène est couramment appelé écoulement de Stefan. Il est présenté schématiquement sur la figure 2.8. Lorsqu'une inclusion solide froide est immergée dans un fluide chaud au repos, elle reçoit un flux de chaleur et se réchauffe. Dans le cas où cette inclusion est une goutte, le flux de chaleur reçu provoque l'évaporation de cette goutte et donc un flux de masse sortant. Le flux de masse émis par la goutte ralentit l'arrivée de la chaleur et le flux de chaleur reçu se trouve donc diminué. Ce qui se traduit par une diminution du nombre de Nusselt en fonction du flux de masse décrit par l'équation 2.52 : plus le flux de masse est important, plus le flux de chaleur reçu par la goutte est petit.

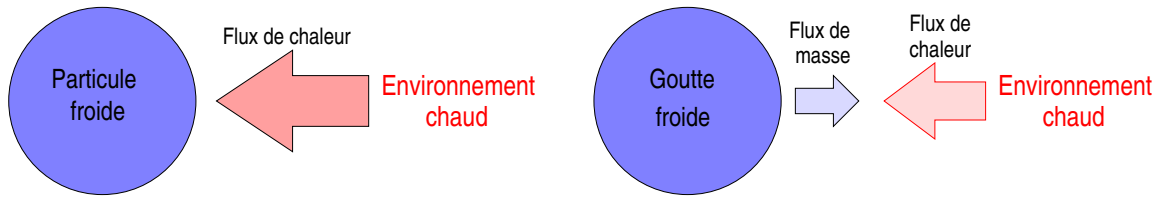


FIGURE 2.8 – Représentation schématique du flux de chaleur reçu par une particule solide et par une goutte en évaporation.

Le mécanisme est facile à décrire et à mettre en équation lorsque la goutte est au repos. Pour prendre en compte les transferts dus à la convection, des auteurs ont proposé, comme pour le transfert de chaleur pour une particule en mouvement, des corrélations faisant intervenir le nombre de Prandtl et le nombre de Reynolds.

Les nombres de Schmidt et de Sherwood, qui sont les homologues pour les transferts massiques des nombres de Prandtl et de Nusselt, seront aussi introduits. Le nombre de Schmidt compare les transferts de quantité de mouvement associés aux forces visqueuses aux transferts de masse. Le nombre de Sherwood quantifie les effets de la convection sur le transfert de masse.

L'introduction de ces nombres adimensionnels permet d'écrire les flux de masse et de chaleur à la surface de la goutte sous la forme :

$$\dot{m} = \pi d_l \rho_d \mathcal{D}_s \text{Sh} \ln \left(\frac{Y_\infty - 1}{Y_s - 1} \right) \quad (2.53)$$

$$Q_r = \pi d_k \lambda_g \text{Nu}_{\text{evap}} (T_\infty - T_s) \quad (2.54)$$

Evaporation d'une goutte en mouvement

Pour prendre en compte les effets de la convection, des corrélations sont disponibles dans la littérature. Ainsi, [Abramzon & Sirignano \(1989\)](#) propose de définir les nombres de Sherwood et de Nusselt de la façon suivante :

$$\text{Sh}^* = 2 + (\text{Sh} - 2)/F_M \quad (2.55)$$

$$\text{Nu}^* = 2 + (\text{Nu} - 2)/F_T \quad (2.56)$$

Les nombres B_M et B_T sont appelés respectivement Spalding de masse et de température, ils sont calculés par :

$$B_M = \frac{Y_s - Y_\infty}{1 - Y_s} \quad (2.57)$$

$$B_T = \frac{C_{p,F}(T_\infty - T_s)}{L_v + Q_{r,A\&S}/\dot{m}_{A\&S}} \quad (2.58)$$

où L_v est la chaleur latente de vaporisation de la goutte, $\dot{m}_{A\&S}$ et $Q_{r,A\&S}$ sont respectivement les flux de masse et de chaleur de la goutte.

Les nombres de Spalding de masse et de chaleur permettent de définir les fonction F_M et F_B dépendantes des spalding de masse B_M et de chaleur B_T que l'on notera B_K pour simplifier l'écriture :

$$F_K = F(B_K) \quad (2.59)$$

$$\text{avec : } F(B_K) = (1 + B_K)^{0.7} \frac{\ln(1 + B_K)}{B_K} \quad (2.60)$$

On introduit le nombre de Lewis, défini comme le rapport de la diffusion thermique sur la diffusion moléculaire :

$$\text{Le} = \frac{\lambda_g}{\rho_g \mathcal{D} C_{p,g}} \quad (2.61)$$

On peut ainsi exprimer le Spalding de température en fonction du Spalding de masse :

$$B_T = (1 + B_M)^\omega - 1 \quad \text{où : } \omega = \frac{1}{\text{Le}} \frac{C_{p,F}}{C_{p,g}} \frac{\text{Sh}^*}{\text{Nu}^*} \quad (2.62)$$

Démarche pour le calcul des flux de masse et de chaleur On remarque que, si le flux de masse $\dot{m}_{A\&S}$ peut-être calculé directement et de manière explicite, le flux de chaleur $Q_{r,A\&S}$ doit être calculé par approximation. La démarche à adopter est la suivante :

1. calculer le Spalding de masse, le facteur F_M , le nombre de Sherwood modifié et le taux d'évaporation $\dot{m}_{A\&S}$
2. calculer le facteur F_T en utilisant la valeur précédente du Spalding de température B_T^{old} de l'itération précédente
3. calculer le nombre de Nusselt modifié, le paramètre ω et la valeur corrigée du Spalding de température. On retourne au pas précédent si $|B_T - B_T^{\text{old}}| > \epsilon$, précision désirée pour B_T
4. calculer la chaleur qui pénètre dans le liquide :

$$Q_{r,A\&S} = \dot{m}_{A\&S} \left[\frac{C_{p,g}(T_\infty - T_s)}{B_T} - L_v \right] \quad (2.63)$$

Pour avoir le flux de diffusion de chaleur à la surface de la goutte $Q_{r,A\&S}$, on enlève la chaleur latente de vaporisation à la valeur précédemment trouvée :

$$Q_{r,A\&S} = \dot{m}_{A\&S} \frac{C_{p,g}(T_\infty - T_s)}{B_T} \quad (2.64)$$

Dans le cas limite où le nombre de Reynolds est nul, on a :

$$\text{Sh}^* = 2 \quad (2.65)$$

$$\text{Nu}^* = 2 \quad (2.66)$$

donc :

$$\omega = \frac{1}{Le} \frac{C_{p,F}}{C_{p,g}} \quad (2.67)$$

$$\text{et : } B_T = \exp \left[\frac{1}{Le} \frac{C_{p,F}}{C_{p,g}} \ln(1 + B_M) \right] - 1 \quad (2.68)$$

$$= \exp \left(\frac{\dot{m} C_{p,F}}{4\pi r_s \lambda_g} \right) - 1 \quad (2.69)$$

Le flux de diffusion à la surface de la goutte s'écrit alors à partir de l'équation 2.64 et, sous l'hypothèse que $C_{p,g} = C_{p,F}$, on retrouve bien le flux de chaleur trouvé analytiquement pour une goutte au repos.

On ne se lancera pas ici dans une étude exhaustive des modèles de transfert de chaleur pour une goutte en évaporation. Pour une telle analyse, on renvoie le lecteur aux travaux de [Miller *et al.* \(1998\)](#).

Nous introduirons cependant un dernier modèle qui découle de la résolution analytique d'une goutte au repos. En identifiant le nombre 2 au nombre de Sherwood lors de la définition du paramètre ω_s , c'est-à-dire en définissant :

$$\omega'_s = \frac{\dot{m} C_p}{2\pi \lambda_r Sh} \quad (2.70)$$

on retrouve l'expression du Nusselt proposé par [Bird *et al.* \(1960\)](#) dans le cas de la théorie du « film » :

$$\text{Nu}_{\text{evap}} = \frac{\ln(1 + B_M)}{B_M} \text{Nu} \quad (2.71)$$

Il s'agit donc maintenant de comparer les différents modèles :

1. le modèle de [Ranz & Marshall \(1952\)](#),
2. le modèle simple trouvé analytiquement pour une goutte au repos qu'on appellera « modèle de Stefan »,
3. le modèle de [Abramzon & Sirignano \(1989\)](#),
4. le modèle de Stefan proposé par [Bird *et al.* \(1960\)](#).

Dans un premier temps la comparaison du flux de masse proposé par [Ranz & Marshall](#) et de celui corrigé proposé par [Abramzon & Sirignano](#) semble importante.

Les figures 2.9 et 2.10 présentent le flux de masse à la surface de la goutte, respectivement en fonction de la température de surface et du nombre de Reynolds particulière. Globalement, on peut conclure que les valeurs prédites diffèrent peu. On notera simplement que le modèle de [Abramzon & Sirignano](#) prédit un transfert de masse légèrement inférieur à celui prédit par le modèle de [Ranz & Marshall](#).

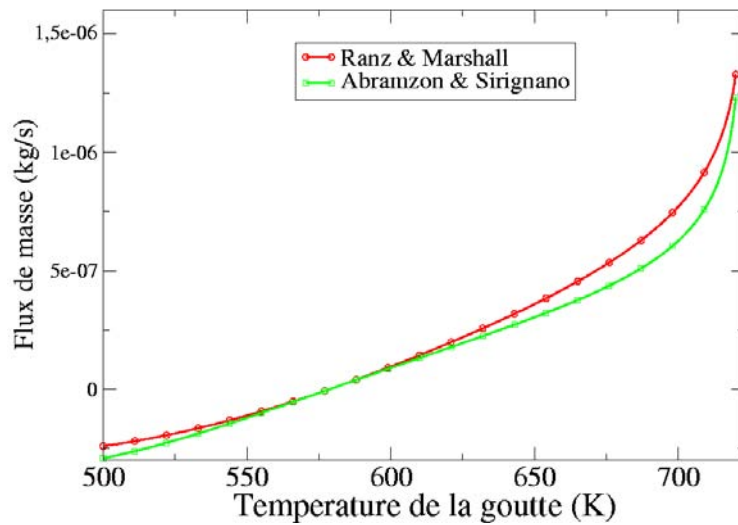


FIGURE 2.9 – Flux de masse pour une goutte isolée prédit par les modèles de *Ranz & Marshall (1952)* et *Abramzon & Sirignano (1989)* en fonction de la température de surface de la goutte.

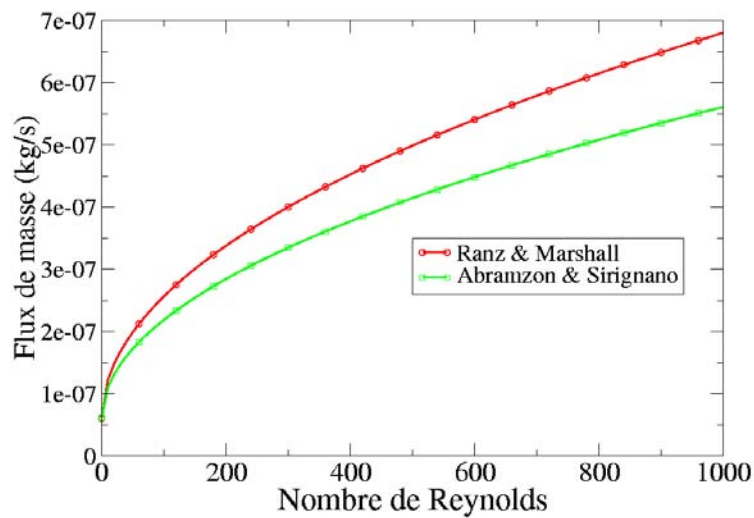


FIGURE 2.10 – Flux de masse pour une goutte isolée prédit par les modèles de *Ranz & Marshall (1952)* et *Abramzon & Sirignano (1989)* en fonction du nombre de Reynolds.

La comparaison des nombres de Nusselt prédits par les quatre modèles en fonction de la température de la goutte (figure 2.11) montre que le flux de chaleur reçu par la goutte peut être significativement réduit par le flux de masse. D'autre part, lorsque le nombre de Reynolds augmente, les différences entre les modèles deviennent plus significatives, comme le montre la figure 2.12. Ainsi, le modèle de Stefan diffère très fortement des autres modèles en prédisant un flux de chaleur très

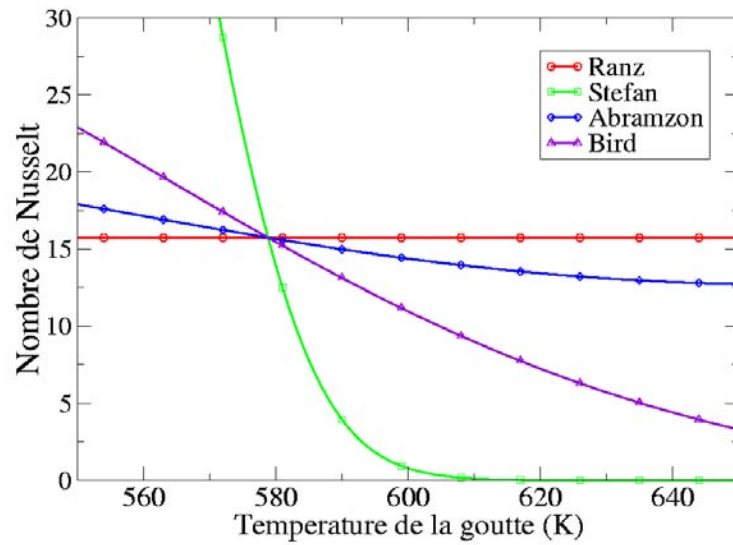


FIGURE 2.11 – Nombre de Nusselt pour une goutte isolée prédit par les modèles étudiés en fonction de la température de la goutte.

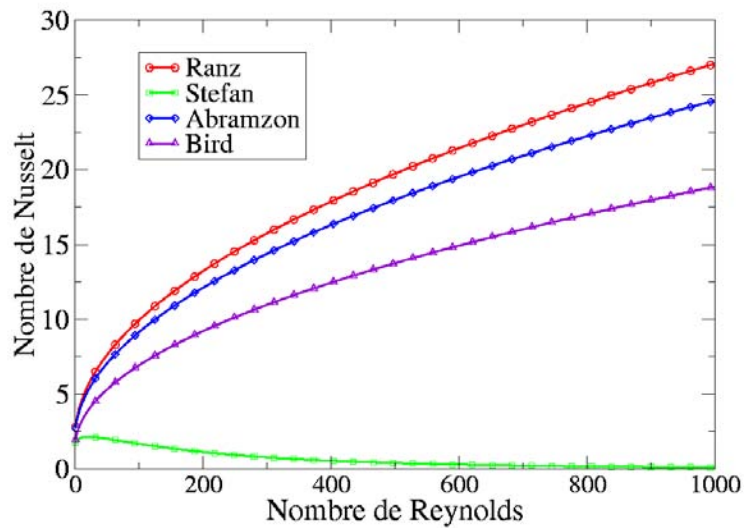


FIGURE 2.12 – Nombre de Nusselt pour une goutte isolée prédit par les modèles étudiés en fonction du nombre de Reynolds particulière.

inférieur pour des nombres de Reynolds élevés.

Il est possible de pousser plus avant la comparaison en étudiant, grâce à la résolution des équations temporelles 0D, l'évolution de la taille et de la température d'une goutte isolée.

On étudie donc l'évaporation d'une goutte de charge dans de la vapeur d'eau chaude. Les caractéristiques de cette atmosphère sont constantes à l'infini : la fraction massique de charge vaporisée est nulle et la température est de 650 K. On attribuera à la goutte un nombre de Reynolds modéré, constant dans le temps et égal à 100.

On résout donc le système différentiel temporel suivant :

$$\frac{d(d^3)}{dt} = -\frac{6\dot{m}}{\pi\rho_l} \quad (2.72)$$

$$\rho_l C_{p,l} \frac{dT_l}{dt} = \frac{6\text{Nu}}{d_l^2} \lambda_g (T_{g,\infty} - T_l) - \frac{6}{\pi d_l^3} L_v \dot{m} \quad (2.73)$$

Les nombres de Sherwood et de Nusselt sont exprimés suivant les modélisations des différents auteurs. Le système est résolu par une méthode de Runge-Kutta explicite d'ordre 4.

L'évolution du diamètre de la goutte ainsi que de sa température est présentée à la figure 2.13. Il paraît alors évident que le choix du modèle influence fortement l'évolution de ces grandeurs. Ainsi, le temps d'évaporation prédit par le modèle de Stefan est, dans le cas étudié, deux fois supérieur à celui estimé par le modèle de Ranz. De même, la température d'équilibre de la goutte (température finale) a une valeur différente suivant les modèles.

Même si certains auteurs ont analysé ces modèles (Miller *et al.* (1998)), il semble difficile d'en valider un pour tous les cas.

La loi du d^2

La loi du d^2 est couramment utilisée pour calculer un temps d'évaporation simplifié. On suppose que la goutte est à température constante durant toute la phase d'évaporation, ce qui revient à dire que le flux de chaleur qu'elle reçoit compense exactement le flux d'énergie nécessaire pour évaporer le flux de masse. Soit :

$$\frac{6\text{Nu}}{d_l^2} \lambda_g (T_{g,\infty} - T_l) = \frac{6}{\pi d_l^3} L_v \dot{m} \quad (2.74)$$

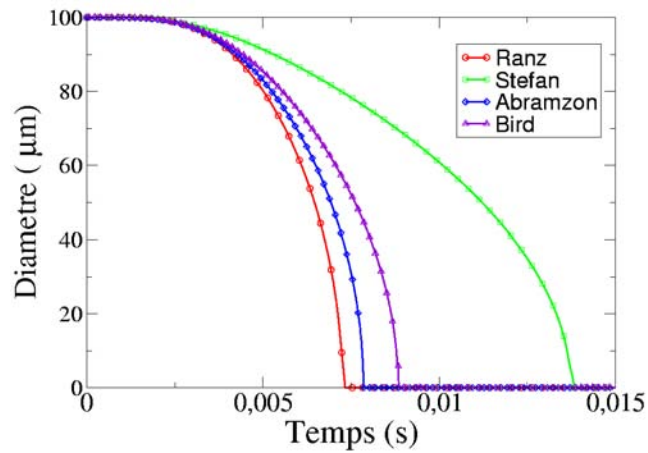
En supposant que les caractéristiques à l'infini sont connues et constantes, il vient :

$$d^2 = d_m^2 - kt \quad \text{avec : } k = \frac{4\rho_g}{\rho_l} \text{Sh}\mathcal{D}_s \ln(1 + B_{m,\text{in}}) \quad (2.75)$$

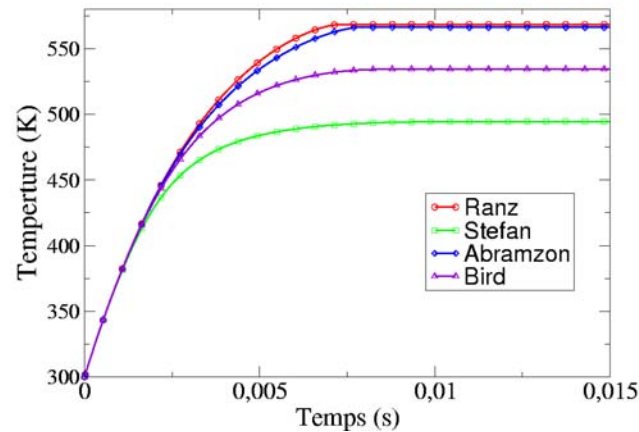
Le diamètre au carré de la goutte évolue linéairement en fonction du temps, d'où le nom de *loi du d^2* .

Transferts dynamiques pour une goutte en évaporation

Il est entendu que si le transfert de masse modifie le flux de chaleur reçu par la goutte, il doit en être de même pour le coefficient de traînée d'une goutte en évaporation. Cependant, comme le



(a) Evolution du diamètre



(b) Evolution de la température

FIGURE 2.13 – Evolution temporelle du diamètre et de la température d'une goutte isolée, comparaison de différents modèles.

remarque [Abramzon & Sirignano \(1989\)](#), plusieurs études ont mené sur ce point à des conclusions contradictoires.

[Chen & Pereira \(1995\)](#) ont simulé, grâce à une approche Euler-Lagrange, un spray de gouttes dans une turbulence anisotrope. Dans leurs simulations, ils utilisent un coefficient de traînée identique à celui que nous utilisons pour les particules. C'est aussi le cas de [Réveillon et al. \(2004\)](#).

[Mashayek \(1998\)](#) utilise une corrélation empirique qui divise le coefficient de traînée par $(1 + B_M)$. Cette corrélation est aussi utilisée par [Chang et al. \(1998\)](#) dans leurs simulations eulériennes.

Cependant, [Faeth \(1983\)](#) souligne que les corrélations utilisées pour les particules sont pertinentes pour les gouttes en évaporation.

Influence de la vitesse relative des gouttes sur l'évaporation

L'étude de [Albrecht \(2001\)](#) montre que la prise en compte de la vitesse relative entre le gaz et les gouttes qui s'évaporent peut avoir une forte influence sur le comportement d'un jet de goutte dans un lit fluidisé. C'est pourquoi une étude monodimensionnelle de l'influence de la vitesse relative sur l'évaporation d'une goutte isolée nous a semblé intéressante.

Pour ce faire, nous avons considéré une goutte isolée en mouvement dans un environnement chaud (650 K) composé uniquement de vapeur d'eau.

Les équations lagrangiennes régissant le comportement de la goutte s'écrivent alors :

$$\frac{d(d^3)}{dt} = -\frac{6\dot{m}}{\pi\rho_l} \quad (2.76)$$

$$\frac{du_l}{dt} = \frac{u_g - u_l}{\tau_l} \quad (2.77)$$

$$\rho_l C_{p,l} \frac{dT_l}{dt} = \frac{6Nu}{d_l^2} \lambda_g (T_{g,\infty} - T_l) - \frac{6}{\pi d_l^3} L_v \dot{m} \quad (2.78)$$

On suppose que la goutte n'est pas soumise à la gravité et que sa vitesse est unidirectionnelle (c'est pourquoi sa vitesse u_l est scalaire).

Le temps de relaxation de la goutte, noté τ_l , est défini par :

$$\frac{1}{\tau_l} = \frac{3\rho_g C_d}{4\rho_l d} \|u_g - u_l\| \quad (2.79)$$

Le coefficient de traînée C_d est calculé avec la relation de [Schiller & Nauman \(1935\)](#) sans modification liée au transfert de masse. Le nombre de Sherwood Sh est calculé grâce à la corrélation de [Ranz & Marshall \(1952\)](#) et le nombre de Nusselt grâce au modèle de [Bird *et al.* \(1960\)](#).

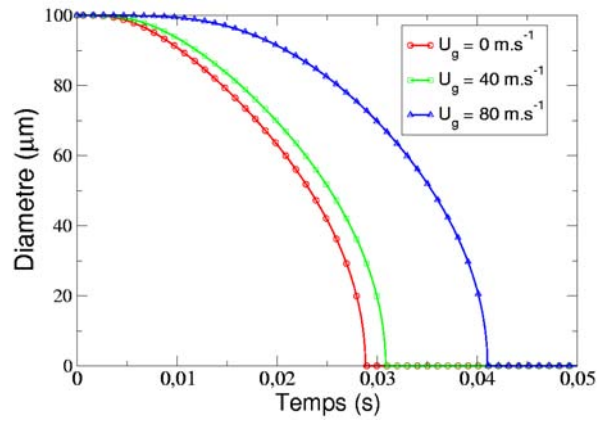
Le système est résolu par une méthode de Runge-Kutta explicite d'ordre 4.

On attribuera à la goutte une vitesse de 80 m.s^{-1} . Le gaz environnant aura successivement des vitesses de 0, 40 et 80 m.s^{-1} correspondant à une vitesse relative gaz-goutte maximum, moyenne et minimale.

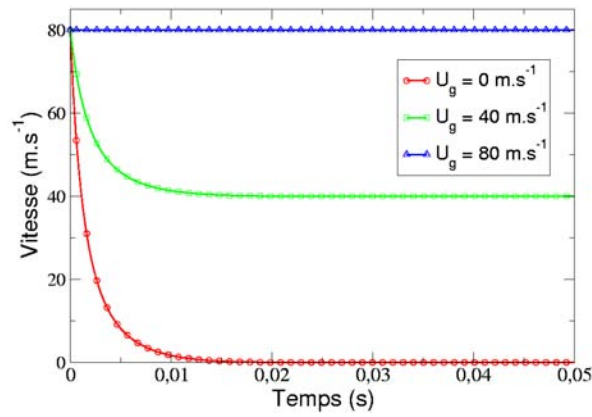
Les résultats sont présentés figure [2.14](#). Ils montrent nettement l'influence d'une vitesse de glissement initiale entre le gaz et la goutte. En effet, lorsque la vitesse du gaz est nulle, c'est-à-dire que la goutte est injectée dans un environnement au repos, le temps d'évaporation est plus court que lorsque la goutte et le gaz ont la même vitesse initiale.

2.2.2 Modèles utilisés pour les simulations de réacteur FCC

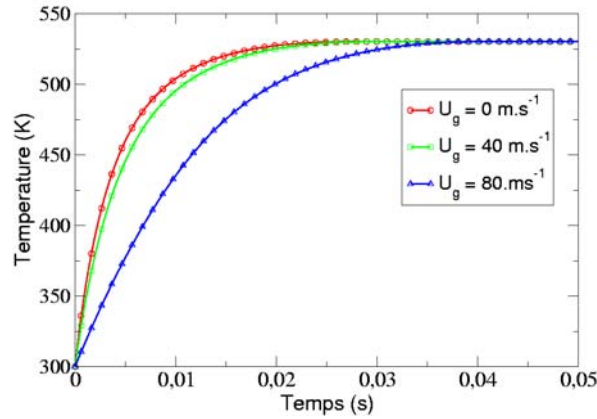
Concernant l'évaporation des gouttes de charge dans les réacteurs FCC, les modélisations utilisées dans la littérature sont souvent assez simples. Ainsi, [Gao *et al.* \(2001\)](#) utilise un modèle d'évaporation très simplifié où il introduit simplement un temps caractéristique d'évaporation. [Theologos *et al.*](#)



(a) Evolution du diamètre



(b) Evolution de la vitesse



(c) Evolution de la température

FIGURE 2.14 – Evolution temporelle du diamètre, de la vitesse et de la température d'une goutte isolée, influence de la vitesse relative gaz-goutte initiale.

(1999) utilise une corrélation empirique pour évaluer le taux d'évaporation des gouttes de charge. Lee *et al.* (2005) utilise le modèle d'évaporation d'une goutte isolée sans y introduire le nombre de Sherwood et donc sans tenir compte du mouvement de la goutte dans l'écoulement. C'est aussi le cas de Albrecht (2001) dont la modélisation ne permet pas de prendre en compte des nombres de Sherwood ou de Nusselt dépendants du nombre de Reynolds.

De plus, peu d'auteurs prennent en compte l'effet de l'évaporation sur le transfert de masse et sur le coefficient de traînée des gouttes, nous ferons de même dans nos simulations.

2.3 Transferts dans un écoulement gaz-goutte-particule

Les transferts dans un écoulement gaz-particule et gaz-goutte ont été analysés plus haut. Il reste maintenant à décrire les transferts existant entre gouttes et particules dans un écoulement où les deux types d'inclusion sont en présence.

2.3.1 Analyse locale de l'interaction particule-goutte

La modélisation globale des interactions goutte-particule dans un écoulement complexe tel qu'un réacteur FCC passe par l'analyse locale de l'interaction entre une goutte et une particule. Assez peu d'auteurs se sont penchés sur l'analyse des mécanismes se produisant dans un tel cas.

Selon Buchanan (1994), lorsqu'une particule de catalyseur approche une goutte de charge, elle entre sans doute en contact avec cette dernière pour seulement un court instant durant lequel il se produit un transfert de chaleur rapide, et après lequel la particule est éjectée par la vapeur créée à la surface de la goutte. Certains auteurs nommeront ce phénomène l'effet Leindenfrost représenté sur la figure 2.15 dont on reparlera plus loin. Il est difficile de juger dans quelle mesure la surface de la goutte sera déformée par l'interaction. Des interactions plus collantes sont possibles avec des particules de FCC qui sont entraînées dans une région calme et fortement chargée en gouttes, mais ceci ne contribue pas beaucoup à la totalité du transfert de chaleur.

Estimer le transfert de chaleur lors des collisions particule/goutte reste compliqué. Le taux de transfert de chaleur vers une goutte peut s'exprimer comme étant le produit du nombre de collisions par la durée du contact par le taux de transfert de chaleur durant le contact. Ce sont le deuxième et le dernier facteurs qui sont difficiles à évaluer. Même si les phénomènes prédominants sont correctement définis, ce genre de collisions sera un challenge à modéliser et à corrélérer.

Dans son papier, Buchanan essaie d'isoler le transfert de chaleur entre deux cas limites.

Le premier cas considéré est celui où le transfert de chaleur durant les collisions est infiniment

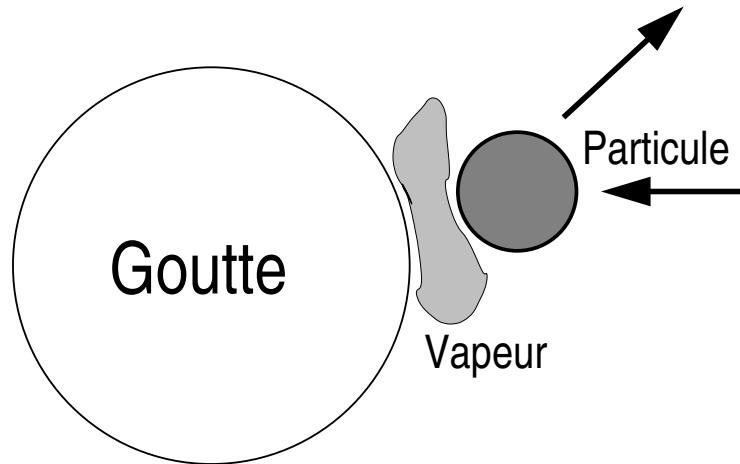


FIGURE 2.15 – Schéma d'une goutte évaporante en contact avec une particule solide selon [Buchanan \(1994\)](#).

rapide. Dans ce cas, chaque particule transfère le maximum de chaleur aux gouttes. Dans ce cas, l'équation régissant les transferts de chaleur et de masse pour la goutte s'écrivent :

$$\frac{dT_l}{dt} = \frac{3v_r \rho_p (1 - \alpha_g) C_{p,p} (T_g - T_l)}{2\rho_g C_{p,g} d_p} \quad (2.80)$$

$$\frac{dd_l}{dt} = \frac{-v_r \rho_p (1 - \alpha_g) C_{p,p} (T_g - T_l)}{2\rho_g L_v} \quad (2.81)$$

Les temps de chauffage et d'évaporation totale de la goutte estimés avec un tel modèle sont très courts.

Le deuxième cas considéré est celui où les collisions sont supposées élastiques, comme si les gouttes étaient des particules solides. Ce deuxième cas semble « plus réaliste » à l'auteur. Pour ce cas, on espère que le transfert de chaleur dominant soit la conduction à travers le film gazeux autour de la goutte. C'est le même type de mécanisme qui opère pour le transfert de chaleur d'un gaz pur à une goutte, donc il doit être possible de modifier les corrélations déjà utilisées et de les adapter à un écoulement dilué de particules. La modification la plus simple pour le transfert de chaleur est de prendre en compte la décroissance de l'épaisseur effective de la couche limite thermique autour de la goutte due aux particules, et ceci en remplaçant la densité du gaz par celle du mélange gaz/solide dans l'expression du nombre de Reynolds. On obtient alors un nombre de Reynolds particulaire modifié qui s'écrit :

$$Re_{l/p} = \frac{\rho_p (1 - \alpha_p) v_r d_l}{\mu_g} \quad (2.82)$$

[Nayak et al. \(2005\)](#) développe un modèle d'interaction particule-goutte qu'il utilise ensuite dans ses simulations de réacteur FCC. Selon lui, le transfert de chaleur entre une goutte d'hydrocarbures

suspendue dans un mélange gaz-particule doit être modélisé pour comprendre l'influence de paramètres clés tels que le diamètre de la goutte, le diamètre des particules, la chaleur spécifique du solide sur le taux d'évaporation. Il est attendu que les collisions des particules solides avec les gouttes aient une influence considérable sur le transfert de chaleur. Lorsqu'une particule de température T_s entre en collision avec une goutte de température T , la particule transfère de l'énergie à la phase liquide. Si le transfert de chaleur est infiniment rapide, la particule atteindra la température du liquide (si le diamètre de la particule est inférieur à celui de la goutte). Si on considère un réacteur FCC, dans lequel les particules sont plus chaudes que la température d'ébullition des gouttes, les vapeurs générées par le transfert de chaleur avec les particules vont repousser les particules loin des gouttes et donc couper le transfert de chaleur. Si la particule est repoussée immédiatement, c'est-à-dire que le temps de contact tend vers zéro, le transfert de chaleur sera nul et la particule restera à la température T_s . Si la particule n'est pas repoussée, elle atteindra la température du liquide. A n'importe quel instant intermédiaire, la particule sera repoussée et aura une température intermédiaire, comprise entre T_s et T . En fait, la physique du contact entre une particule et une goutte en évaporation est plutôt complexe. L'information provenant d'expériences concernant les collisions entre particules et gouttes n'est pas adéquate pour développer des modèles phénoménologiques pour représenter le rejet des particules à cause de l'évaporation des gouttes. En l'absence d'une telle information, [Nayak et al. \(2005\)](#) ont développé un modèle phénoménologique en supposant que, lorsqu'une quantité suffisante de vapeur est générée, la particule sera repoussée. Avant d'être repoussée, la particule transfère une quantité d'énergie à la goutte (cette énergie sera utilisée pour l'évaporation), et atteint une température T_{fin} qui est inférieure à la température initiale du solide T_p . Ceci se traduit par l'égalité suivante :

$$\frac{\pi}{6}d_p^3\rho_p C_{p,p}(T_p - T_{fin}) = \phi \frac{\pi}{6}d_p^3\rho_g L_v \quad (2.83)$$

Le membre de gauche représente la chaleur perdue par la particule au profit de la goutte avant qu'elle ne soit repoussée par la vapeur produite. Pendant ce contact, on suppose que la particule aura atteint la température T_{fin} . La particule sera repoussée lorsque le volume de vapeur généré sera ϕ fois le volume de la particule. En première approximation, on peut considérer que l'énergie perdue par la particule est égale à l'énergie nécessaire pour créer un tel volume de vapeur (membre de droite de l'équation 2.83). La température finale de la particule peut alors s'exprimer en fonction du paramètre ϕ . Ce paramètre ϕ est supérieur à 0 (absence de contact entre la particule et la goutte) et inférieur à $\frac{\rho_l}{\rho_\infty} \left(\frac{d_l}{d_p}\right)^3$ (lorsque la goutte se vaporise totalement pour repousser la particule). En l'absence d'informations provenant de l'expérience, le paramètre ϕ est ajusté grâce aux résultats obtenus par [Buchanan \(1994\)](#). Le modèle présenté par [Nayak et al. \(2005\)](#) reste cependant tributaire d'un paramétrage correct fondé sur des résultats expérimentaux.

Selon [Mirgain et al. \(2000\)](#), le rôle principal de la chambre de mélange d'un réacteur FCC est d'as-

sur la vaporisation rapide de la charge, c'est pourquoi, une bonne compréhension du phénomène de vaporisation dans un réacteur FCC est essentiel à leur optimisation. Il étudie deux types d'évaporation des gouttes. D'abord, ce qu'il appelle la « vaporisation homogène » qui se produit lorsque le spray de gouttes se rapproche de l'écoulement de particules de catalyseur et n'entre pas encore en contact avec elles. Le transfert de chaleur se fait alors par conduction et/ou par radiation, l'évaporation étant uniquement pilotée par la chaleur reçue par la goutte. Dans ce cas, *Mirgain et al.* montrent que le transfert de chaleur par radiation est négligeable pour des gouttes relativement grosses (d'environ $200 \mu m$) alors qu'il prend de l'importance pour des gouttes plus petites ($50 \mu m$). Leur analyse montre aussi que la vaporisation homogène est insuffisante pour évaporer la totalité du spray de charge avant qu'il entre en contact avec les particules. C'est pourquoi il introduit le modèle de « vaporisation hétérogène » qui se produit lorsque les gouttes sont proches des particules de catalyseur. Dans ce cas, la chaleur reçue par les gouttes provient soit de la conduction et de la radiation des particules, soit de la convection du gaz environnant. Pour analyser les transferts entre gouttes et particules, il distingue trois cas : un jet dilué (la fraction volumique de particules est inférieure à 5%), un jet dense (la fraction volumique de particules est supérieure à 30%) et un jet intermédiaire qui se situe naturellement entre les deux précédents. Pour chacun de ces cas, il étudie l'existence de l'effet Leidenfrost ainsi que la rapidité de l'évaporation. Les travaux de *Mirgain et al.* montrent que l'effet Leidenfrost est observable dans le cas où la vitesse relative entre les gouttes et les particules est faible (inférieure à $0,5 m.s^{-1}$), ce qui n'est le plus souvent pas le cas dans un réacteur FCC. Ils en concluent que le contact direct entre gouttes et particules est inévitable.

Albrecht (2001), après avoir caractérisé les sprays de charge dans un réacteur à lit fluidisé FCC grâce à une adaptation du modèle à deux fluides aux écoulements triphasiques, met en place des simulations « DNS/LES triphasique avec transferts dynamiques et thermiques ». Dans ces simulations, il utilise deux modèles rudimentaires associés à des scénarii extrêmes de régime d'interaction particule-goutte.

Tout d'abord « le modèle d'équilibre thermique instantané » est fondé sur l'hypothèse qu'après chaque collision la particule et la goutte se séparent à l'équilibre thermique, c'est-à-dire qu'elles ont la même température. La température après collision de la particule et de la goutte se calcule de la façon suivante :

$$\tilde{T}_l = \tilde{T}_p = \frac{m_l C_{p,l} T_l + m_p C_{p,p} T_p}{m_l C_{p,l} + m_p C_{p,p}} \quad (2.84)$$

Ce modèle ne contient par conséquent pas de caractéristiques dynamiques de la collision telles que la vitesse relative ou l'angle d'impact.

Le deuxième modèle utilisé, qu'*Albrecht* nomme « modèle de transfert par croisement » est un modèle qui permet au flux de chaleur de circuler entre la particule et la goutte pendant la durée

de leur croisement. Il est principalement paramétré par la surface de contact S sur laquelle le flux thermique sera autorisé à transiter durant le croisement. La formulation locale du modèle de transfert par croisement s'écrit :

$$\tilde{T}_l = \frac{S}{m_l C_{p,l}} \lambda_{pl} (T_p - T_l) \delta t_c \quad (2.85)$$

$$\tilde{T}_p = \frac{S}{m_p C_{p,p}} \lambda_{pl} (T_l - T_p) \delta t_c \quad (2.86)$$

où λ_{pl} est un coefficient de diffusion thermique défini à partir de ceux des deux phases dispersées et des diamètres. δt_c est le temps de croisement $\delta t_c = (d_l + d_p)/2v_{r,pl}$ où $v_{r,pl}$ est la vitesse relative d'impact goutte/particule. La difficulté est alors de paramétrer la surface S . **Albrecht** étudie trois valeurs de S :

1. la demi surface de la goutte, ce qui revient à supposer que celle-ci va s'aplatir complètement sur la particule sans se briser,
2. la surface complète de la goutte, qui revient à se rapprocher du régime d'absorption complète de la particule par la goutte,
3. une surface déduite de la déformation maximale de la goutte.

Ce modèle aura tendance à minimiser les transferts car, selon **Albrecht**, il est raisonnable de penser que les régimes collisionnels particule-goutte sont caractérisés par des temps de contact plus importants que la durée de croisement des inclusions si elles s'ignoraient l'une l'autre.

Les résultats obtenus avec les simulations laissent penser que le transfert de chaleur par collision entre les gouttes et les particules est négligeable pour les particules ; cependant les résultats obtenus ne permettent pas de conclure en ce qui concerne les gouttes. En effet, le flux convectif reçu par les gouttes est dans tous les cas très nettement supérieur aux transferts thermiques collisionnels. Des modèles microscopiques de transfert thermique par collision goutte-particule plus précis s'avèrent donc nécessaires ici à la bonne prise en compte du phénomène.

Après analyse des informations disponibles dans la littérature, il s'avère que les modèles locaux d'interactions goutte-particule existent mais se révèlent la plupart du temps empiriques. Des analyses et les simulations ont tenté de classer ces modèles mais les résultats obtenus s'avèrent contradictoires d'un auteur à l'autre ou imprécis. Il s'agirait donc de développer un modèle plus précis en particulier pour l'influence des particules sur l'évaporation des gouttes, et de valider cette modélisation à l'échelle du laboratoire.

2.3.2 Etudes expérimentales de l'évaporation d'un spray dans un lit fluidisé

A ce stade de l'étude, il semble important de regarder les travaux expérimentaux sur l'injection de gouttes dans un lit fluidisé.

Les travaux de [Leclère et al. \(2001a,b\)](#) montrent que les particules s'agglomèrent lorsque le diamètre des gouttes est grand comparé à celui des particules. Ces travaux mettent aussi en évidence le fait que si la masse de liquide injecté est trop importante, le lit sera saturé et l'évaporation sera moins efficace.

Dans ses travaux suivants, [Leclère et al. \(2004\)](#) montrent que la taille des gouttes a une forte influence sur la qualité de la vaporisation. La comparaison de leurs résultats avec les modèles proposés en particulier par [Buchanan \(1994\)](#) tend à montrer que la vaporisation homogène est le modèle le plus représentatif de son expérience.

De plus, les travaux de [Leclère \(2002\)](#) donnent certaines indications intéressantes à l'analyse. Elle constate par exemple que l'évaporation n'est pas plus efficace lorsque l'agitation des particules augmente, ce qui infirme l'importance du rôle de la vaporisation par contact direct. Son expérience montre que les modèles par contact direct ne sont pas les plus représentatifs du processus majeur de vaporisation.

Les travaux de [Saleh \(1998\)](#) présentent des cartographies thermiques lors de l'évaporation d'un spray d'eau distillée dans un lit fluidisé de sable. [Skouby \(1999\)](#) a mis en place un réacteur à lit fluidisé à l'échelle du laboratoire. Ses mesures expérimentales ont permis de quantifier l'influence de l'injecteur sur l'hydrodynamique du lit ainsi que l'accélération dans le réacteur induite par la vaporisation de la charge. [Zhu et al. \(2000\)](#) étudient de manière expérimentale l'influence du chargement en particules sur la pénétration d'un spray de gouttelettes dans un lit fluidisé. Si ses travaux montrent une évidente décroissance de la pénétration du jet avec l'augmentation du taux de présence de particules, ils ne mettent pas en évidence les mécanismes prédominants du phénomène.

[Fan et al. \(2001\)](#) ont développé à partir de résultats expérimentaux un modèle simplifié qui permet de prédire le comportement global d'un spray dans un écoulement gaz-particule. Leur modèle a été enrichi par la suite par [Zhu et al. \(2001\)](#) et [Wang & Zhu \(2003\)](#).

Ces travaux expérimentaux, s'ils donnent des idées quantitatives et qualitatives du phénomène d'évaporation de gouttes dans un lit fluidisé, donnent une vision très globale d'un tel phénomène et ne permettent malheureusement pas une analyse fine des transferts de masse, de quantité de mouvement et de chaleur au niveau local.

2.3.3 Simulations numériques, modélisation globale

Parmi les travaux visant à simuler l'injection et la vaporisation de liquide dans un réacteur à lit fluidisé FCC, on trouve [Theologos et al. \(1999\)](#) et [Gupta & Rao \(2003\)](#). Tous les deux retiennent comme hypothèse le deuxième cas limite de [Buchanan \(1994\)](#), c'est à dire que le transfert de chaleur entre goutte et particule est convectif et se fait par l'intermédiaire du gaz.

Chang *et al.* (1997), Chang *et al.* (1998) et Chang *et al.* (2001) n'utilisent pas de modèle d'échange de chaleur gaz/particule, c'est aussi le cas d'Albrecht *et al.* (2001).

Gao *et al.* (2001), quant à eux, utilisent des modèles de transferts totalement empiriques.

Les travaux de Wang *et al.* (2004) introduisent un modèle de transfert de chaleur entre particules et gouttes par l'intermédiaire d'un nombre de Nusselt « pour des gouttes dans un mélange gaz/particule ». Ce modèle dérive selon les auteurs d'une analogie avec le transfert de chaleur particule/particule. Lee *et al.* (2005) utilisent cette modélisation pour étudier l'évaporation d'un spray liquide dans un lit fluidisé.

En conclusion, les modèles de transferts goutte-particule existent. Certains sont utilisés dans les simulations de réacteur FCC, mais ce n'est pas toujours le cas. Les modèles existants sont le plus souvent développés grâce à des considérations phénoménologiques mais aucun n'a été validé par l'expérience. Par conséquent, aucun des modèles proposés ne nous a semblé plus pertinent que les autres et les simulations ont été effectuées, dans un premier temps, sans échange de chaleur particule-goutte.

Les modes de transferts en écoulements polyphasiques à phases dispersées sont maintenant répertoriés et des modélisations pour les prendre en compte dans le cadre d'une simulation numérique ont été proposées. Il reste maintenant à décrire et à modéliser la réaction de craquage catalytique.

Chapitre 3

Modélisation de la réaction de craquage catalytique FCC

Nous présentons ici les principaux mécanismes de la réaction de craquage qui se produit dans un réacteur FCC puis les modèles qui permettent de les représenter.

3.1 Description

Une unité FCC a pour vocation de valoriser des coupes pétrolières lourdes (chaînes carbonées longues). La transformation s'opère en introduisant les hydrocarbures à transformer dans un environnement catalysé et à des températures élevées (d'environ 500°C).

Le catalyseur utilisé est un solide constitué le plus souvent de silice et d'alumine qui présente le caractère acide nécessité par la catalyse des réactions de craquage. Il se présente sous la forme d'une poudre très fine (diamètre des particules de 30 à 150 μm) et de faible masse volumique apparente (inférieure à $1800 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$) qui appartient à la catégorie A selon les classes définies par Geldart (1973) (cf. Fig. 3.1). Cette poudre est donc facilement fluidisable.

La masse volumique apparente du catalyseur est généralement de l'ordre de 1300 à 1600 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$, la taille des grains est d'environ 60 à 80 μm . Les grains sont de forme polyédrique et présentent une structure cristalline (cf. Fig. 3.2). La présence du catalyseur améliore considérablement le rendement en comparaison au craquage thermique. Cependant, les réactions produisent du coke sous forme solide qui se dépose sur les particules de catalyseur et inhibe leur activité. Den Hollander *et al.* (1999) distingue quatre types de coke :

1. le coke thermique : c'est le coke qui se dépose à la surface des particules à cause de la dégradation thermique causée par le contact entre les gouttes d'hydrocarbure et les particules,

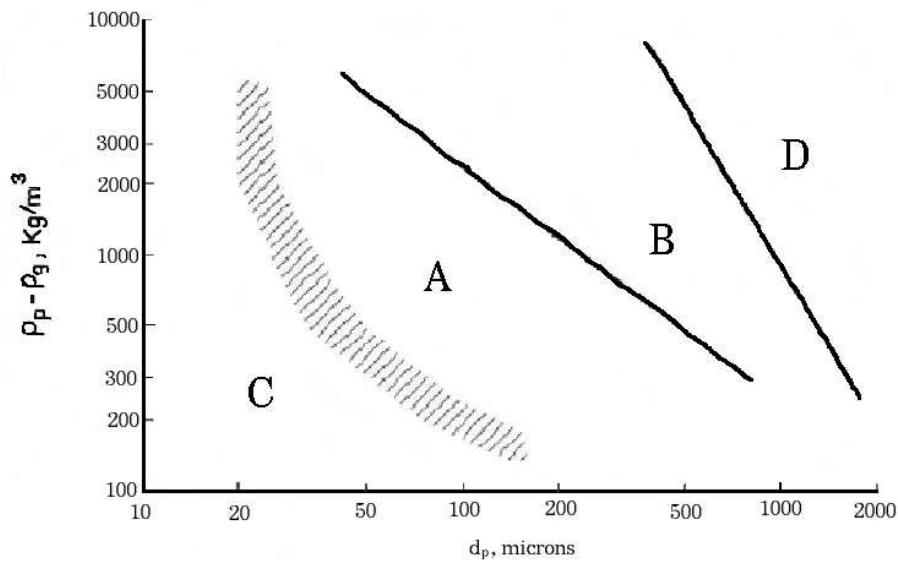


FIGURE 3.1 – Classification de Geldart (1973).

2. le coke absorbé : c'est le coke résultant de la forte et irréversible absorption des hydrocarbures à la surface du catalyseur,
3. le coke catalytique : c'est le coke qui se dépose sur les sites catalytiques en tant que produit de la réaction de craquage,
4. le coke contaminant : c'est le coke déposé à cause de réactions de déshydrogénation excessives.

On qualifie la charge¹ de « bonne » lorsqu'elle permet d'obtenir un fort rendement en essence et peu de coke et de gaz. Les produits de craquage sont de plusieurs sortes et peuvent se classer en fonction de leur volatilité de la manière suivante :

- le gaz léger (ou encore Fuel Gaz qui sera noté FG) : H_2 , H_2S , CH_4 , etc, qui comprend des chaînes carbonées courtes,
- le gaz de pétrole liquéfié (ou LPG pour Liquefied Petroleum Gas) : chaînes de type C3 et C4,
- l'essence,
- le gasoil léger (ou LCO pour Light Cycle Oil),
- le gasoil lourd (ou HCO pour Heavy Cycle Oil) que nous assimilerons à la charge puisqu'il peut être recyclé en tant que tel,
- le coke, produit solide de la réaction qui reste fixé sur le catalyseur.

La chimie du craquage catalytique a été étudiée de manière assez complète. Ses mécanismes sont expliqués en outre par Latrille-Pitault (1994). La problématique dans le cas qui nous occupe est de

1. On nommera ainsi les hydrocarbures à craquer.

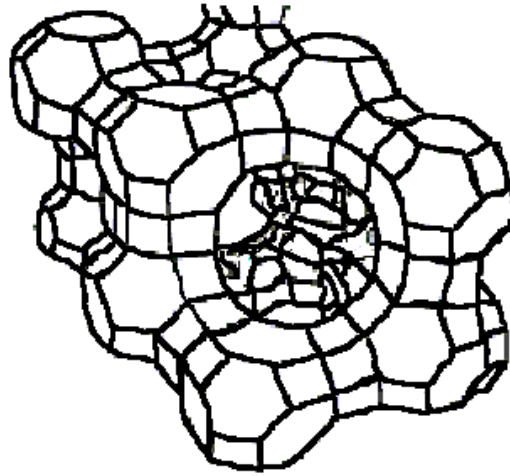


FIGURE 3.2 – Structure cristalline des particules de catalyseur FCC.

déterminer un modèle cinétique représentatif de la réaction chimique et utilisable dans le cadre d'un modèle de mécanique des fluides numérique.

3.2 Etude bibliographique des modèles de craquage catalytique

Nous nous sommes intéressés aux différents modèles de craquage catalytique 0D (évolution des fractions massiques ou concentrations des réactifs et produits de la réaction en fonction du temps de séjour) présents dans la littérature avant de retenir le modèle le plus adapté pour l'implantation dans le code de calcul *Saturne_Polyphasique@Tlse*.

Le Distillat Sous Vide (DSV) utilisé comme charge du FCC est composé de centaines d'espèces moléculaires. C'est aussi le cas des produits en sortie de réacteur. Il est donc difficile de développer une cinétique à l'échelle moléculaire, c'est pourquoi nombre d'auteurs ont choisi de réunir les espèces par groupe ou famille : nous parlerons de lumps. Ces modèles peuvent être classés selon leur complexité, c'est-à-dire suivant le nombre de lumps qu'ils considèrent.

3.2.1 Modèle à 3 lumps de **Weekman & Nace (1970)**

La modélisation de craquage par regroupement par famille a été initiée par **Weekman & Nace (1970)** avec un modèle à 3 lumps. Les composants considérés sont (cf. Fig. 3.3) :

1. le pétrole lourd (charge vaporisée),
2. l'essence,
3. le coke et les gaz secs

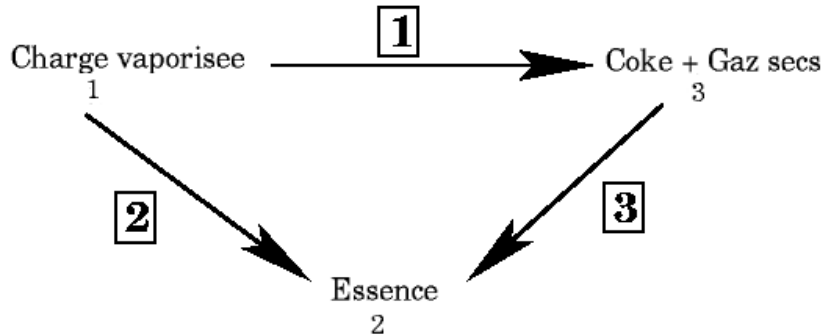


FIGURE 3.3 – *Modèle à 3 lumps de Weekman & Nace (1970).*

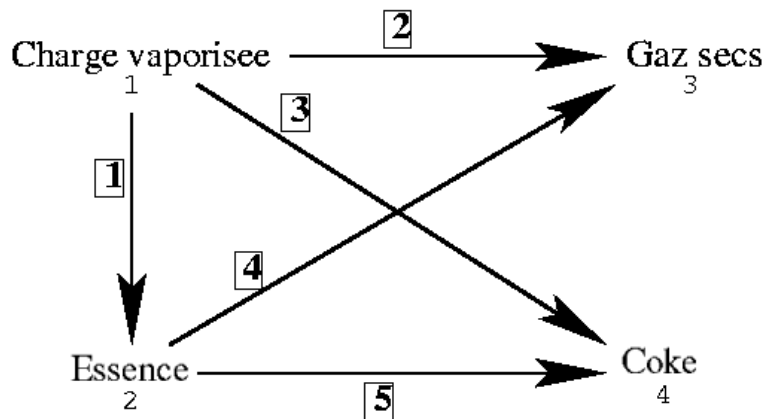


FIGURE 3.4 – *Modèle à 4 lumps de Gupta & Rao (2001).*

Avec un schéma aussi simplifié, les taux de réaction sont dépendants de la composition chimique de la charge utilisée comme le remarque [Das \(2002\)](#).

3.2.2 Modèles à 4 lumps de Gupta

[Gupta & Rao \(2001\)](#) utilise un modèle à 4 lumps dérivé de celui proposé par [Pitault *et al.* \(1995\)](#). Le modèle à quatre espèces proposé par Gupta présente l'avantage de distinguer le coke comme un produit à part entière de la réaction de craquage (cf. Fig. 3.4), et de prendre en compte la désactivation du catalyseur. Cependant, les taux de réaction ne dépendent pas de la présence ou non des particules de catalyseur FCC.

3.2.3 Modèles à 5 ou 6 lumps

Les modèles à 5 ou 6 familles sont les plus représentés dans la littérature. Ils ont tous l'avantage de considérer le coke comme une espèce à part entière. Ils utilisent le plus souvent le classement par

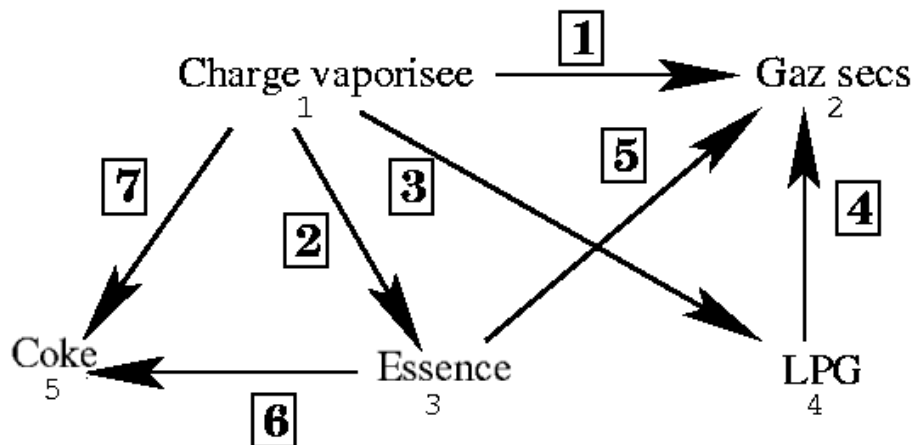


FIGURE 3.5 – Modèle à 5 lumps de *Ancheta-Juárez et al. (1997)*.

coupe de distillation : HCO, LCO, essence, LPG, FG et coke.

Ancheta-Juárez et al. (1997) proposent un modèle qui ne tient pas compte de la quantité de catalyseur présent (Fig. 3.5).

Le modèle de *Den Hollander et al. (1998)* (cf. Fig. 3.6) classe le coke comme une espèce et distingue en plus l'essence des gaz et des composants du diesel (LCO). Il a la particularité d'exprimer les termes sources de réaction en fonction de la présence en catalyseur. Cependant, il ne donne pas d'indication sur les énergies d'activation.

Le modèle d'*Hollander et al.* a été analysé et affiné par *Dupain et al. (2003)* selon lequel :

1. environ 10% de la charge ne peut pas être transformée,
2. l'essence produite ne se retransforme pas,
3. le LCO se transforme uniquement en LPG,
4. le LCO ne se convertit pas en essence.

Névicato (1996) propose un modèle à 6 familles présenté à la figure 3.8. Ce modèle comporte une famille de plus que les précédents car il considère les gaz secs comme un lump séparé.

Le modèle de *Névicato (1996)* présente l'avantage de considérer le coke comme une espèce séparée. De plus, les taux de réaction sont dépendants de la présence en solide et la désactivation du catalyseur en fonction du coke créé est prise en compte. Pour finir, Névicato a déterminé les constantes cinétiques pour plusieurs distillats sous vide et plusieurs températures. Il est donc possible de choisir les valeurs les plus adéquates pour la charge que l'on souhaite représenter.

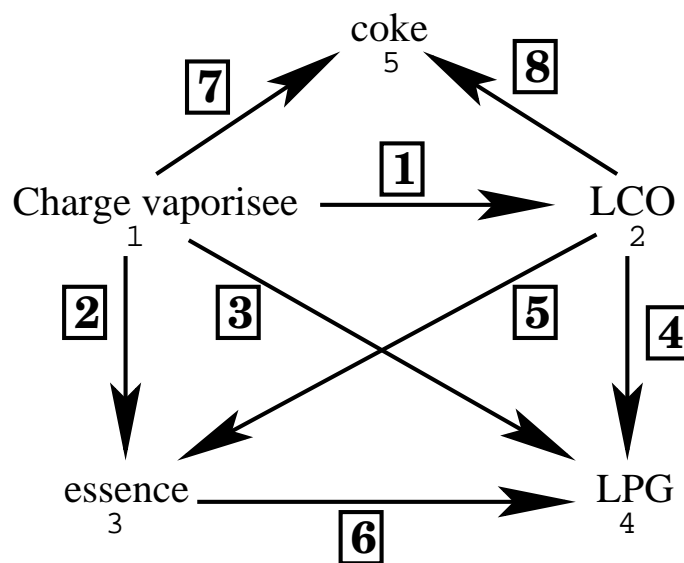


FIGURE 3.6 – Modèle à 5 lumps de *Den Hollander et al. (1998)*.

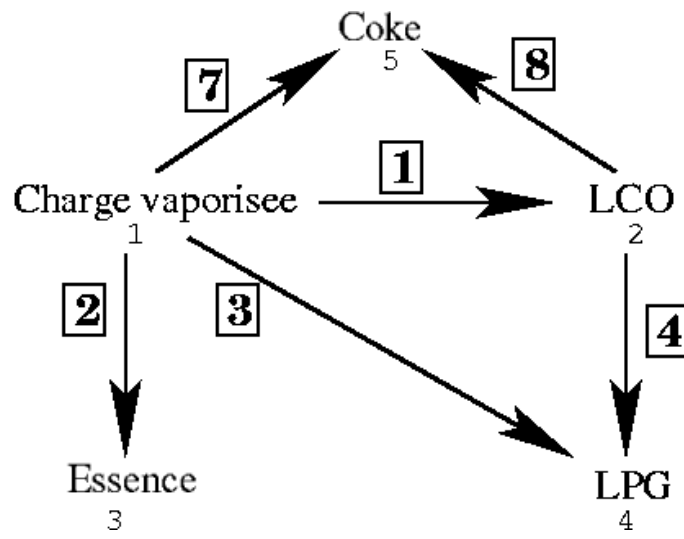


FIGURE 3.7 – Modèle à 5 lumps de *Dupain et al. (2003)*.

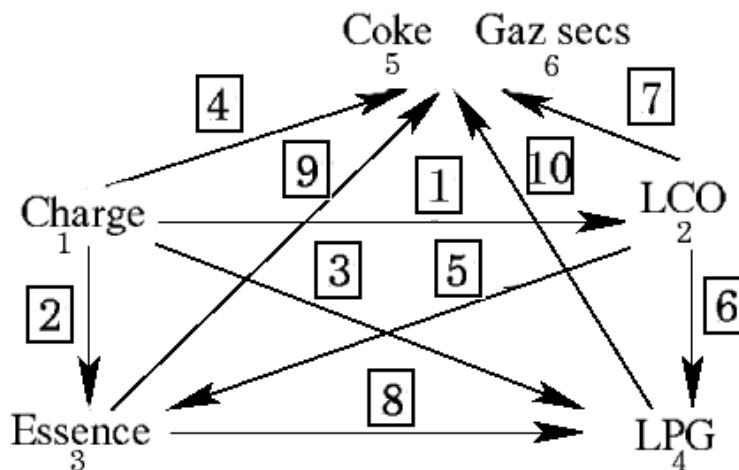


FIGURE 3.8 – Schéma du modèle de Névicato.

3.2.4 Modèles plus complexes

La volonté de construire des modèles indépendants de la composition de la charge a amené les auteurs à proposer des modèles plus complexes. Ainsi, [Jacob *et al.* \(1976\)](#), [Peixoto & de Medeiros \(2001\)](#), [Sa *et al.* \(1995\)](#), [Pitault *et al.* \(1994\)](#) ou [Névicato \(1996\)](#), considèrent respectivement des modèles à 10, 12, 13, 19 et 21 lumps.

Ces modèles décomposent la charge et le LCO en quatre groupes : paraffines, naphènes, cycles aromatiques et chaînes alkyls des cycles aromatiques. Le découpage des lumps en sous-groupes augmente le nombre de familles et permet de rendre le modèle moins dépendant au DSV utilisé pour le construire.

3.3 Comparaison et sensibilité des différents modèles

Au vu du nombre important de modèles disponibles, nous avons décidé de comparer leur comportement en OD. Nous verrons que beaucoup de paramètres influencent le rendement prédit par le modèle :

1. le modèle lui-même,
2. la charge utilisée,
3. la température ambiante,
4. le taux de présence du catalyseur.

i	Réaction	$k_{i,0}$ (s^{-1})	E_i ($J.mol^{-1}$)
1	$CV \rightarrow LCO$	0,11	90.10^3
2	$CV \rightarrow ess$	0,2	86.10^3
3	$CV \rightarrow LPG$	0,037	203.10^3
4	$LCO \rightarrow LPG$	0	90.10^3
5	$LCO \rightarrow ess$	0,18	80.10^3
6	$ess \rightarrow LPG$	$0,2.10^{-2}$	110.10^3
7	$CV \rightarrow coke$	$0,18.10^{-3}$	60.10^3
8	$LCO \rightarrow coke$	0	0

TABLE 3.1 – Constantes cinétiques et énergies d'activation pour le modèle de [Den Hollander et al. \(1998\)](#) à $798^\circ K$.

3.3.1 Comparaison des modèles à 5 ou 6 familles

Nous avons tout d'abord comparé les rendements obtenus avec les modèles de [Névicato \(1996\)](#) et [Den Hollander et al. \(1998\)](#). Pour ce faire, nous avons intégré les équations monodimensionnelles de chaque modèle pour des conditions de température et de présence en catalyseur identiques.

Le modèle de [Den Hollander et al. \(1998\)](#) s'écrit en fonction des fractions massiques des espèces de la manière suivante :

$$\frac{d}{dt}y_{CV} = \Phi \text{ CTO} (-k_1 - k_2 - k_3 - k_7)y_{CV}^2 \quad (3.1)$$

$$\frac{d}{dt}y_{LCO} = \Phi \text{ CTO} (k_1y_{CV}^2 + (-k_4 - k_5 - k_8)y_{LCO}^{1,5}) \quad (3.2)$$

$$\frac{d}{dt}y_{ess} = \Phi \text{ CTO} (k_2y_{CV}^2 + k_5y_{LCO}^{1,5} - k_6y_{ess}) \quad (3.3)$$

$$\frac{d}{dt}y_{LPG} = \Phi \text{ CTO} (k_3y_{CV}^2 + k_4y_{LCO}^{1,5} - k_6y_{ess}) \quad (3.4)$$

$$\frac{d}{dt}y_{coke} = \Phi \text{ CTO} (k_7y_{CV}^2 + k_8y_{LCO}^{1,5}) \quad (3.5)$$

La dérivation est exprimée en fonction de t , le temps de séjour. CTO est le rapport massique entre le catalyseur et la charge et ϕ est la fonction d'activité du catalyseur qui sera, *a posteriori*, évaluée comme étant nulle par [Den Hollander et al. \(1998\)](#).

Les constantes cinétiques de référence du modèle de [Den Hollander et al.](#), ainsi que les énergies d'activation correspondantes tirées des travaux de [Hagelberg et al. \(2002\)](#) sont récapitulées au tableau 3.1.

Le modèle de **Névicato** s'écrit en fonction des concentrations molaires C_i exprimées en $mol.m^{-3}$:

$$\varepsilon \frac{d}{dt} C_{CV} = -\mathcal{A}(k_1 + k_2 + k_3)C_{CV} - \mathcal{B}k_4C_{CV} \quad (3.6)$$

$$\varepsilon \frac{d}{dt} C_{LCO} = \mathcal{A} \left((-k_5 - k_6)C_{LCO} + \frac{W_{CV}}{W_{LCO}}k_1c_{HCO} \right) - \mathcal{B}k_7C_{LCO} \quad (3.7)$$

$$\varepsilon \frac{d}{dt} C_{ess} = \mathcal{A} \left(-k_8C_{ess} + \frac{W_{CV}}{W_{ess}}k_5C_{LCO} + \frac{W_{CV}}{W_{ess}}k_2C_{CV} \right) - \mathcal{B}k_9C_{ess} \quad (3.8)$$

$$\varepsilon \frac{d}{dt} C_{LPG} = -\mathcal{B}k_{10}C_{LPG} + \mathcal{A} \left(\frac{W_{ess}}{W_{LPG}}k_8C_{ess} + \frac{W_{LCO}}{W_{LPG}}k_6C_{LCO} + \frac{W_{CV}}{W_{LPG}}k_3C_{CV} \right) \quad (3.9)$$

$$\varepsilon \frac{d}{dt} C_{coke} = \frac{\mathcal{B}}{\mathcal{A}_1 + 1} \left(\frac{W_{LPG}}{W_{coke}}k_{10}C_{LPG} + \frac{W_{ess}}{W_{coke}}k_9C_{ess} + \frac{W_{LCO}}{W_{coke}}k_7C_{LCO} + \frac{W_{CV}}{W_{coke}}k_4C_{CV} \right) \quad (3.10)$$

$$\varepsilon \frac{d}{dt} C_{GS} = \frac{\mathcal{A}_1}{\mathcal{A}_1 + 1} \mathcal{B} \left(\frac{W_{LPG}}{W_{GS}}k_{10}C_{LPG} + \frac{W_{ess}}{W_{GS}}k_9C_{ess} + \frac{W_{LCO}}{W_{GS}}k_7C_{LCO} + \frac{W_{CV}}{W_{GS}}k_4C_{CV} \right) \quad (3.11)$$

où W_i est la masse molaire de l'espèce i et ε est le taux de vide du réacteur, soit α_g . Les paramètres \mathcal{A} et \mathcal{B} sont définis de la manière suivante :

$$\mathcal{A} = \alpha_p \phi \quad (3.12)$$

$$\mathcal{B} = \alpha_p \phi_c \quad (3.13)$$

ϕ est une fonction représentant la désactivation du catalyseur :

$$\phi = \frac{(E + F) \exp(-(E + F)Y_{coke})}{F + E \exp(-(E + F)Y_{coke})} \quad (3.14)$$

ϕ_c est une fonction de désactivation du catalyseur, propre à la formation du coke. Elle est exprimée en fonction d'un taux maximal de coke sur le catalyseur, \mathcal{M} , et d'un facteur de désactivation du coke, $b = 1,74$:

$$\phi_c = \left(\frac{\mathcal{M} - Y_{coke}}{\mathcal{M}} \right)^b \quad (3.15)$$

Les constantes cinétiques, les énergies d'activation et les autres paramètres du modèle de **Névicato** (1996) sont donnés aux tableaux 3.2 et 3.3.

Dans les deux modèles, les constantes cinétiques sont dépendantes de la température par l'intermédiaire des énergies d'activation, c'est-à-dire :

$$k_i = k_{i,0} \exp \left(-\frac{E_i}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}} \right) \right) \quad (3.16)$$

où $k_{i,0}$ est la constante cinétique de référence à la température T_{ref} et E_i , l'énergie d'activation de la réaction i . R est la constante des gaz parfaits ($R = 8,314 J.K^{-1}.mol^{-1}$).

Afin de comparer les deux modèles, nous avons intégré les équations monodimensionnelles de chaque modèle pour des conditions de température et de présence en catalyseur identiques.

i	Réaction	DSV Aramco		DSV Montmirail		DSV Nigeria	
		$k_{i,0}$ (s^{-1})	E_i ($J.mol^{-1}$)	$k_{i,0}$ (s^{-1})	E_i ($J.mol^{-1}$)	$k_{i,0}$ (s^{-1})	E_i ($J.mol^{-1}$)
1	$CV \rightarrow LCO$	10,48	$102,9.10^3$	6,45	$83,4.10^3$	5,12	$95,5.10^3$
2	$CV \rightarrow ess$	18,71	$84,8.10^3$	10,77	$82,2.10^3$	8,15	$74,2.10^3$
3	$CV \rightarrow LPG$	5,11	$96,7.10^3$	3,01	$126,9.10^3$	1,72	$114,1.10^3$
4	$CV \rightarrow coke + GS$	13,35	$143,6.10^3$	10,25	$143,6.10^3$	7,65	$143,6.10^3$
5	$LCO \rightarrow ess$	3,66	$109,2.10^3$	8,4	51.10^3	4,44	$74,1.10^3$
6	$LCO \rightarrow LPG$	0	-	0	-	0	-
7	$LCO \rightarrow coke + GS$	13,35	$21,8.10^3$	6,93	$21,8.10^3$	22,58	$21,8.10^3$
8	$ess \rightarrow LPG$	1,08	104.10^3	1,41	$45,8.10^3$	1,48	$43,2.10^3$
9	$ess \rightarrow coke + GS$	1,11	$20,4.10^3$	3,55	$20,4.10^3$	0,97	$20,4.10^3$
10	$LPG \rightarrow coke + GS$	2,73	$15,9.10^3$	4,53	$15,9.10^3$	2,45	$15,9.10^3$

TABLE 3.2 – Constantes cinétiques et énergies d'activation pour le modèle de *Névicato* (1996) à $803^{\circ}K$.

	DSV Aramco			DSV Montmirail			DSV Nigeria		
	$480^{\circ}C$	$530^{\circ}C$	$580^{\circ}C$	$480^{\circ}C$	$530^{\circ}C$	$580^{\circ}C$	$480^{\circ}C$	$530^{\circ}C$	$580^{\circ}C$
E	0,23	1,87	0,3	0	0,83	0,30	0	1,23	0
F	0,9	0,1	0,22	1,57	0,25	0,39	1,4	0,23	0,49
\mathcal{A}_1	0,23	0,31	0,11	0,24	0,34	0,46	0,31	0,44	0,23
\mathcal{M}	1,43	1,37	1,17	1,43	1,37	1,17	1,43	1,37	1,17

TABLE 3.3 – Paramètres du modèles de *Névicato*.

Les équations sont résolues en fractions massiques, la correspondance entre le modèle de Névicato et celui de Den Hollander *et al.* se faisant naturellement grâce à la relation :

$$W_i C_i = \rho_g Y_i \quad (3.17)$$

Les résultats sont présentés à la figure 3.9. Il est clair que les deux modèles ne retournent pas le même rendement surtout en ce qui concerne le coke produit par la réaction. Ainsi, au bout d'un temps physique de 1s, le modèle de Névicato a craqué environ 10% de charge en plus que le modèle de den Hollander. Les rendements en LCO, LPG diffèrent aussi d'environ 5% en masse. Le rendement en essence est sensiblement le même. La plus grosse différence observée entre les deux modèles est la production de coke. Il apparaît évident sur la figure 3.9 que le modèle de den Hollander crée très peu de coke en comparaison à celui de Névicato.

Des analyses complémentaires du modèle de den Hollander ont montré que pour que le modèle crée du coke, il faut que la quantité de coke initiale soit non nulle ; ce qui suppose, une charge « pré-craquée ». De plus, les rendements caractéristiques en sortie de réacteur annoncent un taux de coke de l'ordre de 2-5 %, ce que le modèle discuté ne permettra pas d'atteindre.

3.3.2 Influence de la charge utilisée

Si des modèles similaires diffèrent, c'est en partie à cause du fait que le type de DSV utilisé pour les construire est différent. Ainsi, le modèle de Névicato a été développé pour trois DSV différents qui sont nommés en fonction de l'origine du pétrole brut :

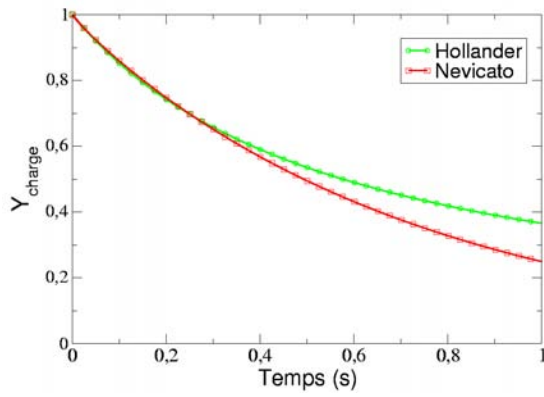
1. le DSV Aramco,
2. le DSV Montmirail,
3. le DSV Nigeria.

Ces charges diffèrent par leur composition et leur masse. Concrètement, pour chaque DSV, Névicato a déterminé des constantes cinétiques et des énergies d'activation spécifiques.

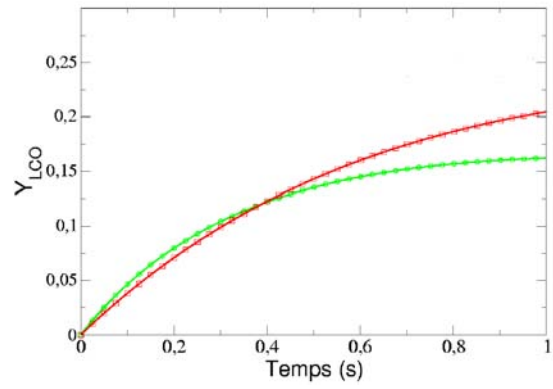
Nous avons comparé les rendements obtenus pour les trois charges étudiées par Névicato, dans des conditions de température et de présence en catalyseur similaires.

La figure 3.10 montre clairement que les rendements des DSV diffèrent fortement. Le DSV Aramco possède le meilleur rendement en produit mais aussi en coke. Le DSV Montmirail est plus craqué que le DSV Nigeria tout en ayant un rendement en coke plus faible.

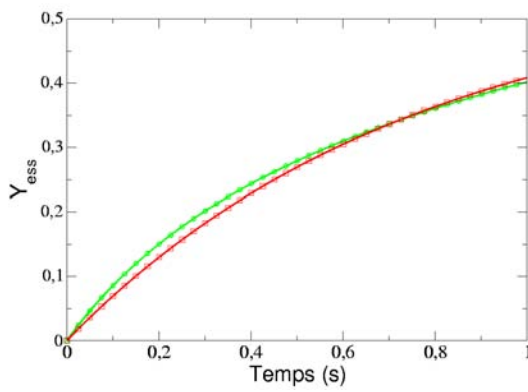
Pour conclure, cette figure fait preuve que la nature de la charge va conditionner fortement le modèle à utiliser.



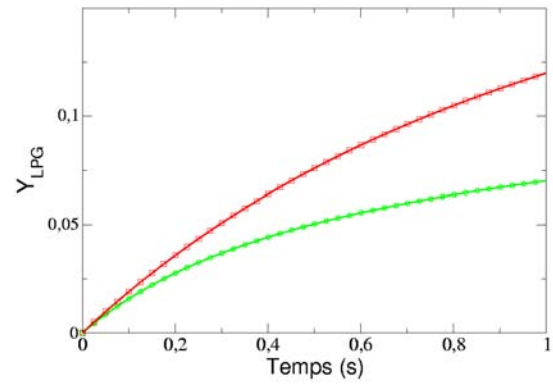
(a) Charge



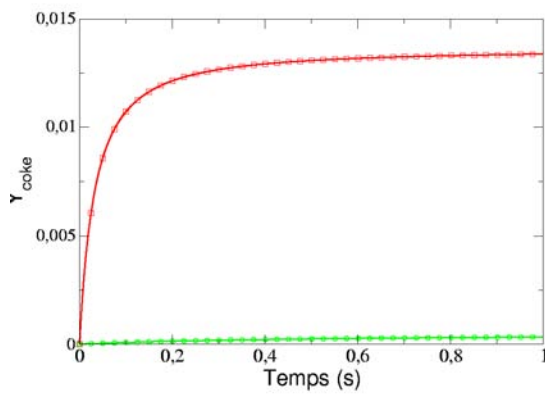
(b) LCO



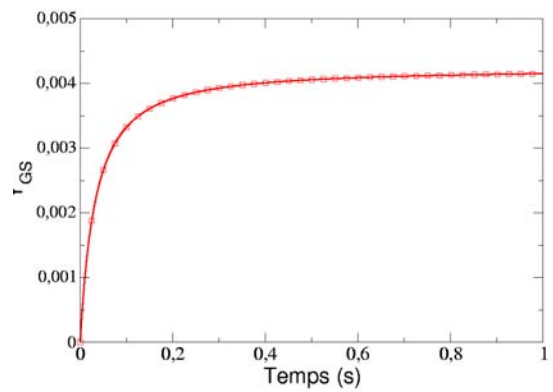
(c) essence



(d) LPG



(e) coke



(f) Gaz secs

FIGURE 3.9 – Evolution des fractions massiques de réactifs avec les modèles cinétiques de *Névicato (1996)* et *Den Hollander et al. (1998)*.

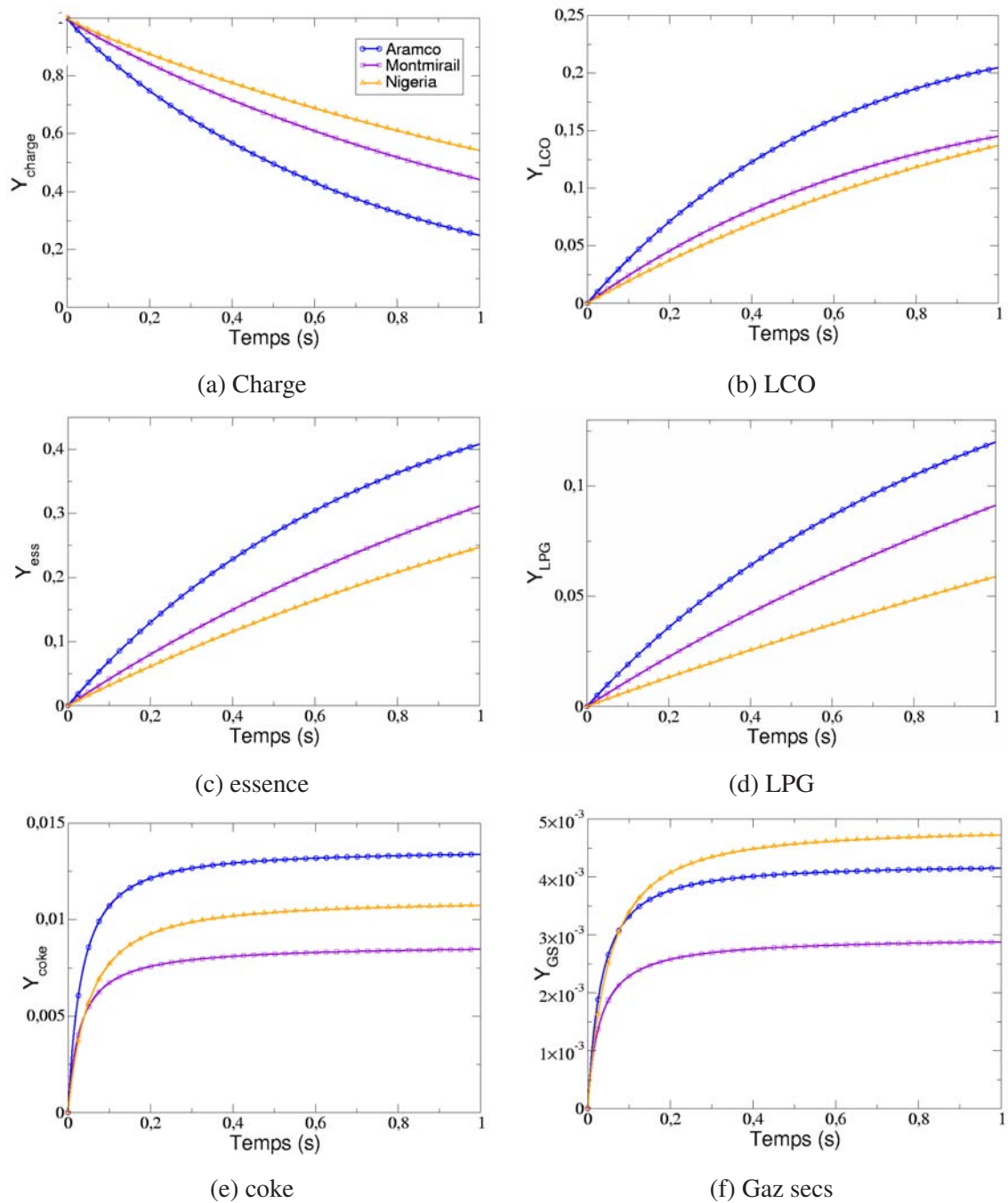


FIGURE 3.10 – Evolution des fractions massiques de réactifs avec le modèle cinétique de *Névicato* (1996) pour trois types de DSV différents : Aramco, Montmirail et Nigeria.

3.3.3 Influence de la température

La température joue un rôle primordial sur la réaction de craquage catalytique par le biais de l'énergie d'activation d'abord, mais aussi l'activité du catalyseur est différente suivant la température à laquelle il se trouve. Ainsi, Névicato propose des valeurs dépendant de la température pour les constantes intervenant dans l'activité du catalyseur et la formation de coke.

Ainsi, si on analyse le rendement pour une charge Aramco pour la même présence en catalyseur à des températures différentes, on obtient les courbes présentées à la figure 3.11. L'augmentation de la température provoque une augmentation du craquage et des produits de la réaction à l'exception du coke et des gaz secs.

Cette analyse montre l'importance de la bonne prise en compte de la température dans le modèle cinétique utilisé.

3.3.4 Influence de la présence en catalyseur

La présence en catalyseur est un paramètre important du modèle cinétique, puisque le taux de présence en catalyseur est directement relié au taux de réaction.

L'analyse monodimensionnelle de l'influence de la fraction volumique de particules sur le rendement est présentée à la figure 3.12 pour des taux de présence en catalyseur de 3, 4 et 5%. Il est évident que plus on a de catalyseur, plus le craquage est efficace du point de vue de la conversion de la charge initiale. On remarque aussi que ce paramètre ne semble pas être le paramètre prépondérant concernant la création de coke.

3.4 Modèles utilisés dans les simulations de réacteur FCC

Il nous a paru intéressant de regarder quels modèles cinétiques sont les plus utilisés pour modéliser un réacteur FCC et donc en prédire le rendement. Les modèles utilisés dans la littérature sont présentés au tableau Tab. 3.4. Il est à noter que les simulations ont été faites sur des modèles cinétiques très simples (*Theologos et al.* (1999) utilisent le modèle de *Weekman & Nace* (1970) qui comprend seulement trois familles) comme très détaillés.

Il semble cependant qu'un modèle intermédiaire (d'une demi-douzaine de familles) soit acceptable, s'il traite le coke comme un produit de la réaction à part entière.

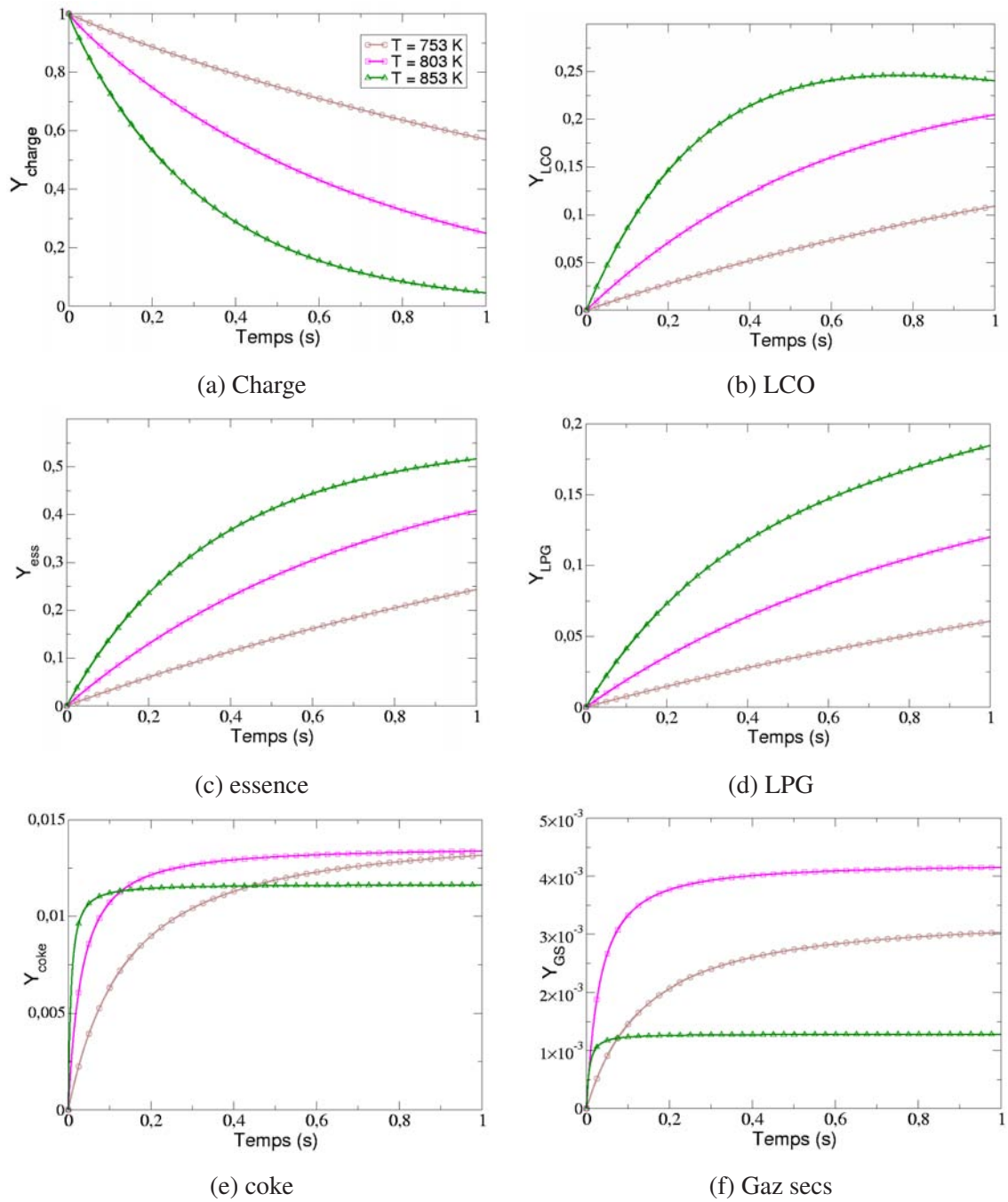


FIGURE 3.11 – Evolution des fractions massiques de réactifs avec le modèle cinétique de *Névicato* (1996) pour le DSV Aramco, à trois températures différentes.

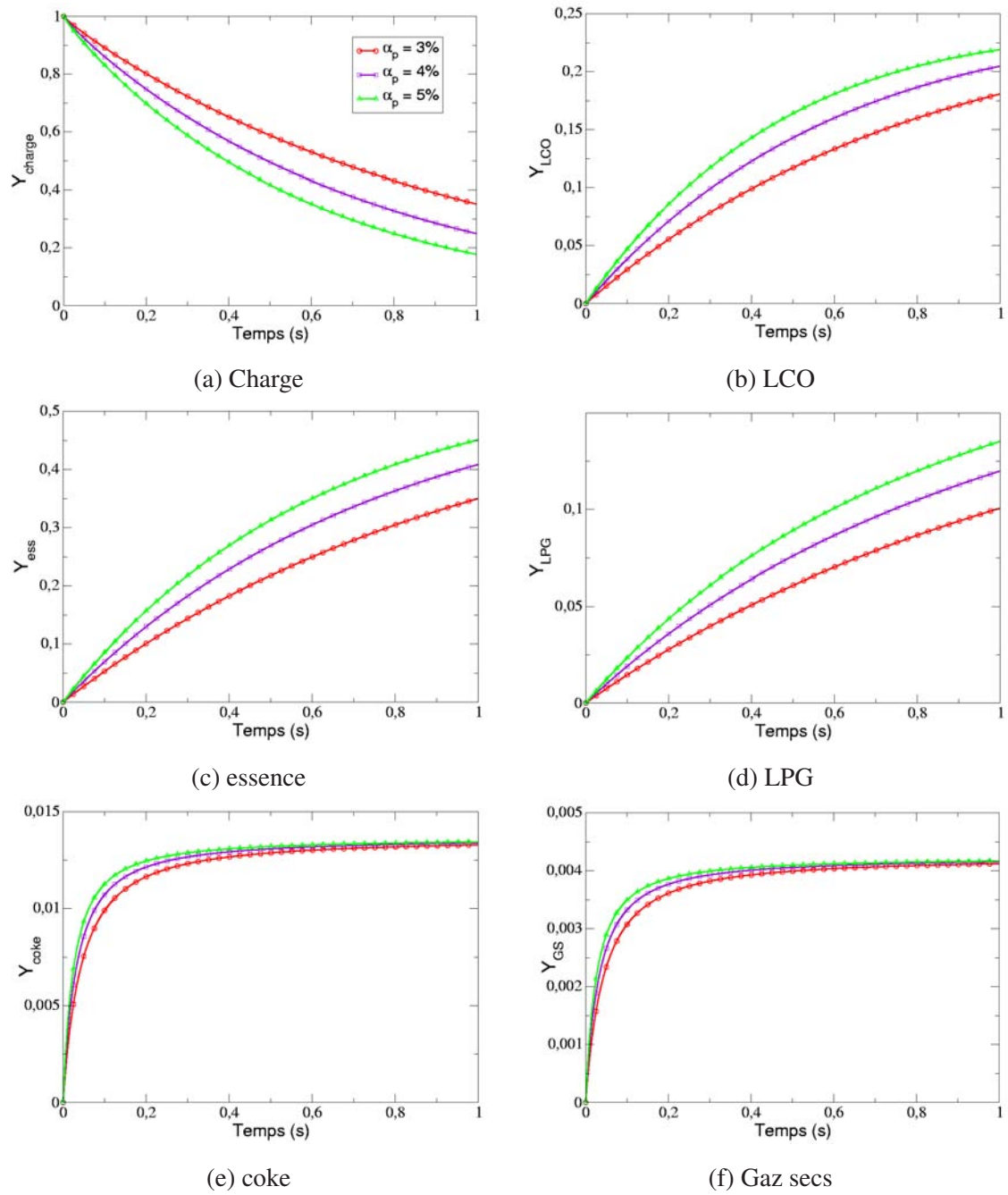


FIGURE 3.12 – Evolution des fractions massiques de réactifs avec le modèle cinétique de *Névicato* (1996) pour le DSV Aramco pour différents taux de présence en catalyseur.

Auteurs	Type de modélisation	Ecoulement	Modèle cinétique utilisé
Theologos & Markatos (1993)	Euler/Euler	diphasique	3 lumps, Weekman & Nace (1970)
Derouin (1994)	Piston	diphasique	5 lumps, Forissier <i>et al.</i>
Chang <i>et al.</i> (1997)	Euler/Euler	triphasique	5 lumps, Dave <i>et al.</i> (1993)
Derouin <i>et al.</i> (1997)	Piston	diphasique	17 lumps, Pitault <i>et al.</i> (1995)
Theologos <i>et al.</i> (1997)	Euler/Euler	diphasique	10 lumps, Jacob <i>et al.</i> (1976)
Chang <i>et al.</i> (1998)	Euler/Euler	triphasique	5 lumps, Dave <i>et al.</i> (1993)
Gao <i>et al.</i> (1999)	Euler/Euler	diphasique	13 lumps, Sa <i>et al.</i> (1995)
Theologos <i>et al.</i> (1999)	Euler/Euler	triphasique	3 lumps, Weekman & Nace (1970)
Gao <i>et al.</i> (2001)	Euler/Euler	triphasique	13 lumps, Sa <i>et al.</i> (1995)
Gupta & Rao (2001)	Piston	triphasique	4 lumps, Pitault <i>et al.</i> (1995)
Das (2002)	Euler/Euler	diphasique	12 lumps, Peixoto & de Medeiros (2001)
Pareek <i>et al.</i> (2003)	Piston	diphasique	10 lumps, Jacob <i>et al.</i> (1976)
León-Becerril <i>et al.</i> (2004)	Piston	diphasique	5 lumps, Ancheta-Juárez <i>et al.</i> (1997)
Nayak <i>et al.</i> (2005)	Euler/Lagrange	triphasique	10 lumps, Pitault <i>et al.</i> (1995)

TABLE 3.4 – Modèles utilisés dans la littérature pour la simulation des réacteurs FCC.

En conclusion, le choix d'un modèle de cinétique pour le craquage catalytique s'avère être une tâche délicate. En effet, un modèle adéquat doit obéir aux conditions suivantes :

- la faisabilité de mise en œuvre dans un code CFD,
- la prédiction d'une production de coke cohérente,
- l'adaptabilité à différents types de DSV,
- la prise en compte de l'influence de la température,
- la prise en compte de l'influence de la présence en solide,
- la prise en compte de la désactivation du catalyseur par le dépôt de coke.

Le modèle à six familles développé par [Névicato \(1996\)](#) semble correspondre le mieux aux conditions exigées, c'est donc celui que nous utiliserons dans les simulations.

Chapitre 4

Modélisation des écoulements polyphasiques

L'écoulement considéré est un écoulement polyphasique à inclusions, c'est-à-dire qu'il comprend une phase continue et une ou plusieurs phases dispersées. Ce chapitre présente l'obtention des équations en grandeurs moyennes pour chaque phase dans l'approche appelée *modèle à deux fluides*. Pour la phase continue, les équations de conservation seront obtenues grâce à une approche « filtrage » (cf. section 4.1). Pour les phases dispersées, les équations sont dérivées de l'approche statistique de la théorie cinétique des milieux granulaires (cf. section 4.2). L'effort de modélisation est alors porté sur les termes de transfert entre phases.

4.1 Modélisation de la phase continue

Dans cette partie, nous introduisons brièvement le cadre mathématique du modèle à deux fluides, dans lequel les écoulements diphasiques à phase dispersées sont traités comme des milieux continus s'interpénétrant. Les travaux présentés ci-après ont été développés par [Gray & Lee \(1977\)](#); [Howes & Whitaker \(1985\)](#); [Whitaker \(1985, 1999\)](#), et résumés par [Enwald *et al.* \(1996\)](#).

Nous utiliserons cette approche pour modéliser le comportement de la phase continue.

4.1.1 Rappel des équations locales

Un mélange diphasique peut être subdivisé en régions purement monophasiques, continues, séparées par des interfaces supposées infiniment minces et sans masse. Les équations locales de la mécanique des fluides peuvent alors être écrites pour chaque phase :

$$\text{Conservation de la masse : } \frac{\partial}{\partial t} \rho + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j) = 0 \quad (4.1)$$

$$\text{Conservation de l'espèce } v : \frac{\partial}{\partial t} (\rho Y_v) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j Y_v) = 0 \quad (4.2)$$

$$\text{Conservation de la quantité de mouvement : } \frac{\partial}{\partial t} (\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_i u_j) = \frac{\partial}{\partial x_j} \sigma_{ij} + \rho g_i \quad (4.3)$$

$$\text{Conservation de l'enthalpie : } \frac{\partial}{\partial t} (\rho h) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j h) = -\frac{\partial}{\partial x_j} q_j + S \quad (4.4)$$

où les variables sont définies de la manière suivante :

- ρ est la masse volumique du fluide considéré,
- u_j , sa vitesse dans la direction j ,
- Y_v , la fraction massique de l'espèce v ,
- $\sigma_{ij} = -p\delta_{ij} + \tau_{ij}$, le tenseur des contraintes,
- τ_{ij} , la partie dissipative du tenseur des contraintes,
- p , la pression,
- g_i , l'accélération de la pesanteur,
- h , l'enthalpie totale spécifique du milieu,
- $q_j = -\lambda \frac{\partial T}{\partial x_j}$, le flux de chaleur par conduction,
- T , la température,
- λ , la conductivité thermique,
- S est la somme du taux local d'échauffement radiatif des apports éventuels complémentaires d'énergie.

4.1.2 Fonction indicatrice de phase

La fonction indicatrice de la phase k , χ_k , fonction du point de l'espace M et du temps noté t , est définie par (cf. Fig. 4.1) :

$$\begin{aligned} \chi_k(M, t) &= 1 \quad \text{si } M \text{ est dans la phase } k \text{ à l'instant } t \\ &= 0 \quad \text{sinon} \end{aligned} \quad (4.5)$$

Remarquons que cette fonction vérifie les propriétés suivantes :

$$\frac{\partial}{\partial t} \chi_k = -n_{k,i}(M, t) \delta_k((M, t) \in \text{interface}) \quad (4.6)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \chi_k = n_{k,i}(M, t) \delta_k((M, t) \in \text{interface}) \omega_{i,k} \quad (4.7)$$

où \vec{n}_k est la normale sortante à l'interface et $\vec{\omega}_k$ la vitesse de propagation de l'interface de la phase k .

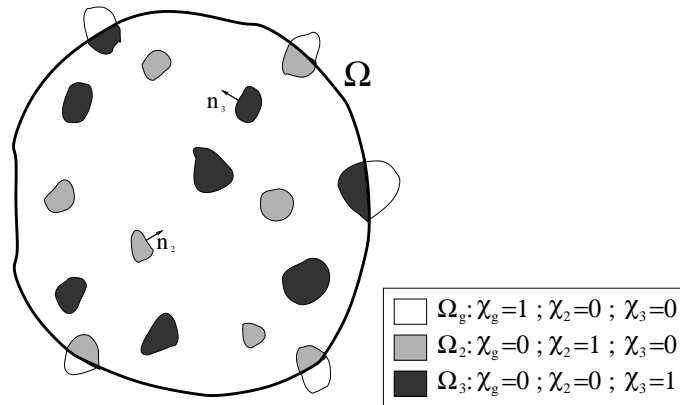


FIGURE 4.1 – Croquis de définition de la moyenne volumique : Cas d'un gaz ($k = g$) contenant deux classes d'inclusions ($k = 2$ et 3).

4.1.3 Opérateur de moyenne statistique

Définition

A chaque instant, Ω est un volume de contrôle fictif constitué de l'union des volumes Ω_k occupés par la phase k . L'opérateur de filtrage en espace de la phase k est défini par :

$$\langle \cdot \rangle_k = \frac{1}{\Omega_k} \int_{\Omega_k} \cdot d\Omega \quad (4.8)$$

Propriétés

L'opérateur de filtrage vérifie les axiomes de Reynolds, propriétés indispensables à la mise en équation du problème :

- ◇ la linéarité,
- ◇ l'idempotence,
- ◇ la commutativité avec les opérateurs de dérivation.

Définition des grandeurs moyennes

La fraction volumique de la phase k dans le volume de contrôle Ω est notée α_k et est définie par :

$$\alpha_k = \frac{1}{\Omega_k} \int_{\Omega_k} \chi_k d\Omega \quad (4.9)$$

L'examen des équations de bilan local montre qu'il est judicieux de définir, pour des problèmes à masse volumique variable et pour les variables conservatives (vitesse, enthalpie, concentration), une

moyenne pondérée par la masse volumique, appelée moyenne de Favre (Viollet & Simonin, 1993). La moyenne eulérienne classique d'une grandeur quelconque f , notée F_k , est définie par :

$$\begin{aligned} F_k &= \frac{1}{\alpha_k \rho_k} \langle \rho f \chi_k \rangle_k \\ &= \frac{1}{\alpha_k \rho_k \Omega_k} \int_{\Omega_k} \rho f \chi_k d\Omega \end{aligned} \quad (4.10)$$

L'écart à la moyenne est noté f_k'' et est défini par :

$$f_k'' \chi_k = [f - F_k] \chi_k \quad (4.11)$$

4.1.4 Equations de la phase continue en grandeurs moyennes principales

Principe de la méthode

Les équations du modèle à deux fluides sont obtenues en appliquant les étapes suivantes aux équations de conservation monophasique :

1. multiplication par la fonction indicatrice de phase χ_g à gauche,
2. application des relations de commutation,
3. filtrage sur le volume de contrôle.

4.1.5 Bilan de masse

1. Multiplication par χ_g à gauche

$$\chi_g \frac{\partial}{\partial t} \rho + \chi_g \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j) = 0$$

2. Application des relations de commutation

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho \chi_g) - n_{j,g} \delta_{\zeta,g} w_j \rho + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j \chi_g) + n_{j,g} \delta_{\zeta,g} u_j \rho &= 0 \\ \frac{\partial}{\partial t} (\rho \chi_g) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j \chi_g) &= -(u_j - w_j) n_{j,g} \delta_{\zeta,g} \rho \end{aligned}$$

3. Filtrage sur le volume de contrôle

$$\begin{aligned} \left\langle \frac{\partial}{\partial t} (\rho \chi_g) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j \chi_g) \right\rangle_g &= \langle -(u_j - w_j) n_{j,g} \delta_{\zeta,g} \rho \rangle_g \\ \left\langle \frac{\partial}{\partial t} (\rho \chi_g) \right\rangle_g + \left\langle \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j \chi_g) \right\rangle_g &= -\langle (u_j - w_j) n_{j,g} \delta_{\zeta,g} \rho \rangle_g \\ \frac{\partial}{\partial t} \langle \rho \chi_g \rangle_g + \frac{\partial}{\partial x_j} \langle \rho u_j \chi_g \rangle_g &= -\langle (u_j - w_j) n_{j,g} \delta_{\zeta,g} \rho \rangle_g \end{aligned}$$

Finalement, on obtient l'équation de conservation de la masse en grandeurs moyennées :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\alpha_g \rho_g) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\alpha_g \rho_g U_{g,j}) = - \langle (u_j - w_j) n_{j,g} \delta_{\zeta,g} \rho \rangle_g \quad (4.12)$$

avec les définitions suivantes :

- ρ_g est la masse volumique de la phase gazeuse,
- $U_{j,g}$, la vitesse moyenne de la phase gazeuse dans la direction j .

Le terme de droite dans l'équation 4.12 est la densité volumique des apports de masse à la phase continue résultant des échanges aux interfaces. Elle est notée Γ_g , et sera modélisée par la suite. En l'absence d'échange de masse entre phases, les vitesses u_j et w_j sont égales et $\Gamma_g = 0$.

4.1.6 Bilan de fraction massique de vapeur

L'équation de conservation de l'espèce s est obtenue en appliquant les étapes décrites précédemment à l'équation monophasique Eq. 4.2 :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \alpha_g \rho_g Y_v + \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_g \rho_g U_{g,i} Y_v &= - \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_g \rho_g \langle u_{g,i}'' y_v'' \rangle_g \\ &+ \langle \rho Y_v n_{i,g} \delta_{\zeta,g} (u_j - w_j) \rangle_g \end{aligned} \quad (4.13)$$

4.1.7 Bilan de quantité de mouvement

L'équation de conservation de quantité de mouvement de la phase gazeuse s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\alpha_g \rho_g U_{g,i}) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\alpha_g \rho_g U_{g,j} U_{g,i}) + \frac{\partial}{\partial x_j} \langle \rho u_i'' u_j'' \chi_g \rangle_g &= \frac{\partial}{\partial x_j} \Theta_{g,ij} - \alpha_g \frac{\partial}{\partial x_j} P_g \\ &+ \alpha_g \rho_g g_i + I_{i,g} \end{aligned} \quad (4.14)$$

Cette équation s'écrit en formulation non conservative, en utilisant l'équation 4.12 :

$$\begin{aligned} \alpha_g \rho_g \frac{\partial}{\partial t} U_{g,i} + \alpha_g \rho_g U_{g,i} \frac{\partial}{\partial x_j} U_{g,j} &= + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[-\alpha_g \rho_g \langle u_{g,i}'' u_{g,j}'' \rangle_g + \Theta_{g,ij} \right] \\ &+ \alpha_g \frac{\partial}{\partial x_j} P_g + \alpha_g \rho_g g_i + I_{g,i} - U_{g,i} \Gamma_g \end{aligned} \quad (4.15)$$

avec les définitions suivantes :

- $\Theta_{g,ij} = \langle \chi_g \tau_{ij} \rangle_g$ est le tenseur des contraintes visqueuses,
- $I_{g,i} = \left\langle \left(\tau_{ij} - p' \delta_{ij} \right) n_{j,g} \delta_g \right\rangle_g + \langle \rho u_i (u_j - w_j) \delta_{\zeta,g} n_{i,g} \rangle_g$ est le terme de transfert interfacial de quantité de mouvement obtenu après soustraction de la contribution de la pression moyenne de la phase gazeuse, il peut se décomposer de la manière suivante $I_{g,i} = I'_{g,i} + U_{\sigma,i} \Gamma_g$, avec :
 - ◇ $I'_{g,i} = \left\langle \left(\tau_{ij} - p' \delta_{ij} \right) n_{j,g} \delta_g \right\rangle_g$ représente la force due à la perturbation locale de l'écoulement induite par la présence des inclusions,
 - ◇ $U_{\sigma,i} \Gamma_g = \langle \rho u_i (u_j - w_j) \delta_{\zeta,g} n_{i,g} \rangle_g$ correspond à la quantité de mouvement transportée par le flux de masse échangé avec les phases dispersées.

4.1.8 Bilan d'enthalpie

L'équation de conservation de l'enthalpie de la phase continue s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\alpha_g \rho_g H_g) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\alpha_g \rho_g U_{g,j} H_g) = -\frac{\partial}{\partial x_j} [\alpha_g Q_{g,j} + \langle \rho u_j'' h'' \chi_g \rangle_g] + \alpha_g S_g + \Pi_g \quad (4.16)$$

avec :

- H_g l'enthalpie totale moyenne de la phase porteuse,
- $Q_{g,j}$ le flux de chaleur par conduction dans la direction j , qui s'écrit :

$$Q_{g,j} = -\lambda_g \frac{\partial}{\partial x_j} (\alpha_g T_g) + \text{terme résiduel que l'on négligera,}$$

- λ_g la conductivité thermique de la phase continue,
- T_g la température moyenne de la phase gazeuse,
- S_g la moyenne de la somme du taux local d'échauffement radiatif et des apports complémentaires d'énergie,

- $\Pi_g = -\langle (q_j + \rho h(u_j - w_j)) n_{g,j} \delta_g \rangle_g$ est la densité volumique des apports d'enthalpie à la phase gazeuse résultant des échanges aux interfaces et peut se décomposer de la manière suivante :

$$\Pi_g = \Pi'_g - H_\sigma \Gamma_g :$$

- ◊ $\Pi'_g = -\langle q_j n_{g,j} \delta_g \rangle_g$ est l'échange d'enthalpie lié à la perturbation locale de l'écoulement gazeux induite par la présence de l'inclusion,

- ◊ $H_\sigma \Gamma_g = \langle \rho h(u_j - w_j) n_{g,j} \delta_g \rangle_g$ représente l'enthalpie transportée par le flux de masse échangé entre les phases.

4.1.9 Modélisation de la turbulence de la phase continue

La fermeture du terme de contraintes turbulentes de l'équation 4.14 se fait par le concept de viscosité turbulente introduit par **Boussinesq (1877)** :

$$\langle u_{g,i}'' u_{g,j}'' \rangle_g = -\nu_g^t \left[\frac{\partial}{\partial x_j} U_{g,i} + \frac{\partial}{\partial x_i} U_{g,j} \right] + \frac{2}{3} \delta_{ij} \left[q_g^2 + \nu_g^t \frac{\partial}{\partial x_m} U_{g,m} \right] \quad (4.17)$$

Ce concept permet de modéliser les termes de fluctuations de transport des scalaires (Y_v et H_g) grâce à la définition d'un coefficient de diffusion, à la manière de **Flour & Simonin (1993)** :

$$\rho_g \langle y_v'' u_{g,j}'' \rangle_g = -\rho_g D_g^t \frac{\partial Y_v}{\partial x_j} \quad (4.18)$$

$$\rho_g \langle h_g'' u_{g,j}'' \rangle_g = -\rho_g D_g^t \frac{\partial H_g}{\partial x_j} \quad \text{avec } D_g^t = \frac{\nu_g^t}{\sigma_g} \quad (4.19)$$

La viscosité turbulente de la phase continue ν_g^t s'écrit en fonction de l'énergie turbulente q_g^2 et du taux de dissipation ε_g :

$$\nu_g^t = \frac{2}{3} q_g^2 \tau_g^t \quad (4.20)$$

avec :

$$q_g^2 = \frac{1}{2} \langle u_{g,i}'' u_{g,i}'' \rangle_g \quad (4.21)$$

et τ_g^t est le temps caractéristique des échelles de la turbulence, défini par :

$$\tau_g^t = \frac{3}{2} C_\mu \frac{q_g^2}{\varepsilon_g} \quad (4.22)$$

Remarque : Dans le modèle exposé dans ce manuscrit, C_μ est prise égale à une constante puisque l'on suppose que le diamètre des particules est petit devant les plus petites échelles de la turbulence du gaz (échelle de Kolmogorov).

q_g^2 et ε_g sont données par un modèle $k - \varepsilon$ standard, initialement développé pour les écoulements monophasiques par [Lauder & Jones \(1974\)](#), et étendu aux écoulements polyphasiques par la prise en compte de termes sources supplémentaires d'interaction interfaciale.

Les équations de conservation de l'énergie cinétique turbulente et du taux de dissipation s'écrivent de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \alpha_g \rho_g \frac{\partial q_g^2}{\partial t} + \alpha_g \rho_g U_{g,j} \frac{\partial q_g^2}{\partial x_j} &= \frac{\partial}{\partial x_j} \alpha_g \rho_g \frac{\nu_g^t}{\sigma_q} \frac{\partial q_g^2}{\partial x_j} - \alpha_g \rho_g \langle u_{g,i}'' u_{g,j}'' \rangle_g \frac{\partial U_{g,i}}{\partial x_j} \\ &- \alpha_g \rho_g \varepsilon_g + \Pi_{qg} \end{aligned} \quad (4.23)$$

$$\begin{aligned} \alpha_g \rho_g \frac{\partial \varepsilon_g}{\partial t} + \alpha_g \rho_g U_{g,j} \frac{\partial \varepsilon_g}{\partial x_j} &= \frac{\partial}{\partial x_j} \alpha_g \rho_g \frac{\nu_g^t}{\sigma_\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon_g}{\partial x_j} \\ &- \frac{\varepsilon_g}{q_g^2} \left[C_{\varepsilon,1} \alpha_g \rho_g \langle u_{g,i}'' u_{g,j}'' \rangle_g \frac{\partial U_{g,i}}{\partial x_j} + C_{\varepsilon,2} \alpha_g \rho_g \varepsilon_g \right] \\ &+ \Pi_{\varepsilon g} \end{aligned} \quad (4.24)$$

L'influence du mouvement fluctuant des particules sur la turbulence du fluide est représentée par les termes sources Π_{qg} et $\Pi_{\varepsilon g}$ (pour l'énergie cinétique turbulente et le taux de dissipation) :

$$\Pi_{qg} = \alpha_k \rho_k \frac{1}{\tau_{gk}^F} [q_{gk} - 2q_g^2 + V_{d,k,i} V_{r,k,i}] \quad \text{Simonin \& Viollet (1990)} \quad (4.25)$$

$$\Pi_{\varepsilon g} = C_{\varepsilon,3} \frac{\varepsilon_g}{q_g^2} \Pi_{qg} \quad \text{Elgobashi \& Abou-Arab (1983)} \quad (4.26)$$

τ_{gk}^F est un temps de relaxation moyen défini par [Simonin \(1991\)](#) comme :

$$\tau_{gk}^F = \frac{4}{3} \frac{\rho_k}{\rho_g} \frac{d_k}{\langle C_D \rangle_k \langle \|\vec{u}_r\| \rangle_k} \quad (4.27)$$

Les coefficients du modèle $k - \varepsilon$ sont donnés dans le tableau [4.1](#). Les expressions des vitesses relatives moyenne et de dérive seront données respectivement aux équations [Eq. 4.111](#) et [Eq. 4.112](#).

C_μ	σ_q	σ_ε	$C_{\varepsilon,1}$	$C_{\varepsilon,2}$	$C_{\varepsilon,3}$
0,09	1	1,3	1,44	1,92	1,2

TABLE 4.1 – Constantes du modèle $k - \varepsilon$.

4.2 Modélisation des phases dispersées

L'analogie entre le mouvement aléatoire des inclusions dans un écoulement turbulent diphasique et le mouvement des molécules dans un gaz a motivé plusieurs auteurs à appliquer l'approche de la théorie cinétique des gaz pour décrire le mouvement des inclusions dans un écoulement polyphasique à phases dispersées ; pour une revue complète on se reportera à [Gidaspow \(1994\)](#) ou [Enwald *et al.* \(1996\)](#). Une validation de ce modèle en écoulement dense a été effectuée par [Boëlle *et al.* \(1995\)](#).

Dans cette partie, les outils proposés par cette théorie sont utilisés afin d'écrire des équations de conservation moyennes pour les phases dispersées.

4.2.1 Equation de transport de la fonction densité de probabilité des inclusions

Le comportement des inclusions de type k est défini grâce à la fonction densité de probabilité¹ $f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p; x, t)$ telle que $f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p; x, t) \delta\vec{c}_p \delta\zeta_p \delta\mu_p \delta\vec{x}$ soit le nombre probable d'inclusions dont le centre de masse au temps t est situé dans le volume $[\vec{x}; \vec{x} + \delta\vec{x}]$ avec une vitesse de translation \vec{u}_k dans $[\vec{c}_p; \vec{c}_p + \delta\vec{c}_p]$, d'enthalpie h_k dans $[\zeta_p; \zeta_p + \delta\zeta_p]$ et de masse m_k dans $[\mu_p; \mu_p + \delta\mu_p]$.

L'équation d'évolution de f_k s'écrit de manière générale :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} f_k + \frac{\partial}{\partial x_j} c_{p,j} f_k &= - \frac{\partial}{\partial c_{p,j}} \left[\left\langle \frac{du_{k,j}}{dt} \middle|_{\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p} \right\rangle f_k \right] - \frac{\partial}{\partial \zeta_p} \left[\left\langle \frac{dh_k}{dt} \middle|_{\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p} \right\rangle f_k \right] \\ &\quad - \frac{\partial}{\partial \mu_p} \left[\left\langle \frac{d\mu_k}{dt} \middle|_{\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p} \right\rangle f_k \right] + \left(\frac{\partial f_k}{\partial t} \right)_{\text{coll}} \end{aligned} \quad (4.28)$$

$\left(\frac{\partial f_k}{\partial t} \right)_{\text{coll}}$ est le taux de variation de la pdf dû aux interactions entre inclusions (collisions, etc.).

Définition de la moyenne de phase dispersée

La moyenne de phase dispersée d'une fonction quelconque $\Psi(\vec{u}_k, h_k, m_k)$ est obtenue par intégration sur l'espace des phases, c'est-à-dire :

$$\{\Psi\}_k = \frac{1}{n_k} \int \Psi(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p) f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p; \vec{x}, t) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \quad (4.29)$$

1. abrégé pdf pour « probability density function ».

où n_k est le nombre d'inclusions par unité de volume du mélange polyphasique (appelé aussi densité du nombre d'inclusions) :

$$n_k(\vec{x}, t) = \int f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p; \vec{x}, t) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \quad (4.30)$$

Dans les écoulements réactifs ou à masse volumique variable, il est généralement plus commode d'utiliser la moyenne de phase dispersée pondérée par la masse :

$$\langle \psi \rangle_k = \frac{1}{\alpha_k \rho_k} \int \mu_p \psi(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p) f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p; \vec{x}, t) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \quad (4.31)$$

où α_k est la fraction volumique de la phase dispersée considérée et ρ_k la densité moyenne des inclusions :

$$\alpha_k \rho_k = n_k \{m_k\}_k \quad (4.32)$$

$$= \int \mu_p f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \quad (4.33)$$

Remarque : L'égalité 4.32 est en fait une approximation. En effet, n_k est le nombre de centres d'inclusions de type k . Ainsi, comme le montre la figure 4.2, dans la cellule entourée, le produit $\alpha_k \rho_k$ n'est pas nul alors que le produit $n_k \{m_k\}_k$, lui, l'est. Cette figure met donc en évidence l'erreur faite dans Eq. 4.32. Cependant, dans les cas qui nous intéressent, le rayon des particules est très petit devant la taille des cellules, l'approximation devient alors négligeable dans la modélisation mise en place.

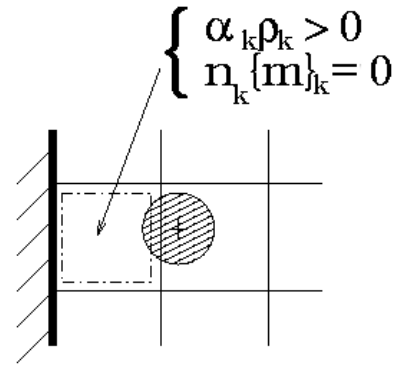


FIGURE 4.2 – Illustration de l'approximation faite dans Eq. 4.32.

Définition des grandeurs moyennes principales des phases dispersées

Grâce à la définition énoncée par l'équation 4.31, il est maintenant possible d'écrire l'expression des grandeurs moyennes des phases dispersées.

La vitesse moyenne de la phase k dans la direction i , notée $U_{k,i}$, est définie par la relation :

$$\begin{aligned} \alpha_k \rho_k U_{k,i} &= \alpha_k \rho_k \langle u_{k,i} \rangle_k \\ &= \int \mu_p c_{p,i} f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \end{aligned} \quad (4.34)$$

La composante suivant la direction i des fluctuations de vitesse de la phase k s'écrit :

$$\overset{\text{''}}{u}_{k,i} = u_{k,i} - U_{k,i} \quad (4.35)$$

Les composants du tenseur des contraintes cinétiques (ou composants du tenseur des contraintes de Reynolds des inclusions), $\langle u_{k,i}'' u_{k,j}'' \rangle_k$, sont définis par les relations :

$$\alpha_k \rho_k \langle u_{k,i}'' u_{k,j}'' \rangle_k = \int \mu_p [c_{p,i} - U_{k,i}] [c_{p,j} - U_{k,j}] f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \quad (4.36)$$

L'enthalpie moyenne de la phase k est définie par la relation :

$$\begin{aligned} \alpha_k \rho_k H_k &= \alpha_k \rho_k \langle h_k \rangle_k \\ &= \int \mu_p \zeta_k f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \end{aligned} \quad (4.37)$$

L'enthalpie fluctuante de la phase k , h_k'' s'écrit :

$$h_k'' = h_k - H_k \quad (4.38)$$

Les corrélations entre les fluctuations de vitesse et d'enthalpie, $\langle u_{k,i}'' h_k'' \rangle_k$, sont définies par les relations :

$$\alpha_k \rho_k \langle u_{k,i}'' h_k'' \rangle_k = \int \mu_p [c_{p,i} - U_{k,i}] [\zeta_k - H_k] f_k(\vec{c}_p, \zeta_p, \mu_p) d\vec{c}_p d\zeta_p d\mu_p \quad (4.39)$$

Equation générale d'Enskog

L'équation générale d'Enskog pour l'évolution d'une fonction $\Psi(\vec{u}_k, h_k, m_k)$ (Eq. 4.28) peut être dérivée par intégration de l'équation des pdf sur l'espace de la phase dispersée considérée :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \alpha_k \rho_k \langle \Psi \rangle_k + \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_k \rho_k \langle u_{k,i} \Psi \rangle_k &= \sum_{m \neq g} \mathbb{C}_{km}(m_k \Psi) \\ &+ \alpha_k \rho_k \left\langle \frac{du_{k,i}}{dt} \frac{\partial \Psi}{\partial u_{k,i}} \right\rangle_k + \alpha_k \rho_k \left\langle \frac{h_k}{dt} \frac{\partial \Psi}{\partial h_k} \right\rangle_k \\ &+ \alpha_k \rho_k \left\langle \frac{dm_k}{dt} \left[\frac{\partial \Psi}{\partial m_k} + \frac{\Psi}{m_k} \right] \right\rangle_k \end{aligned} \quad (4.40)$$

Le taux moyen de variation des propriétés des inclusions de type k due aux collisions avec les particules de type m , $\mathbb{C}_{km}(m_k \Psi)$, est l'intégrale sur toutes les collisions possibles de la variation de $m_k \Psi$ pour une collision particulière, multipliée par la fréquence probable d'une telle collision :

$$\mathbb{C}_{km}(\Psi) = \int \mu_k \Psi \left(\frac{\partial f_k}{\partial t} \right)_{\text{coll}} d\vec{c}_k d\zeta_k d\mu_k \quad (4.41)$$

L'expression de cette variation fait intervenir la probabilité d'un choc entre deux particules. Cette probabilité est décrite à l'aide d'une fonction de distribution à deux particules f_{km} qui détient des informations relatives aux particules de classe k et m au moment du choc.

$$\mathbb{C}_{km}(\Psi) = \iiint_{\vec{k} \cdot \vec{c}_{km} > 0} \mu_k d_{km}^2 [\Psi^* - \Psi] f_{km}(\vec{c}_k, \vec{x}, \vec{c}_m, x - d_{km} \vec{k}, t) d\vec{k} d\vec{c}_k d\vec{c}_m d\zeta_k d\mu_k \quad (4.42)$$

ψ^* est la valeur de ψ après le choc. d_{km} est le diamètre moyen de deux particules de classe k et m en collision, \vec{c}_{km} , la vitesse relative entre ces deux particules :

$$d_{km} = \frac{d_k + d_m}{2} \quad (4.43)$$

$$\vec{c}_{km} = \vec{c}_k - \vec{c}_m \quad (4.44)$$

\vec{k} est le vecteur unitaire dirigé du centre de la particule m vers k et d'origine, le barycentre des deux particules.

4.2.2 Equations des moments des inclusions

Les équations des moments des inclusions sont obtenues en valorisant la fonction $\psi(\vec{u}_k, h_k, m_k)$ dans l'équation d'Enskog (Eq. 4.40).

Bilan du nombre de particules

La valeur $1/m_k$ est attribuée à la fonction ψ . L'équation de bilan du nombre d'inclusions est alors obtenue :

$$\frac{\partial}{\partial t} n_k + \frac{\partial}{\partial x_i} n_k U_{k,i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[-\alpha_k \rho_k \left\langle \frac{u_{k,i}''}{m_k} \right\rangle_k \right] + \mathbb{C}(1) + \sum_{m \neq k} \mathbb{C}_{km}(1) \quad (4.45)$$

avec les significations suivantes :

- $\frac{\partial}{\partial x_i} \left[-\alpha_k \rho_k \left\langle \frac{u_{k,i}''}{m_k} \right\rangle_k \right]$ représente l'influence de l'agitation turbulente des inclusions,
- $\mathbb{C}(1)$ et $\sum_{m \neq k} \mathbb{C}_{km}(1)$ représentent l'effet de la rupture ou de la coalescence dans le cas où les inclusions considérées sont des gouttes.

En introduisant le nombre d'inclusions par unité de masse de la phase dispersée $x_k^d = 1/m_k$, l'équation 4.45 peut s'écrire :

$$\frac{\partial}{\partial t} \alpha_k \rho_k \chi_k^d + \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_k \rho_k U_{k,i} \chi_k^d = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[-\alpha_k \rho_k \left\langle x_k^d \frac{u_{k,i}''}{m_k} \right\rangle_k \right] + \mathbb{C}(1) + \sum_{m \neq k} \mathbb{C}_{km}(1) \quad (4.46)$$

avec $\chi_k^d = \langle x_k^d \rangle_k$ et $x_k^{d''} = x_k^d - \chi_k^d$.

Bilan de masse

En appliquant $\psi = 1$ dans l'équation d'Enskog (Eq. 4.40), l'équation de conservation de la masse pour les phases dispersées est écrite :

$$\frac{\partial}{\partial t} \alpha_k \rho_k + \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_k \rho_k U_{k,i} = \mathbb{C}(m_k) + \sum_{m \neq k} \mathbb{C}_{km}(m_k) + \Gamma_k \quad (4.47)$$

Les différents termes de cette équation ont les significations suivantes :

- $\mathbb{C}(m_k)$ représente l'échange de masse dû aux collisions au sein de la classe k ,
- $\sum_{m \neq k} \mathbb{C}(m_k)$ représente l'échange de masse dû aux collisions avec les autres classes,
- Γ_k représente le taux de transfert de masse à l'interface moyenné, et sera calculé à la section 4.3.

Bilan de quantité de mouvement

L'accélération d'une inclusion due à son interaction avec le fluide environnant et les effets des forces extérieures agissant sur elle peut s'écrire sous forme lagrangienne :

$$m_k \frac{du_{k,i}}{dt} = m_k g_i - \frac{\pi d_k^3}{6} \frac{\partial}{\partial x_i} p_g + F_{r,i} + [u_{\sigma,i} - u_{2,i}] \frac{dm_k}{dt} \quad (4.48)$$

$m_k g_i$ représente la force de gravité, $-\frac{\pi d_k^3}{6} \frac{\partial}{\partial x_i} p_g$ correspond à la contribution de l'écoulement environnant non perturbé par la présence de l'inclusion (Gatignol, 1983). Le terme $F_{r,i}$ provient de la perturbation due à la présence de la particule et se résume à une force de traînée :

$$F_{r,i} = -\rho_g \frac{\pi d_k^2}{8} C_D |\vec{v}_r| v_{r,i} \quad (4.49)$$

avec :

- $\vec{v}_r = \vec{u}_k - u_g$ la vitesse instantanée relative locale,
- C_D le coefficient de traînée.

Le dernier terme de l'équation 4.48 représente la quantité de mouvement transportée par le flux de masse.

L'équation 4.40 avec $\psi = u_{k,i}$ donne, en utilisant la conservation de la quantité de mouvement sur une inclusion isolée (Eq. 4.48) :

$$\begin{aligned} \alpha_k \rho_k \frac{\partial}{\partial t} U_{k,i} + \alpha_k \rho_k U_{k,j} \frac{\partial}{\partial x_j} U_{k,i} &= \frac{\partial}{\partial x_i} \left[-\alpha_k \rho_k \langle u''_{k,j} u''_{k,i} \rangle_k \right] + \mathbb{C}(m_k u''_{k,i}) - \alpha_k \frac{\partial}{\partial x_i} P_g + \alpha_k \rho_k g_i \\ &+ [U_{\sigma,i} - U_{k,i}] \Gamma_k + I'_{k,i} + \sum_{m \neq k} S_{km,i} \end{aligned} \quad (4.50)$$

avec :

$$I'_{k,i} = \alpha_k \rho_k \left\langle \frac{F_{r,i}}{m_k} \right\rangle_k \quad (4.51)$$

Les différents termes de l'équation 4.50 ont les significations suivantes :

- le premier terme du second membre, $\frac{\partial}{\partial x_i} \left[-\alpha_k \rho_k \langle u''_{k,j} u''_{k,i} \rangle_k \right]$, représente le transport de la quantité de mouvement des inclusions par les fluctuations de vitesse,
- $-\alpha_k \frac{\partial}{\partial x_i} P_g$ représente l'action du gradient de pression moyen de la phase continue (force d'Archimède),

- $\alpha_k \rho_k g_i$, l'influence des forces extérieures sur la phase dispersée considérée (en particulier la gravité),
- $[U_{\sigma,i} - U_{k,i}]$ représente l'échange de quantité de mouvement entre les phases dû au transfert de masse : U_{σ} est la vitesse moyenne du flux de masse traversant l'interface particule-gaz,
- le terme $I'_{k,i}$ représente le transfert de quantité de mouvement moyen dû à la perturbation causée par la présence de la particule,
- $\mathbb{C}(m_k u''_{k,i})$ représente l'échange de quantité de mouvement entre les particules durant les collisions avec les particules de la phase k ,
- $\sum_{m \neq k} S_{km,i}$ est le terme source dû aux collisions avec les phases dispersées différentes de la phase k considérée, on a : $S_{km,i} = \mathbb{C}_{km}(m_k u''_{k,i})$ si $k \neq m$.

Bilan d'enthalpie

L'échauffement de l'inclusion dû à son interaction avec la phase continue et aux effets des champs extérieurs peut s'écrire de manière générale :

$$m_k \frac{dh_k}{dt} = S_k + Q_r + [h_{\sigma} - h_k] \frac{dm_k}{dt} \quad (4.52)$$

S_k est la source de chaleur due aux champs extérieurs et Q_r la chaleur échangée avec le fluide porteur, causée par la présence de la particule, discuté au chapitre 2. Le terme $[h_{\sigma} - h_k] \frac{dm_k}{dt}$ représente l'enthalpie transportée par le flux de masse à la surface de la goutte.

L'équation de conservation de l'enthalpie sous forme non conservative est obtenue en posant $\psi = h_k$ dans l'équation d'Enskog :

$$\begin{aligned} \alpha_k \rho_k \frac{\partial}{\partial t} H_k + \alpha_k \rho_k U_{k,j} \frac{\partial}{\partial x_j} H_k &= \frac{\partial}{\partial x_j} \left[-\alpha_k \rho_k \langle u''_{k,j} h''_k \rangle_k \right] + \mathbb{C}(m_k h''_k) + \sum_{m \neq k} \mathbb{C}_{km}(m_k h''_k) \\ &+ \alpha_k \rho_k \left\langle \frac{S_k}{m_k} \right\rangle_k + [H_{\sigma} - H_k] \Gamma_k + \Pi_k \end{aligned} \quad (4.53)$$

avec les significations suivantes :

- le terme $\frac{\partial}{\partial x_j} \left[-\alpha_k \rho_k \langle u''_{k,j} h''_k \rangle_k \right]$ représente le transport de l'enthalpie par les fluctuations de vitesse,
- $\mathbb{C}(m_k h''_k)$ et $\sum_{m \neq k} \mathbb{C}_{km}(m_k h''_k)$ l'échange de chaleur entre les particules durant les collisions respectivement avec la même classe et avec les autres classes,
- $\alpha_k \rho_k \left\langle \frac{S_k}{m_k} \right\rangle_k$ représente l'influence des sources extérieures de chaleur sur la phase dispersée considérée (que l'on négligera),
- le terme $[H_{\sigma} - H_k] \Gamma_k$ représente l'échange d'enthalpie entre les phases dû au transfert de masse,
- le dernier terme, Π_k , représente le transfert de chaleur dû à la perturbation causée par la présence de la particule.

Agitation des phases dispersées

Dans un premier temps, à la manière de [Chapman & Cowling \(1970\)](#) suivi par [Boëlle \(1997\)](#), on établit le bilan des contraintes cinétiques turbulentes pour la phase dispersée k en prenant $\psi = u_{k,i}u_{k,j}$. On obtient ensuite le bilan d'énergie cinétique turbulente $q_k^2 = \langle u_{k,i}''u_{k,i}'' \rangle_k / 2$ en sommant les composantes de la diagonale du tenseur des contraintes cinétiques. Pour des écoulements à phase dispersée dense, on obtient l'équation suivante :

$$\begin{aligned} \alpha_k \rho_k \left[\frac{\partial}{\partial t} + U_{k,m} \frac{\partial}{\partial x_m} \right] q_k^2 &= - \frac{\partial}{\partial x_m} \left[\alpha_k \rho_k \langle u_{k,i}''u_{k,i}''u_{k,m}'' \rangle_k \right] \\ &- \left[\alpha_k \rho_k \langle u_{k,i}''u_{k,m}'' \rangle_k + \Theta_{k,ij} \right] \frac{\partial U_{k,i}}{\partial x_m} \\ &- \alpha_k \rho_k \frac{1}{\tau_{gk}^F} [2q_k^2 - q_{gk}] \\ &+ \mathbb{C} (m_k u_{k,i}''u_{k,i}'') + \sum_{m \neq k} \mathbb{C}_{km} (m_k u_{k,i}''u_{k,i}'') \end{aligned} \quad (4.54)$$

Le terme correspondant au transport par les fluctuations de vitesse dans les équations Eq. 4.50 et Eq. 4.54 peut être modélisé à l'aide du concept de viscosité turbulente :

$$\langle u_{ki}''u_{kj}'' \rangle_k = \frac{2}{3} q_k^2 \delta_{ij} - \nu_k^{\text{kin}} \left[\frac{\partial U_{k,i}}{\partial x_j} - \frac{\partial U_{k,j}}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \frac{\partial U_{k,m}}{\partial x_m} \delta_{ij} \right] \quad (4.55)$$

$\Theta_{k,ij} = \frac{\partial}{\partial x_j} \Theta(m_k u_{k,i}'')$ est explicité à la section 4.2.3.

La viscosité cinétique ν_k^{kin} est déduite par extension de l'approche monodisperse de [Balzer et al. \(1995\)](#) qui prend en compte le transport par la turbulence de la phase continue et la compétition entre la traînée et les collisions dans l'estimation du libre parcours moyen.

$$\nu_k^{\text{kin}} = \left[\frac{1}{3} q_{gk} \tau_{gk}^t + \frac{1}{3} q_k^2 \tau_{gk}^F (1 + \alpha_k^* g_0 \Phi_c) \right] \left[1 + \frac{\tau_{gk}^F}{2} \frac{\sigma_c}{\tau_{k,\text{poly}}^c} \right]^{-1} \quad (4.56)$$

$q_{gk} = \langle u_{g,i}''u_{p,i}'' \rangle_k$ est la covariance fluide-inclusion. Elle est résolue grâce à une équation supplémentaire (cf. section 4.2.4). τ_{gk}^t est le temps caractéristique de la turbulence du fluide vu par les particules (cf. Eq. 4.101).

α_k^* est le taux de présence équivalent des autres classes d'inclusions :

$$\alpha_k^* = \sum_{m \neq k} \alpha_m \frac{2m_m}{m_k + m_m} \frac{\hat{d}_{km}^3}{d_m^3} \quad \text{avec :} \quad \hat{d}_{km} = \frac{2d_k d_m}{d_k + d_m} \quad (4.57)$$

On a :

$$\sigma_c = \frac{1}{5} (1 + e_c) (3 - e_c) \quad (4.58)$$

$$\Phi_c = \frac{2}{5} (1 + e_c) (3e_c - 1) \quad (4.59)$$

$\tau_{k,\text{poly}}^c$ est le temps effectif de collision entre les inclusions de type k et toutes les autres inclusions. Il est défini par :

$$\frac{1}{\tau_{k,\text{poly}}^c} = \sum_{m \neq k} \frac{2m_m}{m_k + m_m} \frac{1}{\tau_{mk}^c} \quad (4.60)$$

Pour prendre en compte l'influence de l'agitation turbulente sur le transport des scalaires des phases dispersées, on introduit les tenseurs de dispersion turbulente.

Pour le nombre d'inclusions par unité de masse de la phase k , on utilise le coefficient standard de dispersion efficace (Flour & Simonin, 1993) :

$$\langle x_k^{d''} u_{k,i}'' \rangle_k = -D_{k,ij}^t \frac{\partial}{\partial x_j} \chi_k^d \quad (4.61)$$

avec :

$$D_{k,ij}^t = D_{gk}^t \delta_{ij} + \tau_{gk}^F \langle u_{k,i}'' u_{k,j}'' \rangle_l \quad (4.62)$$

Pour l'enthalpie, le tenseur de dispersion est obtenu à partir des équations sur les flux turbulents, en négligeant le rapport convectif et diffusif :

$$\langle h_k u_{k,i}'' \rangle_k = -K_{l,ij}^t \frac{\partial}{\partial x_j} H_k \quad (4.63)$$

avec :

$$K_{l,ij}^t = D_{gk}^t \delta_{ij} + [1/\tau_{gk}^F + 1/\tau_{gk}^T]^{-1} \langle u_{k,i}'' u_{k,j}'' \rangle_l \quad (4.64)$$

Le tenseur de dispersion turbulente fluide-inclusion D_{gk}^t est défini par Eq. 4.113 (p. 96).

Le temps de relaxation des inclusions est défini par Eq. 4.27 (p.81). Le temps de relaxation de la température des inclusions τ_{gk}^T est défini par :

$$\frac{1}{\tau_{gk}^T} = \frac{\lambda_g}{\rho_k C_{p,k}} \frac{6}{d_k^2} \text{Nu}_k \quad (4.65)$$

4.2.3 Fermeture des termes de collision

Les principaux résultats concernant la modélisation des collisions en lit fluidisé dense seront récapitulés ici. Ces résultats dérivent de la théorie de Grad (1946) appliquée aux écoulements granulaires secs par Jenkins & Richman (1985) et étendu aux écoulement gaz-particule par Simonin (1996) ou Boëlle (1997). Ils ont été analysés, entre autres, par Peirano & Leckner (1998).

Les termes spécifiques à la modélisation polydisperse ont été développés grâce aux travaux de Fede (2004) et Patino & Simonin (2005) et testés dans les travaux de Batrak (2005).

Le principe de la modélisation consiste à écrire le terme collisionnel sous la forme d'une somme de deux termes :

$$\mathbb{C}(\psi) = \chi(\psi) - \frac{\partial}{\partial x_i} \Theta(\psi) \quad (4.66)$$

Le terme $\chi(\psi)$ représente la redistribution de la grandeur ψ entre les composantes lors des chocs ; le terme, $\frac{\partial}{\partial x_i} \Theta(\psi)$, le transfert de la grandeur lors des chocs sur la composante i .

On suppose qu'il n'y a ni rupture ni coalescence au sein d'une classe ou entre deux classes de particules, on a donc :

$$\mathbb{C}(1) = 0 \quad (4.67)$$

$$\mathbb{C}_{km}(1) = 0 \quad (4.68)$$

Sous l'hypothèse qu'il n'y a pas d'échange de masse dû aux collisions :

$$\mathbb{C}(m_k) = 0 \quad (4.69)$$

$$\mathbb{C}_{km} = 0 \quad (4.70)$$

Pour les moments d'ordre 1, on obtient :

$$\mathbb{C}(m_k \ddot{u}_{k,i}) = - \frac{\partial}{\partial x_j} \Theta(m_k \ddot{u}_{k,i}) \quad (4.71)$$

$$\begin{aligned} \text{avec : } \frac{\partial}{\partial x_j} \Theta(m_k \ddot{u}_{k,i}) &= -\alpha_k \rho_k v_k^{\text{col}} \left[\frac{\partial U_{k,i}}{\partial x_j} - \frac{\partial U_{k,j}}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \frac{\partial U_{k,m}}{\partial x_m} \delta_{ij} \right] \\ &- \frac{4}{3} \alpha_k \alpha_k^* \rho_k g_0 (1 + e_c) \left[\tilde{d}_k \sqrt{\frac{2}{3} \frac{q_k^2}{\pi}} \frac{\partial U_{k,m}}{x_m} + q_k^2 \right] \delta_{ij} \end{aligned} \quad (4.72)$$

avec :

$$v_k^{\text{col}} = \frac{4}{5} \alpha_k^* g_0 (1 + e_c) \left[v_k^{\text{kin}} + \tilde{d}_k \sqrt{\frac{2}{3} \frac{q_k^2}{\pi}} \right] \quad (4.73)$$

$$\tilde{d}_k = \frac{1}{\alpha_k^*} \sum_{m \neq g} \alpha_m \frac{\hat{d}_{pn}^4}{d_n^3} \frac{m_m}{m_k + m_m} \quad (4.74)$$

e_c est le coefficient de restitution de l'énergie cinétique lors des collisions entre deux inclusions, lorsque les collisions sont supposées élastiques, binaires et sans friction.

g_0 est une fonction d'autocorrélation de paire qui sert à modéliser les interactions entre particules dans le cas dense. On retiendra pour l'expression de g_0 la forme de [Lun & Savage \(1986\)](#), aussi utilisée par [Balzer \(2000\)](#) :

$$g_0 = \left(1 - \frac{\alpha_k}{\alpha_{\text{max}}} \right)^{-2.5 \alpha_{\text{max}}} \quad (4.75)$$

où α_{\max} représente le taux de compactage maximum de sphères dures ($\alpha_{\max} = 0,64$).

Le terme source de quantité de mouvement représentant les collisions entre les différentes classes de particules est calculé directement par une intégration analytique de l'équation 4.42 (Gourdel *et al.*, 1999) avec les hypothèses suivantes :

- les particules sont sphériques, rigides et uniquement en mouvement de translation,
- les collisions sont binaires,
- l'hypothèse de chaos moléculaire est vérifiée.

Sous ces hypothèses, on a :

$$S_{km,i} = -\frac{m_k m_m}{m_k + m_m} \frac{1 + e_{km}}{2} \frac{n_k}{\tau_{km}^c} (U_{k,i} - U_{m,i}) H_1(z_{km}) \quad (4.76)$$

Le temps de collision entre les particules de classe k et celles de classe m est défini par :

$$\frac{1}{\tau_{km}^c} = 4d_{km}^2 g_{km} n_m \sqrt{\frac{\pi}{3} (q_k^2 + q_m^2)} H_0(z_{km}) \quad (4.77)$$

H_0 et H_1 sont des fonctions du paramètre z_{km} , défini par :

$$z_{km} = \frac{3(U_k - U_m)^2}{4(q_k^2 + q_m^2)} \quad (4.78)$$

Le paramètre z_{km} caractérise la compétition entre le glissement entre les phases k et m et les énergies fluctuantes de chaque phase.

$$H_0(z) = \frac{\exp(-z)}{2} + \frac{\sqrt{\pi z}}{2} \operatorname{erf}(\sqrt{z}) \left(1 + \frac{1}{2z}\right) \quad (4.79)$$

$$H_1(z) = \frac{\frac{\exp(-z)}{\sqrt{\pi z}} \left(1 + \frac{1}{2z}\right) + \operatorname{erf}(\sqrt{z}) \left(1 + \frac{1}{z} - \frac{1}{4z^2}\right)}{\frac{2}{\sqrt{\pi z}} H_0(z)} \quad (4.80)$$

avec les valeurs limites :

$$\lim_{z \rightarrow 0} H_0(z) = 1 \quad \text{et} \quad \lim_{z \rightarrow \infty} H_0(z) = \frac{\sqrt{\pi z}}{2} \quad (4.81)$$

$$\lim_{z \rightarrow 0} H_1(z) = \frac{4}{3} \quad \text{et} \quad \lim_{z \rightarrow \infty} H_1(z) = 1 \quad (4.82)$$

Les fonctions H_0 et H_1 sont approchées par Patino & Simonin (2005) :

$$H_0^*(z) = \sqrt{1 + \frac{\pi z}{4}} \quad (4.83)$$

$$H_1^*(z) = \frac{4 + 2z}{3 + 2z} \quad (4.84)$$

g_{km} est la fonction radiale de distribution au point de contact des particules de classe k et m en collision pour laquelle [Patino & Simonin \(2005\)](#) proposent la forme suivante :

$$g_{km} = \left(1 - \frac{\sum_{s \neq g} \alpha_s}{\alpha_m} \right)^{-\gamma_{km} \alpha_m} \quad (4.85)$$

avec :

$$\gamma_{km} = 1 + \frac{3}{2} \left(\frac{d_k d_m}{d_k + d_m} \right) \frac{\xi_\omega}{\sum_{s \neq g} \alpha_s} \quad (4.86)$$

$$\xi_\omega = 2 \sum_{s \neq g} \frac{\alpha_s}{d_s} \quad (4.87)$$

Le terme collisionnel pour les moments d'ordre 2 s'écrit :

$$\mathbb{C}_{km}(m_k u_{k,i}'' u_{k,j}'') = \chi_{km}(m_k u_{k,i}'' u_{k,j}'') - \frac{\partial}{\partial x_m} \Theta_{km}(m_k u_{k,i}'' u_{k,j}'') \quad (4.88)$$

Le premier terme de droite de l'équation 4.54 peut alors être couplé avec une partie du terme de collision pour donner :

$$\langle u_{k,i}'' u_{k,i}'' u_{k,m}'' \rangle_k + \sum_{m \neq g} \Theta_{km}(m_k u_{k,i}'' u_{k,i}'') \sim - [K_k^{\text{kin}} + K_k^{\text{col}}] \frac{\partial q_k^2}{\partial x_m} \quad (4.89)$$

avec les coefficients de diffusion turbulente suivants :

$$K_k^{\text{kin}} = \left[\frac{1}{3} q_{gk} \tau_{gk}' + \frac{2}{3} q_k^2 \frac{5}{9} \tau_{gk}^F (1 + \alpha_k^* g_0 \phi_c) \right] \left[1 + \frac{5}{9} \tau_{gk}^F \frac{\xi_c}{\tau_{k,\text{poly}}^c} \right]^{-1} \text{ partie cinétique} \quad (4.90)$$

$$K_k^{\text{col}} = \alpha_k^* g_0 (1 + e_c) \left[\frac{6}{5} K_k^{\text{kin}} + \frac{4}{3} \tilde{d}_k \sqrt{\frac{2}{3} \frac{q_k^2}{\pi}} \right] \text{ partie collisionnelle} \quad (4.91)$$

$$\xi_c = \frac{1}{100} (1 + e_c) (49 - 33 e_c) \quad (4.92)$$

$$\phi_c = \frac{3}{5} (1 + e_c)^2 (2 e_c - 1) \quad (4.93)$$

Le terme source collisionnel χ_{km} est calculé par [Gourdel et al. \(1999\)](#) avec les mêmes hypothèses que pour le terme source dû aux collisions dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement.

$$\chi_{km} = \frac{m_k m_m}{(m_k + m_m)^2} \frac{1 + e_c}{2} \frac{n_k}{\tau_{km}^c} \quad (4.94)$$

$$\times \left[m_m \frac{1 + e_c}{2} (U_{k,i} - U_{m,i})^2 H_1(z_{km}) - \frac{8}{3} \left(m_m \frac{1 - e_c}{2} (q_k^2 + q_m^2) + (m_k q_k^2 + m_m q_m^2) \right) \right]$$

Le premier terme représente la production d'énergie de fluctuation par le glissement entre les classes k et m , le deuxième, la dissipation de l'agitation par les collisions inélastiques et le dernier, la

redistribution d'énergie cinétique due aux collisions.

Remarque : Lorsqu'on applique $m = k$ dans l'équation précédente, on calcule le terme source collisionnel dû aux collisions dans la même classe :

$$\chi_{kk} = -m_k n_k \frac{1}{3} \frac{(1 - e_c^2)}{\tau_k^c} q_k^2 \quad (4.95)$$

avec le temps de collisions entre les particules de la classe k :

$$\frac{1}{\tau_k^c} = 4d_p^2 g_{kk} n_k \sqrt{\frac{2\pi}{3}} q_k^2 \quad (4.96)$$

On retrouve alors le terme de dissipation d'énergie cinétique due aux collisions dans le cas d'un écoulement diphasique monodisperse (Simonin, 1996).

Les transferts d'enthalpie par collisions au sein d'une classe ou entre deux classes différentes seront négligés, ce qui se traduit par :

$$\mathbb{C}(m_k h_k'') = 0 \quad (4.97)$$

$$\mathbb{C}_{km}(m_k h_k'') = 0 \quad (4.98)$$

4.2.4 Equation de la covariance des fluctuations de vitesse gaz-inclusion, q_{gk}

L'obtention de l'équation d'évolution du mouvement corrélé phase porteuse-inclusion est complexe. L'approche présentée ici utilise la démarche de Simonin *et al.* (1993) qui consiste à prédire le champ gazeux le long de la trajectoire de l'inclusion. Cependant, les termes de fermeture doivent être consistants avec la modélisation monophasique de la turbulence lorsque le temps de relaxation des inclusions tend vers zéro.

L'équation d'évolution de la covariance fluide-inclusion s'écrit :

$$\begin{aligned} \alpha_k \rho_k \frac{\partial}{\partial t} q_{gk} + \alpha_k \rho_k U_{k,i} \frac{\partial}{\partial x_i} q_{gk} &= \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\alpha_k \rho_k \frac{v_{gk}^t}{\sigma_g} \frac{\partial}{\partial x_j} q_{gk} \right] - \alpha_k \rho_k \varepsilon_{gk} - \Pi_{q_{gk}} \\ &- \alpha_k \rho_k \langle u_{g,i}'' u_{k,j}'' \rangle_k \frac{\partial}{\partial x_j} U_{k,i} - \alpha_k \rho_k \langle u_{g,j}'' u_{k,i}'' \rangle_k \frac{\partial}{\partial x_j} U_{g,i} \end{aligned} \quad (4.99)$$

avec :

- le premier terme du membre de droite représente le transport turbulent de la covariance par les fluctuations de vitesse des particules de la classe k . v_{gk}^t est la viscosité turbulente fluide-inclusion, elle s'écrit en fonction de la covariance de vitesse fluide-inclusion et du temps caractéristique de la turbulence du fluide vu par les inclusions τ_{gk}^t :

$$v_{gk}^t = \frac{1}{3} q_{gk} \tau_{gk}^t \quad (4.100)$$

avec

$$\tau_{gk}^t = \tau_g^t \left[1 + \frac{C_\beta |\vec{V}_{r,k}|}{\left(\frac{2}{3} q_g^2\right)^{1/2}} \right]^{-1/2} \quad (4.101)$$

τ_g^t est défini par Eq. 4.22 (p.81), \vec{V}_r est définie par Eq. 4.111 (p. 96). C_β est une constante du modèle égale à 0,45 dans la direction parallèle à la vitesse relative moyenne et 1,8 dans la direction orthogonale.

- le deuxième terme représente la destruction de la covariance sous l'action de la viscosité du fluide et à la perte de corrélation liée au glissement :

$$\varepsilon_{gk} = \frac{q_{gk}}{\tau_{gk}^t} \quad (4.102)$$

- le troisième terme représente l'interaction entre les mouvements fluctuants de chaque phase :

$$\Pi_{q_{gk}} = \frac{\alpha_k \rho_k}{\tau_{gk}^F} \left[\left(\left(1 + \frac{\alpha_l \rho_k}{\alpha_g \rho_g} \right) q_{gk} - 2q_g^2 - 2 \frac{\alpha_k \rho_k}{\alpha_g \rho_g} q_k^2 \right) \right] \quad (4.103)$$

- les deux derniers termes représentent la production de covariance par l'écoulement moyen. Les corrélations fluide-inclusion $\langle \ddot{u}_{g,j} \ddot{u}_{k,i} \rangle_k$ sont modélisées par analogie avec la modélisation de la turbulence de la phase continue à l'aide du concept de viscosité turbulente proposé par [Février & Simonin \(1998\)](#) :

$$\begin{aligned} \langle \ddot{u}_{g,j} \ddot{u}_{k,i} \rangle_k &= -\frac{\nu_{gk}^t}{1 + \eta_r} \left(\frac{\partial}{\partial x_j} U_{g,i} + \frac{\partial}{\partial x_i} U_{k,j} \right) \\ &+ \frac{1}{3} \delta_{ij} \left[q_{gk} + \frac{\nu_{gk}^t}{1 + \eta_r} \left(\frac{\partial}{\partial x_m} U_{g,m} + \frac{\partial}{\partial x_m} U_{k,m} \right) \right] \\ &+ \frac{\eta_r}{1 + \eta_r} \left[\langle \ddot{u}_{g,i} \ddot{u}_{g,j} \rangle_g - \frac{2}{3} q_g^2 \delta_{ij} \right] \end{aligned} \quad (4.104)$$

où $\eta_r = \tau_{gk}^t / \tau_{gk}^F$ et ν_{gk}^t est la viscosité turbulente fluide-particule de la classe k .

4.3 Fermeture des termes de transfert entre phases

C'est lors de la modélisation des termes de transfert entre phases que l'intérêt de la théorie cinétique des milieux granulaires est démontré. En effet, les termes de transferts pour les phases dispersées s'écrivent ici simplement en moyennant sur l'ensemble de la phase les termes de transfert pour une inclusion isolée. Les termes correspondants pour la phase porteuse sont déduits aisément par principe de conservation.

4.3.1 Transfert de masse

Le taux de transfert de masse à l'interface pour les phases dispersées ($k \neq g$) provient de l'analyse du flux de masse sur une inclusion isolée. Il s'écrit alors naturellement :

$$\Gamma_k = n_k \left\langle \frac{dm_k}{dt} \right\rangle_k \quad (4.105)$$

où n_k est le nombre d'inclusions par unité de volume du mélange polyphasique.

$$n_k = \frac{6\alpha_k}{\pi d_k^3} \quad (4.106)$$

Le terme de transfert de masse de la phase gazeuse est déduit des termes de transfert de masse des phases dispersées grâce à l'équation de bilan surfacique aux interfaces :

$$\Gamma_g + \sum_{k \neq g} \Gamma_k = 0 \quad (4.107)$$

La fermeture de l'équation de conservation de la fraction massique de vapeur dans la phase gazeuse (Eq. 4.13) découle de la fermeture des bilans de masse pour chaque phase. Ici le terme $\langle \rho Y_{v,i,g} \delta_{\zeta,g} (u_j - w_j) \rangle_g$ doit être fermé. Sous l'hypothèse que la masse qui traverse l'interface de la goutte est uniquement composée de vapeur (les gouttes sont constituées d'un seul composant), le terme source de l'équation de conservation de la fraction massique de vapeur dans la phase gazeuse (Eq. 4.13) est alors égal à :

$$\langle \rho n_{i,g} \delta_{\zeta,g} (u_j - w_j) \rangle_g = \Gamma_g \quad (4.108)$$

4.3.2 Transfert de quantité de mouvement

L'équation 4.50 fait apparaître le terme $I'_{k,i}$. Ce terme représente la force due à la perturbation locale de la phase continue induite par la présence des inclusions. Il découle de la moyenne sur la phase dispersée de la perturbation créée par la présence d'une particule isolée (cf. Eq. 4.49). Il contient en particulier la loi de traînée :

$$I'_{k,i} = -\alpha_k \rho_k \frac{V_{r,k,i}}{\tau_{gp}^F} \quad (4.109)$$

τ_{gp}^F est le temps caractéristique de l'entraînement des particules par le fluide défini à l'équation 4.27.

$\langle |\vec{v}_r| \rangle$ est la valeur moyenne de la norme de la vitesse locale relative, elle est approchée par [Simonin \(1991\)](#) :

$$\langle |\vec{v}_r| \rangle = \sqrt{V_{k,r,i}^2 + \langle v_{k,r,i}'' v_{k,r,i}'' \rangle_k} \quad (4.110)$$

$V_{r,k,i}$ est la vitesse moyenne relative entre la phase continue et la phase dispersée considérée. Elle peut s'exprimer en fonction de la différence des vitesses moyennes de chaque phase et d'une vitesse de dérive due à la corrélation entre le taux de présence en inclusions et les grandes échelles de la turbulence de la phase continue :

$$V_{r,k,i} = U_{k,i} - U_{g,i} - V_{d,k,i} \quad (4.111)$$

La vitesse de dérive prend en compte la dispersion due au transport des inclusions par la turbulence de la phase porteuse. A partir de l'analyse du cas théorique de particules suspendues dans une turbulence homogène isotrope (voir [Simonin & Viollet \(1990\)](#) et [Deutsch & Simonin \(1991\)](#)), on peut l'écrire de la façon suivante :

$$V_{d,k,i} = -D'_{gk,ij} \left[\frac{1}{\alpha_k} \frac{\partial}{\partial x_j} \alpha_k - \frac{1}{\alpha_g} \frac{\partial}{\partial x_j} \alpha_g \right] \quad (4.112)$$

où le tenseur de dispersion turbulente fluide-inclusion s'écrit :

$$D'_{gk,ij} = \tau'_{gk} \langle u''_{g,i} u''_{k,j} \rangle_k \quad (4.113)$$

Les conditions de saut moyennes (cf. [Delhaye \(1974\)](#)) dérivées du bilan local de la quantité de mouvement à l'interface donnent :

$$\sum_k I'_{k,i} = 0 \quad (4.114)$$

et permettent de déduire le terme $I'_{g,i}$.

Il reste à fermer le terme d'échange de quantité de mouvement dû au transfert de masse, c'est-à-dire en particulier $U_{\sigma,i}$ (vitesse moyenne du flux de masse traversant l'interface). Sous l'hypothèse d'inclusions parfaitement sphériques, on écrira :

$$\vec{U}_{\sigma} = \vec{U}_k \quad (4.115)$$

4.3.3 Transfert d'enthalpie

Dans le bilan d'enthalpie sur les phases dispersées (Eq. 4.53), le terme d'échange d'enthalpie induit par la présence de la particule, Π_k , reste à expliciter. Son expression découle de l'analyse du flux convectif reçu par une inclusion isolée :

$$\Pi_k = n_k \langle Q_{k,r} \rangle_k \quad (4.116)$$

où $Q_r = \pi d_k \lambda_g \text{Nu}_k (T_g - T_k)$ est le flux convectif reçu par une particule isolée.

Le transfert d'enthalpie dû au transfert de masse apparaît dans le terme $H_\sigma \Gamma_k$. H_σ représente l'enthalpie à l'interface entre la phase continue et la particule. Dans le cas particulier de l'évaporation, on prendra pour l'enthalpie moyenne de l'interface l'enthalpie du gaz à la température des gouttes :

$$H_\sigma = H_g(T_l) \quad (4.117)$$

Les nombres caractérisants les transferts dans un mélange gaz-inclusion (nombre de Sherwood, coefficient de traînée et nombre de Nusselt) utilisés ont été discutés dans le chapitre 2.

La modélisation d'un écoulement polyphasiques à phases dispersées avec prise en compte de la polydispersion a été décrit. Cette modélisation, dérivée de la théorie cinétique des milieux granulaires, permet d'écrire naturellement les termes de transferts entre phases à partir de l'analyse des transferts sur des inclusions isolées détaillées au chapitre 2.

Chapitre 5

Pénétration d'un jet gazeux horizontal dans un lit fluidisé par un gaz

La zone critique d'un réacteur FCC est la zone d'injection de charge. En effet, comme le souligne [Mauléon & Courcelle \(1985\)](#), cette zone a un effet important sur la sélectivité du réacteur. Les phénomènes de transferts de masse et de chaleur, discutés au chapitre 2 sont bien entendus primordiaux mais la bonne prédiction de la pénétration des jets est cruciale car elle influe sur l'hydrodynamique de la totalité du réacteur.

Les résultats précédemment obtenus par [Albrecht \(2001\)](#) sur une installation FCC n'ont pas traité de ce sujet spécifique. De plus, le code ESTET-ASTRID¹ qu'il utilisait surestimait la pénétration. Enfin, la représentation bidimensionnelle que nous avons utilisée pour développer les modèles de transferts dans le code de calcul ([Saulnier *et al.*, 2005](#)), n'est pas complètement satisfaisante (cf. annexe A) et ne permet pas de conclure précisément sur ce point.

La pénétration d'un jet gazeux dans un lit fluidisé est une problématique de recherche ancienne qui reste encore ouverte à des investigations complémentaires. Il nous a donc semblé opportun de traiter de ce sujet. Cette étude nous permet en outre de valider nos modèles hydrodynamiques et le code de calcul utilisé.

Nous avons choisi d'effectuer ces validations par comparaison à un protocole expérimental traitant de la pénétration d'un jet horizontal. Cette configuration a l'avantage d'être discutée dans la littérature et nous a semblée plus représentative de notre problématique finale, le réacteur à lit fluidisé FCC, qu'un jet à co-courant.

1. ESTET-ASTRID est un outil de simulation développé par la Direction des Etudes & Recherches d'Electricité de France. Il s'agit d'un code 3D qui résout les équations de Navier-Stokes instationnaires sous une formulation tridimensionnelle et moyennée.

5.1 Etude bibliographique

De nombreux auteurs se sont penchés sur le problème de la pénétration d'un jet gazeux dans un lit fluidisé. L'étude de ce phénomène a été initié par [Kozin & Basakov \(1967\)](#) puis par [Zenz \(1968\)](#), [Shakova \(1968\)](#), [Merry \(1971\)](#), [Xuereb \(1989\)](#) ou [Hong *et al.* \(1997\)](#).

Pourtant, seulement quelques auteurs ont établi des corrélations pour évaluer la distance de pénétration d'un jet horizontal dans un lit fluidisé par un gaz. Ces travaux et les conditions opératoires qui ont permis d'obtenir les corrélations sont récapitulées Tab. 5.1. On notera ρ_g la masse volumique du gaz, ρ_p celle des particules, U_0 la vitesse d'injection, d_0 le diamètre d'injection, d_p le diamètre des particules, ε le taux de vide et g l'accélération de la pesanteur. Les corrélations trouvées dans la littérature sont les suivantes :

◇ [Shakova \(1968\)](#) évalue une distance moyenne de pénétration du jet au sein du lit fluidisé :

$$\frac{L_{\min} + L_{\max}}{2d_0} = 7,8 \left[\frac{\rho_g}{\rho_p} \frac{U_0}{(gd_0)^{1/2}} \right] \quad (5.1)$$

◇ [Zenz \(1968\)](#) évalue la distance de pénétration maximum du jet :

$$0,044 \frac{L_{\max}}{d_0} + 1,57 = 0,5 \log(\rho_g U_0^2) \quad (5.2)$$

◇ [Merry \(1971\)](#) propose une corrélation permettant d'évaluer ce qu'il définit comme la longueur de pénétration : la distance à laquelle la vitesse du gaz dans le jet est égale et opposée à la composante horizontale de la vitesse du gaz de fluidisation :

$$\frac{L}{d_0} + 4,5 = 5,25 \left[\frac{\rho_0 U_0^2}{(1-\varepsilon)\rho_p g d_p} \right]^{0,4} \left(\frac{\rho_g}{\rho_p} \right)^{0,2} \left(\frac{d_p}{d_0} \right)^{0,2} \quad (5.3)$$

◇ [Hong *et al.* \(1997\)](#) proposent une corrélation fondée sur celle de [Merry \(1971\)](#), généralisée aux jets inclinés, elle s'écrit, pour les jets horizontaux :

$$\frac{L}{d_0} + 3,8 = 1,89 \times 10^6 \left[\frac{\rho_0 U_0^2}{(1-\varepsilon)\rho_p g d_p} \right]^{0,327} \left(\frac{\rho_g}{\rho_p} \right)^{1,974} \left(\frac{d_p}{d_0} \right)^{-0,04} \quad (5.4)$$

A la vue de ces corrélations, il semble que les auteurs s'accordent sur le fait que la vitesse et la taille de l'injection ainsi que la masse volumique du gaz influent sur la longueur de pénétration du jet. Seul [Zenz](#) n'accorde pas d'importance à la masse volumique des particules. De plus, [Merry](#) et [Hong *et al.*](#) sont seuls à inclure la fraction volumique de solide dans leur corrélation. Aucune corrélation n'accorde d'importance à la vitesse de fluidisation.

Afin de comparer les corrélations entre elles, nous avons tracé les longueurs de pénétration prédites en fonction de la taille caractéristique de l'injection, de la vitesse d'injection, du diamètre des

	Solide	d_p (μm)	ρ_p (kg.m^{-3})	Fluide	d_0 (mm)	U_0 (m.s^{-1})
Shakova (1968)	Copolymères	3160-3330	1000	Air	4-6	52-303
Zenz (1968)	FCC	50	1000	Air	18,4	32-64
	Ecaille de Fer	170	2600	Air	7,9	75-118
Merry (1971)	Sable	180-330	2640	Air	2,54-14,3	40 – 300
Hong et al. (1997)	Millet	1430	1402	Air	5-10	26,2-189,7
	Sable de Sili- cate 1	2250	1354	Air	5-10	26,2-218
	Sable de Sili- cate 2	1430	1582	Air	5-10	35-196,7

TABLE 5.1 – Synthèse des conditions opératoires relatives à l'étude des jets horizontaux dans un lit fluidisé par un gaz.

particules et de la masse volumique des particules (Fig. 5.1), les autres grandeurs étant prises égales au cas de Xuereb qui sera présenté ci-après.

Globalement, les quatre corrélations prédisent les mêmes tendances :

- l'augmentation de la pénétration avec l'augmentation de la taille de l'injection,
- l'augmentation de la pénétration avec l'augmentation de la vitesse d'injection,
- la diminution de la pénétration avec l'augmentation de la masse volumique des particules.

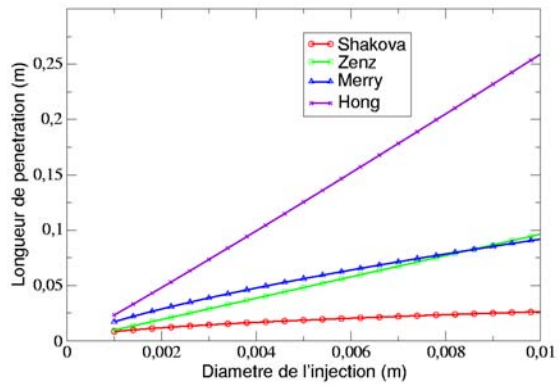
Le diamètre de la canne d'injection a une importance évidente sur la pénétration du jet : augmenter la taille de l'injection sans faire varier la vitesse augmente naturellement la quantité de mouvement du jet. Il en est de même pour l'augmentation de la vitesse d'injection.

L'influence du diamètre des particules est plus controversée, et moins explicable. Xuereb montre que la forme générale du jet et l'allure de ses fluctuations diffèrent selon le diamètre des particules.

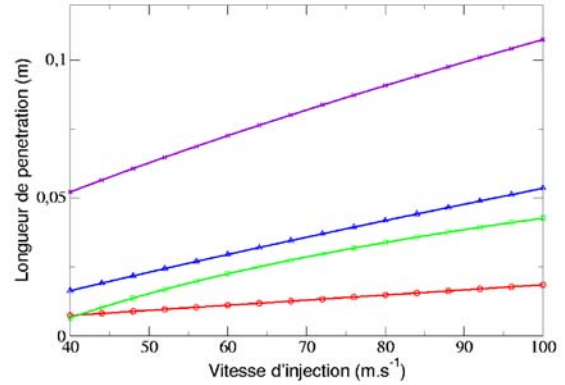
Pour finir, le fait que le jet pénètre moins lorsque la masse volumique des particules augmente n'est pas étonnant, puisque dans ce cas, la force qui s'oppose à la pénétration augmente.

En comparant les corrélations, on s'aperçoit que Hong et al. sont les plus optimistes concernant

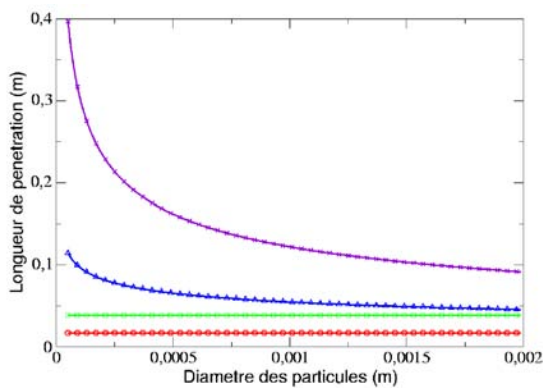
la longueur de pénétration, **Shakova** prédit toujours la valeur la plus faible. **Zenz** et **Merry** se situent toujours entre ces deux extrêmes.



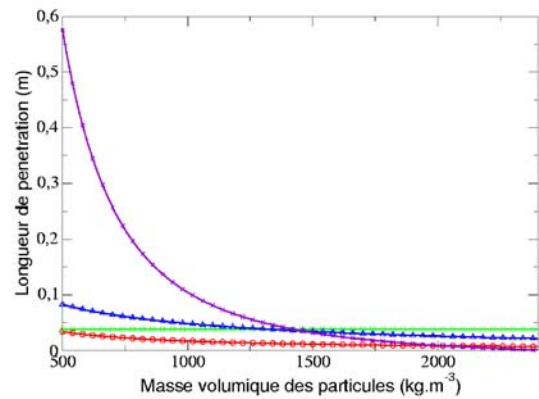
(a) ... en fonction de la taille caractéristique de l'injection.



(b) ... en fonction de la vitesse d'injection.



(c) ... en fonction du diamètre des particules.



(d) ... en fonction de la masse volumique des particules.

FIGURE 5.1 – Comparaison des longueurs de pénétration d'un jet gazeux horizontal dans un lit fluidisé prédites par différents modèles...

5.2 Protocole expérimental de Xuereb

5.2.1 Maquette de fluidisation

Les travaux de **Xuereb (1989)** étudient l'injection continue ou intermittente de gaz dans un lit fluidisé. Nous nous intéresserons plus particulièrement ici à l'injection continue. Pour cette étude, la maquette utilisée dans l'expérience est appelée « Maquette BDC » présentée à la figure 5.2. C'est une

colonne bidimensionnelle de 15 mm d'épaisseur, de 960 mm de largeur et de 2000 mm de hauteur. La canne d'injection utilisée est à section rectangulaire de dimensions 3 mm de large sur 16,5 mm de hauteur.

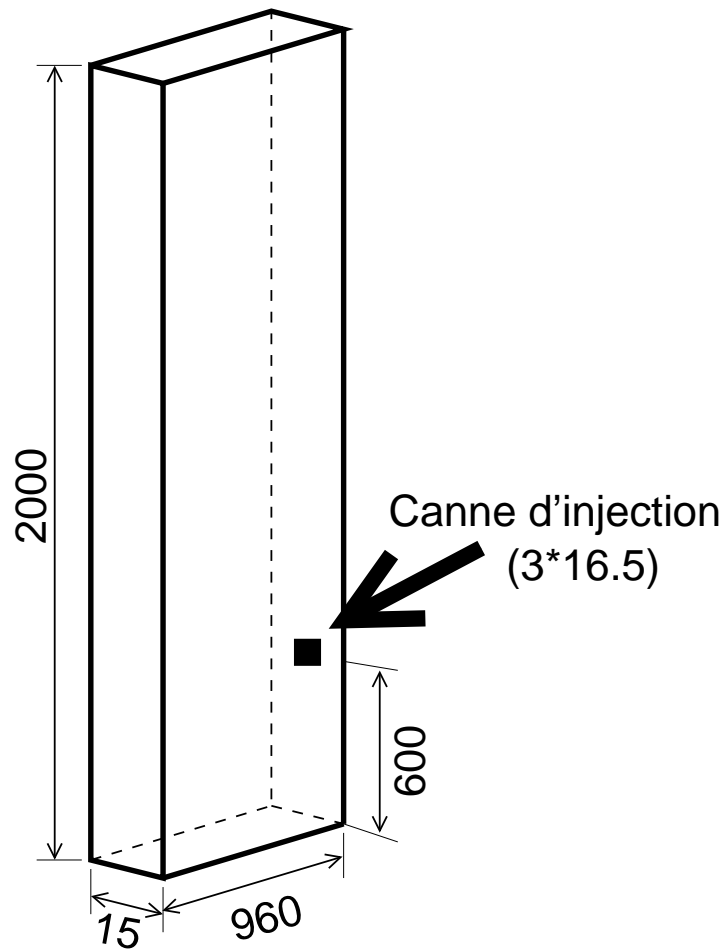


FIGURE 5.2 – « Maquette BDC » utilisée par Xuereb (1989) (cotes indiquées en mm).

Les expériences ont été réalisées avec des particules de polystyrène fluidisées par de l'air (cf. Tab. 5.2).

Xuereb a remarqué que le tube de pitot était l'instrument privilégié des auteurs pour mesurer la vitesse du gaz dans un jet vertical en lit fluidisé. Alors qu'une telle mesure n'a pas été relevée dans la littérature concernant les jets horizontaux.

Xuereb a donc choisi de mesurer la vitesse du gaz dans le jet grâce à un tube de Pitot classique formé de deux tubes concentriques : le tube interne permettant de mesurer la pression dynamique et

Air		
Densité, ρ_g	1,2	$kg.m^{-1}$
Particules de polystyrène		
Densité, ρ_p	1020	$kg.m^{-1}$
Diamètre moyen, d_p	1640	μm

TABLE 5.2 – *Caractéristiques physiques des fluides utilisés pour l'expérience.*

le tube externe la pression statique. Il y a deux prises de pression statique de sorte que la mesure ne soit pas perturbée par la composante verticale importante du gaz de fluidisation.

Le tube de Pitot est positionné dans la phase dense à la frontière du jet de manière que la différence de pression enregistrée soit nulle. Puis les mesures sont effectuées tous les millimètres. La conversion des pressions en vitesses est effectuée sans tenir compte du fait que les mesures des pressions statique et dynamique ne sont pas faites simultanément au même point. Il a été vérifié que l'erreur commise est négligeable. Les vitesses sont alors calculées grâce à la relation suivante :

$$U = \sqrt{\frac{2\Delta P}{\rho_g}} \quad (5.5)$$

La mise en place expérimentale n'est pas exacte ; en effet, Xuereb souligne le fait que le tube de Pitot de mesure pas exactement la composante horizontale de la vitesse du gaz.

De plus, le système de mesure introduit des perturbations. Il a été par exemple remarqué que la partie supérieure du lit est modifiée par la présence du tube : les bulles naturelles rencontrent des difficultés pour circuler d'un coté et de l'autre du tube, ce qui entraîne la création d'une zone mal fluidisée au dessus du tube de Pitot.

Pour finir, on soulignera que, selon Xuereb, les mesures des vitesses du gaz, par un tube de Pitot, par un milieu fluidisé, peuvent se trouver entachées d'une erreur importante en dessous de 10 à 20 $m.s^{-1}$, du fait du mode de décharge turbulent du gaz dans le jet et également de la contribution des particules à la quantité de mouvement enregistrée.

Pour toutes ces raisons, les résultats expérimentaux seront à prendre avec précaution lors de la discussion des résultats.

5.2.2 Simulation du protocole expérimental

Présentation du cas de calcul

Notre étude consiste à reproduire avec l'outil de simulation l'expérience mise en place par Xuereb. Nous choisissons alors le cas présenté dans le tableau Tab. 5.3 pour lequel nous avons à disposition

les profils radiaux de la vitesse du gaz dans le jet à différentes distances de l'injection ainsi que la vitesse du gaz sur l'axe du jet.

Vitesse de fluidisation	1	$m.s^{-1}$
Vitesse d'injection	90	$m.s^{-1}$

TABLE 5.3 – Paramètres du cas choisi pour la simulation.

La simulation est effectuée avec un maillage d'environ 16 000 cellules, raffiné au niveau de l'injection. L'injection latérale d'air se fait sur trois facettes. Ce maillage est présenté à la figure 5.3.

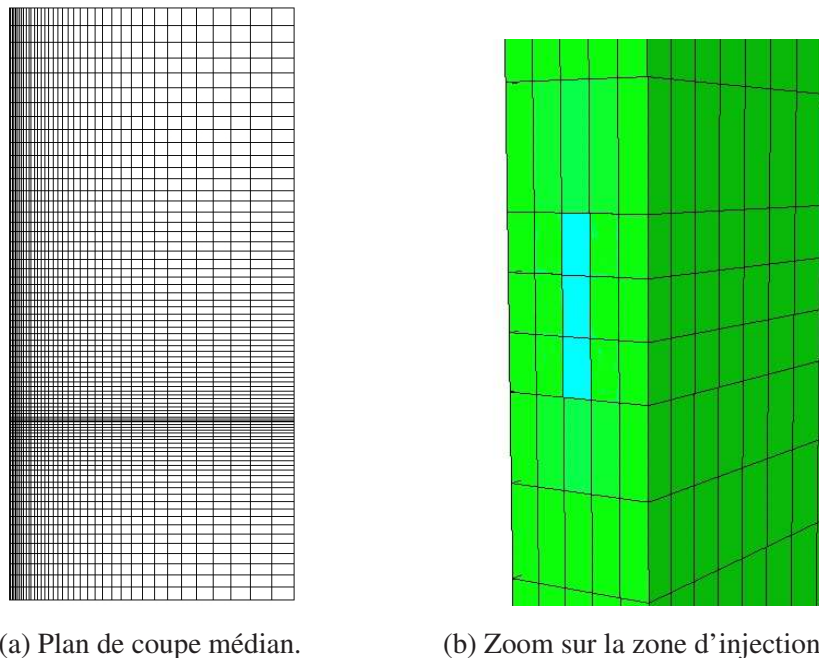


FIGURE 5.3 – Maillage utilisé pour la simulation du protocole expérimental de Xuereb.

Le lit est d'abord fluidisé pendant 5 s, sans jet horizontal. Le jet est ensuite simulé pendant 5 s. Enfin, des moyennes sont effectuées sur les dix secondes suivantes.

Analyse des résultats

La figure 5.4(a) présente la fraction volumique de particules moyenne dans le plan médian du domaine de calcul. Cette figure permet d'apprécier la forte présence en particules près des parois, surtout

du coté du jet gazeux. Ce jet entraîne une forte dilution du lit dans la zone de jet mais aussi sur toute la partie supérieure.

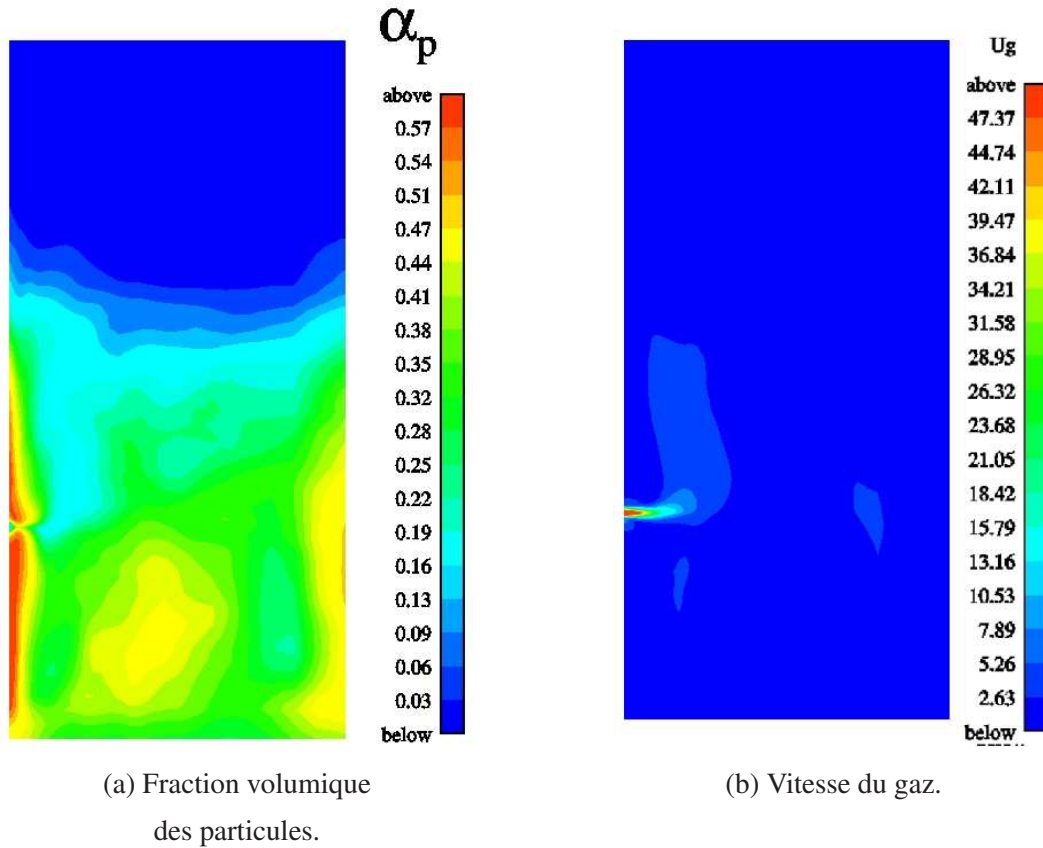


FIGURE 5.4 – Champs moyens, résultats de la simulation du protocole expérimental de Xuereb.

La figure 5.4(b) présente le module de vitesse moyenne du gaz. Elle permet de voir que la zone de forte vitesse horizontale du gaz est très localisée autour de la zone d'injection. Nous remarquons de plus que le jet est dévié vers le haut d'un angle d'environ 5° .

Concernant la longueur de pénétration du jet, nous avons vu que chaque auteur propose sa définition propre en fonction de son installation expérimentale. Xuereb détermine la profondeur de pénétration à partir de films et de diapositives pris à des instants où le jet n'est pas influencé par une bulle naturelle. Dans le cadre de nos simulations, nous définissons la longueur de pénétration du jet comme la distance à laquelle la valeur du produit $\alpha_g \rho_g U_g$ n'est plus influencée par la présence du jet. Typiquement, lorsque cette valeur devient inférieure à 10 % de sa valeur en injection. Ce critère nous conduit à estimer la longueur de pénétration à 14,8 cm.

Ces résultats sont à comparer avec les valeurs prédites par les différentes corrélations de la litté-

rature, récapitulées au tableau 5.4. La valeur que nous avons estimée est de l'ordre de grandeur de la valeur de *Hong et al.*. Nous notons que cette corrélation a été construite avec un type de particules très proche de celles utilisées par *Xuereb*. Il nous paraît donc encourageant de se rapprocher de cette corrélation.

Cependant, la distance de pénétration estimée par nos simulation est supérieure à toutes les distances prédites par les corrélations de la littérature. Ce résultat a déjà été remarqué par *Xuereb* qui l'explique par le fait que sa colonne est « bidimensionnelle », dans le sens où elle est étroite. Dans ce cas, le gaz qui pénètre dans la colonne ne peut pas se dissiper dans toutes les directions puisqu'il est gêné par les parois. Le jet a alors tendance à s'allonger plus.

Enfin, nous soulignerons que les corrélations donnent des distances de pénétration très différentes puisqu'elles peuvent être multipliées par 10 suivant la corrélation utilisée.

Auteurs	Longueur de pénétration (cm)
<i>Shakova (1968)</i>	1,67
<i>Zenz (1968)</i>	3,85
<i>Merry (1971)</i>	7,69
<i>Hong et al. (1997)</i>	13,93

TABLE 5.4 – Longueur de pénétration prédite par les modèles de la littérature pour le protocole expérimental de *Xuereb*.

Les résultats relatifs à cette simulation sont comparés aux résultats expérimentaux sur les figures suivantes.

La figure 5.5 présente la vitesse du gaz le long de l'axe du jet en fonction de la distance à la canne d'injection. A l'instar de l'expérience, la simulation permet d'observer une décroissance régulière de la vitesse en fonction de l'éloignement de la canne. Cependant, la décroissance du jet est sous-estimée par la simulation.

La figure 5.7 présente les profils radiaux de vitesse réduite² du gaz respectivement à 20, 30 et 50 mm de l'injection. Les lignes de mesures sont présentées à la figure 5.6. Ces figures permettent d'apprécier l'asymétrie du jet qui a tendance à se déplacer vers le haut sous l'action de la fluidisation. On remarque aussi que le jet s'évase avec l'éloignement à la canne d'injection.

Concernant la comparaison entre l'expérience et la simulation, on note que les valeurs dans la partie supérieure du jet concordent. Cependant, les résultats concernant les vitesses en amont du jet ne sont pas en adéquation.

2. Vitesse adimensionnée par la vitesse maximale.

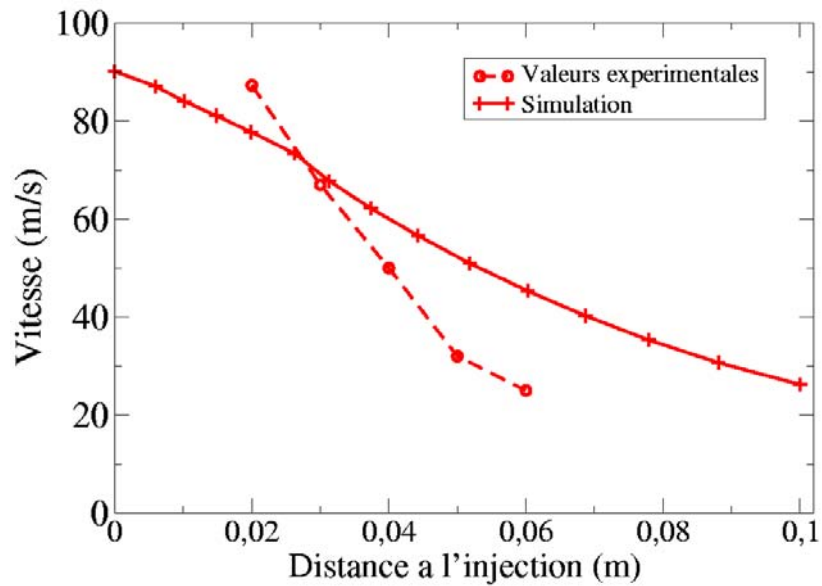


FIGURE 5.5 – Vitesse du gaz sur l'axe du jet en fonction de l'éloignement à la canne d'injection : comparaison des résultats expérimentaux et de la simulation avec maillage grossier.

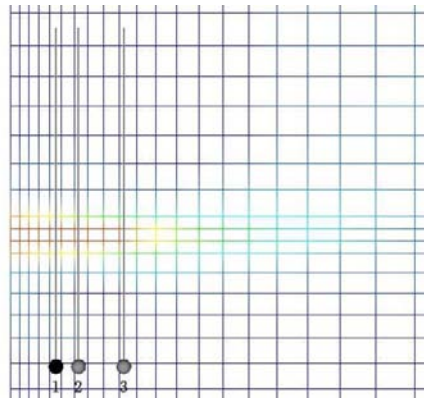
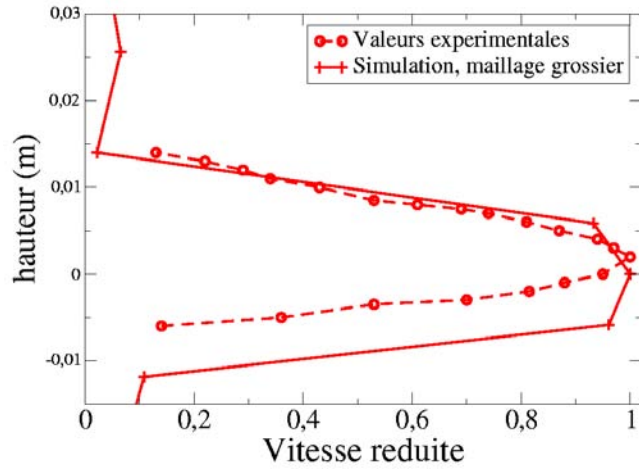


FIGURE 5.6 – Lignes de mesure des profils radiaux de la vitesse réduite du gaz : 1 : 20 mm ; 2 : 30 mm et 3 : 50 mm

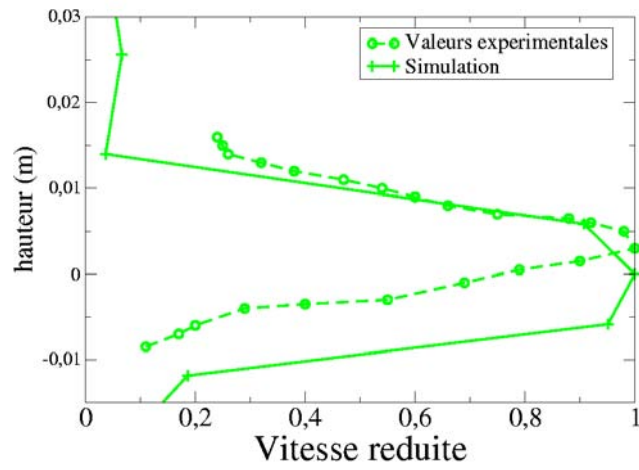
Il faut cependant évoquer ces trois dernières figures avec précaution. En effet, nous comparons ici des vitesses réduites, c'est-à-dire que ne connaissant pas la vitesse maximale dans le cas de l'expérience, nous n'adimensionnons certainement pas avec la même valeur expérience et simulation.

Même si la tendance globale est retrouvée par la simulation, des différences entre les résultats issus de l'expérience et ceux issus de la simulation existent. Il faut en particulier noter que la simulation surestime la vitesse sur l'axe du jet en même temps qu'elle surestime l'élargissement de celui-ci.

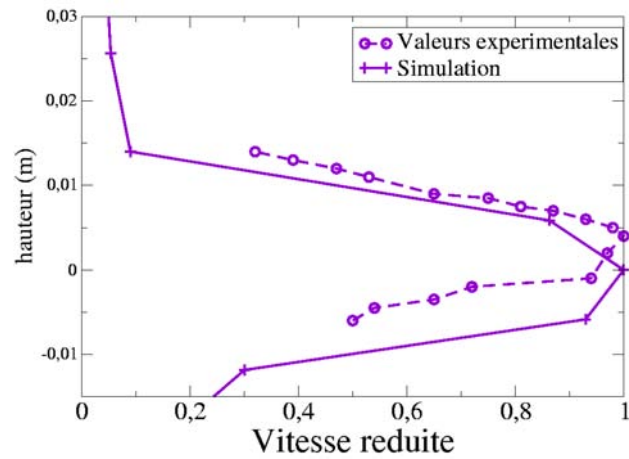
Les différences observées entre les résultats expérimentaux et la simulation peuvent être expliquées de plusieurs façons. Tout d'abord, comme nous l'avons vu plus haut, les mesures expérimentales doivent être considérées avec précaution du fait de l'utilisation du tube de Pitot en milieu fluidisé. D'autre part, les simulations ont été effectuées sur un maillage relativement lâche. En particulier, l'injection ne se fait que sur trois facettes, ce qui peut être critiquable. Des investigations plus avancées sont prévues sur un maillage plus raffiné en tant que perspectives de ce travail de thèse.



(a) à 20 mm



(b) à 30 mm



(c) à 50 mm

FIGURE 5.7 – Profil radial de vitesse réduite du gaz à 20, 30 et 50 mm de l'injection : comparaison des résultats expérimentaux et de la simulation avec maillage grossier

Chapitre 6

Mise en place de la simulation de l'installation industrielle

L'étude des différents transferts observables dans un écoulement gaz-goutte-particule (chapitre 2), de la modélisation de craquage catalytique (chapitre 2) et la mise en place des équations du modèle polyphasique (chapitre 4) ont permis d'écrire le jeu d'équations à résoudre pour simuler un réacteur de craquage catalytique FCC.

Le modèle a permis de simuler le FCC de Grandpuits, raffinerie TOTAL située dans la région parisienne, pour laquelle nous disposons des mesures faites par [Névicato \(1997\)](#) lors du remplacement des injecteurs de charge.

6.1 L'installation de Grandpuits

6.1.1 Géométrie

Le riser FCC de Grandpuits, composé de convergents et de divergents cylindriques, est présenté à la figure 6.1 de manière bidimensionnelle. Les dimensions de ce réacteur sont indiquées dans le tableau 6.1.

Le réacteur est muni de quatre injecteurs, dont les caractéristiques sont les suivantes :

- embout hémisphérique de diamètre 146 mm,
- fente horizontale d'épaisseur 46 mm et de largeur 111 mm,

La disposition des injecteurs est schématisée à la figure 6.2 qui représente le réacteur vu de dessus. Ils sont équi-répartis sur la périphérie du réacteur. Le plan (\vec{x}, \vec{z}) est donc un plan de symétrie pour l'installation.

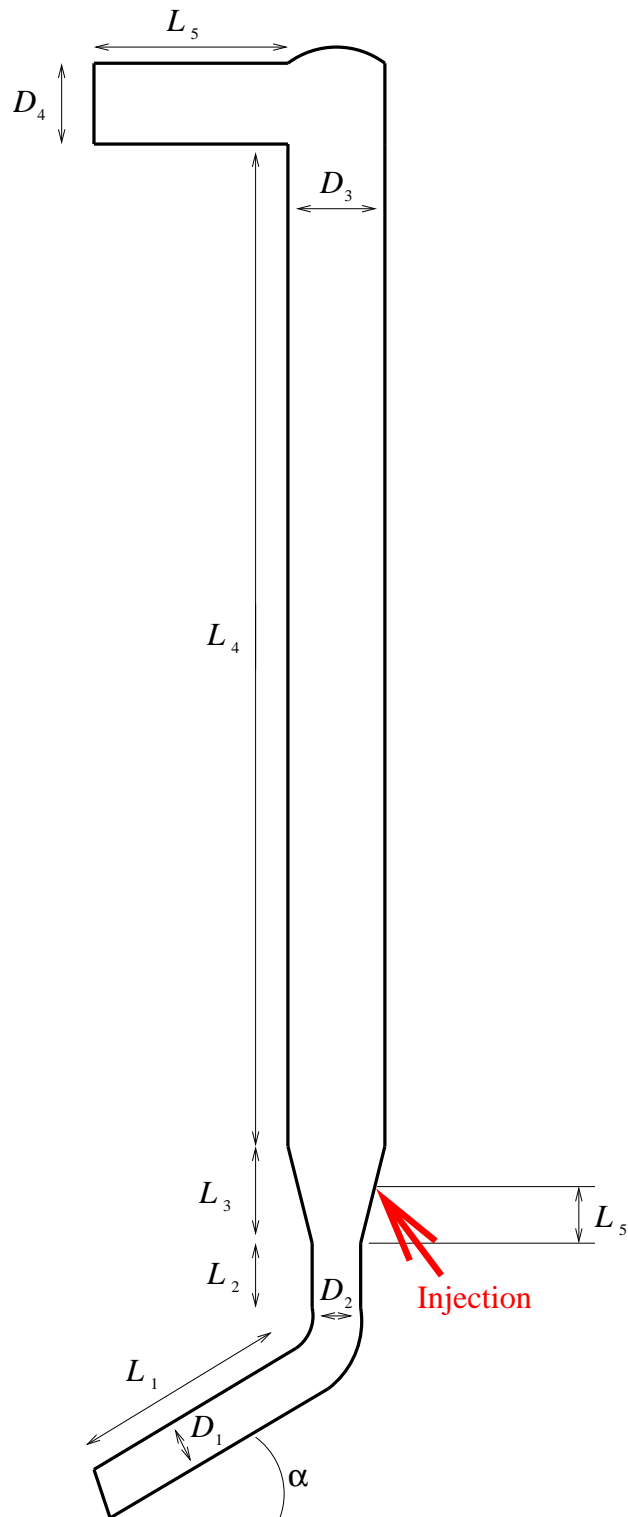


FIGURE 6.1 – Schéma du riser du FCC de Grandpuits.

D_1	=	0,59 m
D_2	=	0,61 m
D_3	=	0,94 m
D_4	=	0,88 m
L_1	=	3,7 m
L_2	=	1,493 m
L_3	=	1,131 m
L_4	=	25,5 m
L_5	=	2 m
L_6	=	0,782 m
α	=	40°

TABLE 6.1 – Cotes de l'installation de Grandpuits (Fig. 6.1).

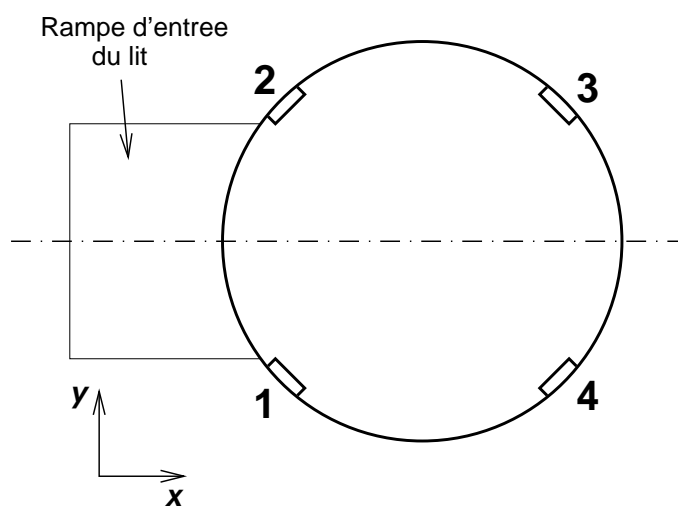


FIGURE 6.2 – Schéma de l'emplacement des injecteurs de charge sur une coupe horizontale.

Les injecteurs sont orientés à 60° de l'horizontale. Ils pénètrent de 150 mm à l'intérieur du réacteur. Le schéma d'un injecteur est donné à la figure 6.3. La surface débitante d'un injecteur est estimée à 46 mm × 111 mm, c'est-à-dire $5,106 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2$, ce qui correspond à une surface totale d'injection de charge égale à :

$$S_{\text{injec}} = 2,04 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2 \quad (6.1)$$

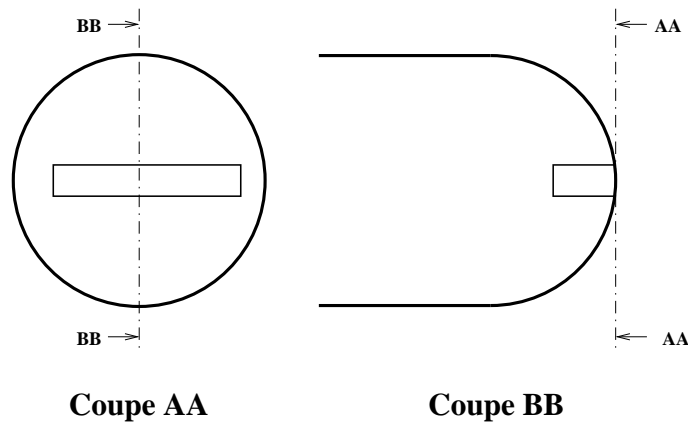


FIGURE 6.3 – Schéma d'un injecteur de charge.

6.1.2 Maillage

Le maillage est structuré et composé de 95 000 cellules. Les injections sont représentées par 12 facettes. Une vue globale du maillage ainsi qu'un zoom sur une injection sont présentés à la figure 6.4.

Ce maillage a été préféré à un maillage plus raffiné comprenant 250 000 cellules pour 32 faces d'injection par injecteur pour des raisons de coût en temps de calcul. Cependant, la précision du maillage choisi a été testée sur des « réacteurs réduits » (cf. annexe B). Cette étude nous a permis de conclure que le maillage utilisé surestime la diffusion du jet mais donne une idée qualitativement correcte de son développement.

Ainsi, calculer la totalité de l'installation sur un maillage très raffiné nous aurait permis d'obtenir une faible amélioration pour un coût en temps de calcul prohibitif : le temps de calcul avec un maillage très raffiné auraient été multipliés par 5.

Nous précisons que la surface d'injection de charge sur le maillage est légèrement inférieure (environ 13 %) à celle des injecteurs sur l'installation réelle. En effet :

$$S_{\text{injec,maillage}} = 1,782 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2 \quad (6.2)$$

Cependant, les débits d'injection sont conservés.

6.1.3 Phases en présence

La simulation effectuée sera triphasique, les trois phases considérées sont :

1. la phase gazeuse, composée de vapeur d'eau, de vapeur de charge¹ et des produits de la réaction,

1. Hydrocarbures gazeux.

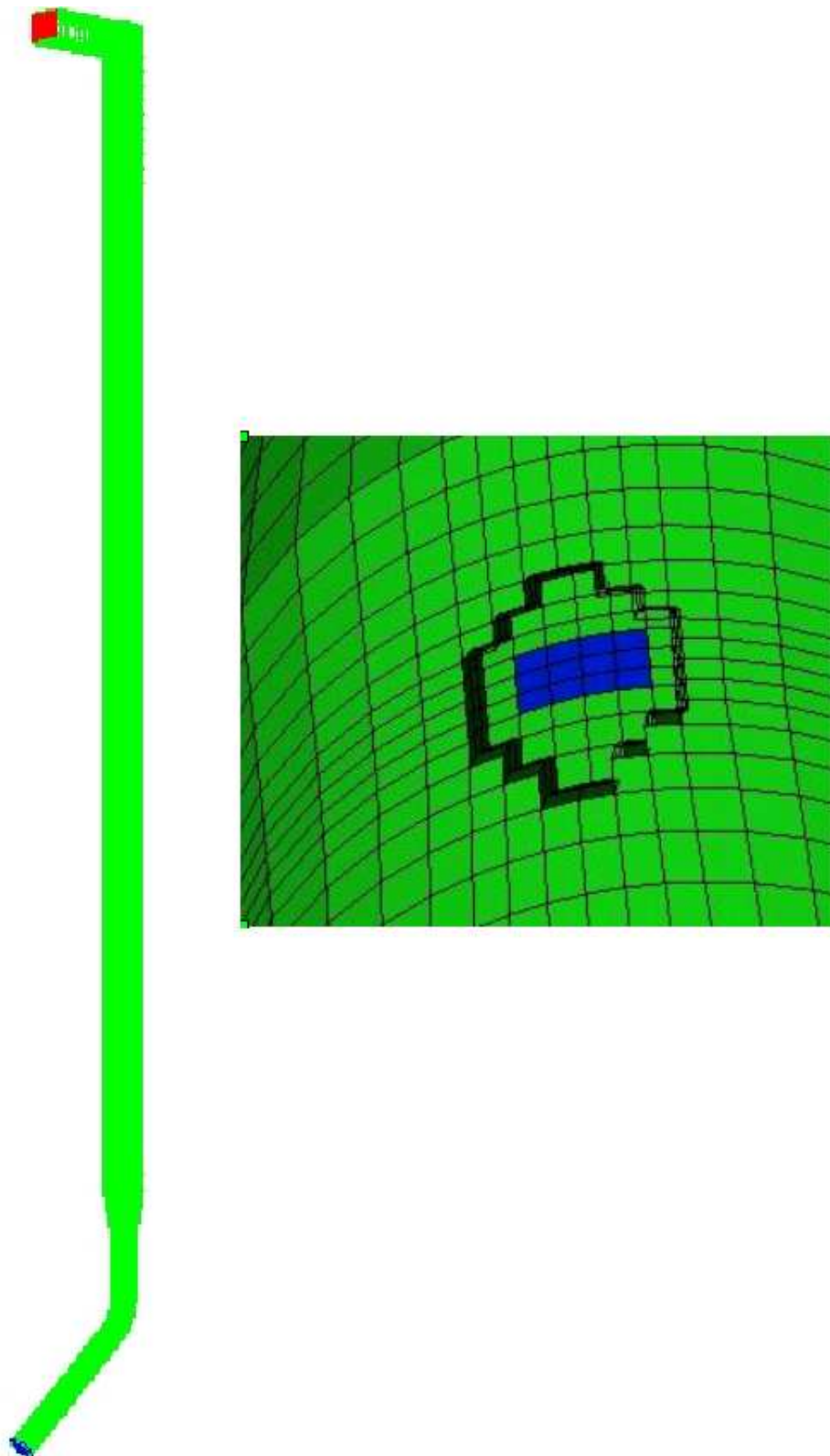


FIGURE 6.4 – *Maillage du riser du FCC de Grandpuits.*

2. la phase solide : les particules de catalyseur FCC,
3. la phase liquide, constituée des gouttes d'hydrocarbures.

Les grandeurs thermodynamiques caractéristiques des trois phases en présence et utilisées dans les simulations sont récapitulées dans le tableau Tab. 6.2.

Phase continue : vapeur d'eau et d'hydrocarbures			
Capacité calorifique à pression constante, $C_{p,CV} = C_{p,VE}$	3000	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	(0,71 kcal.K.kg ⁻¹)
Coefficient de diffusion thermique, λ_g	0,1	$W.m^{-1}.K^{-1}$	(0,1 kcal.h ⁻¹ .m. ⁰ C)
Coefficient de diffusion binaire, $D_{HV/WV}$	$9,67.10^{-5}$	$m^2.s^{-1}$	
Masse molaire de la vapeur d'eau, W_{VE}	18.10^{-3}	$kg.mol^{-1}$	(18 g.mol ⁻¹)
Masse molaire de la charge, W_{CV}	494.10^{-3}	$kg.mol^{-1}$	(494 g.mol ⁻¹)
Masse molaire du LCO, W_{LCO}	210.10^{-3}	$kg.mol^{-1}$	(210 g.mol ⁻¹)
Masse molaire de l'essence, W_{ess}	100.10^{-3}	$kg.mol^{-1}$	(200 g.mol ⁻¹)
Masse molaire du LPG, W_{LPG}	50.10^{-3}	$kg.mol^{-1}$	(50 g.mol ⁻¹)
Masse molaire des FG, W_{FG}	30.10^{-3}	$kg.mol^{-1}$	(30 g.mol ⁻¹)
Viscosité dynamique, μ_g	$3,17.10^{-5}$	$Pa.s$	
Phase solide : particules de catalyseur			
Masse volumique, ρ_p	1300	$kg.m^{-3}$	($d = 1,3$)
Chaleur spécifique à pression constante, $C_{p,p}$	1046	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	(0.25 kcal.kg ⁻¹ .K)
diamètre, d_p	80	μm	
Phase liquide : gouttes d'hydrocarbures			
Masse volumique, ρ_l	800	$kg.m^{-3}$	($d = 0.8$)
Chaleur spécifique à pression constante, $C_{p,l}$	3000	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	(0,71 kcal.kg ⁻¹ .K)
Température d'ébullition, $T_{eb}(P_{ref} = 3 \text{ bar})$	723	K	(450 °C)
Chaleur latente de vaporisation, L_v	-124400	$J.kg^{-1}$	(-30 kcal.kg ⁻¹)

TABLE 6.2 – Grandeurs thermodynamiques des phases en présence.

6.1.4 Point de fonctionnement

Les valeurs de fonctionnement moyennes de l'unité sont récapitulées dans le tableau Tab. 6.3.

La densité moyenne du lit en entrée étant de 725 kg.m^{-3} , si on applique la relation :

$$\alpha_g \rho_g + \alpha_p \rho_p = \rho_{\text{moy}} \quad (6.3)$$

Débit de charge, Q_{charge}	59,6	$kg.s^{-1}$	(188 $t.h^{-1}$)
Débit de vapeur de dispersion, $Q_{VE, \text{injec}}$	2,3	$kg.s^{-1}$	(7 $t.h^{-1}$)
Température de l'injection (préchauffe), T_{injec}	516	K	(243 $^{\circ}C$)
Débit de catalyseur (circulation), Q_{cata}	279	$kg.s^{-1}$	(1005 $t.h^{-1}$)
Température de la phase dense (catalyseur régénéré), T_{lit}	1021	K	(748 $^{\circ}C$)
Pression	3	bar	(2 $barg$)

TABLE 6.3 – Conditions de fonctionnement du FCC de Grandpuits.

on trouve donc une fraction volumique de particules en entrée du lit de 0,557.

On obtient alors la vitesse d'injection en entrée du réacteur :

$$\begin{aligned} U_{\text{lit}} &= \frac{Q_{\text{cata}}}{S_{\text{lit}} \rho_p} \\ &= 1.41 \text{ m.s}^{-1} \end{aligned} \quad (6.4)$$

D'après les valeurs du tableau 6.3, on a, en faisant un bilan sur les quatre injections et si S est la surface d'injection d'un injecteur :

$$4S_{\text{injec}} \alpha_{l, \text{injec}} \rho_l U_{l, \text{injec}} = Q_{\text{charge}} \quad (6.5)$$

$$4S_{\text{injec}} \alpha_{g, \text{injec}} \rho_{g, \text{injec}} U_{g, \text{injec}} = Q_{VE, \text{injec}} \quad (6.6)$$

On suppose que le gaz et les gouttes sont injectés à la même vitesse : $U_{l, \text{injec}} = U_{g, \text{injec}} = U_{\text{injec}}$. Le gaz injecté est seulement composé de vapeur d'eau à la température de 516 K . La densité du gaz en injection est donc de $1,26 \text{ kg.m}^{-3}$.

L'équation (6.5) permet d'écrire :

$$U = \frac{Q_{\text{charge}}}{4S_{\text{injec}} \alpha_{l, \text{injec}} \rho_l} \quad (6.7)$$

On en conclut que :

$$\alpha_{l, \text{injec}} = \frac{Q_{\text{charge}} \rho_{g, \text{injec}}}{Q_{VE, \text{injec}} \rho_l + Q_{\text{charge}} \rho_{g, \text{injec}}} \quad (6.8)$$

$$= 0.0395 \quad (6.9)$$

On détermine alors la vitesse d'injection :

$$U_{\text{injec}} = 92,3 \text{ m.s}^{-1} \quad (6.10)$$

Pour des raisons de représentativité de la zone d'injection², on supposera que les gouttes sont injectées à l'équilibre dans leur vapeur en respectant les bilans thermique et dynamique. Cette hypothèse nous permet, en outre, de nous affranchir de raideurs numériques liées à l'évaporation extrêmement rapide des gouttes dans les premières cellules après l'injection.

Ainsi, les bilans dynamique et thermique donnent :

$$(\alpha_g \rho_g U_g + \alpha_l \rho_l U_l)_{injec}^{init} = (\alpha_g \rho_g U_g + \alpha_l \rho_l U_l)_{injec}^{eq} \quad (6.11)$$

$$(\alpha_g \rho_g U_g H_g + \alpha_l \rho_l U_l H_l)_{injec}^{init} = (\alpha_g \rho_g U_g H_g + \alpha_l \rho_l U_l H_l)_{injec}^{eq} \quad (6.12)$$

L'hypothèse que les gouttes sont à saturation nous donne l'équation :

$$T_{l,injec}^{eq} = f(Y_{CV,injec}^{eq}) \quad (6.13)$$

issue de l'équation de Clausius-Clapeyron (cf. Eq. 2.42, p. 38).

En supposant de plus que les gouttes et le gaz sont à la même température, nous obtenons les conditions d'injections suivantes :

$$Y_{CV,injec} = 0,3117 \quad (6.14)$$

$$T_{injec} = 515,3 \text{ K} \quad (6.15)$$

$$\alpha_{l,injec} = 0,0383 \quad (6.16)$$

$$U_{injec} = 93,56 \text{ m.s}^{-1} \quad (6.17)$$

On supposera, en se référant à des données industrielles, que les gouttes injectées ont un diamètre initial moyen de 100 μm .

6.2 Simulation effectuée

6.2.1 Le code *Saturne_Polyphasique@Tlse*

Saturne_Polyphasique@Tlse est la version périphérique, développée à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, de code *Saturne*. Ce dernier est un code de calcul « volumes finis » développé par Electricité De France, regroupant les connaissances et les compétences acquises via ESTET-ASTRID (volumes finis) et N3S (éléments finis) d'où il tire son autre appellation « solveur commun ». Le schéma utilisé est implicite et toutes les variables sont calculées au centre des cellules.

Il résout les équations Eulériennes instationnaires pour les écoulements polyphasiques avec des termes de transferts interfaciaux. C'est donc un outil adapté à la simulation de l'écoulement triphasique réactif au sein d'un réacteur à lit fluidisé FCC.

2. Le type d'injecteur utilisé suppose que la vapeur d'eau et les gouttes de charges sont mélangées avant leur injection dans le réacteur.

6.2.2 Conditions aux limites

En entrée, les conditions utilisées sont de type dirichlet pour les vitesses, les fractions volumiques, les grandeurs turbulentes et les variables scalaires.

En sortie, la condition utilisée est celle qui annule la dérivée normale du gradient tangentiel de pression :

$$\frac{\partial}{\partial n} \frac{\partial P_g}{\partial \tau} = 0 \quad (6.18)$$

Ceci revient à conserver le profil de pression amont à la dernière cellule en sortie. Pour les autres grandeurs en sortie, nous imposerons un flux nul.

Concernant la condition à la paroi, nous choisirons une condition de frottement pour la phase continue et une condition de rebond élastique sans frottement pour les phases dispersées (Flux nul de quantité de mouvement et conservation de l'énergie cinétique d'agitation).

6.2.3 Récapitulatif du jeu d'équation

Les équations de conservation résolues sont les suivantes :

– pour chaque phase k :

- conservation de la masse :

$$\frac{\partial}{\partial t} \alpha_k \rho_k + \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_k \rho_k U_{k,i} = \Gamma_k \quad (6.19)$$

- conservation de la quantité de mouvement :

$$\begin{aligned} \alpha_k \rho_k \frac{\partial}{\partial t} U_{k,i} + \alpha_k \rho_k U_{k,j} \frac{\partial}{\partial x_j} U_{k,i} &= -\alpha_k \frac{\partial}{\partial x_i} P_g + \alpha_k \rho_k g_i + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[-\alpha_k \rho_k \langle u''_{k,i} u''_{k,j} \rangle_k + \Theta_{k,ij} \right] \\ &+ I_{k,i} + [U_\sigma - U_{k,i}] \Gamma_k \end{aligned} \quad (6.20)$$

- conservation de l'enthalpie :

$$\alpha_k \rho_k \frac{\partial}{\partial t} H_k + \alpha_k \rho_k U_{k,j} \frac{\partial}{\partial x_j} H_k = -\frac{\partial}{\partial x_j} \alpha_k \rho_k \langle h''_k u''_{k,j} \rangle_k + \Pi_k + [H_\sigma - H_k] \Gamma_k \quad (6.21)$$

– conservation de la fraction massique de la charge vaporisée :

$$\begin{aligned} \alpha_g \rho_g \frac{\partial}{\partial t} Y_{CV} + \alpha_g \rho_g U_{g,i} \frac{\partial}{\partial x_i} Y_{CV} &= \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_g \rho_g (D_{CV/g} + D_g^t) \frac{\partial}{\partial x_i} Y_{CV} \right) \\ &- Y_{CV} \Gamma_g + \Gamma_{CV}^R - \Gamma_l \end{aligned} \quad (6.22)$$

– conservation des fractions massiques des produits gazeux de la réaction :

$$\alpha_g \rho_g \frac{\partial}{\partial t} Y_s + \alpha_g \rho_g U_{g,i} \frac{\partial}{\partial x_i} Y_s = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_g \rho_g (D_{s/g} + D_g^t) \frac{\partial}{\partial x_i} Y_s \right) - Y_s \Gamma_g + \Gamma_s^R \quad (6.23)$$

– conservation du coke créée par la réaction :

$$\alpha_p \rho_p \frac{\partial}{\partial t} Y_{\text{coke}} + \alpha_p \rho_p U_{p,i} \frac{\partial}{\partial x_i} Y_{\text{coke}} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_p \rho_p D_p^t \frac{\partial}{\partial x_i} Y_{\text{coke}} \right) + (1 - Y_{\text{coke}}) \Gamma_p \quad (6.24)$$

On a $\Gamma_p = \Gamma_{\text{coke}}^R$.

– conservation du nombre de gouttes par unité de masse de liquide :

$$\alpha_l \rho_l \frac{\partial}{\partial t} X_d + \alpha_l \rho_l U_{l,i} \frac{\partial}{\partial x_i} X_d = - \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_l \rho_l \langle x_d'' u_{l,i}'' \rangle_l - X_d \Gamma_l$$

La masse volumique du mélange gazeux est calculée grâce à la loi des gaz parfaits :

$$\frac{1}{\rho_g} = \frac{RT_g}{P} \left[\frac{Y_{CV}}{W_{CV}} + \frac{Y_{LCO}}{W_{LCO}} + \frac{Y_{ess}}{W_{ess}} + \frac{Y_{LPG}}{W_{LPG}} + \frac{Y_{FG}}{W_{FG}} + \frac{Y_{VE}}{W_{VE}} \right] \quad (6.25)$$

Modèles de turbulence

Les premières simulations, effectuées sur un maillage bidimensionnel, ont montré que la turbulence de la phase continue était totalement détruite par les phases dispersées³. Par conséquent, les équations de la phase continue sont résolues sans modèle de turbulence.

Le modèle à deux équations $q_2 - q_{12}$ exposé au chapitre 4 a été utilisé pour l'agitation des phases dispersées. Dans notre cas, puisque nous n'utilisons pas de modèle de turbulence pour les phases dispersées, nous avons $q_{12} = 0$.

6.2.4 Transferts modélisés

Les transferts pris en compte dans la simulation sont représentés de façon schématique sur la figure 6.5.

Les transferts dynamiques et thermiques entre la phase gazeuse et les phases dispersées sont pris en compte ainsi que les échanges massiques entre le liquide et les particules dus à l'évaporation. Entre les particules et les gouttes, seuls les échanges de quantité de mouvement dus aux collisions sont modélisés (voir la modélisation polydisperse du chapitre 4). Il est à noter que ce modèle a été introduit pour des raisons autant numériques que physiques. En effet, l'introduction du modèle a permis de réduire le libre parcours moyen des gouttes et donc de limiter leur vitesse dans les zones où elles sont en concentration infimes mais présentes quoi qu'il en soit puisque nous sommes dans le cadre d'une

3. Résultats obtenus aussi par Petit (2005), qui montre que l'effet de la turbulence sur l'hydrodynamique du lit est négligeable. Ce choix a aussi été fait par Mathiesen *et al.* (1999).

modélisation eulérienne.

Enfin, le transfert massique gaz-particule dû au dépôt de coke sur les particules dans le cas de l'écoulement réactif est aussi pris en considération.

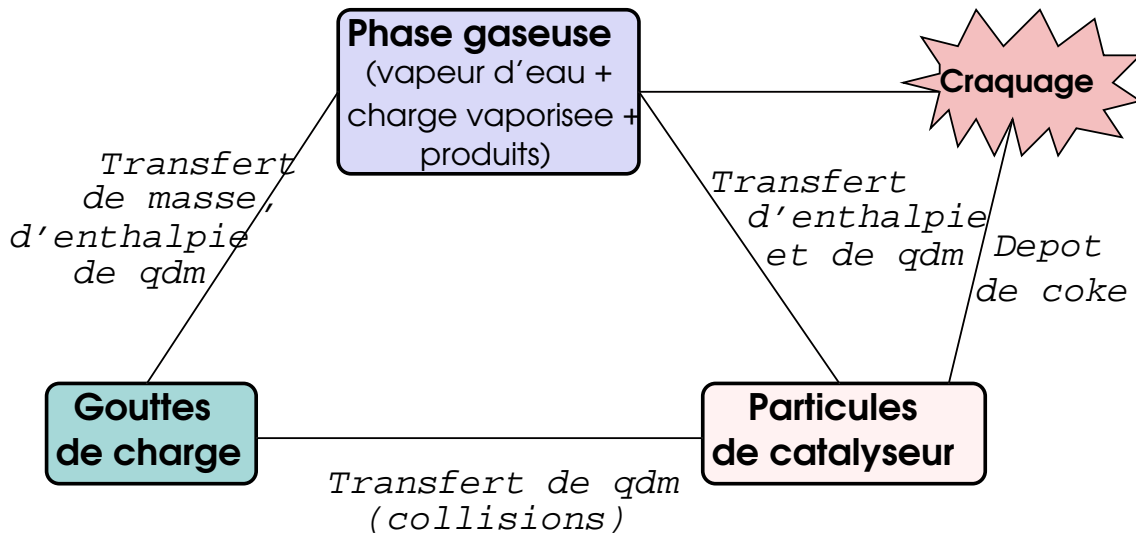


FIGURE 6.5 – Transferts interfaciaux implémentés dans la simulation.

Transfert de masse

L'échange de masse entre le gaz et les gouttes de charge, dû à l'évaporation des gouttes, sera pris en compte par le modèle de [Bird et al. \(1960\)](#) :

$$\Gamma_l = n_l \langle \dot{m} \rangle_l = -\frac{6}{d_l^2} \alpha_l \text{Sh} \rho_g D_{\text{HV/WV}} \ln(1 + B_M) \quad (6.26)$$

Dans l'expression précédente, le nombre de Sherwood est exprimé selon [Ranz & Marshall \(1952\)](#) :

$$\text{Sh} = 2 + 0,55 \text{Re}^{1/2} \text{Sc}^{1/3} \quad (6.27)$$

Remarque : Le terme d'évaporation Γ_l a été calculé avec le maximum entre le diamètre de la goutte et $50 \mu\text{m}$; pour les diamètres inférieurs, le terme d'évaporation est calculé avec la valeur minimale choisie ; par contre, le coefficient de traîné est, lui, calculé avec le diamètre réel de la goutte. En effet, la prise en compte de très petits diamètres aurait rendu le terme d'échange de masse trop raide pour mener à bien une simulation en temps raisonnable.

Nous précisons cependant que lorsque la goutte a atteint $50 \mu\text{m}$, son volume a diminué de 85 % par rapport à sa valeur initiale.

Transferts dynamiques

Le coefficient C_D est calculé d'après [Gobin *et al.* \(2003\)](#), par la relation empirique qui propose un compromis entre les relations de [Ergun \(1952\)](#) et de [Wen & Yu \(1966\)](#) (voir section 2.1.1, p. 29).

Une éventuelle modification du coefficient de traînée due à l'évaporation ne sera pas considérée.

Transferts thermiques

Les seuls échanges de chaleur considérés seront l'échange gaz-goutte et l'échange gaz-particule. Les termes de transferts correspondants seront écrits de la manière suivante :

$$\Pi_k = -\alpha_k \rho_k C_{p,k} \frac{T_k - T_g}{\tau_{gk}} \quad \text{avec : } \frac{1}{\tau_{gk}} = \frac{\lambda_g}{\rho_k C_{p,k} d_k^2} \text{Nu}_k \quad (6.28)$$

Pour les particules, le nombre de Nusselt sera calculé grâce à l'expression de [Ranz & Marshall \(1952\)](#) :

$$\text{Nu}_p = 2 + 0,55 \text{Re}_p^{1/2} \text{Pr}^{1/3} \quad (6.29)$$

Pour les gouttes, pour prendre en compte l'écoulement de Stefan, le modèle de [Bird *et al.* \(1960\)](#) sera utilisé :

$$\text{Nu}_{l,\text{evap}} = \frac{\ln(1 + B_M)}{B_M} \text{Nu}_l \quad (6.30)$$

où Nu_l est le nombre de Reynolds calculé avec la relation de [Ranz & Marshall \(1952\)](#).

Remarque : Lorsque les gouttes atteignent leur température d'ébullition, l'évaporation n'est plus pilotée par le flux de masse mais par le flux thermique. Ainsi, le régime d'ébullition est défini par l'annulation du terme source dans l'équation de H_l .

Compte tenu de l'étude bibliographique effectuée, nous avons trouvé les modèles représentatifs des échanges de chaleur goutte-particule trop empiriques et contradictoires pour retenir l'un d'entre eux. Par conséquent, la simulation sera, dans un premier temps, effectuée sans introduction d'un tel modèle.

Réaction de craquage catalytique

Le modèle utilisé sera le modèle à 6 espèces de [Névicato \(1996\)](#). Ce modèle a été développé sur un réacteur de type MAT (Micro Activity Test). Les constantes cinétiques sont déterminées pour répondre au bilan de matière suivant :

$$\frac{\partial \alpha_g C_k}{\partial r} + \frac{\partial \alpha_g U_g C_k}{\partial z} = r_k \quad (6.31)$$

où :

- C_k est la concentration molaire de la famille k en phase gazeuse,
- r_k est la vitesse de production molaire de la famille k ,
- z est la hauteur du réacteur,
- t le temps.

Si on exprime la fraction massique de l'espèce k dans la phase gazeuse en fonction de sa concentration molaire, il vient (si W_k est la masse molaire de l'espèce k) :

$$\alpha_g W_k C_k = \alpha_g \rho_g Y_k \quad (6.32)$$

d'où

$$\Gamma_k = W_k r_k \quad (6.33)$$

De même, on peut écrire pour le coke :

$$\Gamma_{\text{coke}} = W_{\text{coke}} r_{\text{coke}} \quad (6.34)$$

A partir des équations de conservation des espèces gazeuses et de l'équation de conservation de la fraction massique de coke, les équations 6.32 et 6.34 permettent d'écrire directement les termes sources pour les espèces intervenant dans la réaction de craquage catalytique :

$$\Gamma_{CV}^R = -[\alpha_p \phi (k_1 + k_2 + k_3) + \alpha_p \phi_c k_4] \rho_g Y_{CV} \quad (6.35)$$

$$\Gamma_{LCO}^R = \alpha_p \phi \rho_g ((-k_5 - k_6) Y_{LCO} + k_1 Y_{CV}) - \alpha_p \phi_c \rho_g k_7 Y_{LCO} \quad (6.36)$$

$$\Gamma_{\text{ess}}^R = \alpha_p \phi \rho_g (-k_8 Y_{\text{ess}} + k_5 Y_{LCO} + k_2 Y_{CV}) - \alpha_p \phi_c \rho_g k_9 Y_{\text{ess}} \quad (6.37)$$

$$\Gamma_{LPG}^R = \alpha_p \phi \rho_g (k_8 Y_{\text{ess}} + k_6 Y_{LCO} + k_3 Y_{CV}) - \alpha_p \phi_c \rho_g k_{10} Y_{LPG} \quad (6.38)$$

$$\Gamma_{FG}^R = \alpha_p \phi_c \rho_g \frac{\mathcal{A}_1}{1 + \mathcal{A}_1} (k_{10} Y_{LPG} + k_9 Y_{\text{ess}} + k_7 Y_{LCO} + k_4 Y_{CV}) \quad (6.39)$$

$$\Gamma_{\text{coke}}^R = \alpha_p \phi_c \rho_g \frac{1}{\mathcal{A}_1 + 1} (k_{10} Y_{LPG} + k_9 Y_{\text{ess}} + k_7 Y_{LCO} + k_4 Y_{CV}) \quad (6.40)$$

Les fonctions de désactivation sont définies comme suit :

$$\phi = \frac{(E + F) \exp(-(E + F) Y_{\text{coke}})}{F + E \exp(-(E + F) Y_{\text{coke}})} \quad (6.41)$$

Névicato introduit aussi une fonction de désactivation propre à la formation du coke qu'il exprime sous la forme :

$$\phi_c = \left(\frac{\mathcal{M} - Y_{\text{coke}}}{\mathcal{M}} \right)^b \quad (6.42)$$

où \mathcal{M} est le taux maximal de coke présent sur le catalyseur. Le facteur de désactivation du coke b prend la valeur suivante :

$$b = 1,74 \quad (6.43)$$

Le modèle de Névicato est utilisable pour trois types de charge. Afin de pouvoir choisir les constantes cinétiques du modèle, l'équipe du centre de Recherche de Gonfreville l'Orcher de TOTAL a effectué une étude comparative entre la charge utilisée lors de la campagne de mesures et les charges modélisées par Névicato. La charge a été assimilée à un Distillat Sous Vide de type Aramco. Les constantes cinétiques, les énergies d'activation correspondantes et les autres paramètres du modèle sont présentés aux tableaux 3.2 et 3.3.

La chaleur de réaction est prise égale à $-418000 \text{ J.kg}^{-1}$ et est attribuée à la disparition de la charge, les autres réactions sont supposées sans effet thermique.

La réaction de craquage ayant lieu au contact des particules de catalyseur, la température de réaction est prise égale à la température des particules.

Relation entre enthalpie et température

La relation enthalpie/température se définit de manière générale de la façon suivante :

$$H(T) = C_p(T - T_{\text{ref}}) + \Delta H^o \quad (6.44)$$

La température de référence est arbitrairement choisie égale à la température d'ébullition des gouttes de charge. Il reste donc à définir les enthalpies de formation des différentes phases et espèces en présence.

Les enthalpies du liquide et de la charge vaporisée sont définies de manière à prendre en compte la chaleur latente de vaporisation lors de l'évaporation des gouttes de charge. Ainsi, nous devons définir les enthalpies massiques des gouttes et de la vapeur d'hydrocarbures de manière à ce que :

$$H_l(T_0) - H_{CV}(T_0) = L_v(T_0) \quad (6.45)$$

D'autre part, la chaleur de réaction étant attribuée à la disparition de la charge, nous choisissons de définir l'enthalpie massique de la charge vaporisée de la manière suivante :

$$H_{CV}(T_0) = C_{p,CV}(T_0 - T_{\text{ref}}) + \Delta H^R \quad (6.46)$$

L'apparition des autres espèces étant supposée sans effet thermique, et leur enthalpie de formation à la température T_{ref} étant supposée nulle, nous avons :

$$H_\alpha(T_0) = C_{p,\alpha}(T_0 - T_{\text{ref}}) \quad \forall \alpha \neq CV \quad (6.47)$$

En supposant, en première approximation, que toutes les espèces gazeuses ont la même capacité calorifique à pression constante, nous pouvons maintenant définir l'enthalpie du mélange gazeux :

$$H_g(T_0) = \sum Y_\alpha H_\alpha \quad (6.48)$$

$$= C_{p,g}(T_0 - T_{\text{ref}}) + Y_{CV} \Delta H^R \quad (6.49)$$

De plus, on suppose $C_{p,g} = C_{p,l}$, ce qui permet de conclure que la chaleur latente de vaporisation est indépendante de la température. Ainsi, l'enthalpie de la phase liquide s'écrit :

$$H_l(T_0) = C_{p,l}(T_0 - T_{\text{ref}}) + L_v + \Delta H^R \quad (6.50)$$

Enfin, l'enthalpie de formation des particules à la température de référence est prise nulle :

$$H_p(T_0) = C_{p,p}(T_0 - T_{\text{ref}}) \quad (6.51)$$

6.2.5 Aspects numériques

La mise en œuvre de la simulation s'est accompagnée de certaines difficultés numériques qui ont déjà plus ou moins été évoquées (zones sans gouttes, « clipping » du diamètre des gouttes pour l'évaporation).

La question de la robustesse du code quant à la simulation d'écoulement à masse volumique variable s'est posée et nous avons conclu sur ce point que certaines améliorations étaient nécessaires. Les tentatives mises en œuvre n'ont, pour l'instant, pas été concluantes. Il en résulte que les calculs effectués dans le cadre de ce travail de thèse ont été relancés plusieurs fois à partir de la dernière sauvegarde suite à des « plantages intempestifs » du code, surtout pendant la phase de stabilisation du calcul. Des analyses ont montré qu'en un seul pas de temps, lors de la résolution de l'étape de pression, les grandeurs caractéristiques de l'écoulement prenaient des valeurs aberrantes et provoquaient l'arrêt du calcul ; la reprise du calcul à partir d'une sauvegarde intermédiaire permet de passer le pas de temps problématique.

La comparaison de la simulation triphasique mise en place ici avec une simulation utilisant le modèle à deux fluides homogène utilisé par [Albrecht \(2001\)](#) (voir section ??) aurait été utile à la compréhension des phénomènes liés au glissement des gouttes. Cependant, des problèmes numériques rencontrés n'ont pas permis de mener à bien cette étude. En effet, la prise en compte des gouttes dans le mélange gazeux provoque des gradients de masse volumique de la phase continue très importants (la masse volumique peut être multipliée par 100 sur quelques mailles), ce que le solveur actuellement implanté dans *Saturne_Polyphasique@Tlse* n'est pas encore capable de gérer. De plus, l'écriture même du modèle implique des « clippings » pour le calcul de certaines grandeurs (en particulier la température de la phase liquide) qui peuvent générer des imprécisions numériques délicates

à gérer. Ces difficultés font que le pas de temps durant la phase d'établissement de l'écoulement doit être diminué considérablement. Par la suite, le temps de calcul est comparable à celui nécessaire pour la modélisation triphasique. La longueur de la phase d'établissement de l'écoulement a rendu impossible l'étude du modèle homogène et sa comparaison au modèle triphasique dans le cadre de ce travail de thèse.

Les calculs ont été effectués sur les PC Linux du groupe Ecoulement et Combustion équipés de mono-processeurs Intel Pentium 4 d'une fréquence de 2,4 ou 3 *GHz* selon les machines. Le serveur Soleil (Altix 3700) du Centre Interuniversitaire de Calcul de Toulouse a permis d'effectuer certaines simulations. Sur ce serveur, nous avons utilisé un processeur Itanium II à 1,5 *GHz* par simulation.

Chapitre 7

Simulation triphasique non réactive du réacteur FCC

La mise en place des modèles de transferts dynamiques, massiques et thermiques au sein d'un mélange triphasique gaz-goutte-particule dans le modèle à deux fluides a permis l'étude de l'écoulement au sein du réacteur de Grandpuits en l'absence de la réaction de craquage catalytique. Cette étude sera présentée dans ce chapitre.

Nous donnerons tout d'abord une vision globale de l'écoulement non réactif à l'intérieur de l'installation avec une attention particulière sur les évolutions verticales et radiales des principales grandeurs caractéristiques d'un lit fluidisé circulant. Cette description pourra servir de référence pour l'étude de l'écoulement réactif. Ensuite, une description plus particulière de la zone d'injection permettra de comprendre les mécanismes s'y déroulant.

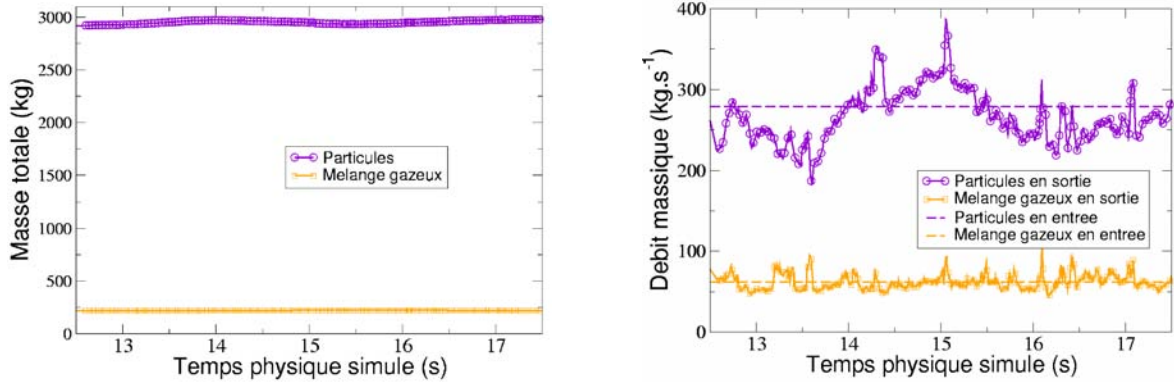
7.1 Convergence des résultats

A l'instant initial, le lit est uniformément rempli à 50 % de particules de catalyseur. Les moyennes sont déclenchées lorsque la phase d'initialisation est terminée, c'est-à-dire lorsque les masses totales dans le réacteur et les débits massiques en sortie des phases en présence sont constants, dans le cas de l'installation de GRANDPUITS, le calcul des moyennes est déclenché à 12,5 s de temps physique simulé (cf. Fig. 7.1). La phase d'initialisation (12,5 s de temps physique) a duré 4 mois en temps de calcul, la partie de moyenne prend environ 2 mois de simulation.

Le pas de temps du calcul, après la phase d'initialisation est d'environ 0,1 ms. La taille du calcul sur les machines utilisées est d'environ 300 Méga-octets.

Sur la figure 7.1(b), les flux massiques sortant de gaz et de particules sont comparés aux flux mas-

siques en entrée. on se doit de préciser que ce n'est pas réellement le débit massique de gaz en entrée qui est représenté mais la somme des débits massiques gazeux et liquide, la phase liquide s'évaporant totalement.



(a) Masses totales de mélange gazeux et de particules de catalyseur dans le réacteur en fonction du temps physique simulé

(b) Débits massiques de mélange gazeux et de particules de catalyseur en sortie de réacteur comparé aux flux entrant en fonction du temps physique simulé

FIGURE 7.1 – Critères de démarrage du calcul des moyennes temporelles.

Même si les masses totales et les débits massiques sortant de phases en présence sont considérés comme constants, on remarque qu'ils oscillent avec des variations relativement importantes. C'est aussi le cas pour la masse totale de phase liquide dans le réacteur, représentée en fonction du temps sur la figure 7.2. Les oscillations de ces grandeurs traduisent la forte instationnarité de l'écoulement au sein du réacteur visible en particulier au niveau des injections.

En ne perdant pas de vue cette forte instationnarité, nous raisonnerons sur des grandeurs moyennées en temps durant 5 s de simulation, temps au bout duquel nous avons considéré que les moyennes étaient stables. Cependant, étant donné l'échelle de temps nécessaire à la stabilisation de l'écoulement, nous sommes conscients que le calcul des moyennes n'est certainement pas complètement convergé (cf. annexe D).

On définit la valeur moyenne temporelle, entre les temps t_0 et $t_0 + \Delta t$ d'une grandeur F_k définie sur la phase k par :

$$\bar{F}_k = \frac{\int_{t_0}^{t_0+\Delta t} \alpha_k \rho_k F_k dt}{\int_{t_0}^{t_0+\Delta t} \alpha_k \rho_k dt} \quad (7.1)$$

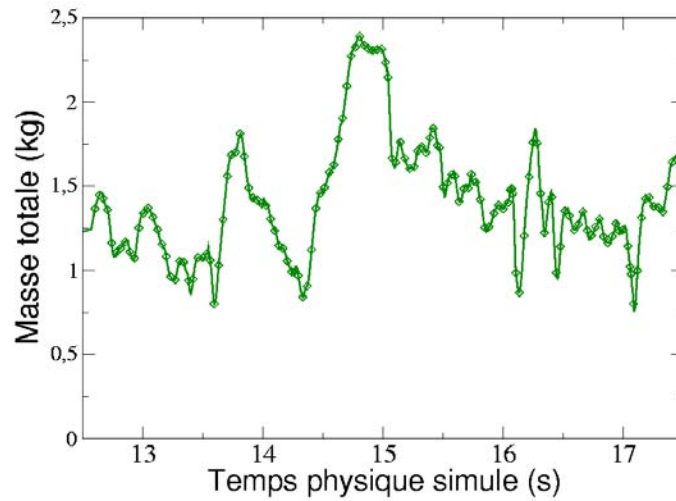


FIGURE 7.2 – Masse totale de liquide dans le réacteur en fonction du temps physique simulé.

La valeur moyenne de la pression n'est pas pondérée par la présence d'une phase :

$$\bar{P} = \frac{\int_{t_0}^{t_0+\Delta t} P dt}{\Delta t} \quad (7.2)$$

7.2 Analyse globale du lit

7.2.1 Pied de réacteur

La partie inférieure du réacteur, au-dessous des injections, est un lit très dense. En effet, l'injection du lit étant composée de 55 % de catalyseur solide, on retrouve cette forte densité, comprise entre 55 et 64 % de particules, avant la dilution par les injections.

La figure 7.3 présente le champ moyen de la fraction volumique et des vecteurs vitesse de catalyseur solide dans le plan de symétrie du réacteur, dans la zone amont aux injections. Cette figure permet d'apprécier les effets de la géométrie de la rampe d'injection (tronçon oblique et coude) et l'influence de la force de gravité sur le lit fluidisé. On note en particulier une zone de plus faible présence en particules et de plus forte vitesse (comparée à l'extrados) à l'intérieur du coude. Une zone plus dense et moins rapide est observée à l'extérieur du coude ; elle peut être expliquée par la présence du coude, d'une part et par la force de gravité d'autre part.

La figure 7.4 présente les vecteurs vitesse de la phase solide au niveau du coude. Elle permet de quantifier plus particulièrement l'effet de la gravité avec des vitesses négatives et une recirculation des particules à l'extérieur du coude.

Au niveau du premier divergent, l'influence des injection commence à apparaître avec la dilution

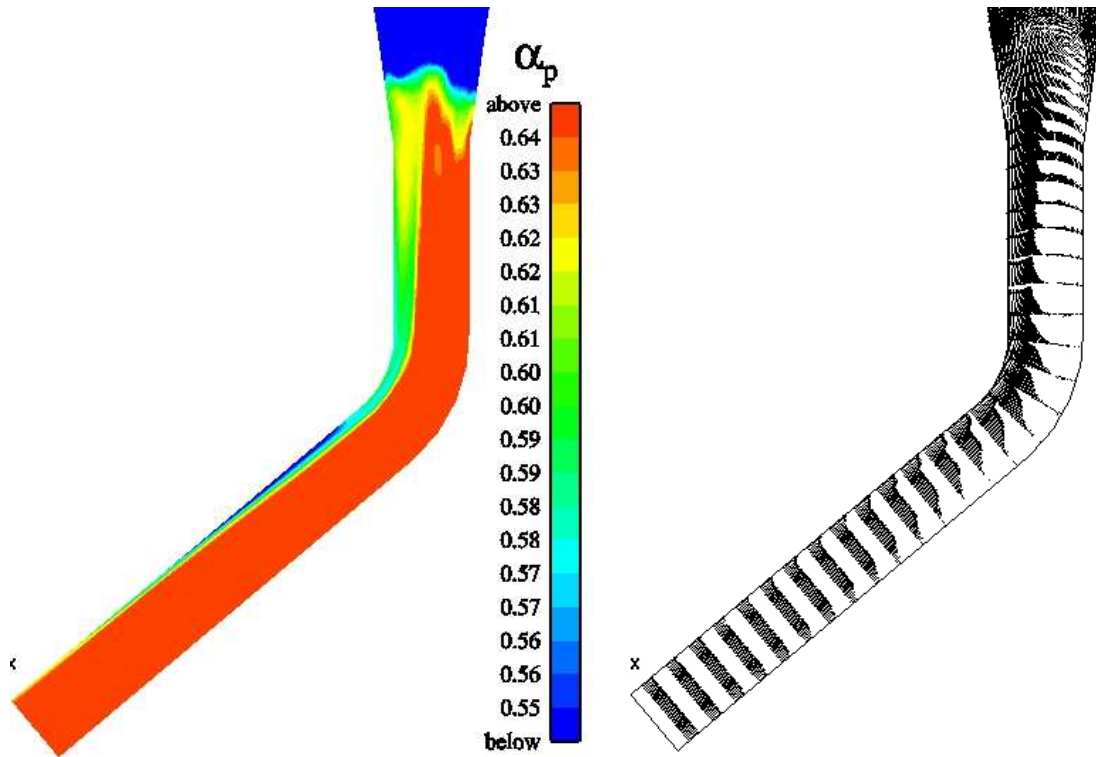


FIGURE 7.3 – Champs moyens de la fraction volumique et des vecteurs vitesses de catalyseur solide en pied de réacteur, coupe dans le plan de symétrie.

du lit et l'accélération de la phase solide. La spécificité de la géométrie engendre, au niveau des injections un gradient horizontal de fraction volumique de particules relativement important.

De plus, dans la partie basse du réacteur, la vitesse relative entre le gaz et les particules est très faible (inférieure à $0,01 \text{ m.s}^{-1}$) et les températures des deux phases sont identiques, égales à la température d'injection en pied de réacteur.

!h

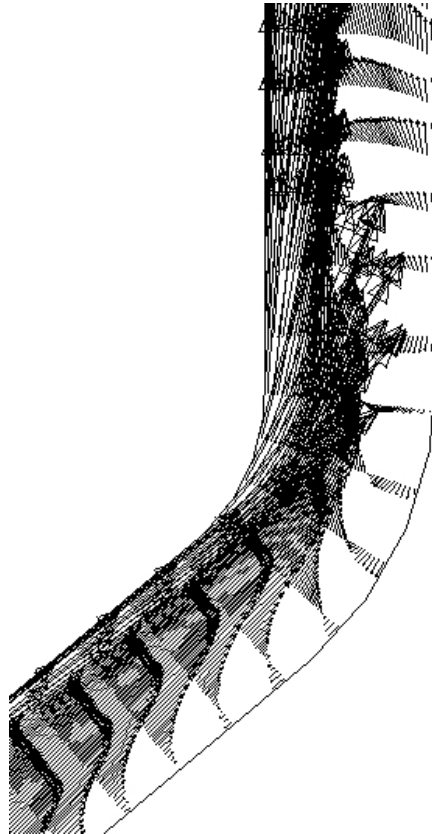


FIGURE 7.4 – Vecteurs vitesses des particules de catalyseur dans le plan de symétrie du réacteur : zoom sur le coude en bas du réacteur.

7.2.2 Colonne principale

Vision verticale moyennée en temps

Pour analyser de manière globale la colonne principale du réacteur, composée de deux colonnes jointes par un divergent, nous ramenons les champs tridimensionnels à une représentation monodimensionnelle fonction de la hauteur. Pour ce faire, nous définissons la moyenne par section horizontale à la hauteur h , notée S_h , pour une grandeur quelconque F définie sur la phase k par :

$$|F| = \frac{\int_{S_h} \alpha_k \rho_k F dS_h}{\int_{S_h} \alpha_k \rho_k dS_h} \quad (7.3)$$

La pression est la seule grandeur qui ne sera pas pondérée par le taux de présence d'une phase. Ainsi :

$$|P| = \frac{\int_{S_h} P dS_h}{\int_{S_h} dS_h} \quad (7.4)$$

Nous traiterons ainsi les grandeurs moyennées dans le temps afin de définir les principales zones existantes dans le réacteur.

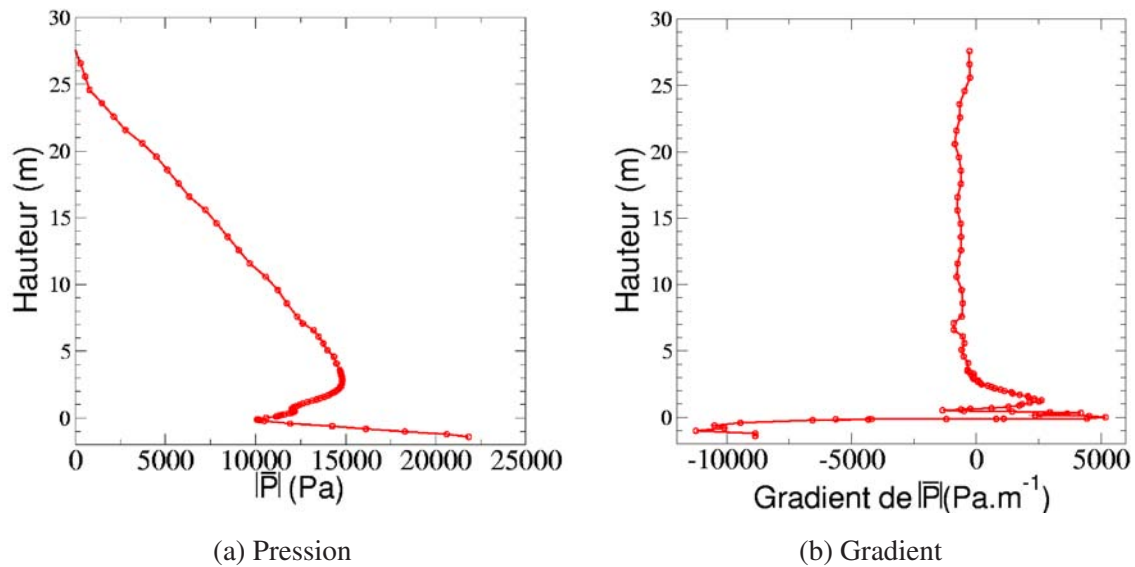


FIGURE 7.5 – Pression relative et gradient de pression moyennés en temps et par section en fonction de la hauteur dans le réacteur, $h = 0$ correspond aux injections.

La figure 7.5(a) présente la pression relative moyenne, moyenné par section en fonction de la hauteur dans le réacteur. Ici, le moyennage par section n'influe pas sur la courbe obtenue. Le profil aurait

été identique s'il avait été tracé au centre ou à la paroi, puisque la pression est globalement constante par section. Globalement, l'évolution est linéaire et décroissante. On observe cependant un minimum local suivi d'une légère surpression au dessus des sprays d'injection de charge.

La figure 7.5(b) complète la figure précédente en présentant le profil du gradient de pression moyenne sur la hauteur du riser, en fonction de la hauteur du riser (Miller & Gidaspow, 1992; Qi *et al.*, 2005). On peut ici identifier la zone dense, caractérisée par un gradient négatif important, dans la partie basse du réacteur. Cette zone est suivie de la zone d'injection et d'un divergent qui perturbent localement le gradient de pression. Entre 2 et 3 m au-dessus des injections, une forte décroissance du gradient de pression représente l'effet d'accélération du lit fluidisé pour arriver à la partie supérieure du réacteur. Cette zone en aval est une région plus diluée où le gradient de pression est quasi constant, représentatif d'un lit circulant établi.

La figure 7.6 compare le gradient de pression moyennée en temps et par section au poids d'un élément de volume du mélange gaz-particule $(\alpha_g \rho_g + \alpha_p \rho_p)g$. Ces deux grandeurs sont censées être égales dans le cadre d'une hypothèse d'équilibre hydrostatique.

Dans la partie inférieure de la colonne, ces deux grandeurs ne sont pas du même ordre : nous sommes encore dans une phase d'accélération du lit fluidisé. Au-dessus de 5 m, nous pouvons considérer que les deux grandeurs sont égales, le lit n'est plus en phase d'accélération.

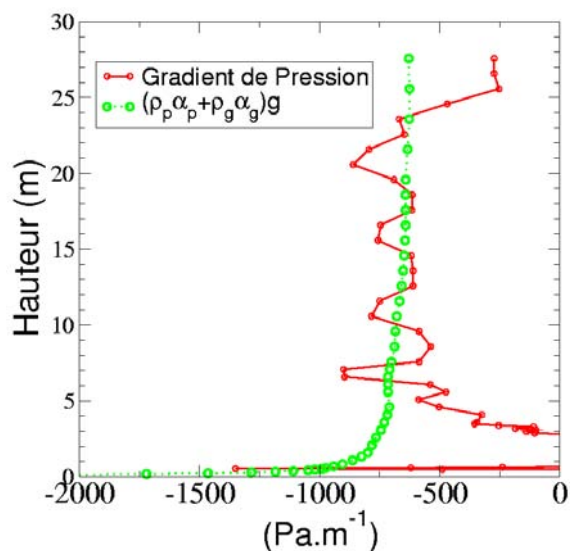


FIGURE 7.6 – Comparaison du gradient de pression moyennée en temps et par section et du poids d'un élément de volume du mélange gaz-particule.

La figure 7.7(a) présente la fraction volumique moyennée par section des particules en fonction de la hauteur dans le réacteur ; la hauteur $h = 0$ correspondant à la hauteur des injections.

Cette figure permet d'apprécier la forte dilution du lit due, d'une part aux injections d'hydrocarbures. En effet, en amont des injections, le lit est très dense (quasiment compacté au maximum). En aval des injections, le lit est très fortement dilué puisque la fraction volumique de particules est comprise entre 4 et 5 %.

Dans la zone aval aux injections, la fraction volumique de solide est quasiment stable mais a tendance à diminuer légèrement avec la hauteur. Nous retrouvons là les résultats caractéristiques observés en lit fluidisé circulant (Hyre & Glicksman, 2000).

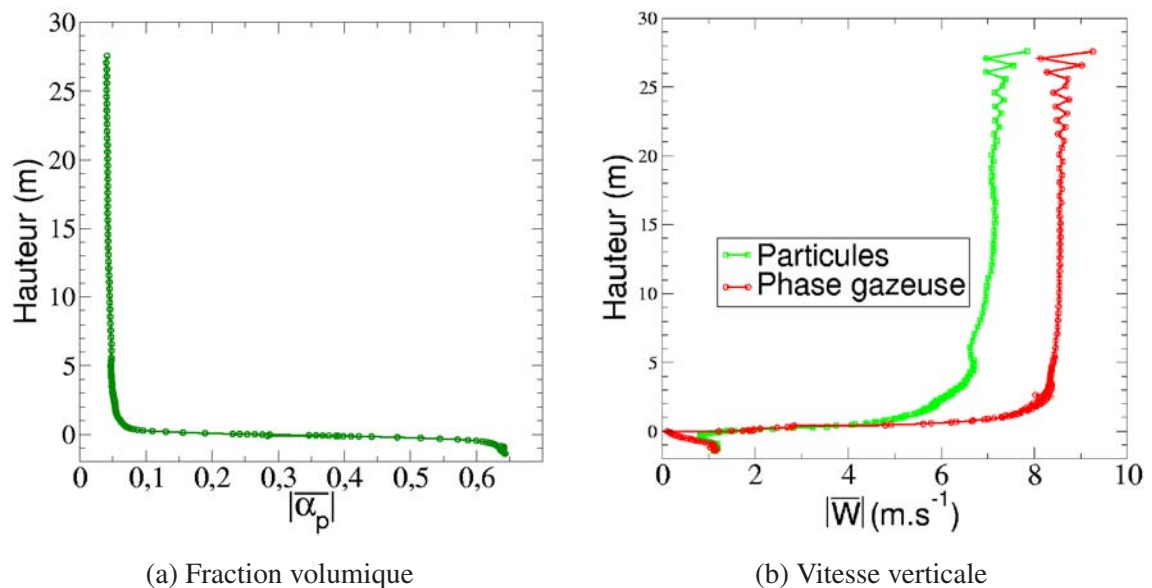


FIGURE 7.7 – Fraction volumique des particules et vitesse verticale du mélange gazeux et des particules moyennées en temps et par section en fonction de la hauteur dans le réacteur, $h = 0$ correspond aux injections.

La figure 7.7(b) présente les vitesses verticales du mélange gazeux et des particules moyennées par section en fonction de la hauteur dans le réacteur. Cette figure permet de constater l'accélération subie par les deux phases due aux injections de charge d'une part et à la vaporisation des gouttes d'autre part. Concernant la différence entre les vitesses des deux phases, particulier le fait que la vitesse des particules soit supérieure à celle du mélange gazeux juste au-dessous des injections peut paraître surprenant. Le mode de représentation (moyenne par section) impose des analyses prudentes des résultats obtenus. En effet, dans cette zone, les particules au centre du réacteur, entraînées par les jets augmentent considérablement la moyenne pondérée par la phase solide.

Nous remarquons que la figure 7.7 ne signifie pas que la vitesse relative gaz-particule est d'environ $2,3 \text{ m.s}^{-1}$. En effet, nous prenons en compte dans cette représentation une moyenne temporelle associée à une moyenne par section. Ainsi, la figure 7.35 présente l'influence des différentes étapes de moyennes sur la différence de vitesse entre le gaz et les particules. Sur cette figure, nous présentons d'abord la vitesse relative gaz-particule instantanée (au temps physique de 16,5 s) sur l'axe du réacteur. Elle est comparée à l'écart entre les vitesses du gaz et des particules moyennées en temps qui s'écrit :

$$\bar{U}_g - \bar{U}_p \quad (7.5)$$

L'écart de vitesses moyennées en temps et par section s'écrit, elle :

$$|\bar{U}_g| - |\bar{U}_p| \quad (7.6)$$

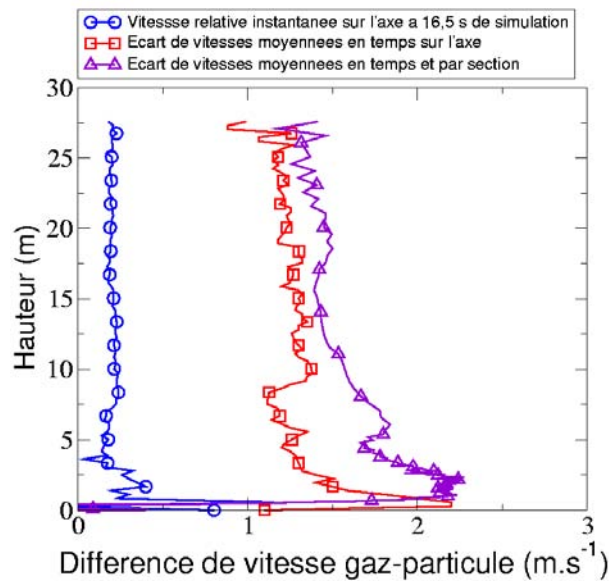


FIGURE 7.8 – *Différence de vitesses entre le gaz et les particules en fonction de la hauteur : comparaison de la vitesse relative instantanée, de l'écart des vitesses moyennées temporelles et de l'écart des vitesses moyennées en temps et par section.*

Ainsi, la vitesse relative instantanée est faible (de l'ordre de $0,2 \text{ m.s}^{-1}$), ce qui est cohérent avec la faible vitesse de chute libre d'une particule de catalyseur ($0,19 \text{ m.s}^{-1}$). Le moyennage en temps biaise cette vitesse instantanée. Enfin, le fait de moyennner par section fait que le glissement moyen global est nettement plus important que la vitesse relative instantanée.

L'étape de moyenne qui domine cet effet est l'étape de moyenne temporelle. Cela signifie que sur l'axe on a une corrélation entre forte concentration instantanée en fraction volumique de solide et faible vitesse verticale du gaz. Il y a donc en particulier des fluctuations importantes entre ces deux grandeurs sur l'axe (Petit, 2005).

Le biais induit par la deuxième étape de moyenne spatiale est dû à la répartition radiale de α_p et de la vitesse verticale du gaz qui seront analysées plus loin. Ainsi, le fait d'observer un glissement moyen négatif au niveau des injections (cf. Fig. 7.7(b)) provient du fait que dans cette zone les fortes concentrations de solides correspondent aux plus petites vitesses verticales du gaz.

La figure 7.9 présente les températures du mélange gazeux, de la phase solide et des gouttes de charge, moyennées en temps et par section en fonction de la hauteur dans le réacteur. On voit sur cette figure, qu'en amont des injections, le mélange gazeux et les particules sont à la même température de 1021 K. Au niveau des injections, l'arrivée de gaz froid, conjuguée avec l'évaporation des gouttes qui puise de l'énergie à la phase gazeuse, font diminuer la température moyenne de la phase continue qui atteint un minimum à environ 3,5 m au-dessus des injections. Le minimum de température atteint par le mélange gazeux (un peu moins de 800 K) est très supérieur à la température d'injection du gaz de 516 K. Ceci s'explique par le fait que le rapport du débit gazeux sur le débit de charge est faible (environ 5%). Ce qui fait, qu'au niveau des injections, c'est la température de la vapeur d'eau venant de l'entrée du lit que l'on mesure. Dans le même temps, le liquide aux niveaux des injections a sa valeur minimale. Il se réchauffe par la suite du fait de l'environnement chaud dans lequel il se trouve. Sa température s'équilibre ensuite à la température d'ébullition à une hauteur où il n'y a plus de gouttes. Après avoir atteint son minimum, la température du mélange gazeux augmente. Les températures des phases gaz et particules s'équilibrent ensuite (réchauffement du mélange gazeux et refroidissement des particules de catalyseur) pour se stabiliser à une température identique, égale à 810 K, 20 m en aval des injections.

Les figures 7.10(a) et (b) présentent respectivement la masse volumique du mélange gazeux et la fraction massique de vapeur de charge en fonction de la hauteur dans le réacteur. La vapeur de charge apparaît au niveau des injections avec un fort gradient. Dans le même temps, la masse volumique du mélange augmente. Cette augmentation est due à l'injection de charge, composant très lourd du mélange gazeux, et au refroidissement de la phase continue. On note que la légère baisse de ρ_g entre 3 et 5 m s'explique par le réchauffement de la phase gazeuse dans cette zone.

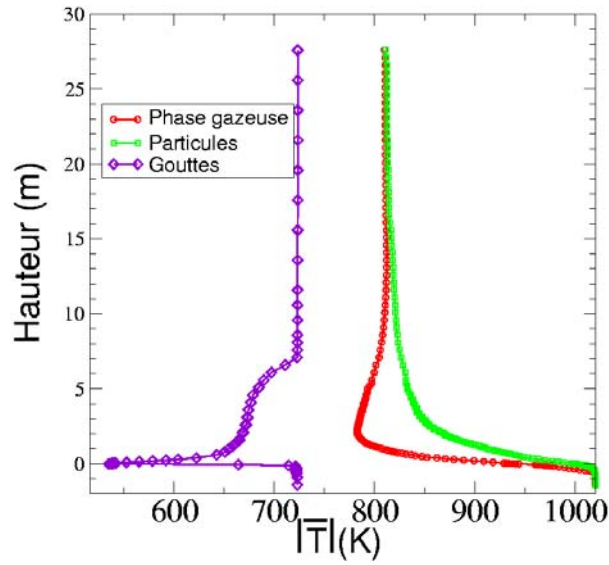


FIGURE 7.9 – Températures du mélange gazeux et des particules moyennées en temps et par section en fonction de la hauteur dans le réacteur; $h = 0$ correspond aux injections.

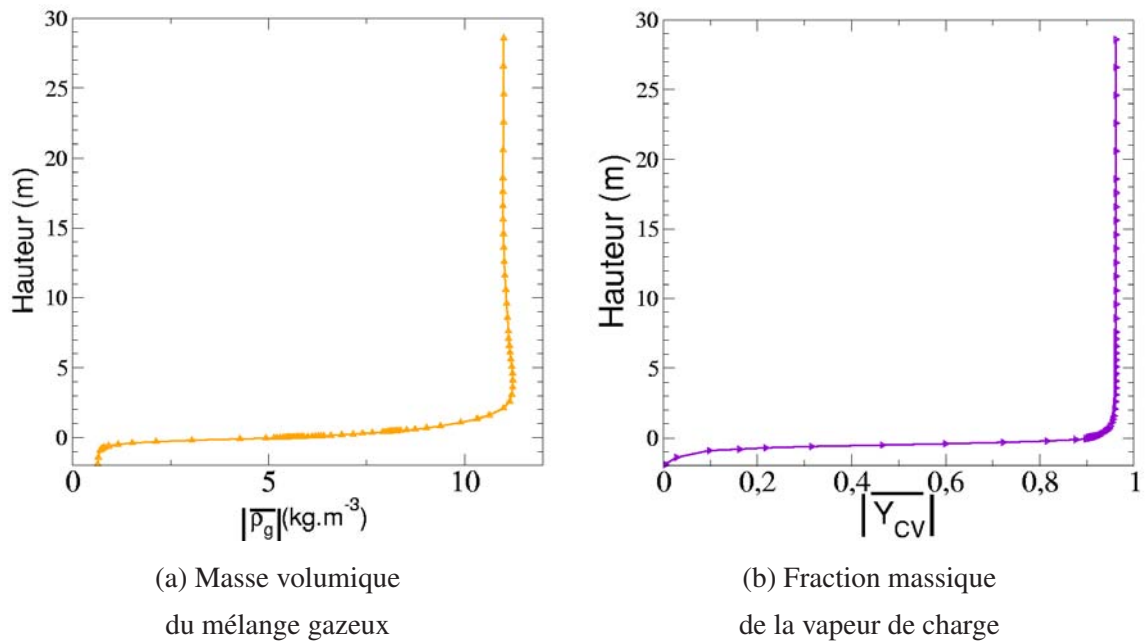


FIGURE 7.10 – Masse volumique du mélange gazeux et fraction massique d'hydrocarbures vaporisés moyennées en temps et par section en fonction de la hauteur dans le réacteur; $h = 0$ correspond aux injections.

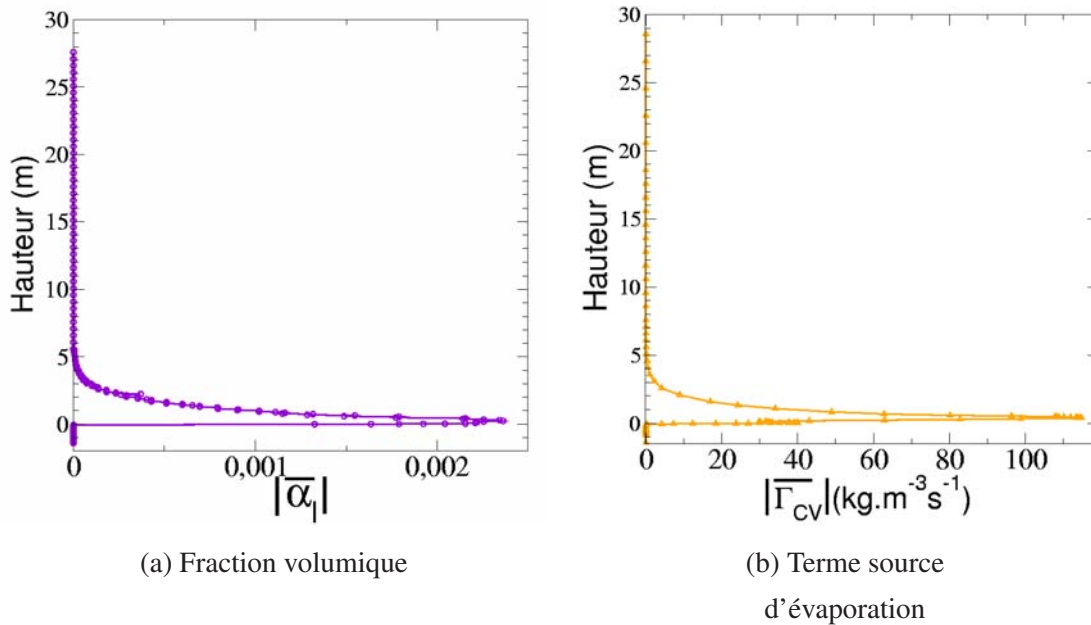


FIGURE 7.11 – Fraction volumique de gouttes d'hydrocarbures et terme de création de vapeur d'hydrocarbures moyennées en temps et par section en fonction de la hauteur dans le réacteur, $h = 0$ correspond aux injections.

La figure 7.11(a) présente la fraction volumique moyennée par section des gouttes de charge en fonction de la hauteur dans le réacteur. Elle montre que la zone de présence de liquide est très restreinte à la zone d'injection.

La figure 7.11(a) est complétée par la figure 7.11(b) qui présente le terme de transfert massique dû à l'évaporation des gouttes de charge (apparition de la vapeur d'hydrocarbures). Conformément au profil de α_l et à celui de la fraction massique de charge vaporisée, cette figure montre que la zone d'évaporation des jets est très localisée autour de la zone d'injection.

La figure 7.12 qui présente les débits de charge liquide, charge gazeuse et mélange gazeux en fonction de la hauteur dans le réacteur. On remarque tout d'abord la conservation des débits : la totalité de la phase liquide est vaporisée en hydrocarbures gazeux. D'autre part, cette figure appuie le fait que la phase liquide composée de gouttes de charge n'est présente que dans une zone très restreinte, localisée autour des injections. La disparition des gouttes est complète environ 3 m au-dessus des injections. Cette longueur est sur estimée du fait de la limitation de la décroissance du diamètre des gouttes.

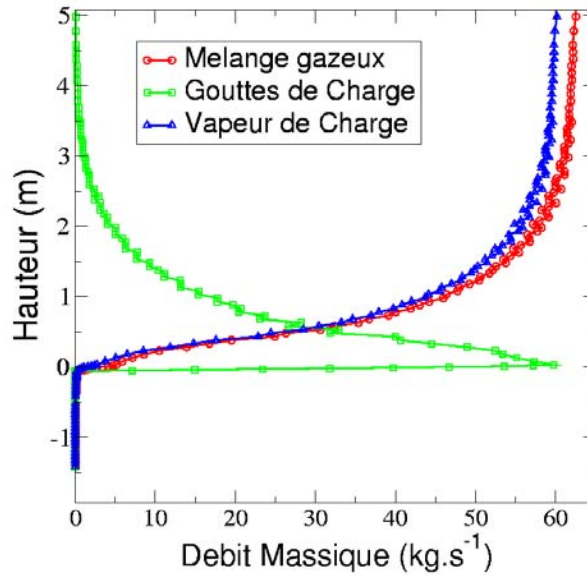


FIGURE 7.12 – Débits massiques de mélange gazeux, de gouttes de charge et de vapeur de charge en fonction de la hauteur dans le réacteur.

Les profils verticaux montrent que les injections ont une influence majeure sur le lit fluidisé circulant puisqu'elles entraînent une forte dilution du lit, une modification importante de son comportement dynamique et un refroidissement notable des deux phases dans la partie supérieure.

Analyse radiale moyennée en temps

L'accélération du lit induite par les injections de charge s'accompagne de sa déstabilisation qui conduit à une répartition des particules très inhomogène. Cette inhomogénéité est visible sur la figure 7.13 qui présente le champ instantané de fraction volumique de solide à 15,5 s de temps physique simulé. Cependant, l'analyse des grandeurs moyennes permet de dégager les résultats caractéristiques des lits fluidisés circulants.

La visualisation tridimensionnelle étant parfois complexe, nous choisirons dans cette section de visualiser les grandeurs sur des axes à différentes hauteurs (5, 10 et 20 m, voir Fig. 7.14(a)) dans le réacteur. Nous nous pencherons plus précisément sur quatre axes orientés représentés sur la figure 7.14(b) qui est une représentation schématique du réacteur vu de dessus (le pseudo-rectangle à gauche étant la rampe d'entrée du lit). L'axe 1 représente le plan de symétrie du réacteur, l'axe 2 est son perpendiculaire. Les axes 3 et 4 sont les axes au-dessus des injections, ils sont symétriques par rapport au plan de symétrie du réacteur.

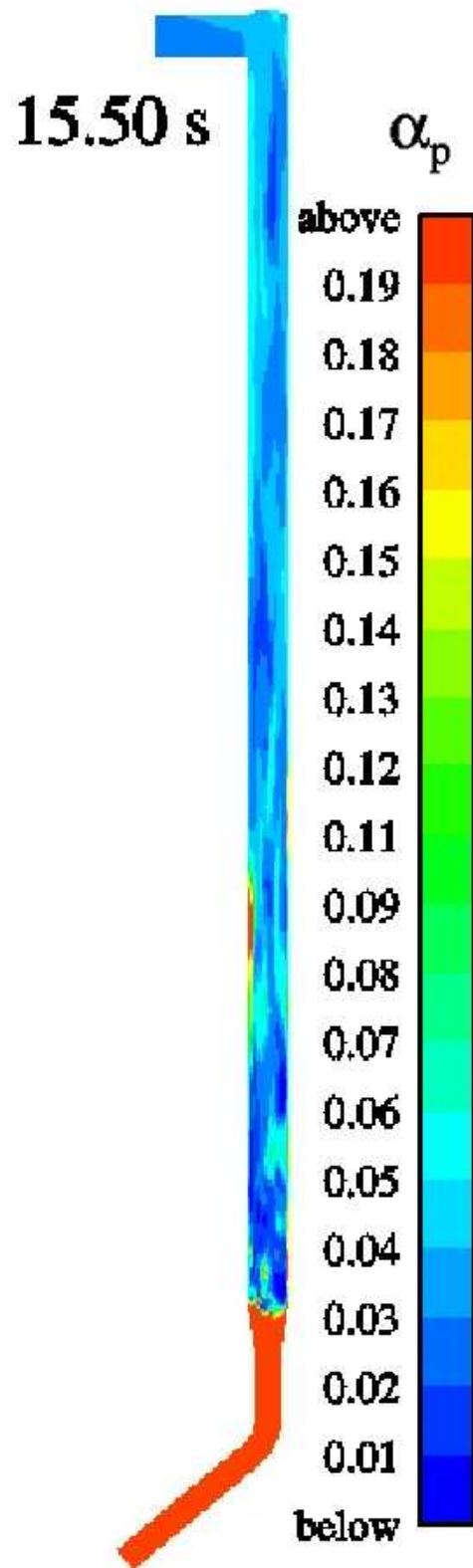
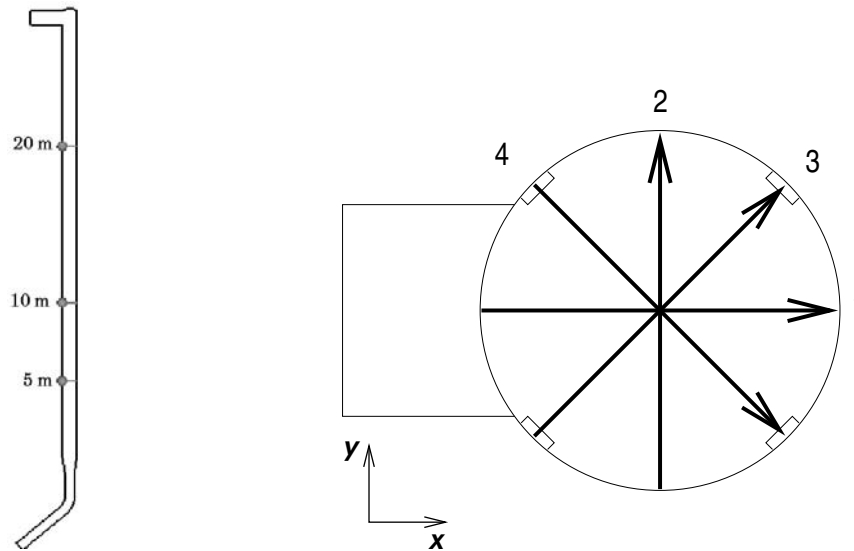


FIGURE 7.13 – *Champ instantané de fraction volumique de particules à 15,50 s.*



(a) Coupe dans le plan vertical de symétrie du réacteur et indication des différentes hauteurs de visualisation. (b) Représentation schématique du réacteur de Grandpuits vu de dessus avec les axes de visualisation considérés.

FIGURE 7.14 – Définition des axes de visualisation des profils radiaux.

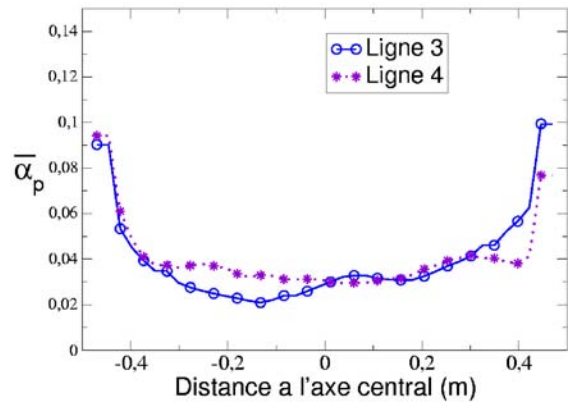
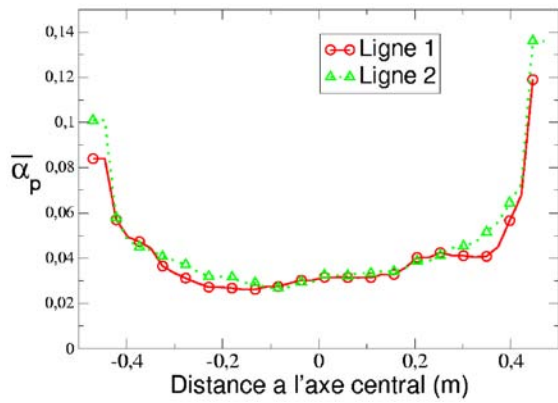
Les figures 7.15(a), (b) et (c) présentent les profils radiaux de fraction volumique moyenne de particules sur les axes de visualisation 1 et 2 puis 3 et 4 (cf. Fig. 7.14) respectivement à 5, 10 et 20 m au-dessus des injections. Ces profils montrent une faible concentration de solide au centre du réacteur pour une concentration plus forte près des parois, caractéristique du comportement d'un lit fluidisé circulant (structure de cœur-anneau). La forte présence de particules en particulier près des parois (fractions volumiques supérieures à 10 %) prouve que nous sommes en présence d'un lit dense.

L'inhomogénéité de concentration en particules entre le centre et les parois a tendance à disparaître avec l'ascension dans le réacteur; en particulier, à 20 m au-dessus des injections, les quatre profils sont relativement plats.

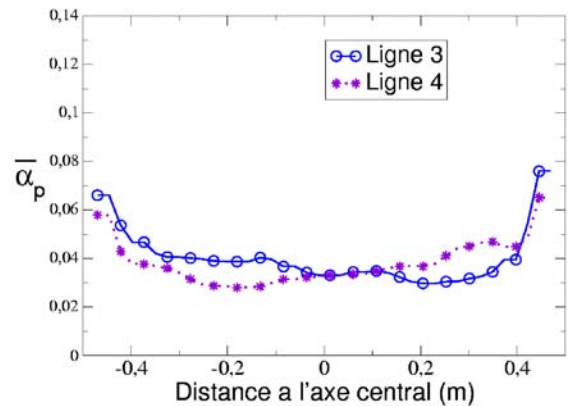
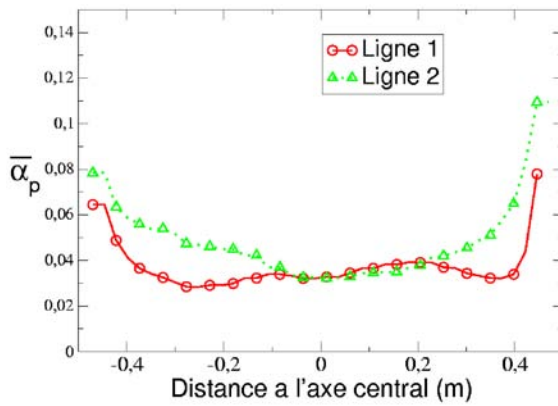
Les profils radiaux de taux de fraction volumique de particules ne font pas apparaître de dissymétrie particulière liée à la géométrie du réacteur.

Les figures 7.16(a), (b) et (c) présentent les profils radiaux de vitesses verticales moyennes des particules et du mélange gazeux sur les axes de visualisation 1 et 2 puis 3 et 4 (cf. Fig. 7.14) respectivement à 5, 10 et 20 m au-dessus des injections.

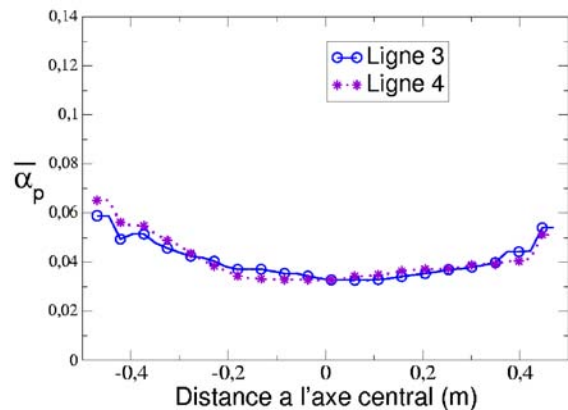
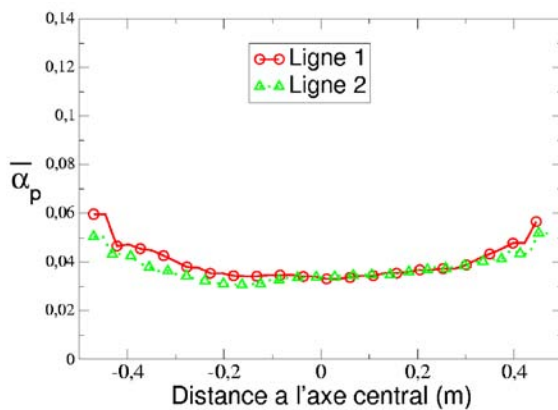
Tous les profils présentent une allure bombée caractéristique des lits fluidisés circulants. A 5 et 10 m au-dessus des injections, les profils sont très influencés par les injections de charge, avec un



(a) 5 m au-dessus des injections



(b) 10 m au-dessus des injections



(c) 20 m au-dessus des injections

FIGURE 7.15 – Profils radiaux de fraction volumique moyennée en temps de particules.

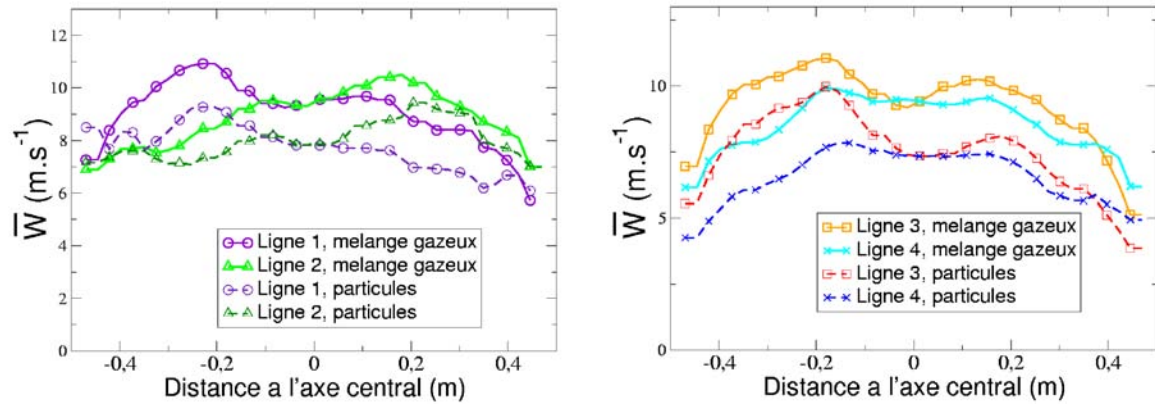
écart entre les vitesses moyennes du gaz et des particules de l'ordre de $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. A 20 m au-dessus des injections, l'influence des jets n'est plus visible et les profils sont parfaitement paraboliques. Le glissement moyen gaz-particule est plus faible puisqu'il n'excède pas $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.

Les profils de vitesses verticales ne permettent pas de conclure quant à une dissymétrie particulière de l'écoulement liée à la géométrie de l'installation.

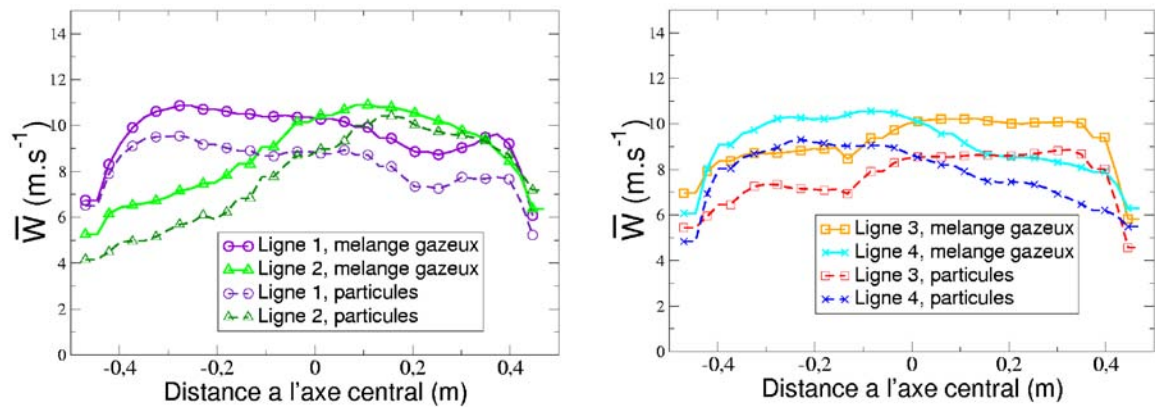
Il est à noter que le flux net moyen de solide n'est pas descendant aux parois, résultat souvent retrouvé dans la littérature (Gao *et al.*, 1999). Ceci provient en partie du maillage, qui pour des raisons de temps de calcul, n'a pas été raffiné dans cette région. Cette hypothèse est confirmée par les travaux de Hansen (2005) qui montre qu'avec un maillage trop lâche, il ne capte pas les flux descendants aux parois, mesurés par l'expérience. Par contre, l'augmentation du raffinement permet une bonne concordance entre expérience et simulation. Il reste tout de même une question ouverte concernant la simulation des lits fluidisés de particules de classe A mise en évidence par les travaux de Petit (2005). En effet, alors que pour les particules de classe B (Batrak, 2005), *Saturne_Polyphasique@Tlse* donne des résultats très satisfaisants, il est moins performant pour les particules de classe A. Plusieurs pistes sont à investiguer : la modélisation du coefficient de traînée et/ou la modélisation des conditions limites aux parois.

Les figures 7.17(a), (b) et (c) présentent les profils radiaux de température moyenne des particules et du mélange gazeux sur les axes de visualisation 1 et 2 puis 3 et 4 respectivement à 3, 5, 10 et 20 m au-dessus des injections. Comme nous l'avons vu précédemment, la différence de température entre le mélange gazeux et les particules diminue avec l'ascension dans le réacteur. Nous pouvons maintenant ajouter que la température des deux phases a tendance à s'uniformiser radialement en montant dans l'installation. En effet, à 5 m au-dessus des injections, les profils de température observés sont creux (quelle que soit la ligne observée) avec une température centrale de 100 à 120 K inférieure à la température aux parois. Ceci s'explique par le fait que ce sont les injections qui refroidissent l'écoulement et que se sont les particules qui apportent la chaleur. Les injections pénètrent au centre du réacteur et refroidissent ainsi cette zone (la chaleur étant utilisée pour l'évaporation), et les particules sont plus présentes près des parois. A 10 m au-dessus des injections, les profils se sont aplatis avec une différence de température centre-paroi d'environ 60 à 80 K. A 20 m au-dessus des injections, où la répartition radiale en solide est plus homogène et où le profil de vitesse est établi, les profils radiaux de température sont plats.

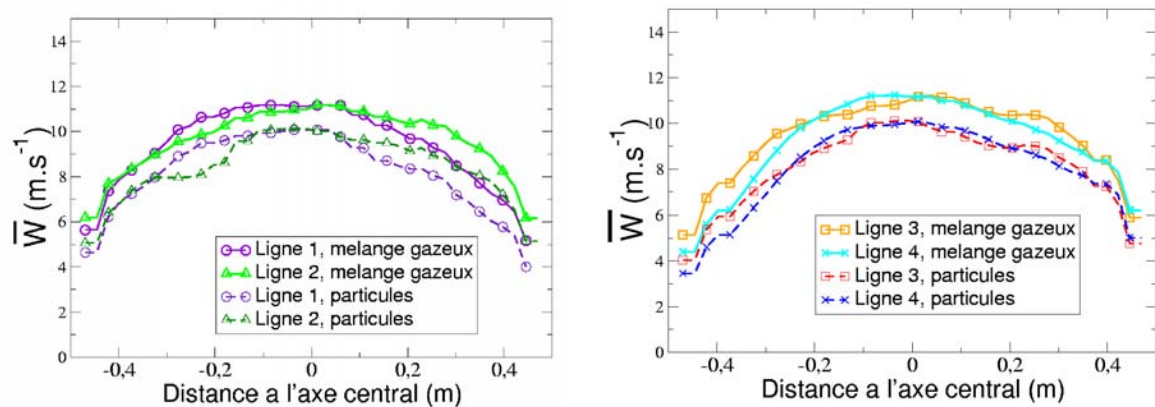
La structure globale de l'écoulement étant maintenant connue, il semble évident qu'elle est largement influencée par la zone d'injection tant sur le plan dynamique que thermique. C'est pourquoi une attention particulière à la zone d'injection est nécessaire.



(a) 5 m au-dessus des injections

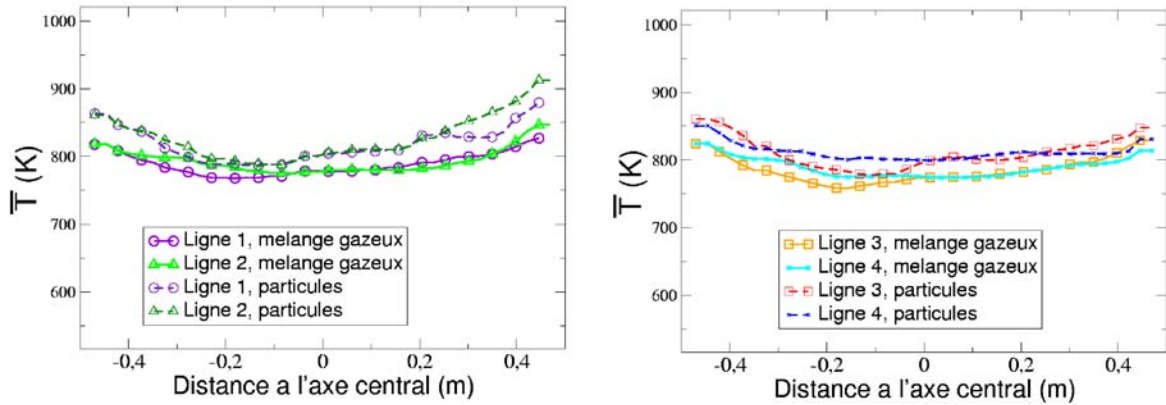


(b) 10 m au-dessus des injections

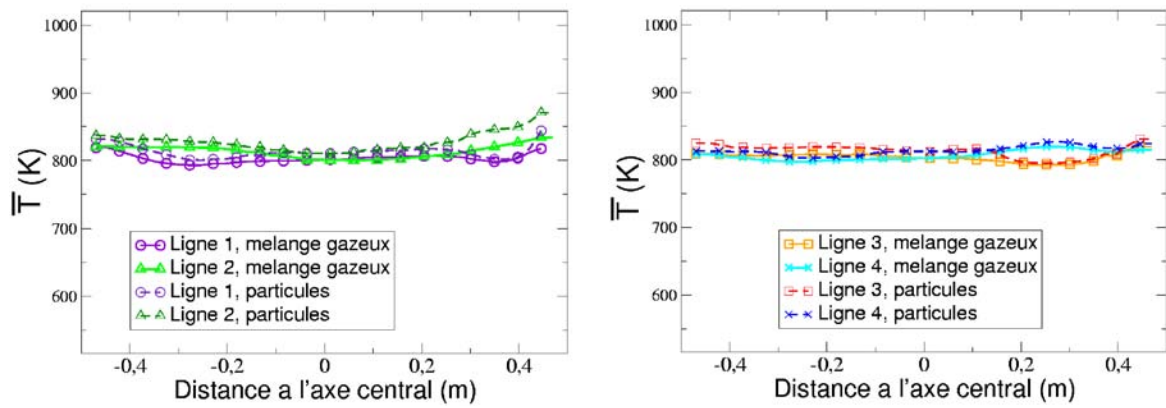


(c) 20 m au-dessus des injections

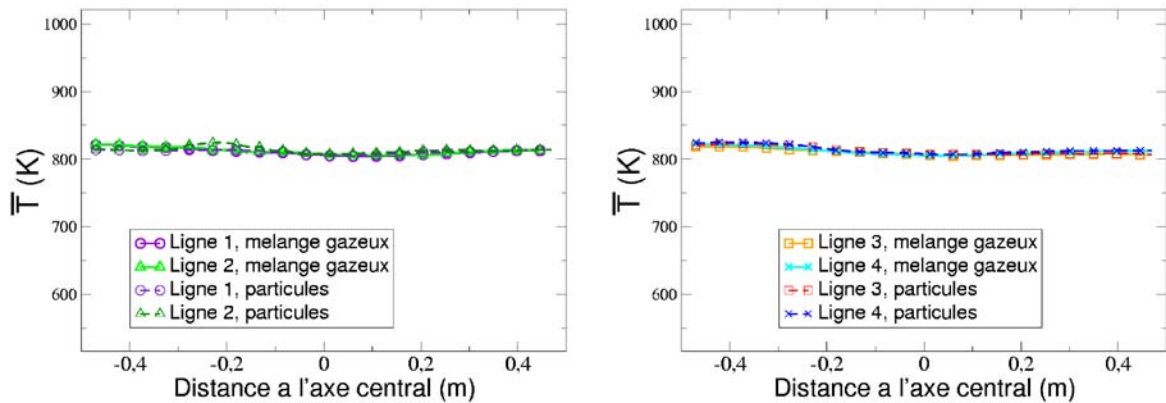
FIGURE 7.16 – Profils radiaux de vitesses verticales moyennées en temps du mélange gazeux et des particules de catalyseur.



(a) 5 m au-dessus des injections



(b) 10 m au-dessus des injections



(c) 20 m au-dessus des injections

FIGURE 7.17 – Profils radiaux de températures moyennées en temps du mélange gazeux et des particules de catalyseur.

7.3 Comportement local de la zone d'injection

7.3.1 Oscillations des jets liquides

Comme nous l'avons vu sur la figure 7.2, la masse totale de gouttes d'hydrocarbures dans le réacteur varie assez fortement. Ce fait laisse présager d'une forte instationnarité de l'écoulement à l'intérieur du réacteur et en particulier dans la zone d'injection.

Les mouvements des jets sont visibles sur les figures 7.18 et 7.19 qui présentent les champs de fraction volumique instantanée de gouttes de charge dans les plans de coupe horizontaux situés respectivement à 15 cm et 25 cm au-dessus des injections, pour les temps 13,5 et 14,5 et 15,5 s. Ces figures permettent d'apprécier le changement de morphologie des jets qui s'élargissent ou s'arrondissent et s'éloignent ou se rapprochent des parois suivant les instants.

La figure 7.20 présente la fraction volumique et les vecteurs vitesse instantanés de gouttes d'hydrocarbures à 13,5 et 14,5 et 15,5 s de simulation, dans le plan de coupe vertical n°3 au niveau des injections. Elle permet de voir le changement de morphologie des jets. Sur la figure présentée, il est clair que les deux jets face à face ne se comportent pas de la même façon au même instant. Ainsi, l'un puis l'autre pénètre plus profondément dans le réacteur, ou bien ils « s'équilibrent » dans une position intermédiaire comme au temps de simulation 14,50 s.

Une étude fréquentielle a été menée sur la longueur de pénétration du jet. Cette étude menée sur 5 s à une fréquence de 100 Hz n'a pas permis de trouver une fréquence d'oscillation particulière qui doit certainement exister. Pour ce faire, il faudrait une simulation plus longue et/ou une fréquence d'étude plus élevée.

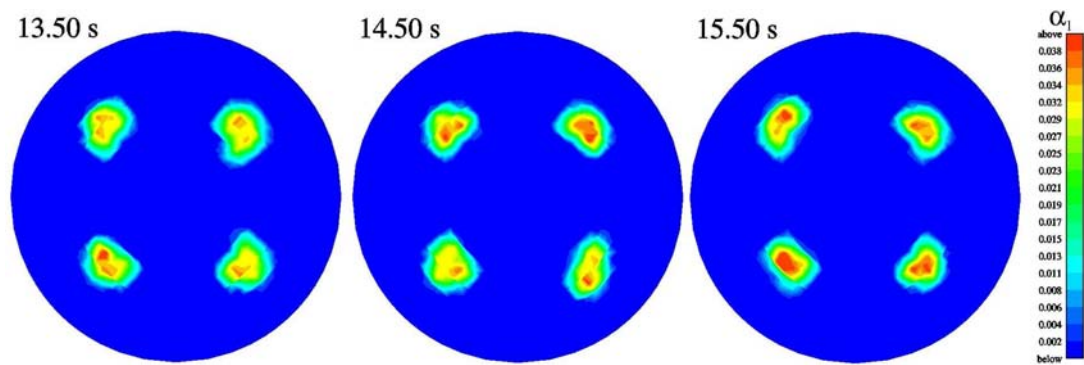


FIGURE 7.18 – Fraction volumique instantanée de liquide dans le plan de coupe horizontal à 15 cm au dessus des injections à 13,5 et 14,5 et 15,5 s de temps physique simulé.

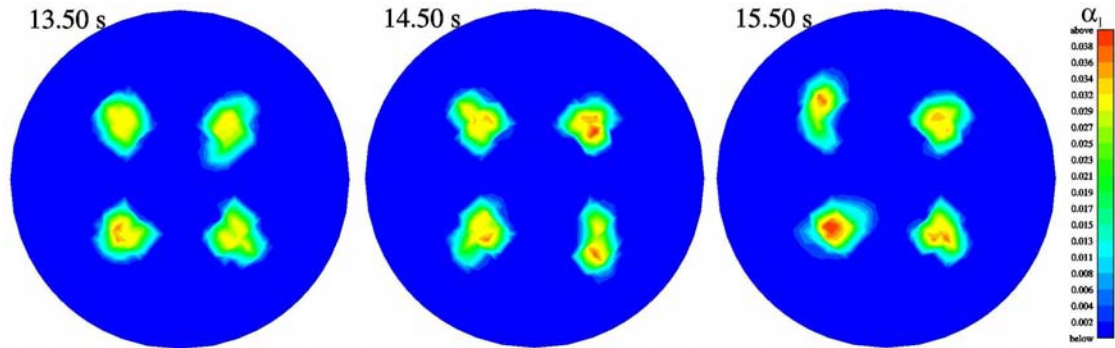


FIGURE 7.19 – Fraction volumique instantanée de liquide dans le plan de coupe horizontal à 25 cm au dessus des injections à 13,5 et 14,5 et 15,5 s de temps physique simulé.

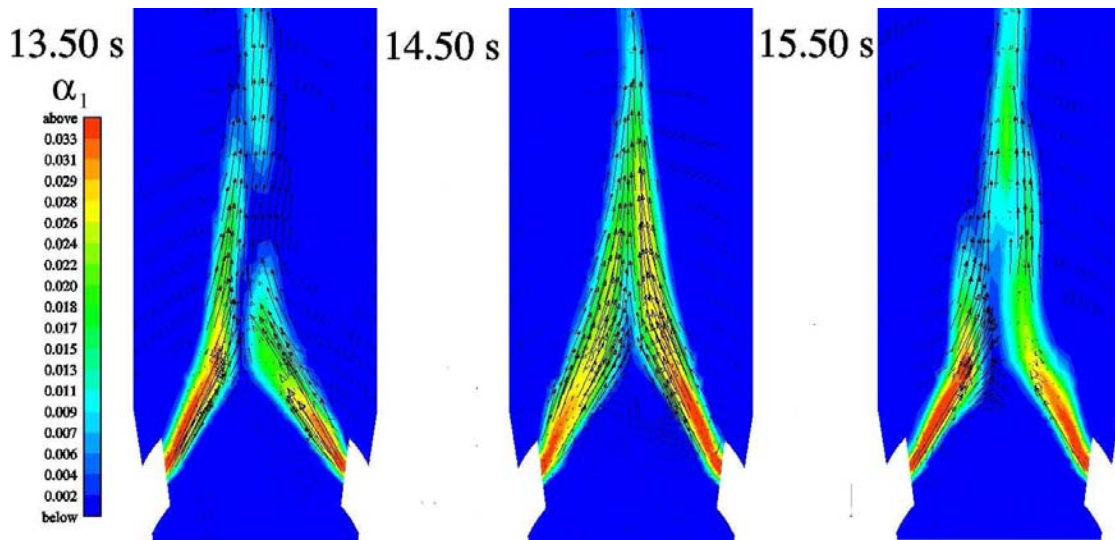


FIGURE 7.20 – Fraction volumique et vecteurs de la vitesse instantanés de la phase liquide dans le plan de coupe vertical des injections à 13,5 et 14,5 et 15,5 s de temps physique simulé.

7.3.2 Comportement moyenné en temps

Les champs moyens des principales grandeurs de l'écoulement sont étudiés afin de mieux comprendre les mécanismes de la zone d'injection.

Pour mieux appréhender les aspects tridimensionnels de l'écoulement, les champs seront présentés dans plusieurs plans (cf. Fig. 7.21) :

1. le plan vertical 1, plan de symétrie de l'installation,
2. le plan vertical 3, qui contient deux des quatre injecteurs,
3. quatre plans horizontaux disposés à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injecteurs de charge.

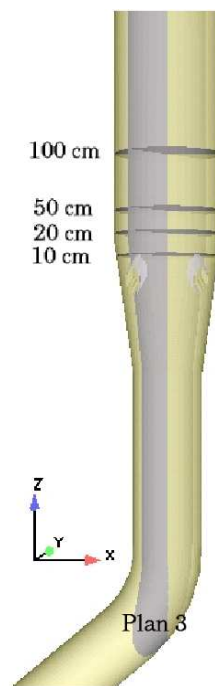


FIGURE 7.21 – Localisation des plans de coupe du réacteur dans la zone d'injection.

La figure 7.22 présente la fraction volumique de gouttes d'hydrocarbures dans les plans cités ci-dessus. Le comportement moyen des jets liquides, a contrario de leur comportement instantané, est très symétrique ; en effet, aucune prédominance d'un jet sur l'autre induite par la géométrie de l'installation n'est à noter.

Globalement, les jets sont déviés de l'inclinaison d'injection (60° par rapport à l'horizontale), et ce à cause du courant ascendant du lit fluidisé. Avec l'ascension dans le réacteur, les quatre jets se rapprochent pour ne former qu'un jet central 1 m au-dessus des injections.

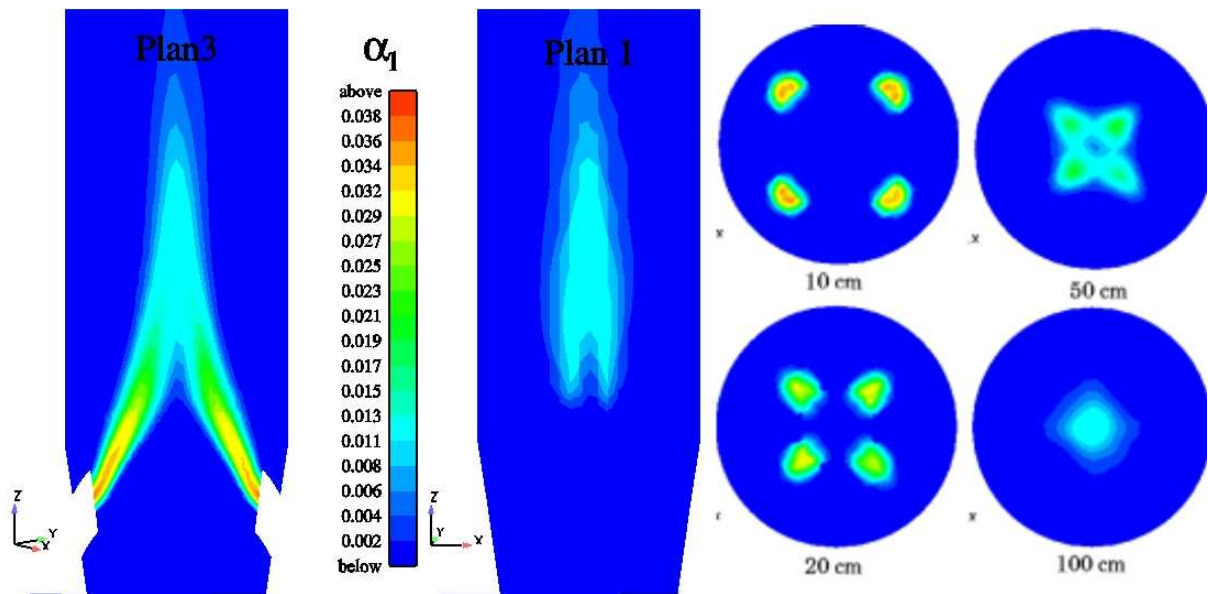


FIGURE 7.22 – Fraction volumique moyenne de gouttes d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

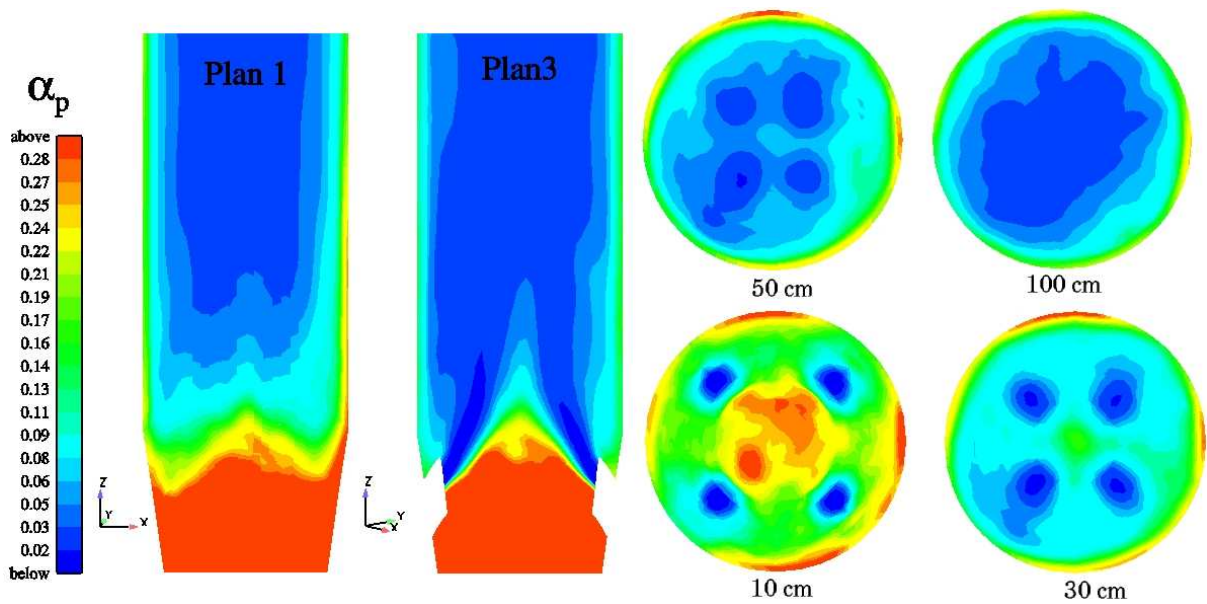


FIGURE 7.23 – Fraction volumique moyenne de particules de catalyseur dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

L'injection de liquide et son évaporation provoquent la dilution du lit comme on peut le voir sur la figure 7.23 qui montre le taux de présence en particules de catalyseur. En amont des injections, le lit est particulièrement dense, alors qu'il est beaucoup plus dilué en aval : le gradient de taux de présence observé est important.

A 10 cm au-dessus des injections, la répartition des particules est remarquable : le solide est présent majoritairement près des parois et au centre des quatre jets, alors que la présence en solide est quasiment nulle à l'emplacement des jets. Cette répartition se modifie avec l'ascension dans le réacteur pour se rapprocher de la structure cœur-anneau classique d'un lit fluidisé circulant à 1 m au-dessus des injections.

L'évaporation des jets liquide crée de la vapeur d'hydrocarbures dont la fraction massique est représentée figure 7.24. Cette vapeur est peu présente au dessous des jets et atteint sa valeur maximale très rapidement au-dessus.

Il est à noter que dans les simulations effectuées par Albrecht (2001) et Saulnier *et al.* (2005) sur des configurations bidimensionnelles, la zone où la vapeur d'hydrocarbures était présente était clairement délimitée par le profil des jets liquide. Ici, l'aspect tridimensionnel permet à la vapeur d'hydrocarbures de remonter en amont des injections.

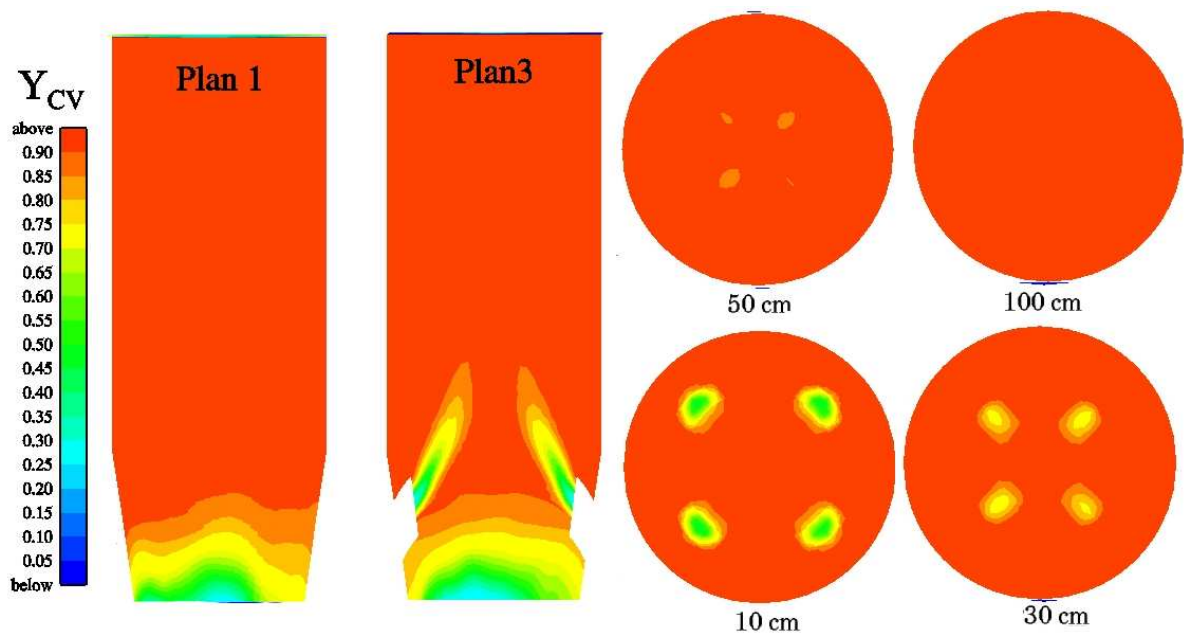


FIGURE 7.24 – Fraction massique moyenne de vapeur d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

Les figures 7.25, 7.26 et 7.27 présentent les champs de modules des vitesses moyennes des phases gazeuse, solide et liquide. Les vitesses maximales sont observées dans la zone très proche des injecteurs. Avec l'ascension dans le réacteur, les zones de vitesses maximales prennent une forme de croix explicable par la conservation du débit sur une section.

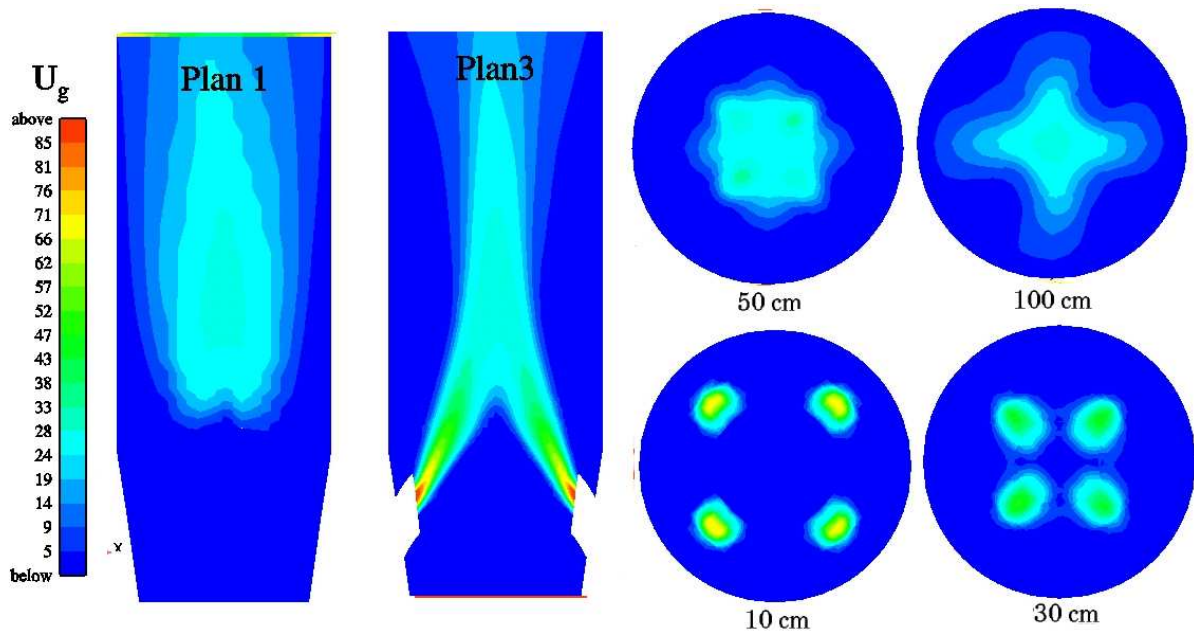


FIGURE 7.25 – Module de la vitesse moyenne du mélange gazeux dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

Les champs de vecteurs vitesses des trois phases (cf. Fig. 7.28), montrent que globalement, l'écoulement dans la zone d'injection est ascendant. Le zoom sur une zone proche de l'injecteur (cf. Fig. 7.3.2) montre que les particules redescendent le long des parois pour être ré-entraînées par les jets ensuite.

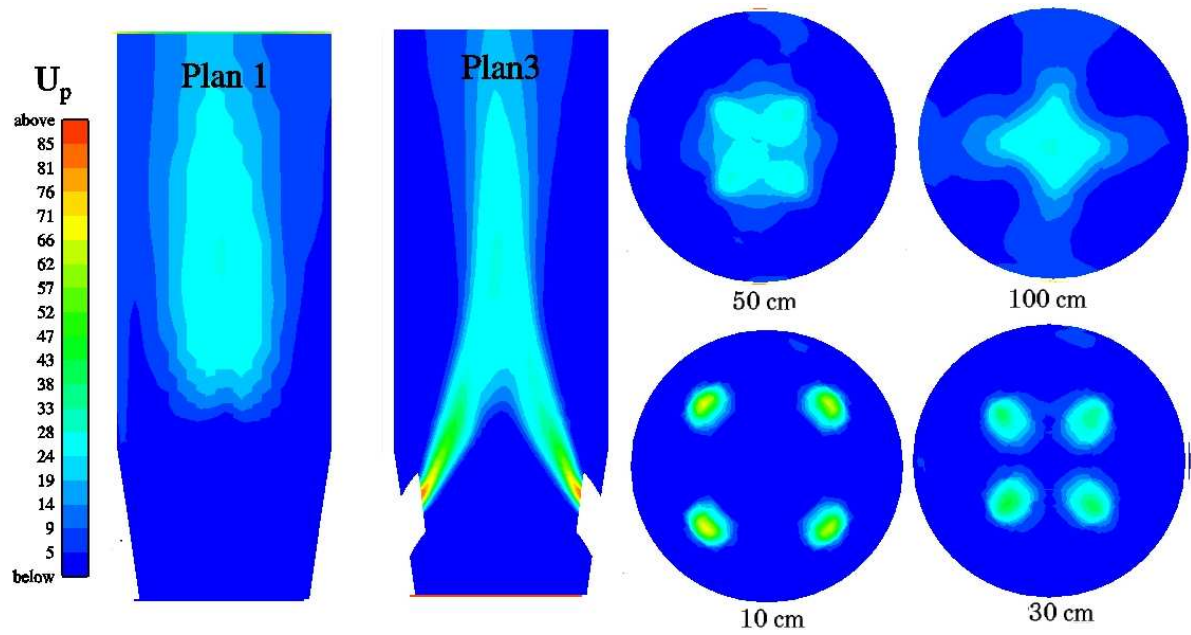


FIGURE 7.26 – Module de la vitesse moyenne des particules de catalyseur dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

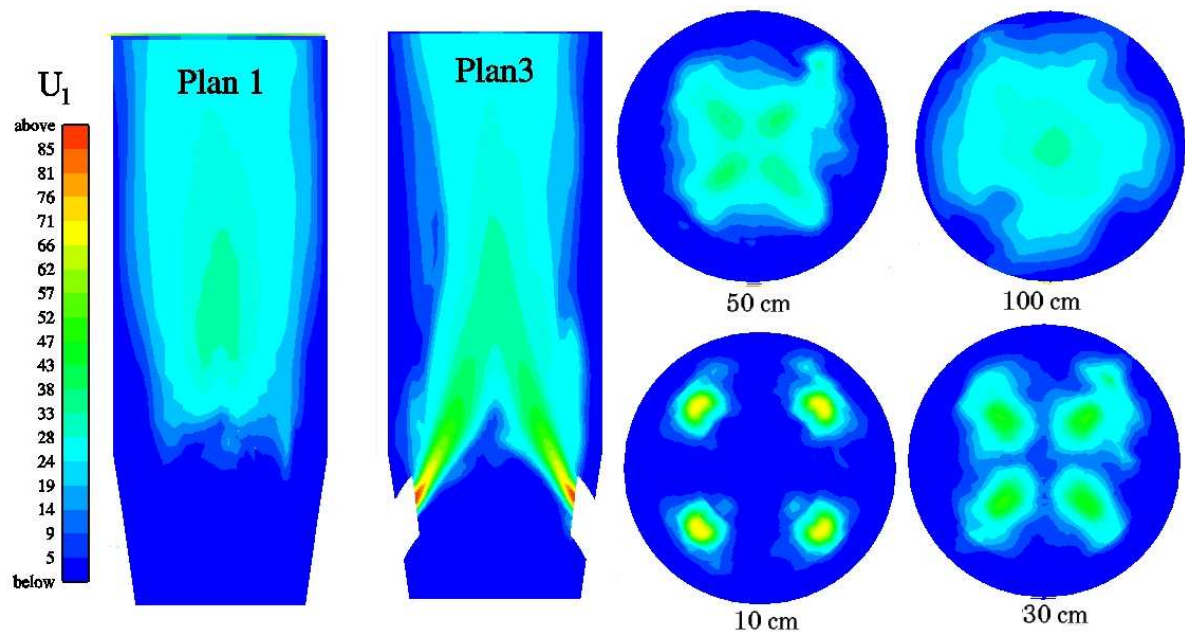


FIGURE 7.27 – Module de la vitesse moyenne des gouttes d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

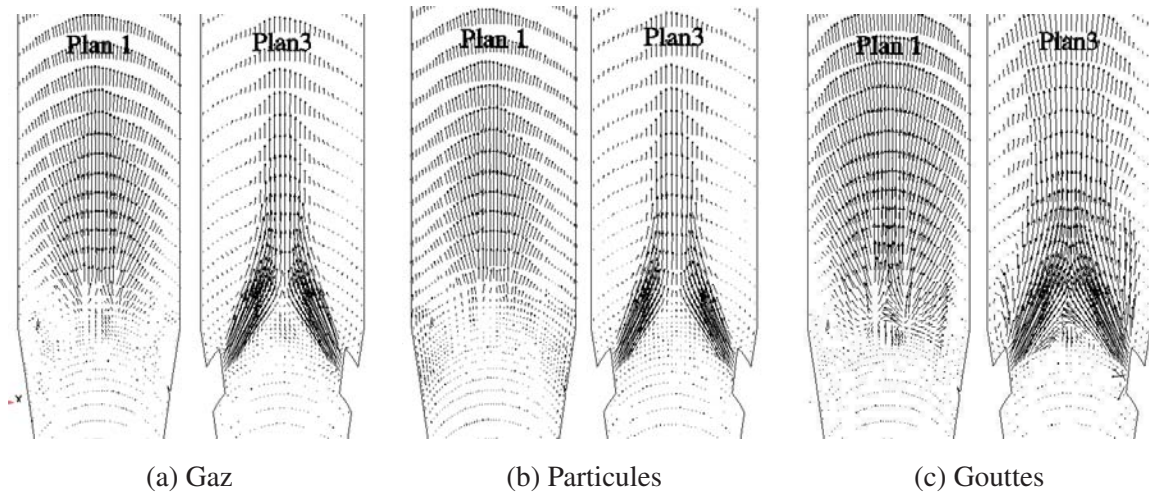


FIGURE 7.28 – Vecteurs vitesses moyens des trois phases en présence.

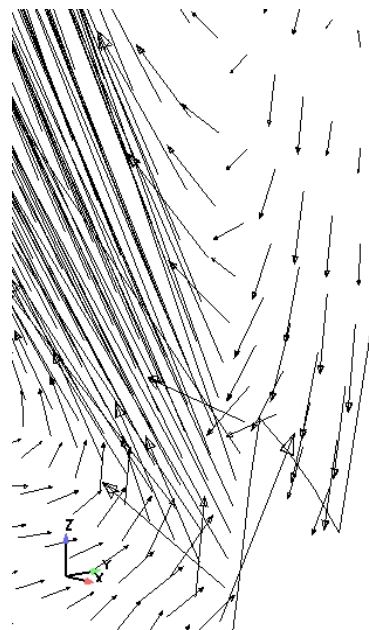


FIGURE 7.29 – Vecteurs vitesse moyens des particules dans le plan vertical 3 : zoom sur la zone proche de l'injecteur.

Les champs de températures du mélange gazeux (cf. Fig. 7.30), des particules de catalyseur (cf. Fig. 7.31) et des gouttes de charges (cf. Fig. 7.32) montrent que les températures les plus froides sont observées au niveau des injections et le long des jets. Ainsi pour les trois phases, les températures minimales se trouvent au centre du réacteur alors que les zones de proche paroi sont plus chaudes.

Dans la zone d'injection, comme nous l'avons noté lors de l'analyse verticale du jet, la différence de température entre le gaz et les particules est assez importante, mais tend à s'uniformiser.

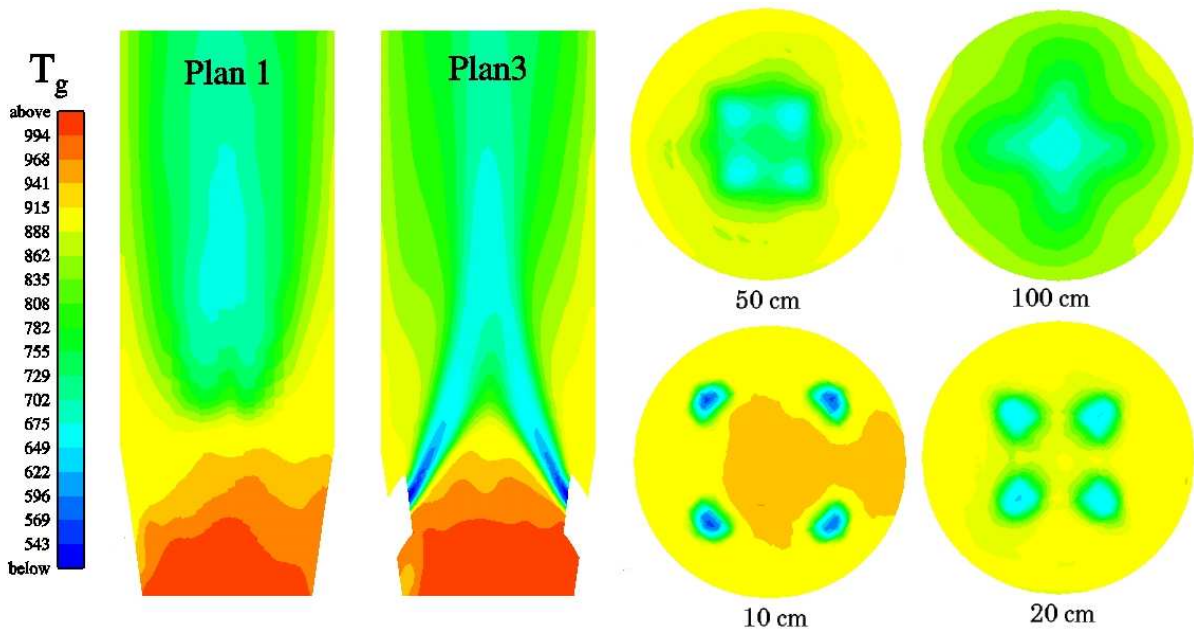


FIGURE 7.30 – *Température moyenne du mélange gazeux dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.*

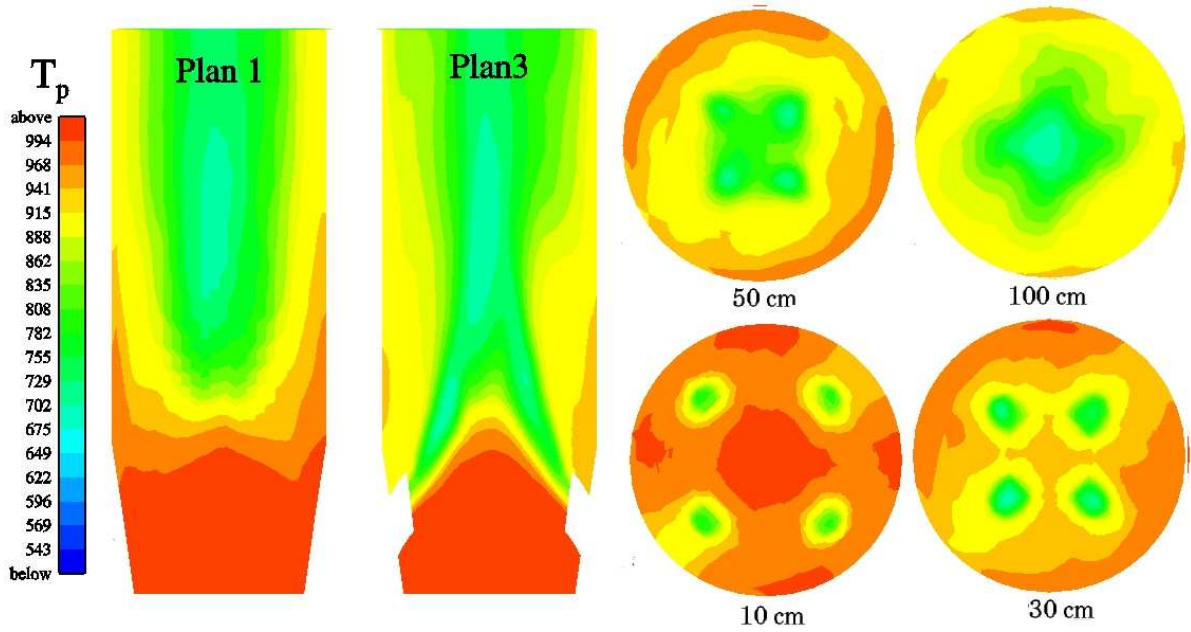


FIGURE 7.31 – *Température moyenne des particules de catalyseur dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.*

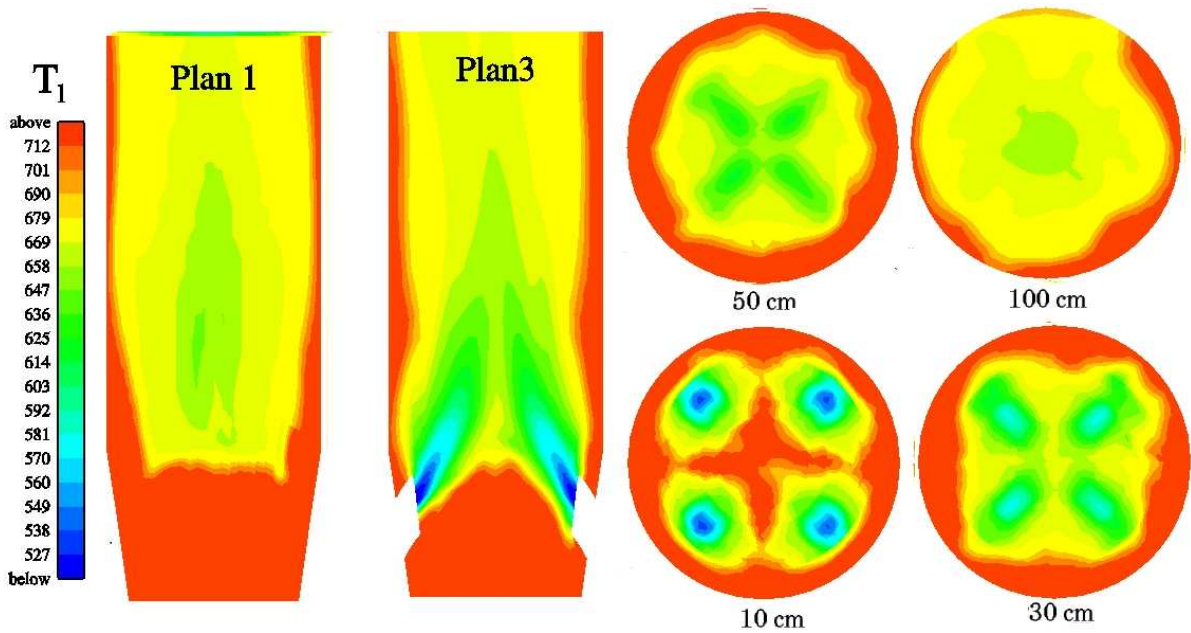


FIGURE 7.32 – *Température moyenne des gouttes d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.*

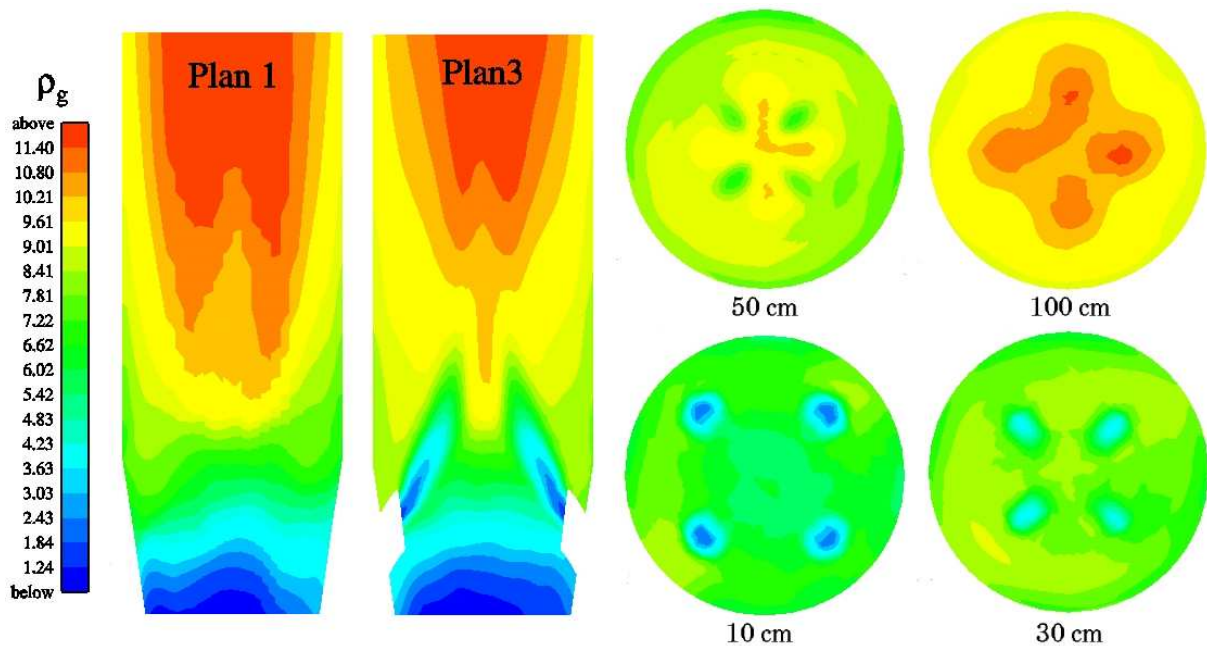


FIGURE 7.33 – Masse volumique moyenne du mélange gazeux dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

La figure 7.33 présente les champs de la masse volumique moyenne du mélange gazeux. Sa valeur est très faible en amont des injections, puisque dans cette zone, le mélange gazeux n'est constitué que de vapeur d'eau chaude. En aval des injections, l'apparition de vapeur de charge (gaz 28 fois plus lourd que la vapeur d'eau) conjuguée avec le refroidissement de l'écoulement provoque l'augmentation de la masse volumique du mélange gazeux.

La figure 7.34 présente le taux d'évaporation d'une goutte isolée, \dot{m} , dans les plans de coupes verticaux et horizontaux. Elle permet d'identifier les régions où l'évaporation est la plus intense, c'est-à-dire les zones périphériques des jets liquides. L'évaporation est en particulier très forte au centre des jets, 30 cm au-dessus des injections.

La figure 7.35 présente la vitesse moyenne de glissement des gouttes d'hydrocarbures. ses valeurs sont relativement faible puisque son module n'excède pas 3 m.s^{-1} , ce qui représente environ 4% de la vitesse d'injection. Les zones de fort glissement se trouvent près des injections et dans la région au centre des quatre jets. Près des injections, une forte vitesse de glissement est logique puisque l'écoulement gazeux injecté est perturbé par l'écoulement aval ascendant du lit fluidisé.

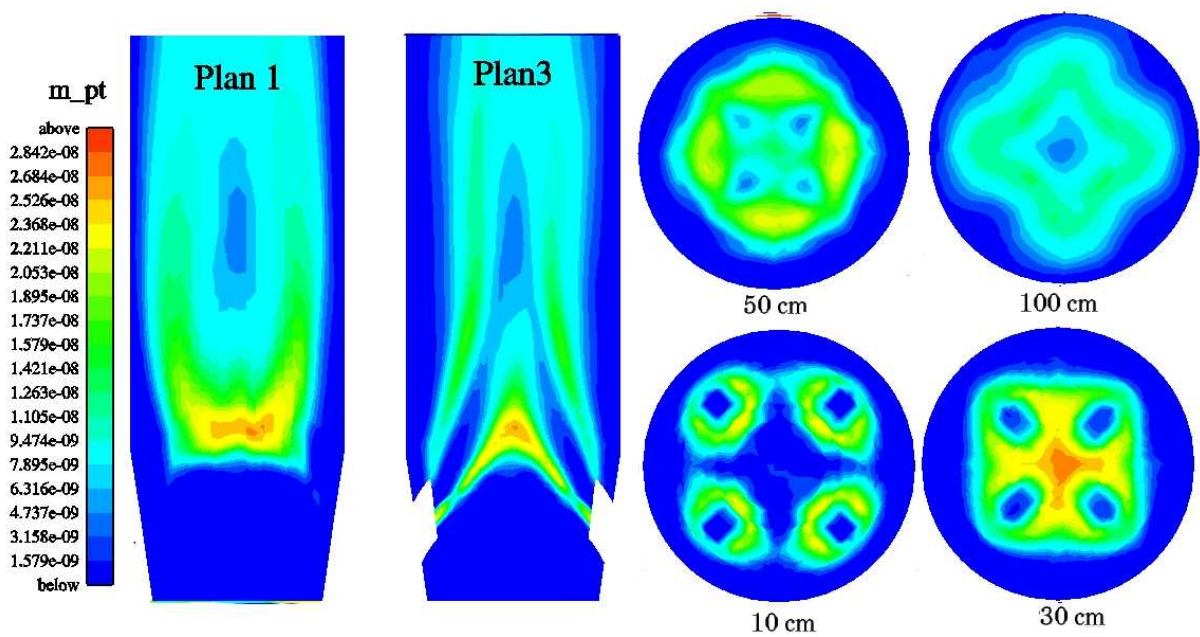


FIGURE 7.34 – Taux d'évaporation d'une goutte d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

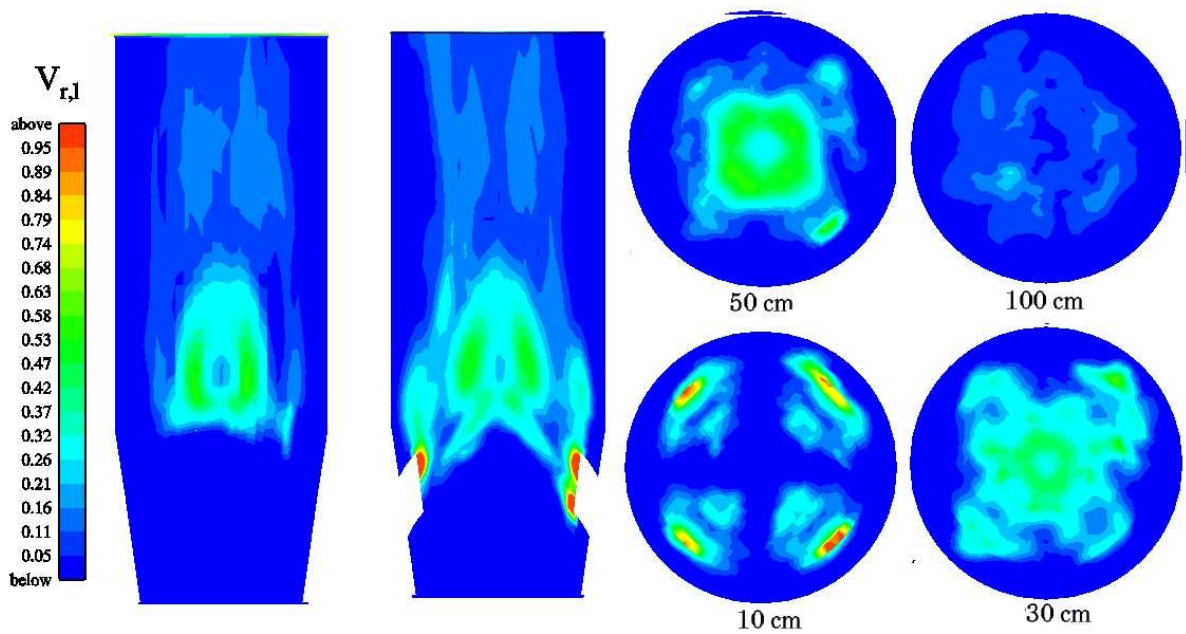


FIGURE 7.35 – Vitesse de glissement moyenne des gouttes d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

7.4 Analyse a posteriori des modèles de transfert

Nous avons identifié a posteriori les corrélations existant entre différentes grandeurs de l'écoulement. Pour ce faire, nous avons utilisé les valeurs sauvegardées à une fréquence de 100 Hz entre les temps 12,5 et 17,5 s sur toutes les cellules du maillage. Nous disposons donc d'un peu moins de 50 millions de « points de mesures ». Nous ne nous sommes intéressés qu'aux endroits où les gouttes de charge étaient présentes, ce qui réduit le nombre de points à 5 millions.

Nous avons étudié les corrélations entre deux variables u et v quelconques de la façon suivante. La formule suivante (tirée de [Salvetti & Banerjee \(1995\)](#)) nous a permis de déterminer si il existe ou non une corrélation entre u et v des grandeurs quelconques :

$$\text{corr\u00e9lation}(u;v) = \frac{\{uv\} - \{u\}\{v\}}{((\{u^2\} - \{u\}^2)(\{v^2\} - \{v\}^2))^{1/2}} \quad (7.7)$$

où $\{.\}$ représente la moyenne d'une grandeur sur l'ensemble des points de mesure.

Si le nombre obtenu est nul, on conclue qu'il n'existe pas de relation entre les grandeurs u et v . Dans le cas contraire, on peut conclure qu'il existe une corrélation qui doit \u00eatre d\u00e9termin\u00e9e. Dans ce cas un nuage de points peut-\u00eatre utilis\u00e9 mais peut aussi se r\u00e9v\u00e9ler peu repr\u00e9sentatif.

Dans ce dernier cas, le trac\u00e9 des moyennes par classes s'av\u00e8re plus judicieux. Ainsi, la grandeur de r\u00e9f\u00e9rence est divis\u00e9e en un certain nombre de classes. On calcule les moyennes des autres grandeurs sur la classe consid\u00e9r\u00e9e.

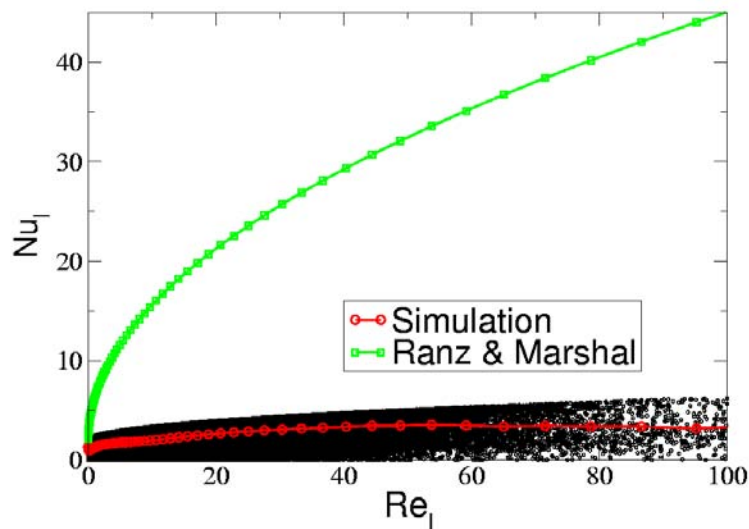


FIGURE 7.36 – Nombre de Nusselt des gouttes en fonction de leur nombre de Reynolds dans la simulation non r\u00e9active de GRANDPUITS, comparaison avec la cor\u00e9lation de [Ranz & Marshall \(1952\)](#).

L'\u00e9tude de l'existence d'une cor\u00e9lation entre le nombre de Nusselt des gouttes (dans les r\u00e9gions

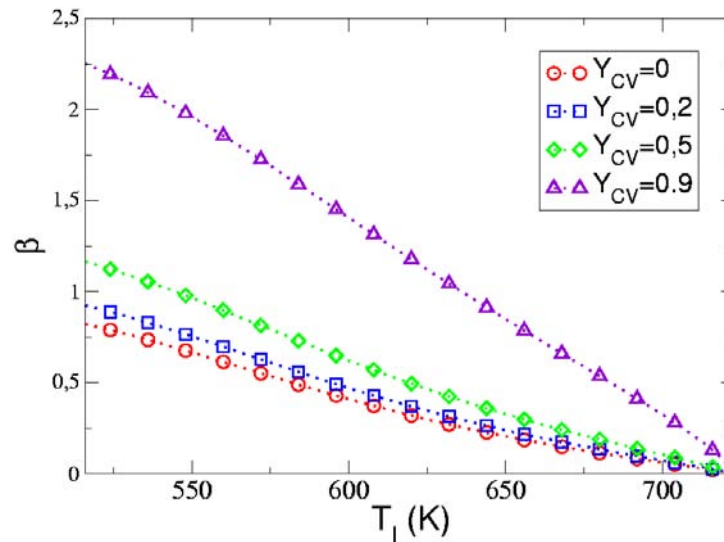


FIGURE 7.37 – Coefficient correcteur du nombre de Nusselt en fonction de la température de la goutte pour plusieurs fractions massique de vapeur de charge.

où elles sont présentes) et leur nombre de Reynolds par la formule 7.7 a donné une valeur non nulle égale à 0,5.

Nous avons donc tracé sur la figure 7.36 le nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds sous forme de nuages de points (points de mesure issus de la simulation) et sous forme de moyenne par classe. La figure présente aussi les valeurs du nombre de Nusselt des gouttes si nous n'avions pas utilisé une modification liée à leur évaporation (la corrélation représentée est la corrélation classique de Ranz & Marshall (1952)).

Il est clair que dans le cas de la simulation de Grandpuits, le nombre de Nusselt est considérablement diminué par l'évaporation des gouttes de charge qui est prise en compte par le modèle de Bird *et al.* (1960). En effet, pour les faibles nombre de Reynolds, il est inférieur à 2 et il est en moyenne divisé par 10 par rapport à un cas sans évaporation.

Cette forte modification est directement explicable par le modèle utilisé. En effet le modèle de Bird *et al.* (1960) revient à multiplier le nombre de Nusselt sans évaporation $Nu_{R\&M}$ par un coefficient correcteur dépendant du spalding de masse que l'on notera β :

$$\beta = \frac{\ln(1+B_M)}{B_M} \quad (7.8)$$

Nous avons tracé ce coefficient correcteur théorique en fonction de la température des gouttes de charge, pour plusieurs fractions massiques de vapeur de charge dans l'environnement de la goutte (cf. 7.37). Cette figure montre qu'à température élevée, ce qui est le cas dans notre simulation, le

coefficient correcteur devient très inférieur à 1, ce qui explique les différences importantes entre les nombres de Nusselt « avec évaporation » et les nombres de Nusselt qu'on aurait obtenus si on n'avait pas pris en compte l'effet dû à l'évaporation.

Finalement, l'introduction d'un modèle de modification du nombre de Nusselt des gouttes par l'évaporation a pour effet de rendre le nombre de Nusselt moins dépendant de la valeur du nombre de Reynolds. Globalement, le nombre de Nusselt prend des valeurs proches de 2, valeur que nous lui aurions attribuée, comme [Albrecht \(2001\)](#), si nous n'avions pas pris en compte la vitesse de glissement. En d'autres termes, la modification du Nusselt par l'évaporation conduit à rendre négligeable l'effet de la vitesse de glissement dans les transferts de chaleur gaz-goutte.

Conclusion

La simulation triphasique tridimensionnelle de l'écoulement non réactif à l'intérieur de l'installation industrielle de Grandpuits a permis de donner une vision précise de l'écoulement et des mécanismes mis en jeu dans l'installation. Les caractéristiques classiques de l'hydrodynamique au sein d'un lit fluidisé ont été retrouvées. La prise en compte de la vaporisation des gouttes de charge et des échanges thermiques entre les phases constitue une avancée majeure par rapport aux études précédemment publiées sur la simulation des réacteurs à lit fluidisés FCC. La description complète de la géométrie industrielle et en particulier de la zone d'injection des hydrocarbures permet d'analyser plus précisément les mécanismes mis en jeu dans cette zone et cruciaux pour l'écoulement global dans l'installation et la sélectivité de la réaction.

De plus, l'étude présentée ici comporte des avancées notables par rapport à l'étude antérieure de [Albrecht \(2001\)](#) puisqu'elle prend en considération l'aspect tridimensionnel de l'écoulement qui s'avère être primordial sur la structure de l'écoulement. La modélisation triphasique complète avec prise en compte du glissement entre le liquide et le mélange gazeux constitue elle aussi une avancée par rapport à l'étude antérieure.

La simulation tridimensionnelle triphasique avec échange de masse et de chaleur entre les phases est donc un premier pas conséquent et nécessaire pour la simulation de l'écoulement réactif.

Chapitre 8

Simulation triphasique réactive du réacteur FCC

L'étude de l'écoulement triphasique gaz-goutte-particule avec transfert de masse et de chaleur au sein d'un réacteur FCC à échelle industrielle nous a permis de dégager les principaux phénomènes observables dans une telle installation.

La prise en compte de la réaction de craquage catalytique est primordiale pour que l'outil de simulation soit utile à l'optimisation du procédé industriel. Ainsi, nous analysons ici les résultats de la simulation de l'écoulement réactif au sein du réacteur FCC de Grandpuits. Ils sont d'abord comparés aux mesures effectuées par [Névicato \(1997\)](#). Dans un deuxième temps, l'écoulement dans le réacteur et dans la zone d'injection est décrit et comparé aux résultats de la simulation non réactive.

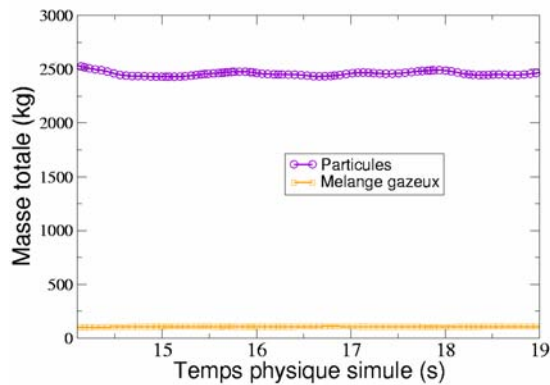
8.1 Stratégie de calcul

Pour le calcul réactif la stratégie a été la suivante :

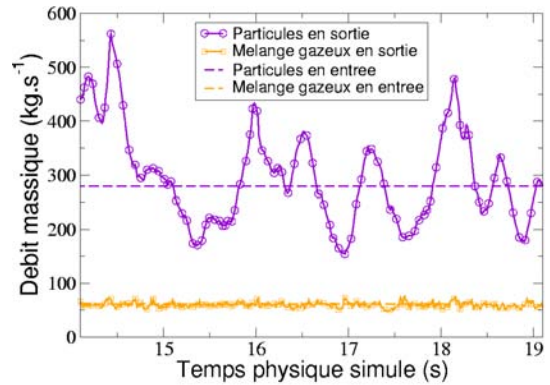
1. calcul de l'hydrodynamique sans réaction jusqu'à stabilisation (voir chapitre précédent),
2. déclenchement de la réaction,
3. à stabilisation des masses totales et des débits en sortie, lancement du calcul des moyennes.

Ainsi, la première étape s'est terminée au bout de 12 s de simulation, la deuxième, à 14 s de simulation. Nous disposons donc de moyennes sur environ 5 s, ce qui représente environ 7 mois de calcul.

Les figures 8.1(a) et (b) présentent les masses totales de mélange gazeux et de particules dans le réacteur en fonction du temps et les débits massiques en sortie de ces deux phases. On remarque que les masses totales de mélange gazeux et de particules de catalyseur dans le réacteur oscillent beaucoup comme dans le cas non réactif, mais leurs valeurs sont inférieures.



(a) Masses totales de mélange gazeux et de particules de catalyseur dans le réacteur en fonction du temps physique simulé



(b) Débits massiques de mélange gazeux et de particules de catalyseur en sortie de réacteur comparés aux flux entrant en fonction du temps physique simulé

FIGURE 8.1 – Critères de démarrage du calcul des moyennes temporelles.

La figure 8.2 présente la masse totale de liquide dans le réacteur en fonction du temps simulé. A l'instar de l'écoulement non réactif, cette grandeur présente de nombreuses oscillations, qui laissent présager de l'instationnarité de la zone d'injection. On remarque de plus que la masse totale de liquide dans le réacteur est légèrement inférieure dans le cas de l'écoulement réactif que dans le cas où la réaction de craquage n'est pas prise en compte. Ce résultat était prévisible puisque la réaction de craquage fait disparaître la charge vaporisée et active ainsi l'évaporation comme nous le verrons ultérieurement.

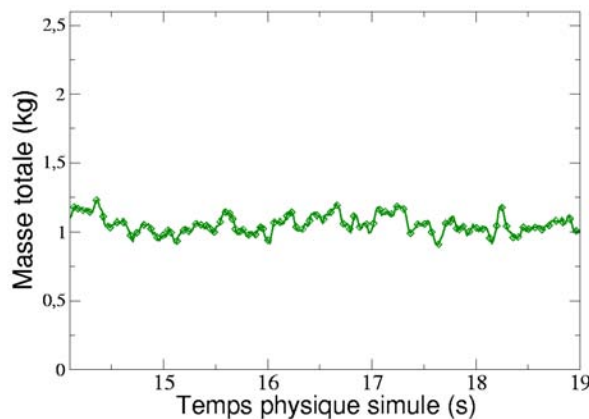


FIGURE 8.2 – Masse totale de liquide dans le réacteur en fonction du temps physique simulé.

8.2 Comportement global du lit

A ce stade de l'étude, il est intéressant de s'attarder sur le comportement global du lit et de comparer l'écoulement réactif à l'écoulement non réactif.

8.2.1 Analyse verticale moyennée en temps

La figure 8.3(a) présente la pression moyennée en temps et par section, en fonction de la hauteur dans le réacteur. La figure 8.3(b) présente le gradient de pression en fonction de la hauteur dans le réacteur. Sur les deux courbes, le cas non réactif est aussi représenté.

Au-dessous des injections, le comportement de la pression et de son gradient dans le cas réactif ou non est le même. Par contre, au-dessus des injections, la différence est notable. Dans le cas réactif, le gradient de pression est légèrement plus faible, la pression est légèrement plus faible aussi. En fait, la pression dans le réacteur est une conséquence du poids de solide. Dans le cas réactif, le poids de solide au-dessus des injections est moins important (comme nous l'expliquerons plus loin), d'où une pression plus faible.

Environ 2 m au-dessus des injections, le gradient de pression est beaucoup plus faible dans le cas réactif que dans le cas non réactif. Ceci est dû au fait que la réaction provoque une diminution de la masse volumique du mélange gazeux qui se répercute sur la pression.

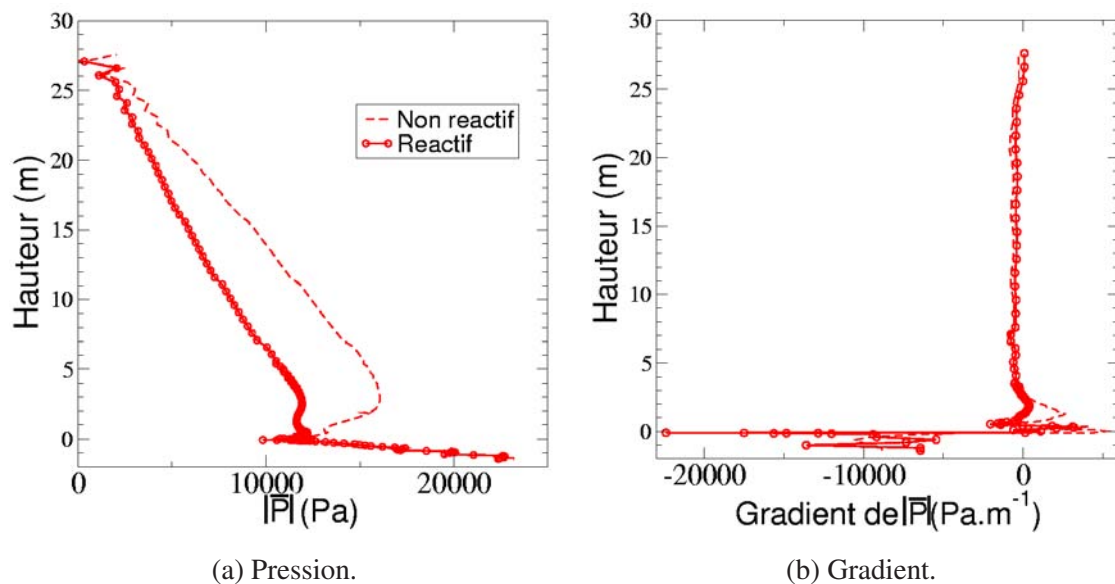


FIGURE 8.3 – Pression relative et gradient de pression moyens, moyennés par section en fonction de la hauteur dans le réacteur : comparaison des écoulements réactifs et non réactifs.

Comme dans le cas non réactif, nous avons comparé le gradient de pression moyennée en temps et par section au poids d'un élément de volume du mélange gaz-particule $(\alpha_p \rho_p + \alpha_g \rho_g)g$ (cf. Fig. 8.4).

Dans la partie inférieure de la colonne, ces deux grandeurs ne sont pas du même ordre : nous sommes encore dans une phase d'accélération du lit fluidisé. Au-dessus de 5 m, nous n'avons plus (comparé au cas non réactif) concordance entre ces deux valeurs. Ce résultat est une conséquence de l'accélération permanente du mélange gazeux dans la colonne.

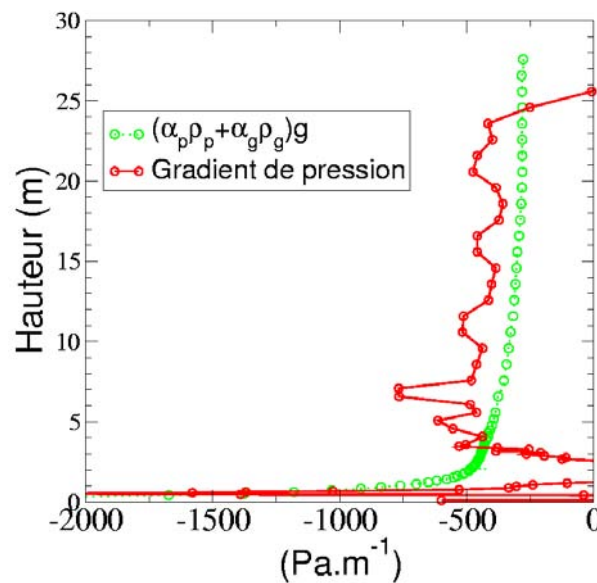


FIGURE 8.4 – Comparaison du gradient de pression moyennée en temps et par section et de la force volumique de pesanteur du mélange gaz-particule.

La fraction volumique de particule dans la partie supérieure de la colonne est plus faible dans le cas réactif que dans le cas non réactif (cf. Fig. 8.5(a)). L'allure globale de la courbe dans le cas non réactif est conservée avec une zone très dense en amont des injections et une zone plus diluée en aval. Cependant, dans le cas réactif, la valeur moyenne dans la partie supérieure de la colonne est plus faible, conséquence de l'accélération des deux phases visible sur la figure 8.5(b).

Nous remarquons sur cette figure que l'écart entre les vitesses moyennées en temps et par section est supérieur dans le cas réactif que dans le cas non réactif d'environ 60%.

L'accélération de la phase gazeuse (qui entraîne l'accélération des particules de catalyseur) est une conséquence directe de la réaction de craquage catalytique. En effet, la charge vaporisée (chaînes carbonées longues) se transforme en produits plus légers (cf. Fig. 8.6(b)) ; globalement, la masse volumique du mélange gazeux diminue (cf. Fig. 8.6(a)), et la phase gazeuse s'en trouve accélérée.

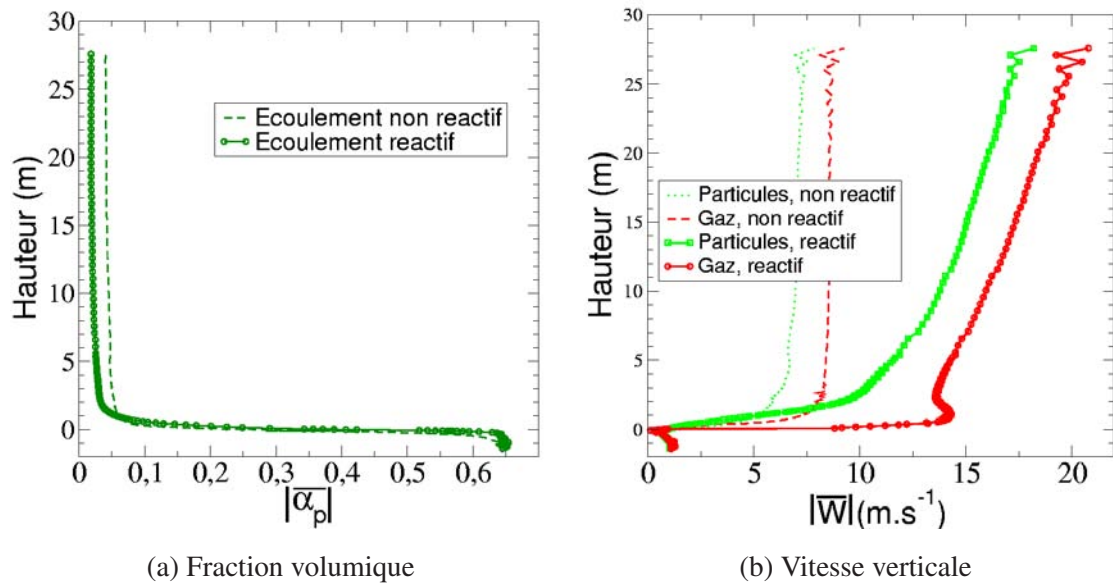


FIGURE 8.5 – Fraction volumique des particules et vitesse verticale du mélange gazeux et des particules moyennes, moyennées par section en fonction de la hauteur dans le réacteur : comparaison des écoulements réactifs et non réactifs.

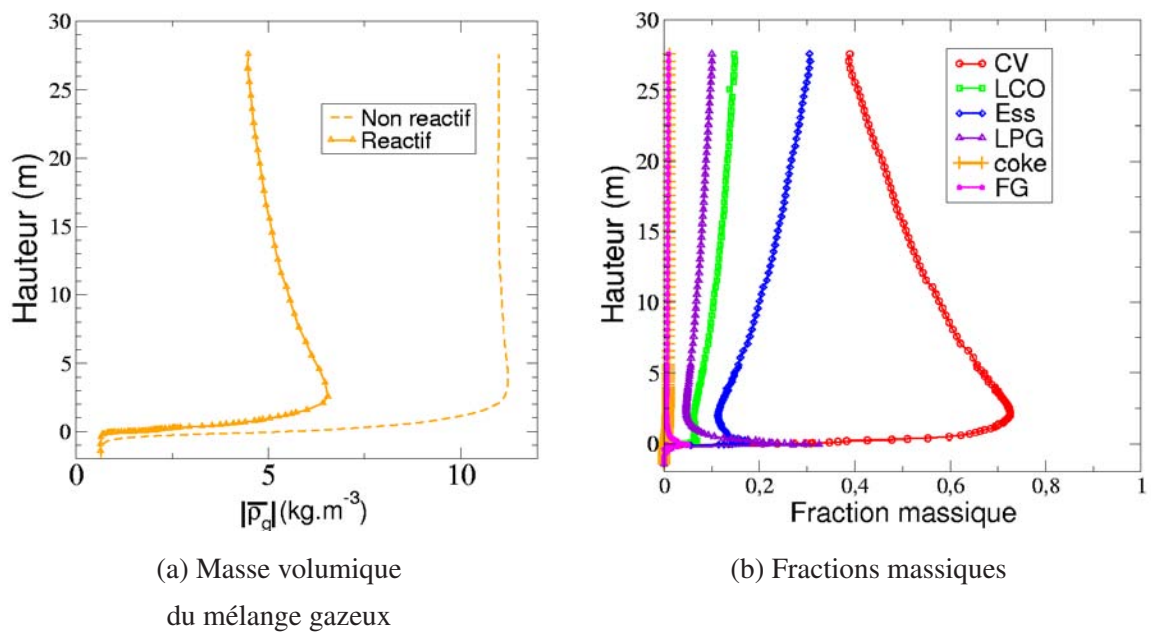


FIGURE 8.6 – Masse volumique moyenne du mélange gazeux et fractions massiques des espèces intervenant dans la réaction de craquage en fonction de la hauteur dans le réacteur.

L'évolution de la masse volumique du mélange sur la hauteur du réacteur est remarquable. Au-dessus des injections, la masse volumique du mélange gazeux augmente sous l'action conjuguée de l'évaporation de la charge (espèce lourde) et du refroidissement provoqué par les injections et l'évaporation. Ensuite, la masse volumique du mélange diminue comme conséquence de la réaction de craquage.

La figure 8.7 présente les températures moyennées en temps et par section du mélange gazeux, des particules et des gouttes de charges en fonction de la hauteur dans le réacteur. On retrouve ici l'allure des profils de température obtenus par Gao *et al.* (1999). Comme dans le cas non réactif, les températures des phases gaz et particules sont très élevées en amont des injections et baissent rapidement en aval. Cependant, deux résultats sont remarquables dans le cas réactif. D'abord, la différence de température entre le gaz et les particules diminue plus rapidement. Ensuite, la température finale en sortie de réacteur est inférieure d'environ 30 K à la température en sortie de l'écoulement non réactif. On observe bien ici l'effet endothermique de la réaction. Nous notons cependant que le refroidissement général de l'écoulement dans le réacteur est surtout une conséquence des injections de charge froide et de la vaporisation de cette charge. La réaction de craquage, si elle refroidit l'écoulement, n'a qu'une influence relativement faible sur la température (baisse relative de la température d'environ 4%).

Nous remarquons aussi que les températures du gaz et des particules s'équilibrent à environ 7,5 m au-dessus des injections, ce qui est en contradiction avec les résultats de Pareek *et al.* (2003) qui supposent et valident a posteriori un mélange thermique instantané du gaz et des particules.

La figure 8.8 présente le débit massique de gouttes de charge en fonction de la hauteur dans le réacteur. Comme dans le cas de l'écoulement non réactif, la totalité du liquide disparaît très rapidement. Cependant, dans le cas réactif, le liquide disparaît plus vite que dans le cas non réactif. En effet, à environ 2,5 m au-dessus des injections (contre 3,5 m en écoulement non réactif), on peut considérer que la totalité du liquide s'est évaporé. C'est-à-dire que dans le cas de l'écoulement réactif la distance d'évaporation complète des jets est diminuée d'environ 1 m. Ceci s'explique par le fait que la réaction de craquage diminue la présence de vapeur de charge autour des gouttes et active ainsi l'évaporation.

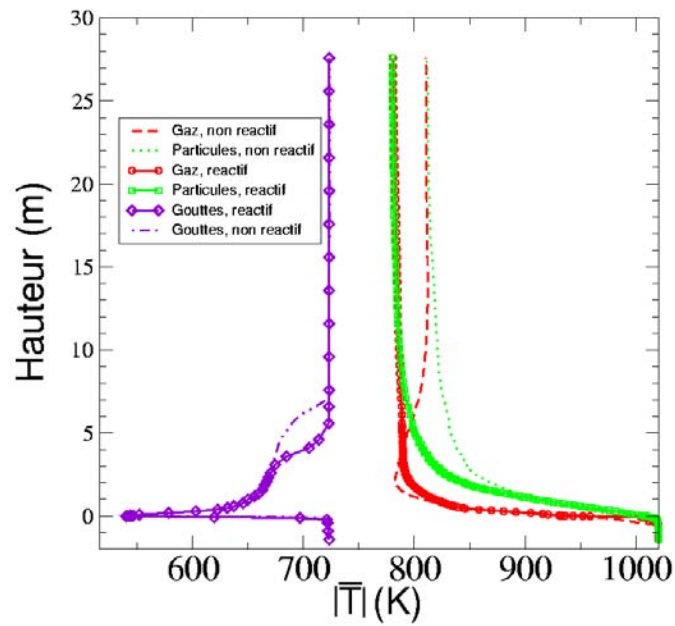


FIGURE 8.7 – Températures du mélange gazeux et des particules moyennes, moyennées par section en fonction de la hauteur dans le réacteur : comparaison des mélanges réactif et non réactif.

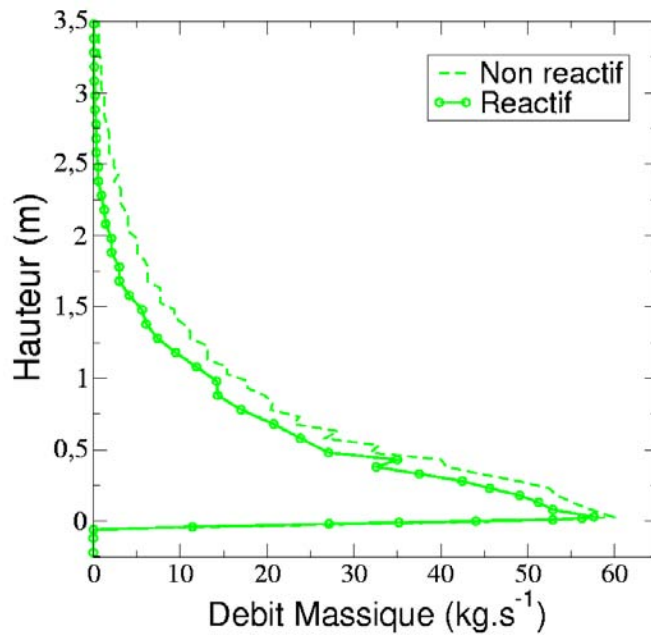


FIGURE 8.8 – Débit massique de gouttes de charge en fonction de la hauteur dans le réacteur : comparaison des écoulements réactif et non réactif.

Les figures 8.9 présentent les densités volumiques de taux de réaction de deux espèces particulières : la charge vaporisée et le coke. La figure 8.9(a) présente les densités volumiques de création de vapeur d'hydrocarbures (par évaporation de la charge liquide) et de destruction de cette vapeur (sous l'action de la réaction de craquage catalytique). La somme de ces deux termes représente la création (ou disparition) de la charge vaporisée. L'interprétation de la courbe est délicate, nous ne disons pas ici que la charge ne craque plus au-dessus d'une certaine hauteur, mais bien que les mécanismes primordiaux au rendement du réacteur se passent dans les trois premiers mètres au-dessus des injections. Ce résultat est appuyé par la figure 8.9(b) qui présente le taux de production de coke en fonction de la hauteur dans le réacteur. Elle montre que la majorité du coke, en sortie de l'installation, est formée dans les premiers mètres au-dessus de l'injection.

Notre simulation montre que l'évaporation de la charge est complète à 2,5 m au-dessus des injections et que la formation de coke est pratiquement stabilisée à 5 m.

A 2,5 m au-dessus des injections, on a craqué 25% de la charge injectée (fraction massique de charge vaporisée de 0,73 pour une valeur injectée de 0,96). Comme nous le verrons par la suite, la fraction massique de charge vaporisée en sortie du réacteur est de 0,37, nous obtenons un craquage en sortie d'environ 38%. Finalement, 40% de la disparition de la charge se produit dans les 2,5 m au-dessus des injections.

Concernant la production d'essence, on remarque que seulement 30% du débit total en sortie sont produits avant 2,5 m.

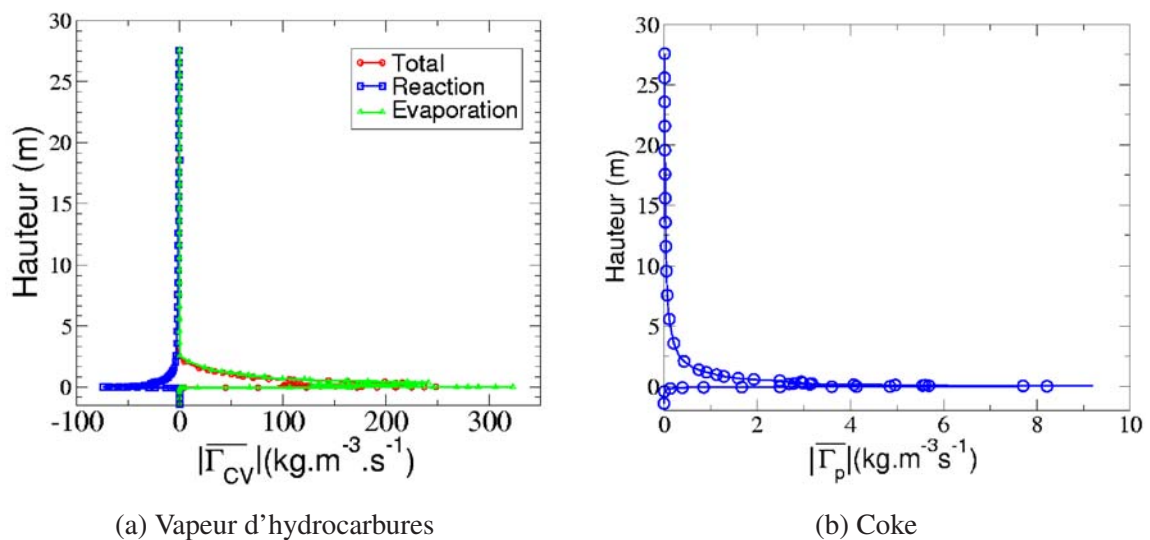


FIGURE 8.9 – Termes source ou puit des fractions massiques de charge vaporisée et de coke.

Modélisation monodimensionnelle

Comme nous l'avons vu précédemment, la zone d'injection a une influence forte sur le rendement et la sélectivité du réacteur. C'est pourquoi, afin d'analyser plus précisément les résultats obtenus grâce à la simulation tridimensionnelle, nous avons développé un modèle 1D simplifié avec les hypothèses suivantes :

1. la charge est injectée totalement vaporisée,
2. le mélange gazeux et les particules solides sont à la même température,
3. la vitesse de glissement entre le gaz et les gouttes est supposée constante et égale à $2,3 \text{ m.s}^{-1}$, cette valeur étant déduite de la simulation tridimensionnelle.

Nous résolvons donc le système différentiel suivant :

$$\alpha_g \rho_g U_g \frac{\partial Y_{CV}}{\partial z} = \Gamma_{CV}^R + Y_{CV} \Gamma_p \quad (8.1)$$

$$\alpha_g \rho_g U_g \frac{\partial Y_{LCO}}{\partial z} = \Gamma_{LCO}^R + Y_{LCO} \Gamma_p \quad (8.2)$$

$$\alpha_g \rho_g U_g \frac{\partial Y_{ess}}{\partial z} = \Gamma_{ess}^R + Y_{CV} \Gamma_p \quad (8.3)$$

$$\alpha_g \rho_g U_g \frac{\partial Y_{LPG}}{\partial z} = \Gamma_{LPG}^R + Y_{LPG} \Gamma_p \quad (8.4)$$

$$\alpha_p \rho_p U_p \frac{\partial Y_{coke}}{\partial z} = (1 - Y_{coke}) \Gamma_p \quad (8.5)$$

$$\alpha_g \rho_g U_g \frac{\partial Y_{FG}}{\partial z} = \Gamma_{FG}^R + Y_{FG} \Gamma_p \quad (8.6)$$

avec les notations implicites suivantes :

$$\Gamma_p = \Gamma_{coke}^R \quad (8.7)$$

$$\Gamma_p + \Gamma_g = 0 \quad (8.8)$$

L'hypothèse selon laquelle les températures du gaz et des particules sont identiques conduit, grâce à un bilan enthalpique qui sera détaillé à la section 8.4.4, l'expression suivante :

$$T(h) = T_{ref} + \frac{\mathcal{H}_{total \text{ en entrée}} - Q_g(h) Y_{CV}(h) \Delta H_R}{Q_p(h) C_{p,p} + Q_g(h) C_{p,g}} \quad (8.9)$$

$\mathcal{H}_{total \text{ en entrée}}$ correspond à l'enthalpie totale injectée dans le réacteur. $Q_p(h)$ est le débit de solide à la hauteur h qui s'écrit de la manière suivante :

$$Q_p(h) = \alpha_p \rho_p U_p S = \frac{Q_{p,lit}}{(1 - Y_{coke}(h))} \quad (8.10)$$

En toute rigueur, sous l'hypothèse que la charge injectée est totalement vaporisée, le débit de solide s'exprime sous la forme :

$$Q_g(h) = Q_{g,injec} + Q_{l,injec} + Q_{g,lit} - \frac{Y_{coke}(h)}{1 - Y_{coke}(h)} Q_{p,lit} \quad (8.11)$$

La masse volumique du mélange gazeux est calculée grâce à la loi des gaz parfaits, la pression est considérée constante. La vitesse du gaz est calculée grâce à la conservation du débit gazeux :

$$U_g = \frac{Q_g(h)}{\rho_g S (1 - \alpha_p)} \quad (8.12)$$

La fraction volumique de particules est calculée grâce à la conservation du débit de solide :

$$\alpha_p = \frac{Q_p(h)}{\rho_p S U_p} \quad (8.13)$$

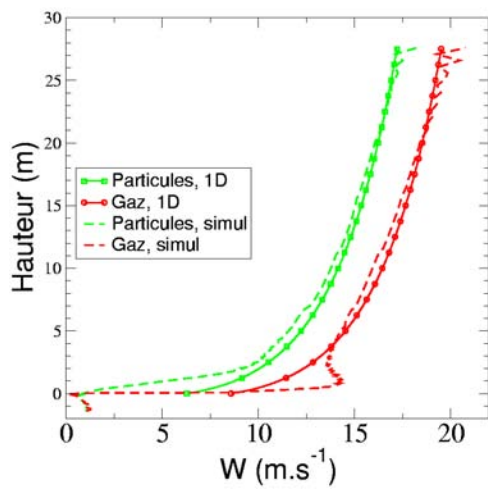
La vitesse des particules est calculée à partir de l'hypothèse d'une vitesse de glissement gaz-particule constante et environ égale, d'après les simulations tridimensionnelles à $2,3 \text{ m.s}^{-1}$.

On remarque que les équations 8.12 et 8.13 sont couplées et constituent un système que nous avons choisi de résoudre de manière itérative.

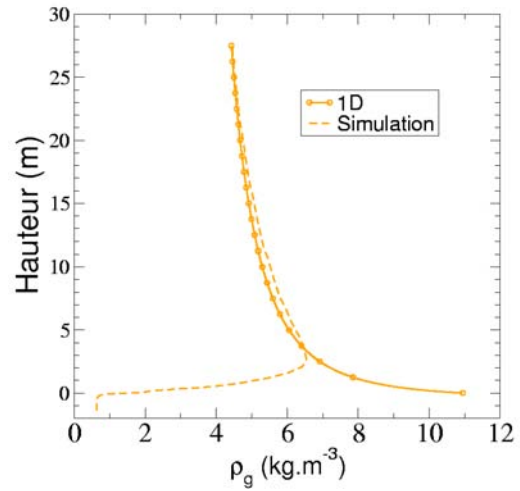
Les figures 8.10 présentent les résultats du calcul monodimensionnel comparés aux résultats issus de la simulation tridimensionnelle moyennés en temps et par sections pour les vitesses verticales des deux phases, la masse volumique du mélange gazeux, la fraction volumique de particules et la température du mélange. Sur toutes ces grandeurs, les deux modélisations concordent. On note cependant sur la figure 8.10(b) la différence de comportement de la masse volumique du mélange gazeux qui est due à l'hypothèse de vaporisation totale de la charge en injection.

Cependant, comme on peut le voir sur la figure 8.11, nous n'obtenons pas les mêmes rendements dans les deux cas. Cependant, les pentes d'évolution des espèces sont identiques à partir d'une hauteur d'environ 10 m.

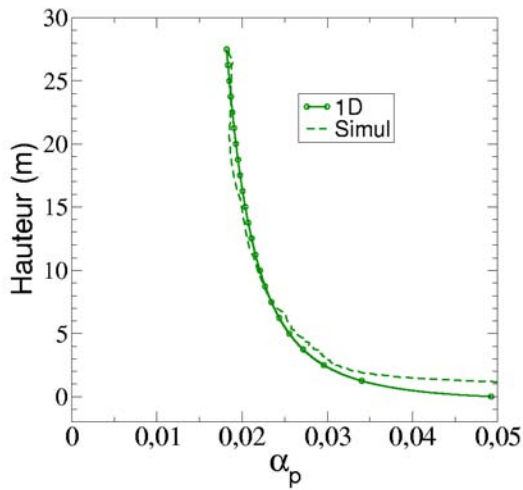
La concordance de la masse volumique pour les deux modèles, malgré l'écart de craquage, peut s'expliquer par une température prédite par le modèle 1D légèrement inférieure (environ 10 K) à celle prédite par la simulation tridimensionnelle.



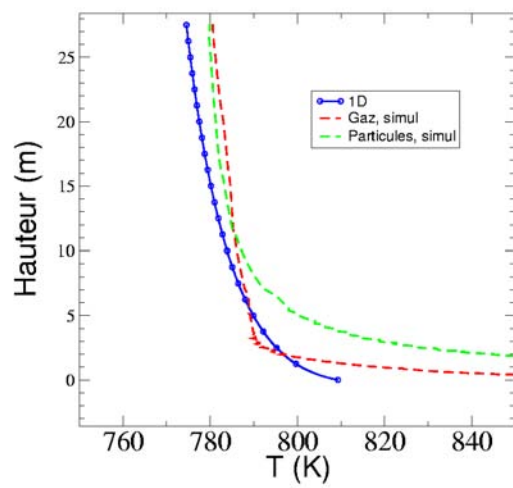
(a) Vitesses



(b) Masse volumique
du mélange gazeux



(c) Fraction volumique
des particules



(d) Température

FIGURE 8.10 – Comparaison des résultats du modèle 1D et de la simulation tridimensionnelle.

Concernant l'écart de rendement, nous avons effectué plusieurs tests avec le modèle 1D pour constater l'influence des hypothèses faites dans ce modèle sur les résultats obtenus :

1. un calcul à partir de la hauteur $h_0 = 2,5 \text{ m}$, hauteur à laquelle la totalité du liquide a disparu (cf. Fig. 8.8),
2. un calcul à partir de $h_0 = 7,5 \text{ m}$, hauteur à laquelle la différence de température entre le gaz et les gouttes est négligeable (cf. Fig. 8.7) et le terme de production de coke est nul (cf. Fig. 8.9(b)).

Dans ces deux cas, les fractions massiques des différentes espèces sont initialisées à l'aide des valeurs issues de la simulation à la hauteur correspondante.

Comme pour le calcul à partir de $h_0 = 0$, les principales grandeurs régissant l'écoulement (vitesse, masse volumique du gaz, fraction volumique de catalyseur et température) calculées avec le modèle 1D concordent bien avec les résultats issus de la simulation. C'est pourquoi nous montrons seulement ici les courbes concernant l'évolution des fractions massiques d'espèces (cf. Fig. 8.12).

Le calcul à partir de $h_0 = 2,5 \text{ m}$ (hauteur à laquelle il n'y a plus de liquide) présenté sur la figure 8.12(a) donne des résultats, concernant le rendement, plus proches de ceux de la simulation tridimensionnelle mais ne concordent pas parfaitement. Ce résultat montre que la bonne prédiction du craquage n'est pas uniquement liée à la bonne prise en compte de l'évaporation.

L'initialisation à $h_0 = 7,5 \text{ m}$ donne des rendements plus en adéquation avec la simulation 3D, qui restent quand même différents. L'écart de température n'est donc pas un phénomène prépondérant.

Des tests complémentaires ont montré que la différence de température n'avait pas d'influence sur les résultats. Ces tests ont montré, de plus, que plus la hauteur d'initialisation du modèle 1D était grande, plus les résultats obtenus concordaient avec les simulations.

On peut conclure de cette analyse que la zone d'injection et en particulier le mélange du jet vaporisé avec le catalyseur jouent un rôle primordial sur le rendement du réacteur. De plus, la prise en compte de l'hydrodynamique dans la colonne semble avoir une importance prépondérante sur le rendement.

C'est pourquoi une analyse radiale nous permettra de donner une vision plus complète de l'écoulement et d'interpréter les résultats obtenus.

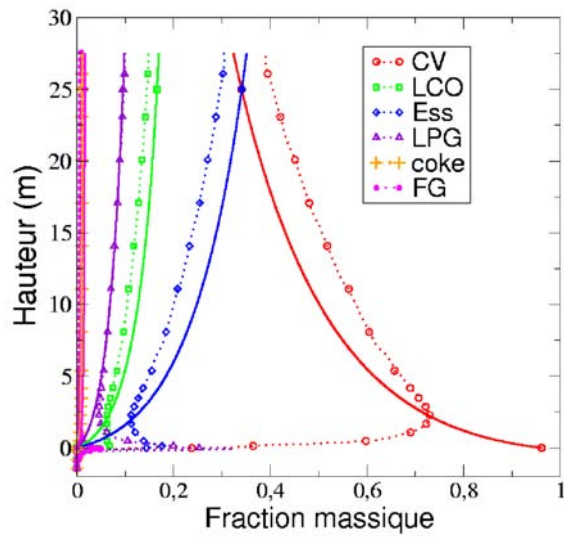


FIGURE 8.11 – Comparaison des résultats du modèle 1D (traits pleins) et de la simulation tridimensionnelle (traits pointillés) pour les fractions massiques d'espèces.

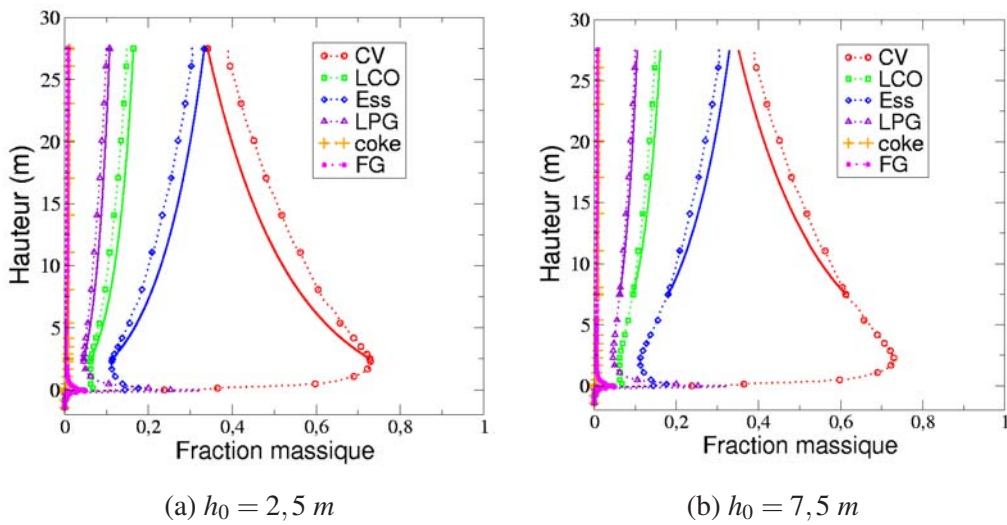


FIGURE 8.12 – Comparaison des résultats du modèle 1D et de la simulation tridimensionnelle pour les fractions massiques d'espèces : initialisation à différentes hauteurs.

8.2.2 Analyse radiale moyennée en temps

La réaction de craquage catalytique a une influence notable sur l'hydrodynamique du lit puisqu'elle provoque une accélération des phases gazeuse et solide qui a pour conséquence une forte dilution du lit. Il est alors intéressant d'évaluer l'influence de la réaction de craquage sur la répartition radiale des principales grandeurs caractérisant l'écoulement.

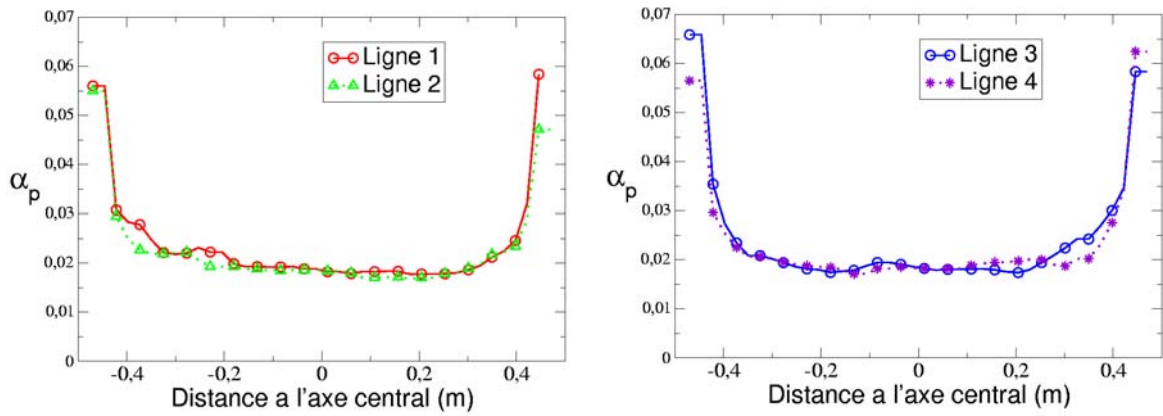
Les figures 8.13(a), (b) et (c) présentent les profils radiaux du taux de présence en particules, respectivement 5, 10 et 20 m au-dessus des injections. Les valeurs obtenues sont inférieures à celles obtenues dans le cas non réactif, cependant la répartition est identique. Les particules sont plus présentes près des parois où les taux de présence atteignent, 5 m au-dessus des injections, des valeurs de l'ordre de 6 % ; au centre du réacteur les profils obtenus sont plats. On remarque que le gradient de particules entre le centre et les parois a tendance à diminuer avec l'ascension dans le réacteur.

Les figures 8.14(a), (b) et (c) présentent les profils radiaux des vitesses verticales du mélange gazeux et des particules à 5, 10 et 20 m au-dessus des injections de charge. Les vitesses verticales observées sont supérieures à celle obtenues pour l'écoulement non réactif mais le profil parabolique caractéristique est retrouvé.

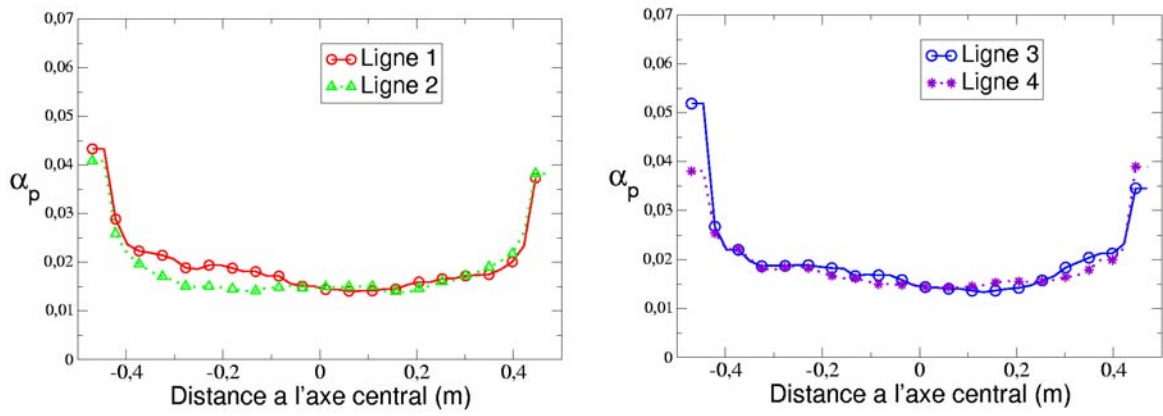
Comme dans le cas non réactif, aucune dissymétrie notable n'est observée, ce qui nous laisse penser que le coude de la rampe d'injection n'a pas de réelle influence sur l'écoulement en aval des injections.

La différence de vitesse entre le mélange gazeux et les particules est de l'ordre de 2 m.s^{-1} , 5 m au-dessus des injections de charge. Cette valeur a tendance à diminuer avec l'ascension dans le réacteur : elle est d'environ 1 m.s^{-1} 20 m au-dessus des injections.

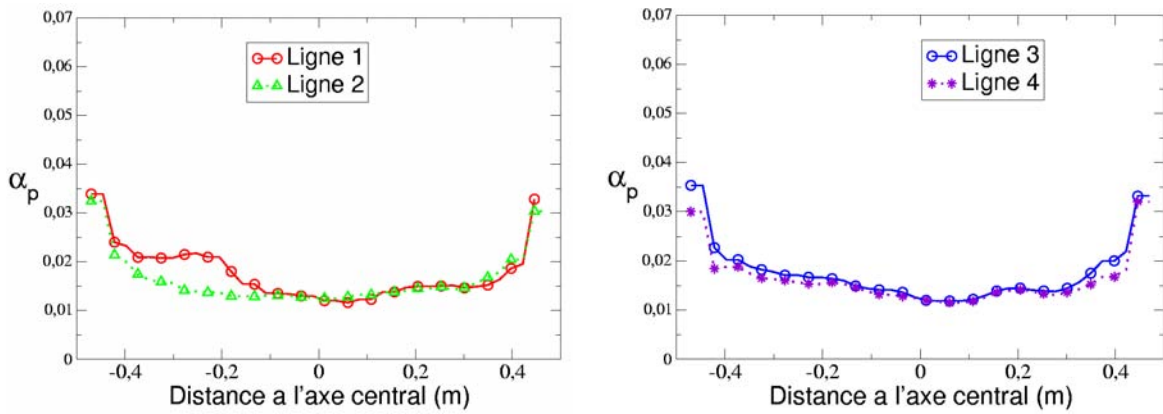
Les figures 8.15(a), (b) et (c) présentent les profils radiaux des températures du gaz et des particules à différentes hauteurs dans le réacteur. Comme nous l'avons déjà noté, la différence de température entre le gaz et les particules s'équilibre plus rapidement que dans le cas non réactif. De plus, les profils sont globalement plus plats ; et, 20 m au-dessus des injections, la parabole a tendance à s'inverser puisqu'on observe des températures en proche paroi inférieures de 10 K à celles au centre du réacteur.



(a) 5 m au-dessus des injections

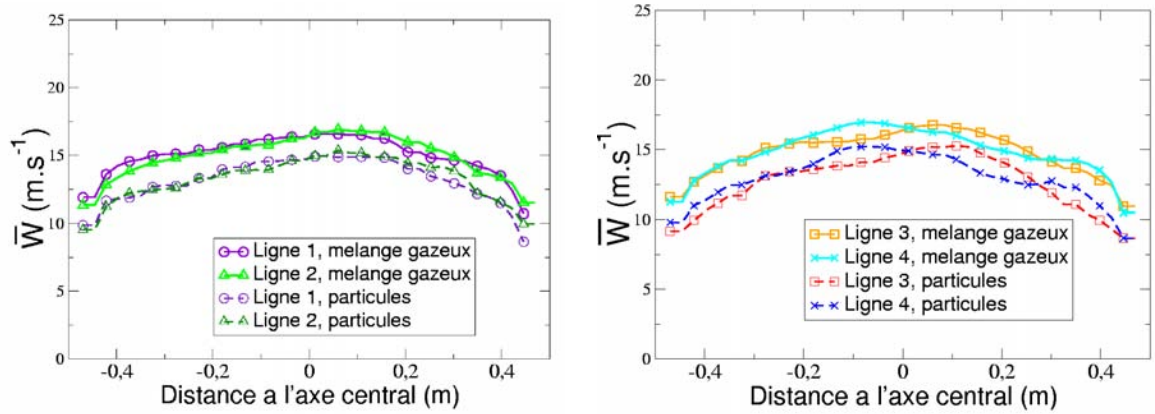


(b) 10 m au-dessus des injections

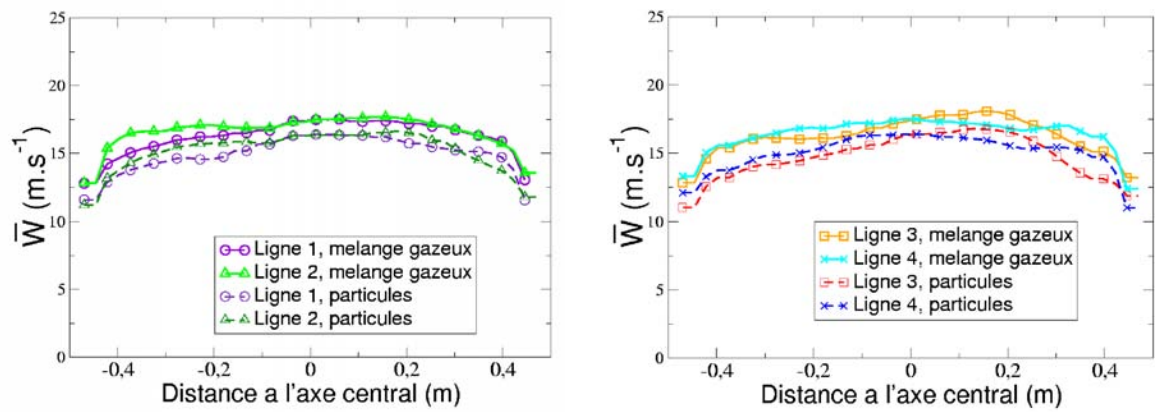


(c) 20 m au-dessus des injections

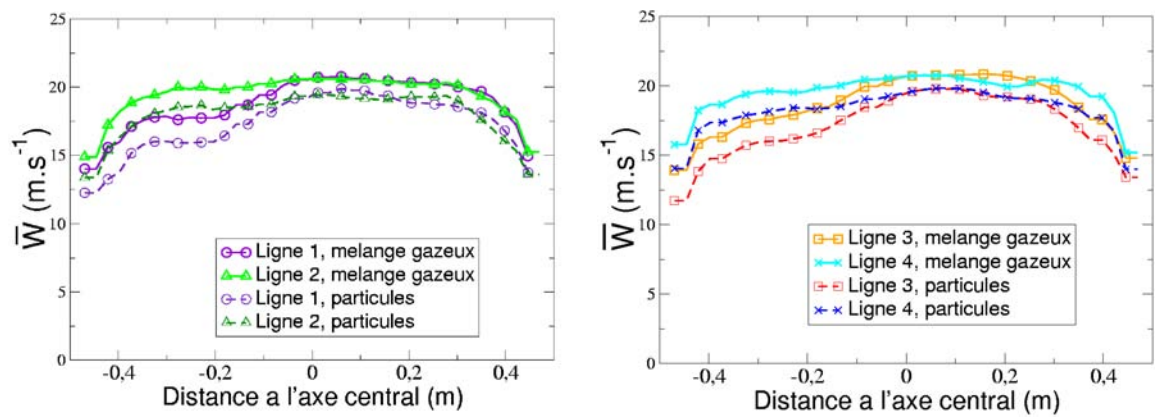
FIGURE 8.13 – Profils radiaux de fraction volumique moyenne de particules.



(a) 5 m au-dessus des injections

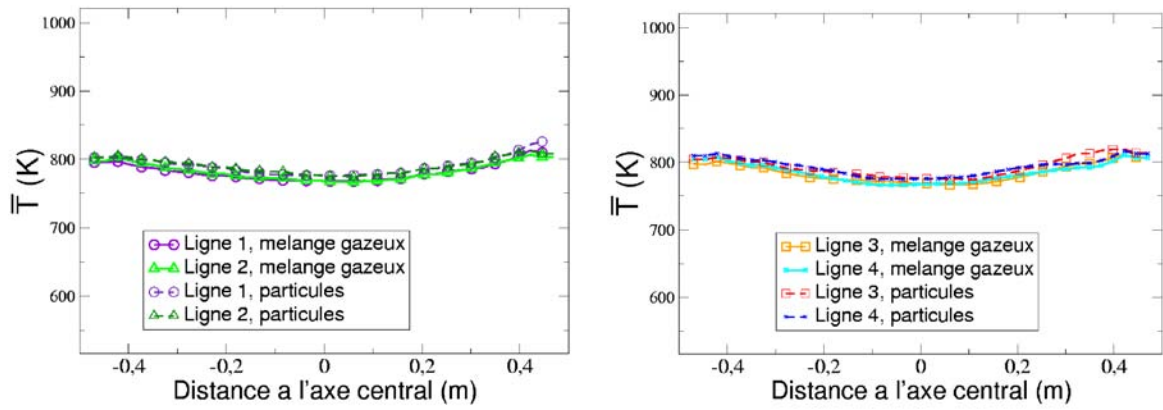


(b) 10 m au-dessus des injections

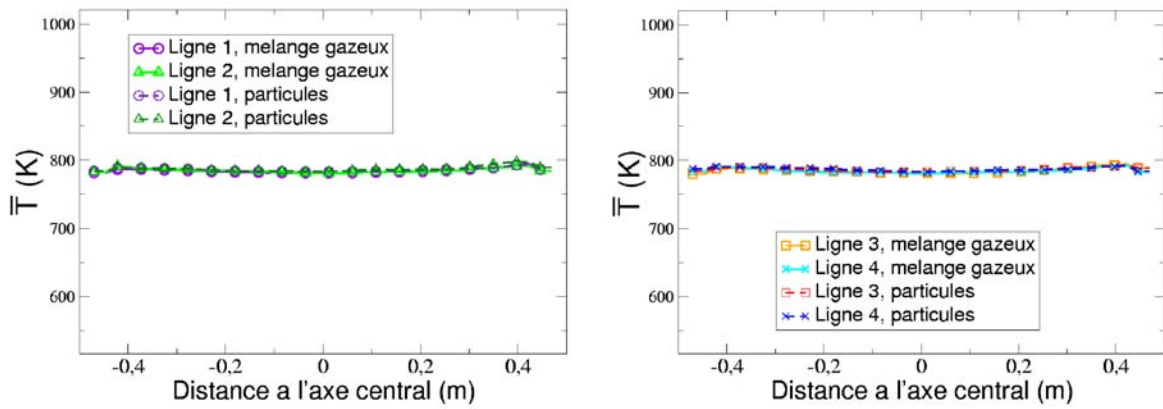


(c) 20 m au-dessus des injections

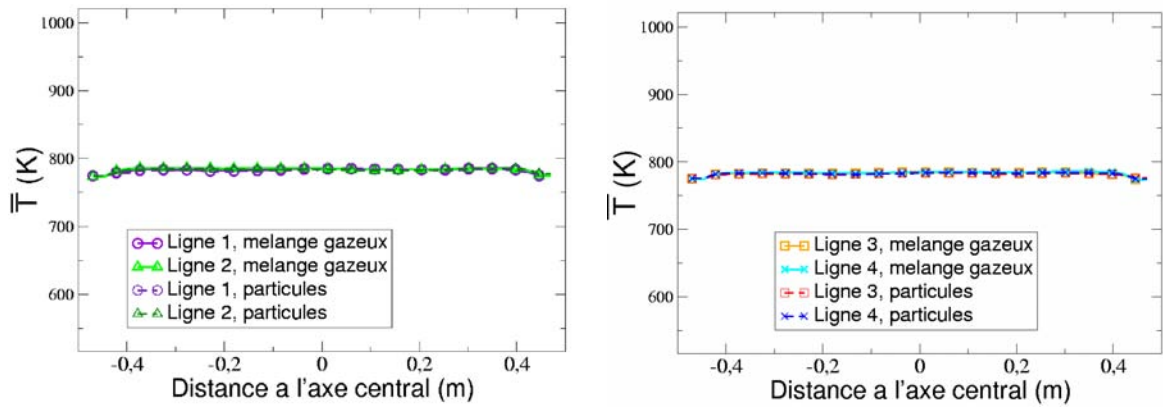
FIGURE 8.14 – Profils radiaux des vitesses verticales moyennes du mélange gazeux et des particules.



(a) 5 m au-dessus des injections



(b) 10 m au-dessus des injections



(c) 20 m au-dessus des injections

FIGURE 8.15 – Profils radiaux des températures moyennes du mélange gazeux et des particules.

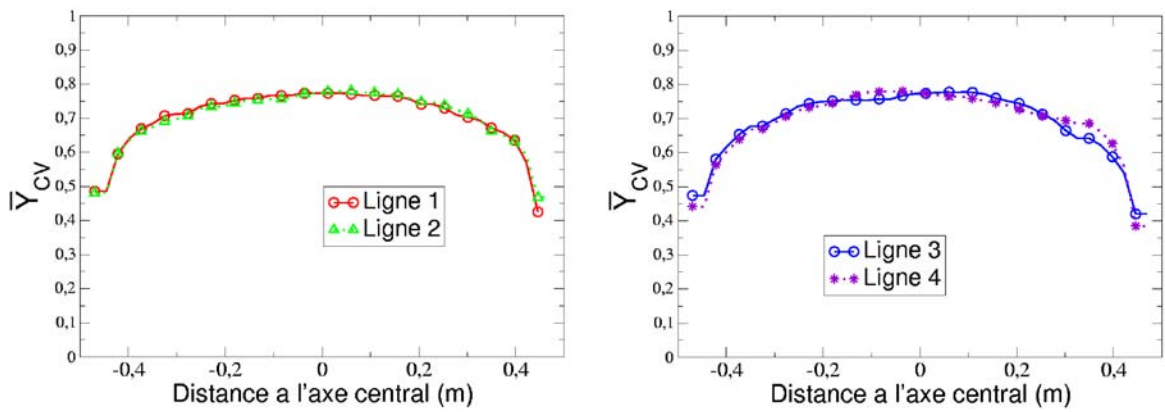
Les endroits où se passe la réaction sont des informations clés pour l'optimisation industrielle. Ainsi, l'analyse de la répartition radiale des espèces intervenant dans la réaction est importante. Nous nous sommes principalement intéressés à la charge vaporisée (hydrocarbures sous forme gazeuse) et au coke, produit solide de la réaction.

Les figures 8.16(a), (b) et (c) présentent les répartitions radiales de la fraction massique de charge vaporisée sur les lignes 1, 2, 3 et 4 à 5, 10 et 20 *m* au-dessus des injecteurs de charges. Les profils observés sont paraboliques avec un maximum au centre du réacteur. L'écart entre le maximum de fraction massique de charge (au centre) et son minimum (près des parois) est assez important puisqu'il est de l'ordre de 40 à 50% suivant la hauteur dans le réacteur. Globalement, ils sont relativement plats au centre avec des pentes assez abruptes en proche paroi. Ces profils sont donc en accord avec la forte présence en particules près des parois, puisque ce sont effectivement les particules de catalyseur qui déclenchent la réaction. Ils concordent aussi avec le temps de séjour (du gaz et des particules) près des parois où les vitesses d'ascension sont plus faibles ; cependant cette deuxième explication nous semble moins pertinente pour expliquer les profils de charge vaporisée puisque globalement, les profils de vitesses sont assez peu bombés. Les profils paraboliques ont tendance à s'aplatir avec l'ascension dans le réacteur, ce qui est cohérent avec l'évolution des répartitions radiales des particules de catalyseur.

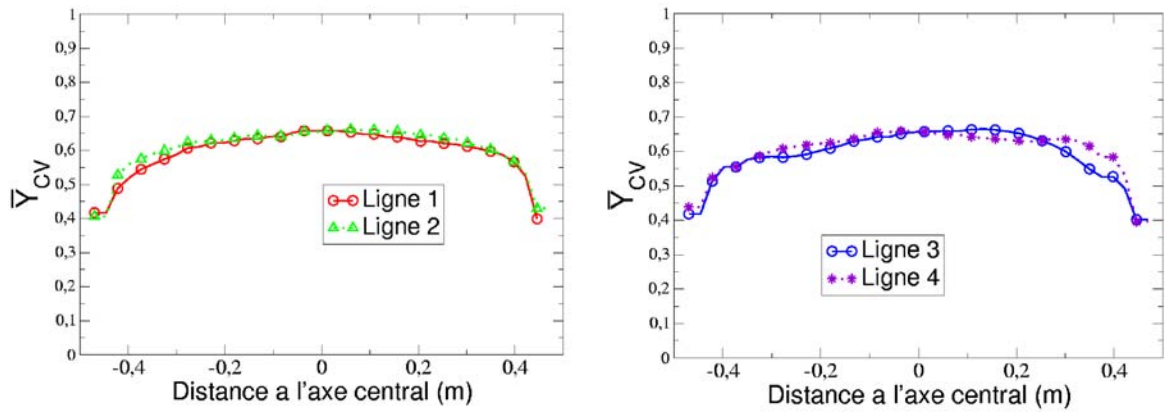
Les figures 8.17(a), (b) et (c) présentent les profils radiaux de fraction massique de coke (pourcentage de coke s'étant déposé sur le catalyseur) à différentes hauteurs dans le réacteur. Globalement les profils sont plats, et les valeurs obtenues peu différentes. Le modèle de cinétique chimique utilisé introduit un taux de coke maximal sur le catalyseur, ce taux est assez rapidement atteint et évolue peu par la suite. Ce qui explique les profils plats, même si le catalyseur n'est pas équitablement réparti sur la section.

Les figures 8.18 présentent les profils radiaux de masse volumique moyenne du mélange gazeux à différentes hauteurs dans le réacteur. Les profils obtenus sont paraboliques avec un maximum de masse volumique au centre du réacteur. Ce qui signifie, en accord avec les figures 8.16, que la réaction de craquage est plus intense près des parois du réacteur.

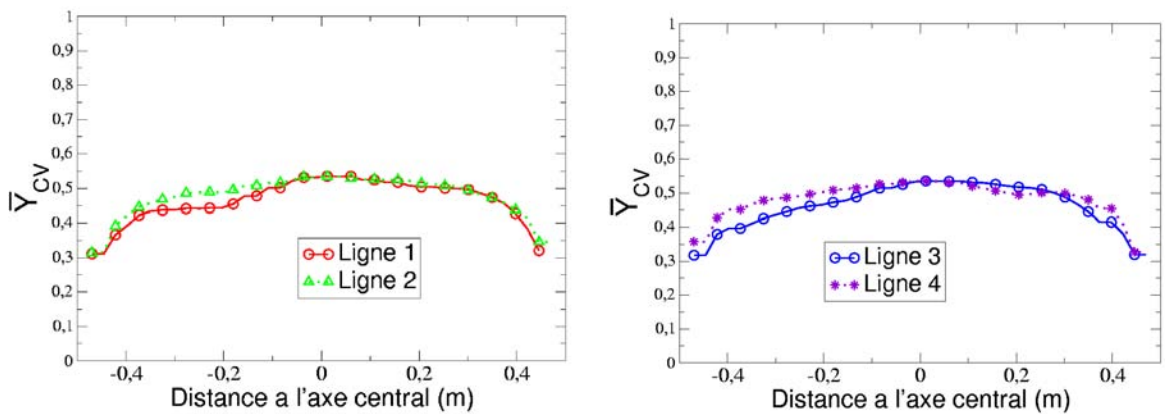
Cependant, ces profils paraboliques ont tendance à s'aplatir avec l'ascension dans le réacteur : à 5 *m* au-dessus des injections, l'écart relatif entre le centre et les parois est d'environ 45%, à 20 *m* au-dessus des injections, cet écart n'est plus que de 25%. Cela signifie que la réaction s'homogénéise radialement avec l'ascension dans le réacteur, ce qui est cohérent avec l'aplatissement des profils de fractions volumique de particule.



(a) 5 m au-dessus des injections

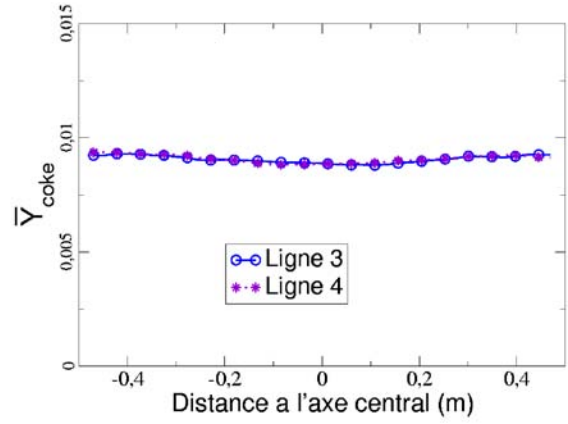
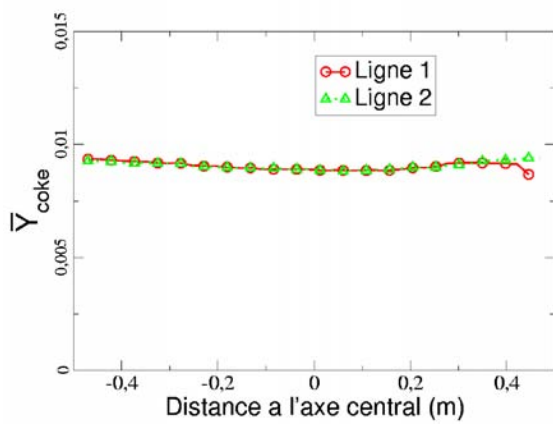


(b) 10 m au-dessus des injections

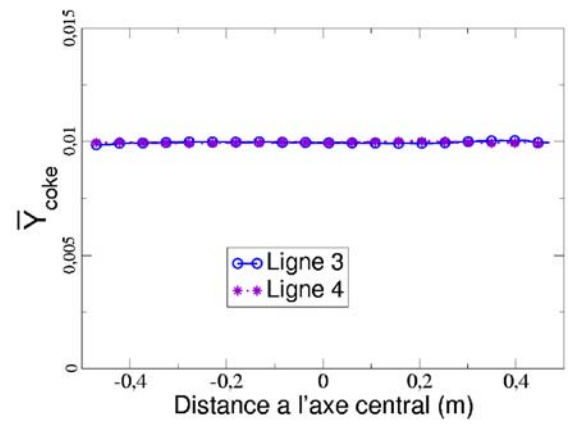
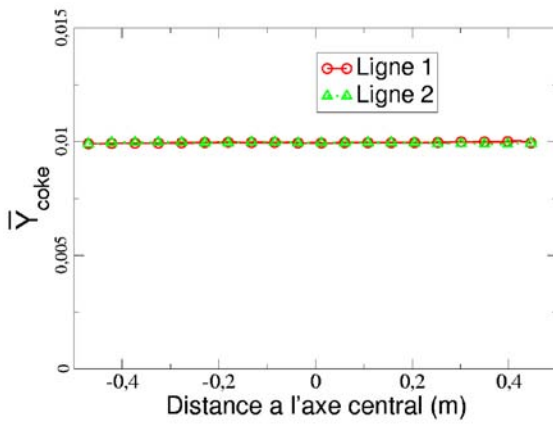


(c) 20 m au-dessus des injections

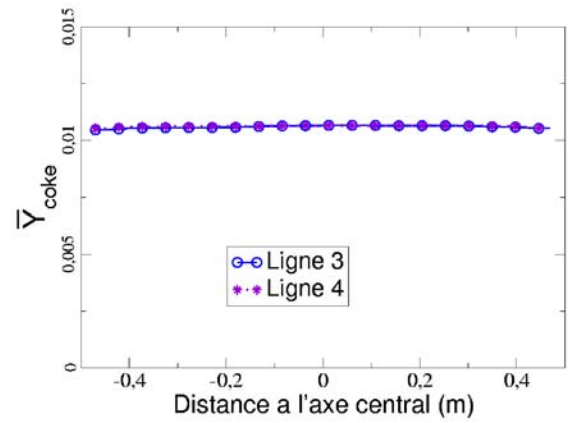
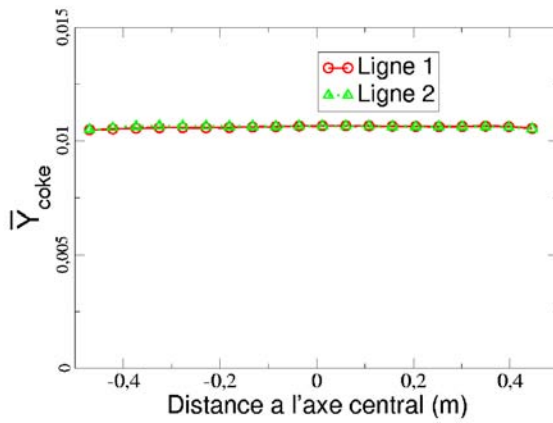
FIGURE 8.16 – Profils radiaux de la fraction massique des hydrocarbures gazeux (charge vaporisée).



(a) 5 m au-dessus des injections

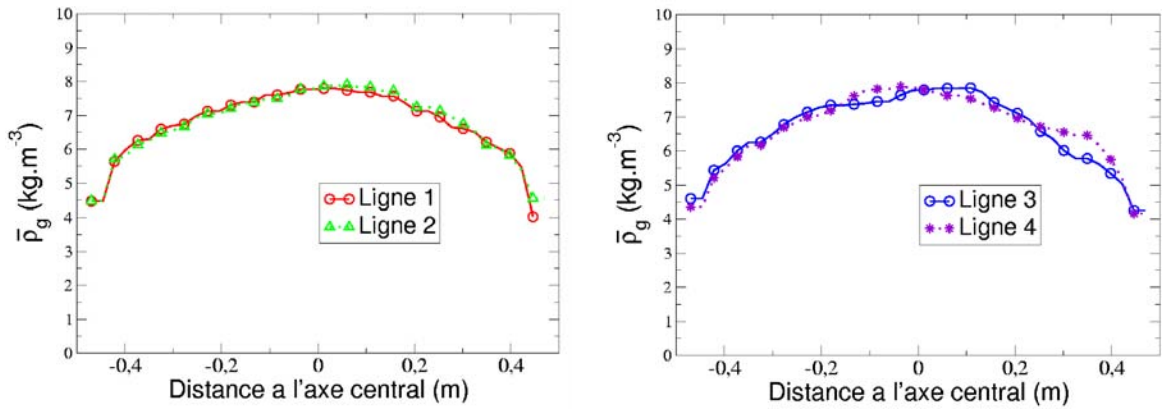


(b) 10 m au-dessus des injections

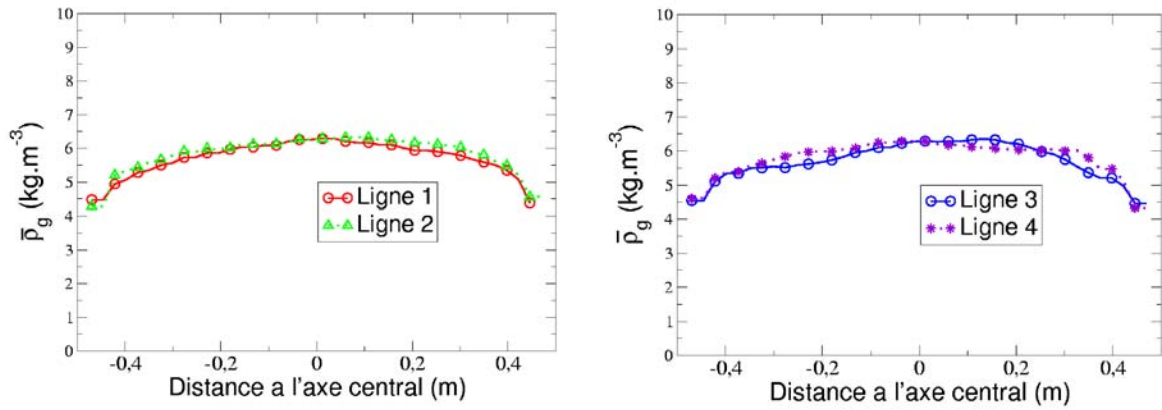


(c) 20 m au-dessus des injections

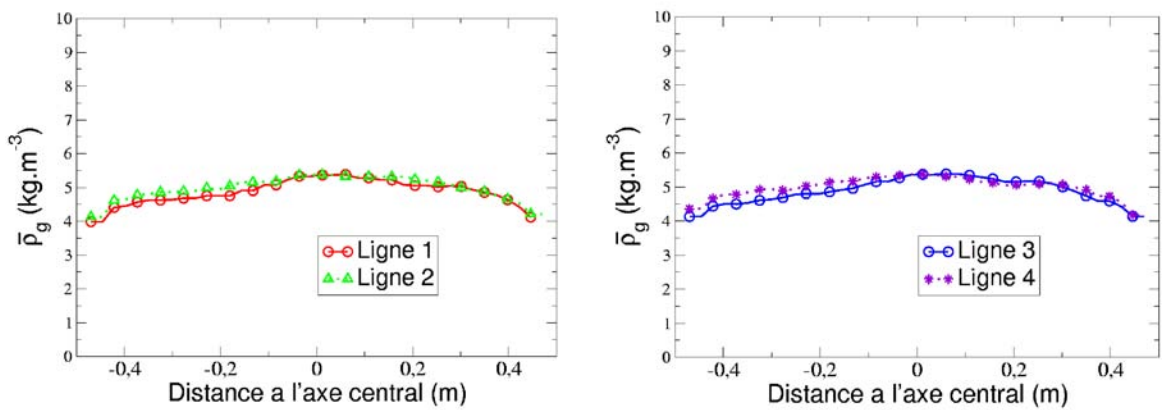
FIGURE 8.17 – Profils radiaux de la fraction massique de coke (pourcentage de coke déposé sur les particules de catalyseur).



(a) 5 m au-dessus des injections



(b) 10 m au-dessus des injections



(c) 20 m au-dessus des injections

FIGURE 8.18 – Profils radiaux de la masse volumique du mélange gazeux moyennée en temps.

En conclusion, la simulation triphasique réactive a permis de décrire l'écoulement à l'intérieur du réacteur. Comme nous l'avons déjà noté au cours de l'étude de l'écoulement réactif, aucune dissymétrie liée à la géométrie du réacteur n'est remarquable. Cependant, la totalité de l'écoulement est influencée par la zone d'injection de charge, zone sur laquelle il convient de s'attarder.

8.3 Zoom sur la zone d'injection

8.3.1 Influence de la réaction sur le comportement moyenné en temps des jets

L'analyse des résultats présentés précédemment, et en particulier l'analyse verticale, a montré, comme l'avaient noté Mauléon & Courcelle (1985), que la zone d'injection de charge était le lieu de mécanismes prépondérants pour le rendement du réacteur. C'est pourquoi une description de cette zone nous semble nécessaire.

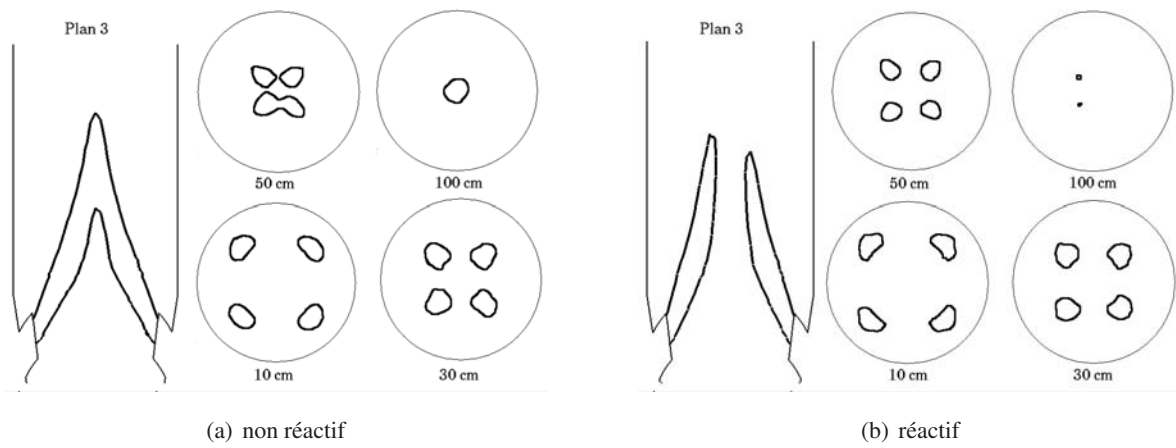


FIGURE 8.19 – Profil des jets : isocontour où la valeur du flux de masse de liquide, $\alpha_l \rho_l U_l$, est égale à 10 % de sa valeur en injection : comparaison des cas réactif et non réactif.

Comme nous l'avons déjà noté, la prise en compte de la réaction de craquage catalytique a pour conséquence (par rapport à l'écoulement non réactif) de diminuer la quantité totale de liquide dans le réacteur et de ce fait, de diminuer la hauteur de pénétration des jets dans l'installation. Mais une deuxième conséquence de l'introduction de la réaction de craquage est le changement de morphologie des jets qu'elle induit. Ainsi, la figure 8.19 présente les profils des jets dans le plan 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injecteurs de charge, dans les cas non réactif et réactif. Pour définir les contours des jets, nous avons choisi arbitrairement de tracer l'isocontour où le débit massique de liquide est égal à 10 % de sa valeur en injection. Les profils obtenus sont révélateurs de l'influence de la réaction de craquage catalytique sur le comportement de la zone d'injection. En effet, dans le cas réactif, les jets sont légèrement plus courts, d'environ 25 cm. De plus, et au contraire du cas non réactif, ils ne se rejoignent pas pour former un jet central principal : en effet, ils sont un peu plus déviés vers le haut du fait de l'accélération induite par la réaction de craquage. En effet, dans le cas non réactif, on estime que les jets ont une inclinaison de 66° par rapport à l'horizontale, ils sont donc déviés de 6° par rapport à leur inclinaison initiale. Dans le cas réactif, cette déviation est estimée à 11° . Enfin, nous remarquons une légère dissymétrie induite par la géométrie du réacteur (coude de la

rampe d'entrée du lit) puisque le jet gauche, qui se trouve du côté du coude moins chargé en particules du fait de l'effet centrifuge, pénètre environ 10 cm plus haut que celui qui lui fait face (ce résultat est retrouvé dans l'autre plan verticaux contenant les injections, plan 4). Les coupes horizontales nous permettent de voir que les jets s'écartent plus du centre dans le cas réactif. Nous ne notons cependant pas de changement conséquent dans la morphologie des jets dans les coupes horizontales.

8.3.2 Comportement moyenné en temps

La figure 8.20 présente la fraction volumique de gouttes de charge dans les plan 1 et 3 verticaux et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections. Une dissymétrie légère est observée puisque les deux jets du côté du coude pénètrent légèrement plus que les deux autres jets.

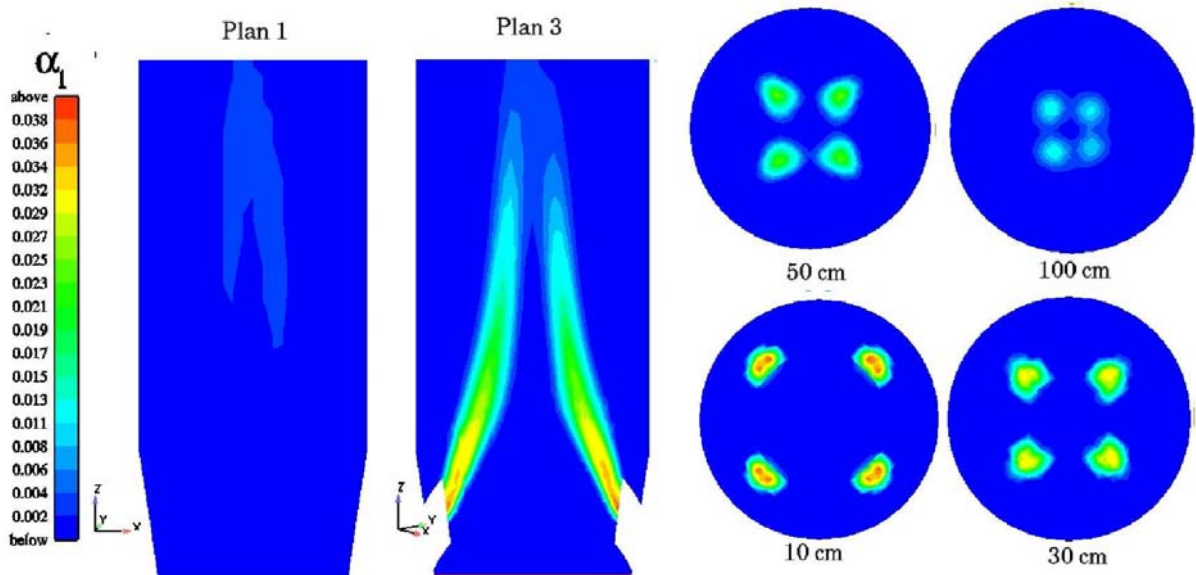


FIGURE 8.20 – Fraction volumique moyenne de gouttes d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

La figure 8.21 présente les champs de fraction volumique de particules de catalyseur dans différents plans de coupe. On retrouve la répartition déjà décrite dans le cas non réactif avec une forte densité en particule en amont des jets d'injections de charge et une forte dilution du lit en aval.

Sur la coupe plan 1, on remarque la dissymétrie, très localisée à la zone d'injection. En effet, la forte présence en particules (au-dessus de 0,19) remonte un peu plus du côté du coude (à gauche) alors que le taux de présence à la paroi est plus important de l'autre côté.

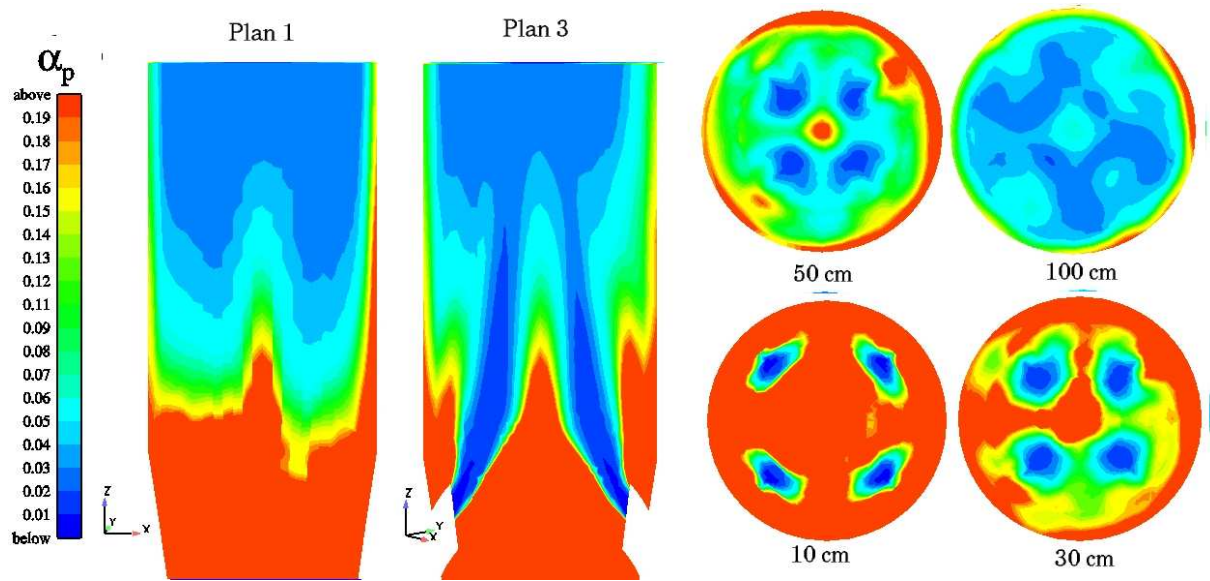


FIGURE 8.21 – Fraction volumique moyenne de particules dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

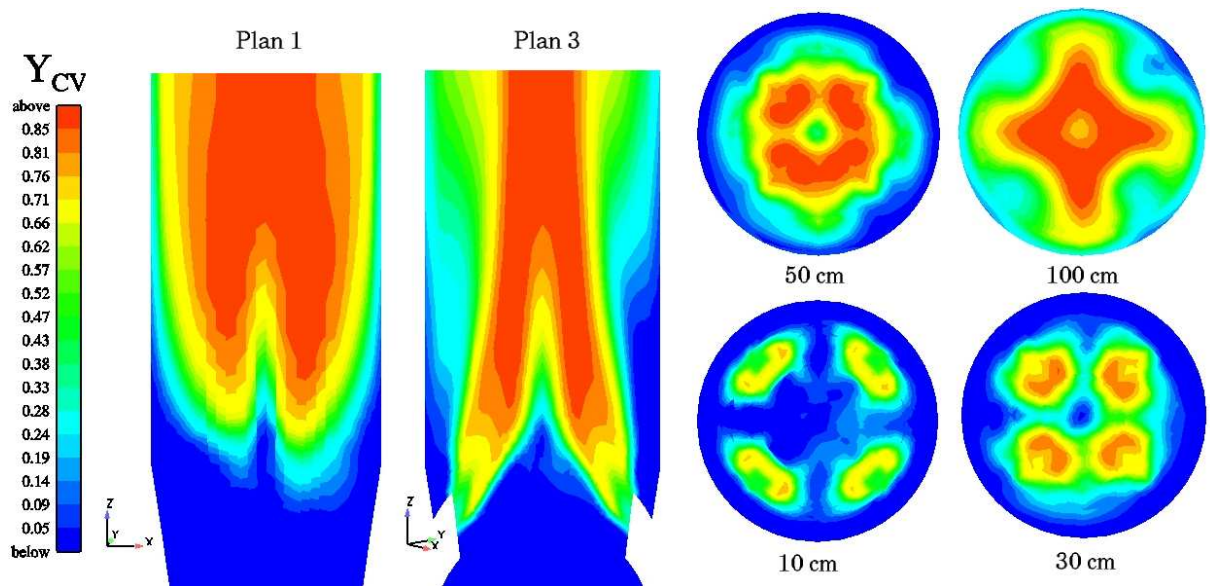


FIGURE 8.22 – Fraction massique moyenne de vapeur d'hydrocarbures dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

La figure 8.22 présente les champs de fraction massique de la charge vaporisée sur les plans de coupe verticaux 1 et 3 ainsi que sur quatre plans de coupe horizontaux. On retrouve sur le plan 1, la dissymétrie induite par la dissymétrie de la répartition des particules de catalyseur. La charge vaporis-

sée est moins présente aux endroits où il y a plus de catalyseur, puisque ce sont les zones où la réaction est la plus intense : en dessous, au centre des jets et près des parois, la fraction massique de charge vaporisée est quasiment nulle. En effet, cette région étant particulièrement chargée en particules de catalyseur, la réaction y est particulièrement intense.

Les figures 8.23, 8.24, 8.25, 8.26 et 8.27 présentent respectivement les fractions massiques des produits gazeux de la réaction LCO, essence, LPG, FG et coke dans les plans de coupe d'étude choisis. Le résultat notable est que les produits légers (LPG et FG) sont très présents dans les régions proches des jets et notamment au-dessous des jets, alors que les produits plus lourds (LCO et essence) sont plus présents dans une zone juste au-dessus. Ceci provient du schéma de cinétique, en effet, les produits légers sont en bout de chaîne de la réaction (le LPG se transforme en FG et les FG ne craquent pas en une autre espèce). Dans cette zone très concentrée en catalyseur, la réaction atteint donc son terme : toute la charge est craquée en produits légers.

Ce qui peut paraître paradoxal, c'est que le coke n'est pas saturé dans la zone en aval des jets, sa production se fait au dessus des jets. En effet, l'écriture même du modèle cinétique dans le modèle polyphasique fait que la présence en catalyseur n'intervient pas dans la production de coke. C'est majoritairement la présence d'hydrocarbures qui le crée. Ainsi, la zone en dessous des jets, même si elle est très dense en particules, n'est pas très chargée en coke. Dans cette zone, le catalyseur est actif, c'est pourquoi la réaction est plus intense.

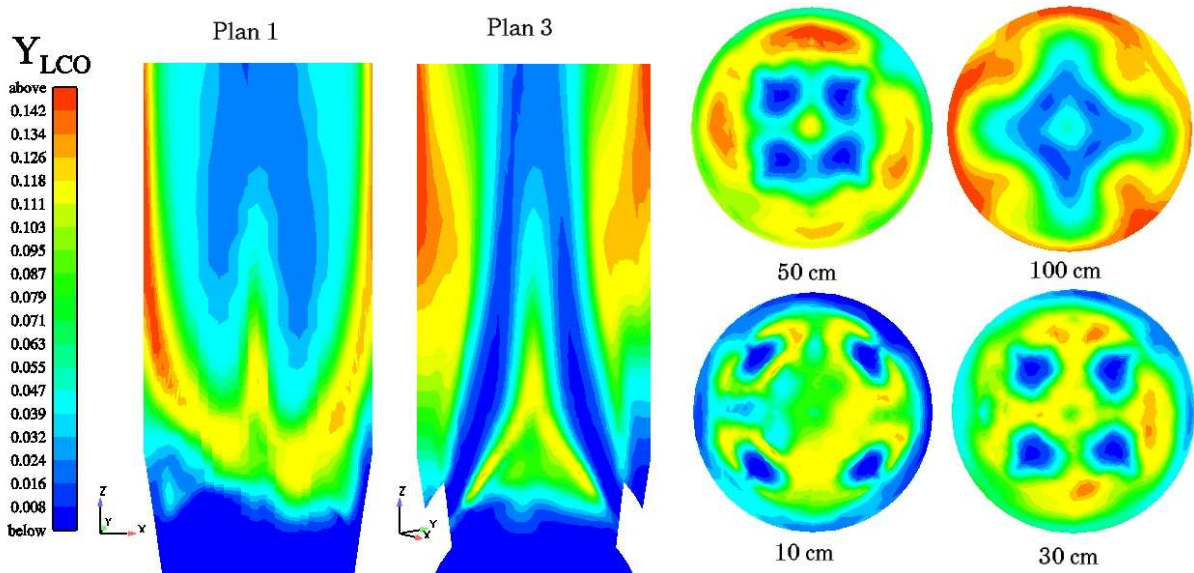


FIGURE 8.23 – Fraction massique moyenne de LCO dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

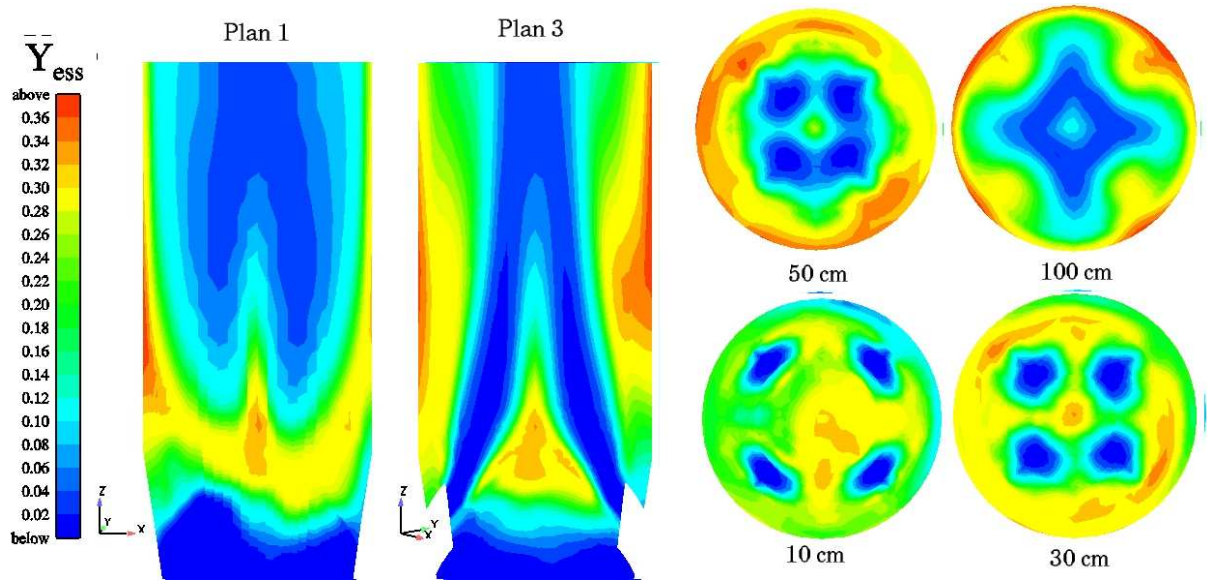


FIGURE 8.24 – Fraction massique moyenne d'essence dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

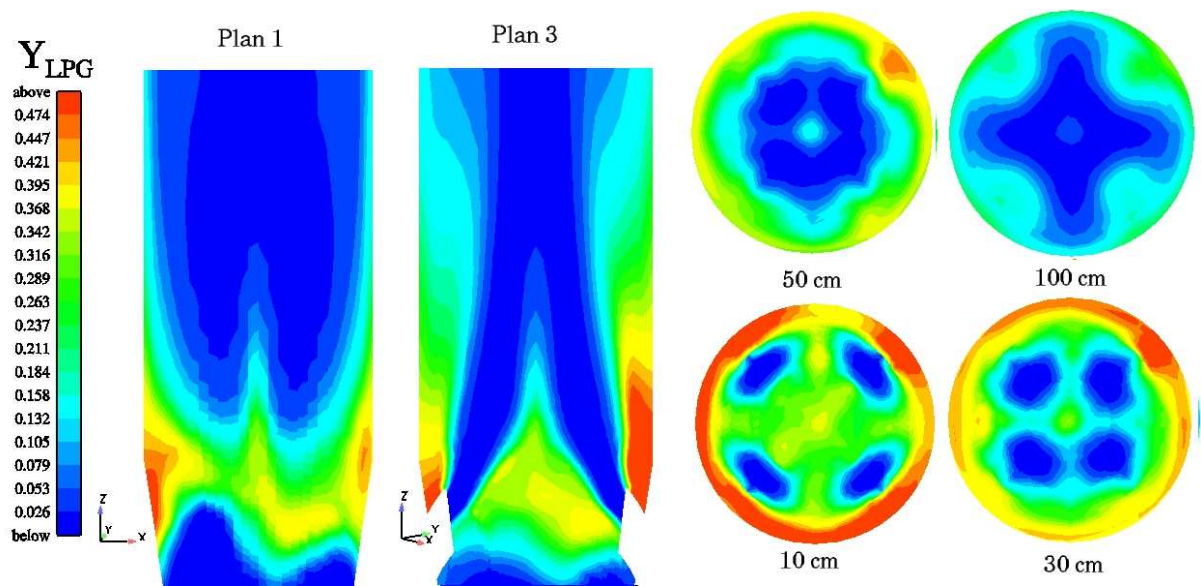


FIGURE 8.25 – Fraction massique moyenne de LPG dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

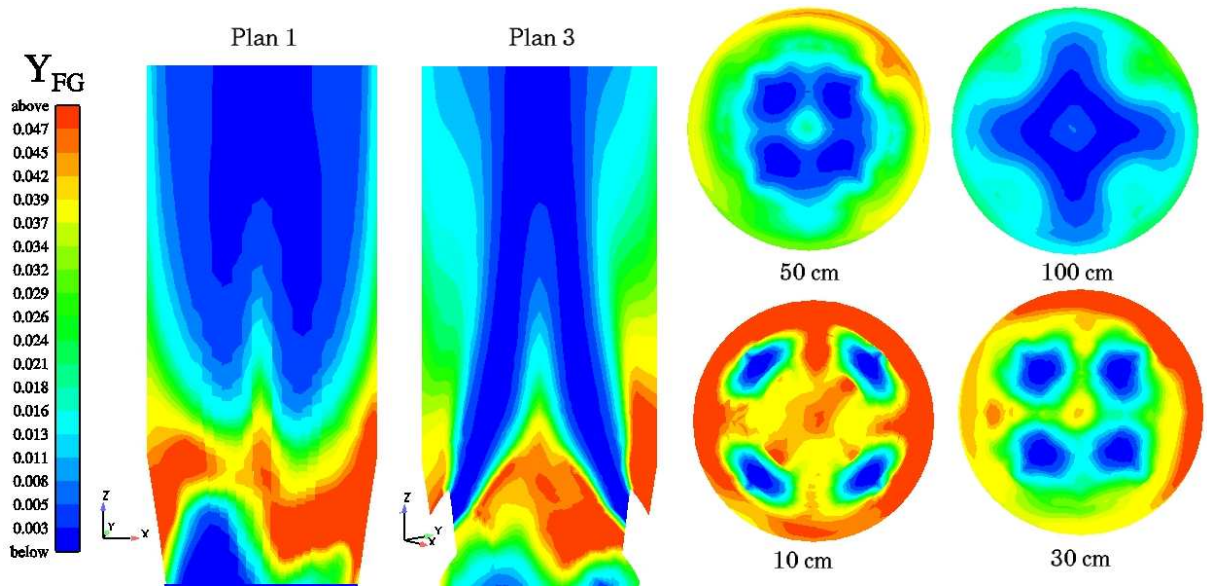


FIGURE 8.26 – Fraction massique moyenne de FG dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

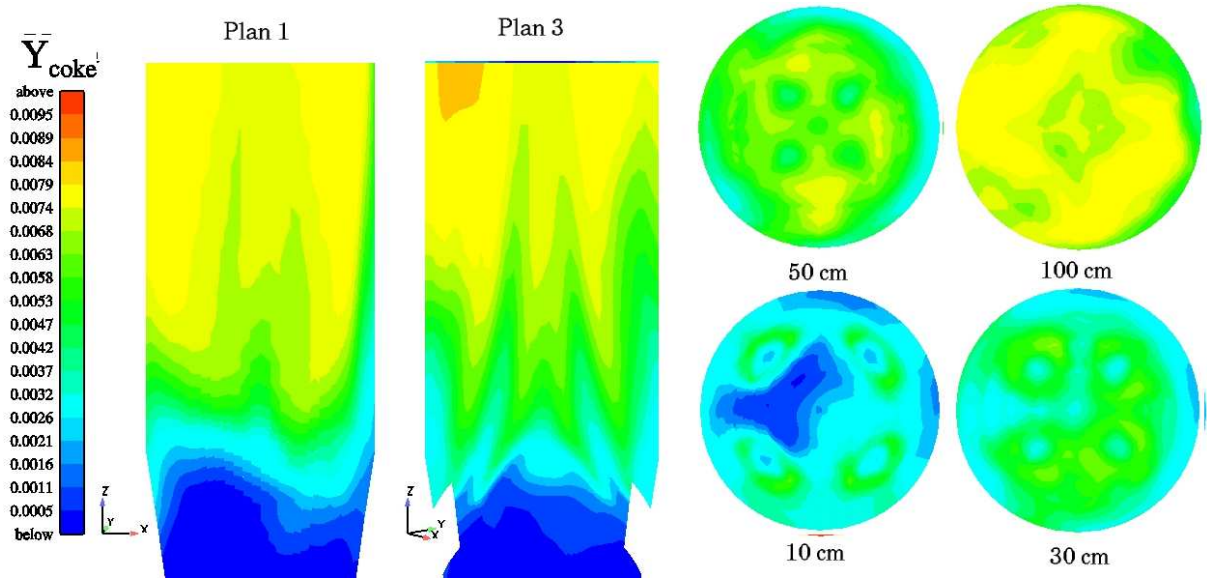


FIGURE 8.27 – Fraction massique moyenne de coke dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

La figure 8.28 présente les champs de module de la vitesse du mélange gazeux dans les plans de visualisation déjà utilisés. Elle est complétée par la figure 8.29 qui présentent les champs de vecteurs de la vitesse moyenne du mélange gazeux. Ces champs montrent que l'écoulement est globalement ascendant, le maximum de vitesse le long du jet ayant tendance à se rapprocher du centre. La répartition en « croix » du module de la vitesse du gaz à 1 m au-dessus des injections s'explique par la conservation du débit dans un plan de coupe horizontal. En effet, les jets ont tendance à se rejoindre, l'écoulement sort alors entre les jets pour adopter cette structure (cf. Fig. 8.29 à 100 cm au-dessus des injections).

La dissymétrie dans les centimètres au-dessus des injections, observée sur les champs précédents, n'est que très peu visible sur les champs de vitesse.

Les figures 8.30 et 8.31 présentent respectivement les champs du module et des vecteurs de la vitesse moyenne des particules de catalyseur. Les figures 8.32 et 8.33 présentent ceux de la vitesse moyenne des gouttes de charge. Les vitesses maximales sont rencontrées dans les zones proches des injections. Globalement, les phases dispersées ont des vitesses très semblables à celles du mélange gazeux.

On remarque cependant qu'il se crée une zone inertielle, au-dessous des jets et autour des injecteurs, qui est à l'origine de la stagnation des produits légers dans cette zone.

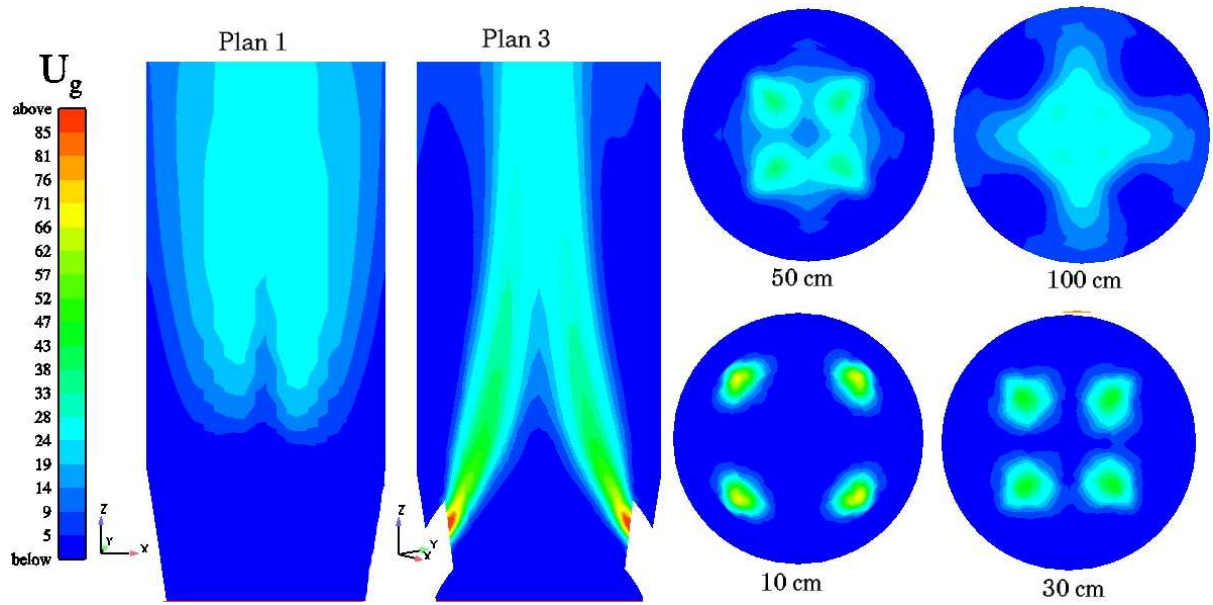


FIGURE 8.28 – Module de la vitesse moyenne du mélange gazeux dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

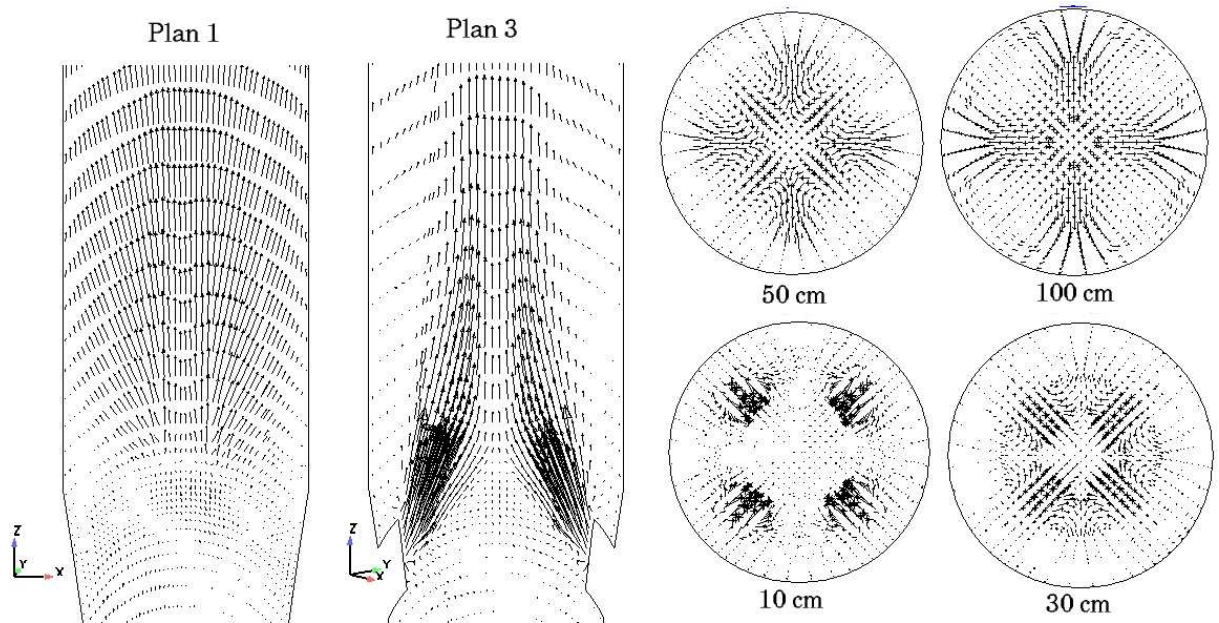


FIGURE 8.29 – Champs de vecteur de la vitesse moyenne du mélange gazeux dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

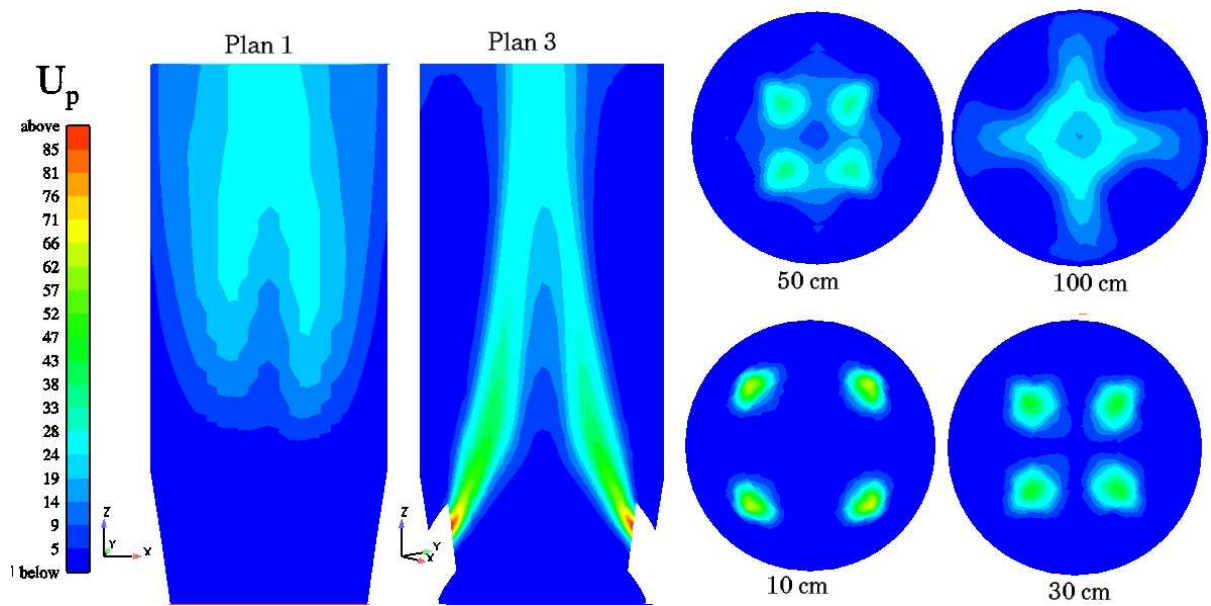


FIGURE 8.30 – *Module de la vitesse moyenne des particules dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.*

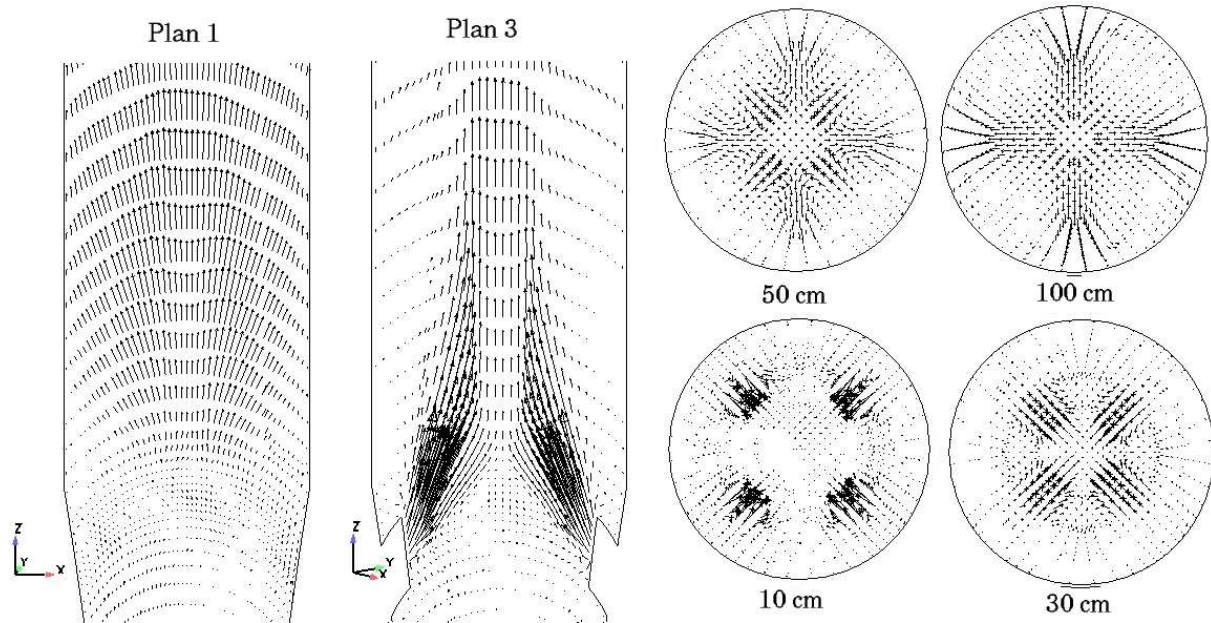


FIGURE 8.31 – *Champs de vecteur de la vitesse moyenne des particules dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.*

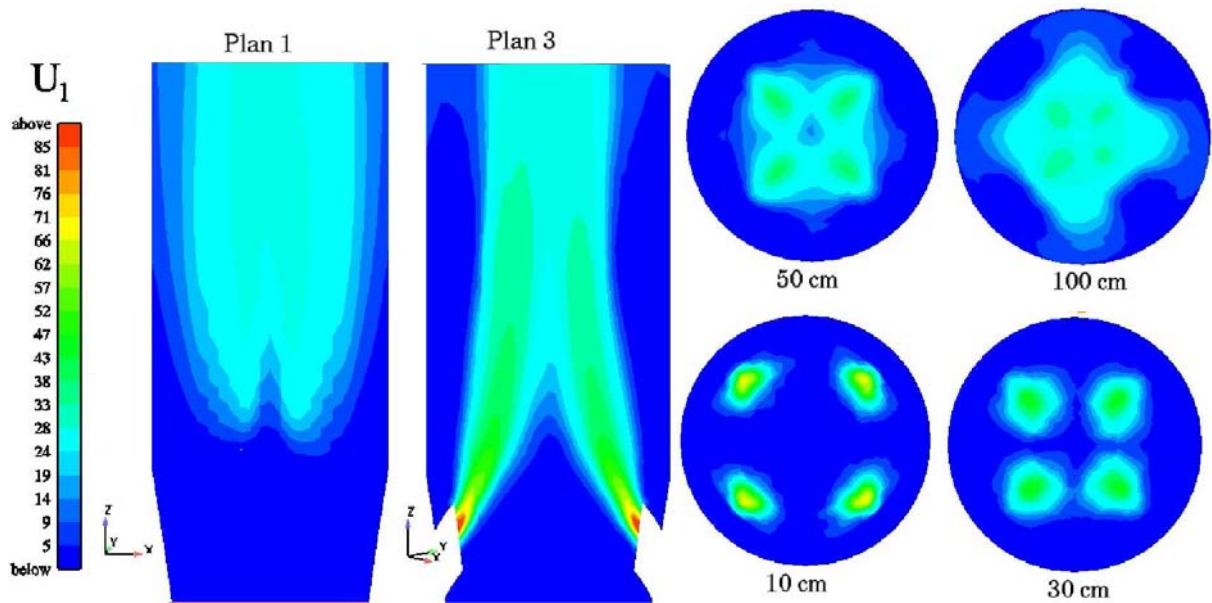


FIGURE 8.32 – *Module de la vitesse moyenne du liquide dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.*

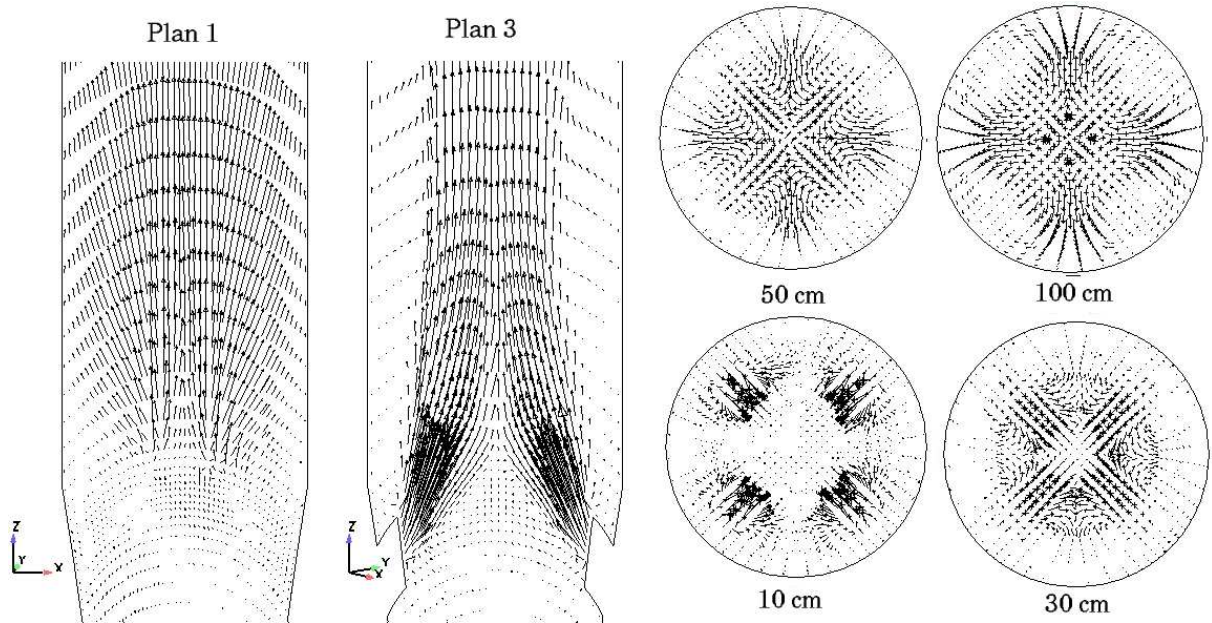


FIGURE 8.33 – *Champs de vecteur de la vitesse moyenne du mélange gazeux dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.*

Les figures 8.34, 8.35 et 8.36 présentent respectivement les champs de température moyenne du gaz dans les plans de coupe verticaux 1 et 3 et dans quatre plans horizontaux. Ces figures montrent que loin des injections, les températures du gaz et des particules sont très similaires. Une dissymétrie est visible dans les 50 premiers centimètres au-dessus de l'injection, puisque l'écoulement est légèrement plus chaud du côté opposé au coude. Comme nous l'avons vu précédemment, la réaction est plus intense de ce côté, l'écoulement en est donc moins refroidi.

Les gouttes sont chauffées rapidement. La zone froide est moins étendue que dans le cas non réactif du fait de l'évaporation plus rapide.

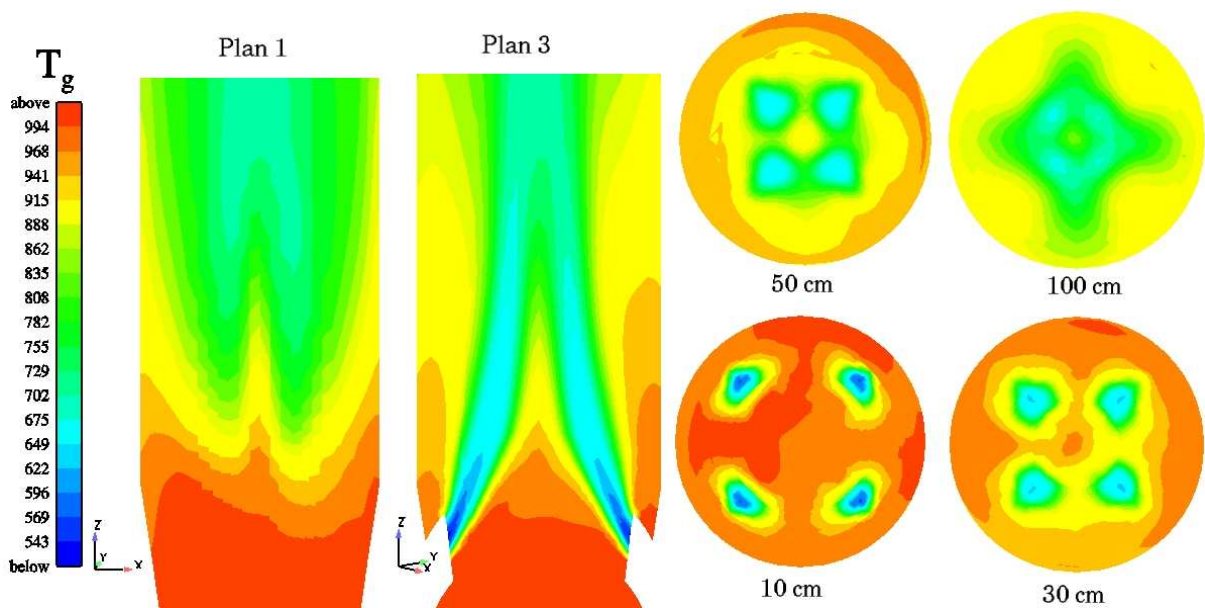


FIGURE 8.34 – Champs de température moyenne du mélange gazeux dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

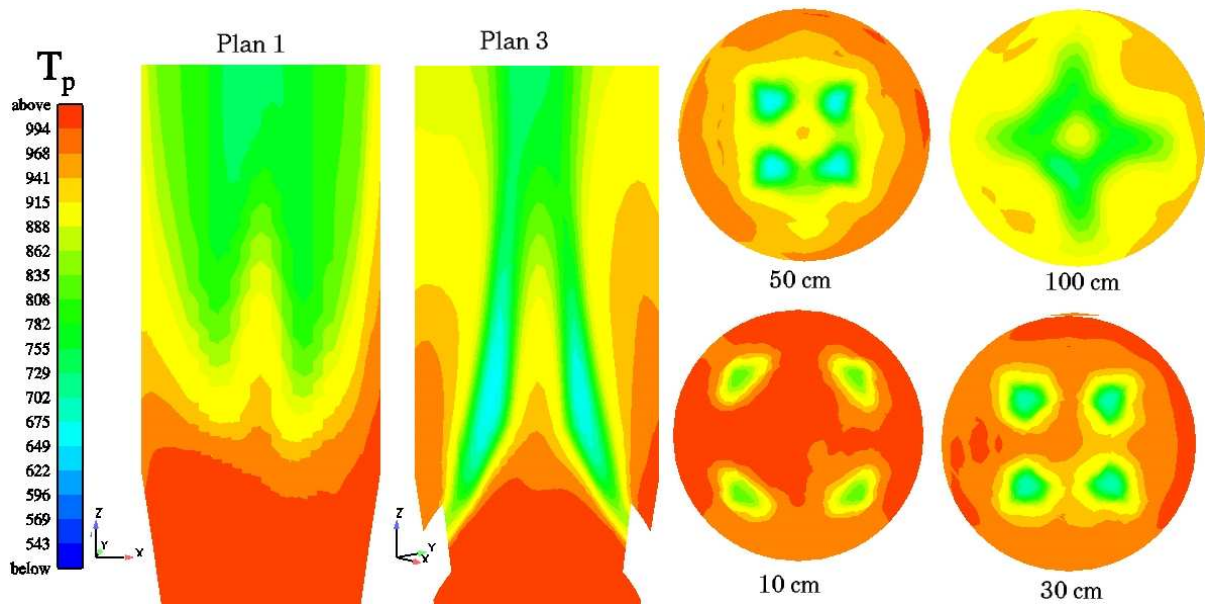


FIGURE 8.35 – Champs de température moyenne des particules de catalyseur dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

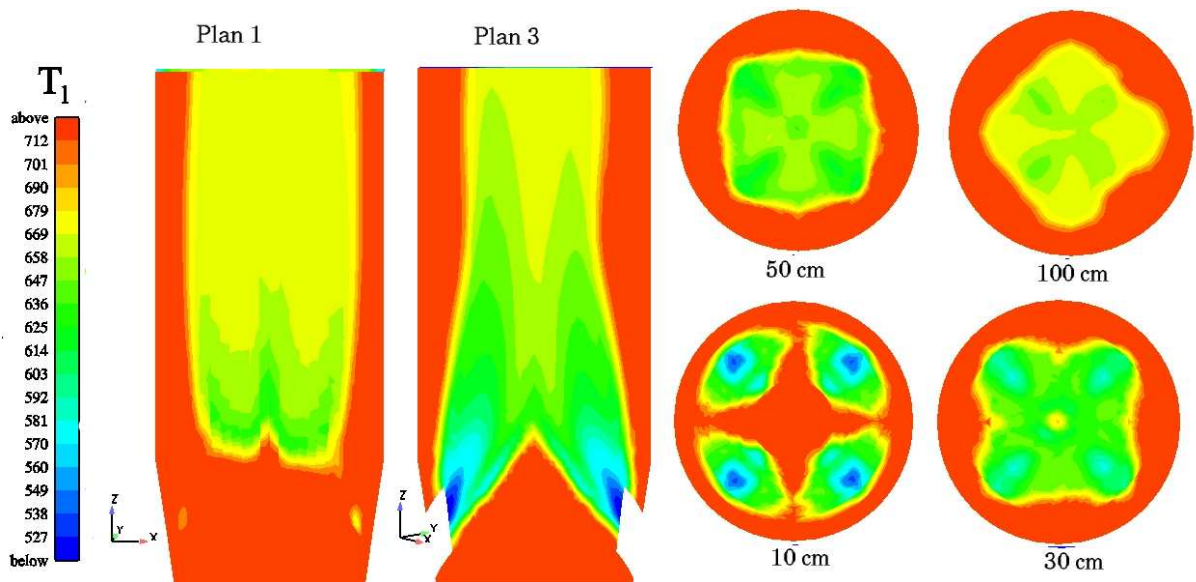


FIGURE 8.36 – Champs de vecteur de température moyenne des gouttes de charge dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

La figure 8.37 présente la masse volumique moyenne du mélange gazeux dans différents plans de coupe du réacteur. Ces champs répondent parfaitement aux champs de fraction massique de charge vaporisée car la masse volumique du mélange est élevée aux endroits où les hydrocarbures ne sont pas encore craqués et aux zones froides du fait des injections.

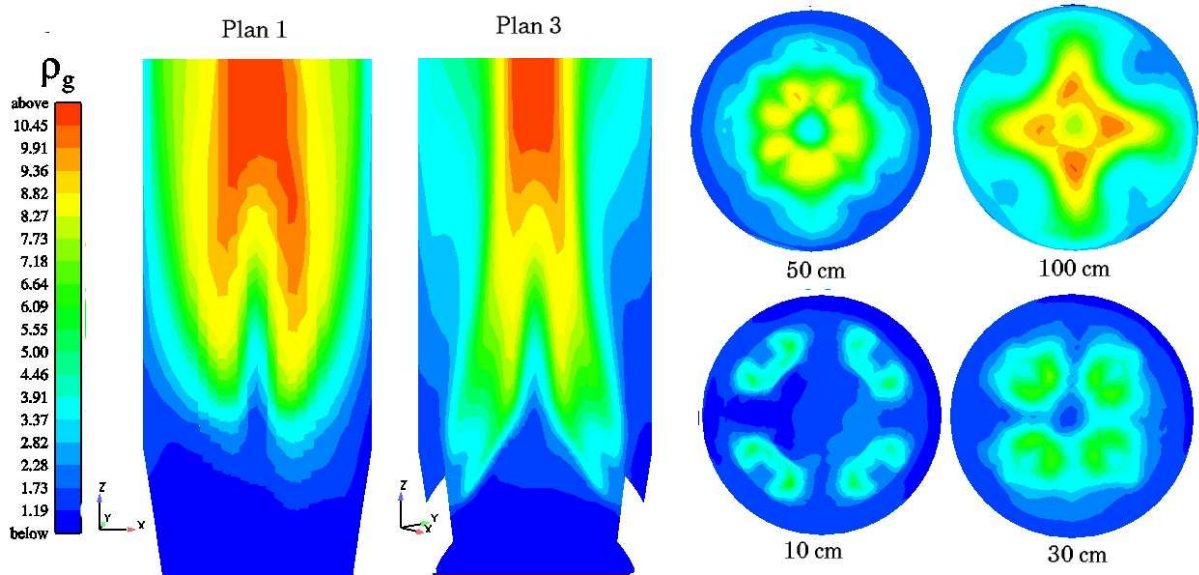


FIGURE 8.37 – Champs de vecteur de température moyenne des gouttes de charge dans les plans verticaux 1 et 3 et dans les plans horizontaux à 10, 30, 50 et 100 cm au-dessus des injections.

8.4 Comparaison des résultats de simulation avec les mesures sur l'installation industrielle

8.4.1 Rendement du réacteur

Les débits des espèces en sortie de réacteur sont donnés sur la figure 8.38 en fonction du temps de simulation. Les valeurs obtenues oscillent fortement quelque soit l'espèce considérée ; cependant cette figure nous permet de déduire un rendement moyen. Ce rendement moyen est comparé au rendement de l'installation industrielle au tableau 8.1 et schématiquement à la figure 8.39.

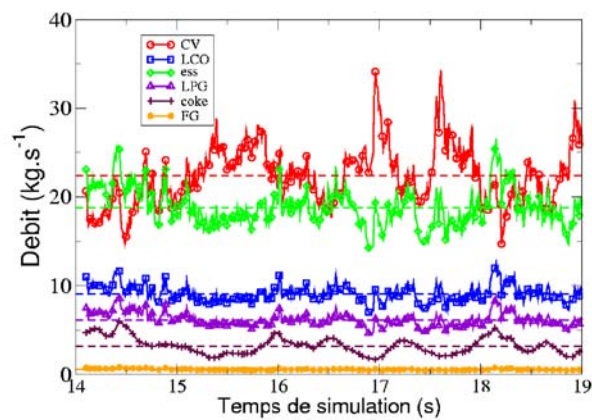


FIGURE 8.38 – Débits des espèces en sortie de réacteur en fonction du temps de simulation.

On remarque tout d'abord que la simulation sous-estime la conversion, ce qui peut s'expliquer par un ratio masse de catalyseur sur masse de charge légèrement inférieur dans la simulation comparé à l'installation industrielle. Cependant, le rendement en coke concorde parfaitement avec la mesure. La prédiction des rendements en LCO et en LPG est elle aussi raisonnable. Le rendement en essence est sous-estimé cependant et le rendement en gaz légers est très sous-estimé.

Finalement les principales différences entre mesures et simulation sont un craquage inférieur dans la simulation et un non respect des proportions des produits de craquage. Ces écarts peuvent être expliqués par trois causes principales :

- la différence de débit entre l'installation industrielle et la simulation,
- le modèle cinétique utilisé qui a été développé pour une charge différente de celle utilisée lors des mesures sur l'installation,
- le fait que le rendement du réacteur soit mesuré après la colonne de fractionnement dans le cas des mesures sur installation industrielle et en sortie de réacteur dans le cas de la simulation.

Espèces	Rendement GP ($kg.s^{-1}$)	Simulation ($kg.s^{-1}$)	% GP	% simulation
CV	7,78	22,07	14,07	37,03
LCO	8,45	9,08	15,28	15,23
ess	25,45	18,77	46,01	31,49
LPG	7,97	6,10	14,41	10,23
FG	2,87	0,54	5,19	0,92
coke	2,79	3,04	5,04	5,10

TABLE 8.1 – Rendement en sortie de réacteur, mesures sur installation vs résultats de la simulation.

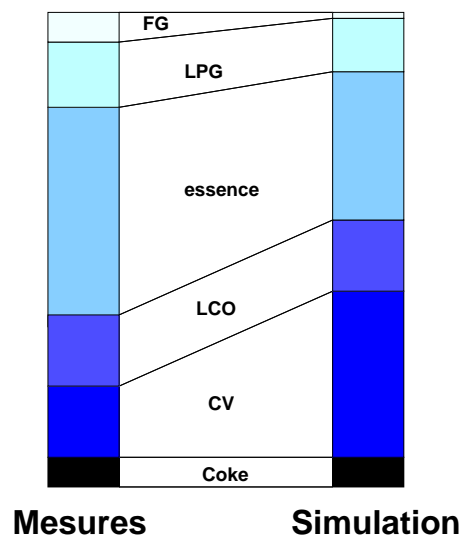


FIGURE 8.39 – Comparaison des rendements de l'installation industrielle et de la simulation.

L'utilisation du logiciel de simulation cinétique **Molière**¹ au Centre de Recherche de Gonfreville permet d'évaluer les écarts provoqués par les deux premières explications évoquées. Dans le tableau 8.2, nous avons reporté les rendements :

- issus de la simulation avec *Saturne_Polyphasique@Tlse*,
- que nous aurions obtenus avec le même débit si la charge avait été celle utilisé lors des mesures,
- que nous aurions obtenus avec la même charge et le même débit que dans l'installation industrielle.

Dans ce tableau, la dernière colonne rappelle les rendements mesurés sur l'installation de Grandpuits.

1. Développé en interne chez TOTAL.

Espèces	Simulation	Charge de Grandpuits Débit simulation	Charge de Grandpuits Débit Grandpuits	Rendement Unité
CV	37,03	30,11	28,16	14,07
LCO	15,23	13,53	12,33	15,28
ess	31,49	34,02	37,47	46,01
LPG	10,23	13,99	14,53	14,41
FG	0,92	1,41	0,99	5,19
coke	5,10	5,42	5,20	5,04

TABLE 8.2 – *Evaluation des rendements (en %) de l'unité pour des conditions de fonctionnement identiques à celles de l'installation de Grandpuits.*

Le tableau 8.2 montre que le type de charge joue un rôle important. En effet, la charge utilisée lors des mesures de Grandpuits aurait plus craqué en donnant plus d'essence, de LPG, de FG et de coke.

D'autre part, un débit de charge plus faible aurait permis de craquer plus et de se rapprocher des valeurs obtenues en sortie d'unité.

Enfin, le post craquage est un paramètre important dans l'analyse de nos résultats. En effet, les prélèvements de Névicato (1997) ont été effectués dans la colonne de fractionnement (cf. Fig. 8.40) alors que les rendements prédits par la simulation sont les rendements en sortie du riser. Ainsi, la zone de désengagement n'est pas prise en compte dans la simulation et dans cette zone le mélange gazeux est encore en contact avec les particules de catalyseur. Cette zone est donc le lieu d'une réaction de post-craquage, qui produit essentiellement du FG, mais dont l'influence réelle sur le rendement du réacteur est difficile à évaluer.

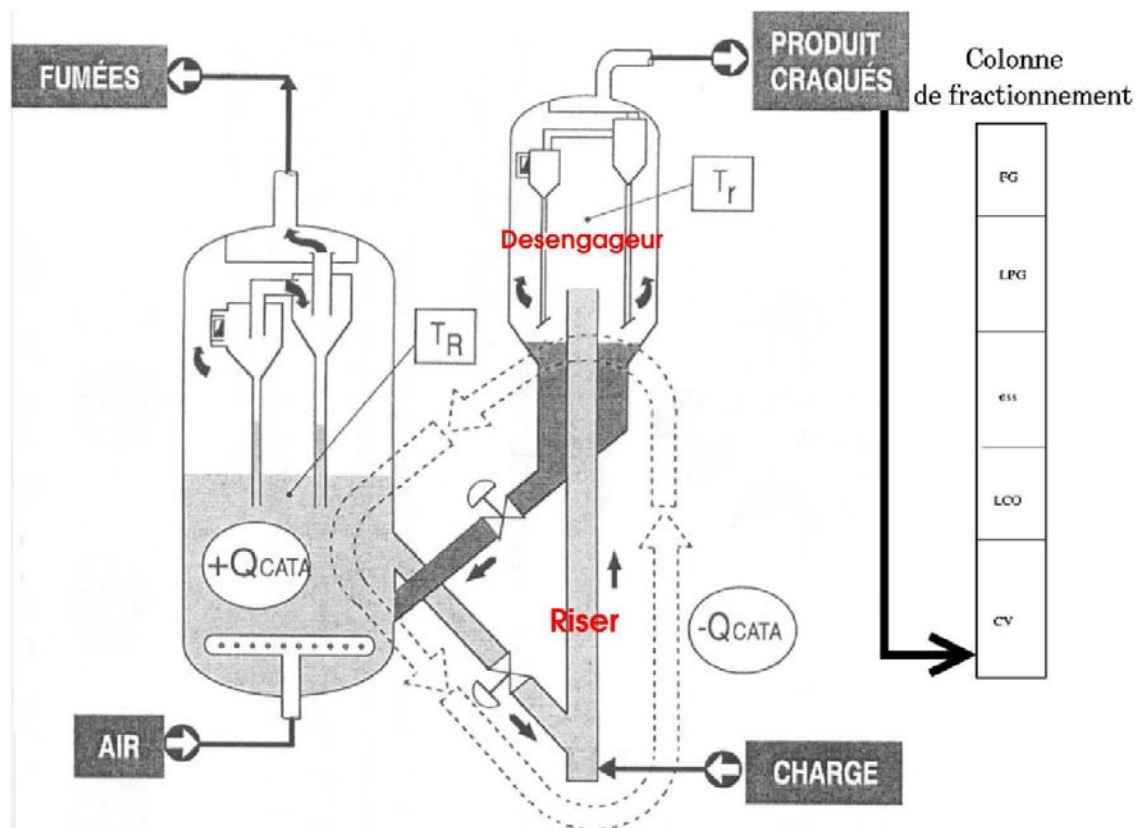


FIGURE 8.40 – Schéma d'une unité FCC avec colonne de fractionnement.

8.4.2 Profils radiaux de composition

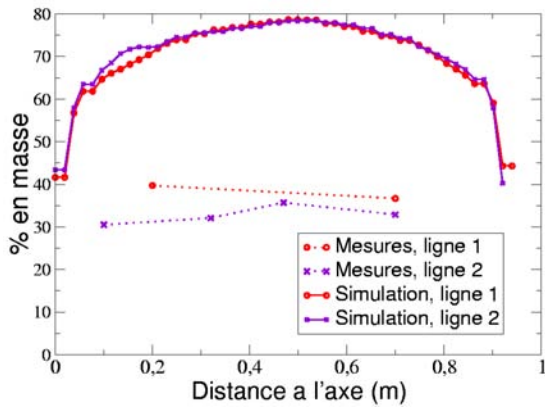
La figure 8.41 présente les profils radiaux de composition, mesurés et simulés, 5 m au-dessus des injections sur les lignes 1 et 2.

On remarque que les conversions obtenues par la simulation sont inférieures à celles mesurées sur l'installation industrielle. Ce résultat est prévisible du fait que le rendement simulé en sortie est inférieur au rendement réel de l'installation.

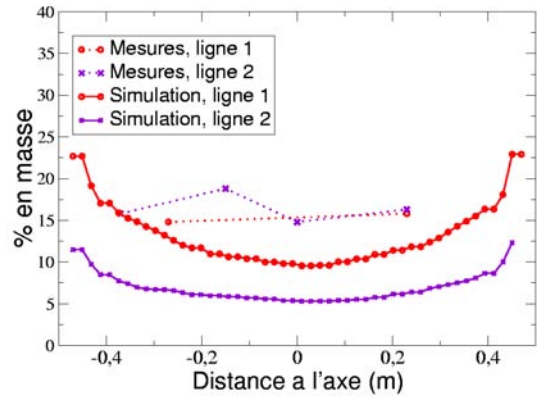
Cependant, on note que les valeurs de FG issus de la simulation à 5 m au-dessus des injections sont plus proches des mesures que les valeurs en sortie. Ceci accrédite l'hypothèse selon laquelle les différences de rendement observées sont dues au post-cracking.

Globalement, les profils sont relativement plats au centre du réacteur et avec une conversion plus forte près des parois où la présence en catalyseur est plus élevée. Le manque de points de mesures près des parois est ici à déplorer.

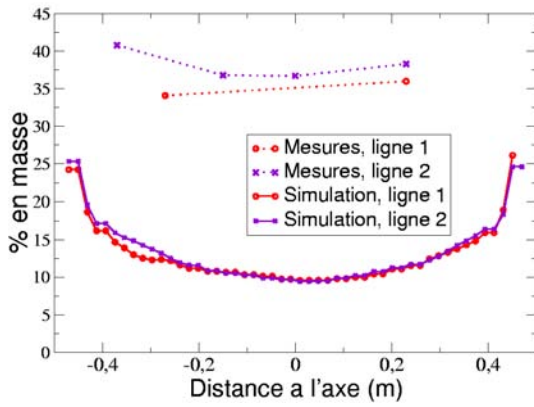
Finalement, dans la simulation comme dans les mesures, aucune dissymétrie notable sur les profils d'espèces 5 m au-dessus des injections est à noter.



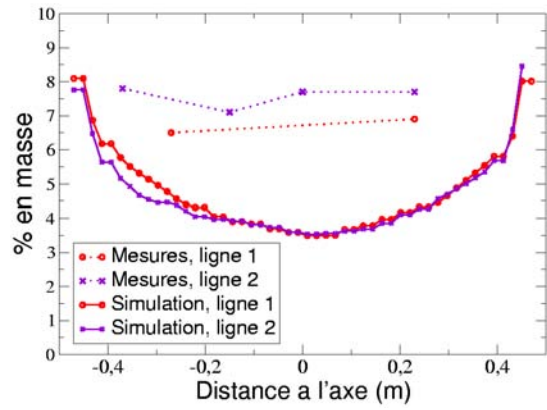
(a) Charge vaporisée



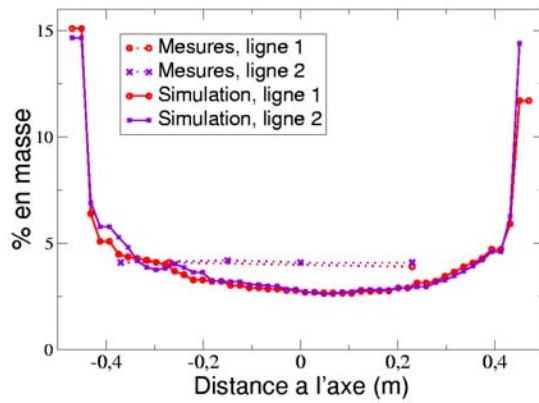
(b) LCO



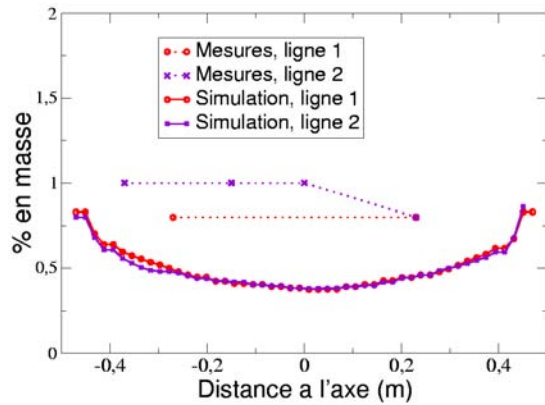
(c) Essence



(b) LPG



(e) Coke



(f) FG

FIGURE 8.41 – Profils radiaux de composition 5 m au-dessus des injections : comparaison des prélèvements sur l'installation industrielle et des résultats obtenus par la simulation.

8.4.3 Mesure de densité du catalyseur

Une tomographie effectuée sur l'unité en fonctionnement a été menée, dans des conditions « imprécises », mais donne des résultats « relativement corrects » selon le rapport interne de Névicato (1997).

La densité moyenne mesurée à 6 m au-dessus des injecteurs est de 30 kg.m^{-3} . La simulation prédit une densité de 33 kg.m^{-3} , ce qui correspond à un écart entre les mesures et la simulation de 10%. Cet écart, compte tenu des imprécisions de mesures ainsi que de la différence de conversion à 5 m au-dessus des injecteurs, nous semble très acceptable. En effet, dans la simulation la charge est moins craquée à cette hauteur, l'écoulement est donc moins accéléré et la fraction volumique de particules (c'est-à-dire la densité) est par conséquent plus importante.

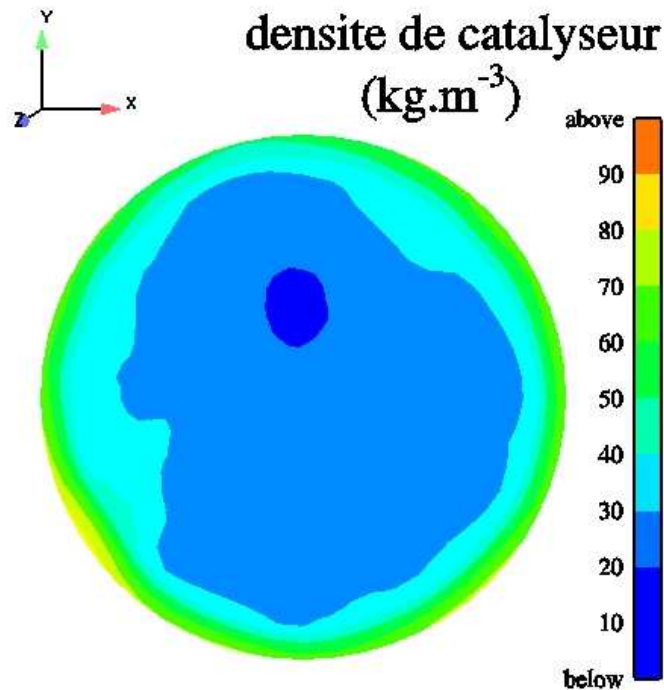


FIGURE 8.42 – Densité moyenne de particules de catalyseur 6 m au-dessus des injections.

De plus, la tomographie ne fait pas apparaître de dissymétrie sur la section, mais une répartition classique : accumulation du catalyseur au paroi et densités très faibles au centre du réacteur.

La figure 8.42 présente la densité moyenne de particules de catalyseur sur la section horizontale à 6 m au-dessus des injecteurs. A l'instar des mesures effectuées sur l'installation industrielle, la répartition observée est une répartition classique : accumulation de catalyseur aux parois et faible présence au centre, et ceci sans dissymétrie particulière. Cependant, la simulation ne prédit pas de

densités de catalyseur quasiment nulles au centre du réacteur. Comme le montre la figure 8.42, les densités au centre du réacteur sont de 20 kg.m^{-3} .

8.4.4 Profils de température

Les figures 8.43(a) et (b) présentent les profils de température à 5 m au-dessus des injections. Sur chaque figure, nous avons porté les valeurs mesurées, et les valeurs simulées pour le gaz et les particules.

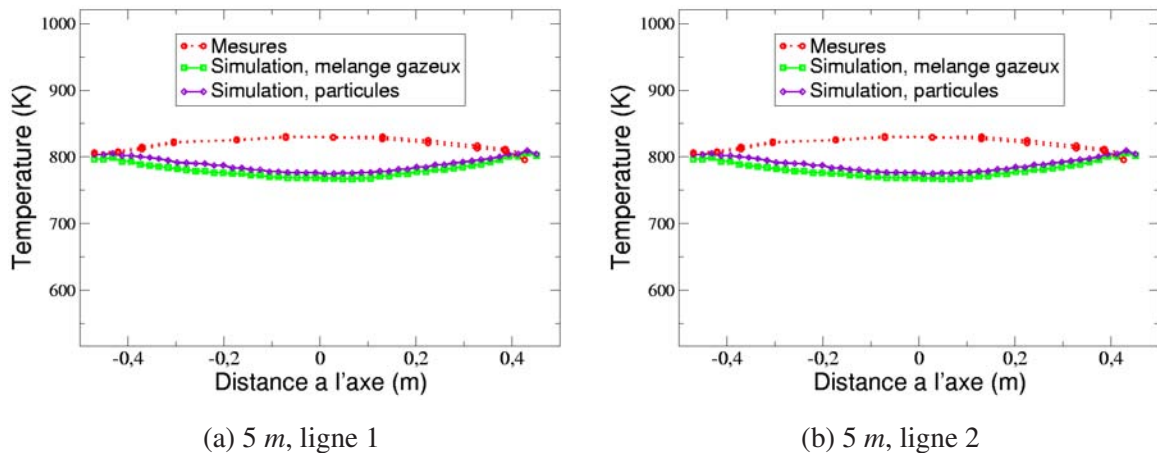


FIGURE 8.43 – Comparaison des profils de températures mesurés sur l’installation industrielle et obtenus par la simulation à 5 m dans le réacteur.

Comme le remarque **Névicato** en analysant les résultats de ses mesures, les profils de température sont relativement plats et symétriques sans différence notable entre la ligne 1 et la ligne 2, ne révélant aucune influence marquée du coude de la rampe d’injection.

La valeur moyenne des températures relevées à 5 m au-dessus des injections est de 815 K . Les valeurs moyennes issues des simulations sont légèrement inférieures puisque la moyenne de la température des particules est de 800 K et de 788 K pour le mélange gazeux. Les ordres de grandeur obtenus sont corrects avec des écarts relatifs de 2 à 4 %.

Cet écart est d’une part explicable par la différence de débit entre mesure et simulation et la différence de conversion 5 m au-dessus des injections. De plus, un bilan enthalpique dans le réacteur peut appuyer les résultats obtenus :

$$\text{Enthalpie totale à la hauteur } h = \text{Enthalpie totale en entrée} \quad (8.14)$$

On se place à une hauteur h à laquelle la totalité du liquide est évaporée (ce qui est le cas 5 m

au-dessus des injections), on peut alors écrire :

$$(Q_p H_p)_h + (Q_g H_g)_h = \mathcal{H}_{\text{total en entrée}} \quad (8.15)$$

$$= (Q_p H_p)_{\text{lift}} + (Q_g H_g)_{\text{lift}} + (Q_g H_g)_{\text{injec}} + (Q_l H_l)_{\text{injec}} \quad (8.16)$$

avec, puisque les débits sont constants par section et qu'il n'y a plus de liquide :

$$(Q_g)_h = (Q_g)_{\text{lift}} + (Q_g)_{\text{injec}} + (Q_l)_{\text{injec}} \quad (8.17)$$

$$= Q_g \quad (8.18)$$

$$(Q_p)_h \sim (Q_p)_{\text{lift}} \quad \text{légère production de coke} \quad (8.19)$$

$$= Q_p \quad (8.20)$$

En supposant qu'à la hauteur h , les températures des particules et du mélange gazeux sont identiques égales à T_h , à l'aide des définitions des enthalpies de chaque phase (p. 124), on obtient la variation de la température à la hauteur h en fonction de la fraction massique de charge vaporisée à cette hauteur :

$$T_h = T_{\text{ref}} + \frac{\mathcal{H}_{\text{total en entrée}} - Q_g Y_{CV} \Delta H_R}{Q_p C_{p,p} + Q_g C_{p,g}} \quad (8.21)$$

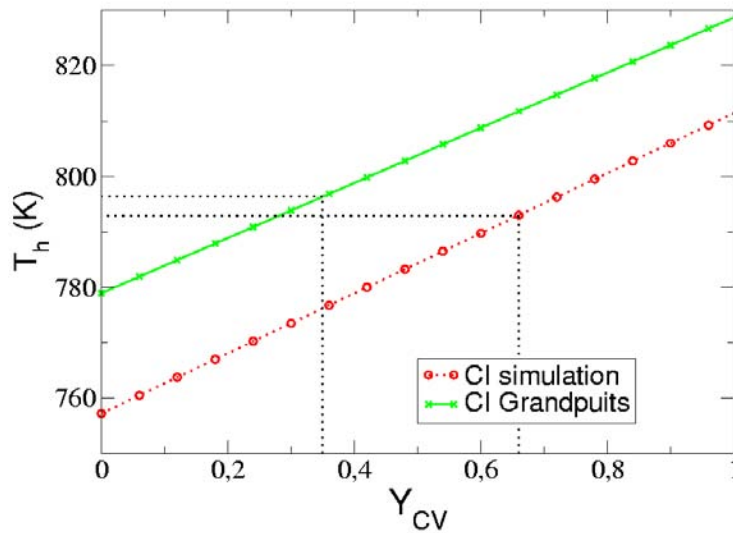


FIGURE 8.44 – Température dans le réacteur en fonction de la fraction massique de charge vaporisée.

La figure 8.44 présente l'évolution de la température à la hauteur h , T_h , en fonction de la fraction massique de charge vaporisée. Cette évolution est tracée pour deux débits de charge différents : celui de l'installation industrielle et celui utilisé pour la simulation. Nous remarquons tout d'abord que, à

fraction massique de charge vaporisée égale, la différence de débit provoque une différence de température de 20 K .

Dans la simulation, 5 m au-dessus des injections, nous avons une fraction massique moyenne de charge vaporisée de $0,66$. Cette valeur correspond à une température de 792 K sur le bilan enthalpique, ce qui est cohérent avec les valeurs moyennes obtenues par la simulation pour le gaz et les particules.

Dans les conditions de fonctionnement de Grandpuits, les mesures tirées du rapport de Névicato (1997) mentionnent environ $34,6\%$ de charge non craquée 5 m au-dessus des injections. Ce qui correspondrait sur notre bilan enthalpique à une température moyenne de 796 K . Les profils à 5 m donnés dans le rapport de Névicato donne une température moyenne d'environ 815 K , ce qui est légèrement supérieur à la valeur prédite par le bilan enthalpique.

Concernant l'allure générale, la simulation comme les mesures prédisent un profil relativement plat. Cependant, les mesures concluent à une diminution de la température près des parois, et, sur ce point, la simulation est en désaccord.

Notons tout d'abord que Chen & Williams (2005) soulignent que, si la tendance actuelle est d'ajuster les injecteurs de manière à obtenir un profil de température quasiment plat, les profils axiaux de température sont généralement non uniformes avec une température inférieure au centre du réacteur (cf. Fig. 8.45). Un profil de cette forme nous paraît, a priori, être le plus plausible. En effet, les particules de catalyseur, porteuses de chaleur, sont plus présentes près des parois qu'au centre du réacteur. Il serait donc logique que les zones de proches parois soient plus chaudes. De plus, comme nous l'avons vu lors de l'étude hydrodynamique, la pénétration et l'évaporation des jets au centre du réacteur est une raison pertinente pour observer des faibles températures au centre.

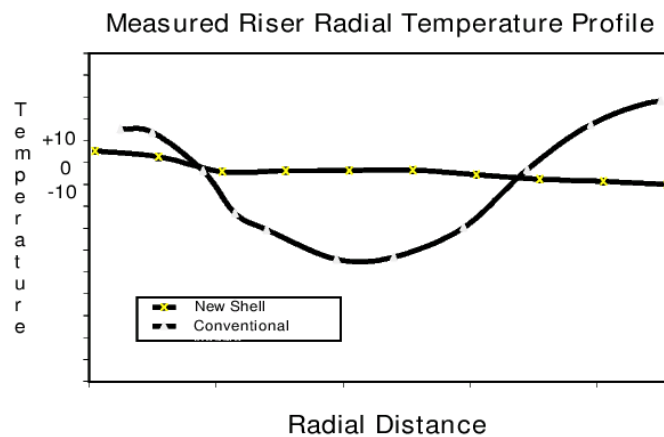


FIGURE 8.45 – Profil radial de température dans un réacteur FCC selon Chen & Williams (2005).

Cependant, certaines hypothèses pourraient expliquer une tendance inverse (forte température au

centre et température plus faible près des parois). Tout d'abord, la température dans le réacteur peut être influencée par le flux de chaleur provenant de l'extérieur (donc plus froid) qui n'est pas modélisé dans la simulation. Cette hypothèse nous semble peu plausible à cause de l'épaisse couche de réfractaire qui isole le riser.

D'autre part, comme les particules sont plus présentes en proche paroi, c'est près des parois que se trouve la conversion maximum. Comme la réaction est endothermique, cette zone devrait être refroidie du fait de l'intensité de la réaction.

Ensuite, les incertitudes sur le comportement des particules aux parois peuvent aussi influencer ce résultat. En particulier, l'absence de flux descendants de particules. En effet, si des particules descendaient près des parois, ce seraient des particules plus froides (la température diminue avec l'ascension dans le réacteur), ce qui pourrait faire baisser la température près des parois.

Les deux dernières hypothèses auraient pu être validées par les profils radiaux d'espèces : si leur allure avait été identique à celle de la température, cela aurait signifié que le catalyseur proche des parois était du catalyseur désactivé, donc provenant de la partie supérieure du réacteur et n'intensifiant pas le craquage. Si leur allure avait été inversée, malheureusement, les profils radiaux d'espèces (cf. Fig. 8.41) ne sont pas connus en proche paroi et ne nous permettent pas de conclure sur ce point.

Enfin, nous soulignons que nous n'avons pas trouvé de résultats dans la littérature traitant du sujet ; les seuls auteurs prenant en compte les échanges thermiques dans les réacteurs FCC n'ont pas discuté du profil radial de température.

Finalement, la répartition de température dans le réacteur est dépendante de nombreux paramètres : la répartition des particules, l'intensité de la réaction de craquage et l'hydrodynamique dans le réacteur. La complexité et les forts couplages des mécanismes physiques mis en jeu font que cette question reste encore ouverte.

En conclusion, la comparaison des résultats de la simulation réactive avec les mesures effectuées sur l'installation industrielle de Grandpuits s'avère être plutôt satisfaisante. En effet, les ordres de grandeur sont toujours retrouvés et les écarts sont généralement faibles ou cohérents avec les hypothèses faites.

Des investigations supplémentaires, en particulier sur la conversion et les profils radiaux de température, doivent être menées, cependant les résultats obtenus sont globalement encourageants.

Conclusion

La prise en compte de la réaction de craquage catalytique dans la simulation tridimensionnelle de l'installation industrielle d'un réacteur à lit fluidisé FCC a permis de montrer que l'aspect réactif

avait un impact fort sur l'hydrodynamique du lit fluidisé et en particulier sur l'accélération globale qu'elle entraîne. Nous avons aussi mis en évidence l'importance d'une simulation polydimensionnelle, puisque cet aspect joue un rôle primordial sur la prédiction du rendement du réacteur. Cette simulation a permis de donner une vision globale du comportement du lit fluidisé et des mécanismes s'y déroulant.

Nous avons montré par ailleurs que la prise en compte de la réaction de craquage avait une influence non négligeable sur le comportement de la zone d'injection puisqu'elle diminue la zone d'évaporation et entraîne, près des injections, une légère dissymétrie induite par la géométrie du réacteur qui n'apparaissait pas dans le cas non réactif.

Enfin, la comparaison des résultats de la simulation avec les mesures sur l'installation industrielle est encourageante. La simulation prédit des ordres de grandeur corrects. Des différences subsistent mais elles sont en partie explicables par l'utilisation d'un modèle cinétique probablement inadéquat. D'autre part, l'hydrodynamique locale doit être améliorée, en particulier dans la zone d'injection qui a un rôle prépondérant sur la sélectivité du réacteur.

Conclusion

La modélisation polyphasique implantée dans le code de calcul *Saturne_Polyphasique@Tlse*, complétée par la modélisation de l'évaporation des gouttes et de la réaction de craquage, a permis d'effectuer la simulation tridimensionnelle instationnaire triphasique gaz-goutte-particule réactive d'un réacteur à lit fluidisé FCC à l'échelle industrielle.

Dans un premier temps, l'analyse de la problématique industrielle a permis de dégager les mécanismes intervenant dans une telle installation et à prendre en compte dans la simulation.

Par la suite, l'étude et la comparaison des principaux modèles de transferts en écoulements gaz-goutte-particule a orienté les choix des modélisations à implémenter dans la simulation.

Nous avons ensuite décrit succinctement la réaction de craquage catalytique et la façon dont on peut la modéliser. La comparaison des différents modèles existants dans la littérature a orienté le choix de l'un d'entre eux pour l'intégration dans la modélisation polyphasique.

Le modèle polyphasique, basé sur une approche de type « moyenne de phase » pour le mélange gazeux et sur la théorie cinétique des milieux granulaires polydispersés, a ensuite été présenté en détails. Cette présentation nous a permis d'introduire les termes de transferts et la modélisation de la réaction de craquage catalytique dans les équations régissant l'écoulement.

Une fois le système d'équations mis en place, les différents modèles choisis pour la simulation ont été implantés dans le code de calcul *Saturne_Polyphasique@Tlse*.

Le code a été testé, par comparaison à l'expérience sur l'injection de gaz dans un lit fluidisé. Les résultats obtenus sont encourageants et valident l'hydrodynamique résolue par le code.

Ensuite, la simulation d'un réacteur à échelle industrielle a été réalisée. Deux simulations ont été mises en place : une simulation non réactive et une simulation réactive.

La simulation non réactive constitue une avancée par rapport aux travaux antérieurs puisqu'elle donne une vision tridimensionnelle locale de la zone d'injection de charge. Dans la colonne, cette simulation a permis de retrouver les résultats classiques des lits fluidisés circulants de particules de classe A de la classification de Geldart (1973). Cependant, on observe une sous-estimation des flux descendants en proche paroi.

La comparaison de la simulation réactive avec la simulation non réactive a permis de montrer que la prise en compte de la réaction de craquage avait une influence très importante sur le comportement hydrodynamique du lit, non seulement sur l'écoulement dans la colonne, où on observe une forte accélération du lit, mais aussi sur la zone d'injection, où la morphologie des jets est modifiée. La comparaison des résultats de notre simulation moyennés en temps et par section avec les prédictions d'une approche monodimensionnelle nous a permis de mettre en évidence le rôle des phénomènes polydimensionnels (ségrégation radiale des particules) et des phénomènes locaux qui se passent dans la zone d'injection. Malgré ce constat, les résultats concernant les rendements obtenus avec notre simulation ne concordent pas parfaitement avec les mesures sur installation, puisque nos simulations sous-estiment la conversion.

Les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse démontrent l'intérêt de la démarche de simulation proposée et permettent d'envisager la réalisation de simulations complémentaires pour mieux comprendre le rôle des conditions d'injections sur le fonctionnement général de la colonne de craquage. On peut penser en particulier à réaliser des études de sensibilité faisant intervenir, par exemple, la taille des gouttes ([Theologos *et al.*, 1999](#)), le flux et la température du catalyseur injecté ([Gao *et al.*, 1999](#)) ou bien l'angle d'injection de la charge. Ceci permettra de se rapprocher de la configuration industrielle optimale.

D'autre part, l'analyse des résultats déjà obtenus pourrait permettre de faire une évaluation a posteriori des collisions particule-goutte dans le cadre de la théorie cinétique des milieux granulaires polydispersés et des échanges qui leur sont associés.

Un maillage plus raffiné étant disponible, il serait également intéressant de mener la simulation correspondante pour étudier la dépendance des résultats au raffinement. Mais il serait nécessaire, dans un premier temps, d'améliorer la robustesse (solveur de pression en écoulement à masse volumique variable) et la rapidité (parallélisation) du code.

Pour ce qui est de la représentativité des simulations, des travaux complémentaires sont nécessaires pour améliorer la prédiction de l'hydrodynamique des lits fluidisés circulants de particules de classe A. On peut penser en particulier à améliorer la modélisation des interactions particule-paroi (rebond inélastique avec frottement et/ou sur paroi rugueuse) mais aussi étudier l'influence de l'écoulement gaz-particule de sous-maille.

La validation des modélisations pourra être menée sur des lits fluidisés de laboratoire pour lesquels les données expérimentales sont plus complètes.

Bibliographie

- Abramzon, B. & Sirignano, W. A., **1989**. Droplet vaporization model for spray combustion calculations. *Int. J. Heat Mass Transfer*, **32**(9) :1605–1618.
- Albrecht, A., **2001**. *Etude Numérique des Transferts Dynamiques et Thermiques au Sein d'un Mélange Turbulent Gaz-Goutte-Particule : Application à la Zone d'Injection de Charge d'un Réacteur à Lit Fluidisé de FCC*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Albrecht, A., Simonin, O., Barthod, D., & Védrine, D., **2001**. Multidimensional numerical simulation of the liquid feed injection in an industrial FCC riser. *FLUIDIZATION X, Proc. Symposium of the Engineering Foundation, Beijing (China)*.
- Ancheta-Juárez, J., López-Isunza, F., Aguilar-Rodríguez, E., & Moreno-Mayorga, J. C., **1997**. A strategy for kinetic parameter estimation in the fluid catalytic cracking process. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **36** :5170–5174.
- Balzer, G., **2000**. Gas-solid flow modelling based on the kinetic theory of granular media : Validation, applications and limitations. *Powder Technology*, **113** :299–309.
- Balzer, G., Boelle, A., & Simonin, O., **1995**. Eulerian gas-solid flow modelling of dense fluidized bed. *Proceedings of the Eight International Conference on Fluidization*, pages 409–418.
- Barbusiaux, D. & Bauquis, P.-R., **2005**. Anticiper la fin du pétrole. *Le Monde Diplomatique*, page 15.
- Batrak, O., **2005**. *Etudes numérique et expérimentale de l'hydrodynamique des lits fluidisés circulants gaz-particules avec prise en compte de la polydispersion granulométrique*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Batrak, O., Patino, G., Simonin, O., Flour, I., Le Guevel, T., & Perez, E., **2005**. Unlike particles size collision model in 3D unsteady polydispersed simulation of circulating fluidized bed. *Proceedings of the 8th Conference on Circulating Fluidized Beds, Hangzhou, China*, pages 370–378.
- Bird, R. B., Stewart, W. E., & Lightfoot, E. N., **1960**. *Transport phenomena*. Jonh Wiley & Sons.

- Boëlle, A., **1997**. *Validation d'un modèle à deux fluides appliqué à la simulation des lits fluidisés denses*. Thèse Electricité De France, Direction des Etudes et Recherches.
- Boëlle, A., Balzer, G., & Simonin, O., **1995**. Second-order prediction of the particle-phase stress tensor of inelastic spheres in simple shear flow. *Gas-Particle Flows, ASME FED*, **228** :9–18.
- Boussinesq, J., **1877**. *Théorie de l'écoulement tourbillonnant*. Mémoire présenté par la division savante, Paris.
- Buchanan, J. S., **1994**. Analysis of heating and vaporization of feed droplets in fluidized catalytic cracking risers. *Ind. Chem. Res.*, **33** :3104–3111.
- Chang, S. L., Lottes, S. A., Zhou, C. Q., Bowman, B. J., & Petrick, M., **2001**. Numerical study of spray injection effects on the heat transfer and product yields of FCC riser reactors. *Journal of Heat Transfer*, **123** :544–555.
- Chang, S. L., Lottes, S. A., Zhou, C. Q., Golchert, B., & Petrick, M., **1998**. Interactions of multi-phase hydrodynamics, droplet evaporation, and chemical kinetics in FCC riser reactors. *AIAA/ASME Joint Thermophysic and Heat Transfer Conference*, **1** :261–269.
- Chang, S. L., Lottes, S. A., Zhou, C. Q., & Petrick, M., **1997**. A hybrid technique for coupling chemical kinetics and hydrodynamics computations in multi-phase reacting flow systems. *Proceedings of the ASME Heat Transfer Division*, **2** :149–157.
- Chapman, S. & Cowling, T. G., **1970**. *The mathematical theory of non-uniform gases*. Cambridge Mathematical Library, Cambridge University Press.
- Chen, X.-Q. & Pereira, J. C. F., **1995**. Prediction of evaporating spray in anisotropically turbulent gas flow. *Numerical Heat Transfer, Part A*, **27** :143–162.
- Chen, Y.-M. & Williams, C., **2005**. FCC technology - recent advances and new challenges. *Proceeding of the 8th International Conference on Circulating Fluidized Bed, Hangzhou, China*.
- Clift, R., Grace, J. R., & Weber, M. E., **1978**. *Bubbles, drops and particles*. Academic Press.
- Collier, A. P., Hayhurst, A. N., Richardson, J. L., & Scott, S. A., **2004**. The heat transfer coefficient between a particle and a bed (packed or fluidised) of much larger particles. *Chemical Engineering Science*, **59** :4613–4620.
- Das, A. K., **2002**. *Computational fluid dynamics simulation of gas-solid risers : reactive flow modeling*. Universiteit Gent.

- Dave, N. C., Duffy, G. J., & Udaja, P., **1993**. A four-lump kinetic model for the cracking/coking of recycled heavy oil. *Fuel*, **72**(9) :1331–1334.
- De Wilde, J., Marin, G. B., & Heynderickx, G. J., **2003**. The effects of abrupt t-oulets in a riser : 3d simulation using the kinetic theory of granular flow. *Chemical Engineering Science*, **58**(3-6) :877–885.
- Delhaye, J. M., **1974**. Jump conditions and entropy sources in two phase systems. local instant formulation. *Int. J. Multiphase Flow*, **1** :395–409.
- Den Hollander, M., Makkee, M., & Moulijn, J. A., **1999**. Fluid catalytic cracking (FCC) : activity in the (milli)seconds range in an entrained flow reactor. *Applied Catalysis A : General*, **187** :3–12.
- Den Hollander, M. A., Makkee, M., & A., M. J., **1998**. Coke formation in fluid catalytic cracking studied with the micro riser. *Catalysis today*, **46** :27–35.
- Derouin, C., **1994**. *Contribution à l'étude expérimentale et à la modélisation des élévateurs de craquage catalytique*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Derouin, C., Névicato, D., Forissier, M., Wild, G., & Bernard, J.-R., **1997**. Hydrodynamics of riser units and their impact on FCC operation. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **36** :4505–4515.
- Deutsch, E. & Simonin, O., **1991**. Large eddy simulation applied to the motion of particles in stationary homogeneous fluid turbulence. *Turbulence modification in Multiphase Flows, ASME*, **110** :35–42.
- Dincer, I., Kilic, Y. A., & Kahveci, N., **1996**. Heat transfer modelling of spherical particles subject to heating in a fluidized bed. *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, **23**(5) :705–712.
- Dupain, X., Gamas, E. D., Madon, R., Kelkar, C. P., Makkee, M., & Moulijn, J. A., **2003**. Aromatic gas oil cracking under realistic FCC conditions in a microriser reactor. *Fuel*, **82** :1559–1569.
- Elgobashi, S. E. & Abou-Arab, T. W., **1983**. A two-equation turbulence model for two-phase flows. *Phys. Fluids*, **26**(4) :931–938.
- Enwald, H., Peirano, E., & Almstedt, A.-E., **1996**. Eulerian two-phase flow theory applied to fluidization. *Int. J. Multiphase Flow*, **22** :21–66.
- Ergun, S., **1952**. Fluid flow through packed bed columns. *Chem. Eng. Prog.*, **48** :48.
- Faeth, G. M., **1983**. Evaporation and combustion of sprays. *Prog. Energy Combust. Sci.*, **9** :1–76.
- Fan, L.-S., Lau, R., Zhu, C., Vuong, K., Warsito, W., & Liu, G., **2001**. Evaporative liquid jets in gas-liquid-solid flow system. *Chemical Engineering Science*, **56** :5871–5891.

- Fede, P., **2004**. *Modélisation et simulation de l'influence de la turbulence sur les collisions dans les écoulements mono- et bi-solides*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Février, P. & Simonin, O., **1998**. Constitutive relations for fluid-particle velocity correlations in gas-solid flows. *Third International Conference on Multiphase Flow, ICMF'98, Lyon, France, June 8-12*.
- Flour, I. & Simonin, O., **1993**. *Modélisation numérique d'un jet de gouttes avec évaporation et comparaison avec des résultats de mesure*. Rapport interne EDF, Laboratoire National d'Hydraulique.
- Gao, J., Xu, C., Lin, S., & Yang, G., **2001**. Simulations of gas-liquid-solid 3-phase flow and reaction in FCC riser reactors. *AIChE Journal*, **47**(3) :677–692.
- Gao, J., Xu, C., Lin, S., Yang, G., & Guo, Y., **1999**. Advanced model for turbulent gas solid flow and reactions in FCC riser reactors. *AIChE Journal*, **45** :1095.
- Gatignol, R., **1983**. The Faxén formulae for a rigid particle in an unsteady non-uniform Stokes flow. *Journal de mécanique théorique et appliquée*, **1**(2) :143–160.
- Gauthier, T., Bayle, J., & Leroy, P., **2000**. FCC : Fluidization phenomena and technologies. *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP*, **55**(2) :187–207.
- Geldart, D., **1973**. Types of gas fluidization. *Powder Technology*, **7**(5) :285–292.
- Gidaspow, D., **1994**. *Multiphase Flow and Fluidization : Continuum and Kinetic Theory Description*. Academic Press, Boston.
- Gobin, A., Neau, H., Simonin, O., Linas, J.-R., Reiling, V., & Sélo, J.-L., **2003**. Fluid dynamic numerical simulation of a gas phase polymerization reactor. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, **43** :1199–1220.
- Gourdel, C., Simonin, O., & Brunier, E., **1999**. Two-maxwellian equilibrium distribution function for the modelling of a binary mixture of particles. *Proc. of the 6th International Conference on Circulating Fluidized Beds, Frankfurt am Main*.
- Grad, H., **1946**. On the kinetic theory of rarified gases. *Com. on Pure and Applied Mathematics*, **2**(4) :331–407.
- Gray, W. G. & Lee, P. C. Y., **1977**. On the theorems for local volume averaging of multiphase systems. *Int. J. Multiphase Flow*, **3** :333–340.
- Gupta, A. & Rao, D. S., **2001**. Model for the performance of a fluid catalytic cracking (FCC) riser reactor : effect of feed atomization. *Chemical Engineering Science*, **56** :4489–4503.

- Gupta, A. & Rao, D. S., **2003**. Effect of feed atomization on FCC performance : simulation of entire unit. *Chemical Engineering Science*, **58** :4567–4579.
- Hagelberg, P., Eilos, I., Hiltunen, J., Lipiainen, K., Niemi, V. M., Aittamaa, J., & Krause, A. O. I., **2002**. Kinetics of catalytic cracking with short contact times. *Applied Catalysis A*, **223** :73–83.
- Hansen, K. G., **2005**. *A three-dimensional numerical study of gas-particle flow and chemical reactions in circulating fluidised bed reactors*. Ph. D. thesis of The Faculty of Engineering and Science, Aalborg University, Denmark.
- Harris, A. T., Thorpe, R. B., & Davidson, J. F., **2002a**. Characterisation of the annular thickness in circulating fluidized-bed risers. *Chemical Engineering Science*, **57**(13) :2579–2587.
- Harris, A. T., Thorpe, R. B., & Davidson, J. F., **2002b**. Stochastic modelling of the particle residence time distribution in circulating fluidised bed risers. *Chemical Engineering Science*, **57**(22-23) :4779–4796.
- Helland, E., Occelli, R., & Tadrist, L., **2000**. Numerical study of cluster formation in a gas-particle circulating fluidized bed. *Powder Technology*, **110**(3) :210–221.
- Hong, R., Li, H., Li, H., & Wang, Y., **1997**. Studies on the inclined jet penetration length in a gas-solid fluidized bed. *Powder Technology*, **92** :205–212.
- Hoomans, B. P. B., Kuipers, J. A. M., Briels, W. J., & Ven Swaaij, W. P. M., **1996**. Discrete particle simulation of bubble and slug formation in a two-dimensional gas-fluidised bed : a hard-sphere approach. *Chemical Engineering Science*, **51**(1) :99–118.
- Hoomans, B. P. B., Kuipers, J. A. M., Mohd Salleh, M. A., Stein, M., & Seville, J. P. K., **2001**. Experimental validation of granular dynamics simulations of gas-fluidised beds with homogenous in-flow conditions using positron emission particle tracking. *Powder Technology*, **116** :166–177.
- Howes, F. A. & Whitaker, S., **1985**. The spatial averaging theorem revisited. *Chemical Engineering Science*, **40**(8) :387–1392.
- Hyre, M. R. & Glicksman, L. R., **2000**. Axial and lateral solids distribution modeling in the upper region of circulating fluidized beds. *Powder Technology*, **110** :98–109.
- Ibsen, C. H., Helland, E., Hjertager, B. H., Solberg, T., Tadrist, L., & Occelli, R., **2004**. Comparison of multifluid and discrete particle modelling in numerical predictions of gas particle flow in circulating fluidised beds. *Powder Technology*, **149** :29–41.
- Jacob, S. M., Gross, B., Voltz, S. E., & Weekman, V. W., **1976**. A lumping reaction scheme for catalytic cracking. *AIChE Journal*, **22** :701.

- Jenkins, J. T. & Richman, M. W., **1985**. Grad's 13-moment system for a dense gas of inelastic spheres. *Arch. Ration. Mech. Anal.*, **87** :355–377.
- Kozin, B. E. & Basakov, A. P., **1967**. *Khim. Technol. Topl. Masel.*, **3** :4–7.
- Kunii, D. & Levenspiel, O., **2000**. The K-L reactor model for circulating fluidized beds. *Chemical Engineering Science*, **55** :4563–4570.
- Kuo, K. K., **1986**. *Principles of combustion*. John-Wiley & Sons.
- Latrille-Pitault, I., **1994**. *Modélisation du craquage catalytique de distillats sous vide. Modèle cinétique basé sur une description moléculaire*. Thèse de l'université de Poitiers.
- Launder, B. E. & Jones, W. P., **1974**. The prediction of laminarisation with a two-equation model of turbulence. *Int. J. Heat Mass Transfer*, **15** :301–314.
- Leclère, K., **2002**. *Etude expérimentale de la vaporisation d'un jet de gouttelettes au contact d'un milieu gaz-solide fluidisé*. Thèse de l'Université de Compiègne.
- Leclère, K., Briens, C., Bayle, J., Gauthier, T., Bergougnou, M., & Guigon, P., **2001a**. Experimental study of droplet vaporization in a fluidized bed. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, **79** :866–873.
- Leclère, K., Briens, C., Gauthier, T., Bayle, J., Bergougnou, M., & Guigon, P., **2001b**. Liquid vaporization in a fluidized bed. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **40** :5415–5420.
- Leclère, K., Briens, C., Gauthier, T., Bayle, J., Guigon, P., & Bergougnou, M., **2004**. Experimental measurement of droplet vaporization kinetics in a fluidized bed. *Chemical Engineering and Processing*, **43** :693–699.
- Lee, T. H., Wang, X., & Zhu, C., **2005**. 3-D simulation of crossflow evaporating sprays in circulating fluidized beds. *Proceedings of the 8th Conference on Circulating Fluidized Beds, Hangzhou, China*, pages 386–393.
- León-Becerril, E., Maya-Yescas, R., & Salazar-Sotelo, D., **2004**. Effect of modelling pressure gradient in the simulation of industrial FCC risers. *Chemical Engineering Journal*.
- Li, J. & Mason, D. J., **2000**. A computational investigation of transient heat transfer in pneumatic transport of granular particles. *Powder Technology*, **112** :273–282.
- Lim, K., Zhu, J. X., & Grace, J. R., **1995**. Hydrodynamics of gas-solid fluidisation. *International Journal of Multiphase Flow*, **21** :141–193.

- Lun, C. K. K. & Savage, S. B., **1986**. The effects of an impact velocity dependent coefficient of restitution on stresses developed by sheared granular materials. *Acta Mechanica*, **63** :15–44.
- Marmo, L., Rovero, G., & Baldi, G., **1999**. Modelling of catalytic gas-solid fluidised bed reactors. *Catalysis Today*, **52** :235–247.
- Mashayek, F., **1998**. Direct simulation of evaporating droplet dispersion in forced low mach number turbulence. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **41**(17) :2601–2617.
- Massol, A., **2004**. *Simulations numériques d'écoulements à travers des réseaux fixes de sphères monodisperses et bidisperses, pour des nombre de Reynolds modérés*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Mathiesen, V., Solberg, T., & Arastoopour, H. an Hjertager, B. H., **1999**. Experimental and computational study of multiphase gas/particle flow in a CFB riser. *AIChE Journal*, **45**(12) :2503–2518.
- Mauléon, J. L. & Courcelle, J. C., **1985**. FCC heat balance critical for heavy fuels. *Oil and Gas Journal*, pages 64–70.
- Merry, J. D. M., **1971**. Penetration of an horizontal gas jet into a fluidized bed. *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **49** :189–195.
- Miller, A. & Gidaspow, D., **1992**. Dense, vertical gas-solid flow in a pipe. *AIChE Journal*, **38**(11) :1801–1815.
- Miller, R., Harstad, K., & Bellan, J., **1998**. Evaluation of equilibrium and non-equilibrium evaporation models for many-droplet gas-liquid flow simulations. *International Journal of Multiphase Flow*, **24** :1025–1055.
- Mirgain, C., Briens, C., Del Pozo, M., Loutaty, R., & Bergougnou, M., **2000**. Modeling of feed vaporization in fluid catalytic cracking. *Ind. Eng. Res.*, **39** :4392–4399.
- Mulholland, J. A., Srivastava, R. K., & Wendt, J. O. L., **1988**. Influence of droplet spacing on drag coefficient in nonevaporating, monodisperse streams. *AIAA Journal*, **26**(10) :1231–1237.
- Nayak, S. V., Joshi, S. L., & Ranade, V. V., **2005**. Modeling of vaporization and cracking of liquid oil injected in a gas-solid riser. *Chemical Engineering Science*.
- Neri, A. & Gidaspow, D., **2000**. Riser hydrodynamics : simulation using kinetic theory. *AIChE Journal*, **46** :52–67.
- Névicato, D., **1996**. *Modélisation de la cinétique du craquage catalytique : influence de la température de réaction*. Thèse de l'Université Claude Bernard - Lyon 1.

- Névicato, D., **1997**. *Fonctionnement de la zone réactionnelle du FCC de GRANDPUITS en octobre 1996 et février 1997 avec les nouveaux injecteurs de charge*. Rapport interne TOTAL.
- Pareek, V. K., Adesina, A. A., Srivastava, A., & Sharma, R., **2003**. Modeling of a non-isothermal FCC riser. *Chemical Engineering Journal*, **92** :101–109.
- Patino, G. & Simonin, O., **2005**. General derivation of Eulerian-Eulerian equations for multiphase flows. *Rapport interne Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse*.
- Peirano, E. & Leckner, B., **1998**. Fundamentals of turbulent gas-solid flows applied to circulating fluidized bed combustion. *Prog. Energy Combust. Sci.*, **24** :259–296.
- Peixoto, F. C. & de Medeiros, J. L., **2001**. Reactions in multiindexed continuous mixtures : catalytic cracking of petroleum fractions. *AIChE J.*, **47** :935.
- Petit, G., **2005**. *Contribution à l'étude expérimentale et numérique du comportement des phases gaz et solide dans un lit fluidisé circulant : application au procédé FCC*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Petit, G., Hemati, M., Simonin, O., & Andreux, A., **2005**. Experimental and 3D computation study of multiphase flow behaviour in a riser of a FCC process. *Proceedings of the 8th Conference on Circulating Fluidized Beds, Hangzhou, China*, pages 321–327.
- Pitault, I., Forissier, M., & Bernard, J. R., **1995**. Détermination de constantes cinétiques du craquage catalytique par la modélisation du test de microactivité (MAT). *Canadian Journal of Chemical Engineering*, **73** :498–503.
- Pitault, I., Névicato, D., Forissier, M., & Bernard, J. R., **1994**. Kinetic model based on molecular description for catalytic cracking of vacuum gas oil. *Chem. Eng. Sci.*, **49** :4289.
- Qi, X.-B., Huang, W.-X., Shi, Y.-F., & Zhu, J., **2005**. Experimental study of gas-solid flow in risers with FCC and sand particles. *Proceedings of the 8th Conference on Circulating Fluidized Beds, Hangzhou, China*, pages 167–180.
- Randrianarivelo, T. N., **2005**. *Etude numérique des interactions hydrodynamiques fluide/solide, application aux lits fluidisés*. Thèse de l'Université de Bordeaux 1.
- Ranz, W. E. & Marshall, W. R., **1952**. Evaporation from drops. *Chem. Eng. Prog.*, **48** :173–180.
- Réveillon, J., Pera, C., Massot, M., & Knikker, R., **2004**. Eulerian analysis of the dispersion of evaporating polydispersed sprays in a statistically stationary turbulent flow. *Journal of Turbulence*, **5**.

- Riquarts, H.-P., **1980**. On heat transfer between particles and fluid in aerated beds. *Ger. Chem. Eng.*, **3** :286–295.
- Rowe, P. N. & Claxton, K. T., **1965**. Heat and mass transfer from a single sphere to fluid flowing through an array. *Trans. Instn. Chem. Engrs*, **43** :321–331.
- Sa, Y., Liang, X., Chen, X., & Liu, J., **1995**. Study on the 13-lump kinetic model for residual catalytic cracking. *Selective Papers in Memorial of 30th Anniversary of the Fluid Catalytic Cracking Process in China, Luoyan Petrochemical Eng. Corp., Luoyang, China*, page 145.
- Saleh, K., **1998**. *Contribution à l'étude de l'enrobage des poudres en lit fluidisé : Etude expérimentale et modélisation du processus*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Salveti, M. V. & Banerjee, S., **1995**. A priori tests of a new dynamic subgrid-scale model for finite-difference large-eddy simulations. *Physics of Fluids*, **7**(11) :2831–2847.
- Saulnier, C., Simonin, O., Védrine, D., & Donnat, L., **2005**. Eulerian multiphase modeling of feed injection and vaporisation in FCC riser reactor. *Proceedings of the 8th International Conference on Circulating Fluidised Beds, Hangzhou, China*, pages 328–336.
- Schiller, L. & Nauman, A., **1935**. A drag coefficient correlation. *V.D.I. Zeitung*, **77** :318–320.
- Shakova, N. A., **1968**. Discharge of turbulent jets into a fluidized bed. *Inzh. Fiz. Zh.*, **14**(1) :61–69.
- Simonin, O., **1991**. Prediction of the dispersed phase turbulence in particulate laden jet. *Proc. Fourth Int. Symp. Gas-Solid Flows*, **121** :197–206.
- Simonin, O., **1996**. *Continuum modelling of dispersed two-phase flows*. Combustion and turbulence in two phase flows, von Karman Institute, Lecture Series 1996-02, von Karman Institute for Fluid Dynamics.
- Simonin, O., Deutsch, E., & Minier, J. P., **1993**. Eulerian prediction of the fluid/particle correlated motion in turbulent dispersed two-phase flow. *Applied Scientific Research*, **51** :275–283.
- Simonin, O. & Viollet, P. L., **1990**. Modelling of turbulent two-phase jets loaded with discrete particles. *Phase-Interface Phenomena in Multiphase Flow*, pages 259–269.
- Skouby, D. C., **1999**. Hydrodynamic studies in a 0.45-m riser with liquid feed injection. *AICHE Symposium Series*, **95**(321).
- Theologos, K. N., Lygeros, A. I., & Markatos, N. C., **1999**. Feedstock atomization effects on FCC riser reactors selectivity. *Chemical Engineering Science*, **54** :5617–5625.

- Theologos, K. N. & Markatos, N., **1993**. Advanced modeling of fluid catalytic cracking riser-type reactors. *AIChE Journal*, **39** :1007–1017.
- Theologos, K. N., Nikou, I. D., Lygeros, A. I., & Markatos, N. C., **1997**. Simulation and design of fluid catalytic cracking riser-type reactors. *AIChE Journal*, **43** :486–493.
- Viollet, P. L. & Simonin, O., **1993**. *Introduction à la modélisation des écoulements constitués d'une phase continue contenant des inclusions dispersées en mouvement*. Cours de l'école nationale des ponts et chaussées.
- Virepinte, J.-F., **1999**. *Etude du comportement dynamique et thermique de gouttes en régime d'interaction dans le cas de jets rectilignes*. Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace.
- Wakao, N., Kaguei, S., & Funazkri, T., **1979**. Effect of fluid dispersion coefficients on particle-to-fluid heat transfer coefficients in packed beds. *Chem. Eng. Sci.*, **34**.
- Wang, X. & Zhu, C., **2003**. Concentric evaporating spray jets in dilute gas-solids pipe flows. *Powder Technology*, **129** :59–71.
- Wang, X., Zhu, C., & Ahluwalia, R., **2004**. Numerical simulation of evaporating spray jets un concurrent gas-solids pipe flows. *Powder Technology*, **140** :56–67.
- Weekman, V. W. & Nace, D. M., **1970**. Kinetics of catalytic cracking selectivity in fixed, moving and fluid bed reactor. *AIChE J.*, **16** :397.
- Wen, L. Y. & Yu, Y. H., **1966**. Mechanics of fluidization. *Chem. Engng. Prog. Symp. Ser.*, **62** :100–111.
- Whitaker, S., **1985**. A simple geometrical derivation of the spatial averaging theorem. *Chemical Engineering Education*, **18-21** :50–52.
- Whitaker, S., **1999**. *The method of volume averaging*. Kluwer Academic Publishers.
- Williams, F. A., **1985**. *Combustion theory*. Benjamin/Cummings, Menlo Park, California.
- Xuereb, C., **1989**. *Analyse du développement de jets horizontaux ou inclinés dans des lits fluidisés par un gaz*. Thèse de Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Zenz, F. A., **1968**. *Fluidization*. Institution of Chemical Engineers, London.
- Zhou, H., Flamant, G., Gauthier, D., & Lu, J., **2002**. Lagrangian approach for simulating the gas-particle flow structure in a circulating fluidized bed riser. *International Journal of Multiphase Flow*, **28** :1801–1821.

- Zhu, C., Wang, X., & Fan, L.-S., **2000**. Effects of solids concentration on evaporative liquid jets in gas-solid flows. *Powder Technology*, **111** :79–82.
- Zhu, C., Wang, X., Liu, G., & Fan, L.-S., **2001**. A similarity model of evaporating liquid spray jets in concurrent gas-solid flows. *Powder Technology*, **119** :292–297.
- Zhu, C., Yu, Q., & Fan, L. S., **2005**. Modeling on core-annulus-wall structure in circulating fluidized bed riser. *Proceedings of the 8th International Conference on Circulating Fluidised Beds, Hangzhou, China*, pages 354–361.

Annexes

Annexe A

Modélisation à deux fluides du mélange gaz+gouttes et particules

A.1 Principe de la méthode

La problématique consiste à résoudre un écoulement triphasique gaz-goutte-particule en ne résonnant que sur deux phases. Cette idée a été initiée par Albrecht (2001). Dans le cas d'un écoulement gaz-goutte-particule, on suppose que la phase continue est composée du mélange gazeux et des gouttes. La phase porteuse, indicée 1, est donc composée de trois constituants : la vapeur d'eau (VE), les gouttes de charge (L) et la charge vaporisée (CV). La phase dispersée est uniquement constituée des particules de catalyseur FCC, elle sera indicée p .

La principale hypothèse introduite pour la mise en place du modèle à deux fluides homogène sont les suivantes : **la vitesse de glissement moyen entre la gaz et le gouttes est nulle**. On suppose ici que les gouttes s'adaptent instantanément aux fluctuations de vitesse du gaz. La vitesse relative moyenne gaz-goutte, calculée directement à partir de la vitesse de glissement locale puisque $\vec{V}_{l,r} = \langle \vec{v}_{l,r} \rangle_l$, est nulle. Cependant, la vitesse de dérive des gouttes $V_{l,d}$, induite par la corrélation entre la distribution spatiale des gouttes et le mouvement fluctuant du gaz (c'est-à-dire le glissement moyen dû au transport turbulent), est non nulle. De plus, les interactions goutte-goutte et goutte-particule sont négligées.

Dans l'approche proposée, on introduit les fractions massiques des différents constituants au sein de la phase continue (c'est-à-dire au sein du mélange gaz-goutte) : \mathcal{Y}_l pour la fraction massique de gouttes, \mathcal{Y}_{CV} pour la fraction massique de charge vaporisée, \mathcal{Y}_{VE} pour la fraction massique de vapeur d'eau, et ceci dans le but de caractériser la composition de la phase continue. On peut alors construire

des relations du type :

$$\alpha_m \rho_m = \alpha_l \rho_l \gamma_m \quad m = l, g \quad (\text{A.1})$$

avec :

$$\gamma_g = \gamma_{VE} + \gamma_{CV} \quad (\text{A.2})$$

$$\gamma_l = 1 - \gamma_g \quad (\text{A.3})$$

D'autre part, on définira la vitesse U_1 de la phase continue (constituée du mélange gazeux et des gouttes de charge) par :

$$U_1 = \gamma_l U_l + \gamma_g U_g \quad (\text{A.4})$$

On exprimera cette vitesse en fonction de la vitesse relative moyenne $V_{r,l}$ et de la vitesse de dérive $V_{d,l}$ entre le gaz et les gouttes :

$$U_1 = U_l - \gamma_g (U_l - U_g) \quad (\text{A.5})$$

$$= U_l - \gamma_g (V_{r,l} + V_{d,l}) \quad (\text{A.6})$$

Selon les travaux de Simonin (1996), on peut exprimer cette vitesse de dérive en fonction des gradients des taux de présence des phases considérées :

$$V_{d,l} = -D'_{gl} \left[\frac{1}{\alpha_l} \nabla \alpha_l - \frac{1}{\alpha_g} \nabla \alpha_g \right] \quad (\text{A.7})$$

avec

$$D'_{gl} = \frac{1}{3} q_{gl} \tau'_{gl} \quad (\text{A.8})$$

qui sous l'hypothèse d'équilibre local s'écrit :

$$D'_{gl} = D'_1 \quad (\text{A.9})$$

La relation A.7 devient alors (après manipulations utilisant les relations A.1) :

$$V_{d,l} = -\frac{D'_1}{\gamma_l \gamma_g} \nabla \gamma_l \quad (\text{A.10})$$

Et l'expression de la vitesse des gouttes devient alors :

$$U_l = U_1 + \gamma_g V_{r,l} - \frac{D'_1}{\gamma_l} \nabla \gamma_l \quad (\text{A.11})$$

Sous l'hypothèse d'entraînement local ($V_{r,l} = 0$), on peut alors simplifier l'expression précédente :

$$U_l = U_1 - \frac{D'_1}{\gamma_l} \nabla \gamma_l \quad (\text{A.12})$$

A.2 Equations de bilan

A partir des équations du modèle polydisperse et grâce aux relations A.1 et A.12 on écrit les équations du modèle homogène à deux fluides.

A.2.1 Bilan de masse

Les équations de continuité de la phase gazeuse et de la phase liquide permettent d'écrire :

$$\frac{\partial}{\partial t} \alpha_1 \rho_1 + \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_1 \rho_1 U_{1,i} = 0 \quad (\text{A.13})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \alpha_p \rho_p + \frac{\partial}{\partial x_i} \alpha_p \rho_p U_{p,i} = 0 \quad (\text{A.14})$$

Pour évaluer les fractions massiques de chaque espèce de la phase gazeuse, on transporte la fraction massique de l'espèce α , \mathcal{Y}_α . Cette équation s'écrit :

$$\alpha_1 \rho_1 \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{Y}_\alpha + \alpha_1 \rho_1 U_{1,i} \frac{\partial}{\partial x_i} \mathcal{Y}_\alpha = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_1 \rho_1 D'_1 \frac{\partial}{\partial x_i} \mathcal{Y}_\alpha \right) + \Gamma_\alpha \quad \alpha = CV, VE, l \quad (\text{A.15})$$

avec :

$$\Gamma_{VE} = 0 \quad (\text{A.16})$$

$$\Gamma_{CV} = -\Gamma_l \quad (\text{A.17})$$

$$\Gamma_l \quad (\text{A.18})$$

Le terme Γ_l est exprimé de la même manière que dans la modélisation triphasique, c'est-à-dire :

$$\Gamma_l = -n_l \dot{m}_l \quad (\text{A.19})$$

$$= -\alpha_1 \rho_1 \chi_l \dot{m}_l \quad (\text{A.20})$$

où χ_l est le nombre de gouttes par unité de masse de la phase continue (mélange gazeux et gouttes) et \dot{m}_l et le taux d'évaporation d'une goutte isolée ($\dot{m}_l > 0$ lorsque la goutte s'évapore).

Dans le cas étudié, le nombre de Sherwood Sh , traditionnellement calculé grâce à la relation de Ranz & Marshall (1952), sera pris égal à 2 compte tenu de la nullité du nombre de Reynolds particulière des gouttes (la vitesse relative locale entre les gouttes et le gaz est supposée nulle).

La densité volumique de la phase continue s'écrit par définition :

$$\frac{1}{\rho_1} = \frac{\mathcal{Y}_g}{\rho_g} + \frac{\mathcal{Y}_l}{\rho_l} \quad (\text{A.21})$$

$$= \frac{RT_g}{P_g} \left[\frac{\mathcal{Y}_{VE}}{W_{VE}} + \frac{\mathcal{Y}_{CV}}{W_{CV}} \right] + \frac{\mathcal{Y}_l}{\rho_l} \quad (\text{A.22})$$

A.2.2 Bilan de quantité de mouvement

Comme les gouttes font partie de la phase continue et que cette dernière n'échange pas de masse avec les particules, il n'y a pas de terme de transfert lié au transfert de masse dans les équations bilan de quantité de mouvement pour les deux phases considérées.

A.2.3 Bilan du nombre de gouttes de la phase continue

A partir de l'équation de conservation du nombre de gouttes par unité de masse de liquide χ_d du modèle à trois fluides, on obtient l'équation de conservation du nombre de gouttes par unité de masse de la phase porteuse $\chi_l = \gamma_l \chi_d$ suivante :

$$\alpha_1 \rho_1 \frac{\partial}{\partial t} \chi_l + \alpha_1 \rho_1 U_{1,i} \frac{\partial}{\partial x_i} \chi_l = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_1 \rho_1 D_1^t \frac{\partial}{\partial x_i} \chi_l \right) \quad (\text{A.23})$$

A.2.4 Bilan d'enthalpie

Pour les bilans d'enthalpie des phases 1 et 2, on obtient les équations suivantes :

$$\alpha_1 \rho_1 \frac{\partial}{\partial t} H_1 + \alpha_1 \rho_1 U_{1,i} \frac{\partial}{\partial x_i} H_1 = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_1 \rho_1 D_1^t \frac{\partial}{\partial x_i} H_1 \right) + \Pi_1 \quad (\text{A.24})$$

$$\alpha_p \rho_p \frac{\partial}{\partial t} H_p + \alpha_p \rho_p U_{p,i} \frac{\partial}{\partial x_i} H_p = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_p \rho_p D_p^t \frac{\partial}{\partial x_i} H_p \right) + \Pi_p \quad (\text{A.25})$$

Pour avoir accès à la température des gouttes, on transporte aussi l'enthalpie des gouttes de charge suivant l'équation :

$$\alpha_1 \rho_1 \frac{\partial}{\partial t} h_l + \alpha_1 \rho_1 U_{1,i} \frac{\partial}{\partial x_i} h_l = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\alpha_1 \rho_1 D_1^t \frac{\partial}{\partial x_i} h_l \right) + \Pi_l + H_\sigma \Gamma_l \quad (\text{A.26})$$

Les termes de transferts seront écrits de la façon suivante :

$$\Pi_1 = -\Pi_p \quad (\text{A.27})$$

$$= \alpha_p \rho_p C_{p,p} \frac{T_p - T_g}{\tau_{gp}^T} \quad (\text{A.28})$$

$$\Pi_l = -\alpha_l \rho_l C_{p,l} \frac{T_l - T_g}{\tau_{gl}^T} \quad (\text{A.29})$$

$$= -\alpha_1 \rho_1 \gamma_l C_{p,l} \frac{T_l - T_g}{\tau_{gl}^T} \quad (\text{A.30})$$

avec

$$\frac{1}{\tau_{gk}^T} = \frac{\lambda_g}{\rho_k C_{p,k} d_k^2} \text{Nu}_k \quad (\text{A.31})$$

Grâce à l'expression de l'équation A.31, le terme Π_l peut encore s'écrire :

$$\Pi_l = -\alpha_1 \rho_l \chi_l \pi d_l \text{Nu}_l \lambda_{CV/VE} (T_l - T_g) \quad (\text{A.32})$$

Pour les raisons évoquées précédemment dans le cas du nombre de Sherwood, le nombre de Nusselt du liquide sera égal à 2.

Annexe B

Test de sensibilité à la représentation bidimensionnelle dans le cas d'une injection pariétale de gaz dans une colonne verticale

Cette annexe propose d'illustrer l'importance de la représentation tridimensionnelle dans le cas de l'injection de gaz dans une colonne verticale.

B.1 Géométries étudiées

Trois cas, c'est-à-dire trois géométries et donc maillages différents, sont étudiés.

B.1.1 Cas « bidimensionnels »

Les deux cas bidimensionnels étudiés sont construits à partir du maillage de base présenté à la figure B.1. Comme *Saturne_Polyphasique* résoud des écoulements tridimensionnels, il faut élever ce maillage sur au moins deux plans pour pouvoir l'utiliser. Ainsi, deux possibilités s'offrent à nous :

1. l'élever sur une maille en translation (cf. Fig. B.2(a))
2. l'élever en rotation pour obtenir une « portion de camembert » (cf. Fig. B.2(b)), ici l'angle choisi est de 4°

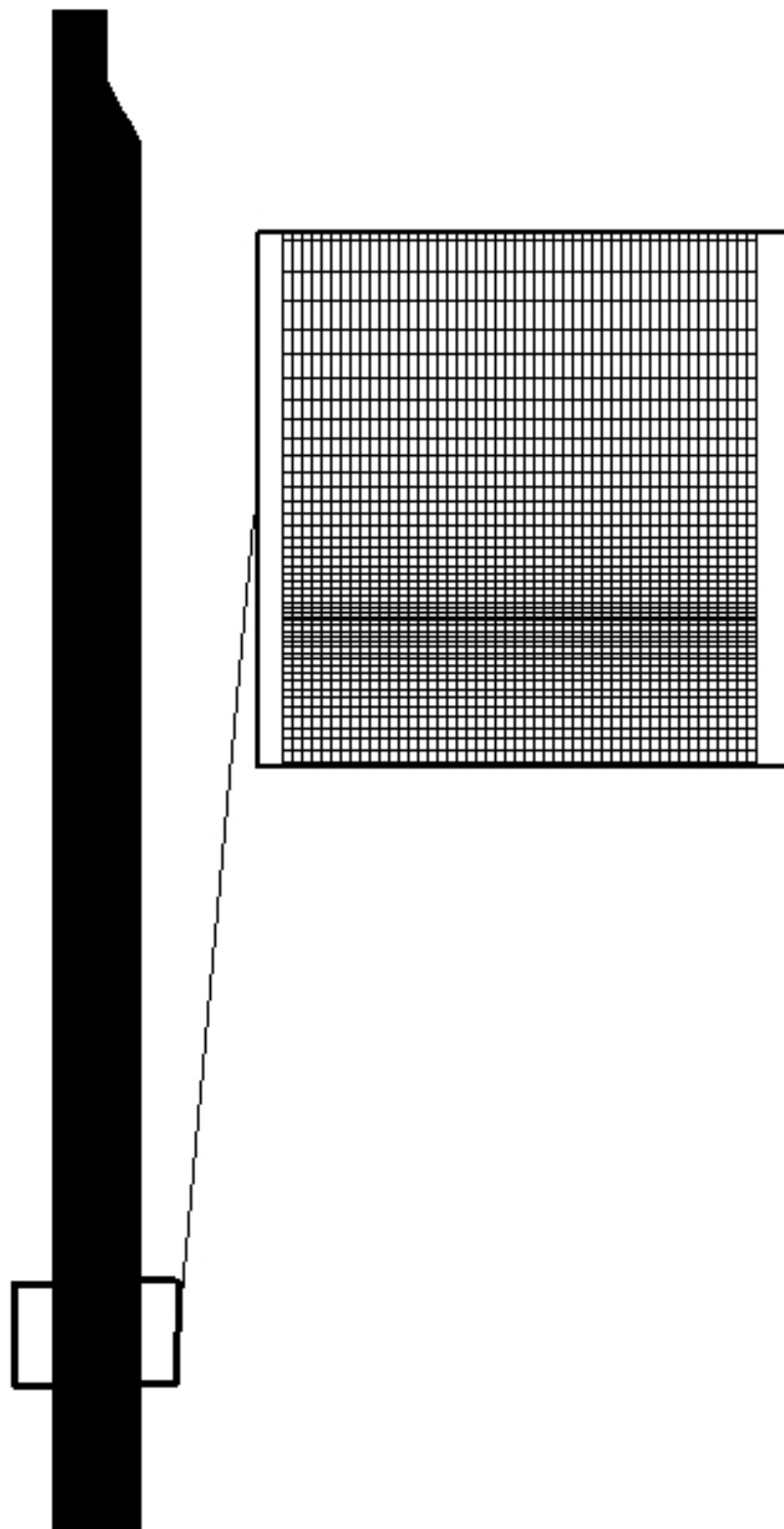


FIG. B.1 – *Maillage cartésien bidimensionnel.*

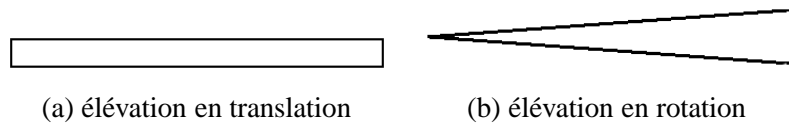


FIG. B.2 – Schémas représentatifs des élévations des maillages bidimensionnels.

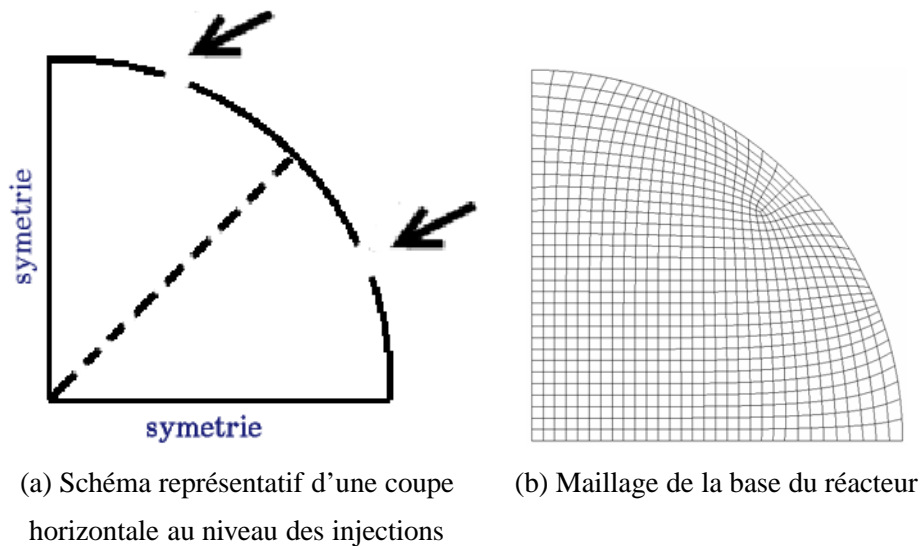


FIG. B.3 – Coupe horizontale du quart de réacteur.

B.1.2 Cas « tridimensionnel »

Le maillage de quart est maillé de la façon suivante. La base est d’abord maillée en « ogrid » puis élevée.

Deux jets pénètrent dans ce réacteur.

B.2 Paramètres de calcul

Les propriétés thermodynamiques du gaz sont identiques pour tous les cas (cf. Tab. B.1).

Les trois cas sont équivalents dans le sens où la vitesse d’injection est la même et les rapports des débits lift/injection sont conservés (cf. Tab. B.2). Cependant, il faut noter que les cas ne concordent pas au niveau du rapport de quantité de mouvement entre le lift et l’injection de charge.

On souhaite que le rapport des débits d’injection et de lift soit équivalent pour les maillages 2D rectangle et 2D cylindrique. Si on conserve les mêmes vitesses (d’injection et de lift) pour les deux

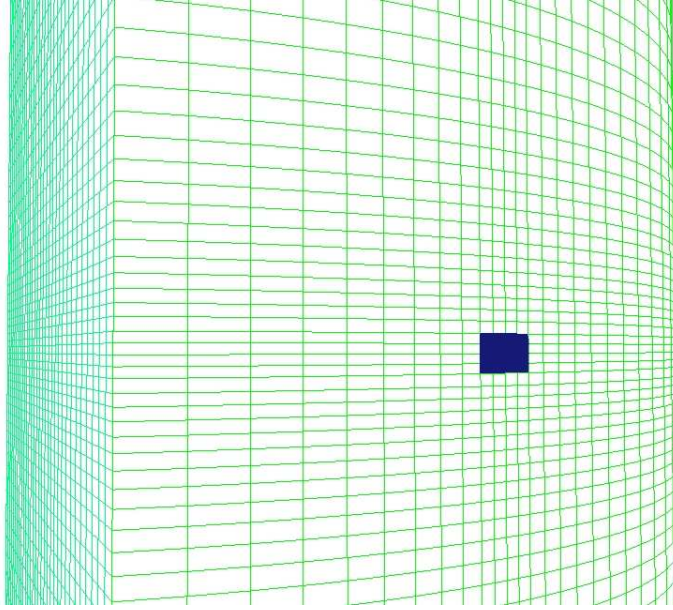


FIG. B.4 – Maillage du quart de réacteur : zoom sur les mailles d'injection.

Masse volumique	0.63	$kg.m^{-3}$
Viscosité cinématique	$3,7.10^{-5}$	$m^2.s^{-1}$

TAB. B.1 – Propriétés physiques du gaz.

simulations, et qu'on note R la largeur du demi-réacteur et e l'épaisseur verticale de l'injection, on a :

$$\frac{2\pi R e_{cyl}}{\pi R^2} = \frac{L e_{rect}}{LR} \quad (B.1)$$

$$\text{donc : } 2e_{cyl} = e_{rect} \quad (B.2)$$

L'épaisseur de l'injection du maillage 2D cylindrique sera donc deux fois plus mince que celle du maillage 2D rectangulaire.

Pour le maillage tridimensionnel on garde le même rapport de débit entre le lift et l'injection de charge.

B.3 Résultats

Les tests ont été effectués pour un écoulement monophasique à masse volumique constante.

Les figures B.5 et B.7 présentent les champs du module et des vecteurs de la vitesse du gaz à 0,04s

	2D rect.	2D cyl.	3D quart
Vapeur de lift			
Vitesse d'injection	0.53	0.53	0.1
Fraction massique de vapeur de charge	0	0	0
Fraction volumique de particules	1.10^{-6}	1.10^{-6}	1.10^{-6}
k_1	0.01	0.1	0.1
ε	0.094	0.094	0.094
ϕ	0.66	0.66	0.66
Injection de charge			
Vitesse d'injection	266	266	266
Fraction massique de vapeur de charge	0.978	0.978	0.978
Fraction volumique de particules	1.10^{-6}	1.10^{-6}	1.10^{-6}
k_1	500	500	500
ε	3.10^6	3.10^6	3.10^6
ϕ	2.10^{-2}	1.10^{-2}	2.10^{-2}

TAB. B.2 – Conditions d'entrées.

de temps physique simulé. Cette figure montre peu de différence de pénétration du jet entre les deux cas bidimensionnels. Par contre, dans les cas tridimensionnels, le jets pénètre plus dans le réacteur en suivant la direction initiale d'injection de 60° de l'horizontale.

Les figures B.6 et B.8 confirment cette tendance. Concernant les champs de vitesse, on remarque que les résultats obtenus avec les deux maillages bidimensionnels ne sont pas identiques ; en effet le jet semble diffuser d'avantage dans le cas 2D cylindrique.

Pour conclure, dans les représentations bidimensionnels, le jet ne pénètre pratiquement pas dans la colonne, et ce n'est pas le cas pour la représentation 3D. Cette rapide étude montre donc que la représentation tridimensionnelle est nécessaire dans le cas d'une simulation d'un réacteur FCC.

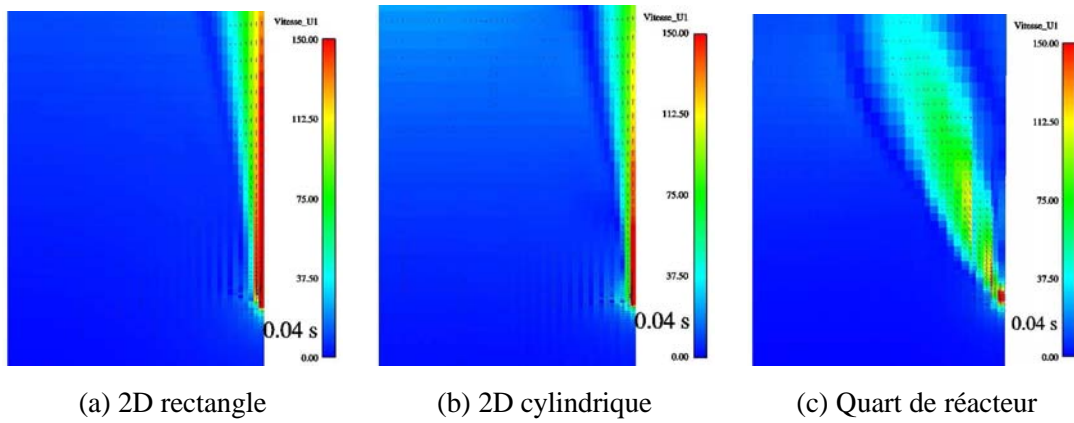


FIG. B.5 – Champs instantanés du module et des vecteurs de la vitesse du gaz à 0.04s de simulation.

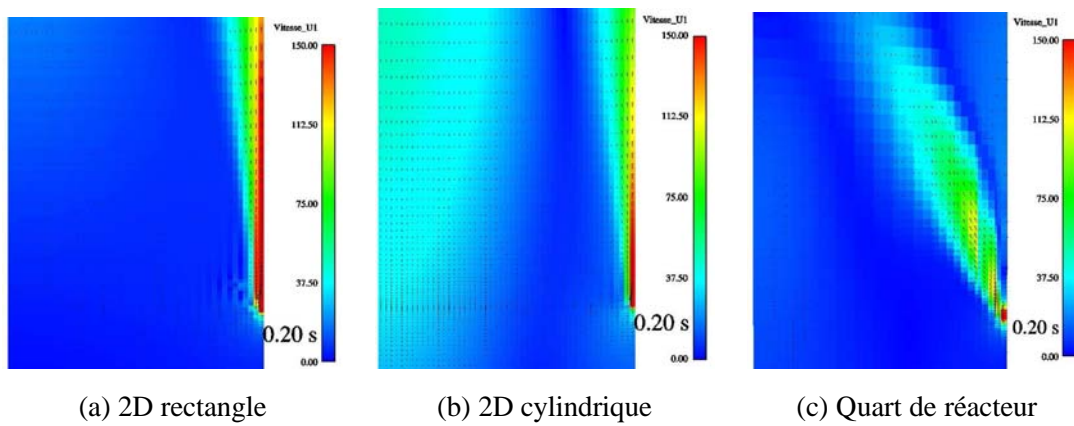


FIG. B.6 – Champs instantanés du module et des vecteurs de la vitesse du gaz à 0.2s de simulation.

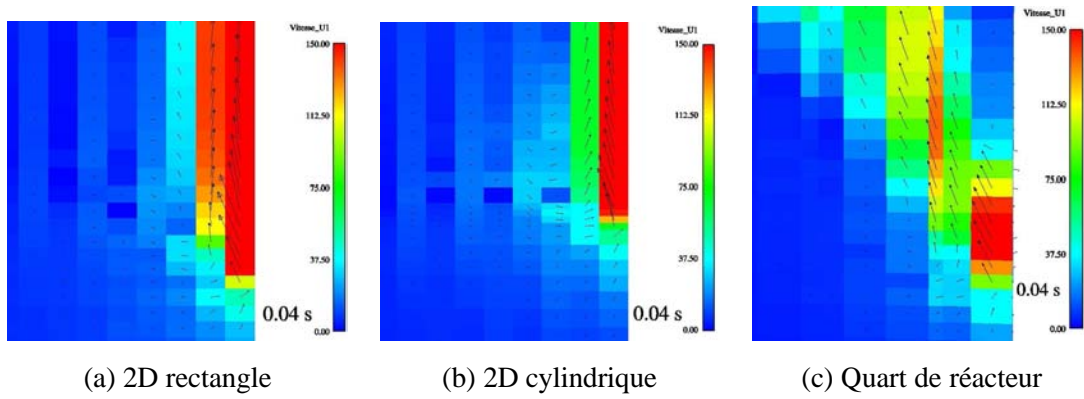


FIG. B.7 – Champs instantanés du module et des vecteurs de la vitesse du gaz à 0.04s de simulation : zoom sur la zone d'injection.

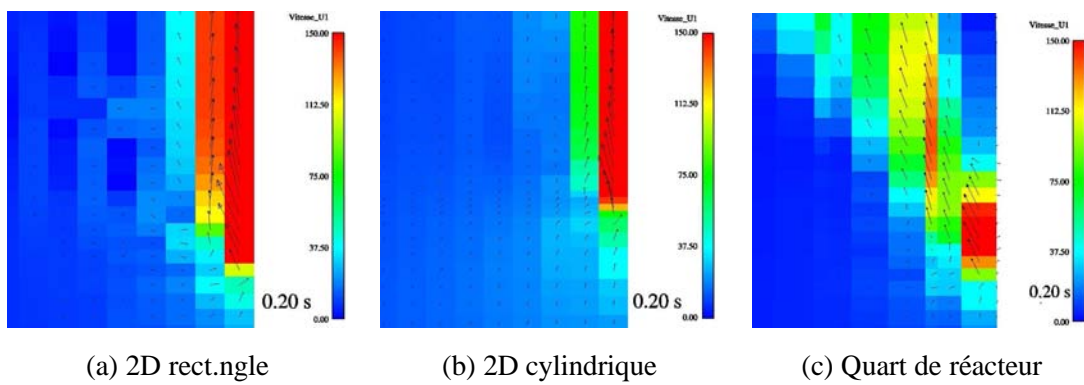


FIG. B.8 – Champs instantanés du module et des vecteurs de la vitesse du gaz à 0.2s de simulation : zoom sur la zone d'injection.

Annexe C

Tests sur la précision du maillage utilisé

Le premier maillage de Grandpuits, très raffiné, ne nous aurait pas permis d'obtenir des résultats en temps raisonnable, c'est pourquoi un maillage « allégé » a été utilisé.

Pour évaluer la précision du maillage de Grandpuits utilisé, nous avons effectué des tests comparatifs sur des géométries simplifiées. Pratiquement, nous avons tronqué le réacteur :

1. nous avons enlevé la partie basse comprenant la rampe d'entrée du lit jusqu'au divergent contenant les injections,
2. nous avons écourté le réacteur d'environ 20 m au-dessus des injections et remplacé la sortie horizontale par un convergent,
3. le maillage obtenu après les deux premières étapes étant symétrique par rapport aux deux plans contenant les injections, nous avons coupé ce maillage dans l'un de ces plans (cf. Fig. C.1).

Nous obtenons alors deux maillages : le maillage test qui comprend environ 18 000 cellules et le maillage très raffiné qui en contient 55 000, ce qui revient à diviser par 5 le nombre de cellules initiales. Le volume minimal d'une cellule du maillage de référence est de 8 cm^3 (2 cm de côté) et le

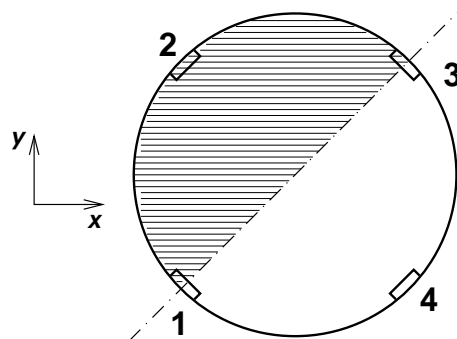


FIG. C.1 – Vue de dessus de la troncation verticale des réacteurs réduits.

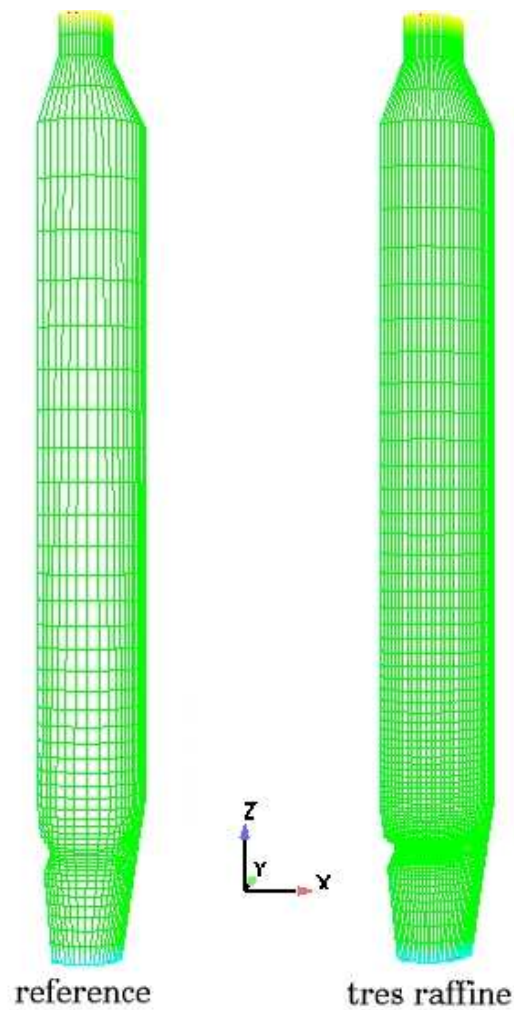


FIG. C.2 – Maillages des « réacteurs réduits ».

volume minimal d'une cellule du maillage très raffiné est de $0,8 \text{ cm}^3$ ($0,9 \text{ cm}$ de côté).

Les figures C.2, C.3 et C.4 présentent les maillages obtenus. La figure C.2 présente les maillages entiers et permet de voir que le maillage très raffiné l'est dans la largeur du réacteur comme dans la hauteur. La figure C.3 présente un zoom sur les faces d'injections de charge. Elles sont 3 fois plus nombreuses dans le cas du maillage très raffiné. Enfin, la figure C.4 présente les deux maillages en coupe horizontale et permet de voir la différence de raffinement entre les deux.

Les résultats obtenus sont comparés sur les figure C sur la fraction volumique de liquide moyenne. Cette figure montre que le maillage de référence surestime la diffusion du jet est en particulier sa largeur. Il prédit cependant un comportement du jet qualitativement correct pour un coût de calcul rela-

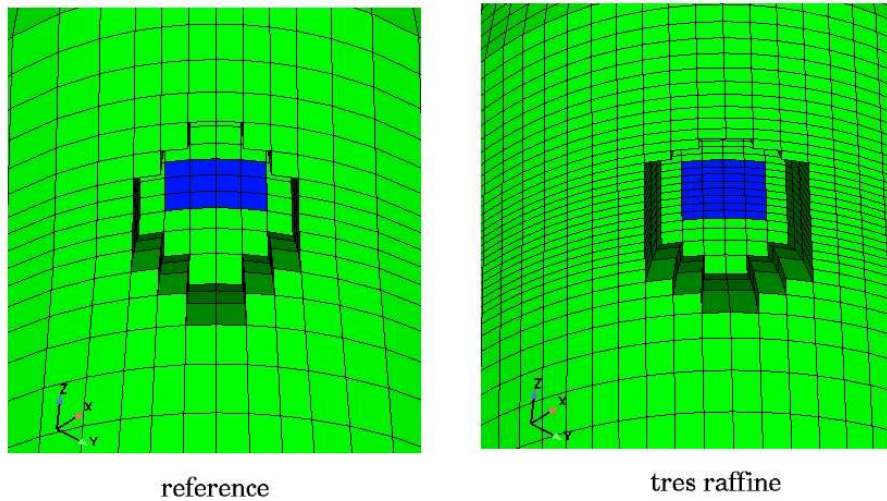


FIG. C.3 – Maillages des « réacteurs réduits » : zoom sur un injecteur de charge.

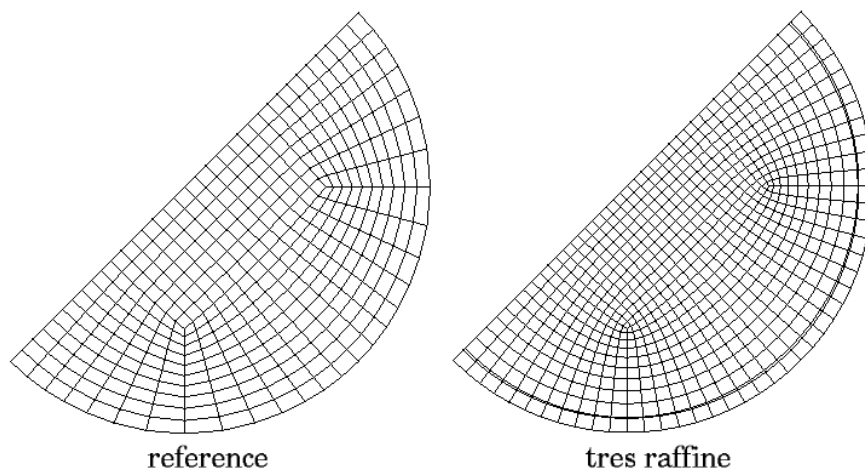


FIG. C.4 – Maillages des « réacteurs réduits » : coupe horizontale dans le tube aval.

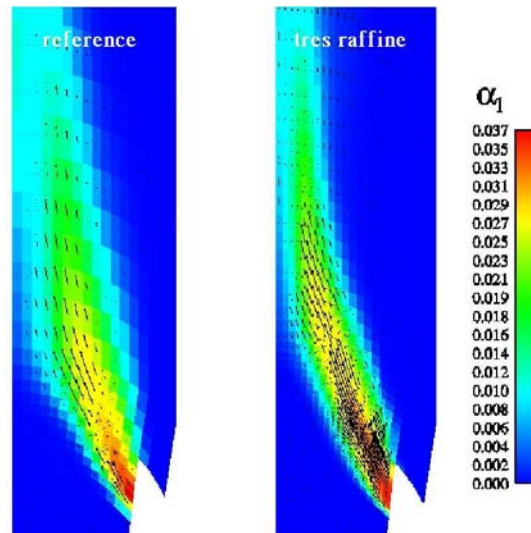


FIG. C.5 – Fraction volumique de liquide moyenne pour le maillage de référence et le maillage raffiné.

tivement faible.

En conclusion, une simulation de l'installation sur le maillage très raffiné est envisagée, mais, pour des raisons évidentes de temps de calcul n'a pas pu être effectuée dans le cadre de ce travail de thèse.

Annexe D

Paramètres numériques choisis dans Edamox

Edamox est l'interface graphique permettant de définir les paramètres d'une simulation effectuée avec *Saturne_Polyphasique@Tlse*. Les paramètres numériques¹ choisis pour la simulation de Grand-puits sont récapitulés dans les figures ci-dessous.

VITESSES

filtre rie & chow gradients de alpha

reactual. des vitesses (en fin de pdt)

reactual. des vitesses (cycle alpha-P)

couleur faces de bord pour reactual RT0

identification des vitesses au 1er pdt

couplage vitesses isotrope

couplage aux faces internes

FIG. D.1 – Sous-rubrique « VITESSES » de la fenêtre « Numérique » d'Edamox.

¹Fenêtre « Numérique » dans edamox

RESOLUTION ENERGIE-ALPHA-PRESSION

Nb max de cycles alpha-pression

max |1 - somme alpha|

affichage max |1 - somme alpha|

restart pdt si non convergence

alpsol en dernier

precision residu alpha

Nb de sous-iter P (reconstr.+implicit.)

reconstruction jusqu'au sous-cycle n =

blending fractions volumiques

coef d'implication convection fractions

solveur de pression

solveur des fractions

relaxation pression (=p0) sur n iteration, n =

gradient cellule de P

actualisation des termes d'accumulation de masse

reactualisation masvol en compressible

resolution de q2-q12 dans le cycle alpha-pression

bloquage des valeurs facettes

relaxation pour le calcul du flux de masse

nb d'oscillations max du flux de masse

relaxation pour les oscillations du flux de masse

Algorithme type Astrid (alpha1=1-somme(alphai), ...)

FIG. D.2 – Sous-rubrique « RESOLUTION ENERGIE-ALPHA-PRESSION » de la fenêtre « Numérique » d'Edamox.

ALGORITHMES			
Couplage Vitesses-Pression	Simplec <input type="button" value="▾"/>		
Couplage Alpha-Pression	Implicit. non lineaire conv+diff <input type="button" value="▾"/>		
gradients de alpha dans la qdm	Standard <input type="button" value="▾"/>		
<input checked="" type="checkbox"/> Convection en formulation conservative	alpmín convection	1e-15 <input type="text"/>	
alpmín diffusion (formulation conservative)	1e-15 <input type="text"/>		
IMPLICITATION			
implication fractions	0 <input type="text"/>	1 <input type="text"/>	1 <input type="text"/>
RECONSTRUCTION			
Parametre max de reconstruction faces internes	0 <input type="text"/>		
Parametre max de reconstruction faces de bord	0 <input type="text"/>		
INVERSION MATRICE			
Methode d'inversion des matrices nphas*nphas	inversion directe <input type="button" value="▾"/>		

FIG. D.3 – Sous-rubriques « ALGORITHMES », « IMPLICITATION », « RECONSTRUCTION » et « INVERSION MATRICE » de la fenêtre « Numérique » d'Edamox.

Annexe E

Convergence des calculs de moyenne

A la date d'aujourd'hui, le calcul non réactif est considéré stabilisé depuis un peu plus de 5 s physique de simulation, temps pendant lequel les moyennes ont été calculées.

Le fait que l'écoulement soit considéré « stabilisé » est justifié dans les sections suivantes par l'étude de l'évolution de la masse totale des phases en présence dans le réacteur et de leur débit en sortie du réacteur.

Pour vérifier et appuyer la convergence du calcul, nous avons adopté la méthode suivante : plusieurs sondes sont placées dans la géométrie. En chacune de ces sondes, nous regardons l'évolution temporelle de la moyenne temporelle de plusieurs variables.

Nous avons choisi d'exposer, dans ce manuscrit, uniquement les résultats des six sondes localisées au centre de la géométrie à 3, 5, 10, 15, 20 et 25 m au-dessus des injections de charge (cf. Fig. E.1), pour quatre grandeurs caractéristiques de l'écoulement : la pression ainsi que la fraction volumique, la vitesse verticale et la température des particules. Les figures E.3 à E.5 présentent les résultats. Globalement, on peut considérer que le temps sur lequel les moyennes ont été effectuées est correct.

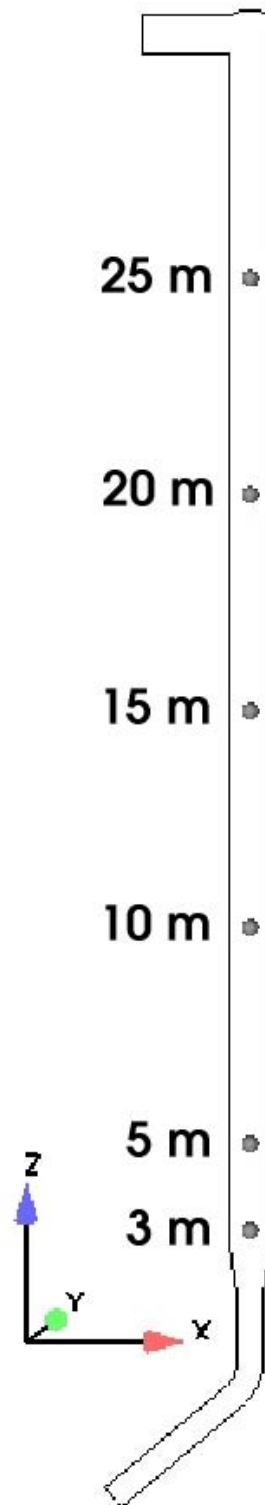
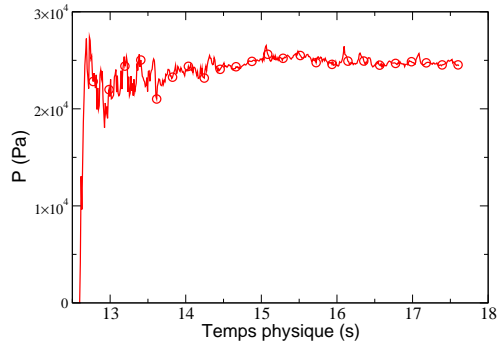
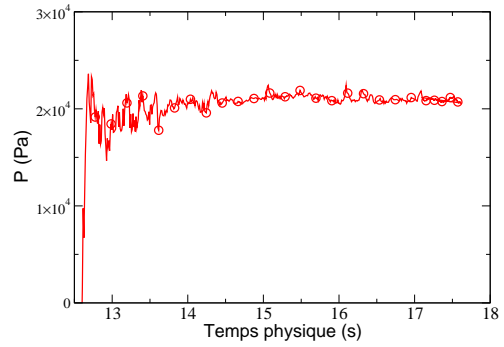


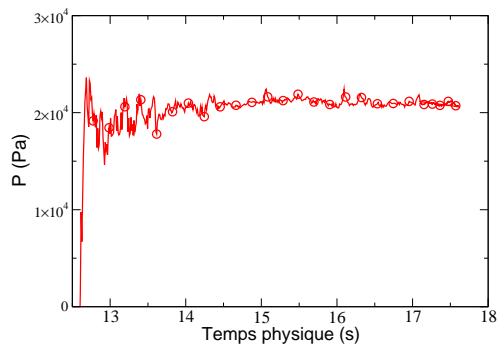
FIG. E.1 – *Emplacement des douze sondes permettant de vérifier la convergence du calcul.*



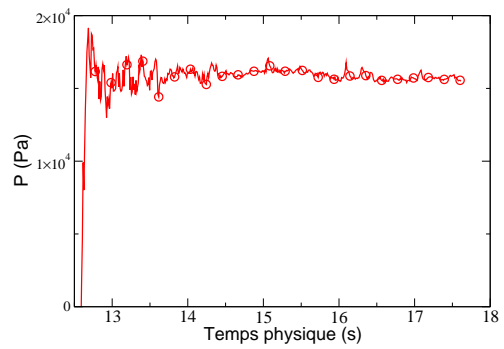
(a) hauteur = 3m



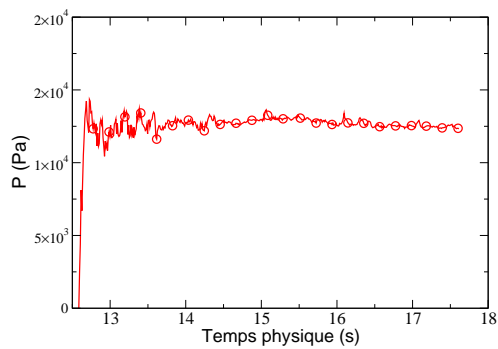
(b) hauteur = 5m



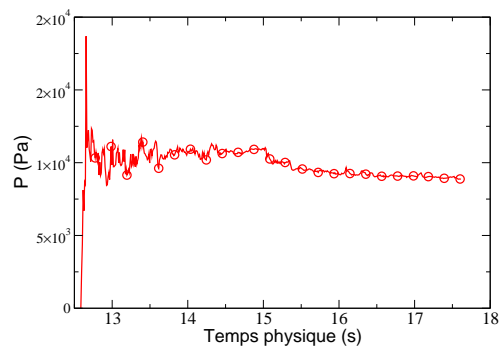
(c) hauteur = 10m



(d) hauteur = 15m

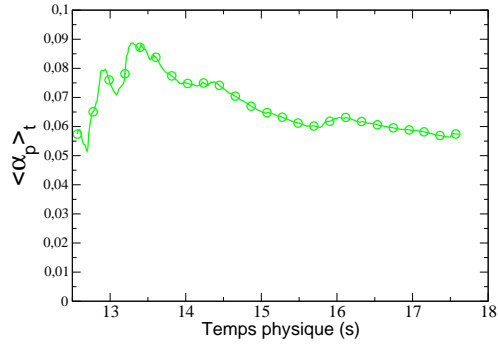


(e) hauteur = 20m

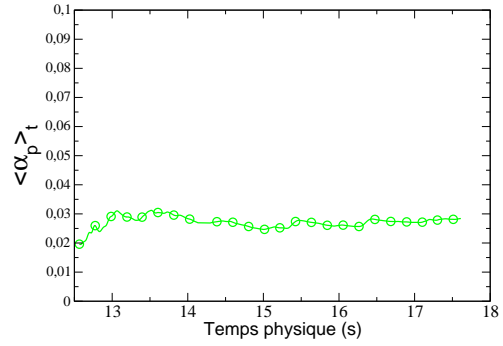


(f) hauteur = 25m

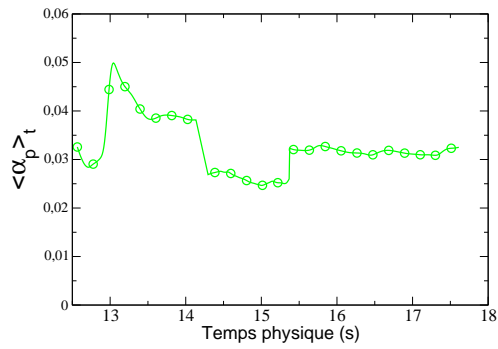
FIG. E.2 – Evolution du gradient de pression moyen au centre de la colonne, à différentes hauteurs.



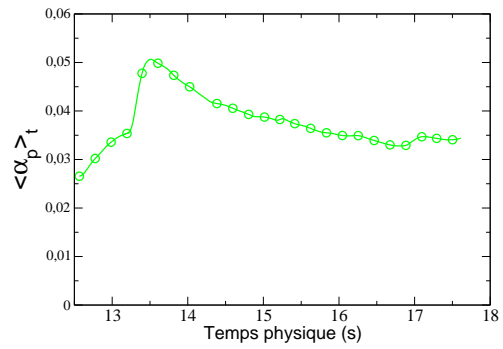
(a) hauteur = 3m



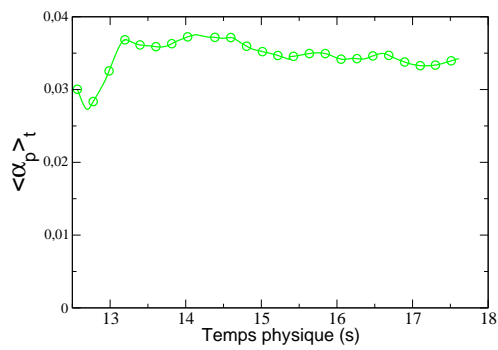
(b) hauteur = 5m



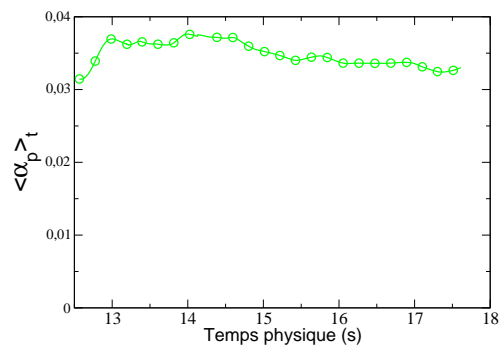
(c) hauteur = 10m



(d) hauteur = 15m

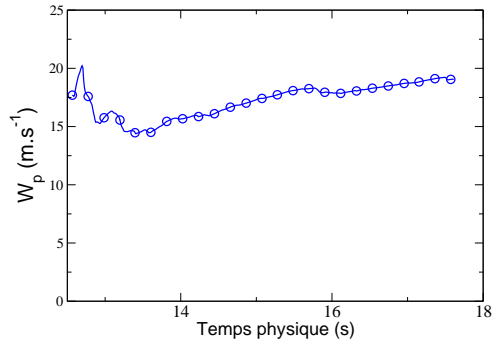


(e) hauteur = 20m

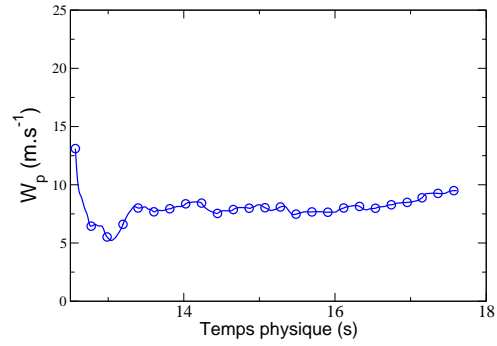


(f) hauteur = 25m

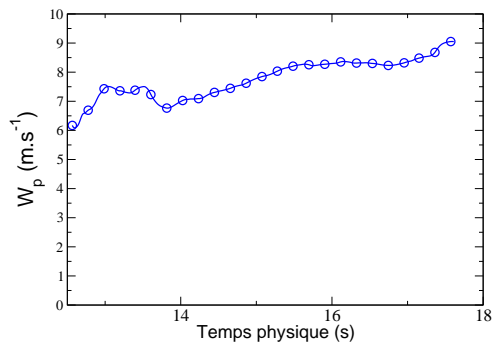
FIG. E.3 – Evolution de la fraction volumique moyenne de particules au centre de la colonne, à différentes hauteurs.



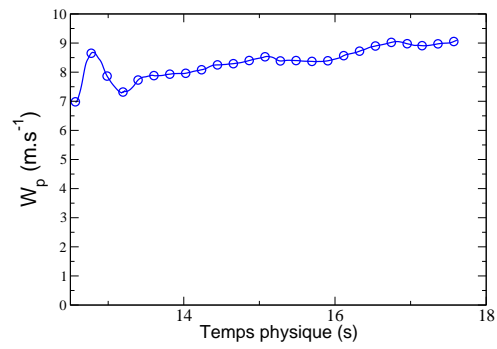
(a) hauteur = 3m



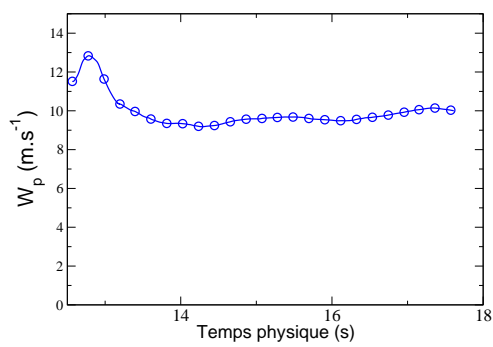
(b) hauteur = 5m



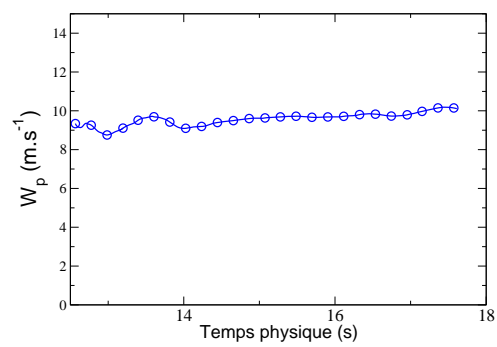
(c) hauteur = 10m



(d) hauteur = 15m

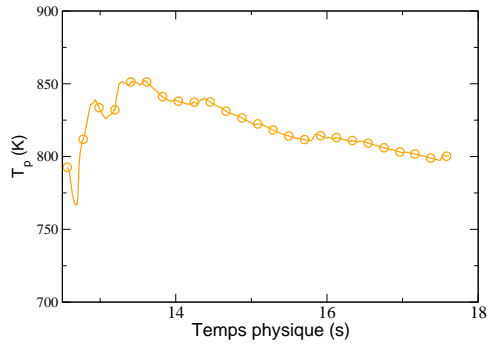


(e) hauteur = 20m

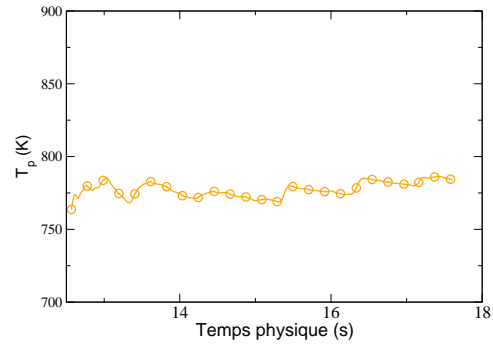


(f) hauteur = 25m

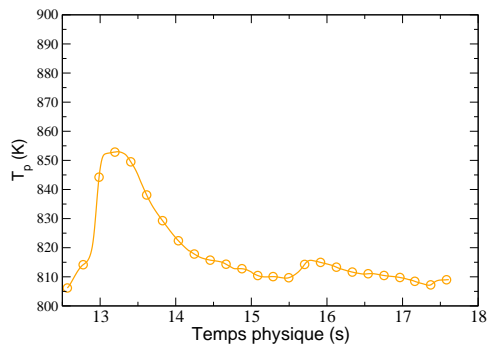
FIG. E.4 – Evolution de la vitesse moyenne selon l'axe z des particules au centre de la colonne, à différentes hauteurs.



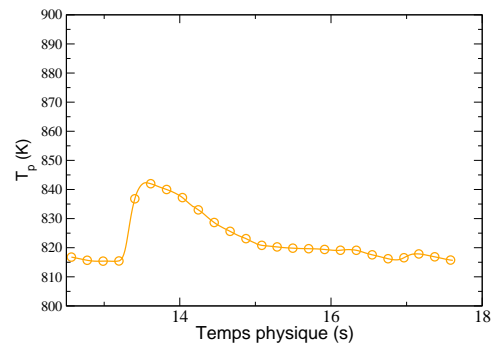
(a) hauteur = 3m



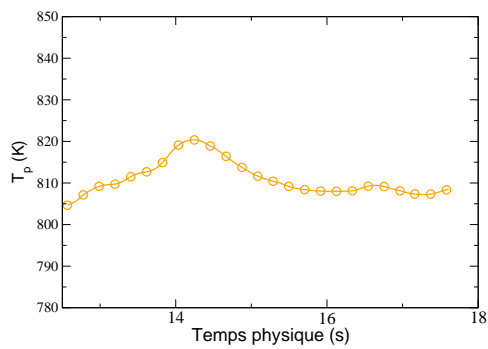
(b) hauteur = 5m



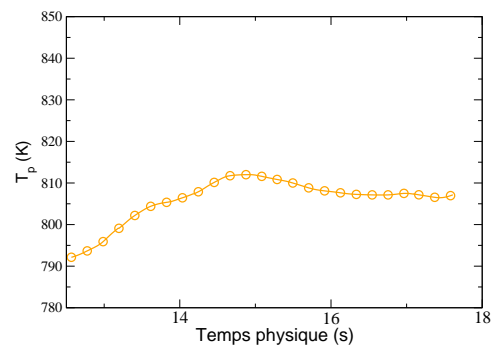
(c) hauteur = 10m



(d) hauteur = 15m



(e) hauteur = 20m



(f) hauteur = 25m

FIG. E.5 – Evolution de la température moyenne des particules au centre de la colonne, à différentes hauteurs.

L'utilisation d'une approche Eulérienne multifluide basée sur la théorie cinétique des milieux granulaires a permis d'effectuer la simulation instationnaire tridimensionnelle de l'écoulement dans un réacteur à lit fluidisé FCC à échelle industrielle en collaboration avec TOTAL.

Les modèles utilisés de transferts et de réaction ont été comparés et implantés dans le code de calcul Saturne_Polyphasique@Tlse.

Une première simulation non réactive a permis de décrire l'hydrodynamique de l'écoulement au sein du réacteur et la zone d'injection de charge. Une simulation, avec réaction de craquage, a montré l'influence de celle-ci sur le comportement hydrodynamique du lit et sur la zone d'injection. Les résultats obtenus ont été comparés aux mesures sur l'installation industrielle de Grandpuits.

Ce travail a permis une meilleure compréhension des mécanismes intervenant dans l'écoulement et en particulier de l'influence de la zone d'injection de charge sur le rendement du réacteur.

An unsteady simulation of the three-phase gas-droplet-particle reactive flow in an industrial FCC riser reactor has been performed by using an Eulerian approach based on the kinetic theory of granular flows, in collaboration with TOTAL.

The transfer and reaction models have been compared and implemented in the Saturne_Polyphasique@Tlse code.

A first non-reactive simulation has been performed to describe the flow hydrodynamics in the riser and especially in the injection area. A reactive simulation has also been run out to show the influence of the cracking reaction on the bed flow hydrodynamics and the injection area. Results have been compared with measurements on the industrial installation of Grandpuits.

This work allows a better understanding of the mechanisms occurring in the circulating bed and especially the influence of the oil injection zone on the reactor selectivity.