



Université
de Toulouse

THÈSE

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

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

Discipline ou spécialité :
Dynamique des Fluides

Présentée et soutenue par :
Pierre Horgue

le : lundi 2 avril 2012

Titre :
Modélisation multi-échelle d'un écoulement
gaz-liquide dans un lit fixe de particules

Ecole doctorale :
Mécanique, Energétique, Génie civil et Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :
Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT)

Directeur(s) de Thèse :
Marc Prat, Dr CNRS
Michel Quintard, Dr CNRS

Rapporteurs :
François Lesage, Maître de conférence ENSIC, MCF
Florian Fichot, Ingénieur de recherche IRSN

Membre(s) du jury :
Alain Liné, Professeur INSA
Carine Julcour-Lebigue, Chargé de recherche LGC
Marc Prat, Dr CNRS

Michel Quintard, Dr CNRS
François Lesage, Maître de conférences, ENSIC, MCF
Florian Fichot, Ingénieur de recherche IRSN

Résumé

On s'intéresse dans ce travail à la modélisation d'un écoulement diphasique gaz-liquide co-courant descendant dans les réacteurs à lit fixe de particules, procédé largement utilisé dans le domaine industriel. En raison de la complexité de l'écoulement, induite par les nombreuses configurations multiphasiques pouvant coexister au sein du lit, les modèles développés directement à l'échelle du réacteur sont généralement issus d'approches semi-empiriques, en considérant l'écoulement homogène. Or, il a été observé que des hétérogénéités locales, géométrique et hydrodynamique, telle qu'une mal-distribution de la phase liquide, entraînaient une diminution du taux de réaction et conduisait les modèles existants à surestimer la productivité d'un réacteur. La nécessité de prendre en compte les phénomènes microscopiques dans un modèle macroscopique à l'échelle du réacteur rend l'utilisation d'approches multi-échelles indispensable. L'écoulement étant cependant d'une nature complexe, le changement d'échelle ne peut se faire de façon directe et nécessite donc la mise en place d'outils de modélisation adaptés à une échelle intermédiaire.

Dans une première étape, la méthode de simulation numérique directe "Volume-Of-Fluid" (VOF) est validée dans le cas d'un film ruisselant dans un tube capillaire. Cette méthode est ensuite utilisée, à l'échelle microscopique, afin de proposer et de valider des relations de fermeture pour un modèle de type "réseau de pores" pouvant être utilisé à une échelle intermédiaire, celle du Volume Élémentaire Représentatif. Ce changement d'échelle est tout d'abord effectué dans le cas d'un lit fixe en deux dimensions, c'est-à-dire un empilement de cylindres entre deux plaques. Cette configuration permet la mise en place d'un dispositif expérimental qui, couplé à des simulations VOF 2D à plus grande échelle, valide l'approche de type "réseau de pores" adoptée.

Le modèle réseau est ensuite étendu au cas d'un lit fixe réel, c'est-à-dire en trois dimensions, dont la géométrie est obtenue par micro-tomographie. Les lois de comportement locales sont redéfinies à l'aide de simulations numériques directes à l'échelle microscopique. Les résultats provenant de simulations de type réseaux de pore sont ensuite confrontés, dans le cas d'une répartition homogène des phases, aux modèles

1D habituellement utilisés pour les écoulements diphasiques en lit fixe. Enfin, une campagne expérimentale est menée afin d'observer, par imagerie scanner, l'étalement d'un jet de liquide sur un empilement de grains. Une comparaison qualitative est ensuite effectuée entre les observations expérimentales et les simulations numériques réseaux dans le cas spécifique de l'étalement d'un jet de liquide.

Abstract

We study in this work the modelling of two-phase cocurrent downflows in fixed bed reactors, a process widely used in industry. Due to the flow complexity, i.e., the presence of different interface configurations and, therefore, different phase interactions, most models have been developed using empirical approaches, with the assumption of a homogeneous flow in the reactor. However, several studies showed that local heterogeneities, geometric and hydrodynamic, such as the liquid distribution, could have a great influence on the flow at the reactor-scale and, therefore, on the reactor performance. Consider the microscopic phenomena in a macroscopic model requires the use of multi-scale approaches. However, due to the flow complexity, the upscaling cannot be done directly and requires the development of modeling tools suitable for an intermediate scale.

In a first step, the direct numerical method “Volume-Of-Fluid” (VOF) is validated in the case of a two-phase flow in a capillary tube with the presence of a thin film. Then, this method is used, at a microscopic level to propose and validate closure laws for a pore-network model which will be used to simulate the flow at the intermediate scale. This upscaling approach is first tested in a two-dimensional case, i.e., an array of cylinders between two walls. This configuration allows the set up of an experimental approach, coupled with 2D VOF simulations at the intermediate scale, in order to validate the pore-network approach.

The pore-network approach is then extended to a real fixed bed, i.e. in three dimension, whose geometry is obtained by micro-tomography. Local laws of the pore-network model are redefined using direct numerical simulations at a microscopic scale. Pore-network simulations are then compared, for a homogenous phase distribution, with 1D models typically used for two-phase flow in fixed beds. Finally, an experimental campaign was set up to observe, by imaging scanner, the spreading of a liquid jet on a fixed bed pilot. A qualitative comparison is then performed between experimental observations and pore-network simulations in the specific case of the spreading of a liquid jet.

Remerciements

Tout d'abord, je souhaite remercier toutes les personnes qui ont participé de près ou de loin au travail effectué au cours de ces trois années. Je remercie mes directeurs de thèse, Michel Quintard et Marc Prat, pour leur apport scientifique ainsi que pour avoir su orienter mon travail et me faire prendre du recul sur un sujet de thèse qui m'avait, au premier abord, destabilisé de part son caractère ambitieux. Ils m'ont ainsi permis de considérablement améliorer mes méthodes de travail et je les remercie grandement pour ces enseignements qui me seront très utiles à l'avenir. Je tiens à remercier également Frédéric Augier, mon encadrant IFPEN, qui s'est impliqué dans une thèse qu'il n'avait pas initié et qui a montré un grand intérêt pour le sujet en général et pour mon travail en particulier. Sa propre vision du problème et ses nombreuses remarques pertinentes ont constitué une source importante d'enrichissement et d'amélioration de mes travaux. Je remercie les personnes qui m'ont accompagné dans la partie expérimentale de cette thèse, domaine dans lequel je n'avais aucune expérience. Merci ainsi à Paul Duru d'avoir permis de mettre en place une campagne expérimentale à l'IMFT et merci également à Elisabeth Rosenberg et Souhail Youssef pour leur aide dans la partie expérimentale menée à l'IFPEN de Rueil. Je remercie enfin Abdelhakim Koudil qui a encadré les premiers mois de la thèse.

Je remercie l'ensemble des membres du groupe GEMP de l'IMFT que j'ai rencontré au cours de ces années de thèse, avec une pensée particulière pour les collègues de bureau, Romain et Paul, et les collègues "pas de bureau mais c'est tout comme", Ian et Fabien.

Je n'oublie pas de remercier tous les "buddies", toulousains ou non, rencontrés il y a longtemps ou récemment, mais avec qui c'est toujours un plaisir de partager un moment, une aprem, un weekend, des vacances... Je pense à Yannick, Ramou, Jojo, Yvan, Iliasse, Aymenn, Julie, Chemeu, Pauline, Ninou, Adrien, Titi, Ronan, Chantal, Bonne Ju, Trompette, Lili, Rémi et Rémi, Katia, Leila, Avril, Charly, Claire, Skafestif, Ptite Pillule, Adil, Hassan, Nathan, Mélo, Willow, Allison, Vinçou, Chocho, Chacha, Fairouz, Dub, Elisa... en espérant ne pas en avoir oublier.

Je tiens à remercier ma famille aussi, pour leur soutien tout au long de ma scolarité

qui s'achève avec ce manuscrit. Merci à mes parents tout d'abord, pour m'avoir donné la possibilité mais aussi l'envie d'apprendre. Merci à Tito et Lolotte pour toutes ces années passées à vous occuper du petit dernier de la famille, le "nabot" comme on dit... Maintenant c'est le "nabot" qui est le plus diplômé, na! Un gros merci aux belle-soeurette, Mélanie et Lulu, aux beaux, Nico et Micka, et à la belle famille, Françoise et Bernard.

Enfin, je remercie celles avec qui je partage ma vie. La première, Cléo, merci pour ton soutien au cours de ces nombreuses années d'études, et aussi pour la patience dont tu as fait preuve en fin de thèse, lorsque, je pense qu'on est d'accord tous les deux, j'étais stressé... et stressant! Merci enfin à la deuxième, Margoton, à qui je dédie cet ouvrage, arrivée il a peu de temps dans ma vie et qui ouvre un nouveau chapitre qui s'annonce encore meilleur que le précédent.

Table des matières

Introduction	7
I Etat de l’art de la modélisation en lit fixe	11
1 Phénoménologie des écoulements en lit fixe	12
1.1 Le régime ruisselant	13
1.2 Le régime pulsé	13
1.3 Le régime à brouillard	13
1.4 Le régime à bulles	14
2 Les deux approches majeures : “homogène” ou “hétérogène”	14
3 Les approches “homogènes”	16
3.1 Transitions de régimes	16
3.2 Perte de pression	19
3.3 Rétention liquide	21
4 Les modèles macroscopiques de type “continu”	22
4.1 Développement de modèles macroscopiques en milieu poreux .	23
4.2 La modélisation macroscopiques en lit fixe	24
5 Les modèles mésoscopiques de type “réseau de pores”	27
5.1 Concept des modèles de type “réseau de pores”	27
5.2 L’approche réseau en milieu poreux	28
5.3 Les modèles adaptés aux lits fixes	32
6 La simulation numérique directe à l’échelle microscopique	38
6.1 Approche Lagrangienne et Eulérienne	38
6.2 Simulations numériques directes diphasiques en lit fixe	39
7 Conclusion et stratégie de modélisation	42

II	Validation de la méthode “Volume-Of-Fluid”	47
1	Introduction	49
2	Numerical Background	51
3	Numerical Method	53
4	Parametric study on the drainage of a liquid phase in a Vertical Tube	55
5	Validation case : Taylor Bubble generation	62
6	Conclusion	65
III	Etude numérique et expérimentale d’un écoulement ruisselant “2D”	67
1	Introduction	71
2	Numerical and experimental approach	75
	2.1 Experimental apparatus and procedure	75
	2.2 Numerical approach	76
3	Experimental Visualizations	78
	3.1 Flow regime transitions	79
	3.2 The trickling regime	83
	3.3 The pulsing regime	84
4	Direct numerical simulations	87
	4.1 The trickling regime	87
	4.2 The pulsing regime	88
	4.3 Influence of gas injection	89
5	Conclusions	90
IV	Développement d’une approche réseau dans le cas d’un écoulement ruisselant “2D”	91
1	Génération d’un réseau de pores dans un lit fixe “2D”	92
	1.1 Génération d’un lit fixe “2D”	92
	1.2 Création du “réseau de pores”	92
2	Modèle réseau d’écoulement diphasique	94
	2.1 Lois de conservation du modèle	94
	2.2 Relations de calcul des débits	96
	2.3 Coefficient de distribution liquide	97
	2.4 Prise en compte des autres régimes d’écoulement	98
	2.5 Conditions limites	101
	2.6 Algorithme de résolution	102

3	Validation des relations locales	103
3.1	Cas de validation	103
3.2	Résultats numériques	105
4	Etude de sensibilité du modèle	110
4.1	Description des paramètres du modèles	110
4.2	Résultats de l'étude de sensibilité	112
4.3	Conclusions de l'étude de sensibilité	115
5	Simulation d'un écoulement ruisselant homogène	115
5.1	Configuration de simulation	115
5.2	Résultats numériques et discussion	116
6	Simulation d'un écoulement hétérogène	118
6.1	Influence des coefficients de distribution statiques	119
6.2	Définition d'un coefficient de distribution dynamique	120
6.3	Résultats et discussion	121
7	Conclusions	123

V Extension de l'approche réseau au cas des lits fixes réels "3D" 125

1	Génération d'un réseau de pores dans un lit de particules	126
1.1	Acquisition de la géométrie du milieu	126
1.2	Extraction du réseau de pores	126
1.3	Définition des paramètres équivalents des éléments du réseau .	129
2	Modèle réseau 3D	130
2.1	Modification du calcul des débits	131
2.2	Comparaisons avec les simulations VOF	131
3	Ecoulement monophasique	135
4	Ecoulement diphasique	138
5	Etude expérimentale de l'étalement d'un jet de liquide sur un lit fixe .	140
5.1	Choix de l'outil de visualisation de l'écoulement	140
5.2	Procédé expérimental	141
5.3	Résultats	142
5.4	Conclusions et Perspectives	143

Conclusion générale 146

A	Développement de la solution d'écoulement ruisselant pour une cellule de Hele-Shaw	165
1	Calcul des profils de vitesse	165
2	Calcul des débits	166
2.1	Pour la phase liquide	166
2.2	Pour la phase gazeuse	167
B	Développement de la solution d'écoulement ruisselant pour une conduite à section circulaire	169
1	Calcul des profils de vitesse	169
2	Calcul des débits	170
2.1	Phase liquide	170
2.2	Phase gazeuse	171
3	Reformulation des débits	171

Introduction

De nombreux procédés de raffinage et de pétrochimie impliquent diverses réactions entre des phases fluides s'écoulant à travers un catalyseur solide. En fonction des propriétés chimiques de la réaction (rapidité, production de chaleur...), différents types de procédés peuvent être mis en place tels que les réacteurs à lit fixe, à lit fluidisé, à lit bouillonnant, etc (Shah, 1978)... L'étude présentée dans ce document porte sur les écoulements diphasiques dans les réacteurs à lit fixe. Ce type de réacteur est constitué d'un empilement de particules de catalyseur, pouvant être de formes et tailles différentes, formant un lit granulaire immobile (Fig 1). Habituellement, un réacteur à lit fixe industriel est composé d'une colonne pouvant aller jusqu'à 15 mètres de hauteur pour un diamètre compris entre 2 et 5 mètres. La taille caractéristique des particules de catalyseur est de l'ordre du millimètre. Trois modes de fonctionnement de l'écoulement gaz-liquide peuvent être utilisés dans le cas des réacteurs à lit fixe : un écoulement co-courant descendant, co-courant ascendant et à contre-courant. Les écoulements co-courants ont l'avantage d'éviter les phénomènes d'engorgement que l'on observe à haut débit dans les écoulements à contre courant. L'écoulement co-courant descendant permet également d'obtenir une meilleure stabilité en évitant la fluidisation du lit que l'on peut observer dans le cadre des écoulements co-courants ascendants. Enfin, l'effet de la gravité dans le cas d'un écoulement descendant induit un écoulement plus mono-directionnel que ses concurrents en réduisant la dispersion axiale. C'est en partie pour ces raisons que le lit fixe ruisselant est l'un des réacteurs les plus rencontrés dans le domaine industriel. Il est couramment utilisé dans le cadre de l'hydrodésulfuration des gazoles, l'hydrocracking catalytique, l'hydrodézotation ; l'oxydation catalytique ou encore l'hydrogénation des huiles végétales.

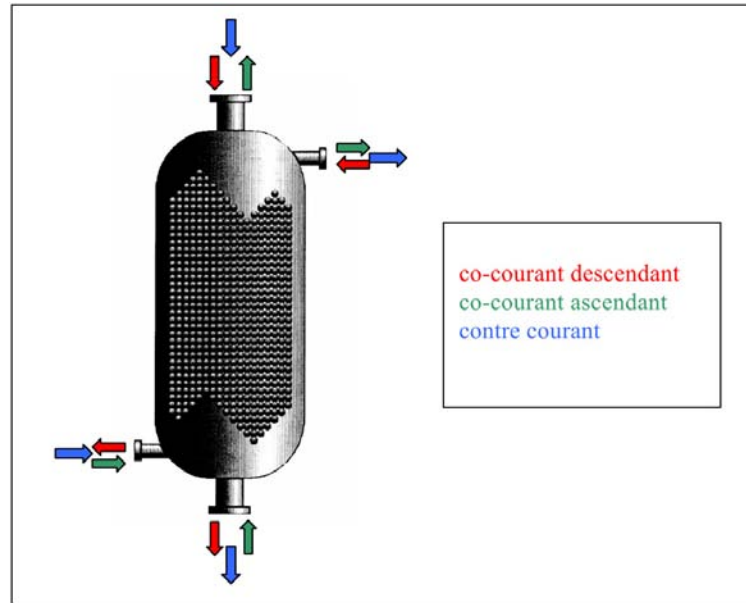


Figure 1 – Schéma d'un réacteur à lit fixe

Ce type de réacteur n'est cependant pas exempt de tout défaut et diverses études (Ng and Chu, 1987; Boyer and Fanget, 2002) ont mis en évidence un effet de maldistribution de la phase liquide au sein du lit qui reste difficilement évitable, même avec une distribution homogène du liquide en tête de réacteur. Ce phénomène entraîne une perte de performance du réacteur car une partie de la colonne ne participe pas à la réaction. Cela peut également entraîner l'apparition de points chauds dans le cas de réactions fortement exothermiques. Il est admis communément que les aspects hydrodynamiques de l'écoulement jouent un rôle majeur dans la conception d'un réacteur à lit fixe. Or, de part la quantité de paramètres intervenant dans ce type d'écoulements, la modélisation de l'hydrodynamique du problème est restée principalement empirique. L'influence des phénomènes se produisant à l'échelle microscopique sur l'écoulement à l'échelle macroscopique a été observée, mais n'est cependant pas parfaitement comprise. En effet, la géométrie complexe du lit de particules, le nombre de forces intervenant dans l'hydrodynamique (capillaire, gravitaire, inertielle) ainsi que la présence d'interfaces mobiles rendent difficilement réalisable le développement de modèles macroscopiques prédictifs à l'aide des procédures classiques de changement d'échelle habituellement utilisées dans les milieux poreux.

Dans ce manuscrit, un état de l’art de la modélisation en lit fixe est d’abord présenté. Nous détaillons les approches historiques actuellement utilisées dans le domaine industriel ainsi que les approches innovantes de modélisation développées par la suite à différentes échelles : microscopique, mésoscopique et macroscopique. Cette étude bibliographique met en évidence la nécessité de développer, par étapes successives, un modèle macroscopique à l’aide de méthodes de changement d’échelle en partant de la modélisation à l’échelle microscopique.

Dans une seconde partie, l’outil de simulation numérique directe à l’échelle microscopique, la méthode “Volume-Of-Fluid” (VOF), est validé sur un cas de film dynamique dans un tube capillaire. Cette étape permet de s’assurer de la validité des résultats numériques de la méthode constituant la base de notre approche multi-échelle. Dans une troisième étape, un procédé expérimental est mis en place afin d’observer l’écoulement diphasique au sein d’un lit fixe de particules “2D”. Cette étape de simplification est nécessaire afin de valider l’approche de changement d’échelle adoptée au cours de ce travail. Cette configuration présente en effet un double avantage : (i) d’un point de vue expérimental, il est possible d’observer de façon directe l’écoulement dans un lit fixe 2D, (ii) d’un point de vue numérique, les configurations “2D” demandent moins de temps de calcul que les configurations réelles ce qui permet de simuler l’écoulement sur des domaines de plus grande taille.

Dans une quatrième partie, nous développons un modèle de type “réseau de pores” 2D que l’on valide par comparaison avec les simulations numériques directes. L’approche de changement d’échelle ainsi validée, nous pouvons, dans une cinquième partie, l’appliquer à un cas réel d’empilement de particules. Un processus expérimental est mis en place afin d’obtenir une configuration réelle d’empilement de grains par micro-tomographie. Cette configuration réelle est ensuite utilisée afin d’extraire un réseau de pores et de liens représentatif de l’empilement. On simule ensuite des écoulements, monophasique et diphasique, à travers le réseau en comparant les résultats en terme de perte de charge et de saturation aux modèles habituels d’écoulements en lit fixe. Enfin, un procédé expérimental est mis en place afin d’obtenir une représentation 3D par imagerie scanner d’un étalement de jet de liquide sur un empilement de particules. Ces observations pourront être ensuite utilisé afin de valider l’approche réseau dans le cas d’un écoulement hétérogène.

Chapitre I

Etat de l'art de la modélisation en lit fixe

Cette revue de l'état de l'art de la modélisation en lit fixe présente, dans une première partie, la phénoménologie des écoulements co-courants descendants gaz-liquide en lit fixe. On peut ainsi mettre en évidence les spécificités de ce type d'écoulement qui rendent inadéquates un grand nombre d'approches habituellement utilisées dans la modélisation des écoulements diphasiques en milieux poreux. Les deux axes principaux de modélisation des écoulements diphasiques en lit fixe sont ensuite présentés : l'approche "homogène" et l'approche "multi-échelle". La première approche, très présente dans la littérature, est habituellement utilisée pour dimensionner les procédés industriels en prédisant, à l'échelle du réacteur, les propriétés macroscopiques de l'écoulement que l'on suppose homogènes (perte de pression, rétention liquide, régime d'écoulement...). Les informations locales de l'écoulement ne sont alors pas connues. Dans la seconde approche, on cherche à modéliser l'écoulement tout en prenant en compte les spécificités locales, géométriques ou hydrodynamiques. En fonction de l'échelle de modélisation considérée, il existe différentes méthodes permettant de simuler l'écoulement diphasique dans le lit. Une revue bibliographique de ces méthodes est présentée en considérant trois échelles de modélisation : microscopique, mésoscopique et macroscopique.

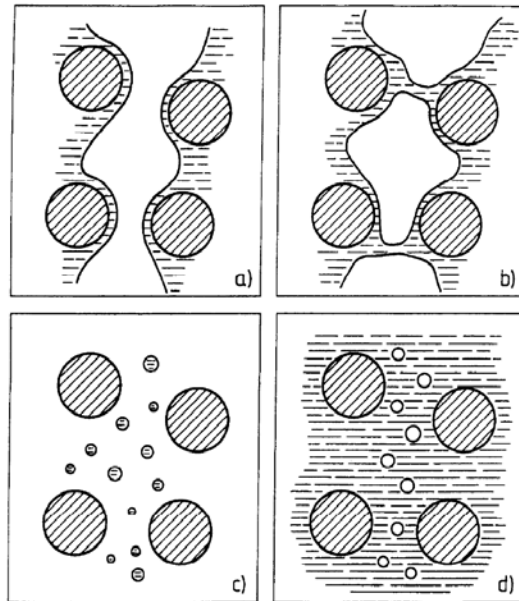


Figure I.1 – Les quatre principaux régimes d’écoulement observables en lit fixe : a) ruisselant, b) pulsé, c) à brouillard, d) à bulles

1 Phénoménologie des écoulements en lit fixe

Lorsque deux phases fluides s’écoulent conjointement, à travers un lit fixe de particules, il existe de nombreuses configurations d’interfaces, appelées régimes d’écoulements dans la littérature, qui dépendent à la fois des propriétés géométriques du lit, des propriétés des fluides et des conditions d’écoulement telles que la vitesse de chaque phase ou encore la pression de fonctionnement. Chaque régime d’écoulement présente des caractéristiques propres de stabilité, de surface de contact et d’interactions entre les phases fluides et la matrice solide. Les régimes d’écoulement impactent donc fortement les mécanismes de transfert de masse et de chaleur lors des réactions qui se produisent au sein du lit. Afin de pouvoir optimiser un procédé, il est donc nécessaire de caractériser les propriétés de ces régimes et de définir leurs limites. Dans le cadre des écoulements co-courants descendants en lit fixe, l’étude de Ng and Chu (1987), couramment citée, distingue quatre régimes principaux d’écoulements (Fig I.1).

1.1 Le régime ruisselant

Pour des vitesses superficielles de gaz et de liquide faibles ($< 1\text{cm/s}$), on observe le régime ruisselant (Fig I.1.a). Ce régime est caractérisé par l'écoulement de la phase liquide sous forme de film le long des particules tandis que le gaz forme une phase continue dans l'espace vide du milieu granulaire. Les phases s'écoulant sous forme continue et clairement séparées, ce régime est qualifié de régime "à faible interaction" entre les phases. Ce régime peut être divisé en deux catégories. Pour les vitesses les plus faibles, il a été observé qu'une partie des grains de catalyseur n'était pas recouverte par la phase liquide, on se trouve alors en présence d'un régime dit "à mouillage partiel" (Baussaron et al., 2007). Pour les débits plus importants, la phase liquide recouvre intégralement la surface des grains et on parle alors de régime "à mouillage complet". Le régime à mouillage complet est un régime couramment recherché dans les réacteurs industriels, car il présente un bon taux de réaction. En effet, toute la phase liquide est alors en contact avec la surface des grains de catalyseurs, favorisant ainsi le transfert des réactifs liquides dans les grains.

1.2 Le régime pulsé

Pour des vitesses superficielles de gaz ou de liquide plus élevées, on observe un régime pulsé (Fig I.1.b). Ce régime apparaît lorsque des ponts liquides se créent dans les espaces interstitiels les plus petits. Sous l'action de l'écoulement de gaz ainsi que des forces gravitaire et inertielle, ces ponts liquides sont mis en mouvement et on observe alors des passages successifs de poches gazeuses délimitées par les ponts liquides. Ce régime est qualifié de régime "à forte interaction" entre les phases. Il présente également de bonnes propriétés en terme de mouillabilité du catalyseur et transfert de masse et de chaleur. Une majorité des procédés industriels en lit fixe fonctionnent ainsi à la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé.

1.3 Le régime à brouillard

Dans le cas d'une vitesse superficielle de gaz grande comparée à celle de la phase liquide, les forces de cisaillement à l'interface liquide-gaz deviennent très impor-

tantes. Des gouttes de liquides sont alors arrachées à la surface du film liquide et entraînées dans la phase gazeuse, on est en présence d'un régime à brouillard (Fig I.1.c).

1.4 Le régime à bulles

Si la vitesse superficielle de liquide est beaucoup plus importante que celle de gaz, la phase gazeuse est alors dispersée sous formes de bulles entraînées au sein de la phase liquide, on observe alors un régime à bulles (Fig I.1.d). Ce régime de fonctionnement peut être utilisé de façon industrielle lorsque la réaction est fortement exothermique et que la phase liquide est le composant limitant de la réaction.

2 Les deux approches majeures : “homogène” ou “hétérogène”

On distingue deux approches majeures dans le domaine de la modélisation en lit fixe. La première approche, que l'on nomme “homogène”, consiste à développer un modèle directement à l'échelle du réacteur. Dans ce type d'approche, le réacteur est vu comme un ensemble parfaitement homogène, une “boite noire”, dont les propriétés de sortie sont prédites en connaissant les conditions de fonctionnement (débits, pression de fonctionnement, etc...) et les propriétés physiques du réacteur (taille de grains, porosité, etc...). Couplés à des modèles cinétiques, ces modèles sont également utilisés en sous-mailles afin de calculer des pertes de charge et des rétentions liquides dans des modèles de réacteur 1D. Le principal inconvénient de ces modèles, que l'on détaille dans la section suivante, provient du fait qu'ils ont été développés de façon semi-empirique. Cette approche semi-empirique est principalement dûe aux différents régimes d'écoulements dont les interactions fluide-fluide-solide, à l'échelle microscopique, sont encore mal comprises. L'influence de ces phénomènes microscopiques sur l'écoulement à l'échelle macroscopique reste difficilement quantifiable ce qui rend le développement direct de modèles théoriques à l'échelle du réacteur actuellement irréalisable. Il semble donc nécessaire d'améliorer

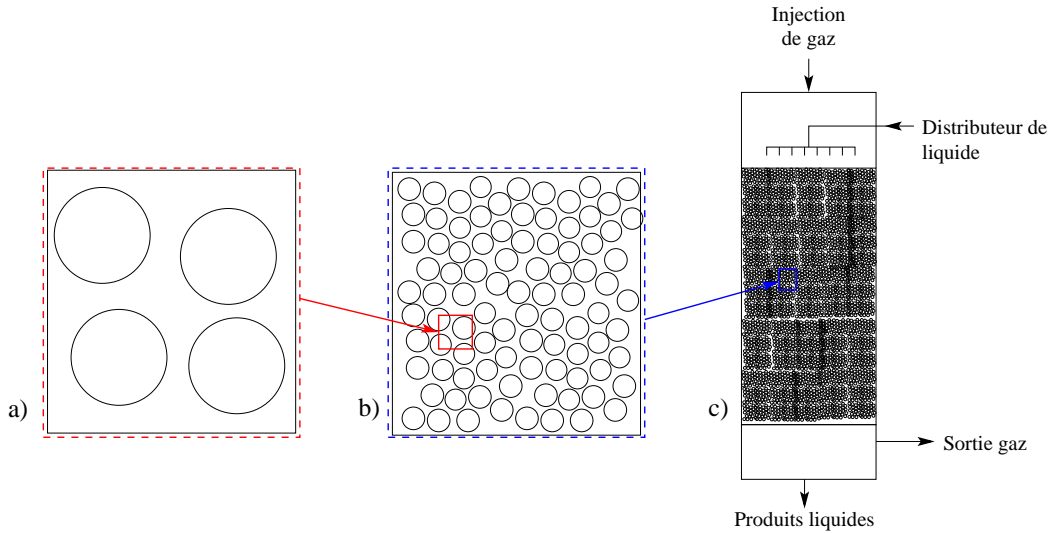


Figure I.2 – Échelles de modélisation : (a) échelle microscopique, (b) échelle mésoscopique (V.E.R.), (c) échelle macroscopique (réacteur)

notre compréhension de l’écoulement à des échelles inférieures afin de pouvoir procéder, par étape, à l’élaboration d’une approche moins empirique.

L’autre type d’approche consiste à simuler l’écoulement en prenant en compte les spécificités locales, géométriques et hydrodynamiques. Ce type d’approche regroupe en réalité un ensemble de méthodes différentes dépendant de l’échelle de modélisation considérée (cf Fig I.2). On distingue trois échelles de modélisation :

- macroscopique : l’échelle du réacteur,
- mésoscopique : un empilement de particules qui restent dénombrables, l’échelle du Volume Élémentaire Représentatif (V.E.R.),
- microscopique : l’échelle de quelques particules seulement.

A l’échelle macroscopique, les particules ne sont pas dénombrables et le lit fixe est vu comme un milieu continu dont les propriétés physiques varient dans l’espace. Ainsi, il n’est pas possible d’obtenir des informations locales à l’échelle de la particule, mais le modèle est cependant en mesure de prendre en compte des hétérogénéités macroscopiques, comme par exemple une variation radiale de porosité. A l’échelle mésoscopique, on trouve la famille des modèles de type “réseau de pores”. Dans cette approche, on représente l’espace vide intergranulaire comme un réseau de pores et de liens. A l’aide de cette représentation simplifiée du milieu, ce

type d'approche permet de prendre en compte les spécificités géométriques locales tout en simulant l'écoulement pour un grand nombre de grains. La difficulté de ce type de modèles réside dans le choix d'une représentation adaptée du milieu ainsi qu'un choix adéquat de lois de comportement. Enfin, à la plus petite échelle, il est possible d'effectuer des simulations numériques directes de suivi d'interfaces. Ces simulations permettent d'obtenir des informations locales très précises sur la structure de l'écoulement et l'interaction entre les phases. En contrepartie, ces méthodes nécessitent des maillages très raffinés, donc des temps de calcul importants, ce qui limite fortement le domaine de simulations.

Dans l'étude bibliographique suivante, nous présentons tout d'abord les approches historiques, considérant le lit fixe comme un ensemble homogène, puis nous décrivons, pour chaque échelle considérée, les méthodes de modélisation de l'écoulement qui ont été précédemment développées.

3 Les approches “homogènes”

Dans ce type d'approche, le lit fixe est considéré comme une “boite noire”, à l'intérieur de laquelle les propriétés, géométriques et hydrodynamiques, sont homogènes. Ces modèles sont généralement développés à l'aide d'approches semi-empiriques basées sur des résultats expérimentaux. En vue de la paramétrisation de procédés industriels, on cherche généralement à prédire 3 paramètres qui sont :

- le régime d'écoulement,
- la perte de pression,
- la rétention liquide.

3.1 Transitions de régimes

Carte des régimes hydrodynamiques

Les régimes ruisselant et pulsé sont couramment utilisés dans les réacteurs industriels à lit fixe. La nécessité de pouvoir estimer avec précision la transition entre ces deux régimes a poussé de nombreux auteurs à focaliser leur travail de recherche

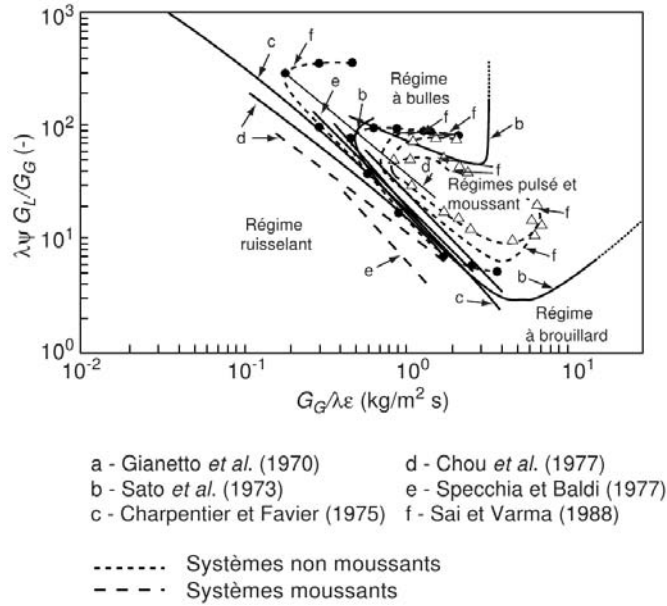


Figure I.3 – Carte des régimes hydrodynamiques établie par divers auteurs (Saroha and Nigam, 1996)

sur la caractérisation de cette transition. A cet effet, on établit généralement, de façon expérimentale, des cartes de transition de régimes dépendant des vitesses d’écoulements des phases ainsi que de leurs propriétés. La figure I.3, provenant de la revue bibliographique de Saroha and Nigam (1996), présente une cartographie des transitions de régime, obtenues par divers auteurs (Gianetto *et al.*, 1970; Sato *et al.*, 1973; Charpentier and Favier, 1975; Chou *et al.*, 1977; Specchia and Baldi, 1977; Sai and Varma, 1988), et tracées en fonction des flux massiques des fluides G_L et G_G , de la porosité ϵ et des propriétés des fluides selon les formules suivantes :

$$\lambda = \left(\frac{\rho_G \rho_L}{\rho_{air} \rho_{eau}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{et} \quad \psi = \frac{\sigma_{eau}}{\sigma_L} \left(\frac{\mu_L}{\mu_{eau}} \left(\frac{\rho_{eau}}{\rho_L} \right)^2 \right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{I.1})$$

où σ_L est la tension de surface entre les deux phases fluides. La détection expérimentale de la transition de régime d’écoulement au sein du lit peut se faire de diverses façons. Les premières études ont détecté ce changement de régime visuellement puis des auteurs ont proposé d’autres méthodes de détection. On peut citer le changement de courbe de pression du système (Chou *et al.*, 1977; Bansal *et al.*, 2005), les fluctuations de pression aux parois du réacteur (Chou *et al.*, 1977; Gunjal *et al.*, 2005a), ou encore des méthodes d’imageries telles que la tomographie ou l’imagerie

par résonance magnétique (Sederman and Gladden, 2001). L'écart observé entre les courbes de transitions de régime est en partie expliqué par ces différentes méthodes de détection. Bien qu'il existe quelques divergences entre les différentes données expérimentales, l'ensemble de ces études met en évidence la nécessité de développer des modèles de prédiction de transition de régime prenant en compte l'ensemble des paramètres du procédé, à savoir : les propriétés du lit (taille des particules, porosité, diamètre du réacteur), les propriétés des fluides (viscosité, densité, tension de surface et angle de contact), et les paramètres de fonctionnement (pression du réacteur, température, vitesses superficielles des phases).

Modèles de transition de régime

Les premiers modèles reliaient le changement de régime aux phénomènes se produisant à l'échelle du pore (Ng, 1986) tandis que les modèles les plus récents corrélaient ces changements à des phénomènes macroscopiques (Grosser et al., 1988; Holub et al., 1992), c'est à dire à l'échelle du lit. Les modèles provenant de l'approche macroscopique présentent actuellement une meilleure concordance avec les résultats expérimentaux tout en prenant en compte les nombreux paramètres décrits précédemment. On peut notamment citer la prise en compte de la pression de fonctionnement dans le modèle de transition (Attou and Ferschneider, 2000), qui permet de prédire la transition de régime dans les réacteurs industriels qui fonctionnent la plupart du temps à des pressions élevées.

Bien que les corrélations, provenant de ces différentes études empiriques, permettent de prédire convenablement les transitions de régimes dans les conditions habituelles des procédés industriels, la mécanique précise des phénomènes microscopiques conduisant à la transition de régime à l'échelle macroscopique reste mal comprise. La modélisation des phénomènes à la plus petite échelle reste donc nécessaire afin d'améliorer la compréhension des transitions de régimes, et notamment de la propagation des instabilités, telles que le déplacement de ponts liquides dans le milieu.

3.2 Perte de pression

La perte de pression au sein d'un réacteur est également un aspect important car cela conditionne l'énergie à fournir pour mettre en fonctionnement le réacteur. Elle dépend des propriétés géométriques du lit, des propriétés des fluides mais également des interactions entre les phases fluides, c'est à dire du régime d'écoulement. Ces influences multiples ont, de la même façon que dans le cas de la transition de régime, incité les auteurs précédents à développer des corrélations de façon semi-empirique. Les modèles développés de cette façon peuvent être divisés en 3 catégories.

Corrélations spécifiques au lit fixe

Des auteurs (Rao et al., 1983; Sai and Varma, 1987) ont cherché à corréler la perte de pression dans le lit aux propriétés physiques du lit (diamètre du réacteur, porosité, taille et forme des particules...) ainsi qu'aux variables de fonctionnement du réacteur (nombre de Reynolds de gaz et de liquide, régime d'écoulement). Ces corrélations étant obtenues de façon expérimentale, leur domaine de validité reste la plupart du temps limité et il est difficile d'extrapoler ces prédictions à des réacteurs de taille industrielle fonctionnant dans des conditions différentes.

Corrélations de type Lockhart and Martinelli (1949)

La perte de pression peut également être corrélée à l'aide d'approche de type Lockhart-Martinelli (Lockhart and Martinelli, 1949). Cela consiste à lier la perte de pression de l'écoulement diphasique à la perte de pression d'un écoulement monophasique à travers la même géométrie. Cette approche, initialement développée pour les écoulements diphasiques en conduite horizontale, a par la suite été étendue à un grand nombre d'écoulements diphasiques en géométrie complexe. Des résultats expérimentaux en lit fixe ont notamment été corrélés à l'aide de cette approche (Charpentier et al., 1969; Ratnam et al., 1993; Fourar and Lenormand, 2001; Fourar et al., 2001). Ces corrélations ont ensuite été affinées afin de prendre en compte différents régimes d'écoulements pour un large spectre de pression de fonctionnement (Ellman et al., 1988; Al-Dahhan et al., 1998). Il est cependant nécessaire de connaître

les pertes de charge monophasiques, qui peuvent être obtenues expérimentalement ou à l'aide de l'équation d'Ergun (Ergun, 1952).

Corrélations basées sur l'équation d'Ergun (1952)

La dernière classe de corrélations est basée sur l'équation d'Ergun, largement utilisée pour prédire des pertes de charge monophasiques dans les lits fixes et qui a par la suite été étendue aux écoulements diphasiques (Saez and Carbonell, 1985; Holub et al., 1992, 1993; Boyer et al., 2007). Cependant, si l'équation d'Ergun provient de considérations fondamentales, son extension aux écoulements diphasiques et la prise en compte des forces d'interaction entre les fluides restent basées sur une approche hautement heuristique. Ces corrélations présentent donc en partie les mêmes faiblesses que les modèles précédents, c'est à dire une perte de fiabilité lors de l'extrapolation des résultats expérimentaux aux conditions industrielles.

Dans cette catégorie, on peut également citer le modèle d'Attou et al. (1999) dont le travail se distingue par la volonté de développer un modèle prédictif sans l'intervention de constantes ajustables. En idéalisant un écoulement ruisselant en lit fixe à l'aide d'hypothèses simplificatrices, Attou et al. (1999) développent un modèle macroscopique dont les interactions entre phases sont décrites par des considérations théoriques. Ce modèle, couramment cité et également utilisé par l'IFPEN dans les procédés en lit fixe, sera par ailleurs utilisé lors de la validation du modèle développé dans ce document.

Principales tendances concernant la perte de pression

L'utilisation d'approches différentes dans le domaine des écoulements en lit fixe a permis de dégager des tendances générales. Tout d'abord, la perte de pression dans le système augmente naturellement avec les débits de gaz et de liquide. A faible débit, la perte de charge croît linéairement le débit de liquide puis suivant le carré du débit pour des vitesses plus élevées (régime inertiel). La perte de pression croît plus faiblement avec l'augmentation du débit de gaz mais on peut noter que l'influence de la phase gaz augmente pour des débits liquides plus élevés (Al-Dahhan et al., 1997). Les propriétés géométriques du lit influencent également la

perte de pression dans le système. Celle-ci augmente en effet lorsque la porosité moyenne du lit diminue. Il a également été observé que la diminution des tailles de particules, à porosité constante, augmentait la surface d'interaction solide-fluide et donc la perte de pression en sus de l'augmentation de la perte de charge liée à la variation de perméabilité. La pression de fonctionnement est également un facteur important qui, par une augmentation de la viscosité du gaz, tend à augmenter la perte de pression dans le réacteur. Il existe également un phénomène d'hystérésis de la courbe de pression lié à la mouillabilité du lit. Des études ont été menées en faisant varier le débit liquide à débit de gaz constant, afin de mettre en évidence ce phénomène (Gunjal et al., 2005a). Il a ainsi été observé que la perte de pression pour un écoulement ruisselant dans un lit sec était plus faible que dans un lit prémouillé, cela étant dû à une plus faible interaction entre les phases liquide et gazeuse. Cet effet n'est pas observable dans les régimes à fortes interactions ou lorsque le lit a été préalablement prémouillé.

3.3 Rétention liquide

La rétention liquide joue également un rôle majeur dans les processus réactifs en lit fixe. En modifiant le contact liquide-solide, elle influence également les transferts de matière et de chaleur avec le catalyseur solide ainsi que le temps de séjour du liquide dans le réacteur.

Les composantes de la rétention liquide

La rétention liquide peut être exprimée de deux façons : (i) la teneur totale en liquide, définie comme le rapport entre le volume de liquide et le volume du réacteur et (ii) la saturation liquide, définie comme le rapport entre le volume de liquide et le volume d'espace vide entre les particules (macroporosité). On considère dans la suite de ce document la saturation liquide, c'est à dire en omettant la fraction de liquide qui s'infiltré dans la microporosité des grains poreux du lit. La saturation liquide est alors divisée en deux types de rétentions dans l'espace inter-granulaire : la rétention statique et la rétention dynamique. La rétention statique est la part de liquide qui stagne dans le réacteur. Elle est généralement constituée de ponts liquides situés dans les espaces interstitiels les plus petits, tels que les contacts grain-grain

ou grain-paroi. Elle est fonction des propriétés géométriques du lit ainsi que des propriétés du fluide. La rétention dynamique est la fraction de volume liquide en mouvement, fonction des mêmes propriétés que la rétention statique mais également des débits de gaz et de liquide.

Principales tendances

La teneur en liquide est très sensible à la taille caractéristique des grains et il a été observé que leur diminution, en favorisant les effets capillaires, entraînait une hausse importante de la rétention de liquide (Gunjal et al., 2005a; Rao et al., 1983). Pour des faibles débits, en régime ruisselant, il a également été observé que seul le débit de liquide influençait la teneur en liquide, l'action du débit de gaz n'étant pas observable. Pour des débits plus importants, dans le cadre de régimes d'écoulement à plus forte interaction, une augmentation du débit de gaz entraîne cependant une baisse de la rétention liquide.

Les corrélations de prédiction de la rétention liquide sont généralement exprimées en terme de paramètre de Martinelli (Charpentier and Favier, 1975; Rao et al., 1983) ou en fonction des variables de fonctionnement du réacteur (Sai and Varma, 1987; Benkrid et al., 1997). A l'instar de corrélations de pertes de pression, elles dépendent des propriétés géométriques du lit, ainsi que du régime d'écoulement. Les premières corrélations ont été établies pour des réacteurs fonctionnant à pression atmosphérique puis les modèles ont été étendus aux réacteurs fonctionnant à pression élevée (Ellman et al., 1990; Holub et al., 1992; Al-Dahhan et al., 1998). Bien que la rétention liquide joue un rôle important dans la détermination de taux de conversion, lié au temps de résidence des phases dans le système, sa prédiction reste principalement empirique et donc une nouvelle fois difficilement extrapolable aux procédés fonctionnant dans des conditions différentes.

4 Les modèles macroscopiques de type “continu”

Dans cette approche, à chaque point du lit fixe est associé un volume élémentaire, comprenant un nombre suffisant de particules pour que ce volume soit considéré comme représentatif. De nombreuses contraintes sont liées à cette notion et on

pourra se reporter aux travaux de Quintard and Whitaker (1994), Quintard and Whitaker (1994), Quintard and Whitaker (1994) pour une étude détaillée. On retiendra l’aspect principal, i.e., le V.E.R. a une dimension plus grande que celle caractéristique des pores de façon à permettre une représentation homogénéisée, i.e., moyenne. Les propriétés de ce V.E.R. sont définies par des paramètres effectifs équivalents prenant en compte la physique interne au volume.

4.1 Développement de modèles macroscopiques en milieu poreux

Les paramètres effectifs peuvent être obtenus à partir de solutions approchées du problème couplé macroscopique-microscopique, souvent appelé problème de fermeture. Le cas des écoulements diphasiques quasi-statiques, c’est à dire dominés par la capillarité avec des interfaces quasi-stationnaires (à l’échelle du temps de relaxation basée sur les caractéristiques du pore), a été particulièrement étudié (Whitaker, 1986; Lasseux et al., 1996). On développe des équations de transport couplées, proches du modèle heuristique dit de Darcy généralisé, qui peuvent s’écrire :

$$\mathbf{v}_l = -\frac{\mathbf{K}_l}{\mu_l} \cdot \nabla P_l + \mathbf{K}_{lg} \cdot \mathbf{v}_g \quad (\text{I.2})$$

$$\mathbf{v}_g = -\frac{\mathbf{K}_g}{\mu_g} \cdot \nabla P_g + \mathbf{K}_{gl} \cdot \mathbf{v}_l \quad (\text{I.3})$$

avec \mathbf{v}_l et \mathbf{v}_g vitesses moyennes des phases liquide et gazeuse et μ_l , μ_g , leur viscosité respectives. Les paramètres effectifs (\mathbf{K}_l , \mathbf{K}_{lg} , \mathbf{K}_g et \mathbf{K}_{gl}) sont obtenus par résolution des problèmes de fermeture. Ces modèles ont par la suite été étendus afin de prendre en compte les effets inertiels des équations de Navier-Stokes et on obtient ainsi un modèle de Darcy généralisé-Forchheimer. On peut alors développer des résultats de changement d’échelle ne s’appuyant plus sur l’hypothèse de quasi-staticité. On citera à ce sujet les travaux de Hassanizadeh and Gray (1979a), Hassanizadeh and Gray (1979b), Quintard and Whitaker (1990), Lasseux et al. (2008) qui conduisent à des équations dynamiques complexes faisant intervenir des termes supplémentaires tels que des dérivées en temps, la pression capillaire, etc... Les problèmes de fermeture ainsi obtenus sont également plus complexes et leur résolution à une échelle intéressante, celle du V.E.R., nécessite le développement d’outils efficaces à cette échelle.

A ce stade, pour l'écoulement considéré dans cette étude, on peut noter les limitations suivantes :

- l'hypothèse de quasi-staticité n'est pas compatible avec l'écoulement en lit fixe étudié. Dans un travail préliminaire à cette thèse, nous avons étudié les moyens de surmonter cette difficulté. Il apparait que la résolution des problèmes de fermeture complexes développés dans le cadre des écoulements en lit fixe nécessite la mise en place d'outils spécifiques aux échelles inférieures, microscopique et mésoscopique,
- les problèmes de fermeture, sans hypothèse simplificatrice supplémentaire, gardent la complexité du problème de Navier-Stokes diphasique originel ce qui limite leur résolution à quelques grains.

Compte tenu de la complexité des problèmes de fermeture et du fait que la taille caractéristique du milieu poreux (le réacteur) est très supérieure à la taille des grains, il est impératif de développer des techniques de résolution à une échelle intermédiaire, l'échelle mésoscopique, que nous détaillerons plus loin. Il est par la suite envisageable de développer ainsi un modèle, issu d'un couplage entre les différentes échelles, contrastant avec l'approche heuristique majoritairement utilisée dans le domaine des écoulements en lit fixe.

4.2 La modélisation macroscopiques en lit fixe

La méthode de modélisation macroscopique la plus utilisée dans le domaine des écoulements en lit fixe est l'approche Euler-Euler multiphasique (Attou and Ferschneider, 1999; Grosser et al., 1988; Jiang et al., 2002). Elle a d'abord été utilisée dans un modèle d'écoulement à une dimension (Attou and Ferschneider, 1999; Grosser et al., 1988), en considérant une porosité uniforme dans le lit ce qui n'est pas le cas des réacteurs industriels. Des études ont par la suite été menées, avec des résultats convaincants en terme de prédiction de perte de pression et de teneur en liquide, en simulant des écoulements axisymétrique avec variation radiale de la porosité du lit (Gunjal et al., 2005a; Jiang et al., 2002).

Dans ce type de modèle, on cherche à résoudre, pour chaque phase k , le système d'équations moyennées de Navier-Stokes suivant :

$$\frac{\partial \epsilon_k \rho_k}{\partial t} + \nabla \cdot \epsilon_k \rho_k U_k = 0 \quad (\text{I.4})$$

$$\frac{\partial (\epsilon_k \rho_k U_k)}{\partial t} + \nabla \cdot (\epsilon_k \rho_k U_k U_k) = -\epsilon_k \nabla P_k + \nabla \cdot (\epsilon_k \mu_k \nabla U) + \epsilon_k \rho_k g + F_{k,l} (U_k - U_l) \quad (\text{I.5})$$

dans lequel ϵ_k représente la fraction volumique de la phase k , ρ_k la masse volumique, U_k la vitesse de la phase k dans le volume de contrôle, μ_k la viscosité, P_k est la pression de la phase k au sein de la cellule et $F_{k,l}$ le terme d'échange de quantité de mouvement entre la phase k et la phase l . Deux paramètres de fermeture du modèle, liés à l'hydrodynamique du problème, sont couramment discutés : la formulation des termes d'échange de quantité de mouvement entre les phases ($F_{k,l}$), solide ou fluide, ainsi que la formulation de la pression capillaire macroscopique résultante des effets capillaires se produisant à l'échelle du grain.

La formulation des termes d'échange de vitesse entre les différentes phases, solide ou fluide, a été étudiée par plusieurs auteurs en se basant sur différents concepts tels que, les modèles à perméabilité relative (Grosser et al., 1988; Saez and Carbone, 1985; Atta et al., 2007), les modèles de fente (Holub et al., 1993) ou encore les modèles d'interaction diphasique (Attou and Ferschneider, 1999, 2000; Lappalainen et al., 2009). Le modèle d'Attou and Ferschneider (1999), incluant une force d'interaction gaz-liquide, semble posséder une base plus physique et être le plus adapté aux écoulements diphasiques en lit fixe.

La formulation de la pression capillaire macroscopique est également un sujet couramment discuté et Grosser et al. (1988) ont tout d'abord défini cette différence de pression entre les phases comme une fonction empirique de la saturation. Attou and Ferschneider (2000) ont proposé un modèle avec des considérations plus géométriques en introduisant également un facteur empirique permettant de prendre en compte la pression de fonctionnement du réacteur. Enfin, Jiang et al. (2002) ont proposé un facteur empirique, lié au degré de mouillabilité, permettant de prendre en compte le phénomène d'hystérésis observé dans les lits fixes. Pour une répartition des phases relativement homogène, ce type de modèle parvient à prédire avec une bonne précision la perte de pression ainsi que la saturation au sein du lit.

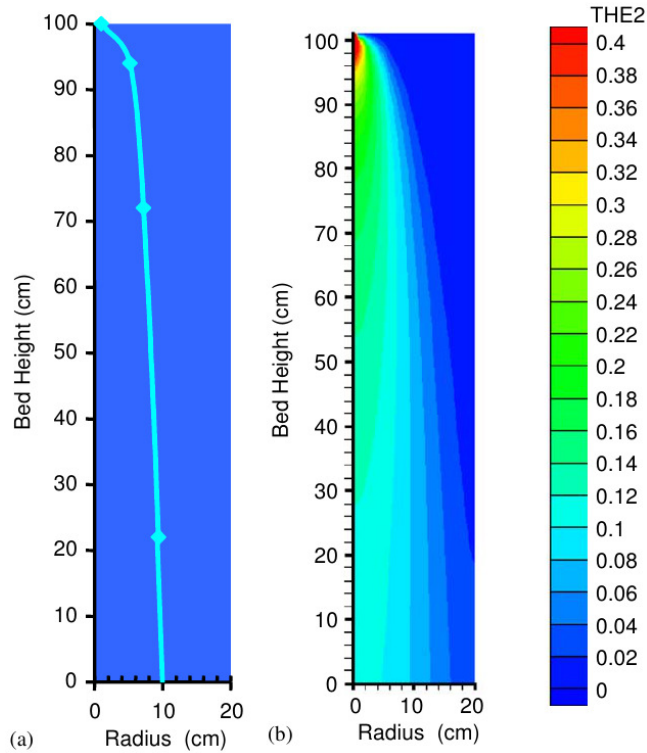


Figure I.4 – Étalement d’un jet de liquide sur un lit de particules (Boyer et al., 2005) : (a) contour expérimental (b) simulation de type Euler-Euler

Afin d’étudier un cas plus hétérogène, Boyer et al. (2005) ont cherché à valider ce type de modèle dans le cas de l’étalement d’un jet de liquide dans un lit de particules en comparant résultats numériques et expérimentaux (Fig I.4). Ils parviennent à la conclusion que la distribution de la phase liquide est très dépendante des relations de fermeture, déterminées à partir de résultats expérimentaux, et qu’il n’est donc actuellement pas possible de proposer un modèle prédictif de l’étalement avec ce type d’approche. Nous avons évoqué dans l’introduction à cette section que la recherche de “fermetures” non heuristiques pouvait être envisagée si on était capable de proposer des solutions approchées impliquant un grand nombre de grains. La piste permettant, à terme, d’améliorer les modèles macroscopiques (forme des équations et détermination des paramètres effectifs) passe, en conclusion de cette étude bibliographique, par le développement de modèles mésoscopiques prédictifs.

5 Les modèles mésoscopiques de type “réseau de pores”

La simulation directe des problèmes sur un grand nombre de grains étant peu envisageable à ce jour, il est donc nécessaire de développer des méthodes approchées. L’une des possibilités consiste à conserver la géométrie réelle et à effectuer une approximation de l’écoulement (voir les modèles quasi-statiques cités précédemment), ce qui n’est cependant pas adapté à l’écoulement complexe étudié dans ce travail. On opte donc pour le développement d’un modèle simplifiant à la fois la géométrie et la représentation hydrodynamique à une échelle intermédiaire, l’échelle “mésoscopique”.

5.1 Concept des modèles de type “réseau de pores”

On suppose, dans ce type de modèles, que l’espace vide d’un milieu poreux peut être représenté comme un réseau de pores, c’est à dire par un réseau de sites (correspondant aux espaces les plus larges) connectés par des liens (correspondant aux constrictiones entre les pores). La première étape de ce type de modèles consiste à créer le squelette du réseau (un exemple 2D est présenté en figure I.5) à partir de la connaissance de la géométrie interne du milieu. Dans les développements les plus récents, ces informations sont extraites d’images 3D de la structure poreuse obtenues par micro-tomographie (Dunsmuir et al., 1991; Coenen et al., 2004; Dong and Blunt, 2009). Il est ensuite nécessaire de développer, pour chaque élément du réseau, pore ou lien, des lois de comportement permettant de reproduire de façon simplifiée l’hydrodynamique locale de l’écoulement. On considère généralement que les pores sont des espaces suffisamment larges, comparés aux liens, pour que la perte de pression soit nulle à l’intérieur. Ainsi, de façon générale dans les modèles “réseau de pores”, un pore est caractérisé par : (i) un volume, (ii) une pression homogène (ou deux dans le cas de modèles à deux pressions), (iii) des fractions volumiques dans le cadre d’écoulements multiphasiques. La perte de pression dans le milieu apparaît à travers les liens, ou constrictiones, du réseau. Il existe deux approches principales de représentation des constrictiones dans un milieu poreux. Dans un premier cas, le lien peut être considéré comme une frontière à volume nul entre deux pores, jouant un

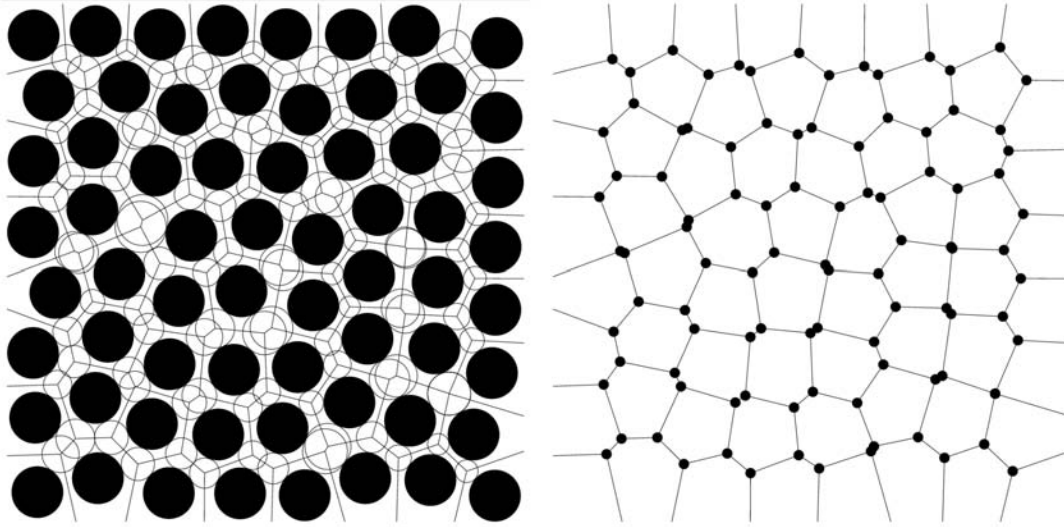


Figure I.5 – Exemple de représentation “réseau de pores” d’un empilement 2D de particules : (a) Diagramme de Voronoi connectant les espaces vides entre les particules, (b) Réseau de pores équivalent constitué de pores et de liens

rôle de barrière à la pénétration d’un fluide. On peut également considérer le lien comme un élément à part entière du réseau, auquel cas il possèdera, au même titre que les pores du réseau, un volume propre ainsi qu’une fraction volumique.

L’approche “réseau de pores” a été utilisée avec succès dans le domaine des écoulements en milieu poreux, comme le drainage d’un réservoir pétrolier par exemple. Les hypothèses simplificatrices formulées, telle que la quasi-staticité des interfaces, sont liées aux conditions particulières de l’écoulement et ne sont donc pas valables dans le cas des écoulements diphasiques en lit fixe, moins dominés par la capillarité. La partie suivante présente une revue bibliographique des modèles réseaux développés dans les études précédentes et met en évidence les spécificités devant être prises en compte dans le cas des écoulements en lit fixe.

5.2 L’approche réseau en milieu poreux

Les premiers travaux sur réseaux de pores ont été effectués par Fatt (1956). L’approche réseau a d’abord été utilisée dans le cadre des écoulements en milieux à faible porosité, sur des problématiques de drainage ou d’imbibition. L’ouvrage de

Dullien (1992), et plus récemment celui de Sahimi (2011), présentent une revue des différents modèles de réseau de pores. Les modèles réseaux représentent une alternative intéressante permettant de simuler de façon précise l’écoulement à l’échelle du volume élémentaire représentatif tout en nécessitant de faibles puissances de calcul. Comparativement à des simulations directes, les modèles réseau peuvent aussi s’inscrire dans une logique de changement d’échelle, comme cela a été suggéré à la section précédente. Ils permettent, en effet, de calculer des paramètres effectifs, tels qu’une perméabilité relative ou une pression capillaire, pour un modèle macroscopique équivalent (Lenormand et al., 1988). On distingue les approches statiques, qui permettent d’établir des états d’équilibre de l’écoulement étudié, et les approches dynamiques, qui permettent de simuler le comportement transitoire de l’écoulement et de suivre l’évolution temporelle du champs de pression et de saturation.

La notion d’équilibre capillaire local

Dans les modèles classiques de type “réseau de pores”, la dynamique de l’écoulement est généralement suffisamment lente pour que l’on puisse considérer localement que toute interface présente dans le milieu est dans un état d’équilibre capillaire. Cette hypothèse fondamentale au modèle permet de formuler la pression capillaire P_c par la loi habituelle de Young-Laplace :

$$P_c = P_a - P_b = \sigma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (\text{I.6})$$

où R_1 et R_2 sont les rayons de courbure principaux de l’interface et σ la tension de surface entre les deux fluides. Cette hypothèse n’est plus valide dans le cadre des écoulements diphasiques en lit fixe et marque la première différence fondamentale qu’il sera nécessaire de prendre en compte dans le développement d’un modèle réseau.

Relation débit-perte de pression

Dans le cas des milieux poreux classiques, les liens entre les pores sont généralement suffisamment fins pour que l’on puisse considérer un écoulement de type “piston” entre les pores sans déformations de l’interface. De plus, les processus de drainage et

d'imbibition étant suffisamment lents, on peut supposer négligeables les effets inertiels et considérer que l'écoulement suit dans chaque lien une loi de Poiseuille. Ceci permet de relier directement les débits dans les liens aux pertes de pression entre les pores. Des études ont cependant montré que dans le cas d'écoulements multiphasiques dans des liens "réels", c'est à dire à section non circulaire, la phase mouillante occupait les coins du canal tandis que la phase non mouillante occupait l'espace vide central. Ce phénomène a pour effet de modifier la connectivité entre les phases et donc les lois de passages entre les pores. Diverses études ont donc été menées afin de caractériser les changements de paramètres (mouillabilité, perméabilité relative...) en fonction de la configuration des phases fluides à l'intérieur d'un passage entre pores (Jerauld and Salter, 1990; Blunt, 1997; Blunt et al., 2002).

La notion de pression capillaire seuil

Dans les milieux poreux usuels, dont la taille caractéristique des pores est très inférieure à la longueur capillaire, l'écoulement est conditionné par les effets capillaires. L'invasion d'un élément du réseau par la phase pénétrante est donc habituellement liée à une notion de pression capillaire seuil. Cette pression, définie en fonction des propriétés géométriques de l'élément considéré, représente la différence de pression nécessaire entre deux pores pour procéder à l'invasion de l'élément par la phase pénétrante.

La validation des résultats numériques obtenus dans le cadre du drainage d'un réseau de pores par comparaison avec des résultats expérimentaux obtenus sur micromodèle (Lenormand et al., 1988) a permis de valider ce type de loi locale de comportement. Un exemple de simulation d'invasion de réseau est présenté en figure I.6.

Définition des paramètres macroscopiques équivalents

La procédure de changement d'échelle, c'est à dire la définition des paramètres effectifs macroscopiques équivalents au réseau de pores, telle la pression capillaire macroscopique ou la perméabilité relative, reste un sujet de discussion. On peut citer comme exemple la pression capillaire macroscopique qui est habituellement

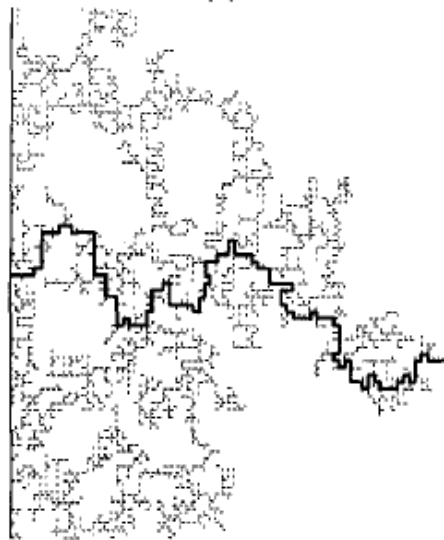


Figure I.6 – Simulation de l’invasion par percolation d’un fluide non-mouillant dans un réseau de capillaires, la ligne en gras représentant le chemin continu entre l’entrée et la sortie (Lenormand et al., 1988)

définie comme fonction unique de la saturation. Or, certains auteurs ont montré que d’autres paramètres pouvaient intervenir et ont ainsi proposé de nouvelles relations faisant intervenir, par exemple, la surface interfaciale spécifique (Joekar-Niasar et al., 2010; Joekar-Niasar and Hassanizadeh, 2010).

Bien que les modèles réseaux soient en constante évolution, notamment dans l’amélioration de la définition des lois de comportement ou des paramètres macroscopiques équivalents, cette approche a montré son efficacité dans le domaine des écoulements diphasiques en milieu poreux, notamment dans les écoulements principalement pilotés par la capillarité. L’extension de ces modèles aux écoulements diphasique en lit fixe paraît donc intéressante et pourrait permettre de simuler les différentes hétérogénéités de l’écoulement décrites précédemment à l’échelle du V.E.R. Les caractéristiques de l’écoulement sont cependant très différentes, et, s’il est possible d’étendre le concept du modèle réseau aux lits fixes, les lois de comportement doivent être entièrement redéfinies. La partie suivante décrit les premières approches “réseaux de pores” développées spécifiquement pour les lits fixes.

5.3 Les modèles adaptés aux lits fixes

Contrairement aux écoulements dans les modèles usuels, qui sont de type “piston” à l'échelle d'un lien, les écoulements diphasiques en lit fixe présentent différentes configurations d'interface dépendant du régime d'écoulement. Ceci induit des interactions entre les phases fluides et la phase solide très différentes et il est donc nécessaire de développer plusieurs lois de comportement permettant de relier les débits des phases aux pertes de pressions dans le lien. De plus, la loi d'étalement de la phase pénétrante n'est également plus valable dans le cas des écoulements diphasiques en lit fixe. Les forces gravitaire et inertielle ne peuvent plus être négligées et influencent également la répartition des phases. Enfin, le phénomène d'hystérésis observé expérimentalement, lié à la mouillabilité du lit, joue un rôle important sur la perte de pression ainsi que sur la répartition des phases. Il est donc nécessaire d'intégrer cette notion dans un modèle réseau que l'on souhaite prédictif.

Il est important de noter que l'approche réseau, dans le cas des écoulements en lit fixe, est à un stade de développement peu avancé. Devant la complexité des phénomènes mis en jeu, les précédentes études de type “réseau” se sont principalement focalisées sur la reproduction qualitative de la phénoménologie des écoulements en lit fixe. Ainsi, l'objectif des travaux présentés n'est pas de développer un modèle prédictif, mais de parvenir, à l'aide de lois de comportement locales, à reproduire qualitativement les phénomènes macroscopiques observés dans les lits fixes.

La modélisation de régimes d'écoulement locaux (Melli and Scriven, 1991)

Les premiers efforts de modélisation de type “réseau de pores” des écoulements diphasiques en lit fixe ont été fournis par Melli et al. (1990), Melli and Scriven (1991)). Ils ont pour cela observé, à l'aide d'une caméra rapide, l'écoulement diphasique dans un lit fixe de particules ”en deux dimensions”, c'est à dire un empilement de cylindres placés entre deux plaques transparentes (Fig I.7). Cela leur a permis de caractériser les régimes d'écoulement dans les pores et les constriction du réseau et ils ont également pu observer la présence simultanée de différents régimes d'écoulements au sein d'un même réseau. Ils ont ensuite développé un modèle 2D “réseau de pores”, définissant de façon plus ou moins quantitative des lois de comportement pour chaque régime d'écoulement, dans le but de reproduire qualitativement les effets

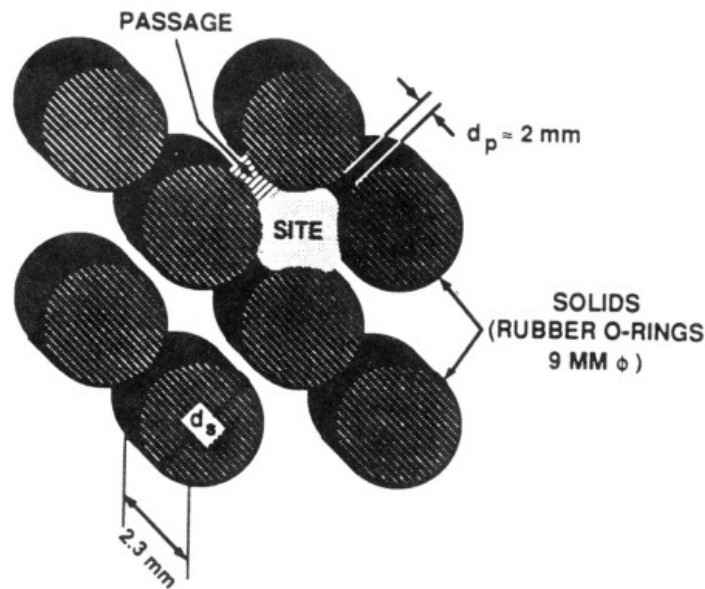


Figure I.7 – Schéma du réseau de cylindres expérimental (Melli, 1989)

d'hystérésis à l'échelle du lit observées expérimentalement. Nous présentons ici les principes fondamentaux du modèle :

1. Chaque lien du réseau possède sa propre saturation en liquide et son propre régime d'écoulement, ce qui implique différentes relations entre perte de pression et débits des phases.
2. Les relations pour chaque régime à l'échelle du lien ont été obtenues à l'aide de développements théoriques moyennant des hypothèses simplificatrices fortes. L'objectif étant de reproduire qualitativement les observations, ces relations n'ont pas été validées quantitativement.
3. Une transition de régime dans un lien ne peut se faire que s'il remplit à la fois un critère d'autorisation et un critère d'accessibilité.
4. Un critère d'autorisation dépend du lien considéré : il est par exemple nécessaire d'atteindre une certaine saturation en liquide dans le canal pour qu'un pont liquide puisse se créer et ainsi induire un régime pulsé.
5. Un critère d'accessibilité dépend des liens voisins : par exemple, un écoulement de la phase gaz dans le lien ne peut se produire que si un lien en amont de l'écoulement autorise également le passage du gaz.

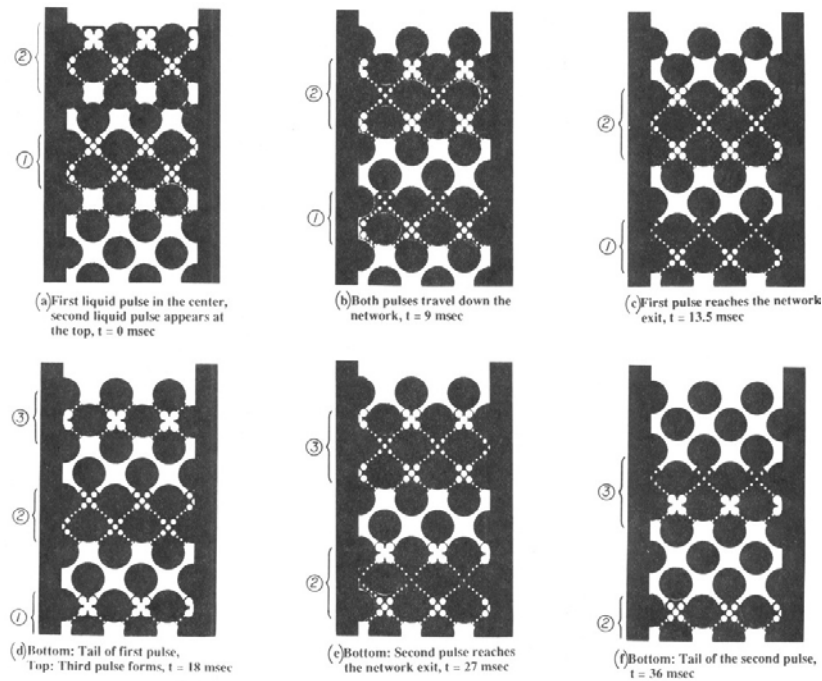


Figure I.8 – Séquence de régime pulsé simulé par le modèle réseau de Melli and Scriven (1991)

6. En l'absence de notion de pression capillaire seuil (chaque élément étant accessible aux deux phases fluides), Melli and Scriven (1991) ont proposé d'associer un coefficient de splitting à chaque lien, permettant de diviser le flux liquide entrant dans un pore entre les différents liens de sortie du pore. Le résultat recherché étant qualitatif, ce coefficient de répartition α , dans leur étude, été défini aléatoirement.

Quelques exemples de résultats de simulations obtenus par Melli and Scriven (1991) sont présentés en figure I.8. Leur approche a permis de reproduire de façon correcte le comportement d'un écoulement diphasique dans un lit fixe opérant dans des états stationnaires et transitoires. Leurs travaux ont également pu montrer, à la fois de façon expérimentale et numérique, que le régime d'écoulement macroscopique était intimement lié aux régimes d'écoulement se produisant à la plus petite échelle. Les résultats du modèle numérique étant qualitativement en accord avec les observations expérimentales, Melli (1989) précise qu'il serait nécessaire, afin de rendre le modèle prédictif, de valider : (i) les équations locales utilisées afin de calculer les débits dans les liens, (ii) les lois locales de transition de régime, (iii) la loi de séparation de la phase liquide.

La modélisation du phénomène d’hystérésis (Van der Merwe and Nicol, 2009)

Un autre modèle “réseau de pores” a également été développé par Van der Merwe and Nicol (2009) dans le but de reproduire qualitativement le phénomène d’hystérésis que l’on observe dans les lits fixes. Dans cette approche, les liens sont représentés de la même façon que dans les modèles réseaux “classiques”, c’est à dire comme une frontière de volume nul entre deux pores nécessitant une certaine différence de pression pour être traversée par le fluide. Les pores sont définis comme des réservoirs dont la surface et la hauteur sont connues afin de pouvoir définir, par l’intermédiaire de la saturation, une hauteur de liquide, et donc une force de gravité. Les principes fondamentaux du modèle sont les suivants :

1. Lorsque la phase liquide envahit les pores, une pression critique, fonction de la géométrie du lien et de l’angle de contact d’avancée du liquide, est requise pour laisser pénétrer le liquide.
2. Lorsque la saturation diminue dans le pore, en cas de coupure d’injection par exemple, la pression de fermeture du lien est définie en fonction de l’angle de contact lorsque la phase liquide recule. Cette pression de fermeture de lien est plus faible que la pression critique, induisant un effet d’hystérésis dans l’écoulement.
3. Le débit de la phase gazeuse dans un lien dépend du volume non occupé par la phase liquide, c’est à dire la saturation du pore en amont.
4. Dans le cas d’un lit prémouillé, on considère qu’il existe des ponts liquides dans les liens entre les pores, empêchant l’écoulement de la phase gazeuse. Une pression minimum est donc nécessaire à l’ouverture du lien à l’écoulement gazeux. Ce mécanisme de séparation de pont liquide est similaire au modèle de Melli and Scriven (1991). Cependant, dans le modèle de Van der Merwe and Nicol (2009), ce pont liquide ne peut apparaître en cours de simulation, c’est une condition initiale lié au prémouillage du lit.

Basé sur le principe d’hystérésis de l’angle de contact entre les phase fluides et la matrice solide, ce modèle permet de reproduire de façon qualitative le phénomène d’hystérésis observé expérimentalement (FigI.9).

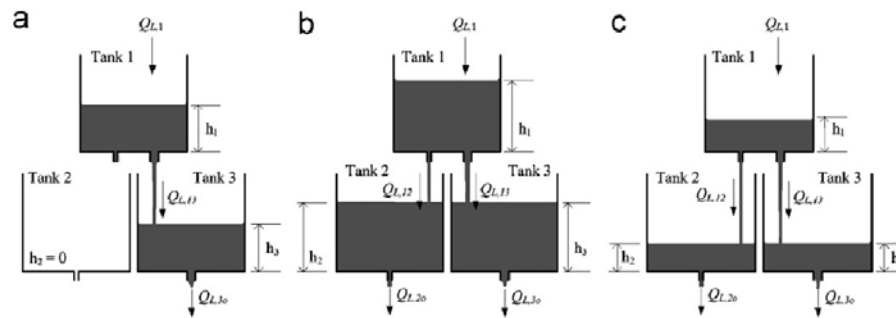


Figure I.9 – Le phénomène d’hystérésis reproduit qualitativement à l’aide d’un modèle réseau de réservoir, les débits aux instants (a) et (c) étant identiques (Van der Merwe and Nicol, 2009)

Modèle de distribution de la phase liquide (Zimmerman et al., 1987)

Considérant, dans le cas d’un écoulement ruisselant, que, d’une part, le liquide s’écoule sous forme de film le long des particules, et, d’autre part, la dispersion de la phase liquide est fortement liée aux contacts entre ces particules, Zimmerman et al. (1987) ont proposé de simuler l’étalement de la phase liquide en considérant la matrice solide du lit sans discrétiser l’espace vide inter-granulaire. Le lit fixe est donc représenté comme un réseau dont les sommets représentent les particules et les liens représentent les contacts entre particules. Un débit de liquide est ensuite attribué pour chaque grain au sommet du lit et les principes du modèle sont les suivants :

1. Un grain peut être partiellement ou complètement mouillé. Dans le cas d’un mouillage partiel, les contacts mouillés du grain sont connus, ainsi le liquide s’écoulera préférentiellement par ce lien. Dans le cas d’un lit en deux dimensions, tel qu’expérimenté par Zimmerman et al. (1987), cela se traduit par des grains qui peuvent être : secs, mouillés partiellement d’un côté ou des deux côtés ou encore mouillés complètement.
2. L’étude se focalisant sur la caractérisation de la dispersion liquide, il n’y a pas de notion de rétention liquide dans le modèle. Ainsi, l’ensemble du débit liquide entrant au sommet d’une particule est redistribué, de façon homogène sur les liens mouillés inférieurs de la particule.
3. Le mouillage de la particule, donc le mouillage des contacts particule-particule, est calculé à l’aide d’un critère de mouillabilité défini par Ng (1986).

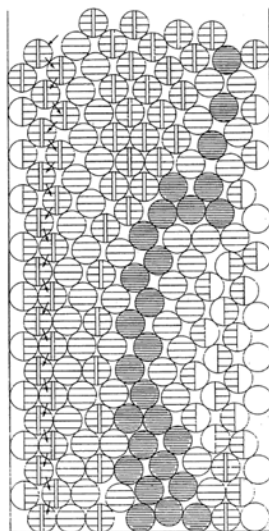


Figure I.10 – Un exemple de simulation d'étalement de phase liquide sur un lit de particules (Zimmerman et al., 1987)

4. Enfin, une loi permet de calculer les débit liquides s'écoulant le long de la paroi dans le cas des particules situées en contact avec la paroi du réacteur.

Un exemple de simulation de mouillage partiel obtenu par Zimmerman et al. (1987) est présenté en figure I.10. L'influence de la gravité a également été illustrée en effectuant des simulations sur des colonnes de particules inclinées. Deux défauts principaux sont relevés par l'auteur : (i) l'absence de prise en compte de l'écoulement de la phase gazeuse et, (ii) le nombre accru de configurations de particules si l'on considère un empilement 3D. En restant dans un domaine en deux dimensions, Funk et al. (1990) ont, par la suite, couplé ce modèle de répartition liquide avec un modèle de réaction à l'échelle du grain afin d'observer l'influence de la maldistribution locale de liquide sur le taux de réaction à l'échelle du réacteur.

Les approches en réseau de pores et de liens, présentées précédemment, sont plus représentatives du milieu, et conduisent à des modèles plus physiques en terme de perte de pression, de saturation et d'influence de l'écoulement de la phase gaz que ce modèle de type “réseau de particules”. Cette approche a cependant mis en évidence l'importance de la notion de contact entre particules voisines sur l'étalement de la phase liquide pour un écoulement ruisselant. Cette notion devra nécessairement être introduite dans les approches réseaux futures afin d'espérer obtenir un comportement réaliste de l'écoulement diphasique.

6 La simulation numérique directe à l'échelle microscopique

A l'échelle microscopique, c'est à dire pour un ensemble de quelques particules, le domaine de simulation est suffisamment restreint pour discrétiser explicitement l'espace vide intergranulaire. On peut alors utiliser des méthodes de simulation numérique directe de suivi d'interfaces.

6.1 Approche Lagrangienne et Eulérienne

Pour un écoulement de deux phases immiscibles, il existe deux approches fondamentales en simulation numérique directe. Les approches de type "Lagrangienne" consistent à discrétiser explicitement l'interface et à suivre le déplacement des noeuds du maillage. On peut citer par exemple la méthode des éléments frontières (Lasseux, 1990) ou la méthode Eulérienne-Lagrangienne (Hughes et al., 1981). Les approches de type "Eulérienne" consistent à transporter un scalaire représentant la fraction volumique de chaque fluide au sein de la cellule de calcul, sur un maillage fixe. L'interface est alors suivie implicitement et sa localisation peut être retrouvée à tout instant en interpolant les fractions volumiques. On peut citer les méthodes : "Volume-Of-Fluid" (Hirt and Nichols, 1981), "Cahn-Hilliard" (Cahn and Hilliard, 1958), "Level Set" (Sussman et al., 1994) ou encore "Lattice Boltzmann" (Chen and Doolen, 1998). Suivant le problème considéré, chaque approche présente des avantages et des inconvénients. Ainsi, l'approche de type Lagrangienne permet de suivre, de façon explicite, l'interface avec une très bonne précision. En contrepartie, il peut s'avérer difficile de simuler un changement du nombre d'interface, comme par exemple la coalescence de deux films liquides voisins. Les méthodes de type "Eulérienne", de part leur représentation implicite, sont en effet plus adaptées à la simulation de ce type de phénomène. On peut cependant observer, dans le cas de simulations de type "Eulérienne", des problèmes de diffusion numérique qui conduisent à une perte de précision du calcul et, dans certains cas, à une disparition de l'interface.

Dans le cas des écoulements en lit fixe, on a vu qu'il existait différents régimes d'écoulement, avec notamment des phénomènes de coalescence de films liquides lors de l'apparition d'un régime pulsé. Les méthodes de type "Eulerienne" paraissent

donc plus adaptées à la simulation de ce type d'écoulement diphasique. Une revue bibliographique des précédents travaux concernant la simulation numérique directe des écoulements diphasiques en lit fixe montre par ailleurs que les auteurs précédents ont préférentiellement utilisé ce type d'approche.

6.2 Simulations numériques directes diphasiques en lit fixe

La méthode la plus couramment utilisée dans les simulations directes en lit fixe est la méthode de type Eulerienne "Volume-Of-Fluid". La description précise de cette méthode, qui a été utilisée dans le cadre de notre étude, est détaillée dans le chapitre II de ce document. Le fonctionnement général de la méthode s'articule en deux étapes :

- On résoud tout d'abord un unique système d'équations de Navier-Stokes, dont les propriétés des fluides (densité, viscosité) sont calculées en fonction des fractions volumiques de chaque fluide présent dans la cellule de calcul.
- À l'aide du champ de vitesse calculé en première étape, on transporte les fractions volumiques qui seront ainsi mises à jour pour le prochain calcul du champ de vitesse.

Afin de capturer l'ensemble de la phénoménologie de l'écoulement, il est nécessaire que le maillage soit suffisamment raffiné pour que la taille des mailles soit inférieure au plus petit élément de l'écoulement. Dans le cas d'un écoulement à bulles par exemple, la taille des mailles doit être inférieure à la plus petite bulle de l'écoulement. Cette contrainte implique des maillages très raffinés induisant des temps de calculs importants. Ceci explique en partie le récent développement de ces méthodes ainsi que le faible nombre d'études ayant simulé des écoulements diphasiques à l'échelle microscopique.

Avec pour objectif d'améliorer la compréhension du processus d'étalement d'une phase fluide sur un grain de catalyseur dans un lit fixe, Gunjal et al. (2005b) ont étudié, numériquement et expérimentalement, l'impact d'une goutte de liquide arrivant à faible vitesse (< 1 m/s) sur une surface plate (Fig.I.11). En modifiant les propriétés des fluides et de la surface solide, ils ont ainsi montré que la méthode "Volume-Of-Fluid" parvenait à reproduire le comportement observé expérimentalement pour l'ensemble des phénomènes observés, que la goutte s'étale ou rebondisse

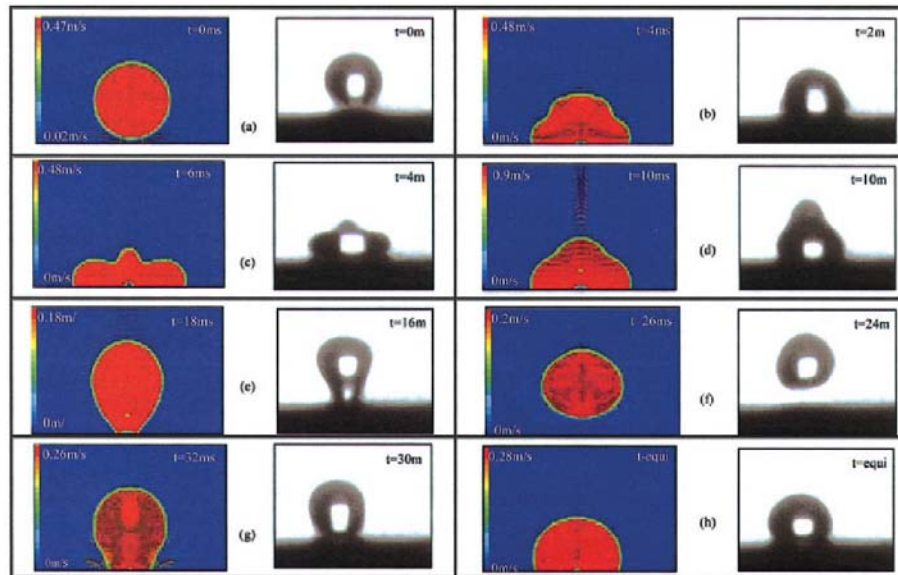


Figure I.11 – Comparaison expérimentale et numérique d’une goutte de liquide rebondissant sur une paroi (Gunjal et al., 2005b)

sur la surface solide. Cette validation fait office de travail préliminaire et les auteurs soulignent que cette méthode de simulation pourrait permettre par la suite d’obtenir des informations détaillées sur l’interaction entre les phases fluides et solides afin de pouvoir éventuellement fournir des informations sur la modélisation de l’écoulement gaz-liquide à l’échelle du réacteur.

Mousavi et al. (2006) ont également expérimenté la méthode VOF pour étudier un écoulement diphasique à travers un lit de particules, dans le contexte des procédés de lixiviation. A l’aide d’un maillage très raffiné à l’échelle d’une particule, les auteurs ont obtenus des résultats numériques en bon accord avec les observations expérimentales (FigI.12). Dans cette étude, les auteurs soulignent également l’intérêt de cette méthode de simulation directe qui peut permettre d’évaluer l’influence de chaque paramètre sur les phénomènes locaux d’étalement de la phase liquide.

Enfin, Augier et al. (2010) ont également effectué des simulations “Volume-Of-Fluid” afin de prédire numériquement l’efficacité de mouillage dans un lit fixe en simulant l’étalement d’une phase liquide, à l’échelle d’un empilement de quelques grains (Fig I.13). Par une validation de la méthode avec des résultats expérimentaux, ils démontrent également que cet outil de simulation numérique directe peut être par-

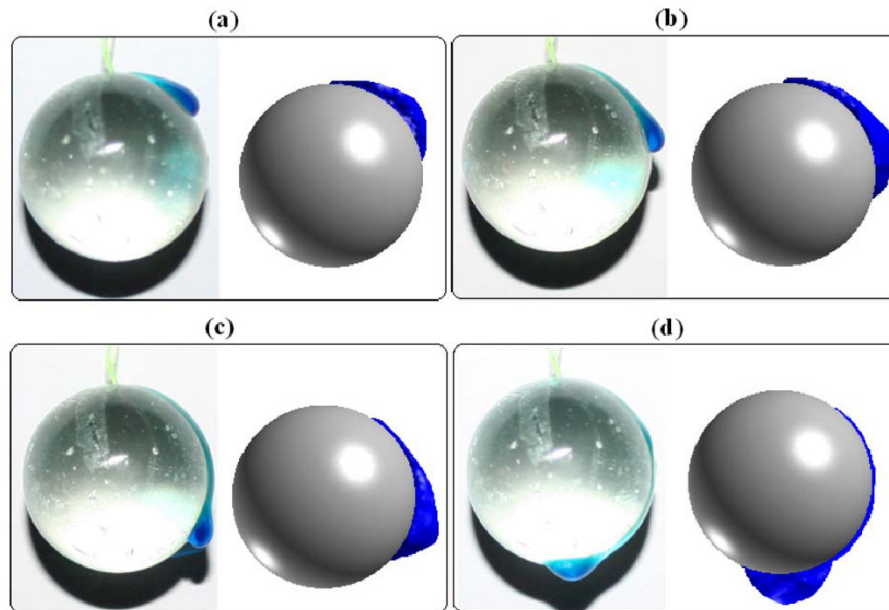


Figure I.12 – Comparaison expérimentale et numérique d'une phase liquide s'écoulant sur une particule (Mousavi et al., 2006)

ticulièrement utile pour améliorer la compréhension des phénomènes locaux et identifier l'influence des différentes paramètres sur l'efficacité de mouillage d'un grain.

Cette revue bibliographique de la simulation numérique directe de l'écoulement diphasique à l'échelle du grain montre que la méthode "Volume-Of-Fluid" est un outil de simulation adapté permettant d'améliorer la compréhension de l'écoulement à la plus petite échelle. C'est donc l'outil que nous choisissons pour mieux appréhender les règles et paramètres nécessaires dans l'approche mésoscopique discutée préalablement. Bien que son utilisation dans le cadre d'une procédure de changement d'échelle ait été envisagée, il n'existe actuellement pas d'étude à grande échelle basée sur ce type de simulations.

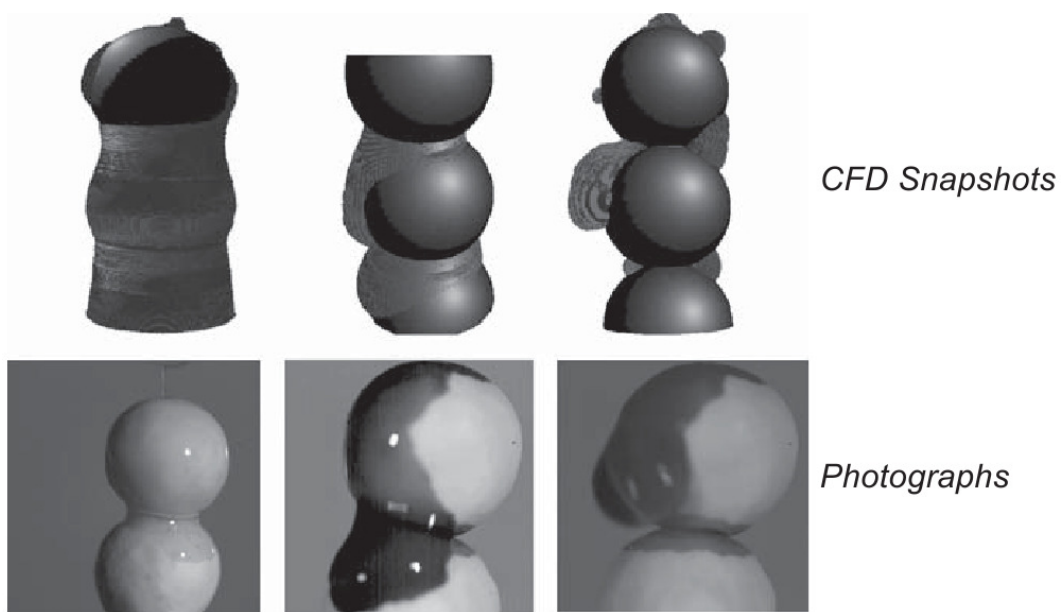


Figure I.13 – Comparaison qualitative de l'étalement, numérique et expérimental, d'une phase liquide sur un empilement de grains (Augier et al., 2010)

7 Conclusion et stratégie de modélisation

De part la complexité des phénomènes mis en jeu dans le cadre des écoulements diphasiques en lit fixes, les premiers modèles de prédiction des propriétés macroscopiques de l'écoulement ont été développés directement à l'échelle du réacteur de manière semi-empirique. En se basant sur des modèles d'interaction diphasique développés pour des géométries plus simples, de nouveaux paramètres effectifs ont été définis permettant de prédire, à l'échelle du lit, et dans de nombreuses conditions de fonctionnement, les propriétés macroscopiques de l'écoulement telles que le régime d'écoulement, la perte de pression ou la teneur en liquide. De part les importantes lacunes concernant la compréhension de l'écoulement à l'échelle de la particule, ces approches ne sont cependant pas basées sur des développements théoriques ce qui empêche la généralisation des corrélations formulées. Ces modèles de type "boite noire" sont, de plus, incapables de simuler les hétérogénéités de l'écoulement observées expérimentalement, qui jouent pourtant un rôle majeur dans le calcul de l'efficacité d'un procédé.

La modélisation en lit fixe s'est donc naturellement tournée vers de nouvelles approches permettant de modéliser ces hétérogénéités en considérant l'écoulement à différentes échelles. Aucune des méthodes de modélisation précédemment développée n'est cependant pleinement satisfaisante. La simulation numérique directe, de type "Volume-Of-Fluid", permet d'obtenir des informations précises sur l'écoulement à l'échelle de la particule. Cette approche nécessite d'importants temps de calcul ce qui limite les simulations à des domaines de quelques grains. Les méthodes mésoscopiques, de type "réseau de pores", permettent de simuler un écoulement diphasique pour un grand nombre de grains. Il est cependant nécessaire dans ce type d'approche de définir des lois locales de comportement reproduisant fidèlement l'écoulement. Enfin, les méthodes macroscopiques sont capables de simuler l'écoulement à l'échelle du réacteur mais ont recours à une représentation "continue" du lit. Ce type d'approche permet de prendre en compte, a priori, les hétérogénéités macroscopiques du réacteur mais nécessite que la structure des équations et les propriétés effectives utilisées soient adaptées à la physique de la petite échelle, ce qui est loin d'être le cas pour les écoulements en lit fixe. En effet, les relations de fermeture sont renseignées aujourd'hui soit de manière expérimentale, soit de manière théorique moyennant des simplifications fortes.

Il ressort de cette étude bibliographique la nécessité de développer des approches multi-échelles afin d'établir des modèles macroscopiques prenant en compte les phénomènes microscopiques. Bien que la plupart des auteurs aient souligné l'intérêt de cette démarche, aucune étude n'a, à ce jour, été menée de la plus petite échelle jusqu'à l'échelle macroscopique. L'objectif de ce travail de thèse consiste à réaliser, de façon la plus prédictive possible, la première étape de changement d'échelle, c'est à dire le passage de l'échelle microscopique à l'échelle mésoscopique. On cherchera pour cela à développer un modèle réseau prédictif en utilisant des simulations numériques directes.

La validation de l'approche réseau concernant les écoulements en lit fixe n'étant pas évidente, il a été décidé, dans un premier temps, d'expérimenter cette approche sur un cas simplifié de lit fixe en deux dimensions. Ce lit fixe "2D", constitué d'un empilement de cylindres placés entre deux plaques, est similaire aux expériences menées par Melli (1989) (Fig I.7). Cette approche simplifiée présente les avantages suivants :

- Cette configuration permet de reproduire la majeure partie de la phénoménologie des écoulements en lit fixe.
- Il est possible d'observer de façon directe l'écoulement en mettant en place un procédé expérimental adapté. Contrairement aux lits fixes réels, on accède ainsi directement à la phénoménologie de l'écoulement ainsi qu'à la répartition des phases dans le milieu.
- En considérant que l'empilement est un milieu purement 2D, il est possible d'effectuer des simulations numériques directes à moindre coût pour des domaines de simulations comprenant un plus grand nombre de grains. On sera ainsi en mesure de produire par des simulations directes des solutions de référence, servant à valider le modèle réseau, ce qui nécessiterait des temps de calcul considérables dans un cas 3D.

L'étude présentée dans ce manuscrit se décompose en 4 chapitres.

Le chapitre II présente la validation de la méthode de simulation numérique directe VOF dans le cas des écoulements à films. Les simulations sont validées, sur un cas test, par comparaison avec des résultats semi-analytiques provenant d'études précédentes.

Le chapitre III présente la mise en place d'un procédé expérimental permettant d'observer l'écoulement d'une phase liquide à travers un réseau de cylindres entre deux plaques. Cette expérience permet de valider le comportement des simulations VOF en 2D qui pourront, par la suite, être utilisées dans le cadre du développement du modèle réseau.

Le chapitre IV présente la validation de l'approche sur le cas en deux dimensions. Les simulations VOF sont d'abord utilisées sur un motif élémentaire représentant les passages entre les particules afin de proposer et valider les relations entre perte de pression, teneur en liquide et débits des phases. Un concept d'étalement de la phase liquide est également proposé dans le but de reproduire qualitativement les observations expérimentales. Enfin, les résultats du modèle réseau sont validés à une plus grande échelle par comparaison avec une solution de référence provenant de simulations VOF.

Enfin, le chapitre V présente l'extension du modèle réseau aux cas en trois dimensions. Les simulations numériques directes sont une nouvelle fois utilisées afin de valider les lois locales de comportement du modèle réseau. Les simulations réseaux sont ensuite validées par confrontation des résultats, pour des écoulements monophasiques et diphasiques, avec les modèles habituellement utilisés dans les lits fixes. Un procédé expérimental de visualisation d'un écoulement ruisselant dans un lit fixe pilote est également développé à la fin de ce manuscrit. La visualisation de l'étalement d'un jet de liquide à cet échelle pourra être utilisée dans le cadre d'une validation future du comportement du modèle réseau dans le cas d'un écoulement hétérogène.

Chapitre II

Validation de la méthode “Volume-Of-Fluid”

En amont de notre étude des écoulements ruisselants à l'échelle microscopique, il est nécessaire de s'interroger sur la validité des résultats provenant de la méthode de simulation numérique directe choisie, la méthode “Volume-Of-Fluid” (VOF). Ce type de méthode présente l'avantage de suivre les interfaces de façon implicite, ce qui leur permet de simuler de façon directe des phénomènes de fusion et de séparation d'interfaces sans que cela ne constitue un cas particulier, contrairement aux méthodes de type Lagrangienne. Cette représentation implicite peut cependant induire dans certains cas, en raison de problèmes de diffusion numérique, une dissipation, voire une disparition complète de l'interface. On pense notamment, dans le cas des écoulements ruisselants en lit fixe, à la simulation d'un film liquide fin le long des particules qui peut représenter un challenge particulier nécessitant un maillage très raffiné le long de la paroi.

Le problème soulevé n'est d'ailleurs pas spécifique aux écoulements en lit fixe et des études précédentes sur différentes situations ont mis en évidence les difficultés liées à la simulation d'écoulements à film à l'aide de méthodes à interface diffuse. Le cas le plus étudié dans la littérature est celui d'un écoulement de Taylor dans un tube capillaire. Ce type d'écoulement est caractérisé par le déplacement de bulles de gaz allongées, séparées par des ponts liquides. Le diamètre de ces bulles de gaz est proche de celui du tube ce qui implique la présence de films liquides fins le long des

parois. De nombreuses études, numériques et expérimentales, ont été menées afin de caractériser les propriétés de l'écoulement (longueur des bulles, vitesse, épaisseur du film liquide...). Seule une étude récente (Gupta et al., 2009) a permis de simuler, à l'aide d'une méthode à interface diffuse, l'ensemble des caractéristiques de l'écoulement, moyennant cependant des maillages très raffinés et donc des temps de calcul importants. Dans ce chapitre, nous simulons, à l'aide de la méthode VOF, des écoulements de films liquides avec pour objectif de définir les paramètres optimaux de la méthode nous permettant de simuler de façon précise l'écoulement tout en conservant des temps de simulations relativement faibles. Cette optimisation de temps de calcul est indispensable car la stratégie de modélisation adoptée étant basée sur la méthode VOF, on sera amené, dans le cadre de l'étude multi-échelle, à effectuer un grand nombre de simulations numériques directes.

Dans l'article qui constitue ce chapitre (publié dans la revue “Compte Rendu de l'Académie des Sciences Mécanique”), nous présentons tout d'abord une revue bibliographique des différentes études numériques focalisées sur la simulation des écoulements de Taylor dans les tubes capillaires. Deux cas de figures se dégagent de ces études : (i) la phénoménologie de l'écoulement n'est pas correctement capturée (généralement, le film liquide n'est pas présent le long de la paroi), (ii) la phénoménologie est parfaitement capturée mais requiert des temps de calcul importants (de l'ordre de plusieurs jours pour un tube unique). Afin de définir la paramétrisation optimale de la méthode VOF, nous simulons d'abord le drainage d'une phase liquide dans un tube capillaire avec création d'un film liquide dynamique le long de la paroi. Les résultats numériques sont ensuite validés par comparaison avec une solution semi-analytique ainsi qu'avec des simulations numériques obtenues par une méthode de type Lagrangienne. Une étude paramétrique permet ensuite de définir les critères requis pour procéder à une simulation valide de l'écoulement. Enfin, nous appliquons les conseils pratiques, définis dans le cas précédent, aux écoulements de Taylor dans les tubes. Nous parvenons à montrer, avec une paramétrisation adaptée, qu'il est possible de capturer de façon précise les caractéristiques de l'écoulement pour de faibles temps de calcul. Par comparaison avec les travaux précédents, nous parvenons à identifier et à mieux comprendre les influences respectives des différents paramètres intervenant dans la méthode VOF (schémas de discrétisation, raffinement du maillage, pas de temps...). Ces enseignements sont ensuite mis à profit dans la suite de ce travail.

A suitable parametrization to simulate slug flows with the Volume-Of-Fluid method

Received 5 Oct 2011 ; accepted after revision 30 Jan 2012

abstract

Diffuse-interface methods, such as the Volume-Of-Fluid method, are often used to simulate complex multiphase flows even if they require significant computation time. Moreover, it can be difficult to simulate some particular two-phase flows such as slug flows with thin liquid films. Suitable parametrization is necessary to provide accuracy and computation speed. Based on a numerical study of slug flows in capillary tubes, we show that it is not trivial to optimize the parametrization of these methods. Some simulation problems described in the literature are directly related to a poor model parametrization, such as an unsuitable discretization scheme or too large time steps. The weak influence of the mesh irregularity is also highlighted. It is shown how to capture accurately thin liquid films with reasonably low computation times.

1 Introduction

When cocurrent gas and liquid flows take place within a capillary tube, there is a large number of interface configurations, called flow regimes or patterns in the literature, depending on the fluid properties and flow rates which can be plotted on a flow regime map (see Fig. II.1 from the work of Triplett et al. (1999)). One of the most common regime for the lowest liquid flow rates is the Taylor flow, also called slug flow, characterized by the presence of elongated bubbles, with diameters close to the channel tube width, separated with liquid slugs. For a higher gas flow rate, we can observe the annular regime characterized by the flow of a liquid film along the wall while the gas phase occupies the central void space. The common point between these flow regimes is the presence of a liquid film along the wall, which can be very thin and thus pose a serious numerical problem. Taylor flows have interesting flow characteristics such as recirculation flows in the liquid slug which improve heat and mass transfer, and, for this reason, they have been widely studied experimentally and numerically.

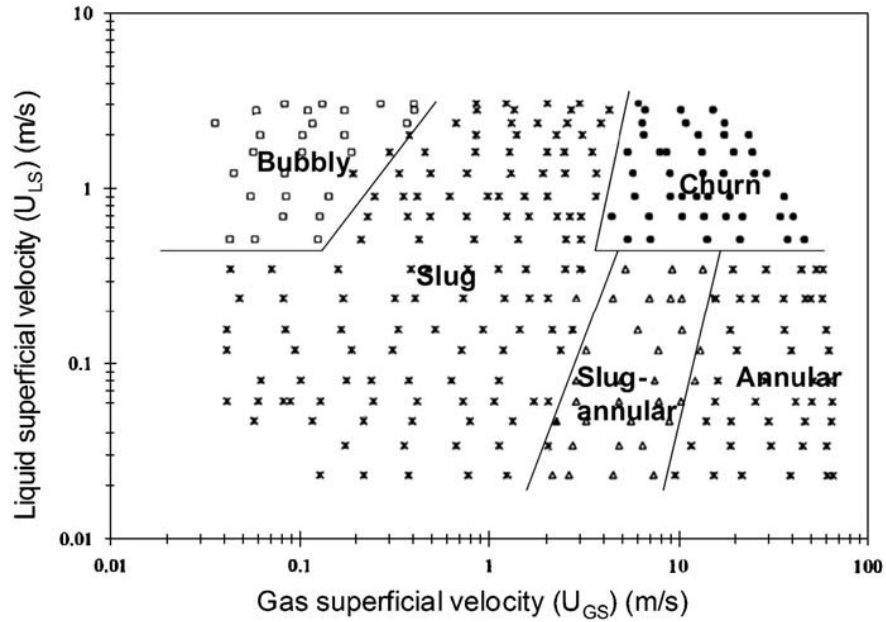


Figure II.1 – Regime flow map obtained from experiments (Triplet et al., 1999) and summarized in this figure by Gupta et al. (2009)

Previous numerical studies showed that one of the main difficulties in Taylor flow modeling concerns the simulation of the thin liquid film along the wall. Most of the previous works reported that the liquid film was not captured because the grid was not sufficiently refined. More recently, Gupta et al. (2009) showed that it was possible to capture these liquid films, even thin, provided that an ultra fine mesh grid and much computation time were used. Moreover, previous works highlighted that using diffuse-interface methods can induce some numerical errors such as velocity field fluctuations around the interfaces called “spurious currents” in the literature.

In the present work, we simulate with the Volume-Of-Fluid method (VOF), using the many possibilities offered by FLUENTTM, two cases of slug flows with the presence of a thin liquid film along the wall : the drainage of a liquid phase in a vertical tube and the Taylor bubble generation in a horizontal tube. While checking the overall accuracy, a special attention is given to the liquid film modeling which have received less attention in the literature as pointed out above. Performing a parametric study on irregular meshes, VOF discretization schemes and Courant Number conditions, we first show, in the drainage case, that suitable parametrization allows to capture accurately flow properties, including the thin liquid films, while

conserving small computation times and avoiding numerical errors. Applying these parameters in the Taylor bubble generation case, we show that, more generally, recommendations obtained in the previous elementary case can be extrapolated to all slugs flows.

2 Numerical Background

Slug flows with the presence of thin liquid films have been studied by different numerical method such as Volume-Of-Fluid (Taha and Cui, 2004; Akbar and M, 2006; Qian and Lawal, 2006; Kumar et al., 2007; Kashid et al., 2008; Carlson et al., 2008; Gupta et al., 2009), Level-Set (Fukagata et al., 2007), Lattice-Boltzmann (Yu et al., 2007) or Phase-field (He. and Kasagi, 2008). The literature review presented here focuses on the previous works using the same method as in this study, i.e., the VOF method. Readers interested in others methods should refer to the publications mentioned above or to the review presented in the work of Gupta et al. (2009). Taha and Cui (2004) simulated Taylor flows in vertical capillaries using the VOF method implemented in the FLUENTTM software. For quite large capillary numbers (higher than 0.01), and, therefore, relatively thick films, the results on bubble velocity, bubble diameter and velocity field were in good agreement with experimental data. Akbar and M (2006) demonstrated the feasibility of Taylor flow modeling with the VOF method by comparing numerical results with experimental data and correlations. Good agreement was found concerning bubble lengths and pressure drop for any capillary number. Regarding the liquid film thickness, more variable results were obtained depending on the simulation conditions. Qian and Lawal (2006) investigated Taylor flow in a T-junction with VOF method and reported that their grid was not enough refined to capture the finest liquid films on the wall. However, numerical results on bubble length and velocity showed good agreement with literature data. Kumar et al. (2007) simulated for the first time Taylor flows in curved microchannels studying the effect on the bubble lengths of different parameters such as channel diameter, curvatures, inlet conditions or fluid properties. However, none of their simulations captured the liquid film on the wall, which plays an important role in this type of flow. Kashid et al. (2008) also performed numerical simulations (Level-set and VOF) on Taylor bubble generation in a Y-junction coupled with an experimen-

tal study using the micro-PIV technique. Although they simulated a bubble train, the thin liquid film observed during their experiments could not be reproduced by any of the numerical method tested. In their work, Carlson et al. (2008) performed simulations on the Taylor bubbles generation in a horizontal capillary tube using two diffuse-interface methods, Level-Set and Volume-Of-Fluid. They found that the VOF method implemented in FLUENTTM could not predict correctly the bubble generation in a slug flow.

More recently, Gupta et al. (2009) performed a numerical study of Taylor flow in microchannels using the VOF method proposed in FLUENTTM. Numerical results of this study are in good agreement with the available correlations. However, they highlight the fact that an ultra fine mesh is required to capture the thin liquid film on the wall and that remain, in their simulations, some minor unphysical results such as pressure artefacts inducing spurious currents. They reduced these numerical errors by changing the way to calculate gradients in FLUENTTM (from the cell-based to the node-based methods).

These spurious currents induced by the VOF formulation were studied by Harvie et al. (2006) on a two-dimensional bubble case. They emphasize the fact that spurious currents are correlated with the implementation of the surface tension effect in the VOF method, as explained in the next section concerning the method presentation. They showed that, depending on the situation, various parameters can influence the magnitude of these spurious currents such as the mesh refinement or the interface velocity. They especially highlights the fact that the spurious currents may have a big influence and can lead to unphysical behaviors of the simulations when the interface position is quasi-steady.

This literature review emphasizes the fact that many previous studies have not captured successfully the thin liquid film when simulating Taylor flows with diffuse interface numerical methods, except using ultra fine mesh with large computation time. This lack of liquid film reproduction can induce significant errors in the prediction of flow properties. Moreover, ultra fine mesh requires too large computation resources to be used at large scales.

3 Numerical Method

According to the VOF model, dynamics of two immiscible fluids is governed by a single set of Navier-Stokes equations. Fluid properties (viscosity μ , density ρ) in each cell are calculated using the volume fraction, ϕ , which represents the proportion of each fluid in a cell, using the following relationships :

$$\rho = \phi \rho_{liquid} + (1 - \phi) \rho_{gas} \quad (\text{II.1})$$

$$\mu = \phi \mu_{liquid} + (1 - \phi) \mu_{gas} \quad (\text{II.2})$$

Like other Eulerian methods, the mesh is fixed and interfaces can be located by interpolation of the volume fraction. The Navier-Stokes system of equations contains an additional term representing the effect of surface tension (Brackbill et al., 1992) :

$$\mathbf{F}_{vol} = \sigma \frac{\rho (\nabla \cdot \mathbf{n}) \nabla \phi}{\frac{1}{2}(\rho_{gas} + \rho_{liquid})} \quad (\text{II.3})$$

where σ is the surface tension between the two fluids and \mathbf{n} is the unit normal to the interface. This representation of the surface tension has been identified as responsible of the spurious currents along interfaces by Harvie et al. (2006) due to the discrete representation of the domain. To illustrate their argument, they used the case of a static bubble. In a “ideal” VOF simulation, i.e., a continuous domain, the unit normal \mathbf{n} to the interface is perfectly oriented to the center of the bubble. By solving the Navier-Stokes system, the VOF method simulates a zero velocity field with an opposite pressure gradient equivalent to the surface force. In a “real” VOF simulation, i.e., a domain discretized in cells, the volume fraction varies by step which implies that the unit normal \mathbf{n} varies slightly and is not perfectly oriented towards the bubble center. The calculated force vector is not exact and the amplitude of the error depends on the variation of ϕ within the cell. The error induced results in local recirculations of the velocity field and pressure artefacts which are relatively important in the case of static interfaces.

The volume fraction ϕ is transported using the VOF equation :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{V} \cdot \nabla \phi = 0, \quad (\text{II.4})$$

where V is the fluid velocity. Usually, for unsteady-state problems, the VOF equation is solved explicitly and is decoupled from pressure and velocity computations.

Variable time steps are controlled through the Courant number Co defined as follows :

$$Co = \frac{V_{fluid}\Delta t}{\Delta x}. \quad (\text{II.5})$$

The Courant number condition may be different for the Navier-Stokes or VOF equations. Standard FLUENTTM parameters set the Courant number condition to 0.25 for the VOF equation. In the following parametric study, we discuss the Courant number condition for the Navier-Stokes system. Since this system is solved implicitly, it represents most of the computing time and, therefore, the best gain prospect.

Another important parameter in the VOF method is the scheme used for the discretization of the convective term in equation (II.4). As the fluids are immiscible, the interface is represented by a step in ϕ . If we use classical “Upwind” or “2nd Order Upwind” schemes, the numerical diffusion will lead to a strong diffusion of the interface. Several strategies have been designed to overcome this numerical diffusion using specific schemes, most of them being implemented in FLUENTTM (hence our choice of this software for this study). The ability of a discretization scheme to transport and conserve a sharp interface is called the scheme compressibility. We described briefly below the four discretization schemes proposed by FLUENTTM, ranked from the least to the most compressive : the QUICK scheme (Leonard, 1991), High-Resolution schemes (HRIC (Muzafferija et al., 1998) and CICSAM (Ubbink and Issa, 1999)) and the Geometric Reconstruction scheme (Youngs, 1982).

The QUICK scheme is based on a weighted average of 2nd order upwind and central interpolation. The central interpolation tends to reduce the numerical diffusion but we shall see in this paper that it remains the less compressive scheme. Based on the work of Leonard (1991), high-resolution schemes have in common the alternate use of a downwind-type scheme (signal preserving and interface compression but unstable) and an upwind-type scheme (stable but diffusive). Some authors (Ubbink and Issa, 1999) reported that using a downwind-type scheme can bring numerical errors such as the alignment of the interface on the mesh grid. Improvements have been brought to high-resolution schemes by reducing the use of the downwind-type scheme depending on the interface orientation. The main difference between the HRIC and the CICSAM schemes concerns the downwind-type scheme. In the CICSAM method, the compressibility of the downwind-type scheme increases when the local Courant number decreases (due to the downwind-type scheme called

HYPER-C (Ubbink and Issa, 1999). HRIC scheme is independent of the local Courant number and its compressibility is equivalent to the CICSAM scheme with a local Courant number condition equal to 0.5. Recommended maximum Courant number for VOF iterations is 0.25. As a result, the CICSAM scheme in our simulations is always more compressive than the HRIC scheme. A previous study performed by Waclawczyk and Koronowicz (2008) confirms that CICSAM preserves the shape of an interface more accurately than the HRIC scheme.

The last method called Geo-Reconstruct in FLUENTTM is based on the interface reconstruction concept and represents the most compressive solution. In a first step, the interface is transported using standard schemes which can be quite diffusive. In a second step, the numerical diffusion is canceled by interface compression using a piecewise linear interpolation (PLIC). This method is the most common method and is used in all the previous studies presented above, except in the work of Carlson et al. (2008) who used the CICSAM scheme.

4 Parametric study on the drainage of a liquid phase in a Vertical Tube

Properties of slug flows were studied by Bretherton (1961) who investigated the motion of a long bubble into a liquid-filled tube of diameter D and showed that the liquid film thickness, e , on the wall in a tube depends on the capillary number Ca (defined as the ratio of the viscous forces to interfacial tension, $Ca = \mu V/\sigma$, where μ is the liquid viscosity, V the drainage average velocity and σ the two-fluid interfacial tension), according to the relationship :

$$2e/D = aCa^{2/3} \tag{II.6}$$

valid for $Ca \rightarrow 0$ with $a = 1.338$ for a horizontal tube. From a study of the drainage of a liquid phase in a vertical tube, Lasseux (1990) extended this relationship for non zero Bond numbers using a semi-analytical solution of the problem and then for a wide range of capillary numbers with direct numerical simulations. These simulations were performed using a Lagrangian-method, the Boundary Element Method, which discretizes explicitly the interface and follows the nodes displacements. This type

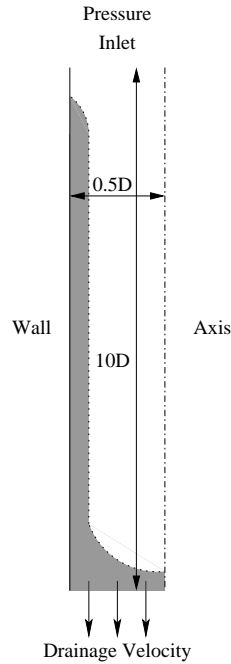


Figure II.2 – Geometry and boundary condition for the drainage simulations

of method has the advantage of following accurately the interface but it is quite difficult to simulate changes in the number of interfaces, and, also, it produces filled matrices in the solution procedure, which leads to heavy computations.

A vertical capillary tube of diameter $2mm$ and length $10D$ is used for the simulations. Geometry and boundary conditions are reported in Fig. II.2 and physical conditions are reported in Tab. II.1. The capillary number is modified by varying the liquid phase viscosity.

Drainage Velocity	$0.007m.s^{-1}$
Surface Tension	0.002
Liquid phase density	$210kg.m^{-3}$
Bond Number	1.03

Table II.1 – Simulation conditions for the drainage of a liquid phase in a vertical tube

Before discussing the influence of the different simulation parameters, we first perform a comparison as regards the computation of the liquid film thickness during drainage (cf Fig II.3). VOF results fit well to the reference results obtained

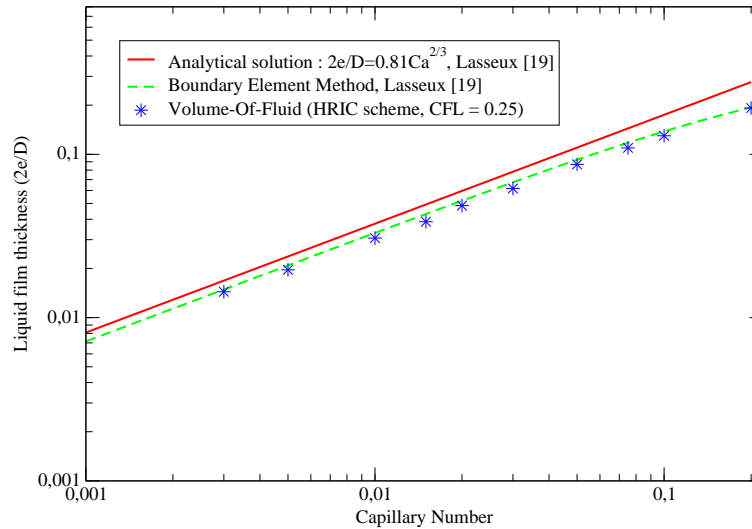


Figure II.3 – Dimensionless liquid film thickness as a function of capillary number during the drainage of a liquid phase in a vertical tube. Comparison between VOF simulation and a reference solution (Lasseux, 1990)

by Lasseux (1990) with the Boundary Integral Element method, thus showing that the VOF method can simulate accurately a slug flow for a wide range of capillary numbers including thin liquid films, at least when the simulation is correctly parametrized as we shall see below. As expected, we can observe that the numerical results are in good agreement with the theory for sufficient low capillary numbers ($Ca < 0.1$) and diverge for higher Ca . As can be seen in Fig. II.4, the velocity and pressure profiles do not present any pressure artefacts or spurious currents.

How were these results obtained? Does the choice of the various numerical parameters influence significantly the results? A parametric study was done to evaluate the impact of the various choices.

The influence of the irregularity of the mesh on the liquid film thickness is first tested using four different meshes refined along the tube wall (cf Fig II.5). Meshes have the same number of cells and, therefore, computation times for the different simulations are nearly the same. Using the HRIC scheme and a Courant number set to 0.25, our results, which are summarized in Table II.2, show that irregular meshes have a small influence on the simulation results for different capillary numbers provided that the liquid film covers at least two cells. Having more than two

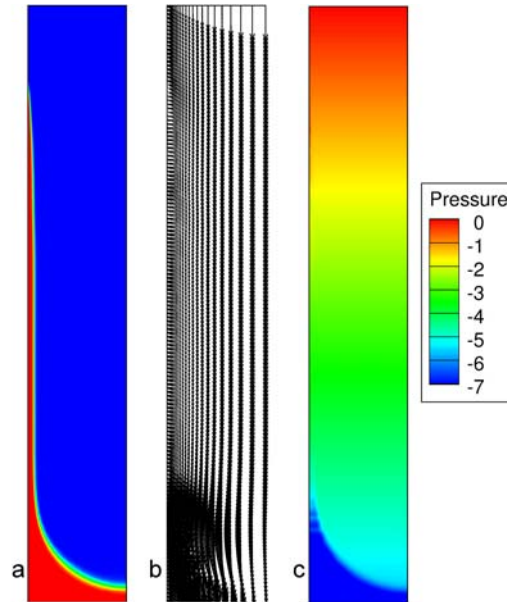


Figure II.4 – Simulation of the drainage of a liquid phase (HRIC, $Co = 0.25$, $Ca = 0.005$), (a) Volume fraction, (b) Velocity Profile, (c) Pressure distribution

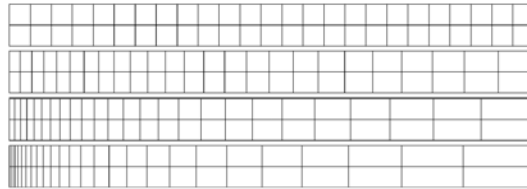


Figure II.5 – Mesh used for VOF simulations refined from the tube wall (left) to the center (right) with different width ratio between cells (a. 1.00 (regular), b. 1.05, c. 1.10, d .1.20)

Ca	(Lasseux, 1990)	Regular Mesh	Mesh 1,05	Mesh 1,10	Mesh 1,20
0.005	0.021	0.000	0.013	0.019	0.020
0.03	0.065	0.062	0.060	0.059	0.060
0.10	0.138	0.130	0.127	0.127	0.130

Table II.2 – Dimensionless liquid film thickness (normalized by the tube radius) for different meshes and capillary numbers (HRIC, $Co = 0.25$) compared with the reference solution (Lasseux, 1990)

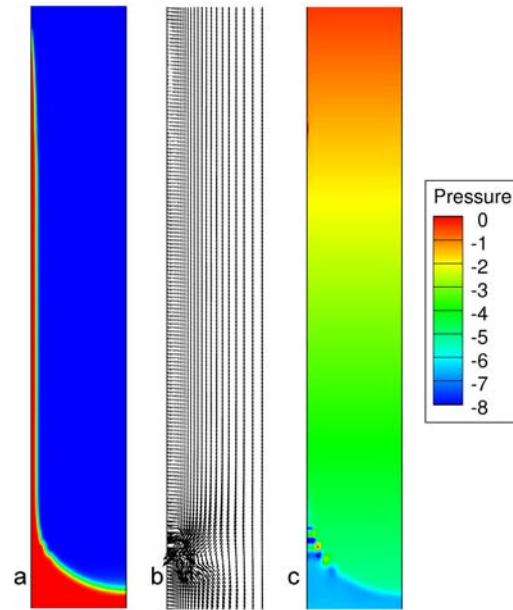


Figure II.6 – Simulation of drainage with spurious currents along the meniscus curvature (HRIC, $Co = 1.00$, $Ca = 0.03$), (a) Volume fraction, (b) Velocity Profile, (c) Pressure distribution

cells in the liquid film does not seem to lead to a better accuracy. Our results show that it is possible to capture accurately thin films (less than 1% of the radius) while conserving small computation time by locally refining the mesh.

In a second phase, a parametric study on the VOF schemes and the Courant number was performed. In the case of a poor model parametrization, spurious currents (in parallel with pressure artefact) can occur around interfaces, which was previously observed by Gupta et al. (2009) and Harvie et al. (2006). For all the tested VOF schemes, we observed that, when $Co > 0.25$, these spurious currents occur around the meniscus curvature and increase with the Courant number Co (an example is shown in Fig II.6). These pressure artefacts and spurious currents also appear at the triple point (intersection of the interface with the wall) and move along the liquid film (cf Fig II.7) when the liquid film becomes thin ($2e < 0.10D$) for the two most compressive methods, Geo-Reconstruct and CICSAM. As in the study of Harvie et al. (2006), we observe, in this area, a curvature of the interface on a small number of cells. We can presume that the compressibility of these two schemes, which reduces the thickness of the interface, increases the intensity of the

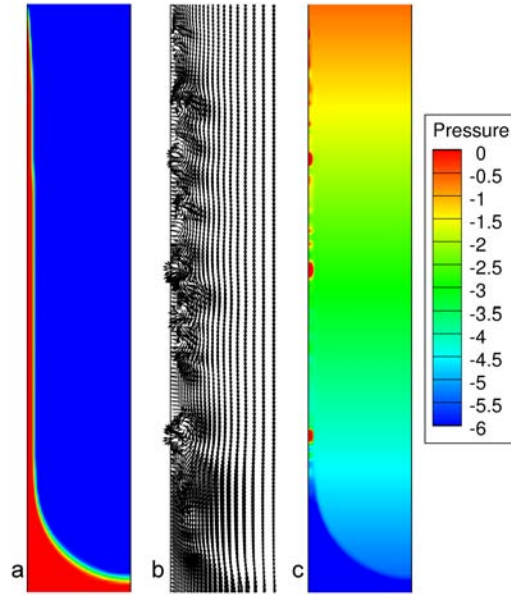


Figure II.7 – Simulation of drainage with spurious currents along the liquid film (CICSAM, $Co = 0.05$, $Ca = 0.03$), (a) Volume fraction, (b) Velocity Profile, (c) Pressure distribution



Figure II.8 – Alignment of the interface on the mesh when VOF scheme is too compressive, for example with the Geo-Reconstruct scheme (top) compared with the HRIC scheme (bottom)

interfacial force on a small number of cells (i.e., the $\nabla\phi$ term in the Navier-Stokes equations), and, therefore, the local spurious effects. Moreover, the link of these spurious effects to interface compression can be directly emphasized using the CICSAM scheme properties. By reducing the Courant number for the same simulations, we increase the compressibility of the CICSAM scheme (Ubbink and Issa, 1999) and we can observe that it simultaneously increases the amplitude of the spurious currents generated. The interface compression can also lead to the alignment of the interface on the mesh grid that was previously described by Ubbink and Issa (1999). Then, the interface thickens by step along the tube wall as it can be seen in Fig. II.8.

Courant Number	0.05	0.25	0.50	1.00
QUICK	6.86 / 3.40	5.76 / 3.33	9.68 / 3.40	14.02 / 3.73
HRIC	4.32 / 3.33	3.34 / 2.80	3.96 / 2.73	4.58 / 2.80
CICSAM	2.56 / 1.93	2.61 / 2.73	2.34 / 2.47	2.54 / 2.60
Geo-Reconstruct	1.98 / 1.92	2.05 / 1.93	1.93 / 1.92	1.86 / 1.94

Table II.3 – Interface thickness at the front/film (in number of cells)

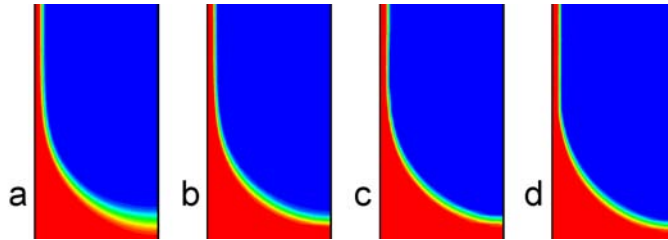


Figure II.9 – A Comparison of the interface dissipation from the less to the most compressive scheme ($Co = 0.25, Ca = 0.03$), (a) QUICK, (b) HRIC, (c) CICSAM, (d) Geo-Reconstruct

We also performed simulations using different discretization schemes which are available in FluentTM (“1st Order Upwind”, “2nd Order Upwind” and “3rd Order MUSCL”). As the influence of these schemes was very weak compared to the previously cited parameters, we did not incorporate these parameters to this parametric study.

The interface thickness (in numbers of cells) at the front and along the film for different schemes and Courant numbers are displayed in Tab. II.3. The CICSAM and Geo-Reconstruct methods conserve sharp interfaces but, as seen before, there is no valid Courant number to obtain consistent velocity and pressure fields. The QUICK and HRIC schemes are both able to simulate correctly the properties (velocity profile, liquid film thickness) of the slug flow. However, as shown in Fig II.9, the QUICK scheme is more diffusive than the HRIC scheme and it can lead to interface disappearance when the flow becomes more complex.

As a conclusion to this parametric study, the HRIC scheme, with $Co = 0.25$, seems to be the optimal combination of parameters to simulate accurately slug flows with thin liquid films while avoiding the numerical errors described above. This optimal combination of parameters have been used to perform the comparison (Fig. II.3).

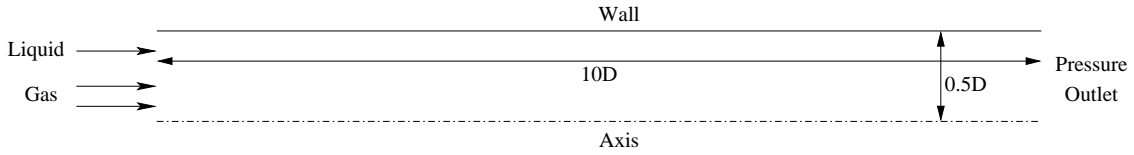


Figure II.10 – Geometry and boundary conditions for the Taylor bubbles simulations

Parameters	VOF Geo-Reconstruct	VOF HRIC
Pressure-Velocity scheme	QUICK	QUICK
VOF scheme	Geo-Reconstruct	HRIC
Courant Number	0.25	0.25
Number of mesh cells	$2 \cdot 10^3$ to $4, 5 \cdot 10^5$	$8 \cdot 10^3$ (irregular mesh)
Computing Time	1 hour to 13 days	2-3 hours

Table II.4 – Parameters of the two numerical simulations studied

So far, we have studied a simple flow geometry, with the emphasis on the film accurate simulation. The existence of a well established reference helped us to draw practical conclusions in terms of suitable numerical parameters. What happens in the case of more complex situations, for which there is a little a priori knowledge of the obtained configuration?

5 Validation case : Taylor Bubble generation

Taylor bubble generation in a horizontal capillary tube is a good test case since films and meniscii are present in an unsteady-state flow. Like in the study of Gupta et al. (2009), we inject air and water (superficial velocities are respectively 0.245 and 0.255 m/s) in an initially liquid filled microchannel with diameter, D , of 0.5mm and length of $10D$ as depicted on Fig II.10. The conditions of the simulations, summarized in Tab. II.4, are the same as Gupta et al. (2009) except for the VOF scheme and the mesh grid used. As the expected dimensionless film thickness is around $0.02D$, we use a sufficiently refined irregular mesh with a width ratio of 1.10, i.e., between 2 and 3 cells included in the liquid film. Plots of the liquid volume fraction during the simulation at different times can be seen in Fig. II.11 and results of simulations are reported in Tab. II.5.

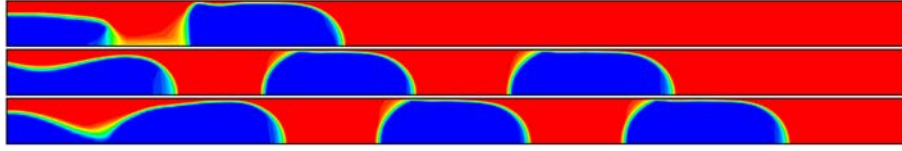


Figure II.11 – VOF simulations of the process of bubble generation in a microchannel using the HRIC scheme at different times (3.6ms, 7.0ms and 8.5ms)

Flow Properties	VOF Geo-Reconstruct	VOF HRIC
Film Thickness (μm)	12 (11)	12 (11)
Bubble Velocity (m.s^{-1})	0.55 (0.54)	0.56 (0.54)
Bubble Length	$2.0D$	$1.62D$
Slug Length	$1.3D$	$1.07D$
Gas Hold-up	0.455 (0.41)	0.414 (0.41)
Pressure Drop (Pa.m^{-1})	77700 (94400)	137000 (112000)

Table II.5 – Comparisons of numerical results (with reference values)

Concerning the film thickness, bubble velocity and gas hold-up, our simulations fit pretty well with reference values. We can note that bubble and slug lengths are quite different between the two simulations even if the gas hold-up is nearly the same (bubble length depending on the inlet conditions). To calculate a reference value for the pressure drop, we use the correlation for the friction factor proposed by Kreutzer et al. (2005) :

$$f = \frac{16}{Re} \left[1 + 0.07 \frac{1}{Ls} \left(\frac{Re}{Ca} \right)^{0.33} \right] \quad (\text{II.7})$$

where Re is the Reynolds number and $Ls = L_{slug}/D$ is the dimensionless slug length. Pressure drop can be calculated by the following equation :

$$\frac{\Delta P}{L} = f \left(\frac{1}{2} \rho_L U^2 \right) \frac{4}{D} \beta_L \quad (\text{II.8})$$

where β_L is the liquid hold up and U the sum of gas and liquid superficial velocities. Difference between correlated and computed pressure drops is around 20% for the two types of simulations. As can be seen from Fig. II.12, the pressure field simulated with the HRIC scheme does not present any artefact in the tail or the head of the Taylor bubble. We can note that the creation of bubbles induces a small diffusion at the tail of the bubble (Fig. II.11 and Fig. II.12) contrary to the Geo-Reconstruct

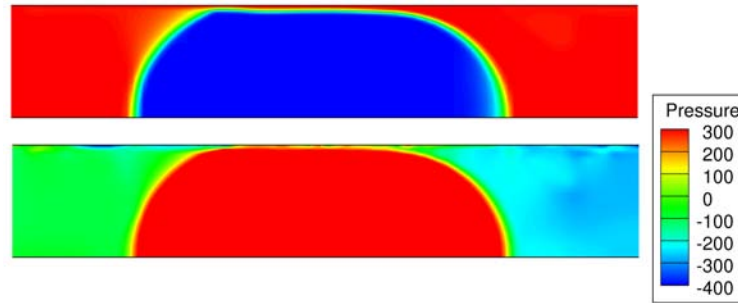


Figure II.12 – Volume fraction and Pressure distribution around a typical Taylor bubble simulated with the VOF method (HRIC, $Co = 0.25$)

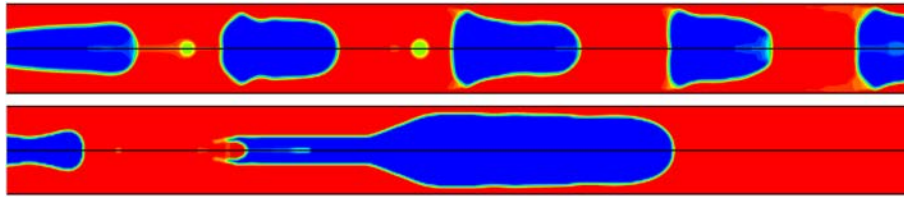


Figure II.13 – A qualitative comparison of VOF simulations of bubble generation using HRIC scheme (top) and CICSAM scheme (bottom)

method which always conserves a sharp interface. This interface diffusion gradually disappears thanks to the scheme compressibility. In terms of computation time (Tab. II.4), capturing the liquid film with the Geo-Reconstruct method requires ultra fine mesh and several days of calculations (Gupta et al., 2009). Using a suitable irregular mesh with the HRIC scheme reduces the computation time to a couple of hours for the same physical conditions.

As a test, we also performed a qualitative comparison by changing the simulation conditions. Carlson et al. (2008), reported that the VOF method (with the CICSAM scheme) failed to simulate the generation of a regular bubble train. Similar simulations were carried out in the same conditions using the HRIC and CICSAM schemes. Similar results as in the work of Carlson et al. (2008) were observed concerning the CICSAM scheme, i.e., the random generation of bubble of different sizes, while the use of the HRIC scheme allows simulating correctly the flow phenomenology (Fig II.13). However, we can also see in Fig. II.13 that the interface dissipation becomes more important, which suggests a limit to the HRIC scheme.

6 Conclusion

We emphasized in this paper that simulating slug flows with the VOF method needs suitable parameterization to provide computation speed and accuracy. We mainly focus on capturing thin liquid films on the walls which is the most difficult aspect of the problem. We first validated quantitatively VOF simulations in the case of the classical Bretherton dynamic film and conclusions provided by the parametric study highlight some aspects which must be considered to simulate slug flows with the VOF method :

- irregular meshes have a small influence on computed results provided that the liquid film is covered by at least two cells, which allows refining locally the mesh and gain much computation time,
- Courant number must be chosen sufficiently small to avoid pressure artefacts and spurious currents around interfaces,
- using the most compressive scheme induces numerical errors and does not represent the best choice for simulating thin liquid films ; Less compressive schemes allow using coarser meshes while maintaining good accuracy and avoiding the different numerical errors described above.

In the specific case of slug flows in capillaries, the HRIC scheme with a Courant number of 0.25 and an irregular mesh depending on the expected liquid film is the best suited to simulate accurately the properties of slug flows. However, the process of bubble creation induces interface dissipation which is obviously more important for the least compressive schemes. This observation suggests that the most compressive schemes will be probably more suited to simulate flow regimes with many interface changes such as the bubbly flow.

Chapitre III

Etude numérique et expérimentale d'un écoulement ruisselant "2D"

Dans ce chapitre, on cherche à valider la possibilité d'étudier les écoulements ruisselants à l'échelle mésoscopique, c'est à dire un domaine composé de quelques dizaines de grains, à l'aide d'une approche simplifiée en deux dimensions. Il est en effet compliqué, à la fois numériquement et expérimentalement, d'étudier un écoulement diphasique complexe dans un lit fixe réel à l'échelle mésoscopique. D'un point de vue numérique, la simulation directe 3D de l'écoulement à cette échelle nécessiterait des temps de calcul de l'ordre de plusieurs mois tandis que la visualisation expérimentale d'un écoulement diphasique dans un empilement de grains peut difficilement se faire de façon directe. Par conséquent, il paraît intéressant de développer une approche quasi-2D, reproduisant de façon satisfaisante la phénoménologie des écoulements en lit fixe tout en permettant des approches numérique et expérimentale simplifiées.

On considère donc un lit fixe "2D" qui se compose d'un empilement de cylindres placés entre deux plaques. Ce type de configuration rappelle les écoulements à travers des faisceaux de tubes que l'on peut observer dans de divers domaines, du microréacteur chimique aux échangeurs de chaleur. Une revue bibliographique de l'état-de-l'art, numérique et expérimental, des écoulements en faisceaux de tubes est par ailleurs développée dans le projet d'article qui suit cette introduction et forme l'essentiel de ce chapitre.

On met ensuite en place un processus expérimental en prenant une taille caractéristique de passage entre les cylindres qui soit de l'ordre du millimètre, permettant ainsi d'observer une compétition intéressante entre les forces capillaire, gravitaire et inertielle similaire à celle observée dans les lits fixes. L'étude expérimentale de l'étalement d'un jet de liquide, à travers un empilement de cylindres alignés, met en évidence la présence de la plupart des régimes d'écoulements que l'on observe dans les lits fixes. Les caractéristiques des régimes d'écoulements ainsi que les transitions sont ensuite détaillées en vue de la validation de simulations numériques du problème.

On cherche ensuite à simuler l'écoulement de façon numérique à l'aide de la méthode "Volume-Of-Fluid" implémentée dans FluentTM et qui a précédemment été validée dans le chapitre II. Les avantages d'une approche numérique du problème sont multiples. Tout d'abord, on peut accéder à tout instant aux champs de pression, de saturation et de vitesses pouvant être ensuite utilisés dans le cadre de développement de modèles à une échelle supérieure. On peut également tester différentes hypothèses en faisant varier des paramètres ou des conditions limites sans devoir mettre en place un nouveau processus expérimental. On propose donc de simuler l'écoulement en considérant le milieu purement 2D, c'est-à-dire en négligeant les effets liés à la présence d'un film liquide le long de la paroi.

Les résultats de comparaisons numériques et expérimentales présentés dans ce chapitre montrent que la méthode VOF permet de reproduire qualitativement les différentes spécificités de l'écoulement diphasique, notamment les deux principaux régimes d'écoulements, ruisselant et pulsé, ainsi que leur transition. Bien que les simulations numériques suivent les mêmes tendances que les observations expérimentales, en terme de transition de régimes et d'épaississement des films liquides, il existe une différence non négligeable entre les résultats. On suppose que cette différence est principalement due à l'action du film liquide le long des parois qui ne peut probablement pas être négligée dans une approche prédictive.

Le choix du code commercial utilisé dans cette étude a été en partie conditionné par la possibilité d'effectuer les calculs sur un cluster proposant une puissance de calcul intéressante. Ce type de logiciel ne permet cependant pas de modifier en profondeur les équations résolues par le code. Une des perspectives majeures de ce travail serait de développer, à partir de développements théoriques d'écoulement en

cellule de Hele-Shaw, un terme correctif prenant en compte les effets liés au film le long des parois afin de l'intégrer dans les équations de conservation du modèle. Ceci devrait conduire à un meilleur accord quantitatif avec les données expérimentales.

Néanmoins, l'étude numérique de ce problème a permis de mettre en évidence qu'il est possible de simuler des écoulements ruisselants dans un milieu "2D" avec une phénoménologie proche des écoulements en lit fixe. Cette approche pourra donc être utilisée afin de valider une approche réseau développée dans le chapitre suivant.

Arrays of cylinders as an experimental and numerical laboratory for the study of trickling and pulsing flows

In this paper we study the spreading of a liquid jet in a periodic array of cylinders, with a characteristic size of the passages between solid obstacles equal to 1mm, close to the capillary length. An important outcome of our study is to show that this configuration allows to observe most of the two-phase flow regimes described in the literature about trickle beds, even with no gas injection. Different aspects of the flow phenomenology have been studied, such as bubble creation and transport. As direct numerical methods for tracking interfaces would require too much computing time, especially in three-dimensional cases, we propose to simulate the two-phase flows observed experimentally with two-dimensional simulations corresponding to the spreading of a liquid jet in an array of disks. We show that this numerical approach allows to reproduce the phenomenology observed experimentally, although with some slight differences in length scales. Hence, numerical simulations can be used subsequently to study the effects of specific parameters without setting up a new experimental procedure. As an example, the stabilizing effect of gas injection on the flow pattern is studied numerically.

1 Introduction

The overall objective of our work is the precise understanding and modeling of multiphase flows in trickle beds. In most industrial applications, such flows are characterized by relatively large capillary and Bond numbers. This, as we will discuss below, leads to different types of fluid pore-scale distribution, called later flow regimes (Ng and Chu, 1987). Understanding the different flow patterns, as well as the transitions, is a major challenge. While there has been several attempts to achieve this goal, a detailed quantitative pore-scale description of the flow patterns is difficult to obtain in the case of a real pilot- or industrial-scale system, either following experimental point of views (Reinecke and Mewes, 1997), or from a direct numerical simulation perspective (Lopes and Quinta-Ferreira, 2009). It is therefore appealing to have a simpler configuration, possibly two-dimensional, to study the different mechanisms. In this work, we examine, based on experimental and numerical developments, the case of two-phase flows in (quasi) two-dimensional arrays of solid cylinders. Such a configuration is reminiscent of the case of tube bundles and it is therefore interesting to have a look at the literature on this subject.

Two-phase flows in tube bundles, from microchemical reactors to heat exchangers, have been extensively studied because of the large number of industrial processes that are based on this geometry. Each process features specificities depending on the operating conditions such as the pressure, the temperature or the characteristic size of the system. In microfluidic devices, for example, with a size of the gap between solid obstacles much lower than the capillary length, the capillary forces are dominant compared to the gravity forces. On the contrary, if we consider a heat exchanger composed of a tube bundle with a characteristic gap of about 1 cm, the capillary forces may be neglected in front of the gravitational forces and, often, in front of inertial effects. The interplay between the different physical parameters leads to a multiplicity of the interface configurations, called flow regimes in the literature, which may strongly impact the flow. These flow regimes, their properties and the transitions between them, have been studied in the case of tube bundles (Kondo and Nakajima, 1980; Ulbrich and Mewes, 1994; Xu et al., 1998; Noghrehkar et al., 1999) but it remains much less understood than the classical case of two-phase flow in pipes. Due to the complexity of the flow and the geometry of the problem, modeling approaches for two-phase flow in tube bundles are usually empirical, based

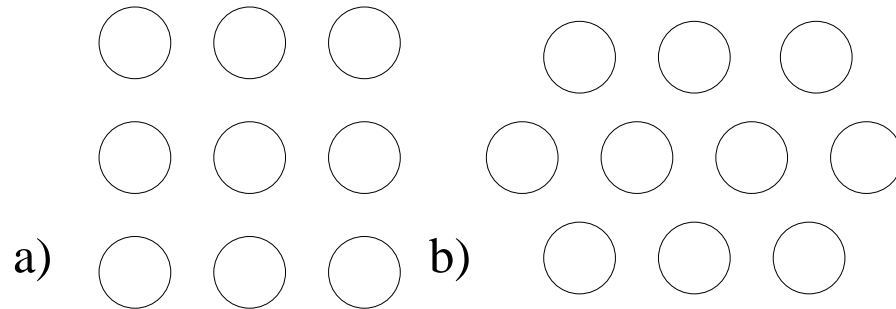


Figure III.1 – Different arrangements for tube bundle : (a) in-line, (b) staggered

on experimental observations. The major objective of any modeling attempt is to determine pressure drops and phase fractions, and this is intimately associated to the observed flow pattern.

The characterization of the flow patterns and their transitions have been studied experimentally by previous authors for different flow conditions, upward or downward, and for different tube arrangements, in-line or staggered (Fig. III.1). Flow regime maps have been plotted first for upward flow in staggered tube bundles (Kondo and Nakajima, 1980), then for an in-line arrangement (Ulbrich and Mewes, 1994; Xu et al., 1998) studied up and down-flow in an in-line tube bundle and Noghrehkar et al. (1999) studied the effect of the arrangement by performing experiments on both in-line and staggered tube bundles. Melli et al. (1990) draw flow regime maps in “two-dimensionnal” packed beds composed of a staggered arrangement of O-ring solids placed between two plates. The objective of this study was to observe simultaneously regime transition at the microscale, i.e., the scale of the passage between two solids, and at the macro-scale, the O-ring bundle. More recently, Krishnamurthy and Peles (2007) studied the flow patterns for two-phase flows through a staggered bank of micro-pillars and highlighted the differences with larger scale previous studies. We must note that the flow maps, plotted in different experimental conditions and at different scales, have the same trends. However, the phenomena in relation with the flow regime changes at the scale of a tube bundle remains too less understood to develop general regime change laws.

Due to the various flow patterns that can exist in tube bundles whose influences are not fully assessed, modeling approaches to predict pressure drop and void fraction are generally empirical based on an adaptation of existing models, for instance

in-tube two-phase flow models. Indeed, the most commonly used approach is based on Lockhart-Martinelli model (Lockhart and Martinelli, 1949), which relates the two-phase pressure drop to the one-phase pressure drop, through specific correlations. This approach was first developed for two-phase flow in pipes and then used for more complex geometries, including tube bundles. Such models have been used successfully for vertical up and down flows across horizontal tube bundles (Xu et al., 1998) and for gas-liquid flows across a bank of micropillars (Krishnamurthy and Peles, 2007). Effect of the pitch-to-diameter ratio (the pitch is the distance between the centers of two neighboring tubes in the tube bundle) was also studied (Dowlati et al., 1992) for different configurations, staggered or in-line tube bundles. Recently, Bamardouf and McNeil (2009) performed a comparison between various correlations available in the literature, differentiating two cases : with a low or a high heat flux. In the case of flow with low heat flux, the most accurate prediction in terms of void fraction is given by the Feenstra et al. (2000) correlation, and the Ishihara et al. (1980) correlation is the best way to predict pressure drop.

In an effort to understand more accurately the origin and transitions of the different regimes, some numerical studies have been performed concerning the flow modeling at the lower or pore scale, i.e., the scale of the passage between tubes. Many studies were focused on the modeling for high Reynolds number, single-phase flows, through tube bundles (Schneider and Farge, 2005; Paul et al., 2008). The two-phase flow modeling at lower Reynolds numbers, in which interfaces play an important role and need to be explicitly tracked, has received less attention due to numerical issues. Direct numerical methods for tracking interfaces, such as the "Volume-of-Fluid" (Hirt and Nichols, 1981), have been successfully used to simulate two-phase flow in tubes (Gupta et al., 2009)). However, even with a significant reduction of the computation time due to the axial symmetry of the problem, simulations still requires significant computation time. More recently, the Volume-Of-Fluid method has been validated in a three-dimensional case, the trickling flow on a stack of a few particles (Augier et al., 2010). However, this was possible for a small number of "grains" and required long computation times on a relatively powerful computer cluster. Under these conditions, the numerical simulation of two-phase flows at the scale of a tube bundle requires too much computation time, which explains the lack of numerical simulations.

While the strategy to better understand the mechanical phenomena involved in the appearance of the different flow regimes through direct experimental observations and direct numerical simulations cannot be entirely achieved, it is an appealing perspective which deserves additional work. The work presented in this paper aims to advance the modeling of two-phase flow in packed-bed reactors by developing such a strategy in an experimental configuration corresponding to a quasi or pseudo two-dimensional packed bed, which should ease the implementation of the experimental and numerical techniques. The experimental configuration is based on arrays of cylinders maintained within a Hele Shaw cell. The characteristic length of the spaces between the cylinders is 1 mm, i.e., close to the capillary length for most fluids, which allows for an interesting competition between capillary, gravity and inertial effects. The spreading of a liquid jet in this configuration presents some specific interface configurations and behaviors which can be used for comparison with a two-dimensional numerical approach of the problem.

The visualization of the liquid jet spreading led to the observation of different flow patterns depending on the chosen physical parameters. Both regime transitions and flow patterns properties were fully characterized. Considering that the experimental device can be seen as a two-dimensional medium (this point requires a thorough discussion since it is very difficult to obtain true 2D situations when capillarity and viscous flows are involved), the experimental results are then compared favorably to two-dimensional numerical results obtained on arrays of disks by a numerical interface tracking method, namely the "Volume-Of-Fluid" method (Hirt and Nichols, 1981) as implemented in FluentTM. As already mentioned, direct numerical simulations are very time consuming, particularly in three-dimensions. Therefore, it is particularly appealing that our results confirm the ability of two-dimensional numerical modeling to reproduce the experimental observations. We may now use the 2D numerical model to simulate the two-phase flow while maintaining reasonable computation time and avoiding the use of a new experimental devices. In particular, we were able to study the effect of gas injection on the spreading of the liquid jet, a study that would have been more expensive and complicated to set up with an experimental approach.

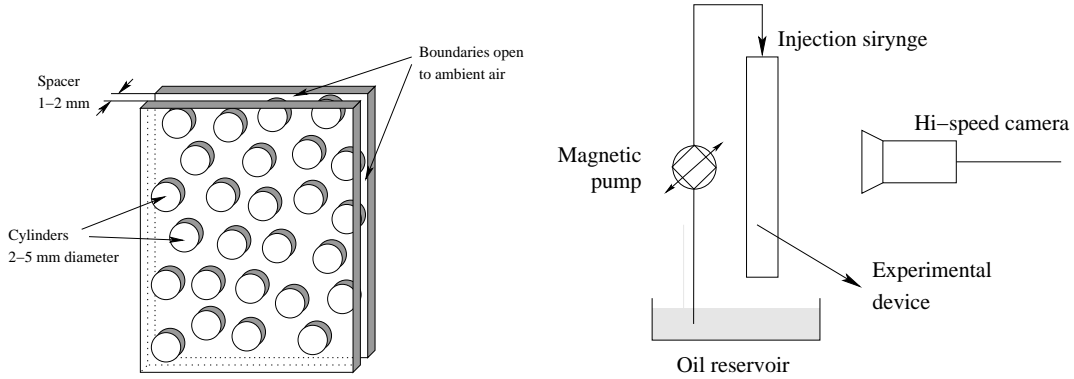


Figure III.2 – Schematic representation of the experimental device (left) and procedure (right)

2 Numerical and experimental approach

In this section, we describe the experimental setup and the associated mathematical problem we solved using numerical procedures implemented in FluentTM.

2.1 Experimental apparatus and procedure

The experimental device is schematically represented in Fig. III.2. It consists of an in-line array of cylinders, each cylinder having a length of 1.5mm and a diameter of 3mm, placed between two plates with a pitch-to-diameter ratio between 1.33mm and 1.5mm. All the resulting micro-models were made using polydimethylsiloxane (PDMS). The lateral boundaries of the device are open to ambient air. The used liquid is oil (Roth Silicon M5) whose physical properties are :

- density : 0.92,
- dynamic viscosity : 5.10^{-3} Pa.s,
- oil-air surface tension : 0.021N/m

The liquid is perfectly wetting on the PDMS surface, i.e., the cylinders and the walls. The experimental device is placed vertically and we inject the liquid phase on one cylinder at the top of the experiment using a syringe needle. Liquid flow rates are controlled using a laboratory gear pump (ISMATEC BVP-Z) in a range from 1 to 80 cc.min⁻¹. Visualizations are taken using a hi-speed camera capable of capturing up to 2000 frames per second with a resolution of 2048 x 2048 pixels.

2.2 Numerical approach

Interface tracking methods have been extensively developed recently in parallel with the improvement of computational capabilities. Two main approaches may be considered to predict interface displacements for two-phase flows. The Lagrangian methods, which discretize explicitly the interface and track the node displacements, and the Eulerian methods, which transport a volume fraction scalar representing the proportion of each fluid in a cell of a fixed mesh. The method chosen for this study is an Eulerian diffuse-interface method, the Volume-Of-Fluid method (VOF), which is more suitable than Lagrangian methods to simulate dramatic changes in the interface configuration, especially coalescence and snap-off. This ability to handle interface appearance or disappearance will be particularly useful to simulate the coalescence of liquid films occurring during the spreading of the liquid jet. In the VOF method, the flow of two immiscible fluids is governed by a single set of Navier-Stokes equations :

$$\frac{\delta}{\delta t}(\rho \mathbf{v}) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} \mathbf{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot [\mu(\nabla \mathbf{v} + \nabla \mathbf{v}^T)] + \rho \mathbf{g} + \mathbf{F}_{vol} \quad (\text{III.1})$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (\text{III.2})$$

where \mathbf{F}_{vol} represents the effect of the surface tension taken into account using a continuum formulation (Brackbill et al., 1992) :

$$\mathbf{F}_{vol} = \sigma \frac{\rho \kappa \nabla \phi}{\frac{1}{2}(\rho_{gas} + \rho_{liquid})} \quad (\text{III.3})$$

where σ is the surface tension between the two fluids and κ the curvature at the interface, defined in terms of the divergence of the unit normal to the interface.

The fluid properties are calculated within each cell using the volume fraction, ϕ :

$$\rho = \phi \rho_{liquid} + (1 - \phi) \rho_{gas} \quad (\text{III.4})$$

$$\mu = \phi \mu_{liquid} + (1 - \phi) \mu_{gas} \quad (\text{III.5})$$

and the volume fraction ϕ is transported using the VOF equation

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \phi = 0 \quad (\text{III.6})$$

where \mathbf{v} is the fluid velocity. The accurate position of the interfaces can be obtained through interpolating values of ϕ .

In order to capture accurately, with interface-diffuse methods, some two-phase phenomena such as liquid films along the walls, it is necessary to refine the mesh significantly. As we are interested in the simulation of different flow regimes, interfaces can be located anywhere in the domain and, therefore, it is quite impossible to decide where to refine locally the mesh. As a consequence, we used a regular mesh with a characteristic cell size about $50 \mu m$ for the simulations presented in this paper. Under these conditions, we were able to simulate accurately liquid films with thicknesses greater than $100 \mu m$, as demonstrated in a previous study (Horgue et al., 2012). According to this study, solving accurately the VOF equations III.6 and the Navier-Stokes system (III.1 and III.2) requires suitable discretization schemes (they are not all able to capture liquid films), and small time steps to avoid numerical errors and interface dissipation. As we expect to simulate various flow regimes with the coalescence of interfaces, the discretization scheme used for the VOF equation III.6 is the CICSAM scheme which is suitable to conserve sharp interfaces even for complex flow with bubble generation processes. The variable timestep is controlled through the Courant number Co defined as follows :

$$Co = \frac{\mathbf{v}\Delta t}{\Delta x} \quad (\text{III.7})$$

The maximal Courant number Co for the following simulations is fixed to 0.25 which represents the best compromise between accuracy and computation time (see Horgue et al., 2012). However, these constraints on timestep and mesh lead to very large computation times which explains, partly, the relatively recent development of these methods. In these conditions, we can easily imagine that simulating our micromodel flows in three-dimensions would be too much time consuming.

For this reason, it would be interesting to simulate the two-phase flow in the micromodel considering that the experiment can be seen as a purely two-dimensional device. This is not a simple problem. The flow is indeed truly 3D, in particular because of the no slip condition on the walls on the cell cross sections. This is even more complicated in the neighborhood of the meniscus with a curvature determined in the cross section by the wall gap (with a possible minor correction due to dynamic films) and by the curvature in the cell plane. Indeed it has been demonstrated for the Hele-Shaw cells that a 2D model may be used corresponding to the cross section average quantities (Park and Homsy, 1984). In the current approach presented, we have chosen to use the commercial code which allows the direct numerical simu-

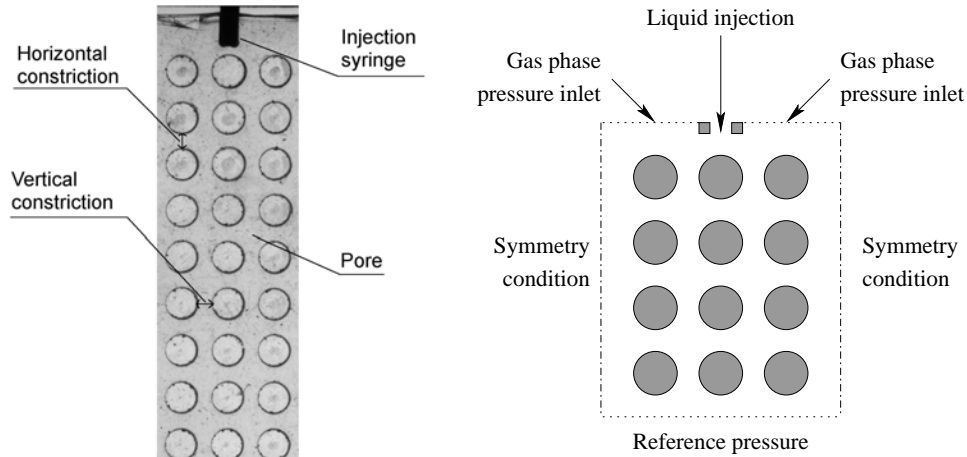


Figure III.3 – Experimental (left) and numerical (right) conditions

lations on a sufficiently large domain by a suitable parallelization on a computer cluster. Unfortunately, this type of code is not suitable for deep modifications of the equations solved. Therefore, the direct simulations in the present work are performed by considering a perfectly two-dimensional micromodel without considering the possible side effects and the obtained results should be discussed taking into account the above remarks. The conditions of the simulations are summarized in Fig. III.3, with at the bottom, an atmospheric reference pressure, and, at the top, an atmospheric pressure imposed for the gas phase and a velocity inlet condition for the central oil injection. Because the impinging jet does not spread to the lateral boundaries, the lateral boundaries are set to symmetry conditions. Typically, the computation time lasted between 20 and 40 hours (with 8 processors 2.4Ghz) for a domain with approximately 30 disks.

3 Experimental Visualizations

Several experiments were performed at various flow rates, in order to cover the different regime transitions. Experiments are highly reproducible, only small details like the exact position of snap-off events, bridge effects, etc... may change slightly from one experiment to another.

3.1 Flow regime transitions

Four different flow regimes were observed depending on the gas and liquid superficial velocities. The patterns correspond qualitatively to the definition of the literature on trickle beds. Three of these regimes are steady-state regimes and correspond to the trickling, bridged and flooded regimes, while one is unsteady and corresponds typically to the pulsing regime.

In order to illustrate these findings, we consider the spreading of a liquid jet on a three columns array of cylinders (diameter = 3 mm), the pore-space forming two columns composed of a succession of large spaces, the pores, and small passages of width 1.5 mm, vertical or horizontal, which are called constrictions (Fig. III.3). The superficial velocities in the following study are defined as the injection flow rate divided by the section of the two columns. Experimental visualizations are performed in two modes : the dry mode and the pre-wetted mode.

In the dry mode, for the lowest liquid flow rates, the flow regime is trickling and is characterized by the flow of the liquid phase as a film along the central column of pillars (Fig. III.4.a). For a higher liquid flow rate, some static liquid bridges can appear between two disk columns and this regime is hence called the “bridged regime” (Fig. III.4.b,c). It may happen, during the liquid bridge creation process or when the liquid flow rate increases, that a local instability makes the liquid films in an horizontal constriction between two tubes to coalesce, thus trapping a gas bubble which eventually moves down through the column. The liquid films in the constriction where the first bubble was generated remains unsteady, generating a regular bubble train flowing down as illustrated in Fig. III.5. The flow regime in this column is so called a “pulsing regime” as it is illustrated in the left column of the Fig. III.4(b) and the right column in the Fig. III.4.d. It is worth noticing that we did not observe in our experiments the inverse transition, i.e., from the pulsing regime to the bridged regime when the flow-rate is decreased for the same experiment. Actually, the interface instabilities generating the gas bubbles persist even when decreasing the liquid injection flow-rate. In our experiments, the bridged regime can only be established by increasing the liquid flow rate from a steady-state flow regime, the trickling regime. If a gas bubble appears during the liquid bridge creation process, this bubble, by flowing down in the column, will cause the transition to the pulsing

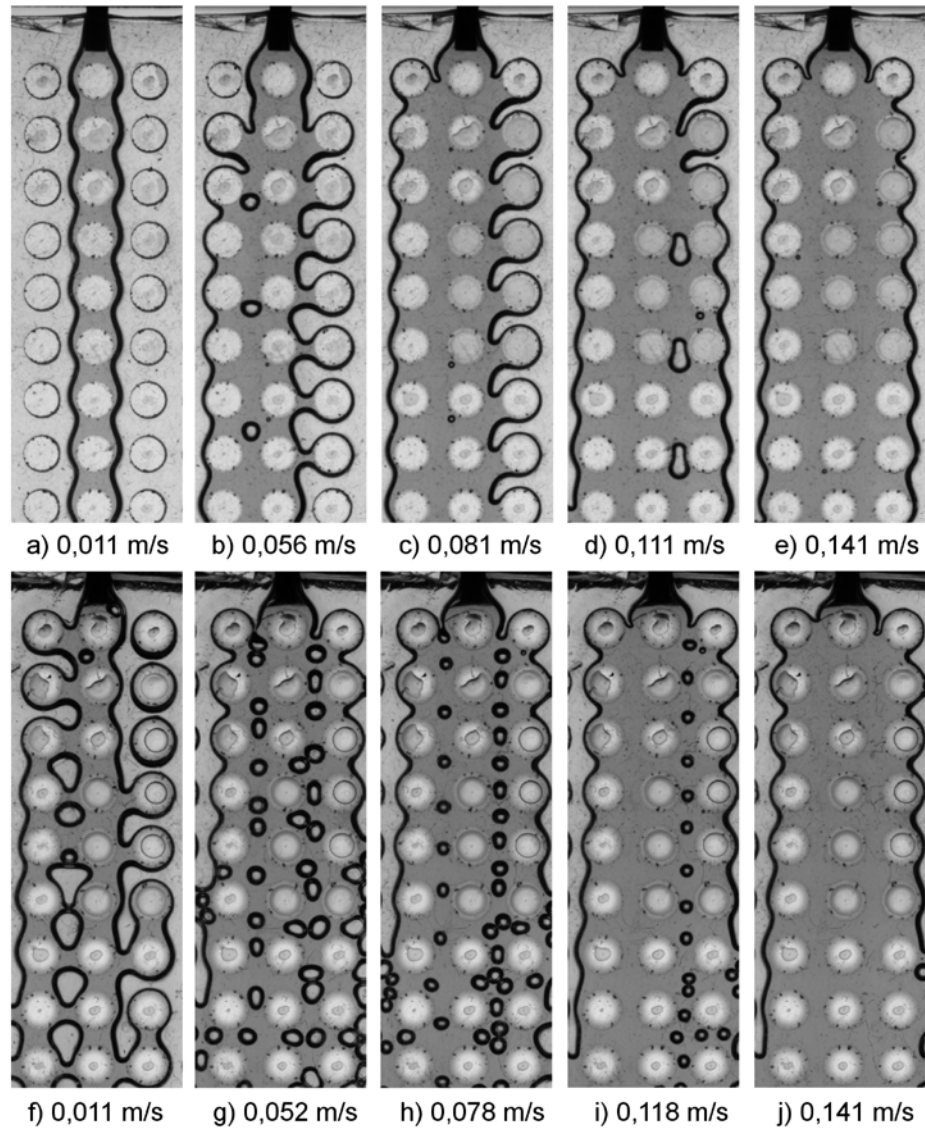


Figure III.4 – Experimental visualizations of two-phase flow in an in-line array of cylinders in the dry (up) and the pre-wetted (down) mode

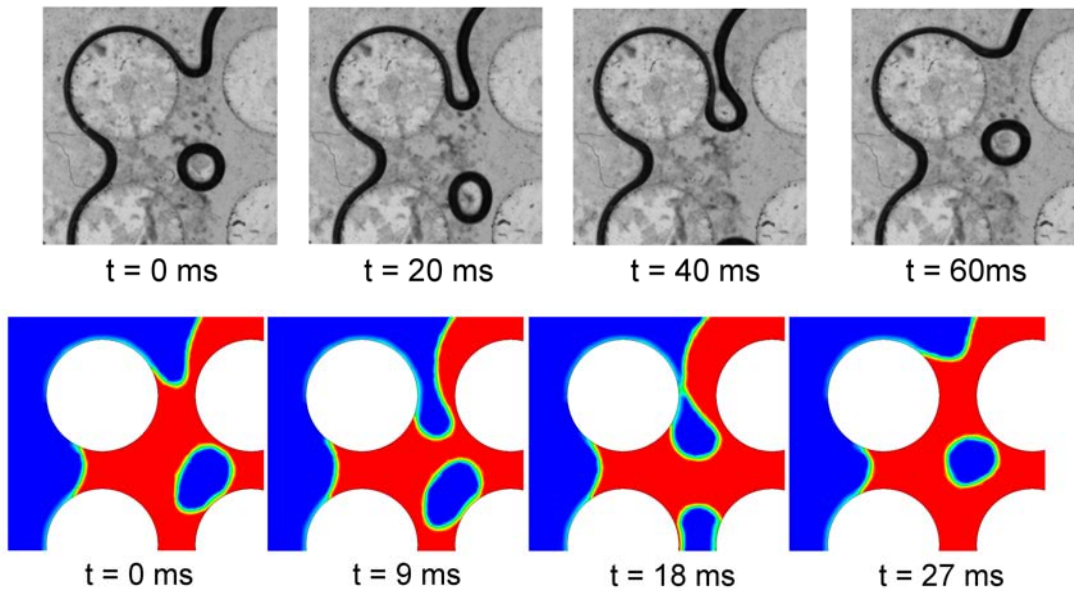


Figure III.5 – Bubble creation process, experimental (top) and numerical (bottom)

regime. For example, in Fig. III.4.b, the left column reach directly the pulsing regime without the steady-state bridged transition.

Each time we increase the liquid flow-rate, the liquid bridge creation area (or bubble creation area in the case of a column reaching directly the pulsing regime) rises in the column until reaching the top. Once the pulsing regime is reached in the column, increasing the liquid flow rate reduce the bubble sizes and lead to the flooded regime in the column as illustrated in Fig. III.4.d,e.

In Fig. III.6, we plot the flow regime changes for the two columns system as a function of the liquid superficial velocity. We also draw grey patches corresponding to configurations in which the pulsing regime is occurring in one column at least. For a liquid superficial velocity equal to $j_l = 0.046$ m/s, the flow becomes unsteady (one column pulsing, the other bridged). Above a velocity equal to 0.068 m/s, the flow becomes steady again (flooded and bridged regimes). Then, by increasing the liquid flow-rate, the liquid bridges in the right columns, thicken and reach a pulsing point. Finally, the system becomes fully flooded at a superficial velocity equal to 0.136 m/s.

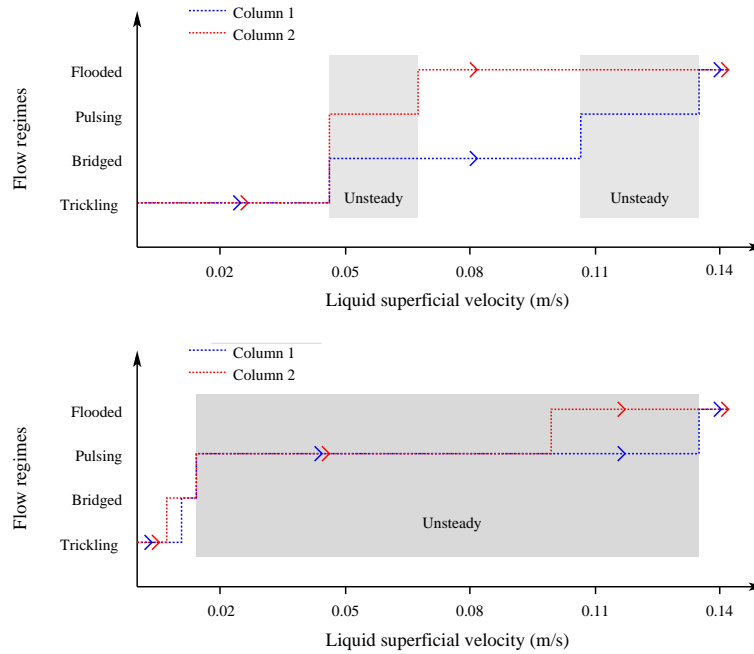


Figure III.6 – Experimental flow regime transitions observed by increasing liquid superficial velocity in the dry (up) and the pre-wetted (down) mode

In the case of the pre-wetted mode, the experimental devices has been flooded by oil once and then drained for several minutes (for a complete drainage) before the experiment. We can observe static thin liquid films around the cylinders even with no liquid injection. This phenomenon has also been observed in trickle beds, as discussed in the introduction. As for the experiment in the dry mode, the observed configurations for various velocities are represented in Fig. III.4(down) and the regime transitions, depending on the liquid superficial velocities, are presented in Fig. III.6(down). For the lowest liquid superficial velocities ($j_l < 0.01$ m/s), we observe, as for the dry experiment, the trickling regime on the central column of disks. Then, increasing the liquid injection, we observe that the static liquid films around the cylinders, remaining after the drainage process, cause the creation of liquid bridges at very low liquid superficial velocities compared to the dry mode (around $j_l = 0.01$ m/s for the pre-wetted mode and $j_l = 0.05$ m/s for the dry mode). For a low injection rate, 0.014 m/s, the system becomes unsteady for the observed two columns, i.e., the flow regime is pulsing. This corresponds to a much lower transition than for the dry experiments. Increasing the liquid superficial velocities tends to reduce the sizes of the bubbles which are similar in the two columns.

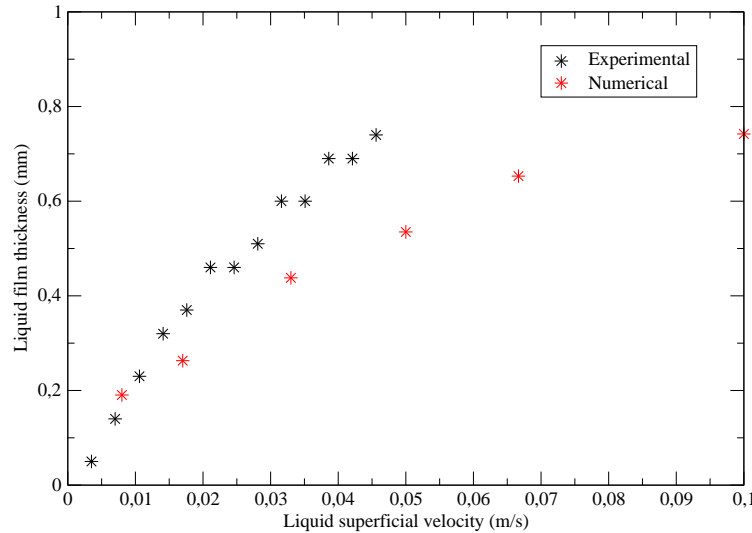


Figure III.7 – Liquid film thickness in the trickling regime

At large flow-rates, the system becomes steady, in a flooded regime, for the same velocity as in the dry mode ($j_l = 0.136$ m/s).

Once the flow regime transitions studied in different conditions, we focus the study on characterizing the two main regime : the trickling and the pulsing regime.

3.2 The trickling regime

For the lowest liquid flow rates in dry conditions (Fig. III.4), the liquid films on both sides of the central columns have similar behaviors and thicken when we increase the liquid injection. We should note that, as discussed in the numerical approach presentation, the device wall is perfectly wetting and a liquid film is present along the walls. This implies the presence of a meniscus, at the junction between the wall and a cylinder, which diffracts the light. This explains that interfaces in the photographs appear larger than their actual thickness. The thickness of the liquid film along cylinders was measured as the shorter distance between the cylinder and the diffracted liquid film which corresponds to the film thickness in the middle of the two plates of the micromodel. The figure III.7 shows the liquid film thickness as a function of the liquid superficial velocity.

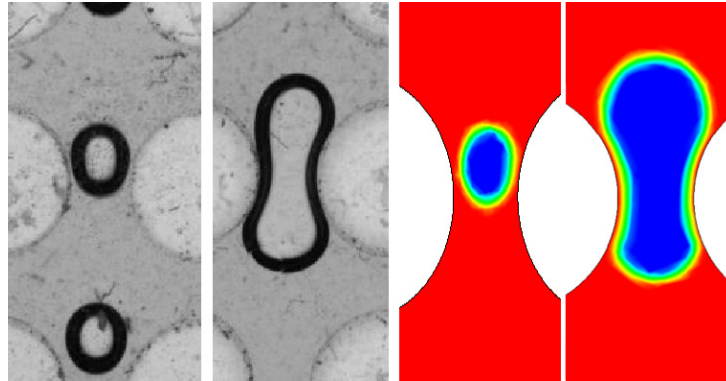


Figure III.8 – Example of the passage of bubbles through a constriction : experimental (left) and numerical (right)

3.3 The pulsing regime

During the study of the flow regime transitions, we observed that the pulsing regime was caused by the propagation of an hydrodynamic instability : the origin is localized in one constriction and the generate bubbles moves down in the micromodel. For an in-line array, the pulsing regime is periodic, with constant bubble sizes, and stay confined between two columns. As indicated before, the gas bubble sizes decrease when increasing the liquid flow rate. There are two mains types of pulsing regimes observed with this experimental device and they depend on the size of the generated bubbles. In the case of small bubbles, more precisely when the bubble diameter is lower than the constriction diameter, the bubbles in motion deform very slightly when they move through the constricted passages (Fig. III.8) and accelerate at this moment. The dimensionless velocity profile near the front and back bubble interfaces is almost the same (Fig. III.9). For a pulsing regime with large bubbles, the bubble must deform significantly (Fig. III.8) in order to pass the constriction and the dimensionless velocity profile is very different between the front and the back of the bubble (Fig.III.10). The velocity fluctuations observed at the front of the bubble are much smaller than those of the back. This specific behavior of bubbles in the pulsing regime can be used for qualitative comparison with the numerical simulations.

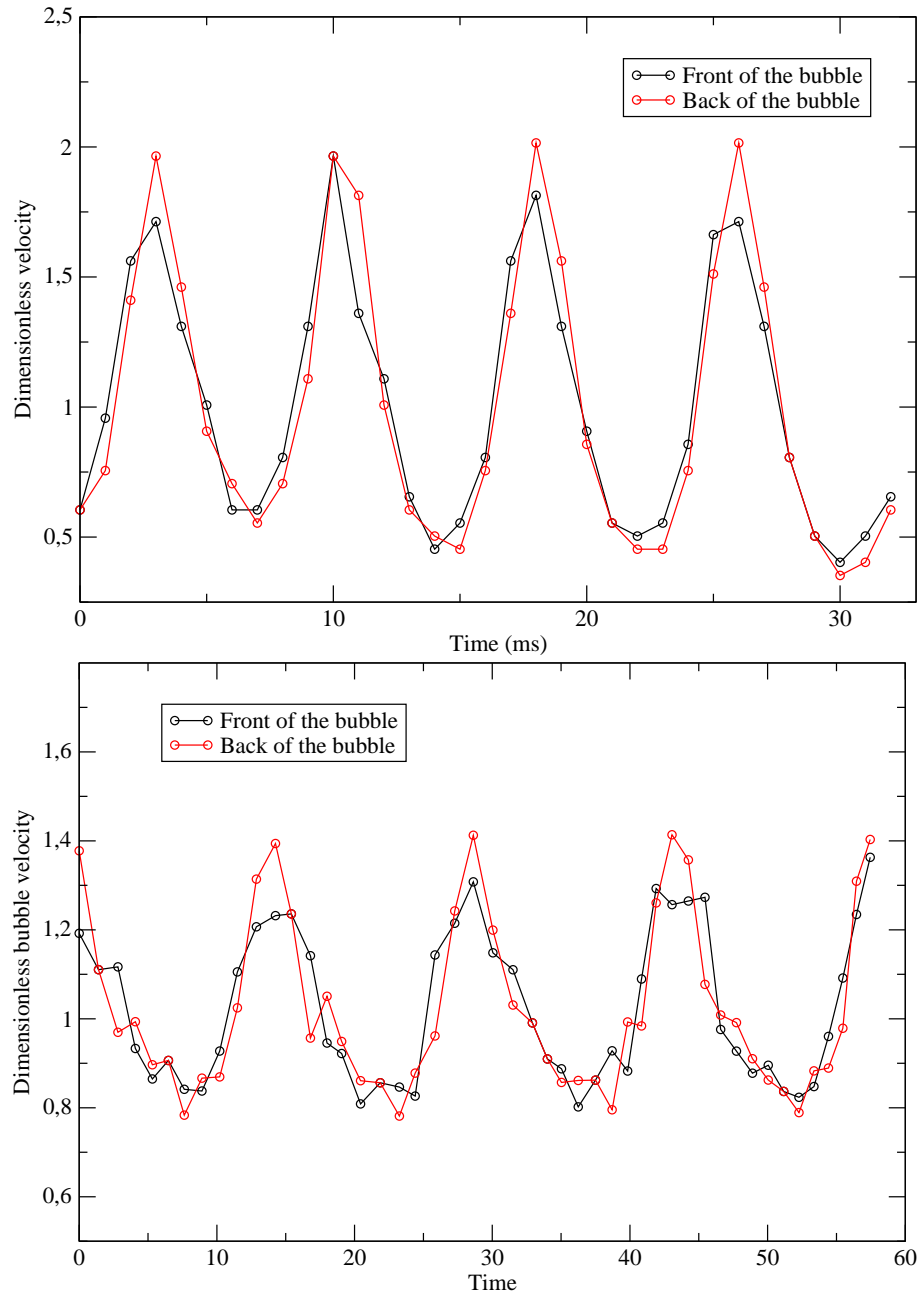


Figure III.9 – Experimental (up) and numerical (down) velocity profiles, made dimensionless by the average bubble velocity, of a small bubble through a series of constrictions

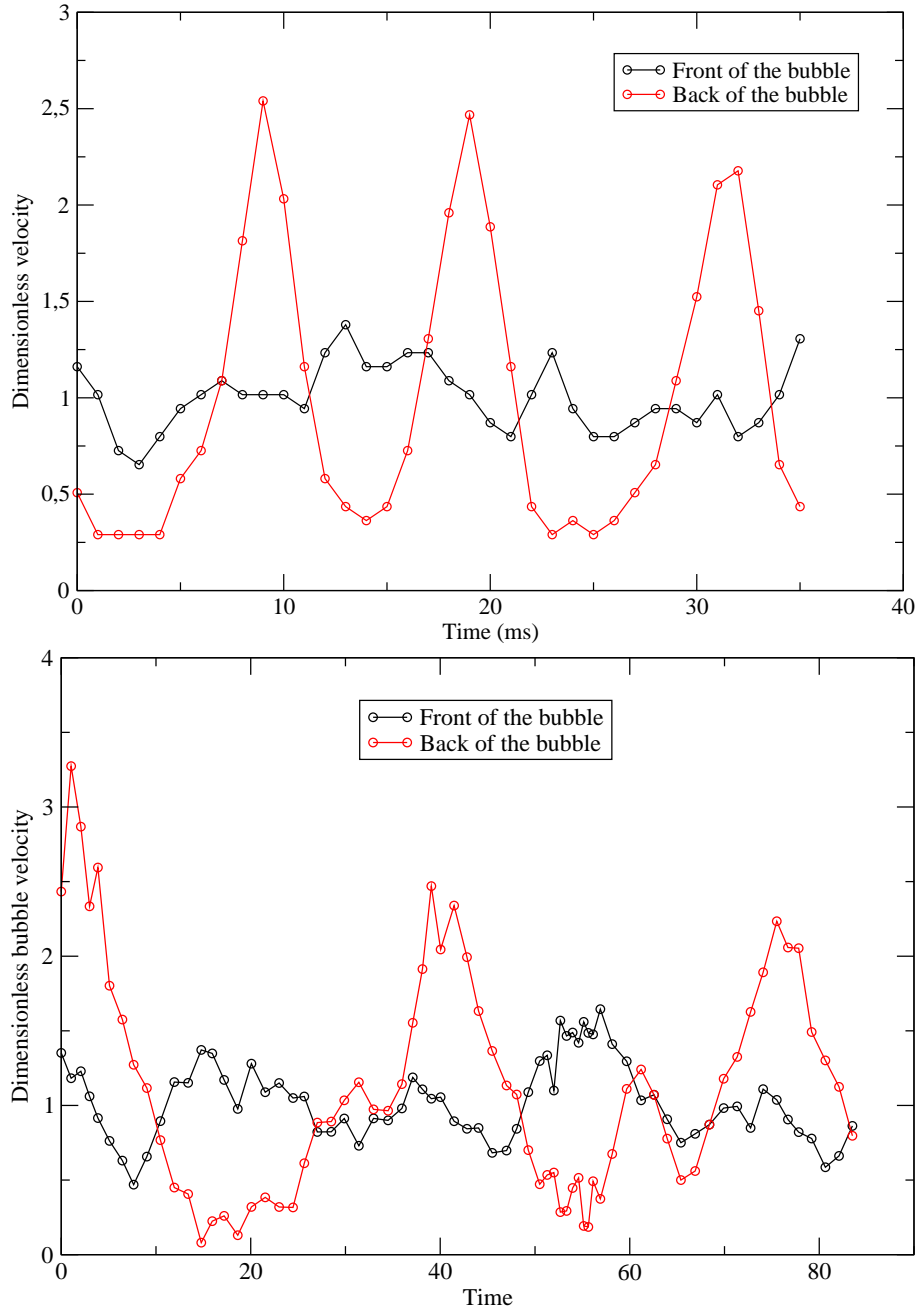


Figure III.10 – Experimental (up) and numerical (down) velocity profiles, made dimensionless by the average bubble velocity, of a big bubble trough a series of constrictions

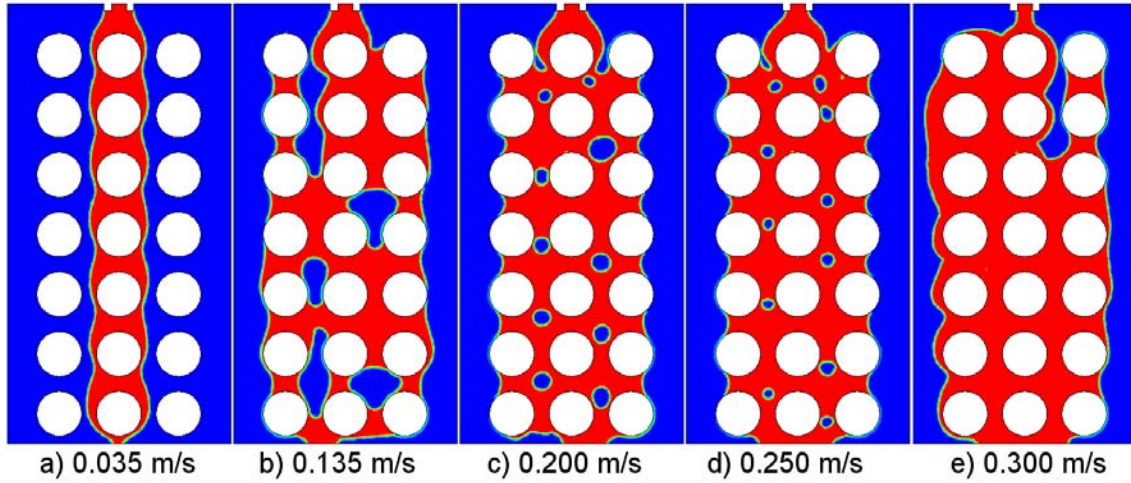


Figure III.11 – Flow regimes observed with the Volume-Of-Fluid method : trickling (a), pulsing (b,c,d), flooded (e)

4 Direct numerical simulations

The objective of this section is to evaluate the ability of the 2D numerical model to reproduce the phenomenology observed experimentally. In the following simulations, we consider, as discussed previously, an in-line two-dimensional array of disks with diameter 3 mm with a spacing between disks of 1mm. Qualitatively, we obtain patterns which are similar to the experimental ones, as illustrated in Fig. III.11. More details are given below about the observed slight differences.

4.1 The trickling regime

For the lowest liquid injection rate, i.e., in the trickling regime, the shapes of the interfaces obtained with the 2D simulations are close to those observed in the experimental device as it is illustrated in Fig. III.11.a. Due to the wall effect present in the experiments, the experimental liquid films grow faster than the numerical films (Fig. III.7). Experimental and numerical film thicknesses are close for the lowest liquid superficial velocities but tend to differentiate for higher velocities. The differences in the liquid film thickening mechanism induce differences in the regime transitions. The trickling-to-pulsing transition occurs at $j_l = 0.05$ m/s for the experimental case and $j_l = 0.10$ m/s for the numerical case.

4.2 The pulsing regime

In the numerical simulations, the pulsing regime is reached simultaneously in the two columns (Fig. III.11.b,c,d). Contrary to the experimental visualizations, the liquid bridges in vertical two-dimensional constrictions cannot be stable in numerical simulations. This phenomenon can be explained by the fact that, in a purely 2D approach, the capillary forces, related to the presence of a liquid film along the wall, are absent in the direct simulations.

As depicted in Fig. III.5, two-dimensional simulations can capture the bubble creation process which occurs at the top of the cylinder array. For each column, we observe the periodic process of bubble generation, which tends to reduce bubble sizes when increasing the liquid superficial velocity. Bubble behaviors in the simulations are close to those observed in the experiments (Fig. III.8), with two main types of bubbles, depending on their characteristic size, related with the two main type of pulsing regimes, described in the experimental study of the pulsing regime.

When the characteristic size of the bubble is larger than the width of the constriction between two cylinders, the bubble deformation through the constrictions in the numerical simulations induces two different velocity profiles at the front and the back of the bubbles, as observed in the experiments. This is illustrated in Fig. III.9 and Fig. III.10 which represent the dimensionless velocity evolution with time at the front and at the back of a bubble. The big bubble profile was observed for a $j_l = 0.111$ m/s for the experimental case and $j_l = 0.180$ m/s for the numerical case while, for the small bubble, superficial velocities was respectively $j_l = 0.132$ m/s and $j_l = 0.250$ m/s. Increasing the liquid flow-rate will change the flow regime to "flooded" for both columns (Fig. III.11.e), at $j_l = 0.30$ m/s for the numerical case (to be compared to a transition at $j_l = 0.14$ m/s for the experiments).

In conclusion, while there are small differences which may be attributed mainly to the potential impact of 3D phenomena in the experiments, the 2D simulations give a map of the transitions regimes similar to the experimental one :

- the patterns are really similar, with, of course, more regularity in the case of the numerical simulations (we did not try to disturb slightly the simulated geometry, which is an interesting problem beyond the scope of this paper...),
- while there are some quantitative differences, in particular when considering the values at which transitions occur, it is better than an order of magnitude difference.

This suggests that the 2D simulations may be used with some confidence to understand more precisely (because the internal fields are accessible and because it is easy to test hypotheses by changing parameters and boundary conditions) the physical phenomena involved in such flows. As an illustration, we present below some results concerning the impact of gas injection.

4.3 Influence of gas injection

To illustrate the possibilities offered by the numerical approach, we performed direct numerical simulations with a small pressure drop imposed for the gas phase to qualitatively observe the influence of the gas flow on the liquid jet for gas superficial velocities between 0.20 and 2.00 m/s. In the case of the spreading of a liquid jet, inducing gas superficial velocities less than 1 m/s, has not effect on the liquid flow. For higher pressure drops, if the flow regime occurring in the columns is pulsing, gas injection hinders the bubble creation process and an elongated gas slug is created in one pore-column. This gas slug extends until the flow reaches the trickling regime (Fig. III.12). For an initially flooded system, the effect of gas injection is nearly the same with a direct transition from the flooded regime to the trickling regime.

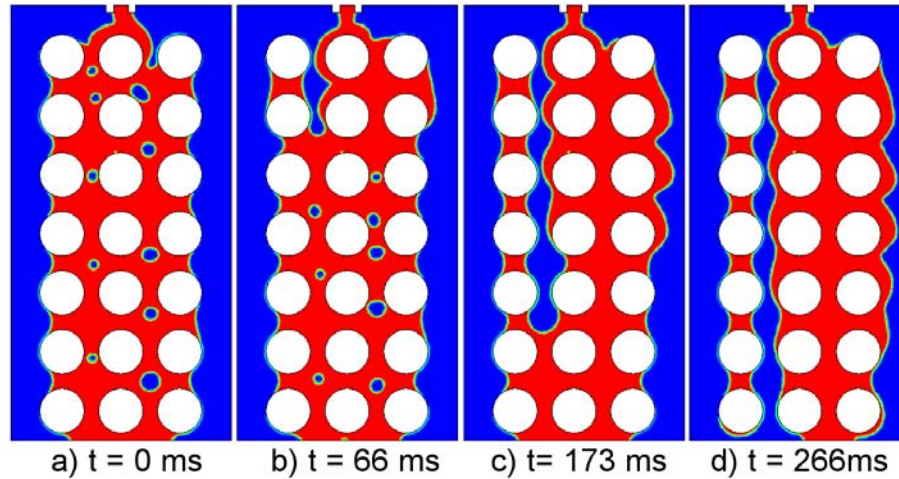


Figure III.12 – Effect of gas injection (1 m/s) on the pulsing regime in a tube bundle : a) pulsing regime, b) pulsing process stopped, c) elongated gas bubble, d) trickling regime

5 Conclusions

The spreading of a liquid jet across in-line or staggered arrays of cylinders was experimentally and numerically studied in the case of a micro-model. The characteristic length of the passages between pillars was chosen to be close to the capillary length. The combination of gravity and capillary effects in this case allowed us to observe most of the flow regimes described in the trickle bed literature, even with no gas injection. We also have shown that it is possible to simulate the flow phenomenology observed during the experiment with two-dimensional simulations, with some slight differences in time and space scales. This is particularly interesting, since a numerical approach presents many advantages. It can be used to observe the influence of one particular parameter without having to set up a new experimental procedure. For each simulation, we have at our disposal, for interpretation purposes, the internal fields (pressure, velocity, interface positions), which are barely experimentally accessible. We observed, for example, the stabilizing effect of air injection in the cylinder bundle with the help of numerical simulations. As direct numerical simulations of the real problem in three dimensions would require too much computation time, it is therefore interesting to establish that 2D simulations have most of the features required to better understand trickle bed physics.

Chapitre IV

Développement d'une approche réseau dans le cas d'un écoulement ruisselant "2D"

Dans ce chapitre, on cherche à développer une approche réseau permettant de simuler les écoulements ruisselants en lit fixe à l'échelle d'un grand nombre de particules tout en prenant en compte les spécificités géométriques locales. La modélisation de ce type d'écoulement étant d'une nature complexe, ce chapitre constitue une étude préliminaire visant à valider l'approche dans un cas simplifié de lit fixe, un empilement de particules "2D", qui a par ailleurs été étudié de façon numérique et expérimentale dans le chapitre précédent. Comparé à un lit fixe réel en trois dimensions, ce type de configuration présente l'avantage de conserver une phénoménologie similaire à celle observée dans les lits fixes tout en permettant une visualisation expérimentale simplifiée (voir chapitre III) ainsi qu'une réduction considérable des temps de calculs.

1 Génération d'un réseau de pores dans un lit fixe "2D"

1.1 Génération d'un lit fixe "2D"

Un lit fixe de particules "2D" est composé d'un empilement de disques qui ne sont pas en contact. En effet, contrairement à la génération d'un lit de particules en trois dimensions, il est nécessaire de garder un espace minimum entre chaque particule afin de laisser un passage libre pour l'écoulement. On définit tout d'abord une porosité du milieu, ou un espacement initial entre disques, afin de générer un domaine contenant des disques à intervalles réguliers. L'étape suivante consiste à faire bouger chaque disque dans une direction aléatoire sur une faible distance. À chaque déplacement, la nouvelle position du disque est considérée comme acceptable s'il n'intersecte pas le bord du domaine et s'il respecte une distance minimale, définie par l'utilisateur, avec les particules voisines. Cette étape est ensuite répétée un grand nombre de fois afin de générer une disposition aléatoire des disques. Le lecteur intéressé par la génération de milieux poreux aléatoires hétérogènes pourra se référer à l'ouvrage de Torquato (2002).

1.2 Création du "réseau de pores"

Une fois l'empilement de particules obtenu, on génère ensuite le squelette du réseau en construisant un diagramme de Voronoi (Fig. IV.1(gauche)). Ce type de diagramme permet de situer le centre de chaque pore, les sommets du réseau, qui sont équidistants avec les trois particules les plus proches. Les segments reliant les centres des pores constituent alors les axes des canaux. Chaque pore peut ensuite être représenté par un cercle tangent aux trois disques voisins (Fig. IV.1(droite)). Les pores sont caractérisés par un rayon et un volume tandis que les canaux du réseau sont caractérisés par une longueur reliant les centres des deux pores voisins ainsi qu'une largeur de canal correspondant à l'espacement minimal entre les deux particules voisines. Il est important de noter à ce stade que le choix des distances équivalentes (rayon de canal, rayon de pore, longueur de canal) constitue une décision arbitraire, basée sur des considérations purement géométriques. Le choix de ces

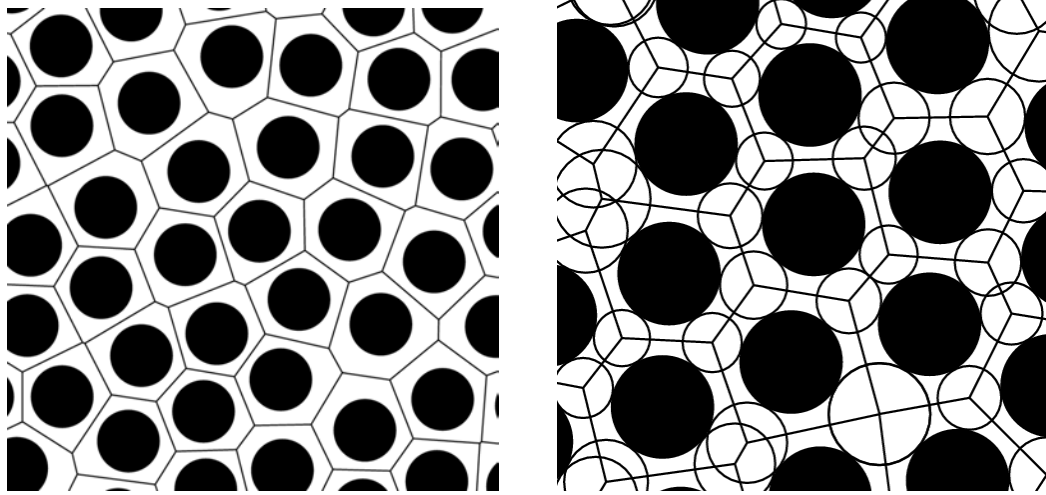


Figure IV.1 – à gauche : Diagramme de Voronoi construit sur un empilement de particules 2D, à droite : Réseau de pores (cercles) et de canaux (segments) dans un empilement de particules 2D

distances équivalentes sera par ailleurs discuté dans la suite de ce document lors de la validation de l'approche et de l'étude de sensibilité du modèle.

On peut observer, lorsqu'un milieu est suffisamment poreux, la présence de pores qui s'intersectent et le canal les reliant est donc intégralement compris dans les deux pores voisins (Fig. IV.1). Or, comme on considère habituellement dans les modèles de type "réseau de pores" que la perte de charge est nulle dans un pore et non nulle dans un canal, il est nécessaire de procéder à un traitement du réseau afin de le rendre cohérent avec les hypothèses de modélisation. On fusionne donc en un seul élément les pores qui s'intersectent en supprimant les canaux les reliant. Les propriétés du nouveau pore ainsi formé sont actualisées afin de conserver le volume de vide initial. On peut noter que, contrairement à un diagramme de Voronoi classique, ce type de traitement conduit à la création de pores pouvant être connectés à plus de 3 canaux.

2 Modèle réseau d'écoulement diphasique

Le modèle réseau, développé dans cette étude, se base sur une partie des hypothèses habituellement formulés dans les approche de type "réseau de pores" (Dullien, 1992; Sahimi, 2011) et a pour objectif de permettre la simulation d'écoulements diphasiques dans les lits fixes en deux et trois dimensions. La complexité de l'écoulement en lit fixe, notamment la présence de différents régimes d'écoulement, rend difficile l'élaboration d'un modèle général permettant de prendre en compte l'ensemble de la phénoménologie en lit fixe. Pour cette raison, cette étude se focalise sur les écoulements en régime "ruisselant", c'est à dire à faible nombre de Reynolds. Les hypothèses formulées dans le cadre de cette étude ne sont donc valables que dans les conditions spécifiques de l'écoulement étudié.

La structure du modèle est cependant indépendante des hypothèses et il est donc envisageable de modifier par la suite certaines relations afin de pouvoir adapter ce modèle à d'autres types d'écoulements en lit fixe.

2.1 Lois de conservation du modèle

Dans les lois de conservation développées ci-dessous, on considère un pore i connecté à n canaux. En fonction du sens de circulation de la phase liquide à un instant donné, chaque canal peut être d'entrée ou de sortie. Un pore est donc connecté à m canaux d'entrée et p canaux de sortie avec :

$$n = m + p \tag{IV.1}$$

Dans les pores

On conserve l'hypothèse de pression homogène dans les pores, habituellement formulée dans les modèles réseaux. De plus, on considère que la pression capillaire est nulle ce qui permet de définir une pression unique dans le pore, identique pour les deux phases et indépendante de la saturation. Enfin, on considère dans notre approche que les deux phases fluides sont incompressibles. Afin de calculer la pression et la saturation dans un pore i du réseau, on résoud donc l'équation de conservation

de la masse totale :

$$\sum_{k=1}^n Q_{liquide}^k + \sum_{k=1}^n Q_{gaz}^k = 0 \quad (\text{IV.2})$$

ainsi que l'équation de conservation de la masse liquide :

$$V_i \frac{dS_i}{dt} = \sum_{k=1}^n Q_{liquide}^k \quad (\text{IV.3})$$

avec :

- $\sum_{k=1}^n Q_{liquide}^k$, somme des débits liquides,
- $\sum_{k=1}^n Q_{gaz}^k$, somme des débits de gaz,
- V_i , volume du pore i ,
- S_i , saturation en liquide du pore i .

Dans les canaux

Contrairement aux modèles réseaux classiques, l'hypothèse d'écoulement de type "piston" n'est pas valide dans le cas des écoulements en lit fixe. En effet, les deux phases fluides peuvent s'écouler conjointement dans chaque canal du réseau et on définit alors une saturation en liquide S_j permettant de connaître la proportion de chaque fluide dans le canal j . La variation de saturation dans le canal est obtenue par résolution de l'équation de conservation de la masse liquide :

$$V_j \frac{dS_j}{dt} = \eta_j \sum_{k=1}^m Q_{liquide,entrant,i}^k - Q_{liquide}^j \quad (\text{IV.4})$$

avec :

- V_j , volume du canal j ,
- S_j , saturation en liquide du canal j ,
- $\sum_{k=1}^m Q_{liquide,entrant,i}^k$, somme des débits liquides des m canaux entrants dans le pore i ,
- $Q_{liquide}^j$, le débit liquide sortant du canal j ,
- η_j , coefficient de distribution associé au canal j ,

Ainsi, dans le modèle développé, on considère que la variation de saturation dans un canal du réseau est obtenue en faisant la différence entre les débits liquides entrant et sortant du canal. Le débit liquide entrant est calculé en considérant qu'une

fraction du liquide entrant dans le pore adjacent sera redistribuée dans ce canal. Cette fraction est déterminée par le coefficient de distribution, η_j , dont la définition fera l'objet d'une discussion dans la suite de ce chapitre. Afin de conserver la masse liquide dans le pore, il est nécessaire de distribuer l'ensemble du débit liquide entrant entre les p canaux de sortie disponibles du pore i , ce qui se traduit par la contrainte suivante :

$$\sum_{k=1}^p \eta_k = 1 \quad (\text{IV.5})$$

Le débit sortant du canal $Q_{liquide}^j$ est calculé à l'aide d'une relation, définie dans la suite de ce document, reliant la perte de charge et la saturation aux débits de liquide et de gaz dans le canal.

Discussion

La loi de conservation de la masse liquide IV.3 dans les pores est une vision simple du problème. On considère en effet que la configuration des phases dans les pores, ainsi que la saturation de chaque pore, n'a aucune influence sur l'écoulement dans les canaux voisins. Il serait intéressant d'effectuer, dans un prochain travail, des simulations numériques directes dans différentes configurations de pores afin d'évaluer l'influence de la répartition des phases sur les débits dans les canaux adjacents. Bien que simplifiée, la formulation proposée dans ce document introduit cependant des lois de conservations distinctes pour les deux types d'éléments, canaux ou pores. Le pore se comporte alors comme un réservoir avec des temps caractéristiques de remplissage et de drainage différents de ceux des canaux voisins. Cela permet d'introduire alors la possibilité de simuler des effets d'hystérésis avec le modèle réseau, qui jouent un rôle important dans les lits fixes (van der Merwe et al., 2008; Van der Merwe and Nicol, 2009)

2.2 Relations de calcul des débits

On considère que le régime d'écoulement de base au sein du lit de particules est ruisselant, c'est à dire caractérisé par l'écoulement de la phase liquide sous forme d'un film le long de la paroi du canal (ou des parois dans le cas purement 2D où le canal

est apparenté à une cellule de Hele-Shaw). On formule l'hypothèse d'un écoulement parfaitement parallèle dans le canal, avec un film d'épaisseur constante, ce qui permet de négliger les effets inertiels de l'écoulement, et on peut ainsi développer une solution analytique au problème de Navier-Stokes (le calcul de la relation est détaillé en annexe A de ce manuscrit). En considérant un canal j de demi-espacement h et un film liquide d'épaisseur e , les débits de liquide et de gaz en fonction du gradient de pression, ∇P , et de la saturation, $S_j = e/h$, s'expriment de la façon suivante :

$$Q_{liquide}^j = -\frac{2h^3}{\eta_l} \left[\frac{1}{3} S_j^3 (\nabla P - \rho_l g) + S_j^2 (1 - S_j) (\nabla P - \rho_g g) \right] \quad (\text{IV.6})$$

$$Q_{gaz}^j = -\frac{2h^3}{\eta_l} \left[\left(\frac{\eta_l}{3\eta_g} (1 - S_j)^3 + S_j (1 - S_j)^2 \right) (\nabla P - \rho_g g) + S_j^2 (1 - S_j) (\nabla P - \rho_l g) \right] \quad (\text{IV.7})$$

Le domaine de validité de ces relations, en terme de vitesses interstitielles de gaz et de liquide, sera ensuite défini par confrontation des résultats analytiques aux résultats de simulations numériques directes d'écoulements diphasiques à travers des constriction 2D.

2.3 Coefficient de distribution liquide

Dans le cas des écoulements diphasiques en lit fixe, les deux phases s'écoulent conjointement dans les différents éléments du réseau et, par conséquent, l'hypothèse de pression capillaire seuil, habituellement utilisée dans les modèles réseaux (voir chapitre I), ne paraît pas adaptée. Il est donc nécessaire d'introduire un autre mécanisme de distribution des phases, par l'intermédiaire du coefficient de distribution η (Eq. IV.4). Aucune base physique ne permet cependant, à priori, de définir précisément ce critère.

Une première approche, que l'on qualifie de statique, consiste à attribuer un coefficient fixe de distribution à chaque canal dépendant des conditions géométriques locales. On peut par exemple définir le coefficient de distribution liquide en fonction de la section du canal. L'écoulement de la phase liquide étant fortement influencée par l'action de la gravité dans le cas des écoulements ruisselants, l'introduction d'un coefficient lié à l'inclinaison du canal peut également être envisagée. Plusieurs définitions possibles de coefficient statique seront explorées au cours de ce travail.

Une second approche consiste à définir un coefficient variable, qui dépend à la fois des conditions géométriques locales mais également des propriétés locales de l'écoulement. En effet, on a pu par exemple observer que, lors de l'étude expérimentale, la mouillabilité des particules du réseau jouait un rôle non négligeable dans la répartition de la phase liquide dans le milieu, et pourrait par conséquent être intégrée dans la définition du coefficient. Cette approche dynamique sera développée dans un cas d'écoulement fortement hétérogène, celui de l'étalement d'un jet de liquide dans le réseau.

2.4 Prise en compte des autres régimes d'écoulement

Le régime "inondé"

Bien que le régime d'écoulement de base soit "ruisselant", c'est à dire avec une saturation moyenne relativement faible dans le domaine, la répartition hétérogène de la phase liquide dans le milieu peut conduire à l'apparition de zones à forte saturation. Dans le cas d'un canal saturé par la phase liquide, le régime d'écoulement est alors "inondé", ce qui nécessite de modifier les lois de conservation précédemment énoncées. En effet, si l'on résout l'équation de conservation IV.4 pour un canal dont la saturation vaut 1 à l'instant n , et que le débit distribué en entrée du canal ($\eta_j \sum_{k=1}^m Q_{liquide,entrant,i}^k$) est supérieur au débit calculé du canal ($Q_{liquide}^j$), alors la nouvelle saturation calculée au temps $n + 1$ sera supérieure à 1.

Afin d'éviter ce type de solution non physique, on considère donc que, lorsque la saturation dans un canal atteint 1, la quantité de liquide maximale pouvant être distribuée dans ce canal est atteinte. La variation de saturation dans le canal est alors nulle et le débit de liquide en sortie de canal est égal au débit d'entrée dans l'équation IV.4. Afin de conserver la masse totale de liquide dans le pore i alimentant ce canal, il est alors nécessaire de modifier la loi de conservation de la masse liquide pour l'ensemble des canaux non inondés sortants du même pore.

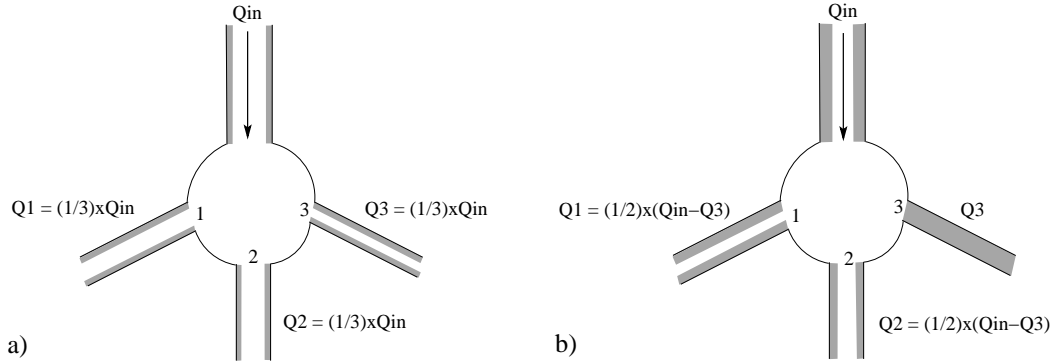


Figure IV.2 – Illustration du changement de distribution de la phase liquide lors d’une transition en régime inondé : a) le débit liquide entrant dans le pore est équitablement réparti entre les trois canaux, b) l’excès de débit liquide est distribué dans les canaux non saturés 1 et 2

La nouvelle formulation de l’équation de conservation s’écrit donc :

$$V_j \frac{dS_j}{dt} = \eta_j \left(\sum_{k=1}^m Q_{liquide,entrant,i}^k - \sum_{k=1}^t Q_{liquide,sortant,inonde,i}^k \right) - Q_{liquide}^j \quad (IV.8)$$

avec $\sum_{k=1}^t Q_{liquide,sortant,inonde,i}^k$, somme des débits liquides des t canaux inondés sortant du pore i . La contrainte sur le coefficient de distribution IV.5 doit également prendre en compte la présence des canaux inondés et s’écrit donc désormais :

$$\sum_{k=1}^{p-t} \eta_k = 1 \quad (IV.9)$$

Un exemple schématique de la situation est présenté en figure IV.2. La transition du régime “inondé” vers le régime “ruisselant” est également possible si le débit liquide théoriquement distribué dans un canal inondé devient, en cours de simulation, inférieur au débit calculé du canal. La saturation dans le canal est alors de nouveau variable et peut alors diminuer afin de respecter la loi de distribution de la phase liquide.

	ruisselant	pont liquide	inondé
ruisselant		$S_j > S_{critique,max}$	pas de transition
pont liquide	$S_j < S_{critique,min}$		$S_j = 1$
inondé	pas de transition	$Q_{liquide}^j > \eta_j \sum_{k=1}^m Q_{liquide,entrant}$	

Table IV.1 – Résumé des transitions de régime du modèle

La présence de "ponts liquide"

A l'échelle du canal, il parait peu probable que le régime d'écoulement conserve un caractère ruisselant lorsque la saturation liquide devient importante dans la constriction. En effet, le coeur de gaz de l'écoulement, au centre du canal, devient alors trop étroit et les effets capillaires induisent la création d'un pont liquide. Afin de prendre en compte ce phénomène, on considère que, lorsque la saturation atteint une certaine valeur, $S_{critique,max}$, définie par l'utilisateur, on observe la création d'un pont liquide qui va instantanément bloquer le passage du gaz.

La transition inverse, c'est-à-dire l'ouverture d'un pont liquide libérant le passage du gaz peut également se produire. On introduit donc une saturation critique $S_{critique,min}$, inférieure à $S_{critique,max}$, en dessous de laquelle un pont liquide existant se sépare. Les transitions possibles entre les trois régimes d'écoulements sont résumées dans le tableau IV.1.

Relations de calcul de débit pour les régimes "inondé" et "pont liquide"

Les relations de débits liées au régime ruisselant (IV.6 et IV.7) tendent naturellement vers une formulation de type Loi de Poiseuille lorsque la saturation tend vers 0 ou 1, et les régimes monophasiques découlent donc des relations initiales. Concernant le régime à "pont liquide", on conserve la formulation d'écoulement ruisselant pour la phase liquide (Eq. IV.6) tandis que le débit de gaz est nul.

2.5 Conditions limites

Les limites du réseau sont constituées par les pores situés à la frontière du domaine d'étude. On distingue trois types de conditions limites utilisées dans le cadre de notre modèle réseau.

Pression constante

Cette condition limite fixe une pression constante pour les pores situés à la frontières du domaine. On considère qu'il n'existe pas de pression capillaire en sortie de réseau et que, par conséquent, la condition limite est indépendante de la saturation dans les canaux de sortie.

Dans les simulations présentées, cette condition limite est utilisée en bas du lit fixe de particules, définissant ainsi la pression de sortie comme la pression de référence du système.

Paroi

En attribuant une condition de paroi à un pore situé en bord du domaine, on considère que celui-ci n'a aucun échange avec l'extérieur. Dans le cas où ce pore est connecté à au moins 2 canaux, les équations de conservation habituelles sont donc résolues de la même façon que pour un pore interne au domaine. Si le pore n'est connecté qu'à un seul canal, on attribue alors une condition de flux nul au canal et les équations de conservation pour le pore et le canal ne sont donc pas résolues.

Condition d'injection

La condition limite d'injection de gaz et de liquide en tête de réseau peut être appliquée de diverses façons. Il est notamment nécessaire de choisir si l'on préfère fixer la pression et la saturation en entrée afin de calculer les débits de gaz et de liquide ou l'inverse. L'approche adoptée dans ce travail se veut la plus proche des conditions de fonctionnement d'un réacteur à lit fixe réel et on choisit de fixer les

débites de liquide et de gaz en entrée, la pression de fonctionnement et la saturation étant des résultantes des conditions imposées.

On suppose l'existence, en haut du lit fixe, d'une chambre de distribution des phases à pression homogène. L'ensemble des pores situés à cette frontière partagent donc une même pression. On fixe en entrée du système un débit de liquide ainsi qu'un débit de gaz. La répartition de la phase liquide entre les différents pores situés à cette frontière se traduit par la présence d'un terme source liquide dans les équations de conservation de chaque pore qui peut être fixé de différentes façons. On peut ainsi procéder à une injection de phase liquide homogène en tête de lit ou localisée. L'équation de conservation de la masse totale dans la chambre de distribution est résolue afin de calculer la pression d'entrée du réseau.

2.6 Algorithme de résolution

Calcul de la solution au temps $n + 1$

Le variation de saturation en liquide dans les pores, obtenue par résolution de l'équation de conservation de la masse liquide IV.3, n'a pas d'influence sur les débits de liquide et de gaz dans les canaux et on peut donc découpler le calcul de la solution au temps $n + 1$. Celui-ci se décompose donc en deux étapes :

- Dans un premier temps, le système, composé de l'équation de conservation de la masse totale dans les pores IV.2 et de l'équation de conservation de la masse liquide dans les canaux IV.4, est discrétisé à l'aide d'un schéma d'Euler implicite. Le problème non linéaire ainsi formé est résolu par une méthode de Newton-Raphson permettant d'obtenir la pression de chaque pore et la saturation de chaque canal au temps $n + 1$.
- Dans un deuxième temps, la saturation au temps $n + 1$ de chaque pore est obtenue par une résolution de l'équation de conservation de la masse liquide dans les pores IV.3, discrétisée de façon explicite, en utilisant les champs de pression et de saturation calculés à l'étape précédente.

Ce découplage permet de réduire la taille du système non-linéaire à résoudre réduisant ainsi, de façon importante, les temps de calcul.

Mise à jour des informations du réseau

Une fois la solution calculée au temps $n + 1$, on procède à la mise à jour des informations de simulations, telles que le pas de temps de simulation ou les régimes d'écoulements.

De part les importantes hétérogénéités de la géométrie du réseau, les temps caractéristiques de “remplissage” des éléments du réseau sont très variables. Par conséquent, il est nécessaire d'utiliser un pas de temps de simulation adaptatif. Afin de conserver la stabilité de la simulation, le pas de temps est diminué si la variation de saturation dans un élément du réseau est trop importante au cours de la dernière itération. A l'inverse, en cas de variation de saturation faible dans tous les éléments du réseau, le pas de temps de simulation est augmenté. Les régimes d'écoulement, tel que présenté dans le tableau IV.1, sont également mis à jour en fonction de la saturation de chaque canal calculée à l'instant $n + 1$.

La simulation est terminée lorsque l'état stationnaire de l'écoulement est atteint, c'est à dire lorsque le débit de liquide en sortie du réseau est égal au débit liquide en entrée.

3 Validation des relations locales

3.1 Cas de validation

Afin de valider l'utilisation des solutions analytiques IV.6 et IV.7 dans le cas des écoulements ruisselants en lit fixe, on simule, à l'aide de la méthode de simulation numérique directe “Volume-Of-Fluid” précédemment validée (voir chapitres II et III), un écoulement ruisselant à travers une série de constriction représentant les passages entre les particules dans un lit fixe. Ces solutions numériques directes constituent la solution de référence qui permet ensuite de définir le domaine de validité des relations analytiques, en terme de vitesses interstitielles de gaz, V_g , et de liquide, V_l .

La géométrie utilisée dans le cadre des simulations directes est présentée en figure IV.3. On définit d'un côté du canal une paroi constituée d'un empilement de

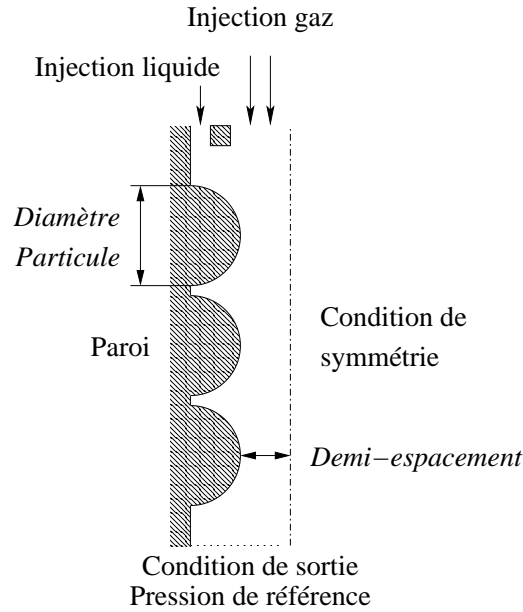


Figure IV.3 – Conditions de simulations

particules 2D. Afin de réduire la taille du domaine, une condition de symétrie est attribuée en milieu de canal. En sortie de canal, on fixe une condition limite de pression constante, la pression de référence du système. Enfin, l'injection des phases fluides est divisée en deux zones : l'injection de liquide s'effectue le long de la paroi tandis que l'injection gazeuse est disposée en milieu de canal. Cette condition d'entrée permet de simuler un écoulement ruiselant. De plus, la présence d'une série de constriction permet de limiter les effets de bords qui pourraient interférer sur la qualité des résultats et les propriétés de l'écoulement.

On considère que l'écoulement étudié se produit dans un lit fixe constitué de particules monodisperses de diamètre 3 mm. Par conséquent, la forme de la paroi est fixe dans les simulations suivantes et seul change le demi-espacement h du canal (Fig IV.3). Les simulations sont effectuées pour 3 demi-espacements ($h = 0.3, 0.6$ et 0.9 mm). Le choix des paramètres de simulations est effectué en suivant les conseils de paramétrisation développés dans le chapitre II de ce manuscrit. Le schéma numérique de discrétisation de l'équation VOF est le schéma "HRIC" tandis que le nombre de Courant définissant le pas de temps est fixé à 0.25. Enfin, on adapte le maillage afin que le film liquide, au niveau de la constriction, comprenne au minimum deux cellules de calcul ce qui permet de s'assurer de la validité des résultats.

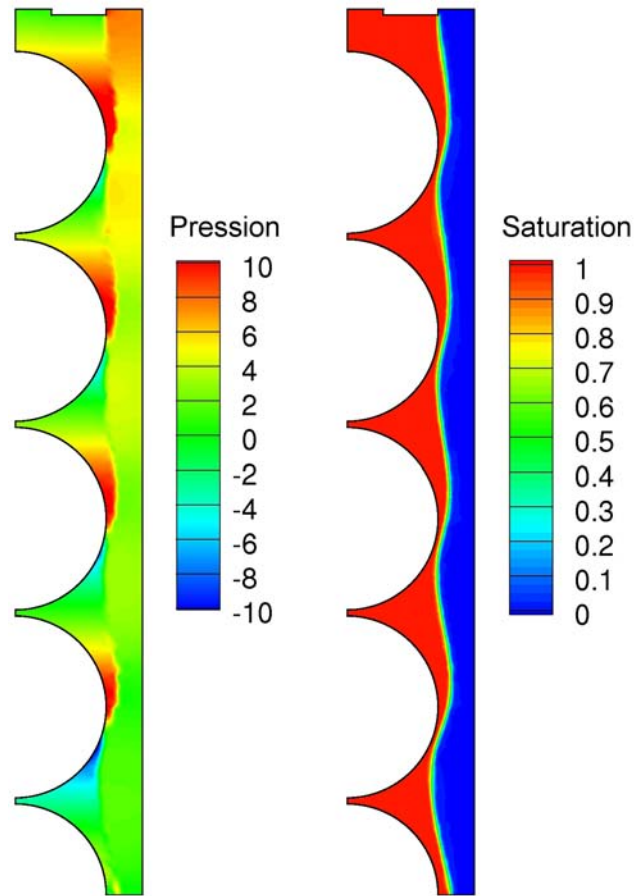


Figure IV.4 – Exemple de simulation d’un écoulement ruisselant dans une série de constrictions, le champs de pression à gauche et la répartition des phases à droite ($V_g = 50$ cm/s, $V_l = 1.8$ cm/s, $h_{constriction} = 0.6$ mm)

Les résultats numériques présentés dans la suite de ce document sont obtenus en faisant varier les vitesses interstitielles de liquide et de gaz (V_g et V_l), définies comme le débit divisé par la section du canal au niveau de la constriction. Un exemple de simulation d’écoulement ruisselant dans ces conditions est présenté en figure IV.4.

3.2 Résultats numériques

Les vitesses superficielles (V_{sg} et V_{sl}) habituellement rencontrées dans le cas des écoulements en lit fixe sont de l’ordre de 10 cm/s pour la phase gazeuse et de 1 cm/s pour la phase liquide. En considérant que la porosité dans un lit fixe est de l’ordre de

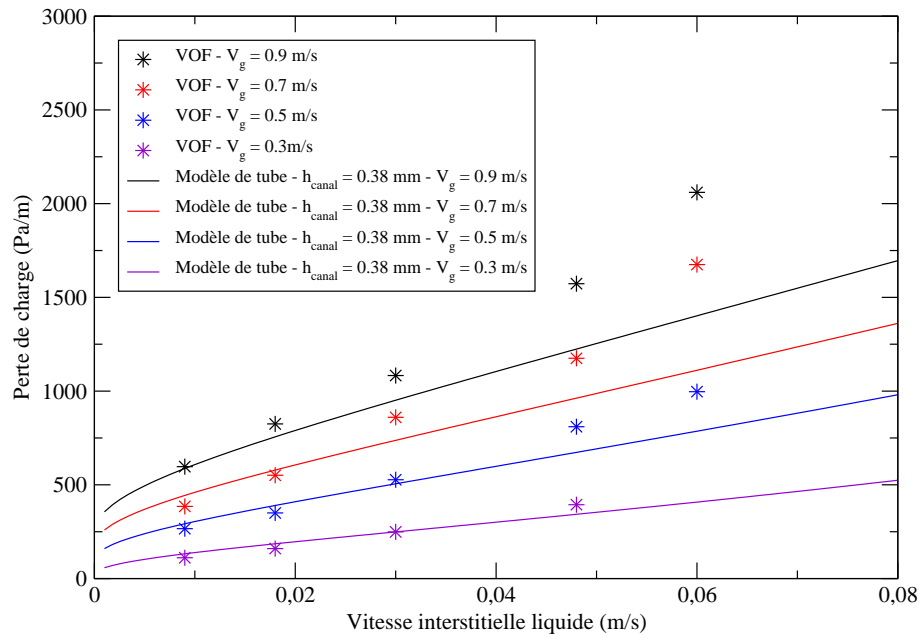


Figure IV.5 – Comparaison de perte de pression entre simulations VOF ($h = 0.6$ mm) et modèle d'écoulement simplifié ($h = 0.38$ mm)

0.33, les vitesses interstitielles (V_g et V_l) observées dans les lits fixes sont d'environ 30 cm/s pour la phase gazeuse et 3 cm/s pour la phase liquide. Dans l'étude suivante, on simule les écoulements ruisselants pour des vitesses interstitielles gazeuses V_g comprises entre 30 et 90 cm/s et des vitesses liquides V_l comprise entre 0.8 et 6 cm/s. On effectue la mesure de perte de charge et de saturation dans les simulations VOF lorsque l'écoulement ruisselant est parfaitement stationnaire.

Si l'on considère le cas de la constriction de demi-espacement $h = 0.6$ mm, on observe sur la figure IV.5 qu'en prenant un canal équivalent de demi-espacement constant $h_{equivalent} = 0.38$ mm (la valeur permettant de minimiser l'erreur en terme de perte de charge), l'erreur de prédiction est inférieure à 10% pour des vitesses suffisamment faibles ($V_g \leq 50$ cm/s, $V_l \leq 4$ cm/s). Lorsque les vitesses deviennent plus importantes, les effets inertiels ne sont plus négligeables. Le modèle d'écoulement parallèle proposé sous-estime alors la perte de charge dans le canal et n'est plus adapté. La comparaison en terme de saturation liquide, dans les mêmes conditions de simulation, est également présentée en figure IV.6. Les prédictions du modèle simplifié sont en assez bon accord avec les simulations numériques directes.

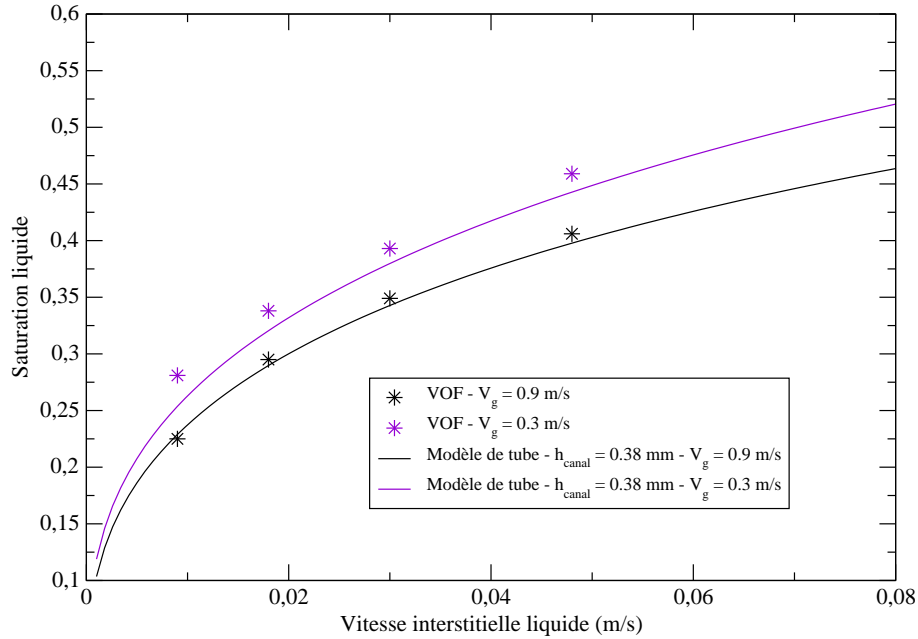


Figure IV.6 – Comparaison de saturation liquide entre simulations VOF ($h = 0.6$ mm) et modèle d'écoulement simplifié ($h = 0.38$ mm)

Les comparaisons entre modèle simplifié et simulations numériques directes pour les deux autres canaux sont présentées en figure IV.7 et IV.8 ($h = 0.3$ mm) et en figure IV.9 et IV.10 ($h = 0.9$ mm). Dans le cas de la plus petite constriction, on observe que le modèle simplifié prédit de façon correcte la perte de charge mais tend à sous-estimer la variation de saturation dans le canal (avec des erreurs maximales de l'ordre de 20%). Dans le cas du canal le plus large ($h = 0.9$ mm), la perte de charge et la saturation prédites à l'aide d'un canal équivalent sont en bon accord avec les résultats numériques dans les conditions d'écoulements en lit fixe.

Les simulations numériques directes à l'échelle d'un canal unique permettent ainsi de définir une loi de calcul du demi-espacement équivalent $h_{equivalent}$ en fonction de celui de la constriction $h_{constriction}$, dans le cas de vitesses suffisamment faibles, qui sera utilisée dans la suite de cette étude :

$$h_{equivalent} = 8,67 \cdot 10^{-5} + 0,467 * h_{constriction} \quad (IV.10)$$

Le modèle simplifié reproduit, pour des vitesses suffisamment faibles, le comportement en terme de perte de charge et de saturation des constriction entre particules.

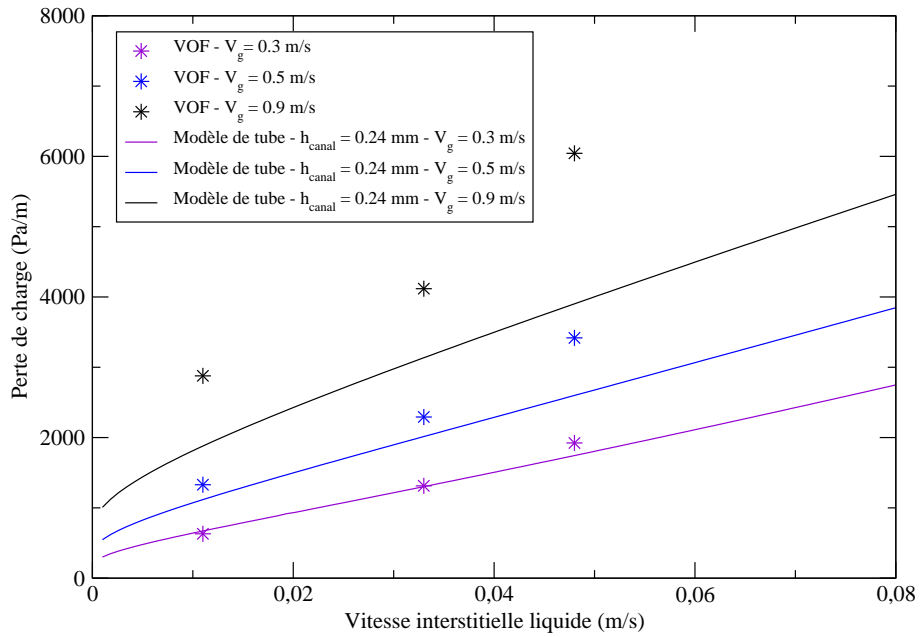


Figure IV.7 – Perte de charge prédite par méthode directe VOF ($h = 0.3$ mm) et par modèle d'écoulement simplifié ($h = 0.24$ mm)

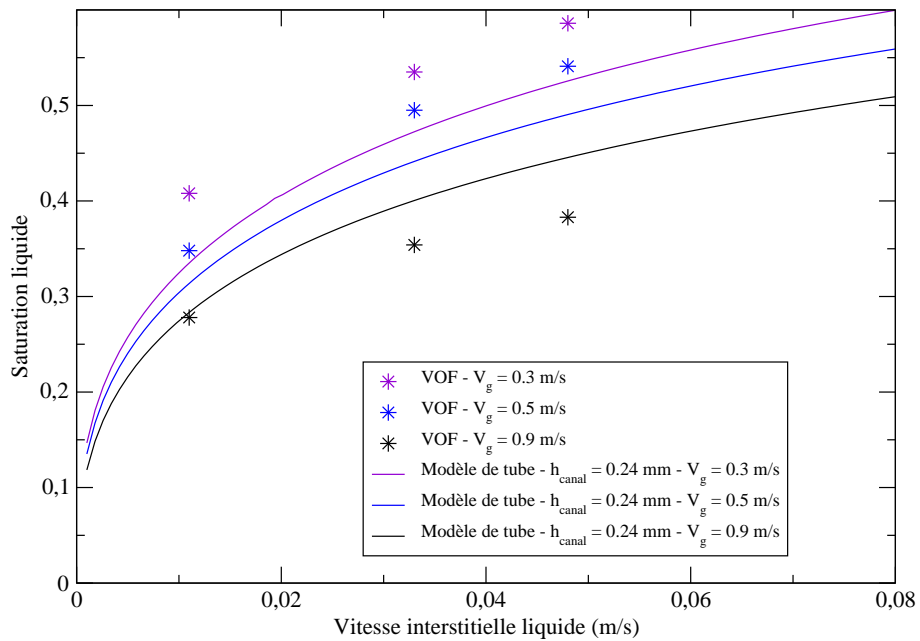


Figure IV.8 – Saturation liquide prédite par méthode directe VOF ($h = 0.3$ mm) et par modèle d'écoulement simplifié ($h = 0.24$ mm)

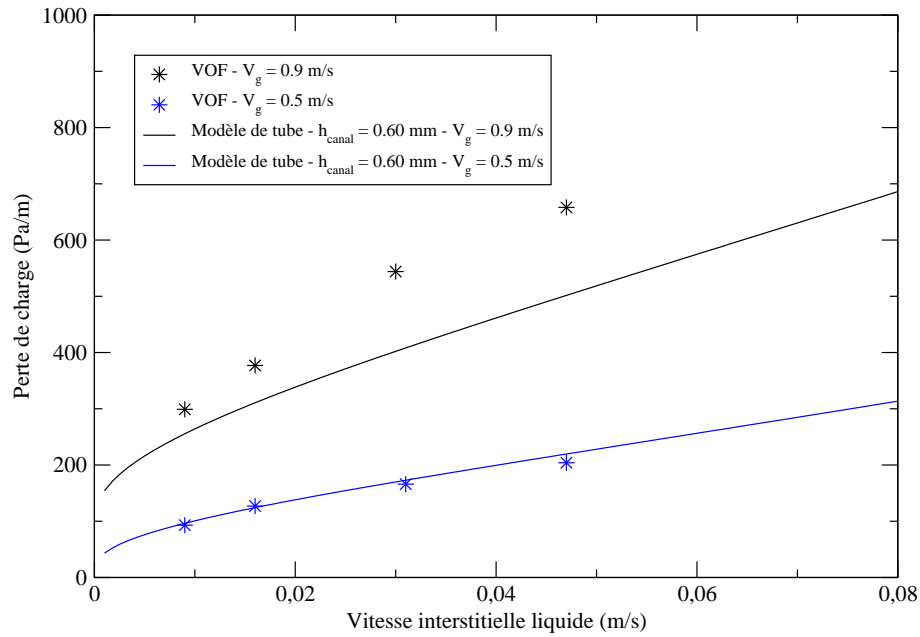


Figure IV.9 – Perte de charge prédite par méthode directe VOF ($h = 0.9$ mm) et par modèle d'écoulement simplifié ($h = 0.60$ mm)

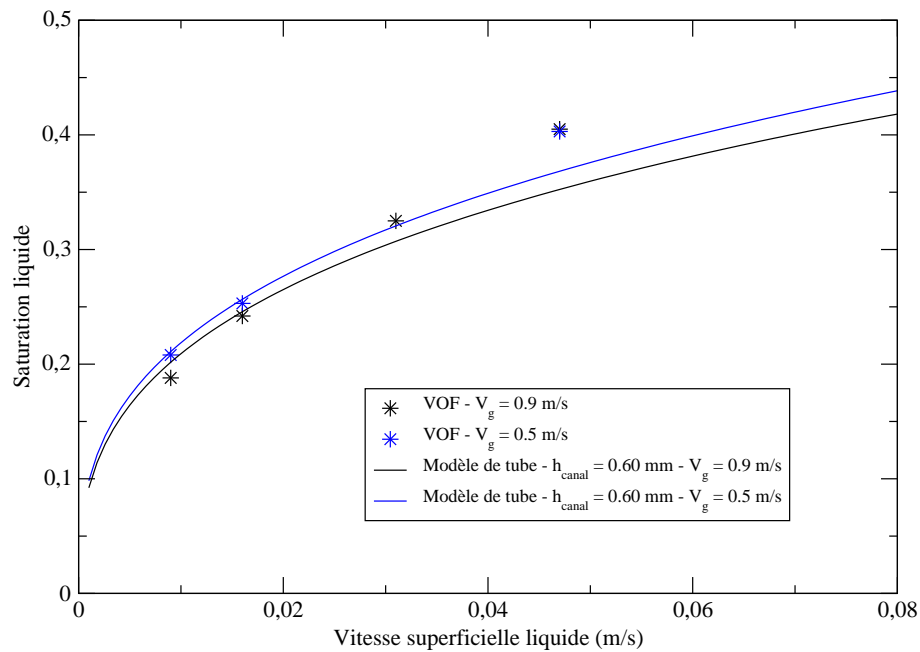


Figure IV.10 – Saturation liquide prédite par méthode directe VOF ($h = 0.9$ mm) et par modèle d'écoulement simplifié ($h = 0.60$ mm)

4 Etude de sensibilité du modèle

En amont de la validation du modèle réseau, il est nécessaire d'évaluer l'influence des différents paramètres du modèle sur la perte de charge ainsi que la saturation moyenne du réseau. Les informations provenant de cette étude pourront ainsi être mises à profit lors des simulations futures. Les trois paramètres majeurs du modèle testés sont :

- le demi-espacement du canal h_{canal} ,
- le coefficient de distribution du canal η_{canal} ,
- la position de la frontière entre un pore et un canal, définissant le volume de chaque type d'élément (V_{canal} et V_{pore}).

4.1 Description des paramètres du modèles

Le demi-espacement du canal h_{canal}

Deux valeurs de demi-espacement du canal h_{canal} seront testées au cours de cette étude de sensibilité :

- $h_{canal} = h_{constriction}$: la définition géométrique de la constriction, c'est-à-dire la largeur de l'espace entre les deux particules voisines,
- $h_{canal} = h_{equivalent}$: cette valeur, inférieure à $h_{constriction}$, provient de la loi énoncée lors de l'étude à l'échelle microscopique IV.10.

Le coefficient de distribution η_{canal}

Le coefficient de distribution du modèle réseau ne possède pas de base physique simple permettant d'appuyer une définition précise. Il est donc nécessaire de formuler différentes hypothèses qui permettront par la suite d'étudier l'influence de ce paramètre sur les propriétés de l'écoulement. Trois définitions du coefficient η_j sont envisagées :

- $\eta_{section} = \frac{h_j}{\sum_{k=1}^p h_k}$: le coefficient de distribution dans chaque canal est proportionnel à la section du canal (largeur en 2D),

- $\eta_{gravite} = \frac{\cos(\theta_j)}{\sum_{k=1}^p \cos(\theta_k)}$: le coefficient de distribution est proportionnel à l'orientation du canal par rapport à la gravité (θ_j étant l'angle entre le canal j et la gravité),
- $\eta_{gravite^3} = \frac{\cos(\theta_j)^3}{\sum_{k=1}^p \cos(\theta_k)^3}$: le coefficient favorise largement l'écoulement de la phase liquide dans les canaux les plus verticaux.

La position de la frontière entre un pore et un canal

En modifiant la position de la frontière entre le pore et le canal, on modifie le rapport V_{canal}/V_{pore} . La saturation finale de chaque canal, c'est à dire lorsque l'écoulement est stationnaire, est dépendante des débits de liquide et de gaz mais indépendante du volume du canal. Au contraire, la saturation dans les pores est un résultat de la partie transitoire de l'écoulement, c'est-à-dire lorsque la saturation augmente dans les canaux mais que les débits liquides ne sont pas encore à l'équilibre. En modifiant le rapport V_{canal}/V_{pore} , on modifie le temps caractéristique de "remplissage" des canaux et des pores, et donc la saturation finale dans les pores.

Si l'on diminue le rapport V_{canal}/V_{pore} , la saturation atteint plus rapidement sa valeur finale dans les canaux et, en outre, le volume de pore est plus important. Par conséquent, les pores sont peu saturés et la saturation moyenne du réseau diminue. Une augmentation du rapport V_{canal}/V_{pore} produit l'effet inverse et tend à saturer les pores du réseau.

Pour un canal connecté à deux pores a et b , le volume minimal $V_{min,canal}$ est obtenu de la façon suivante :

$$V_{min,canal} = 2h_{constriction} * (L_{canal} - (R_a + R_b)) \quad (IV.11)$$

avec R_a et R_b les rayons des pores a et b et L_{canal} la longueur du canal, c'est à dire la distance entre les centres des pores. Le volume maximal $V_{max,canal}$, testé dans cette étude, est obtenu en attribuant une partie du volume d'un pore aux canaux voisins de la façon suivante :

$$V_{max,canal} = 2h_{constriction} * \left(L_{canal} - \frac{R_a + R_b}{3} \right) \quad (IV.12)$$

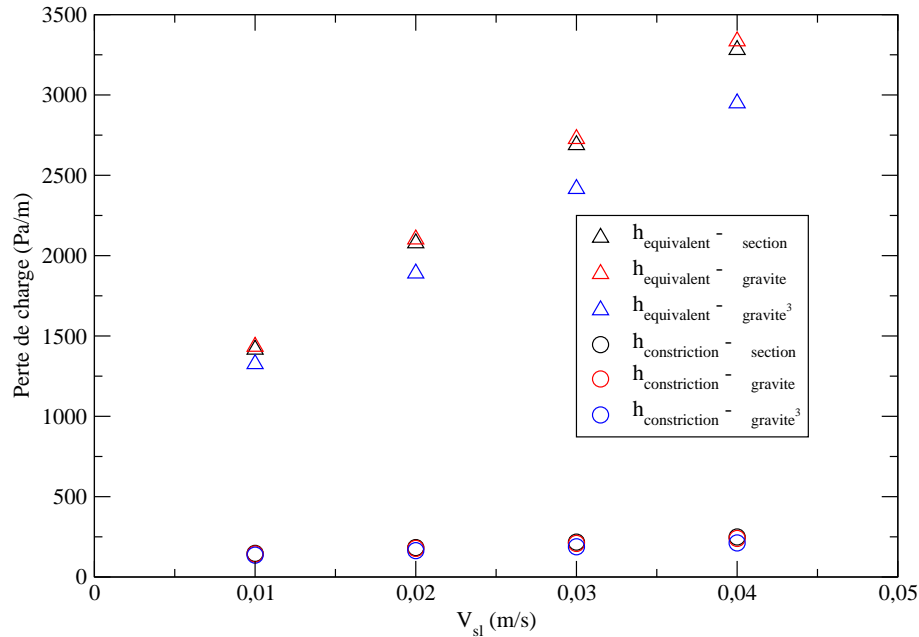


Figure IV.11 – Perte de charge moyenne sur le réseau pour différentes combinaisons h_{canal} - η_{canal} ($V_{canal} = V_{min}$)

4.2 Résultats de l'étude de sensibilité

On effectue l'étude de sensibilité pour une injection homogène de gaz et de liquide à travers un réseau 2D de largeur 5x5cm comprenant un empilement aléatoire de particules 2D de diamètre 3 mm. La porosité du milieu est de 0.36, la vitesse superficielle de gaz V_{sg} est fixée à 20 cm/s. On trace dans un premier temps la perte de charge (Fig IV.11) ainsi que la saturation (Fig IV.12) pour deux demi-espacements du canal $h_{equivalent}$ et $h_{constriction}$ ainsi que les trois coefficients de distribution liquide, $\eta_{section}$, $\eta_{gravite}$ et $\eta_{gravite^3}$.

On observe sur la figure IV.11 que la perte de charge dans le réseau dépend fortement du choix du demi-espacement de canal avec un facteur d'augmentation de pression pouvant aller jusqu'à 10 dans le cas du réseau testé. Le changement de définition du coefficient de distribution liquide semble avoir une influence relativement faible sur la perte de charge.

Concernant la saturation moyenne dans le réseau (Fig. IV.12), l'étude de sensibilité montre que celle-ci est sensible aux deux paramètres testés. L'augmentation du

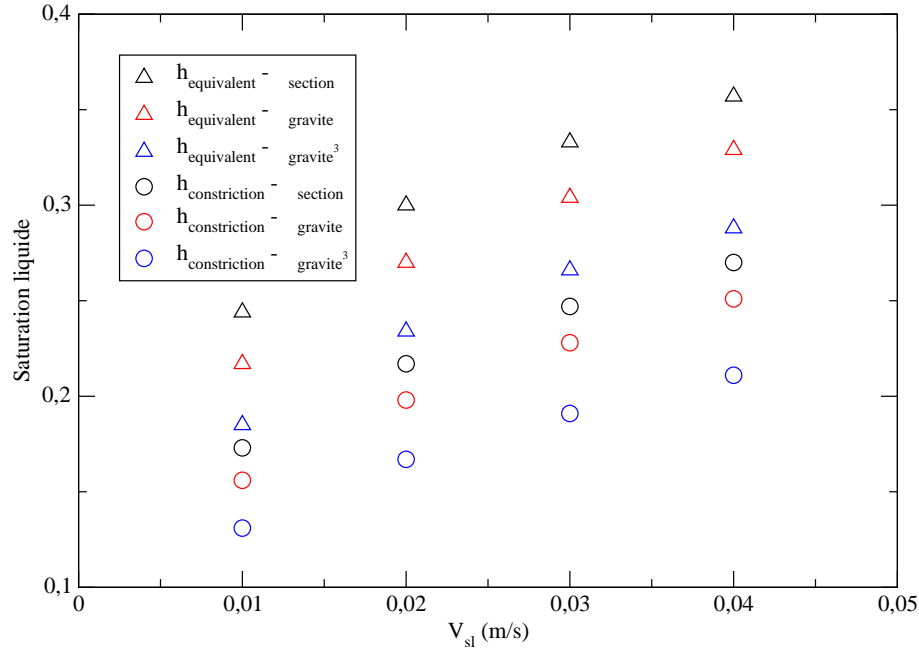


Figure IV.12 – Saturation moyenne pour différentes combinaisons $h_{canal}-\eta_{canal}$ (pour $V_{canal} = V_{min}$)

Le demi-espacement de canal diminue de façon importante la saturation moyenne dans le réseau. De plus, l'utilisation d'un coefficient η favorisant le débit liquide dans les canaux fortement soumis à la gravité tend à réduire la saturation moyenne.

En faisant varier le rapport V_{canal}/V_{pore} (Fig. IV.13), on influence également de façon importante la saturation moyenne dans le réseau tout en ayant une influence nulle sur la perte de charge.

On trace enfin, pour l'ensemble des combinaisons de paramètres étudiées, la variation relative de saturation moyenne par rapport à la solution de référence : $\eta_{canal} = \eta_{section}$, $h_{canal} = h_{equivalent}$ et $V_{canal} = V_{min}$ (Fig. IV.14). À V_{sg} constante, la variation relative de saturation liée au changement d'un ou de plusieurs paramètres est indépendante du débit liquide, donc de la saturation moyenne du réseau. La variation d'un ou plusieurs paramètres de simulation modifie la saturation du réseau de façon proportionnelle. Ainsi, quels que soient les paramètres choisis, la variation de saturation liée à l'augmentation du débit liquide en entrée conserve la même tendance, à un facteur de proportionnalité près.

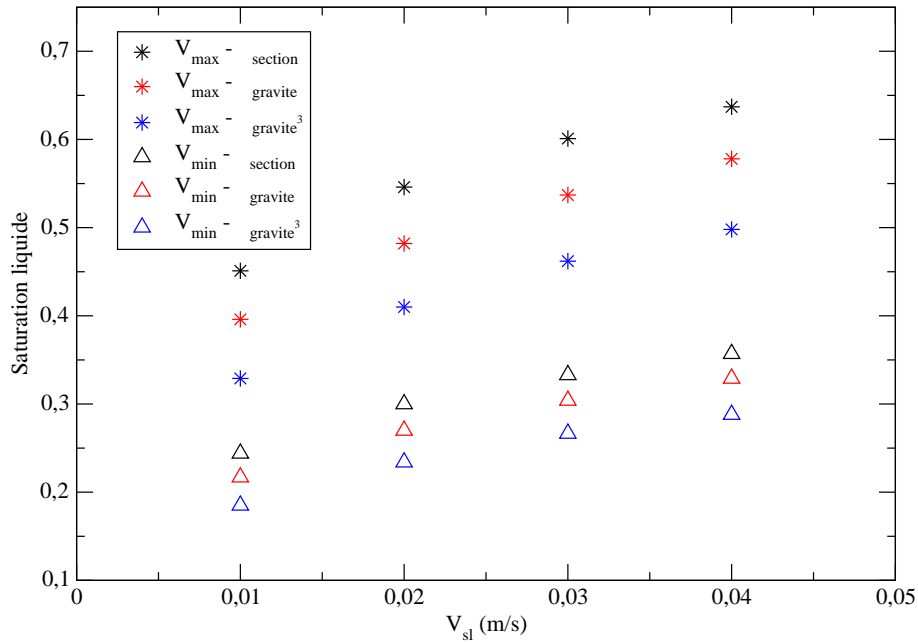


Figure IV.13 – Saturation moyenne pour différentes combinaisons V_{canal} - η_{canal} (pour $h = h_{equivalent}$)

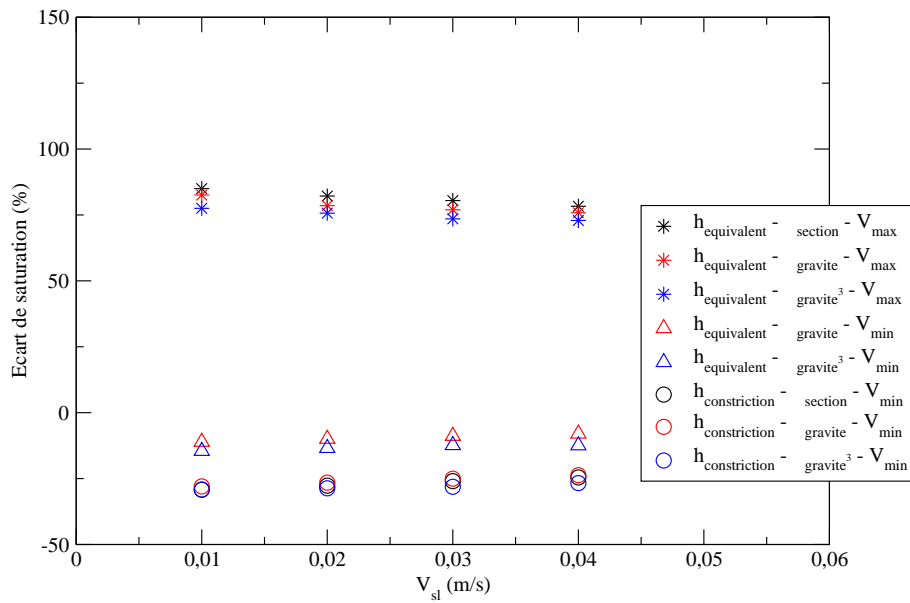


Figure IV.14 – Ecart relatif de saturation moyenne par rapport à la solution de référence ($h_{canal} = h_{equivalent}$, $\eta_{canal} = \eta_{section}$, $V_{canal} = V_{min}$)

4.3 Conclusions de l'étude de sensibilité

L'étude de sensibilité a permis de mettre en évidence les points suivants :

- la diminution du demi-espacement caractérisant le canal augmente de façon importante la perte de charge dans le milieu ainsi que la pente de la courbe en fonction de la vitesse superficielle de liquide,
- cette diminution induit également une hausse significative de la saturation moyenne dans le réseau,
- le choix d'un coefficient de distribution favorisant les canaux soumis à la gravité diminue la saturation moyenne du réseau tout en ayant une influence faible sur la perte de charge,
- la modification du rapport V_{canal}/V_{pore} permet un ajustement de la saturation moyenne dans le réseau sans influence sur la perte de charge.

5 Simulation d'un écoulement ruisselant homogène

5.1 Configuration de simulation

Afin de valider l'approche réseau dans le cas d'un écoulement ruisselant dans un lit de particules 2D, on effectue des simulations numériques directes VOF à l'échelle d'un réseau de taille réduite (7x5 cm pour des particules de 5 mm de diamètre). L'empilement de particules utilisé dans le cadre de la validation de la méthode est similaire à l'étude numérique qui a été menée dans le chapitre III. On considère qu'on se trouve en présence d'un écoulement parfaitement ruisselant et on injecte donc la phase liquide de façon homogène en tête de réseau. Un exemple de simulation VOF est présenté en figure IV.15. La paramétrisation de la méthode VOF se fait dans les mêmes conditions que lors de l'étude à l'échelle du canal unique, c'est-à-dire en suivant les conseils développés dans le chapitre II. A cette échelle, obtenir un écoulement ruisselant stationnaire requiert des temps de calcul d'environ 50 heures avec 8 processeurs.

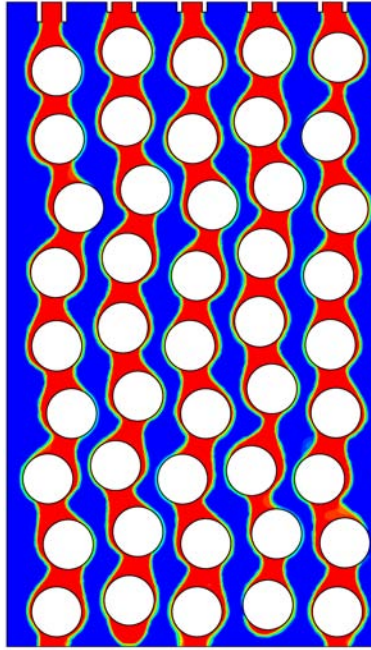


Figure IV.15 – Exemple de simulation VOF d'écoulement parfaitement ruisselant

5.2 Résultats numériques et discussion

On trace la perte de pression ainsi que la saturation moyenne (respectivement Fig. IV.16 et Fig. IV.17) obtenues par simulation numérique directe VOF. Concernant le modèle réseau, la paramétrisation par défaut, c'est à dire en prenant $h_{canal} = h_{canal}$ surestime de façon importante la perte de charge. On trace alors la perte de charge ainsi que la saturation en utilisant une valeur ajustée, comprise entre $h_{constriction}$ et $h_{equivalent}$, permettant de minimiser l'erreur de prédiction pour les vitesses superficielles les plus faibles et définie de la façon suivante :

$$h_{ajuste} = 0.6 * h_{constriction} + 0.4 * h_{equivalent} \quad (IV.13)$$

Avec une paramétrisation ajustée, les résultats obtenus par le modèle réseau, en terme de perte de charge, sont en assez bon accord avec les simulations numériques directes pour les vitesses superficielles les plus faibles ($V_{sl} \leq 1.5$ cm/s). Il est intéressant de noter que, pour une $V_{sl} > 1.5$ cm/s, le modèle réseau tend à surestimer la perte de charge, contrairement à l'étude à l'échelle microscopique. Cela peut s'expliquer par la saturation moyenne qui est relativement élevée dans ces

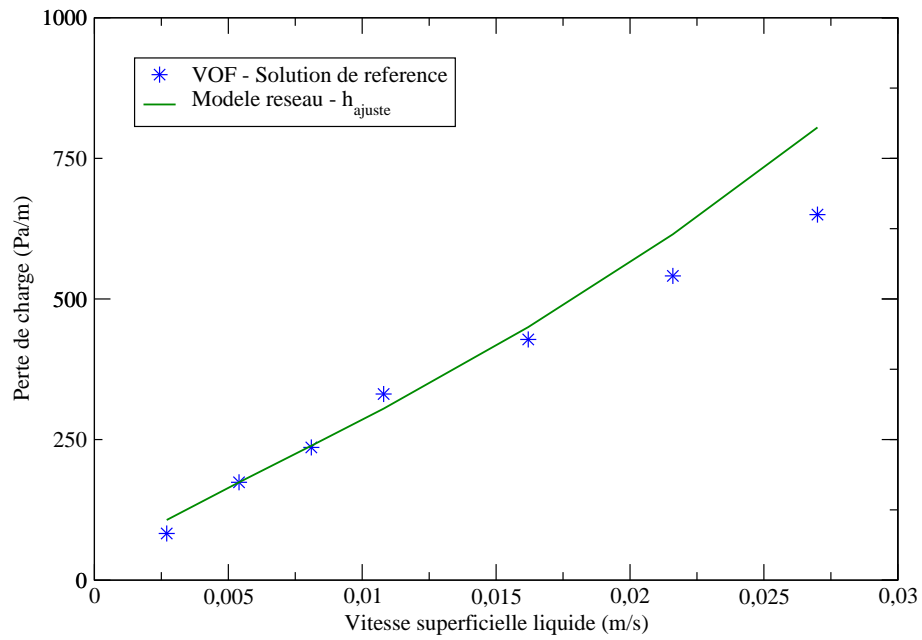


Figure IV.16 – Comparaison de la perte de charge à l'échelle du réseau entre simulations réseaux et VOF

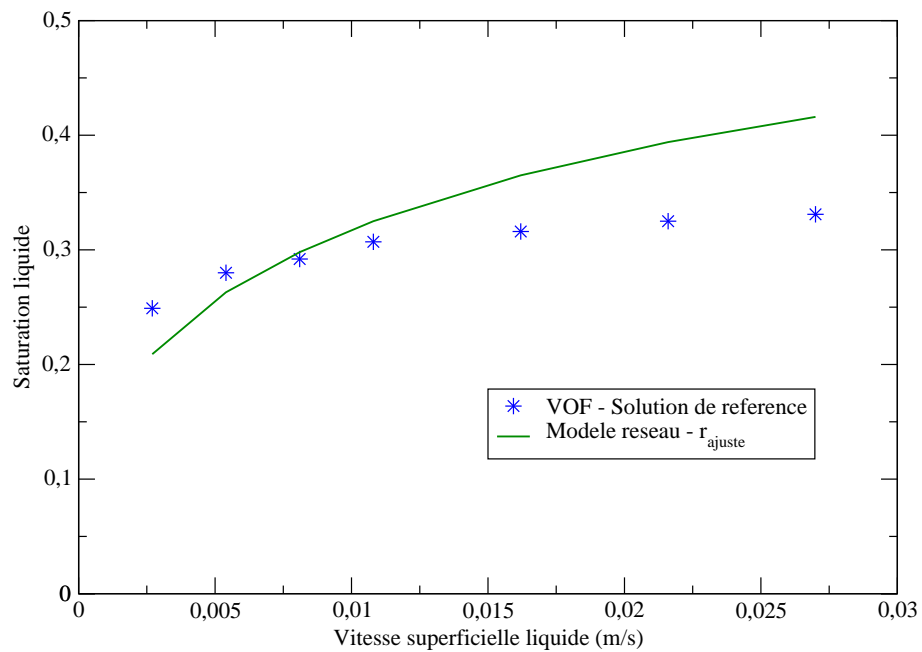


Figure IV.17 – Comparaison de la saturation moyenne à l'échelle du réseau entre simulations réseaux et VOF

conditions. En raison de la nature hétérogène du réseau, la saturation n'est pas répartie de façon homogène et on observe un nombre croissant de canaux inondés. Ceci implique le mécanisme de redistribution de la phase liquide dans les canaux disponibles ainsi qu'une limitation du nombre de canaux ouverts aux passages du gaz. Le couplage de ces deux phénomènes provoque un accroissement de la perte de charge liée à l'augmentation du débit liquide.

En terme de saturation moyenne du réseau, les courbes du modèle et de la solution VOF ne présentent pas les mêmes tendances et la différence entre les deux modèles est relativement importante. On met ici en évidence la présence d'une saturation statique dans l'empilement de particules, principalement dans les canaux horizontaux (voir l'exemple de simulation VOF Fig. IV.15), qui n'est pas prise en compte dans le modèle réseau. Dans l'étude de sensibilité du modèle, on a pu observer qu'il était possible, à l'aide d'une paramétrisation adaptée, d'ajuster la saturation moyenne dans le réseau. La variation relative est cependant indépendante du débit de liquide (Fig. IV.14) et, par conséquent, il n'est pas possible de modifier la tendance de la courbe de saturation dans la forme actuelle du modèle réseau. La prise en compte de la saturation statique dans un futur modèle réseau plus prédictif paraît donc nécessaire, particulièrement dans le type de configuration testée où la part de saturation statique est importante.

6 Simulation d'un écoulement hétérogène

La possibilité de simuler des écoulements très hétérogènes, prenant en compte les spécificités locales, géométriques et hydrodynamiques, représente l'un des avantages des approches de type "réseau de pores". Par conséquent, il paraît utile d'éprouver le modèle en testant son comportement dans le cas de l'étalement d'un jet de liquide sur un empilement de particules "2D". Ce type de configuration, étudié numériquement et expérimentalement dans le chapitre III de ce manuscrit, représente en effet un cas intéressant de répartition hétérogène de la phase liquide dans le réseau. L'objectif de ce travail est d'effectuer une comparaison qualitative des simulations réseaux avec les observations que l'on a pu faire précédemment.

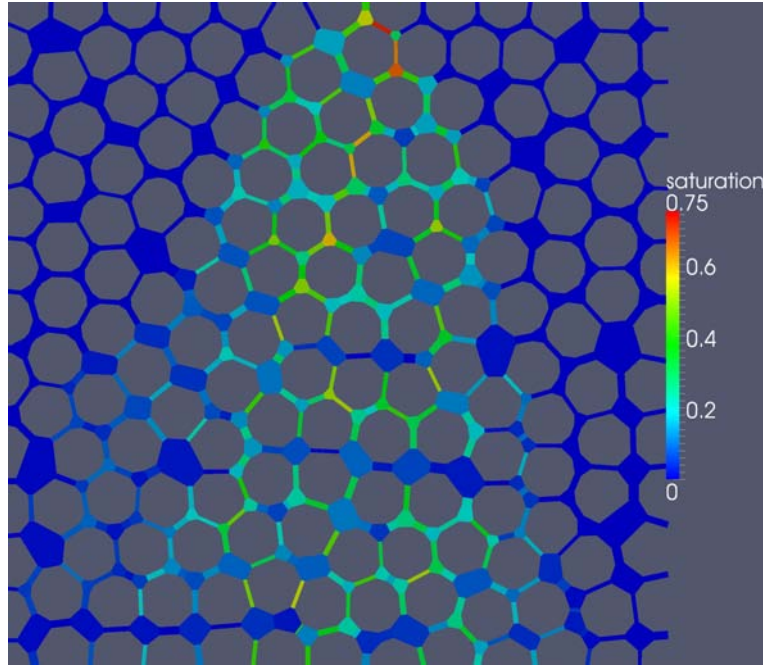


Figure IV.18 – Étalement d'un jet de liquide simulé par le modèle réseau ($\eta_{gravite^3}$)

6.1 Influence des coefficients de distribution statiques

On simule dans un premier temps, à l'aide des 3 coefficients de distribution définis précédemment ($\eta_{section}$, $\eta_{gravite}$ et $\eta_{gravite^3}$), l'étalement d'un jet de liquide sur un empilement aléatoire de particules "2D". Un exemple de répartition des phases, obtenu dans le cas de l'utilisation du coefficient $\eta_{gravite^3}$, est présenté en Fig. IV.18. En Fig. IV.19, on trace la saturation des canaux de sortie, situés en bas du réseau, afin d'évaluer l'influence du coefficient de distribution sur l'étalement du jet dans le réseau. L'utilisation d'un coefficient favorisant les canaux fortement soumis à la gravité tend à concentrer le jet de liquide au centre du domaine en augmentant la saturation des canaux centraux et réduisant celle des canaux périphériques (Fig. IV.19).

Les simulations réseaux diffèrent cependant assez fortement des observations que l'on a pu faire lors de l'étude du chapitre III. En effet, dans le cas d'une injection à faible débit, l'écoulement a lieu de façon verticale et reste concentré sur un faible nombre de particules. Or, dans l'exemple de simulation présenté en Fig. IV.18, on observe que le modèle réseau tend à diffuser la saturation dans toute la largeur du

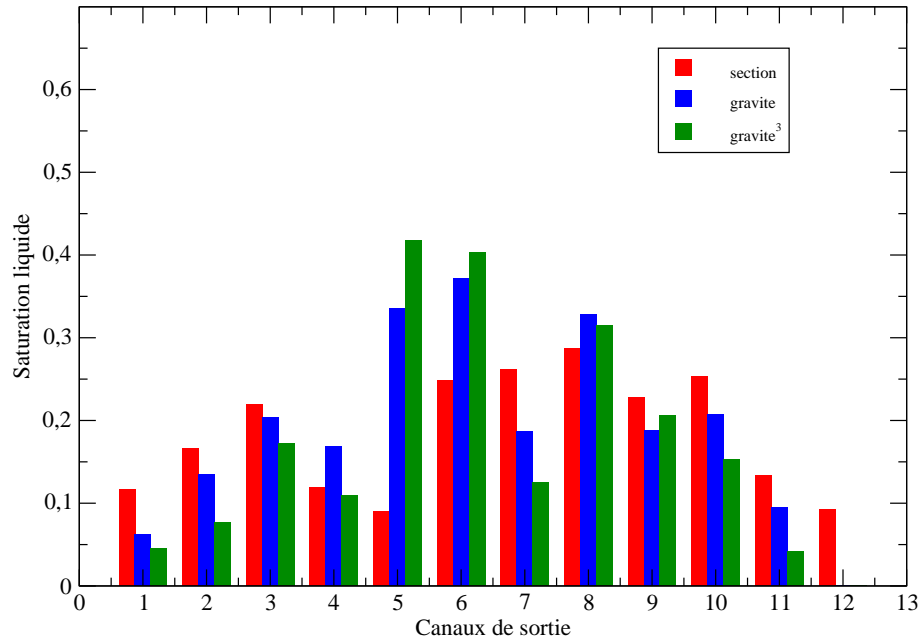


Figure IV.19 – Saturation des différents canaux de sortie du réseau pour 3 différents coefficient de distribution statiques

domaine et ce, malgré l'utilisation d'un coefficient favorisant l'écoulement de la phase liquide dans les canaux fortement soumis à la gravité. La figure IV.19 montre en effet qu'une injection unique en haut du réseau conduit à la présence non négligeable de phase liquide dans au moins 8 canaux de sortie sur 12. Le modèle réseau sur-estime de façon importante l'étalement du jet de liquide et, en extrapolant ce résultat sur un réseau de grande taille, on peut raisonnablement supposer qu'un point d'injection unique conduirait à la diffusion de la phase liquide dans toute la largeur du réseau.

On présente donc, dans le paragraphe suivant, une nouvelle définition de coefficient de distribution permettant de retrouver, de façon qualitative, un comportement de la phase liquide plus proche de la réalité.

6.2 Définition d'un coefficient de distribution dynamique

Lorsque l'on observe un écoulement ruisselant, de façon expérimentale ou numérique, il apparaît que la mouillabilité des particules joue un rôle important sur l'étalement de la phase liquide (voir chapitre III). On propose donc d'introduire la notion de

mouillabilité de la matrice solide du milieu poreux dans la définition du coefficient de distribution. En considérant que chaque canal possède deux particules voisines et que celles-ci peuvent être mouillées, on peut définir un coefficient de distribution dynamique dépendant des conditions de mouillabilité des grains voisins à un instant n tel que :

- $\eta_{canal} = \eta_{fixe}$: si au moins une des deux particules voisines est mouillée,
- $\eta_{canal} = 0$: si aucune des particules voisines n'est mouillée.

avec η_{fixe} qui est égal à l'une des trois définitions précédentes ($\eta_{section}$, $\eta_{gravite}$ ou $\eta_{gravite^3}$).

De la même manière que lors de l'introduction du régime "inondé" dans le modèle, il est nécessaire, afin de conserver la masse liquide dans le pore, de modifier la contrainte sur les coefficients de distribution IV.5 en ne considérant que les canaux de sortie dont le coefficient de distribution est non nul, c'est à dire mouillés.

Ainsi, la pénétration de la phase liquide dans un canal du réseau est conditionnée par la mouillabilité des particules voisines. Cette nouvelle définition du coefficient de distribution nécessite d'introduire, dans l'algorithme de résolution, une étape de mouillage des particules qui permettra de transmettre la mouillabilité dans le réseau. Le mouillage d'une particule initialement sèche peut se produire de deux façons :

- dans un canal : au-delà d'une saturation critique $S_{mouillage,canal}$, si une des deux particules n'était pas mouillée, on considère que le film liquide a une épaisseur suffisante pour mouiller cette particule,
- dans un pore : au-delà d'une saturation critique $S_{mouillage,pore}$, on considère que le pore est majoritairement constitué de phase liquide et que, par conséquent, les particules voisines du pore sont mouillées.

6.3 Résultats et discussion

A l'aide de la nouvelle définition du coefficient dynamique de distribution, on procède à une nouvelle série de simulations dans les conditions identiques aux essais précédents. Un exemple de champ de saturation obtenu par cette nouvelle méthode est présenté en figure IV.20. Le comportement obtenu par l'introduction d'une notion de mouillabilité dans le modèle permet d'obtenir, du moins qualitativement, des simulations réseaux plus proches des observations expérimentales et numériques. La

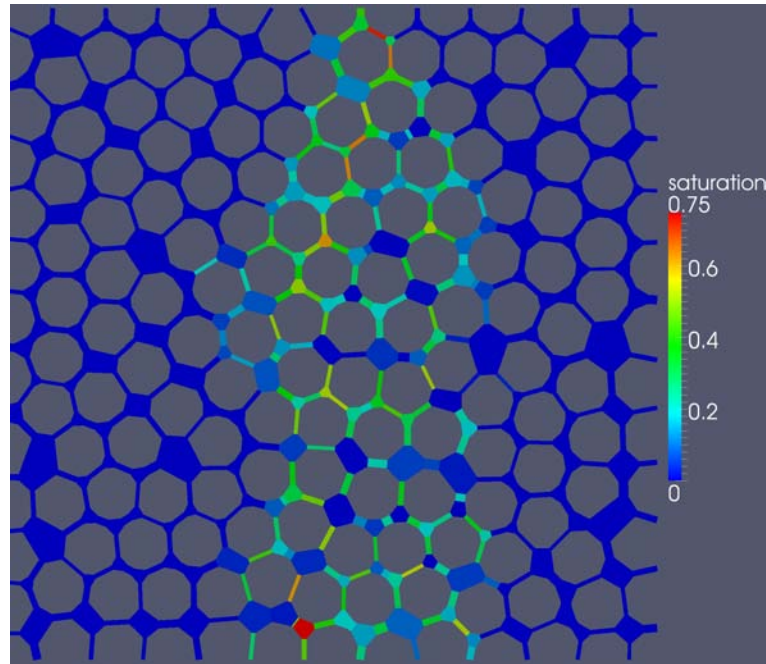


Figure IV.20 – Etalement d'un jet de liquide par la méthode de distribution dynamique ($\eta_{gravite^3}$)

figure IV.21 montre également, en terme de saturation dans les canaux de sortie, le confinement du jet de liquide lié à la nouvelle définition du coefficient de distribution. Cette comparaison qualitative sur un cas simple d'étalement de jet de liquide conforte la nécessité de prendre en compte la mouillabilité des particules dans le modèle réseau afin de rendre les simulations numériques plus en accord avec les observations expérimentales.

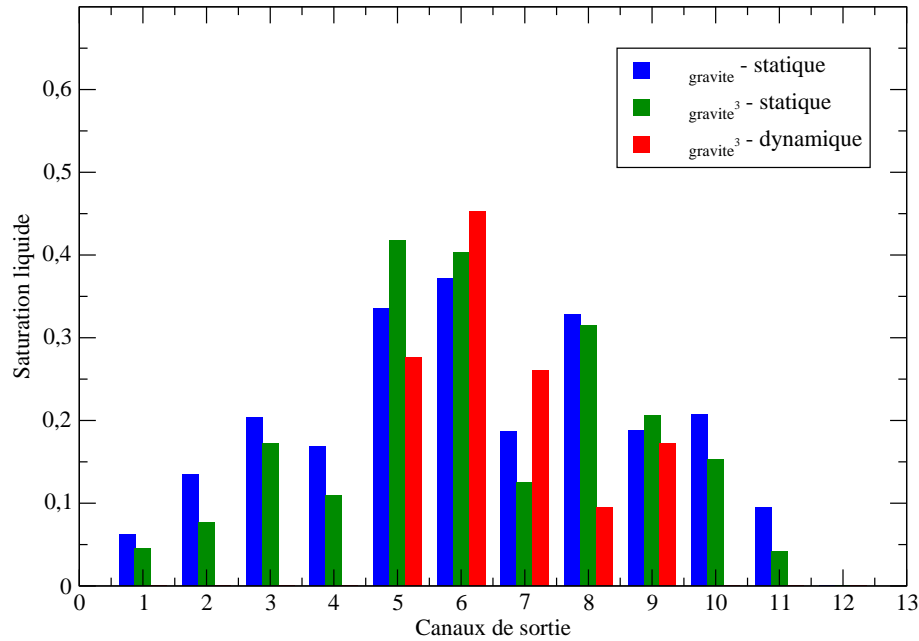


Figure IV.21 – Saturation des différents canaux de sortie du réseau avec coefficient de distribution dynamique

7 Conclusions

Afin de valider une approche réseau dans le domaine des écoulements ruisselants en lit fixe, une étude préliminaire a été menée dans un cas simplifié de lit fixe, c'est-à-dire un empilement de particules en deux dimensions. A l'aide de simulations numériques directes à l'échelle microscopique, une loi locale d'écoulement ruisselant simplifié a été proposée et validée pour des faibles nombres de Reynolds.

Une validation du modèle à plus grande échelle a ensuite été proposée en confrontant les simulations réseaux à une solution de référence, obtenue par simulation numérique directe sur réseau de particules, dans le cas d'une injection de liquide parfaitement homogène. Si la perte de charge peut être prédite de façon correcte, du moins pour les vitesses superficielles les plus faibles, la variation de saturation obtenue par le modèle réseau ne suit pas la tendance observée dans le cas des simulations numériques directes. Cette divergence des résultats met en évidence la nécessité de développer, dans une prochaine étude, la possibilité de prendre en compte la saturation statique dans le modèle réseau. Une autre possibilité envisagée serait également

d'approfondir l'étude de l'écoulement dans les pores, par des simulations numériques directes, afin d'améliorer la formulation de conservation de la masse liquide proposée dans ce travail.

Outre la validation de l'approche dans le cas d'un écoulement homogène, un cas d'étalement de jet de liquide a également été simulé afin de comparer, de façon qualitative, le comportement du modèle réseau dans le cas d'écoulements hétérogènes aux observations numériques et expérimentales effectuées précédemment. Il ressort de cette étude qu'une définition statique d'un coefficient de distribution liquide ne permet pas de reproduire un comportement physique de la phase liquide, tel qu'observé au cours de l'étude du chapitre III. Une proposition de coefficient dynamique, dépendante des conditions de mouillabilité locales des particules, a permis de reproduire, du moins qualitativement, l'étalement d'un jet de liquide dans le réseau.

En partant d'un modèle réseau simple, basé sur des simulations directes à l'échelle microscopique, une première approche réseau a ainsi été développée afin de simuler des écoulements ruisselants en lit fixes. Ce type de modèle permet de simuler un écoulement diphasique relativement homogène en prenant en compte les spécificités géométriques locales mais également de reproduire de façon qualitative des écoulements hétérogènes. Les comparaisons, numériques et expérimentales, quantitatives et qualitatives, ont cependant mis en évidence la nécessité de complexifier le modèle en introduisant les phénomènes spécifiques aux écoulements ruisselants en lit fixe (saturation statique, mouillabilité des grains) qui jouent un rôle important dans l'écoulement et qui rendront ainsi le modèle réseau plus prédictif.

Les enseignements de l'étude du modèle réseau proposé dans le cas 2D sont mis à profit dans le chapitre suivant traitant le cas d'un écoulement ruisselant en trois dimensions, dans un empilement réel de particules.

Chapitre V

Extension de l'approche réseau au cas des lits fixes réels "3D"

Les résultats présentés dans ce chapitre constituent un travail préliminaire à la validation et à la généralisation de l'approche réseau dans le cas des lits fixes réels. Un premier essai de simulation d'écoulement ruisselant sur un échantillon de lit fixe est effectué et comparé favorablement aux modèles existants. Une procédure expérimentale est également mise en place afin d'observer l'étalement d'un jet de liquide à l'échelle d'un lit fixe pilote.

1 Génération d'un réseau de pores dans un lit de particules

1.1 Acquisition de la géométrie du milieu

Afin de pouvoir simuler un écoulement ruisselant dans un lit fixe de particules, il est nécessaire d'obtenir une géométrie réseau réaliste représentative du milieu poreux. On utilise le Nanotom de PHOENIX X-Ray, un équipement de microtomographie à rayon X disponible à l'IFPEN, afin d'obtenir une reconstruction 3D de la structure solide du lit de particules. Ce type d'appareil permet de générer progressivement, en faisant tourner la source de rayonnement autour de l'objet, une série de projections 2D, d'une résolution de 2304x2304 pixels. La reconstruction de l'objet en trois dimensions à partir des projections 2D est alors effectuée par un algorithme de Feldkamp (Feldkamp et al., 1984).

Dans le cas de l'échantillon étudié, c'est-à-dire un empilement de billes de verre de diamètre 4mm, on obtient alors une reconstruction 3D du lit composée de 765x690x760 voxels de taille 40x40x40 microns. La taille de l'échantillon reconstruit est donc de 3.06x2.76x3.04 cm avec une porosité de 0.36. On effectue ensuite une étape de binarisation de l'image en niveau de gris afin d'identifier l'espace inter-granulaire. Un exemple de reconstruction 3D d'un lit de particules de diamètre 4 mm est présenté V.1. Ce travail de reconstruction sur l'échantillon présenté a été effectué par E. Rosenberg de l'IFPEN et constitue la base de notre étude en trois dimensions.

1.2 Extraction du réseau de pores

La représentation du milieu poreux dans cette partie est similaire à celle développée dans le chapitre IV de ce manuscrit. Le milieu poreux est vu comme un réseau de noeuds (les pores), connectés par des liens (les canaux). A l'aide de l'image binarisée du milieu poreux, il est possible de générer un squelette du réseau reliant les espaces vides en utilisant un algorithme d'extraction. L'algorithme utilisé a été développé initialement à l'INRIA pour l'analyse des réseaux micro-vasculaires et a, par la suite, été intégré au logiciel commercial Amira. La méthode d'extraction du squelette n'est

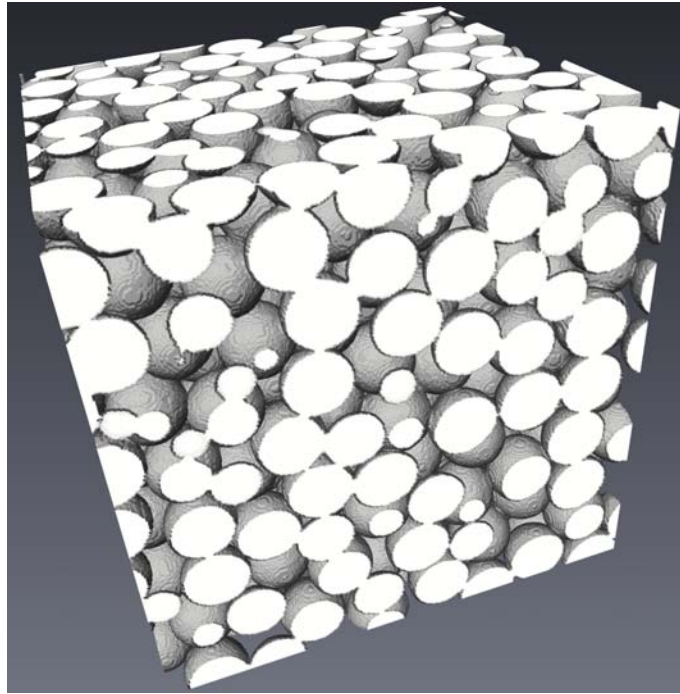


Figure V.1 – Reconstruction “3D” d’un lit de particules

pas détaillé dans ce document et on pourra se référer pour plus d’informations aux travaux de Fouard et al. (2004) et Cassot et al. (2006).

Le squelette ainsi généré se compose de voxels interconnectés caractérisés par un rayon équivalent. En partant de ce squelette, on applique un algorithme de recherche de pores et de canaux, développé par l’IFPEN et illustré par la figure V.2, que l’on peut décomposer en trois étapes (Youssef et al., 2007).

On cherche d’abord à identifier la nature des lignes du réseau, représentées par une suite de voxels interconnectés, qui peuvent être de trois types (Fig. V.2.b) :

- les lignes “mortes” (en jaune) : une des extrémités de la ligne n’est connectée à aucune autre ligne,
- les lignes de pores (en bleu) : la longueur de la ligne est inférieure au rayon équivalent d’une des extrémités. Par conséquent, de la même façon que dans le chapitre IV, ce lien sera considéré comme intégralement compris dans le pore,
- les liens entre pores (en rouge) pour lequel on définit également le voxel de constriction, c’est à dire le voxel ayant le plus petit rayon équivalent.

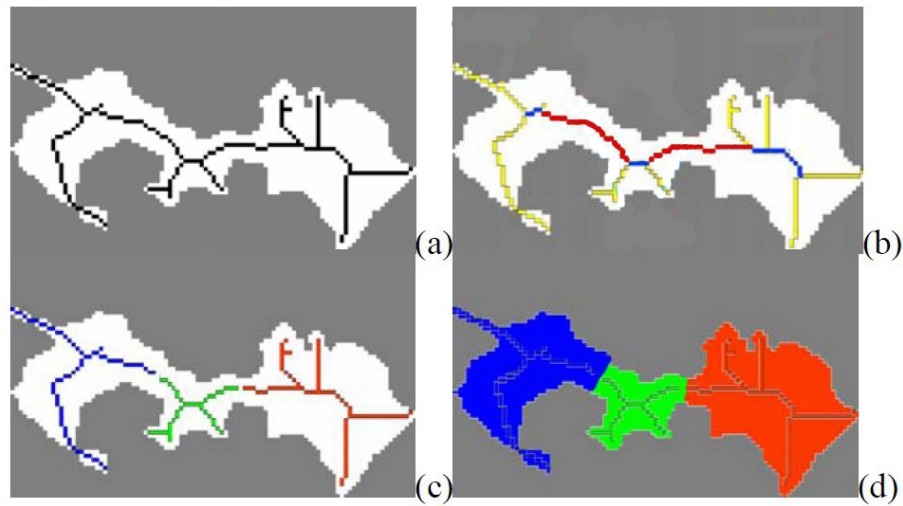


Figure V.2 – (a) Squelette initial de l'espace poral, (b) Identification des canaux (rouge), lignes de pores (bleu) et lignes "mortes" (jaune), (c) Séparation des lignes en 3 pores distincts, (d) Représentation des volumes des pores (Youssef et al., 2007)

En seconde étape, on cherche à partitionner le squelette en groupe de lignes appartenant au même pore. On sépare, au niveau du voxel de constriction, les liens entre pores en deux éléments distincts (voir figure V.2.c), définissant ainsi les pores du réseau.

En dernière étape, les informations couplées, provenant du squelette partitionné en pores et de l'image binarisé, permettent de retrouver le volume réel de chaque pore (Fig.V.2.d). On présente en figure V.3 le squelette réseau correspondant à l'empilement de particules utilisé (Fig. V.1). Le travail de génération du réseau à partir de l'image 3D de la structure poreuse a été effectué par S. Youssef de l'IFPEN.

Le réseau généré par cet algorithme associe l'ensemble du volume de vide aux pores, tandis que les liens entre pores sont vus comme des seuils de volume nul. Ce type de représentation est adapté pour des simulations d'écoulement de type drainage ou imbibition en milieu poreux (voir chapitre I), mais incompatible avec le modèle réseau développé qui nécessite un volume de canal non nul. Il est donc nécessaire d'attribuer une fraction du volume de pore aux canaux voisins, que nous détaillons dans la suite de ce document.

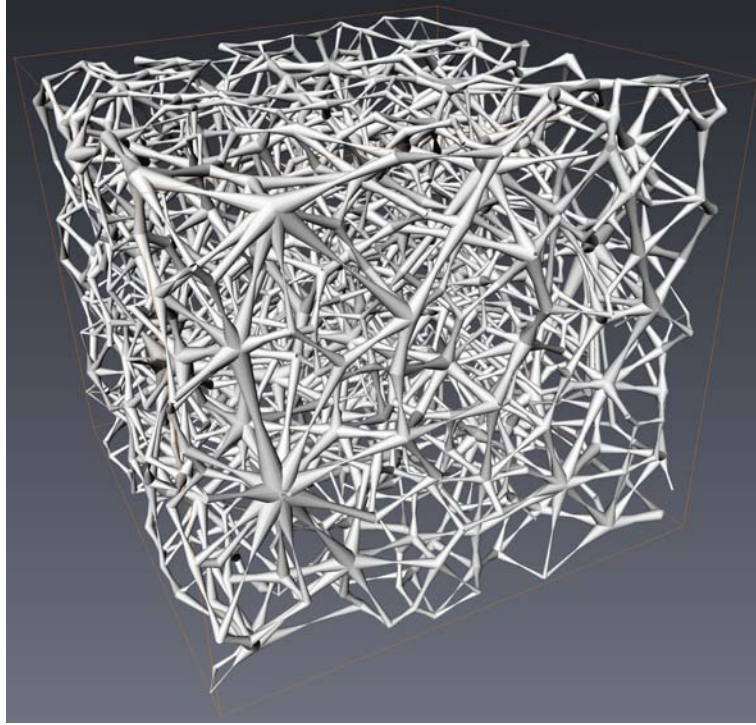


Figure V.3 – Squelette réseau d'un empilement de particules

1.3 Définition des paramètres équivalents des éléments du réseau

A l'aide de l'image binarisée du milieu poreux, il est possible de définir les paramètres équivalents des éléments du réseau. De la même façon que dans l'approche 2D, le rayon de pore r_{pore} est calculé afin que le volume de la sphère équivalente soit égal au volume initial du pore. Le rayon de canal, r_{canal} , calculé au niveau de la constriction la plus petite entre les deux pores, est défini de la façon suivante :

$$r_{canal} = 2 * \frac{Aire_{seuil}}{Perimetre_{seuil}} \quad (V.1)$$

Le volume de chaque canal est, dans un premier temps, obtenu de façon simple en considérant un tube équivalent, c'est-à-dire :

$$V_{canal} = \pi r_{canal}^2 L_{canal} \quad (V.2)$$

avec L_{canal} correspondant à la longueur géométrique du canal, c'est-à-dire reliant les centres des pores voisins.

Afin de conserver le volume de vide initial, on soustrait ce volume de canal aux pores voisins. Enfin, on calcule une longueur équivalente de canal $L_{equivalente}$ afin de respecter la conductance réelle du passage entre les pores dans le cas d'un écoulement monophasique à faible nombre de Reynolds. Cette longueur sera utilisée dans le cadre de la validation de la représentation réseau du lit de particules en simulant un écoulement monophasique.

Si on considère que chaque voxel constituant le canal est un cylindre élémentaire i , alors la conductance fluide g_i est définie telle que :

$$g_i = \frac{\pi r_i^4}{8\mu L_i} \quad (V.3)$$

La conductance du canal équivalent g_{canal} , constitué de n voxels, est définie telle que :

$$\frac{1}{g_{canal}} = \sum_{k=1}^n \frac{1}{g_k} = \frac{8\mu}{\pi} \sum_{k=1}^n \frac{l_k}{r_k^4} = \frac{8\mu L_{equivalente}}{\pi r_{canal}^4} \quad (V.4)$$

La longueur équivalente du canal peut donc être formulée de la façon suivante :

$$L_{equivalente} = \sum_{k=1}^n L_k \left(\frac{r_{canal}}{r_k} \right)^4 \quad (V.5)$$

Il est important de noter que la longueur équivalente ainsi calculée peut être très différente de la longueur géométrique séparant les centres de deux pores voisins.

2 Modèle réseau 3D

Le modèle réseau utilisé dans le cadre des simulations réseaux 3D possède la même structure que celui développé dans l'approche 2D du chapitre IV. On se référera donc au chapitre précédent concernant les lois de conservations dans les pores et les canaux ainsi que les conditions limites du modèle. Deux modifications principales sont à noter par rapport à l'approche 2D : la définition des paramètres équivalents décrite dans la section précédente et le changement de loi de calcul des débits dans les liens. Dans l'étude de l'écoulement 3D, on considère une phase "gaz" et une phase "liquide" dont les propriétés sont proches de celles des fluides dans les lits fixes. On a donc les propriétés suivantes :

- masse volumique du gaz : $\rho_g = 10 \text{ kg/m}^3$
- viscosité du gaz : $\mu_g = 1,78.10^{-5} \text{ Pa.s}$
- masse volumique du liquide : $\rho_l = 700 \text{ kg/m}^3$
- viscosité du liquide : $\mu_l = 1.10^{-3} \text{ Pa.s}$
- tension de surface (gaz/liquide) : $\sigma = 0.02 \text{ N/m}$

2.1 Modification du calcul des débits

Les hypothèses concernant l'écoulement dans les canaux sont identiques à celles du chapitre IV. On considère que le passage entre deux pores peut être assimilé à un tube de rayon constant r , que l'écoulement des deux phases est parfaitement parallèle et que la phase liquide s'écoule sous la forme d'un film d'épaisseur constante e le long de la paroi. Dans ces conditions, on peut développer une solution analytique au problème de Navier-Stokes et exprimer les débits de liquide et de gaz en fonction de la perte de charge, ∇P , et de la saturation, $S_j = 1 - \frac{(r-e)^2}{r^2}$ de la façon suivante :

$$Q_l = -\frac{\pi r^4}{8\eta_l} [3S^2 - 2S - 2(1-S)^2 \ln(1-S)] (\nabla P - \rho_l g) \quad (\text{V.6})$$

$$-\frac{\pi r^4}{4\eta_l} [S(1-S) + (1-S)^2 \ln(1-S)] (\nabla P - \rho_g g)$$

$$Q_g = -\frac{\pi r^4}{8\eta_l} \left[\frac{\eta_l}{\eta_g} (1-S)^2 - 2(1-S)^2 \ln(1-S) \right] (\nabla P - \rho_g g) \quad (\text{V.7})$$

$$-\frac{\pi r^4}{4\eta_l} [S(1-S) + (1-S)^2 \ln(1-S)] (\nabla P - \rho_l g)$$

Le calcul détaillé des débits est présenté en annexe B de ce document.

2.2 Comparaisons avec les simulations VOF

Afin de valider l'utilisation du modèle d'écoulement simplifié, on confronte les résultats à des simulations numériques directes d'un écoulement ruisselant dans un empilement de particules tel que vu dans le chapitre IV. Les conditions de simulations sont identiques au cas purement 2D (Fig. IV.3), excepté au centre du tube où l'on place une condition d'axisymétrie afin de simuler un écoulement en 3D.

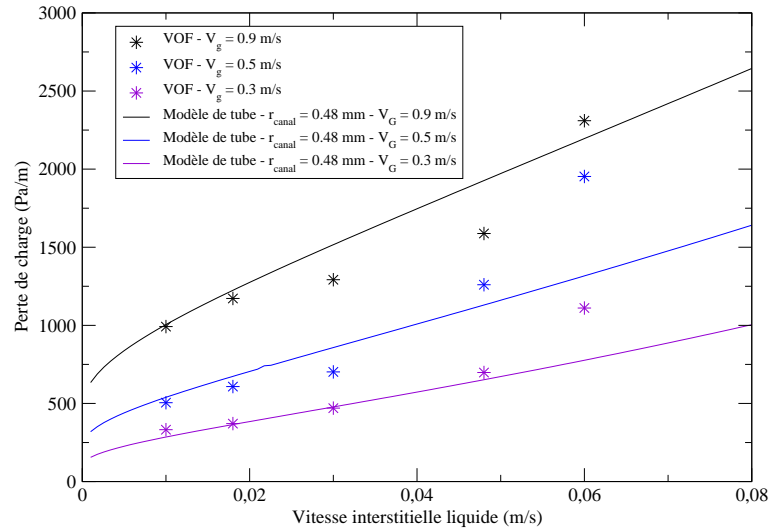


Figure V.4 – Perte de charge prédite par méthode directe ($r = 0.6$ mm) et par le modèle d'écoulement simplifié ($r_{canal} = 0.48$ mm)

Les simulations VOF sont effectuées pour des dimensions caractéristiques similaires au cas 2D, c'est-à-dire : $0.01 \leq V_l \leq 0.06$ m/s, $30 \leq V_g \leq 0.90$ m/s et $0.3 \leq r_{constriction} \leq 0.9$ mm.

Les résultats obtenus dans le cas d'une constriction entre particules de 0.6 mm sont montrés en figure V.4 et V.5. En prenant, pour le modèle d'écoulement simplifié, un canal équivalent de rayon $r_{canal} = 0.48$ mm (i.e., la valeur minimisant l'erreur en terme de perte de charge pour les vitesses interstitielles liquides les plus faibles), on prédit de façon correcte la perte de charge pour une gamme de vitesses : $V_g \leq 0.5$ m/s et $V_l \leq 0.03$ m/s. Dans le cas de la constriction plus petite, de rayon 0.3 mm, on observe les mêmes tendances et la prédiction en terme de perte de charge et de saturation est correcte en prenant $r_{canal} = 0.26$ mm. L'hypothèse d'écoulement parallèle n'est cependant plus valable dans le cas du tube ayant la plus large constriction, 0.9 mm. En prenant un rayon équivalent $r_{canal} = 0.52$ mm, la perte de charge en fonction de la vitesse du liquide augmente de façon beaucoup plus importante dans les simulations VOF (Fig. V.6). Tel qu'on peut le voir sur la figure V.7, la prédiction de saturation liquide dans la constriction est en assez bon accord avec les simulations VOF.

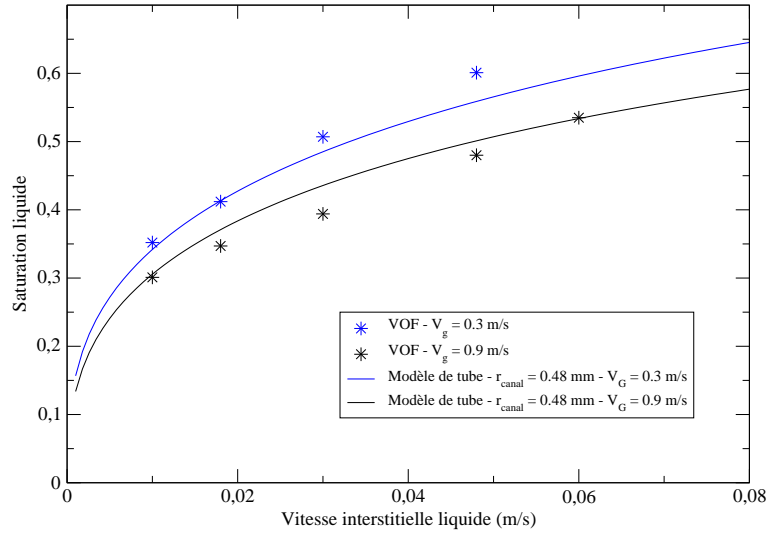


Figure V.5 – Saturation liquide prédite par méthode directe ($r = 0.6$ mm) et par le modèle d'écoulement simplifié ($r_{canal} = 0.48$ mm)

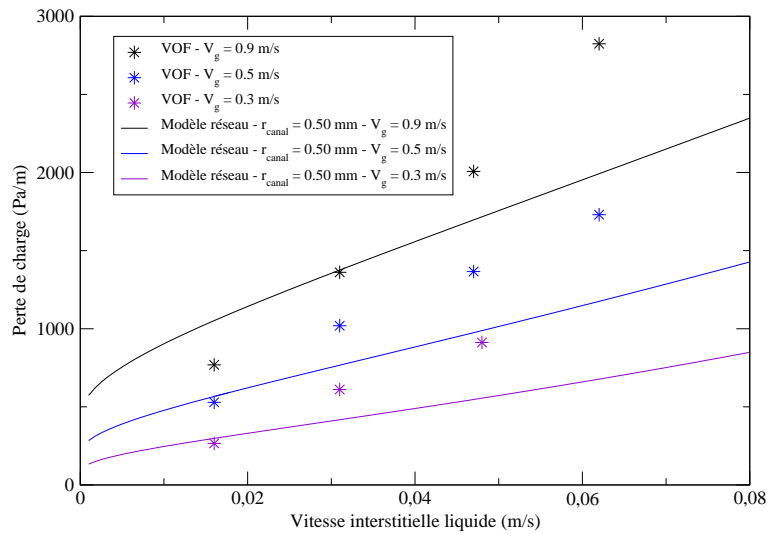


Figure V.6 – Perte de charge prédite par méthode directe ($r = 0.9$ mm) et par le modèle d'écoulement simplifié ($r_{canal} = 0.52$ mm)

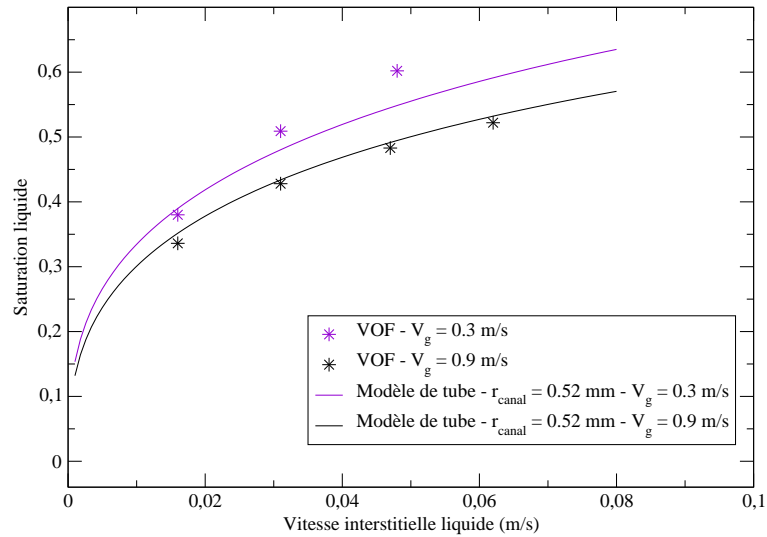


Figure V.7 – Saturation liquide prédite par méthode directe ($r = 0.9$ mm) et par le modèle d'écoulement simplifié ($r_{canal} = 0.52$ mm)

En conclusion, dans le cas d'une conduite axisymétrique, de façon similaire à l'étude en deux dimensions, on peut proposer un modèle de tube simplifié afin de prédire la perte de charge ainsi que la saturation à travers la constriction pour des vitesses de fluide suffisamment faibles. Le domaine de validité semble cependant plus restreint que dans le cas purement 2D, notamment concernant la largeur de constriction qui doit être faible ($r_{constriction} < 0.9$ mm).

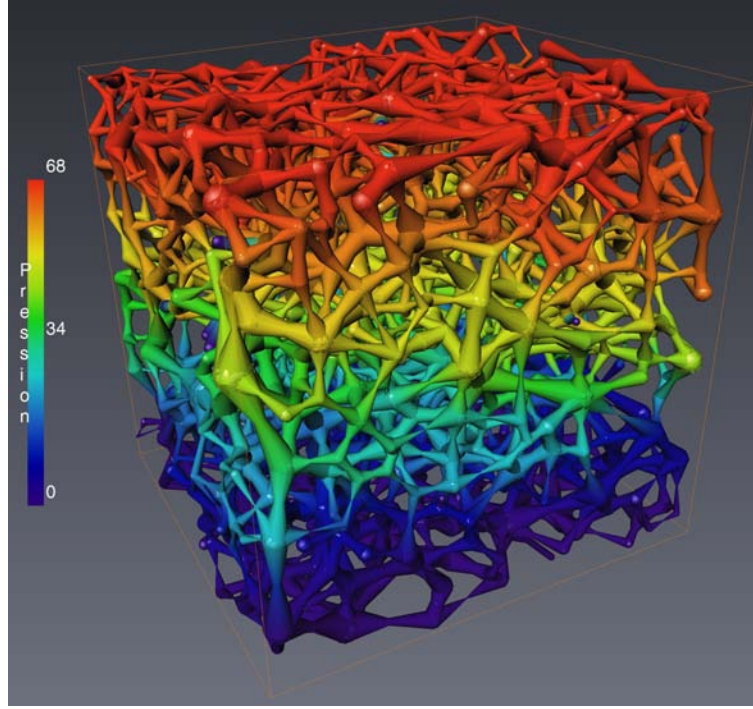


Figure V.8 – Champs de pression simulé par modèle réseau pour un écoulement monophasique liquide ($V_{sl} = 0.005$ m/s)

3 Ecoulement monophasique

On effectue, sur le réseau 3D extrait de l'échantillon obtenu par microtomographie, une première comparaison entre les simulations réseaux d'écoulement et un modèle usuel de perte de charge en lit fixe la loi d'Ergun (1952), définie, pour une phase fluide l , de la façon suivante :

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{150\mu_l (1 - \epsilon)^2}{d^2\epsilon^3} V_{sl} + \frac{1.75\rho_l (1 - \epsilon)}{d\epsilon^3} V_{sl}^2 \quad (\text{V.8})$$

où d est le diamètre des particules et ϵ la porosité du lit. La perte de charge est prédite dans le réseau en résolvant une équation de conservation de la masse dans chaque pore et en calculant les débits dans les canaux pour un écoulement de Poiseuille avec le rayon $r_{canal} = r_{seuil}$ défini par l'équation V.1 et la longueur $L_{canal} = L_{equivalente}$ définie par l'équation V.5. Un exemple de champs de pression obtenu par simulation réseau est présenté en figure V.8.

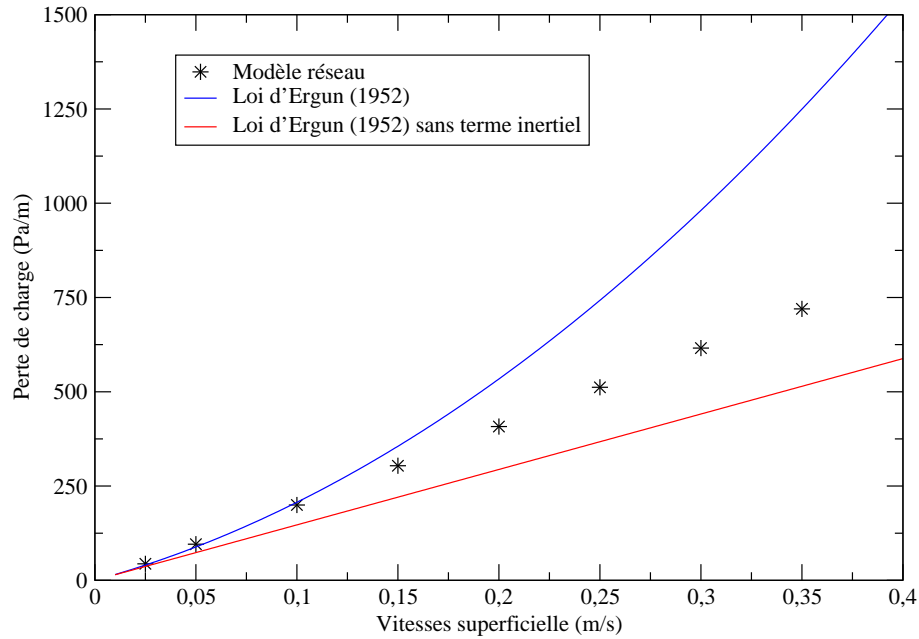


Figure V.9 – Perte de charge pour un écoulement d’air ($\rho_{air} = 1.225 \text{ kg/m}^3$, $\mu_{air} = 1.78e^{-5} \text{ Pa.s}$), prédite par le modèle réseau et par la loi d’Ergun (1952)

Sur les figures V.9 et V.10, on trace, pour un écoulement monophasique respectivement d’air ($\rho_{air} = 1,255 \text{ kg/m}^3$, $\mu_{air} = 1,78.10^{-5} \text{ Pa.s}$) et de liquide, le perte de charge obtenue par simulation réseau confrontée aux prédictions de la loi d’Ergun (1952) (avec et sans prise en compte du terme inertiel de l’équation V.8). On observe que la perte de charge obtenue par le modèle réseau est en très bon accord pour des vitesses superficielles liquide $V_{sl} \leq 0.01 \text{ m/s}$ et d’air $V_{sair} \leq 0.1 \text{ m/s}$, qui correspondent à des nombres de Reynolds particulières (i.e., dont la longueur caractéristique est le diamètre des particules) $Re_{liquide}$ et $Re_{air} \leq 30$. Dans le cas où l’on considère un écoulement gazeux aux propriétés proches des conditions industrielles (i.e., une masse volumique de gaz environ 10 fois plus importante que l’air pour une viscosité du même ordre de grandeur, et donc un nombre de Reynolds 10 fois plus important), les résultats provenant du modèle réseau divergent fortement des prédictions obtenues par le modèle 1D (Fig. V.11). Ceci est dû aux effets d’inertie, dont la loi d’Ergun rend compte, mais qui ne sont pas pris en compte dans le modèle réseau d’écoulement monophasique.

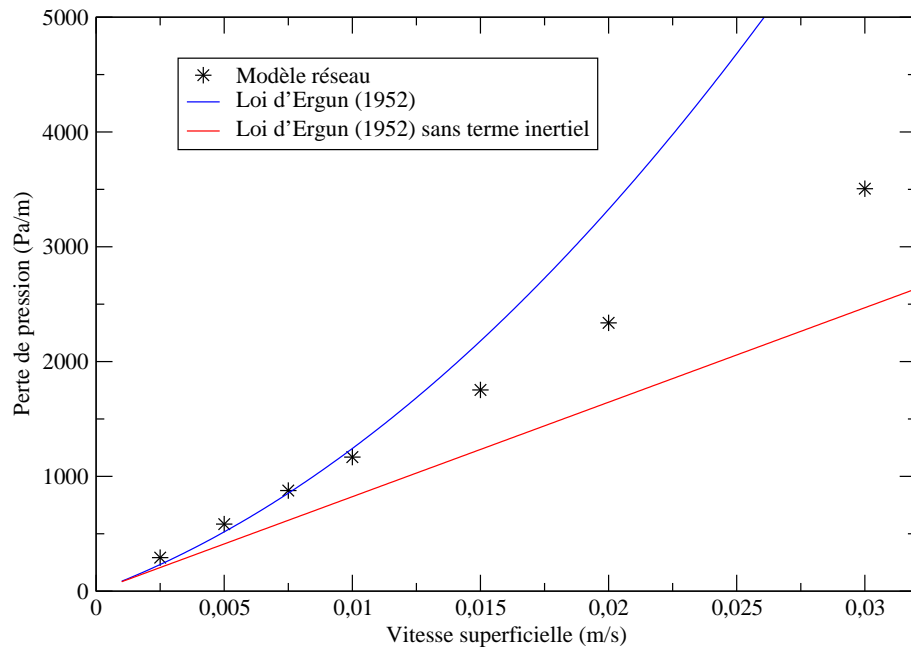


Figure V.10 – Perte de charge obtenues, pour un écoulement liquide ($\rho_l = 700 \text{ kg/m}^3$, $\mu_l = 1e^{-3} \text{ Pa.s}$), prédite par le modèle réseau et par la loi d'Ergun (1952)

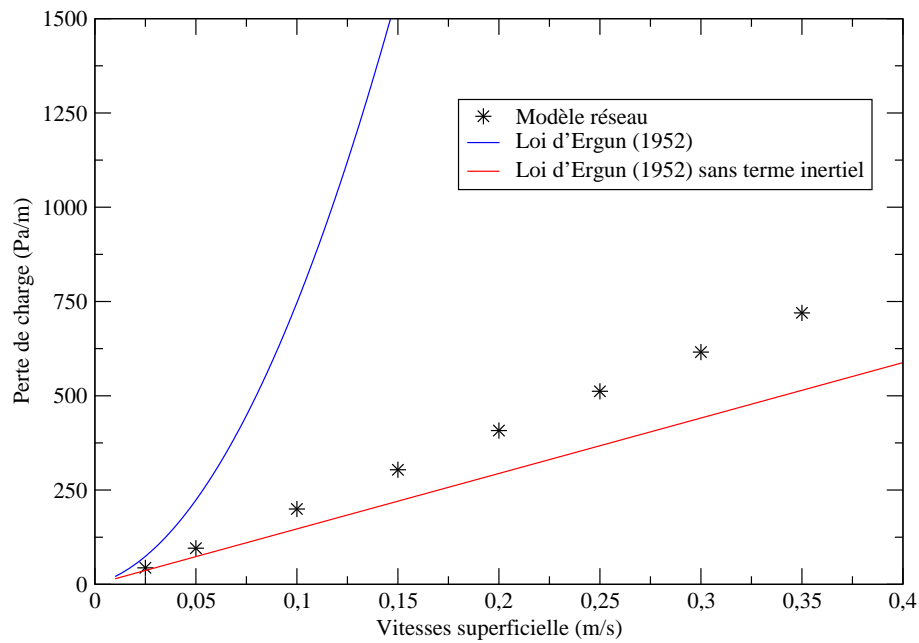


Figure V.11 – Perte de charge obtenues, pour un écoulement gaz ($\rho_g = 10 \text{ kg/m}^3$, $\mu_g = 1.78e^{-5} \text{ Pa.s}$), prédite par le modèle réseau et par la loi d'Ergun (1952)

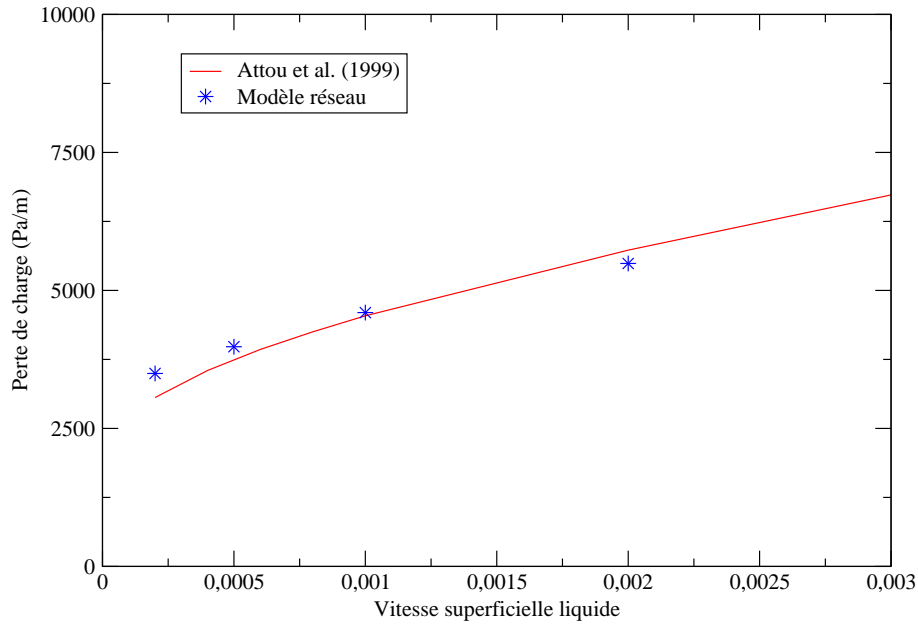


Figure V.12 – Perte de charge pour un écoulement diphasique dans un lit fixe ($V_{sg} = 0.10$ m/s)

4 Écoulement diphasique

On effectue, sur le même échantillon de lit fixe, des simulations réseaux d'un écoulement diphasique avec une distribution homogène des phases en tête de lit. Les résultats obtenus seront confrontés au modèle proposé par Attou et al. (1999), présenté dans le chapitre I.

Contrairement aux simulations réseaux d'écoulement monophasique précédentes, on définit, comme dans l'approche 2D du chapitre IV, la longueur de canal comme étant la longueur géométrique, c'est à dire reliant les centres de pores voisins. Le rayon équivalent du canal r_{canal} est, quant à lui, défini par une loi d'ajustement du rayon de constriction provenant de l'étude d'écoulement ruisselant à l'échelle microscopique :

$$r_{canal} = 1.6e^{-4} + 0.433 * r_{constriction} \quad (V.9)$$

La vitesse de la phase gazeuse est fixée à $V_{sg} = 0.10$ m/s tandis que la vitesse superficielle liquide est telle que $V_{sl} < 0.003$ cm/s. On observe ainsi sur la figure V.12 que la perte de charge prédite par le modèle réseau est en assez bon accord avec le

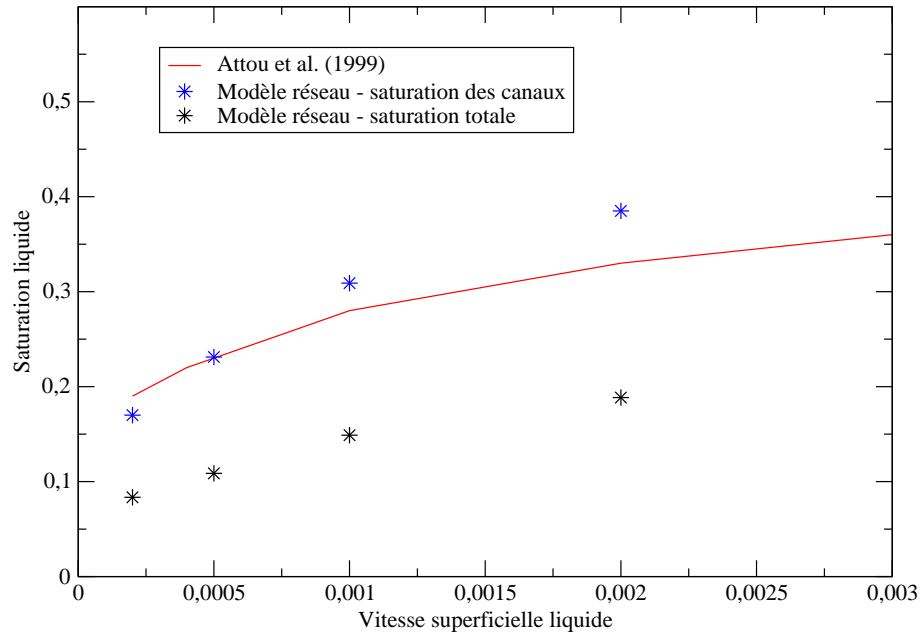


Figure V.13 – Saturation liquide pour un écoulement diphasique dans un lit fixe ($V_{sg} = 0.10$ m/s)

modèle d'Attou et al. (1999). La divergence des résultats que l'on observait dans le cas d'un écoulement monophasique de gaz ($V_{sg} = 0.10$ m/s) n'est pas présente dans le cas diphasique. D'une part, la loi d'ajustement du rayon de constriction provient de l'étude à l'échelle microscopique effectuée dans les mêmes conditions et prend donc implicitement en compte les effets inertiels de l'écoulement simulé par méthode directe. D'autre part, la perte de charge est également dûe à l'écoulement de la phase liquide ainsi qu'à l'interaction entre les phases fluides. L'influence de l'effet inertiel de l'écoulement de la phase gazeuse est donc fortement amoindrie.

Concernant la prédiction de la rétention liquide, on compare les résultats provenant du modèle d'Attou et al. (1999) aux simulations réseaux, en terme de saturation de canal ainsi qu'en terme de saturation moyenne (Fig. V.13). La saturation des canaux, utilisée pour le calcul des débits, est en assez bon accord avec les modèle d'Attou et al. (1999). La saturation moyenne dans le lit, comprenant la saturation des pores et des canaux, sous-estime par contre largement la saturation du système. Malgré l'attribution d'une partie du volume de pores aux canaux voisins, le volume de vide reste majoritairement associé aux pores et cela implique, tel qu'on a pu le

voir dans la présentation du modèle au chapitre IV, une saturation faible du réseau. Ces résultats mettent en évidence la nécessité d'approfondir l'étude concernant la définition de la frontière entre le pore et le canal.

5 Etude expérimentale de l'étalement d'un jet de liquide sur un lit fixe

5.1 Choix de l'outil de visualisation de l'écoulement

Outre l'aspect quantitatif du modèle réseau recherché dans le cas d'une injection homogène dans un lit fixe de particules, on souhaite également étudier, de la même façon que dans l'approche 2D, le cas d'un écoulement hétérogène, tel que l'étalement d'un jet de liquide dans un lit fixe de particules. On dispose cependant dans la littérature de peu d'informations à l'échelle mésoscopique sur ce type de configuration. La plupart des études précédentes concernant la visualisation d'écoulements ruisselants en lit fixe par tomographie (Reinecke and Mewes, 1997; Boyer and Fanget, 2002; Boyer et al., 2005; Schubert et al., 2008), ou par visualisation directe (Jiang et al., 1999), ont en effet été effectuées à l'échelle macroscopique, c'est-à-dire celle du réacteur, afin de déduire, par exemple, des angles de dispersion de jet. Ce type d'approche ne permet cependant pas d'obtenir des informations précises sur la répartition des phases à l'échelle de la particule. Dans cette section, on cherche à développer une approche expérimentale permettant d'obtenir l'étalement d'un jet de liquide, en état stationnaire, à l'échelle d'un grand nombre de particules, tout en ayant une information locale sur la répartition des phases.

Une première approche consiste à obtenir la représentation 3D de l'écoulement par microtomographie, i.e., la technique utilisée pour extraire la géométrie précise du lit. Cette approche permet d'obtenir une reconstruction 3D précise du lit, avec une dimension caractéristique du voxel d'environ $40 \mu\text{m}$. Elle s'applique cependant sur un domaine de taille réduite, avec une taille caractéristique d'échantillon d'environ 3 cm, ce qui paraît trop faible pour observer l'étalement d'un jet de liquide. De plus, le temps d'acquisition par échantillon est de l'ordre de plusieurs heures. Compte tenu de ces contraintes, cet outil n'est pas adapté à l'échelle de notre écoulement.



Figure V.14 – Photographie du dispositif expérimental placé dans le champs d'acquisition du scanner X

On propose dans ce travail d'observer l'écoulement dans le lit fixe de particules à l'aide d'un scanner X classique disponible à l'IFPEN. Comme détaillée dans la section suivante, cette technique permet d'obtenir une représentation de l'écoulement sur l'ensemble du lit fixe pilote avec des temps d'acquisition beaucoup plus faibles (de l'ordre d'une minute). La contrepartie de cette méthode est une perte de précision avec une résolution d'image plus faible.

5.2 Procédé expérimental

On dispose d'un tube de diamètre 5 cm, le lit fixe pilote, que l'on remplit de billes de verre de diamètre 4 mm sur une hauteur d'environ 15 cm. Le chapeau du tube comporte une ouverture centrale par laquelle on injectera la phase liquide tandis qu'une ouverture en fond de lit permet son évacuation. La solution injectée se compose de 8% d'iododécane, 25% de dodécane et de 67% d'heptane ce qui permet d'obtenir une phase liquide aux propriétés proches de celles décrites en début de chapitre tout en proposant une visualisation du jet par scanner facilitée par un contraste accru. On injecte le liquide en tête de lit à l'aide d'un pousse-seringue permettant des débits d'injection compris entre 5 et 100 cc/min. L'ensemble du dispositif expérimental est placé dans le champ d'acquisition du scanner (Fig. V.14).

Le faisceau de rayons du scanner X est collimaté à 1 mm et les coupes reconstruites représentent donc des tranches d'épaisseur 1 mm. Chaque image possède une résolution en x et y de 512x512 pixels avec une dimension caractéristique pour chaque pixel de 0.28 mm. Des images sont acquises tous les 0.5 mm afin de réduire artificiellement la résolution le long de l'axe z. On peut alors créer une représentation 3D du lit fixe avec une résolution de 0.28x0.28x0.50 mm. On effectue dans un premier temps une image 3D du lit fixe à sec qui sera par la suite soustraite aux futures acquisitions afin d'obtenir une image de l'étalement de la phase liquide.

5.3 Résultats

On effectue une première série de mesures en augmentant progressivement l'injection de la phase liquide dans un lit initialement sec. En figure V.15.a, pour un débit d'injection $Q_l = 10$ cc/min, on observe la présence de deux chemins préférentiels le long desquels s'écoule la phase liquide. En augmentant le débit, on observe un élargissement des chemins préférentiels existants ainsi qu'un accroissement du nombre de chemins (Fig. V.15.b,c). Pour les débits les plus importants, $Q_l = 100$ cc/min, on observe la disparition des chemins préférentiels d'écoulement au profit d'une colonne centrale globalement inondée (Fig. V.15.d). Une fois le lit fixe inondé ($Q_l = 100$ cc/min), on coupe l'injection de liquide et on laisse le système se drainer naturellement par gravité pendant plusieurs minutes. On capture alors la répartition liquide statique restante dans le lit fixe puis on réinjecte la phase liquide dans le tube. En figure V.16, on trace la saturation liquide moyenne en fonction de la hauteur dans le lit fixe pour l'ensemble des mesures effectuées. On met ainsi en évidence l'influence du prémouillage sur la saturation moyenne dans le lit, et ce pour l'ensemble des débits de liquides testés.

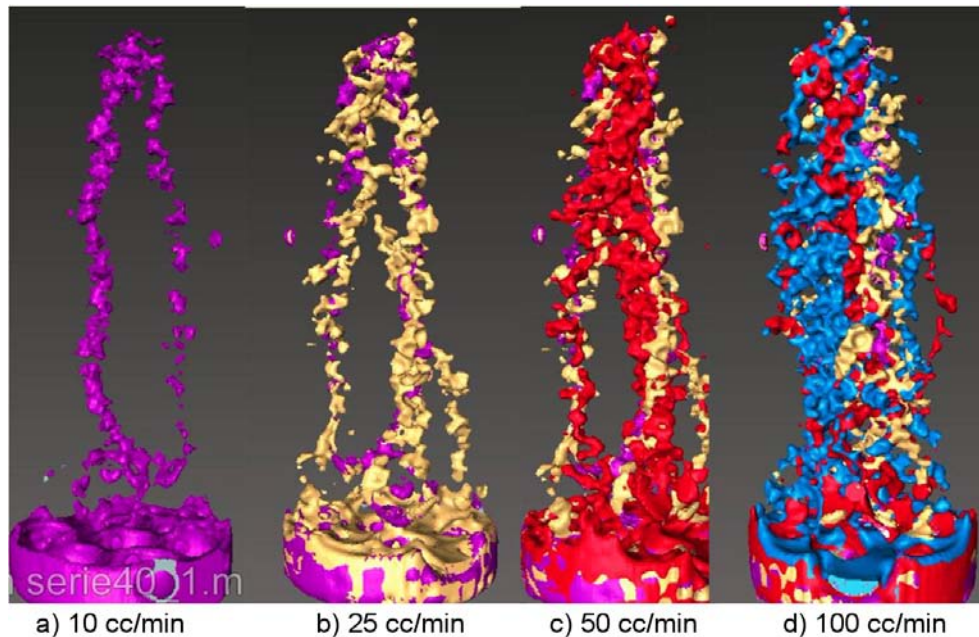


Figure V.15 – Étalement d'un jet de liquide sur un lit fixe sec, observé par scanner X, dans un lit fixe pilote pour différents débits d'injection

5.4 Conclusions et Perspectives

L'étude expérimentale présentée dans ce document n'est pas exhaustive mais permet cependant d'observer des tendances ainsi que des spécificités locales d'un écoulement ruisselant dans un lit fixe. Cette étude a principalement permis de démontrer que l'imagerie par scanner à rayons X est un outil efficace dans le cadre de la visualisation 3D d'un écoulement ruisselant à l'échelle mésoscopique. Outre les observations qualitatives, comme par exemple la présence de chemins préférentiels à faible débit, il est possible d'obtenir des informations quantitatives, telle qu'une saturation moyenne en fonction de la hauteur du lit ou un angle d'étalement de jet. Ce type d'information peut notamment s'obtenir en effectuant une projection axisymétrique de l'étalement de la phase liquide (un exemple de projection de l'échantillon étudié est présenté en figure V.17). Une étude plus complète permettrait d'obtenir un jeu de données concernant l'écoulement ruisselant à l'échelle mésoscopique en vue de la validation de l'approche réseau dans le cas d'un écoulement hétérogène (un exemple de simulation de jet de liquide par le modèle réseau est présenté en figure V.18).

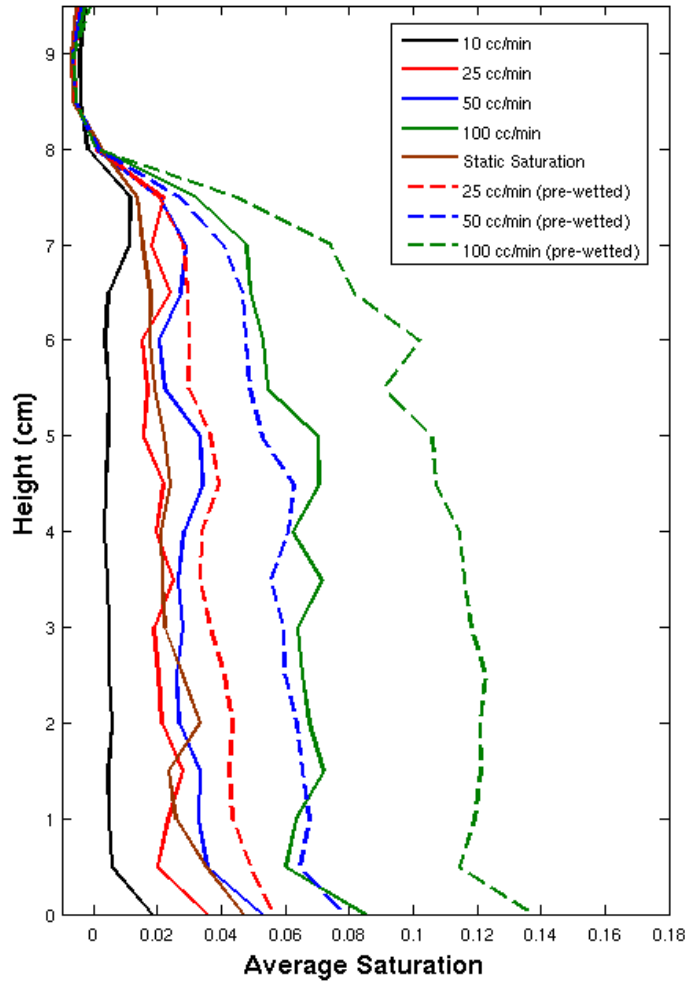


Figure V.16 – Saturation moyenne en fonction de la hauteur dans le lit de particules pour différentes conditions d'injection

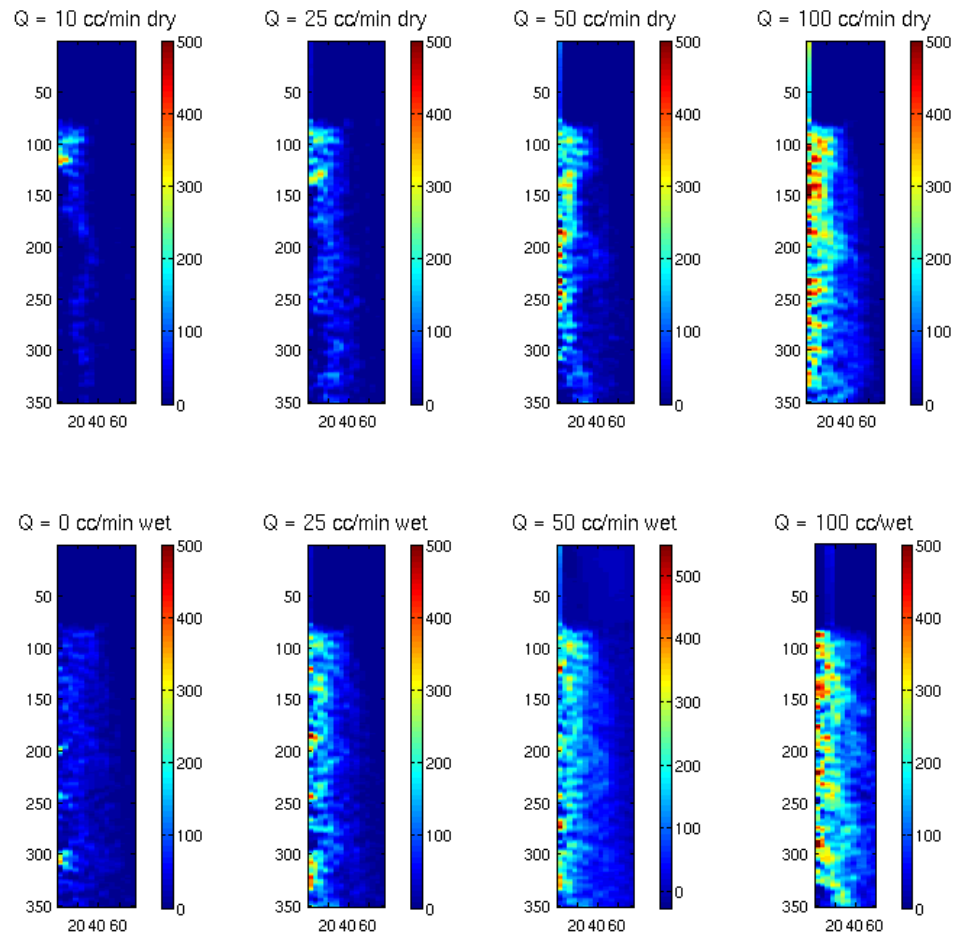


Figure V.17 – Exemple de projections axisymétriques de la saturation liquide d'un écoulement 3D, observé par scanner X, pour différents débits d'injection et conditions initiales (lit sec ou prémouillé)

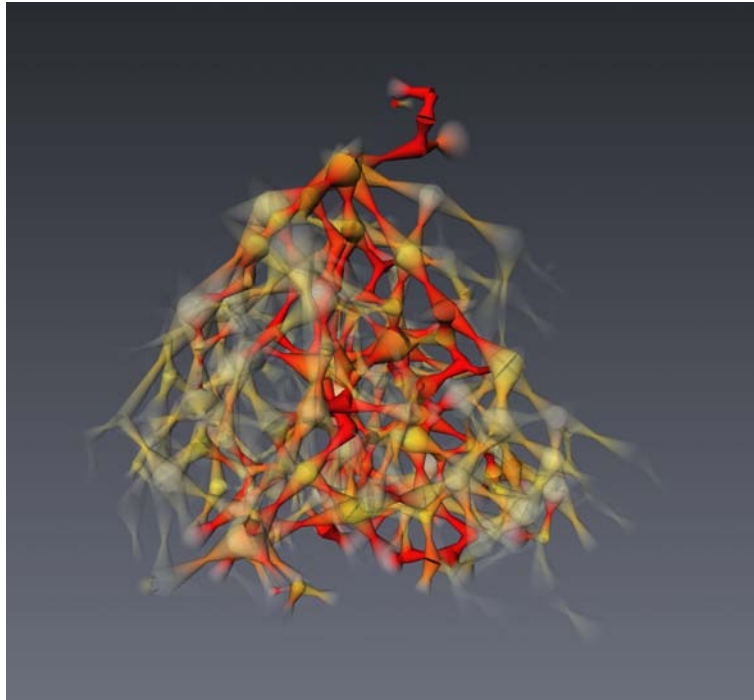


Figure V.18 – Simulation de l'étalement d'un jet de liquide obtenu par le modèle réseau

Il serait également intéressant d'effectuer dans un futur travail une étude plus complète en faisant varier certains paramètres, comme par exemple les propriétés des fluide, afin d'observer leur influence sur la dispersion du jet à l'échelle locale.

Enfin, on peut également citer le travail effectué par E. Rosenberg en parallèle à cette étude visant à reconstituer le lit fixe en se basant exclusivement sur les images du scanner X. Considérant que les particules sont monodisperses, il est en effet possible, malgré la relative faible résolution de la reconstruction scanner, de retrouver le centre des particules constituant le lit. Un exemple de reconstruction de lit fixe par cette approche est présenté en figure V.19. Le travail est en cours et les propriétés du premier échantillon ainsi reconstitué sont proches de celles obtenues par microtomographie. Ce procédé, une fois validé, permettrait d'éviter de recourir à la microtomographie pour extraire la matrice solide d'un lit fixe. On pourrait alors extraire un réseau 3D de l'échantillon complet (5x5x15 cm contre 3x3x3 cm par microtomographie) avec un temps d'acquisition de l'ordre de la minute. La simulation de l'écoulement par méthode réseau pourrait s'effectuer sur la géométrie réelle à l'échelle du lit fixe pilote.

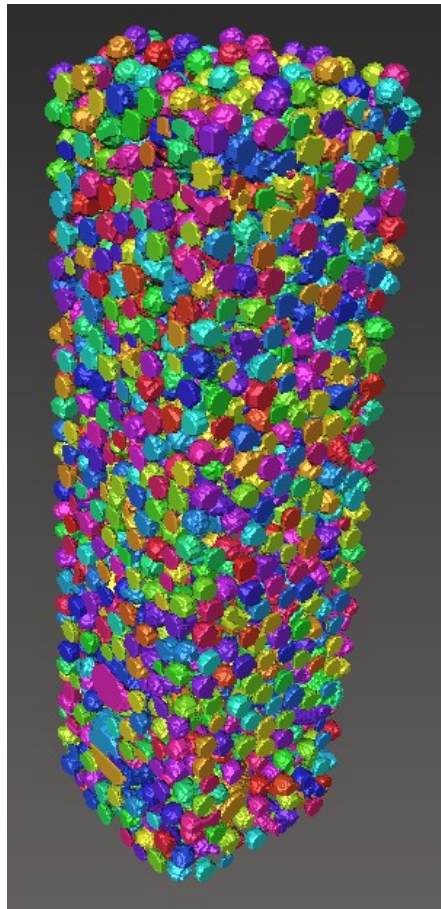


Figure V.19 – Exemple de reconstruction 3D d'un empilement de particules monodisperses par imagerie scanner

Conclusion générale

Le travail présenté dans ce document porte sur le développement d'une nouvelle approche de modélisation des écoulements ruisselants gaz-liquide à travers un lit fixe de particules. Une revue de l'état de l'art montre que la complexité de ce type d'écoulement, avec notamment la présence de nombreuses configurations multiphasiques ainsi qu'une compétition entre les effets capillaire, gravitaire et inertiel, ont incité les auteurs précédents à adopter une approche essentiellement empirique du problème. Des corrélations ont ainsi été développées afin de prédire les propriétés de l'écoulement (régime d'écoulement, perte de charge, rétention liquide) à l'échelle d'un réacteur industriel en fonction de conditions de fonctionnement. Ce type de modèle ne permet cependant pas de simuler des hétérogénéités locales, observées de façon expérimentale, qui jouent pourtant un rôle important dans l'écoulement. De plus, l'hydrodynamique locale de ce type d'écoulement reste, d'une manière générale, assez mal comprise. Diverses études ont donc été menées à différentes échelles (micro-, méso- et macro-scopique) afin d'améliorer la compréhension de l'écoulement mais aucune n'a, à ce jour, cherché à lier ces différentes échelles afin de proposer un modèle prédictif à l'échelle macroscopique prenant en compte les phénomènes microscopiques. Ce constat est à l'origine de ce sujet de thèse visant à développer une nouvelle approche de modélisation, par changements d'échelle successifs en partant de l'étude à la plus petite échelle.

Une première étape du travail a consisté à valider la méthode de simulation numérique directe, la méthode "Volume-Of-Fluid" (VOF), utilisée à l'échelle microscopique. Les temps de calcul de ce type de simulation étant importants, il est en effet nécessaire de comprendre l'influence des différents paramètres de ce type de méthode afin de pouvoir coupler précision de calcul et rapidité d'exécution. L'étude d'un écoulement à films dans des tubes capillaires a ainsi permis d'identifier les

choix optimaux de paramétrisation de la méthode. Ceci a été mis à profit lors de simulations ultérieures.

Les écoulements ruisselants en lit fixe présentent une double difficulté, à la fois expérimentale et numérique. D'un point de vue expérimental, il est difficile de visualiser précisément un écoulement 3D à travers un lit de particules et, d'un point de vue numérique, les simulations demandent des temps de calcul considérables. Par conséquent, on a cherché à proposer une approche simplifiée, si possible en deux dimensions pour les raisons évoquées précédemment, reproduisant la phénoménologie des écoulements en lit fixe. On a donc observé l'écoulement d'une phase liquide dans un réseau de cylindres placés entre deux plaques. Une première partie du travail a consisté à caractériser expérimentalement les différents régimes d'écoulement. Dans un deuxième temps on a cherché à simuler l'écoulement par une approche VOF 2D. Il ressort de cette étude que la phénoménologie de l'écoulement 3D dans ce type de configuration peut-être reproduite par des simulations purement 2D. Si l'ordre de grandeur des résultats (en terme de vitesse de fluide, d'épaisseur de film liquide et de temps caractéristiques) entre simulations et expérimentations est similaire, il existe cependant une différence non négligeable que l'on attribue principalement au caractère faussement 2D du dispositif expérimental (présence de films de coins aux contacts entre cylindre et paroi...) qui sont négligés dans l'approche numérique. Cette étude a permis de valider le concept d'écoulement ruisselant dans un lit fixe "2D" ainsi que la méthode numérique directe permettant de le simuler. Cette configuration simplifiée est ensuite utilisée afin de développer une approche réseau du problème.

Un modèle réseau d'écoulement ruisselant a été proposé en considérant qu'un lit fixe, 2D ou 3D, peut être vu comme un réseau de pores et de liens. En simplifiant la géométrie du milieu poreux ainsi que l'hydrodynamique à l'échelle locale, ce type d'approche permet de simuler un écoulement à grande échelle tout en prenant en compte les spécificités locales, géométriques et hydrodynamiques. Une loi d'écoulement ruisselant simplifiée pour les liens entre pores a été proposée et validée à l'aide des simulations VOF à l'échelle microscopique. Les résultats obtenus par simulations réseaux ont ensuite été comparés, dans le cas d'une injection homogène, à des simulations VOF à l'échelle mésoscopique. Moyennant un ajustement du rayon équivalent des liens du réseau, il est possible de retrouver un comporte-

ment du modèle réseau en bon accord avec les simulations directes. La configuration testée a également mis en évidence la présence d'une rétention liquide statique qui nécessiterait d'être prise en compte dans le modèle réseau. Une comparaison qualitative sur le cas d'un écoulement hétérogène, c'est-à-dire l'étalement d'un jet de liquide dans le réseau, a ensuite été effectuée et a permis de dégager la nécessité d'introduire une loi de distribution liquide dynamique. En définissant un coefficient de distribution liquide dépendant des conditions de mouillabilité des particules, on a pu observer que le modèle réseau était en mesure de reproduire, du moins qualitativement, l'étalement d'un jet de liquide dans un réseau de cylindres.

Enfin, l'extension du modèle réseau à un cas réel de lit fixe de particules a été initié au cours de cette thèse. La représentation réseau du milieu poreux a tout d'abord été extraite d'une configuration 3D réelle d'empilement de billes de verre obtenue par microtomographie. Une modification des lois locales a ensuite été validée par des simulations numériques directes d'écoulement ruisselant à travers une série de constriction. L'approche réseau a d'abord été validée sur un cas d'écoulement monophasique en comparant les simulations réseaux à un modèle classique de perte de charge en lit fixe. Les premières simulations d'écoulement diphasique homogène à travers l'échantillon ont également montré un bon accord avec le modèle de perte de charge en écoulement ruisselant de Attou et al. (1999), couramment utilisé à l'IFPEN pour des réacteurs de taille industrielle. Enfin, un procédé expérimental a été mis en place afin d'observer l'étalement d'un jet de liquide à travers un empilement de particules à une échelle mésoscopique par de l'imagerie scanner.

Ce travail de thèse présente avant tout une portée méthodologique. En effet, on a étudié la possibilité d'étendre le concept de modèle réseau, habituellement utilisé dans des écoulements dominés par la capillarité, à un écoulement diphasique pour lequel les configurations d'interface sont nombreuses et les interactions entre fluides sont complexes. Les résultats quantitatifs, dans le cas d'un écoulement homogène, et les résultats qualitatifs, dans le cas d'un étalement de jet, semblent prometteurs pour ce type de méthode. En conclusion à ce manuscrit, on peut dégager quelques perspectives qui devront être étudiées dans un travail futur.

D'un point de vue expérimental, l'observation de l'étalement d'un jet de liquide dans un lit fixe n'a, à l'heure actuelle, été étudiée qu'à l'échelle du réacteur. Il serait intéressant de prolonger l'étude amorcée dans ce document afin d'obtenir une base

de données plus importante concernant l'étalement d'une phase liquide à l'échelle mésoscopique et, ainsi, mieux appréhender les mécanismes de répartition liquide.

Au niveau de la génération du réseau, il serait intéressant d'adapter l'algorithme en fonction du modèle réseau considéré. En effet, dans la forme actuelle de la représentation réseau, on crée un volume de canal en attribuant une fraction des volumes de pores voisins au canal. On pourrait approfondir la définition précise de la partition de l'espace poral entre volume de pore et volume de canal, en la rendant, par exemple, dépendante des conditions géométriques locales.

Du point de vue du modèle réseau, le concept de coefficient de distribution dynamique dépendant de la mouillabilité ne peut pas être appliqué dans la forme actuelle du réseau 3D qui ne possède pas la notion de particule (la matrice solide obtenue par microtomographie est considérée comme une structure unique). Or, la phénoménologie spécifique observée dans les lits fixes, tel que la présence de chemins préférentiels, ne peut pas être simulée par une définition statique du coefficient de distribution. En effet, on a vu dans le chapitre IV que cela conduirait à la diffusion du jet de liquide dans toute la section du réacteur. La loi de conservation dans les pores, ainsi que le lien entre saturation de pore et saturation de canal, restent aussi des sujets de discussion. La simulation d'un écoulement diphasique par méthode directe dans une série de quelques pores en 3D pourrait aider à améliorer la compréhension de la répartition liquide à l'échelle microscopique. La prise en compte des régimes inertiels, par modifications des lois locales d'écoulement, représente également une perspective importante de ce travail.

A plus grande échelle, il serait nécessaire d'effectuer des simulations sur un réseau, qui pourrait être obtenu par imagerie scanner ou par génération aléatoire d'un empilement de grains. La simulation d'écoulement ruisselant sur ce type de réseau permettrait, dans un premier temps, de valider de façon plus générale les premières observations que nous avons pu effectuer au cours de ce travail. On pourrait alors simuler l'écoulement ruisselant dans des situations diverses afin d'obtenir une base de données numériques, actuellement inexistante à cette échelle. L'objectif de simulation de l'écoulement à l'échelle du réacteur consiste, à terme, à développer un modèle macroscopique dont les paramètres effectifs seraient déterminés à l'aide des simulations réseaux effectuées à l'échelle du V.E.R.

Bibliographie

- Akbar, M. K. and M, G. S. (2006). Simulation of taylor flow in capillaries based on the Volume-of-Fluid technique. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 45 :5396–5403.
- Al-Dahhan, M., Larachi, F., Dudukovic, M., and Laurent, A. (1997). High-Pressure Trickle-Bed reactors : a review. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 36(8) :3292–3314.
- Al-Dahhan, M. H., Khadilkar, M. R., Wu, Y., and Dudukovic, M. P. (1998). Prediction of pressure drop and liquid holdup in High-Pressure Trickle-Bed reactors. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 37 :793–798.
- Atta, A., Roy, S., and Nigam, K. (2007). Prediction of pressure drop and liquid holdup in trickle bed reactor using relative permeability concept in CFD. *Chem. Eng. Sci.*, 62(21) :5870–5879.
- Attou, A., Boyer, C., and Ferschneider, G. (1999). Modelling of the hydrodynamics of the cocurrent gasliquid trickle flow through a trickle-bed reactor. *Chem. Eng. Sci.*, 54(6) :785–802.
- Attou, A. and Ferschneider, G. (1999). A two-fluid model for flow regime transition in gas- liquid trickle bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 54 :5031–5037.
- Attou, A. and Ferschneider, G. (2000). A two-fluid hydrodynamic model for the transition between trickle and pulse flow in a cocurrent gas-liquid packed-bed reactor. *Chem. Eng. Sci.*, 55(3) :491–511.
- Augier, F., Koudil, A., Royon-Lebeaud, A., Muszynski, L., and Yanouri, Q. (2010). Numerical approach to predict wetting and catalyst efficiencies inside trickle bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 65 :255–260.
- Bamardouf, K. and McNeil, D. A. (2009). Experimental and numerical investigation

- of two-phase pressure drop in vertical cross-flow over a horizontal tube bundle. *Appl. Therm. Eng.*, 29(7) :1356–1365.
- Bansal, A., Wanchoo, R. K., and Sharma, S. K. (2005). Flow regime transition in a trickle bed reactor. *Chem. Eng. Commun.*, 192(8) :1046–1066.
- Baussaron, L., Julcour-Lebigue, C., Wilhelm, A., Boyer, C., and Delmas, H. (2007). Partial wetting in trickle bed reactors : measurement techniques and global wetting efficiency. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 46(25) :8397–8405.
- Benkrid, K., Rode, S., and Midoux, N. (1997). Prediction of pressure drop and liquid saturation in trickle-bed reactors operated in high interaction regimes. *Chem. Eng. Sci.*, 52(21-22) :4021–4032.
- Blunt, M. J. (1997). Effets of the heterogeneity and wetting on relative permeability using a Pore-Level modeling. *SPE Journal*, 2 :70–87.
- Blunt, M. J., Jackson, M. D., Piri, M., and Valvatne, P. H. (2002). Detailed physics, predictive capabilities and macroscopic consequences for pore-network models of multiphase flow. *Adv. Water Resour.*, 25 :1069–1089.
- Boyer, C. and Fanget, B. (2002). Measurement of liquid flow distribution in trickle bed reactor of large diameter with a new gamma-ray tomographic system. *Chem. Eng. Sci.*, 57 :1079–1089.
- Boyer, C., Koudil, A., Chen, P., and Dudukovic, M. P. (2005). Study of liquid spreading from a point source in a trickle bed via gamma-ray tomography and CFD simulation. *Chem. Eng. Sci.*, 60 :6279–6288.
- Boyer, C., Volpi, C., and Ferschneider, G. (2007). Hydrodynamics of trickle bed reactors at high pressure : Two-phase flow model for pressure drop and liquid holdup, formulation and experimental validation. *Chem. Eng. Sci.*, 62(24) :7026–7032.
- Brackbill, J. U., Kothe, D. B., and Zemach, C. (1992). A continuum method for modeling surface tension. *J. Comput. Phys.*, 100 :335–354.
- Bretherton, F. P. (1961). The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid. Mech.*, 10 :166–188.

- Cahn, J. W. and Hilliard, J. E. (1958). Free energy of a nonuniform system. i. interfacial free energy. *J. Chem. Phys.*, 28(2) :258.
- Carlson, A., Kudinov, P., and Narayanan, C. (2008). Prediction of two-phase flow in small tubes : a systematic comparison of state-of-art CMFD codes.
- Cassot, F., Lauwers, F., Fouard, C., Prohaska, S., and Lauwerscances, V. (2006). A novel ThreeDimensional ComputerAssisted method for a quantitative study of microvascular networks of the human cerebral cortex. *Microcirculation*, 13(1) :1–18.
- Charpentier, J. and Favier, M. (1975). Some liquid holdup experimental data in tricklebed reactors for foaming and nonfoaming hydrocarbons. *AIChE J.*, 21(6) :1213–1218.
- Charpentier, J., Prost, C., and Le Goff, P. (1969). Chute de pression pour des écoulements co-courant dans les colonnes garnissage arrosé : comparaison avec le garnissage noyé. *Chem. Eng. Sci.*, 24(12) :1777–1794.
- Chen, S. and Doolen, G. D. (1998). Lattice boltzmann method for fluid flows. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 30(1) :329–364.
- Chou, T. S., Worley, F. L., and Luss, D. (1977). Transition to pulsed flow in Mixed-Phase cocurrent downflow through a fixed bed. *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, 16(3) :424–427.
- Coenen, J., Tchouparova, E., and Jing, X. (2004). Measurement parameters and resolution aspects of micro x-ray tomography for advanced core analysis. Abu Dhabi.
- Dong, H. and Blunt, M. J. (2009). Pore-network extraction from micro-computerized-tomography images. *Phys. Rev. E*, 80(3).
- Dowlati, R., Chan, A. M. C., and Kawaji, M. (1992). Hydrodynamics of Two-Phase flow across horizontal in-line and staggered rod bundles. *J. Fluids Eng.-Trans. ASME*, 114(3) :450–456.
- Dullien (1992). *Porous media : fluid transport and pore structure*. Academic Press, San Diego, CA, 2nd ed. edition.

- Dunsmuir, J., Ferguson, S., D'Amico, K., and Stokes, J. (1991). X-Ray microtomography : A new tool for the characterization of porous media. Society of Petroleum Engineers.
- Ellman, M., Midoux, N., Laurent, A., and Charpentier, J. (1988). A new, improved pressure drop correlation for trickle-bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 43(8) :2201–2206.
- Ellman, M., Midoux, N., Wild, G., Laurent, A., and Charpentier, J. (1990). A new, improved liquid hold-up correlation for trickle-bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 45(7) :1677–1684.
- Ergun, S. (1952). Mass-Transfer rate in packed columns. *Chem. Eng. Prog.*, 48 :227.
- Fatt, I. (1956). The network model of porous media II. dynamic properties of a single size tube network. *Trans AIME*, 207.
- Feenstra, P., Weaver, D., and Judd, R. (2000). An improved void fraction model for two-phase cross-flow in horizontal tube bundles. *Int. J. Multiph. Flow*, 26 :1851–1873.
- Feldkamp, L. A., Davis, L. C., and Kress, J. W. (1984). Practical cone-beam algorithm. *J. Opt. Soc. Am. A-Opt. Image Sci. Vis.*, 1(6) :612–619.
- Fouard, C., Cassot, E., Malandain, G., Mazel, C., Prohaska, S., Asselot, D., Westerhoff, M., and Marc-Vergnes, J. P. (2004). Skeletonization by blocks for large 3D datasets : application to brain microcirculation. volume 1, pages 89–92.
- Fourar, M. and Lenormand, R. (2001). A new model for two-phase flows at high velocities through porous media and fractures. *J. Pet. Sci. Eng.*, 30 :121127.
- Fourar, M., Lenormand, R., and Larachi, F. (2001). Extending the f-function concept to two-phase in trickle bed. *Chem. Eng. Sci.*, 56 :59875994.
- Fukagata, K., Kasagi, N., Ua-arayaporn, P., and Himeno, T. (2007). Numerical simulation of gas-liquid two-phase flow and convective heat transfer in a micro tube. *Int. J. Heat Fluid Flow*, 28(1) :7282.
- Funk, G. A., Harold, M. P., and Ng, K. M. (1990). A novel model for reaction in trickle beds with flow maldistribution. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 29 :738–748.

- Gianetto, A., Baldi, G., and Specchia, V. (1970). Absorption in packed towers with concurrent downward highvelocity flows. I-Interfacial areas. *Quad. Ind. Chim. Ital.*, 6 :125.
- Grosser, K., Carbonell, R. G., and Sundaresan, S. (1988). Onset of pulsing in twophase cocurrent downflow through a packed bed. *AIChE J.*, 34(11) :1850–1860.
- Gunjal, P. R., Kashid, M. N., Ranade, V. V., and Chaudhari, R. V. (2005a). Hydrodynamics of Trickle-Bed reactors : Experiments and CFD modeling. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 44 :6278–6294.
- Gunjal, P. R., Ranade, V. V., and Chaudhari, R. V. (2005b). Dynamics of drop impact on solid surface : Experiments and VOF simulations. *AIChE J.*, 51(1) :59–78.
- Gupta, R., Fletcher, D. F., and Haynes, B. S. (2009). On the CFD modelling of taylor flow in microchannels. *Chem. Eng. Sci.*, 64 :2941–2950.
- Harvie, D. J., Davidson, M. R., and Rudman, M. (2006). An analysis of parasitic current generation in volume of fluid simulations. *Appl. Math. Model.*, 30 :1056–1066.
- Hassanizadeh, M. and Gray, W. G. (1979a). General conservation equations for multiphase systems : 1. averaging procedure. *Adv. Water Resour.*, 2 :131–144.
- Hassanizadeh, M. and Gray, W. G. (1979b). General conservation equations for multiphase systems : 2. mass, momenta, energy, and entropy equations. *Adv. Water Resour.*, 2 :191–203.
- He., Q. and Kasagi, N. (2008). Phase-Field simulation of small capillary-number two-phase flow in a microtube. *Fluid Dyn. Res.*, 40 :497–509.
- Hirt, C. W. and Nichols, B. D. (1981). Volume-of-Fluid method for the dynamics of free boundaries. *J. Comput. Phys.*, 39 :201–225.
- Holub, R., Dudukovi, M., and Ramachandran, P. (1992). A phenomenological model for pressure drop, liquid holdup, and flow regime transition in gas-liquid trickle flow. *Chem. Eng. Sci.*, 47(9) :2343–2348.

- Holub, R. A., Dudukovi, M. P., and Ramachandran, P. A. (1993). Pressure drop, liquid holdup, and flow regime transition in trickle flow. *AIChE J.*, 39(2) :302–321.
- Hughes, T. J., Liu, W. K., and Zimmermann, T. K. (1981). Lagrangian-Eulerian finite element formulation for incompressible viscous flows. *Comput. Meth. Appl. Mech. Eng.*, 29(3) :329–349.
- Ishihara, K., Palen, J. W., and Taborak, J. (1980). Critical review of correlations for predicting Two-Phase flow pressure drop across tube banks. *Heat Transf. Eng.*, 1(3) :23–32.
- Jerauld, G. R. and Salter, S. J. (1990). The effect of Pore-Structure on hysteresis in relative permeability and capillary pressure : Pore-Level modeling. *Transp. Porous Media*, 5 :103–151.
- Jiang, Y., Khadilkar, M. R., Al-Dahhan, M. H., and Dudukovic, M. P. (1999). Two-phase flow distribution in 2D trickle-bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 54 :2409–2419.
- Jiang, Y., Khadilkar, M. R., Al-Dahhan, M. H., and Dudukovic, M. P. (2002). CFD of multiphase flow in Packed-Bed reactors : II. results and applications. *AIChE J.*, 48(4) :716–730.
- Joekar-Niasar, V. and Hassanizadeh, S. M. (2010). Effect of fluids properties on non-equilibrium capillarity effects : Dynamic pore-network modeling. *Int. J. Multiph. Flow*.
- Joekar-Niasar, V., Hassanizadeh, S. M., and Dahle, H. K. (2010). Non-equilibrium effects in capillarity and interfacial area in two-phase flow : dynamic pore-network modelling. *J. Fluid. Mech.*, 655 :38–71.
- Kashid, M. N., Rivas, D. F., Agar, D. W., and Turek, S. (2008). On the hydrodynamics of liquidliquid slug flow capillary microreactors. *Asia-Pac. J. Chem. Eng.*, 3(2) :151–160.
- Kondo, M. and Nakajima, K. (1980). Experimental investigation of air-water two phase upflow across horizontal tube bundles : Part 1, flow pattern and void fraction. *Bulletin of JSME*, 23(177) :385–393.
- Kreutzer, M. T., Kapteijn, F., Moulijn, J. A., Kleijn, C. R., and Heiszwolf, J. J.

- (2005). Inertial and interfacial effects on pressure drop of Taylor flow in capillaries. *AIChE J.*, 51(9) :2428–2440.
- Krishnamurthy, S. and Peles, Y. (2007). Gas-liquid two-phase flow across a bank of micropillars. *Phys. Fluids*, 19.
- Kumar, V., Vashisth, S., Hoarau, Y., and Nigam, K. D. (2007). Slug flow in curved microreactors : Hydrodynamic study. *Chem. Eng. Sci.*, 62 :7494–7504.
- Lappalainen, K., Manninen, M., and Alopaeus, V. (2009). CFD modeling of radial spreading of flow in trickle-bed reactors due to mechanical and capillary dispersion. *Chem. Eng. Sci.*, 64 :207–218.
- Lasseux, D. (1990). *Caractérisation expérimentale, analytique et numérique d'un film dynamique lors du drainage d'un capillaire*. PhD thesis, Université de Bordeaux I.
- Lasseux, D., Ahmadi, A., and Akbar Abbasian Arani, A. (2008). Two-Phase inertial flow in homogeneous porous media : A theoretical derivation of a macroscopic model. *Transp. Porous Media*, 75 :371–400.
- Lasseux, D., Quintard, M., and Whitaker, S. (1996). Determination of permeability tensors for Two-Phase flow in homogeneous porous media : Theory. *Transp. Porous Media*, 24 :107–137.
- Lenormand, R., Touboul, E., and Zarcone, C. (1988). Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media. *J. Fluid. Mech.*, 189 :165–187.
- Leonard, B. P. (1991). The ULTIMATE conservative difference scheme applied to unsteady one-dimensional advection. *Comput. Meth. Appl. Mech. Eng.*, 88 :17–74.
- Lockhart, R. W. and Martinelli, R. C. (1949). Proposed correlation of data for isothermal two-phase, two-component flow in pipes. *Chem. Eng. Prog.*, 45 :39–48.
- Lopes, R. J. and Quinta-Ferreira, R. M. (2009). CFD modelling of multiphase flow distribution in trickle beds. *Chem. Eng. J.*, 147 :342–355.
- Melli, T. R. (1989). *Two-phase cocurrent downflow in packed beds macroscale from microscale*. PhD thesis, University of Minnesota.
- Melli, T. R., M. de Santos, J., Kolb, W. B., and Scriven, L. E. (1990). Cocurrent

- downflow in networks of passages. microscale roots of macroscale flow regimes. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 29 :2367–2379.
- Melli, T. R. and Scriven, L. E. (1991). Theory of Two-Phase cocurrent downflow in networks of passages. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30 :951–969.
- Mousavi, S., Jafari, A., Yaghmaei, S., Vossoughi, M., and Sarkomaa, P. (2006). Computer simulation of fluid motion in a porous bed using a volume of fluid method : Application in heap leaching. *Miner. Eng.*, 19(10) :1077–1083.
- Muzaferija, S., Peric, M., Sames, P., and Schellin, T. (1998). A two-fluid Navier-Stokes solver to simulate water entry.
- Ng, K. and Chu, C. (1987). Trickle bed reactors. *Chem. Eng. Prog.*, 83 :56–63.
- Ng, K. M. (1986). A model for flow regime transitions in cocurrent downflow trickle-bed reactors. *AIChE J.*, 32(1) :115–122.
- Noghrehkar, G., Kawaji, M., and Chan, A. (1999). Investigation of two-phase flow regimes in tube bundles under cross-flow conditions. *Int. J. Multiph. Flow*, 25(5) :857–874.
- Park, C. and Homsy, G. M. (1984). Two-Phase displacement in hele shaw cells : Theory. *J. Fluid. Mech.*, 139 :291–308.
- Paul, S., Ormiston, S., and Tachie, M. (2008). Experimental and numerical investigation of turbulent cross-flow in a staggered tube bundle. *Int. J. Heat Mass Transf.*, 29(2) :387–414.
- Qian, D. Y. and Lawal, A. (2006). Numerical study on gas and liquid slugs for taylor flow in a t-junction microchannel. *Chem. Eng. Sci.*, 61(23) :7609–7625.
- Quintard, M. and Whitaker, S. (1990). Two-phase flow in heterogeneous porous media i : The influence of large spatial and temporal gradients. *Transp. Porous Media*, 5(4) :341–379.
- Quintard, M. and Whitaker, S. (1994). Transport in ordered and disordered porous media i : The cellular average and the use of weighting functions. *Transp. Porous Media*, 14(2) :163–177.

- Rao, V. G., Ananth, M. S., and Varma, Y. B. G. (1983). Hydrodynamics of twophase cocurrent downflow through packed beds (I & II). *AIChE J.*, 29(3) :467–483.
- Ratnam, G., Ananth, M., and Varma, Y. (1993). A model for the pressure drop in gasliquid cocurrent downflow through packed beds. *Chem. Eng. J.*, 51(1) :19–28.
- Reinecke, N. and Mewes, D. (1997). Investigation of the two-phase flow in trickle-bed reactors using capacitance tomography. *Chem. Eng. Sci.*, 52(13) :2111–2127.
- Saez, A. E. and Carbonell, R. G. (1985). Hydrodynamic parameters for gasliquid cocurrent flow in packed beds. *AIChE J.*, 31(1) :52–62.
- Sahimi, M. (2011). *Flow and Transport in Porous Media and Fractured Rock : From Classical Methods to Modern Approaches*. Wiley-VCH.
- Sai, P. S. T. and Varma, Y. B. G. (1987). Pressure drop in gasliquid downflow through packed beds. *AIChE J.*, 33(12) :2027–2036.
- Sai, P. S. T. and Varma, Y. B. G. (1988). Flow pattern of the phases and liquid saturation in gasliquid concurrent downflow through packed beds. *Can. J. Chem. Eng.*, 66(3) :353–360.
- Saroha, A. K. and Nigam, K. (1996). Trickle bed reactors. *Rev. Chem. Eng.*, 12(3-4) :207–347.
- Sato, Y., Hirose, T., Takashi, F., Toda, M., and Hashiguchi, Y. (1973). Flow pattern and pulsation properties of cocurrent gas-liquide downflow in packed beds. *J. Chem. Eng. Japan*, 6 :315–319.
- Schneider, K. and Farge, M. (2005). Numerical simulation of the transient flow behaviour in tube bundles using a volume penalization method. *J. Fluids Struct.*, 20(4) :555–566.
- Schubert, M., Hessel, G., Zippe, C., Lange, R., and Hampel, U. (2008). Liquid flow texture analysis in trickle bed reactors using high-resolution gamma-ray tomography. *Chem. Eng. J.*, 140 :332–340.
- Sederman, A. and Gladden, L. (2001). Magnetic resonance imaging as a quantitative probe of gasliquid distribution and wetting efficiency in trickle-bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 56(8) :2615–2628.

- Shah, Y. (1978). *Gas-fluid-solid reactor design*. New York, McGraw-Hill international book co. edition.
- Specchia, V. and Baldi, G. (1977). Pressure drop and liquid holdup for two phase concurrent flow in packed beds. *Chem. Eng. Sci.*, 32(5) :515–523.
- Sussman, M., Smereka, P., and Osher, S. (1994). A level-set approach for computing solutions to incompressible two-phase flow. *J. Comput. Phys.*, 114 :146–159.
- Taha, T. and Cui, Z. F. (2004). Hydrodynamics of slug flow inside capillaries. *Chem. Eng. Sci.*, 59 :1181–1190.
- Torquato, S. (2002). *Random heterogeneous materials : microstructure and macroscopic properties*. Springer.
- Triplett, K. A., Ghiaasiaan, S. M., Abdel-Khalik, S. I., and Sadowski, D. L. (1999). Gas-liquid two-phase flow in microchannels part i : two-phase flow patterns. *Int. J. Multiph. Flow*, 25 :377–394.
- Ubbink, O. and Issa, R. I. (1999). A method for capturing sharp fluid interfaces on arbitrary meshes. *J. Comput. Phys.*, 153 :26–50.
- Ulbrich, R. and Mewes, D. (1994). Vertical, upward gas-liquid two-phase flow across a tube bundle. *Int. J. Multiph. Flow*, 20(2) :249–272.
- Van der Merwe, W. and Nicol, W. (2009). Trickle flow hydrodynamics multiplicity : Experimental observations and pore-scale capillary mechanism. *Chem. Eng. Sci.*, 64 :1267–1284.
- van der Merwe, W., Nicol, W., and AlDahhan, M. H. (2008). Effect of hydrodynamic multiplicity on trickle bed reactor performance. *AIChE J.*, 54(1) :249–257.
- Waclawczyk, T. and Koronowicz, T. (2008). Comparison of CICSAM and HRIC high-resolution schemes for interface capturing. *J. Theor. Appl. Mech.*, 46 :325–345.
- Whitaker, S. (1986). Flow in porous media II : The governing equations for immiscible two-phase flow. *Transp. Porous Media*, 1 :105–125.
- Xu, G., Tso, C., and Tou, K. (1998). Hydrodynamics of two-phase flow in vertical up

- and down-flow across a horizontal tube bundle. *Int. J. Multiph. Flow*, 24 :1317–1342.
- Youngs, D. (1982). Time-dependent multi-material flow with large fluid distortion.
- Youssef, S., Rosenberg, E., Gland, N., Bekri, S., and Vizika, O. (2007). Quantitative 3D characterisation of the pore space of real rocks : improved μ -ct resolution and pore extraction methodology. *Int. Sym. of the Society of Core Analysts*.
- Yu, Z., Hemminger, O., and Fan, L. S. (2007). Experiment and lattice boltzmann simulation of two-phase gas-liquid flows in microchannels. *Chem. Eng. Sci.*, 62 :7172–7183.
- Zimmerman, S. P., Chu, C. F., and NG, K. M. (1987). Axial and radial dispersion in Trickle-Bed reactors with trickling Gas-Liquid Down-Flow. *Chem. Eng. Commun.*, 50 :213–240.

Annexe A

Développement de la solution d'écoulement ruisselant pour une cellule de Hele-Shaw

1 Calcul des profils de vitesse

On considère dans cette annexe un écoulement diphasique en cellule de Hele-Shaw de demi-espacement h . L'écoulement est parfaitement parallèle et la phase liquide s'écoule sous la forme d'un film le long des deux parois d'épaisseur e . Dans ces conditions, les profils de vitesses, de la phase gazeuse (V_g) et de la phase liquide V_l , dirigés le long de l'axe de la cellule, ne dépendent donc que de la coordonnée transverse y et du gradient de pression de chaque phase, ∇P_g et ∇P_l . Les profils peuvent s'écrire :

$$V_g(y) = \frac{y^2}{2\eta_g} \nabla P_g + \alpha_g y + \beta_g \quad (\text{A.1})$$

$$V_l(y) = \frac{y^2}{2\eta_l} \nabla P_l + \alpha_l y + \beta_l \quad (\text{A.2})$$

On peut alors déterminer les quatre constantes du problème à l'aide des conditions limites suivantes :

(i) La vitesse liquide est nulle à la paroi, $V_l(0) = 0$, impliquant :

$$\beta_l = 0 \quad (\text{A.3})$$

(ii) La dérivée de la vitesse du gaz est nulle au centre de la cellule, $\frac{\partial V_g}{\partial y}(h) = 0$, soit :

$$\frac{h}{\eta_g} \nabla P_g + \alpha_g = 0 \quad (\text{A.4})$$

(iii) La continuité de la contrainte tangentielle à l'interface, $\eta_g \frac{\partial V_g}{\partial t}(e) = \eta_l \frac{\partial V_l}{\partial t}(e)$, soit :

$$(e - h) \nabla P_g = e \nabla P_l + \eta_l \alpha_l \quad (\text{A.5})$$

(iv) La continuité des vitesses à l'interface, $V_g(e) = V_l(e)$, qui permet d'écrire :

$$\frac{-e^2}{2\eta_l} \nabla P_l + \frac{e(e-h)}{\eta_l} \nabla P_g = \frac{e(e-h)}{2\eta_g} \nabla P_g + \beta_g \quad (\text{A.6})$$

$$(\text{A.7})$$

On peut donc écrire les profils de vitesse des deux phases de la façon suivante :

$$V_l(y) = \frac{y^2 - 2ye}{2\eta_l} \nabla P_l + \frac{y(e-h)}{\eta_l} \nabla P_g \quad (\text{A.8})$$

$$V_g(y) = \left[\frac{y^2 - 2yh - e(e-h)}{2\eta_g} + \frac{e(e-h)}{\eta_l} \right] \nabla P_g - \frac{e^2}{2\eta_l} \nabla P_l \quad (\text{A.9})$$

2 Calcul des débits

2.1 Pour la phase liquide

Le débit de liquide dans la cellule de hele-Shaw est défini de la façon suivante :

$$Q_l = 2 \int_0^e V_l(y) dy \quad (\text{A.10})$$

Soit pour le premier terme :

$$\frac{\nabla P_l}{2\eta_l} \int_0^e (y^2 - 2ye) dy = -\frac{2e^3}{3\eta_l} \nabla P_l \quad (\text{A.11})$$

et pour le second terme :

$$\frac{(e-h)\nabla P_g}{\eta_l} \int_0^e y dy = -\frac{e^2(h-e)}{\eta_l} \nabla P_g \quad (\text{A.12})$$

En posant la saturation liquide S telle que $S = e/h$, on peut alors écrire :

$$Q_l = -\frac{2h^3}{3\eta_l} S^3 \nabla P_l - \frac{2h^3}{\eta_l} S^2 (1-S) \nabla P_g \quad (\text{A.13})$$

2.2 Pour la phase gazeuse

La définition du débit de gaz est donnée par l'équation suivante :

$$Q_g = 2 \int_e^h V_g(y) dy \quad (\text{A.14})$$

Soit pour le premier terme :

$$\left(\frac{2}{\eta_g} \int_e^h (y^2 - 2yh + e(h-e)) dy - \frac{2}{\eta_l} \int_e^h e(h-e) dy \right) \nabla P_g = \quad (\text{A.15})$$

$$- \left[\frac{2(h-e)^3}{3\eta_g} + \frac{2e(h-e)^2}{\eta_l} \right] \nabla P_g$$

et pour le second terme :

$$2 \int_e^h -\frac{e^2}{2\eta_l} \nabla P_l dy = -\frac{e^2(h-e)}{\eta_l} \nabla P_l \quad (\text{A.16})$$

qui peut être reformulée en terme de saturation S :

$$Q_g = - \left[\frac{2h^3}{3\eta_g} (1-S)^3 + \frac{2h^3}{\eta_l} S(1-S)^2 \right] \nabla P_g - \frac{2h^3}{\eta_l} S^2 (1-S) \nabla P_l \quad (\text{A.17})$$

Annexe B

Développement de la solution d'écoulement ruisselant pour une conduite à section circulaire

1 Calcul des profils de vitesse

On suppose un écoulement diphasique dans un tube de rayon constant R . L'écoulement est parfaitement parallèle et la phase liquide s'écoule le long de la paroi sous la forme d'un film liquide d'épaisseur $R - e$. Dans ces conditions, les profils de vitesse de chaque phase ne dépend que de la coordonnée transverse, r , ainsi que du gradient de pression de chaque phase, ∇P_g et ∇P_l . Les profils peuvent s'écrire de la façon suivante :

$$V_g(r) = \frac{r^2}{4\eta_g} \nabla P_g + \alpha_g \ln(r) + \beta_g, e \leq r \leq R \quad (\text{B.1})$$

$$V_l(r) = \frac{r^2}{4\eta_l} \nabla P_l + \alpha_l \ln(r) + \beta_l, 0 \leq r \leq e \quad (\text{B.2})$$

On détermine les constantes α_i et β_i à l'aide des conditions limites suivantes :

(i) La contrainte tangentielle de la vitesse gaz au centre du tube ($r = 0$) non infinie, impliquant :

$$\alpha_g = 0 \quad (\text{B.3})$$

(ii) La continuité de la contrainte tangentielle en $r = e$, $\eta_l \frac{\partial V_l}{\partial r} = \eta_g \frac{\partial V_g}{\partial r}$, impliquant :

$$\frac{e}{2} \nabla P_g = \frac{e}{2} \nabla P_l + \frac{\eta_l}{e} \alpha_l \quad (\text{B.4})$$

soit :

$$\alpha_l = \frac{e^2}{2\eta_l} (\nabla P_g - \nabla P_l) \quad (\text{B.5})$$

(iii) Une condition de non glissement à la paroi en $r = R$, $V_l(R) = 0$, soit :

$$\beta_l = -\frac{R^2}{4\eta_l} \nabla P_l - \frac{e^2}{2\eta_l} (\nabla P_g - \nabla P_l) \ln(R) \quad (\text{B.6})$$

(iv) Une continuité de la vitesse des deux phases à l'interface, $V_g(e) = V_l(e)$, soit :

$$\frac{e^2 - R^2}{4\eta_l} \nabla P_l + \frac{e^2}{2\eta_l} (\nabla P_g - \nabla P_l) \ln\left(\frac{e}{R}\right) = \frac{e^2}{4\eta_g} \nabla P_g + \beta_g \quad (\text{B.7})$$

et donc les profils de vitesse peuvent s'écrire :

$$V_l(r) = \frac{r^2 - R^2}{4\eta_l} \nabla P_l + \frac{e^2}{2\eta_l} (\nabla P_g - \nabla P_l) \ln\left(\frac{r}{R}\right) \quad (\text{B.8})$$

$$V_g(r) = \frac{r^2 - e^2}{4\eta_g} \nabla P_g + \frac{e^2 - R^2}{4\eta_l} \nabla P_l + \frac{e^2}{2\eta_l} (\nabla P_g - \nabla P_l) \ln\left(\frac{e}{R}\right) \quad (\text{B.9})$$

2 Calcul des débits

2.1 Phase liquide

Le débit de la phase liquide dans le tube est défini tel que :

$$Q_l = \int_e^R 2\pi r V_l(r) dr \quad (\text{B.10})$$

Soit pour le premier terme :

$$\frac{\pi \nabla P_l}{2\eta_l} \int_e^R (r^3 - R^2 r) dr = -\frac{\pi (R^2 - e^2)^2}{8\eta_l} \nabla P_l \quad (\text{B.11})$$

Pour le second terme on peut écrire :

$$\int_e^R r \ln\left(\frac{r}{R}\right) dr = \left[\frac{1}{4} (2r^2 \ln(r) - r^2) \right]_e^R - \left[\frac{r^2}{2} \ln(R) \right]_e^R \quad (\text{B.12})$$

soit :

$$\frac{\pi e^2}{\eta_l} \int_e^R r \ln\left(\frac{r}{R}\right) dr = -\frac{\pi e^2}{4\eta_l} \left(R^2 - e^2 + 2e^2 \ln\left(\frac{e}{R}\right) \right) \quad (\text{B.13})$$

Le débit liquide dans le tube peut donc s'écrire :

$$Q_l = -\frac{\pi}{8\eta_l} \left[(R^2 - e^2)(R^2 - 3e^2) - 4e^4 \ln\left(\frac{e}{R}\right) \right] \nabla P_l - \frac{\pi}{4\eta_l} \left[R^2 e^2 - e^4 + 2e^4 \ln\left(\frac{e}{R}\right) \right] \nabla P_g \quad (\text{B.14})$$

2.2 Phase gazeuse

Le débit de la phase gazeuse est défini tel que :

$$Q_g = \int_0^e 2\pi r V_g(r) dr \quad (\text{B.15})$$

Soit pour le premier terme :

$$\frac{\pi \nabla P_g}{2\eta_g} \int_0^e (r^3 - r e^2) dr = -\frac{\pi e^4}{8\eta_g} \nabla P_g \quad (\text{B.16})$$

pour le second terme :

$$\frac{\pi \nabla P_l}{2\eta_l} \int_0^e (r e^2 - r R^2) dr = -\frac{\pi}{4\eta_l} (R^2 e^2 - e^4) \nabla P_l \quad (\text{B.17})$$

et pour le troisième terme :

$$\frac{\pi e^2}{\eta_l} (\nabla P_g - \nabla P_l) \int_0^e r \ln\left(\frac{e}{R}\right) dr = \frac{\pi}{4\eta_l} \left[2e^4 \ln\left(\frac{e}{R}\right) \right] (\nabla P_g - \nabla P_l) \quad (\text{B.18})$$

On peut alors écrire la forme finale du débit de gaz dans le tube :

$$Q_g = -\frac{\pi}{8\eta_l} \left[\frac{\eta_l}{\eta_g} e^4 - 4e^4 \ln\left(\frac{e}{R}\right) \right] \nabla P_g - \frac{\pi}{4\eta_l} \left[R^2 e^2 - e^4 + 2e^4 \ln\left(\frac{e}{R}\right) \right] \nabla P_l \quad (\text{B.19})$$

3 Reformulation des débits

Si on pose la saturation en liquide du réseau $S = 1 - \frac{e^2}{R^2}$, alors on peut réécrire les débits sous la forme suivante :

$$Q_l = -\frac{\pi R^4}{8\eta_l} \left[3S^2 - 2S - 2(1-S)^2 \ln(1-S) \right] \nabla P_l - \frac{\pi R^4}{4\eta_l} \left[S(1-S) + (1-S)^2 \ln(1-S) \right] \nabla P_g \quad (\text{B.20})$$

$$Q_g = -\frac{\pi R^4}{8\eta_l} \left[\frac{\eta_l}{\eta_g} (1-S)^2 - 2(1-S)^2 \ln(1-S) \right] \nabla P_g \quad (\text{B.21})$$
$$-\frac{\pi R^4}{4\eta_l} [S(1-S) + (1-S)^2 \ln(1-S)] \nabla P_l$$