

Proposition d'un sujet de thèse : École Doctorale de Chimie

Spécialité : Génie des procédés

Année 2019

Modélisation avancée des phénomènes de transports dans les milieux poreux granulaires.

Advanced modelling of transport phenomena in granular porous media.

Direction : Isabelle Pitault (CNRS) : LAGEPP UMR 5007 (UCBLyon1-CNRS)
isabelle.pitault@univ-lyon1.fr

Contexte et objectifs généraux de la thèse :

Les phénomènes de transport dans les milieux poreux granulaires que sont les réacteurs catalytiques hétérogènes (fluide-solide) ont fait l'objet de nombreuses études de modélisation. Les modèles classiquement utilisés sont basés sur l'intégration des équations différentielles partielles représentant les bilans matière, d'énergie et de quantité de mouvement [1]. Si les réactions chimiques mises en jeu sont très rapides devant les transferts de matière et de chaleur, les modèles doivent prendre en compte l'hétérogénéité du système en considérant des différences locales de concentrations et de températures entre les phases [2,3]. La répartition locale des phases est prise en compte par un unique paramètre, la porosité du lit granulaire, qui est constante sur tout le réacteur. Pour les lits granulaires de grandes dimensions (où les rapports diamètre du réacteur sur diamètre des particules sont grands), ces modèles simples sont bien éprouvés. Pour les réacteurs dont les rapports diamètre du réacteur sur diamètre des particules sont inférieurs à 10, l'hypothèse de la constance et l'isotropie de la porosité ne tient plus et les modèles simples ne sont plus capables de représenter leurs comportements précisément. Dans cette optique, d'autres types de modèles ont été développés : (i) les modèles à porosité variable dans lesquels le lit granulaire est supposé axisymétrique suivant la longueur du réacteur et la porosité variable uniquement suivant le rayon du réacteur et (ii) les modèles de type mécanique des fluides numérique (MFN ou CFD). Le premier modèle est une amélioration des modèles simples. Cependant, il ne peut pas, de par sa structure, représenter l'anisotropie des écoulements induite par des empilements de grains de compacité irrégulière [4]. Le second permet de prendre en compte toutes les anisotropies d'empilement. Cependant le maillage fin, induit par les zones de contact entre les grains, augmente considérablement les besoins en capacité de calcul et donc ne permet raisonnablement pas de simuler les écoulements autour de plus d'une centaine de grains.

Dans le cadre du projet ANR INFIDHEM, une nouvelle méthode de modélisation des milieux poreux a été développée. Elle consiste à représenter les phases en contact (fluide-solide) par deux graphes duos continus couplés par des flux de transfert de matière ou de chaleur aux interfaces (le graphe est défini ici dans son sens mathématique). La *méthode des graphes* est en cours de développement pour la modélisation des phénomènes de transferts de chaleur dans les milieux poreux de type mousse à cellules ouvertes. Les mousses sont par essence constituées de deux phases continues (les brins solides et les cellules de fluide) couplées par des transferts de chaleur et de matière entre la phase solide et la phase fluide. Dans cette méthode, il n'y a plus de notion de porosité car elle est implicite dans la définition des volumes associés aux nœuds et arrêtes des graphes.

Les objectifs généraux de cette thèse consistent à développer la *méthode des graphes* pour la modélisation des écoulements et des transferts de matière et de chaleur dans les milieux poreux granulaires réactifs. Cette nouvelle méthode de modélisation devrait permettre de simuler les réacteurs multi-tubulaires [5] de façon plus fiable et surtout dans leur globalité contrairement aux modèles de type CFD. Ces réacteurs contiennent quelques particules sur leur diamètre (de 4 à 10 particules) mais sont longs de plusieurs mètres. Ils sont aussi soumis à la forte thermicité des réactions, endothermiques pour le vapo-reformage du méthane par exemple et exothermiques pour les réactions d'oxydation.

Le LAGEPP est très bien positionné pour mener à bien cette étude pluridisciplinaire dans la mesure où coexistent en son sein des spécialistes de Génie des Procédés ayant une très bonne expérience de la

modélisation des phénomènes de transport dans des matériaux complexes [1-4 ; 6] et des Automaticiens qui peuvent venir les appuyer par leur maîtrise des concepts des graphes et des outils numériques [7-8].

Description du projet :

A partir d'empilements expérimentaux de particules (sphères, cylindres, barillets), dont les caractéristiques (profil de porosité, position des centres, des points de contacts,...) ont été préalablement déterminées par tomographie et traitement d'images au LGPC par Marie-Line Zanota, différents modèles de transport seront développés. Des modèles classiques, considérant le milieu pseudo-homogène, bien décrits dans la littérature, seront pris comme référence pour les empilements de grandes tailles. En parallèle, des modèles basés sur la *méthode des graphes* seront développés, en évaluant les impacts des rapports de tailles (diamètre de tube / diamètre des particules) et des différentes hypothèses comme l'effet de la construction du graphe solide (plusieurs définitions possibles des nœuds : centre des particules ou point de contact).

Les différents modèles seront ensuite comparés pour procéder à une première évaluation des hypothèses faites. Ils permettront aussi de définir les conditions opératoires des expériences à réaliser afin de discriminer clairement les hypothèses restantes. Les expériences qui seront réalisées au LAGEPP pourront être des expériences de traçage de la phase gazeuse, des mesures de perte de charge et des mesures de transfert de chaleur sur des empilements caractérisés en collaboration avec le LGPC par tomographie et traitement d'images.

Dans les parties de développement de modèles et d'expériences de validation de méthodes, des empilements de sphères seront utilisés. Les méthodes seront ensuite étendues à d'autres formes de particules telles que les cylindres et les anneaux.

Programme détaillé de la thèse:

La thèse se déroulera en plusieurs étapes.

- a) Recherche bibliographique sur les modèles de transport dans les empilements de particules.
- b) Simulation d'empilements par des modèles classiques de la littérature.
- c) Développement de la *méthode des graphes*. Simulation du même empilement en utilisant une description par graphes couplés et écriture des bilans sous la forme de Port-Hamiltonien. Discrimination des hypothèses de structure des graphes.
- d) Définition des conditions opératoires des expériences à réaliser afin de discriminer clairement les hypothèses restantes.
- e) Réalisation des expériences de traçage de la phase gazeuse, de mesure de perte de charge et/ou de mesure de transfert de chaleur.
- f) Application à d'autres formes d'empilements.

[1] Réacteurs catalytiques hétérogènes, Schweich, D, I.Pitault. Chapitre 10 du Genie de la reaction Chimique (2001) Tec & Doc Edition.

[2] Dynamic modelling of a stopped flow fixed bed reactor for gas phase olefin polymerisation, B. Browning, I. Pitault, N. Sheibat-Othman, E. Tioni, V. Monteil, T.F.L. Mc Kenna, Chemical Engineering Journal, 207-208, (2012) 635-644.

[3] Production d'hydrogène par un procédé catalytique : étude exploratoire. H. Osuna Sanchez, I. Pitault, M. Forissier, Congrès Français de Thermique, SFT 2004, Presqu'île de Giens, 25-28 mai 2004., Actes du congrès annuel de la Société Française de Thermique. SFT2004. Tome 2 (2004), 855-860.

[4] Étude des pertes de charge dans un lit fixe de particules non sphériques, A. Fezoua, C. Nikitine, M.-L. Zanota, N. Lygeros, I. Pitault, M. Basin, 14ème Congrès de la SFGP, Lyon, France, 8-10/10/2013, Récents Progrès en Génie des Procédés, Numéro 104 – 2013, ISSN: 1775-335X ; ISBN: 978-2-910239-78-7, Ed. SFGP, Paris, France

[5] Fixed Bed Multitube Reactor, Miezi Sugiyama, Yoshimasa Ando, Yoshiyuki Taniguchi, (2009) US Patent US 7,588,739 B2

[6] Dynamic modeling and simulations of the behavior of a fixed-bed reactor-exchanger used for CO₂ methanation, R. Try, A. Bengaouer, P. Baurens, C Jallut, AIChE Journal, 64 (2) (2018) 468-480

[7] Port-Hamiltonian Systems on Graphs, A. J. van der Schaft and B. M. Maschke, SIAM J. Control Optim., 51(2), 906–937.

[8] Port-based modelling of mass transport phenomena, A. Baaiu, F. Couenne, D. Eberard, C. Jallut, L. Lefevre, Y. Legorrec, B. Maschke, Mathematical and Computer Modelling of Dynamical Systems, Taylor & Francis, 2009, 15, 233-254