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 :

Mme FERDAOUS DORAI

le jeudi 15 janvier 2015

Titre :

ETUDE NUMERIQUE DES CHARGEMENTS, DE L'HYDRODYNAMIQUE DANS DES REACTEURS PILOTES A LITS FIXES

Ecole doctorale :

Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :

Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (I.M.F.T.)

Directeur(s) de Thèse :

M. ERIC CLIMENT

M. MANUEL MARCOUX

Rapporteurs :

M. ABDERRAZAK LATIFI, UNIVERSITE DE LORRAINE

M. JEAN-YVES DELENNE, UNIVERSITE MONTPELLIER 2

Membre(s) du jury :

M. HENRI BERTIN, UNIVERSITE BORDEAUX 1, Président

M. ANTHONY WACHS, INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE - SOLAIZE, Membre

M. ERIC CLIMENT, INP TOULOUSE, Membre

M. MANUEL MARCOUX, INP TOULOUSE, Membre

M. MATTHIEU ROLLAND, INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE (IFP), Membre

M. REGIS PHILIPPE, LGPC CNRS-CPE, Membre

Ce n'est pas parce que les choses sont difficiles que nous n'osons pas,
c'est parce que nous n'osons pas qu'elles sont difficiles.
Sénèque

Remerciements

Je tiens tout d'abord, à remercier les Professeurs Jean-Yves DELENNE et Abderrazak LATIFI, rapporteurs de ma thèse, pour le temps qu'ils ont consacré à la lecture de mon manuscrit. Je remercie également le Professeur Henri BERTIN d'avoir accepté de présider mon jury ainsi que le Professeur Faiçal LARACHI et le Docteur Régis PHILIPPE d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Je remercie Dominique HUMEAU et Herve CAUFFRIEZ de m'avoir accueillie au sein de la direction Expérimentation Procédés et du département Intensification de l'Expérimentation. Un grand merci pour leur amabilité, la confiance qu'il m'ont donnée pour effectuer ce travail qui m'a permis de vivre cette expérience très enrichissante au sein d'IFP Energies Nouvelles.

J'adresse ma gratitude à mes directeurs de thèse Eric CLIMENT et Manuel MARCOUX qui, malgré la distance, ont été toujours disponibles pour discuter, échanger sur les différentes parties de ce travail ou pour répondre à mes questions. J'ai beaucoup apprécié nos échanges, et profité de vos remarques pertinentes et connaissances en mécanique des fluides et en milieux poreux.

Je tiens à manifester mes sincères remerciements à mes encadrants à IFP Energies Nouvelles : Matthieu ROLLAND et Anthony WACHS pour leur implication, leur suivi et pour avoir veillé sur la qualité scientifique de ce travail. J'ai beaucoup appris de leurs conseils constructifs et de leur rigueur scientifique. J'espère que ce travail est à la hauteur de leurs attentes.

Je voudrais remercier toute l'équipe PELIGRIFF et tout spécialement Abdelkader HAMMOUTI pour son aide à la fin de ma thèse dans la partie réactive. Je remercie aussi Carlos de Moura Teixeira pour sa contribution à quelques simulations de validation dans la partie hydrodynamqiue. J'adresse mes remerciements à tous les collègues de R15 ou d'autres directions pour leur amitié et leurs encouragements, surtout : Vania, Isabelle, Mélanie, Alberto, Sylvie, Catherine, Ronald et Jean-Luc. Je ne pourrai oublier de remercier les assistantes R15 mais tout particulièrement Annie.

Je remercie tous les thésards (les anciens et les plus récents) et les stagiaires dont la présence a donné un autre goût à ces trois années de thèse ; leur soutien et leur bonne humeur m'étaient d'une grande aide. Merci pour tous les bons moments (...) partagés ensemble. Je pense surtout à : Rim, Maité, Mahdi, Yoldes, Sofia, Bruno, Claudio, Maria, Haifa, Alban, Mathieu, Rami, Lionel, Max, Adrien, Charles, Camille G., Camille M., Lilia, Caroline, Nadia, Florine ... Un

remerciement spécial pour mes chers amis : Dhouha, Datis et Dhiraj ; vous êtes dans trois continents différents mais vous étiez toujours là pour moi et m'avez toujours encouragée.

Enfin, j'adresse mes plus affectueux remerciements à toute ma famille, mais spécialement à mes très chers parents. Je sais que les mots sont incapables d'exprimer ma reconnaissance et mon amour pour eux , mais je les remercie pour leur précieux soutien et leurs encouragements permanents pendant ces longues années d'étude. Vous avez eu toujours confiance en moi et m'avez toujours épaulée, j'ai beaucoup de chance de vous avoir à mes côtés.

Résumé

Une étape clé du développement de nouveaux catalyseurs est l'évaluation de leurs performances. Les tests de catalyseurs sont généralement opérés dans des unités pilotes de "petite" taille dont les avantages sont une consommation moindre de réactif et un coût d'opération plus réduit. Les réacteurs d'unité pilote ont des diamètres de l'ordre de 3 à 10 fois la taille des catalyseurs qui sont généralement des sphères ou des cylindres dont la dimension typique est 2 à 3 mm. Des données expérimentales ont mis en évidence des difficultés de répétabilité des résultats sur certains réacteurs très courts. L'objectif de ce travail est de comprendre le lien entre la micro-structure de l'empilement, qui est aléatoire et localement hétérogène, l'hydrodynamique locale et la réactivité dans des réacteurs à lit fixe de petite taille, en vue de définir des critères de conception et des méthodologies de chargement permettant d'obtenir des performances chimiques répétables. La démarche retenue est purement numérique basée sur deux codes développés à IFPEN : Grains3D pour générer numériquement l'empilement et PeliGRIFF pour simuler l'écoulement réactif dans le lit fixe. Une analyse de l'état de l'art sur le sujet donne des informations abondantes sur les lits de particules sphériques, et très peu sur les cylindres, en particulier sur les couplages écoulements et transfert/réaction. En effet, ces travaux ne permettent pas de lier les performances réactives à la structure locale hétérogène de ces empilements.

Dans ce travail, la caractérisation globale et locale d'empilements de sphères et de cylindres a permis de confirmer et compléter la littérature sur certains points : porosité au centre décrite de façon approximative par les corrélations, porosité axiale, orientations des cylindres... Des variations sont présentes à l'intérieur des lits de petite taille, variations qui ne s'atténuent pas avec l'augmentation du volume d'étude et qui sont équivalentes d'un chargement à l'autre. L'étude de l'hydrodynamique dans des lits de sphères et de cylindres mono- et polydisperses a également permis de quantifier l'effet de la répétition du chargement sur la perte de pression et les champs de vitesse. Les premiers résultats d'écoulement réactif ont montré que, qualitativement, le champ de concentration dans la particule réactive est sensible à l'écoulement en présence d'une limitation interne au transfert de matière. Ces résultats préliminaires ont permis de définir une méthodologie de travail qui pourra servir pour continuer l'étude.

Mots clés Réacteur à lit fixe, structure locale, chargement, répétabilité, écoulement, performances réactives.

Title

Numerical Study of Packing and Hydrodynamics in Fixed Bed Pilot Reactors

Abstract

The evaluation of catalyst performances is needed for their development. Catalytic tests are generally operated in pilot units of "small" size. Their advantages are : the reduction of reactant consumption and the reduction of operating costs. The pilot plant reactors have diameters of about 3 to 10 times the size of the catalyst (mainly spheres and cylinders) and the results obtained should be representative of the same performance of the catalysts in industrial units whose characteristic scale is around 5 meters. Experimental data have shown unacceptable repeatability in some small size reactors. The objective of this work is to understand the link between the local micro-structure of the packed bed, which is random and locally heterogeneous, local hydrodynamics and chemical responses in fixed bed reactors of small size. This study aims to define design criteria, and packing methodologies in order to obtain repeatable results. The approach adopted for this work is essentially based on numerical simulations. Two IFPEN codes are used for this study: Grains3D which is used to generate numerically the packed bed, and PeliGRIFF to simulate the reactive flow within the reactor. Previous works give information on packing, hydrodynamics and reactive flow characterization, mostly on spheres, much less is available on cylinders. However, they do not link local structure to reactive performance of the bed.

In our work, geometrical characterization of the randomly packed beds of spheres and cylinders confirm and complete literature on several points: porosity at the centre of the reactor for which the correlations are inaccurate, the effect of bed height on the axial bed porosity, cylinder orientations... Some variations are present within small size beds, variations that are not dampened with an increase of averaging volume, and are similar from one packing to another.

Hydrodynamics study carried out in packed beds of spheres and cylinders of different sizes allowed to link the packing local structure to pressure drop and velocity field. Only preliminary simulations have been performed on reactive flow. First qualitative results show an evolution of the concentration field inside pellets with flow in case of internal mass

transfer limitations. Continuing these preliminary results will yield to the definition of a methodology that can be used to link local structure to reactive performance in randomly fixed packed bed reactors of small size.

Keywords Fixed bed reactor, local structure, packing, repeatability, fluid flow, reactive performance.

Résumé - Abstract

TABLE DES MATIÈRES

Remerciements **3**

Résumé **5**

Nomenclature **13**

1 Introduction générale **19**

Contexte : test de catalyseur hétérogène 19
Réacteurs à lit fixe 20
Réduction d'échelle des unités pilotes 21
Quelques résultats sur le lien entre répétabilité d'empilement et performance apparente 22
Objectif et structure de la thèse 23

2 État de l'art **27**

2.1 Caractérisation des empilements 27
2.1.1 Porosité globale moyenne 28
2.1.2 Porosité radiale 36
2.2 Empilements numériques 40
2.2.1 Méthodes de constructions des empilements numériques 40
2.2.2 Représentativité des empilements numériques 42
2.2.3 Conclusion sur la caractérisation des empilements 43
2.3 Caractérisation de l'écoulement 44
2.3.1 Méthodes de mesure des champs de vitesse 44
2.3.2 Calcul numérique 45
2.3.3 Les limites du calcul numérique 47
2.3.4 Perte de pression 48
2.3.5 Champs de vitesse 54
2.3.6 Conclusions 56
2.4 Calcul de transfert / réaction 56
2.5 Conclusions et aspects manquants 59

3 Méthodologie 63
3.1 Intérêt d'une démarche numérique 63
3.2 Les outils numériques retenus 64
3.2.1 Grains3D : Génération de l'empilement 65
3.2.2 PeliGRIFF : Calcul hydrodynamique et de transfert / réaction 67
3.3 Caractérisation de l'empilement 70
3.3.1 Porosité axiale en réacteur cylindrique 70
3.3.2 Porosité radiale 70
3.3.3 Tortuosité 71
3.3.4 Orientation des cylindres 75
3.4 Etude hydrodynamique 76
3.5 Calcul réactif 76
3.6 Conclusion du chapitre 77

4 Empilements de particules 79
4.1 Introduction 79
4.2 Analyse des empilements de billes 79
4.2.1 Liste des empilements étudiés 79
4.2.2 Empilement semi-infini 84
4.2.3 Porosité axiale d'empilements avec paroi 85
4.2.4 Porosité moyenne 95
4.2.5 Porosité radiale 96
4.2.6 Synthèse sur les empilements de sphères avec et sans parois 107
4.3 Caractérisation géométrique des empilements de cylindres 108
4.3.1 Liste des empilements simulés 108
4.3.2 Etude de la porosité axiale 113
4.3.3 Porosité moyenne 115
4.3.4 Orientations des cylindres 117
4.3.5 Porosité radiale 120
4.3.6 Synthèse sur les empilements de cylindres 121
4.4 Conclusions sur la caractérisation des empilements 122

5 Étude de l'hydrodynamique 125
5.1 Introduction 125
5.2 Validation de PeliGRIFF et sensibilité au maillage 125
5.2.1 Empilement infini de sphères 126
5.2.2 Empilement structuré semi infini de sphères 132

5.2.3 Sensibilité au maillage pour un empilement structuré infini de cylindres 133
5.2.4 Conclusions concernant la sensibilité au maillage 135
5.3 Description des géométries utilisées pour les calculs hydrodynamiques 135
5.4 Analyse qualitative des champs de vitesse 139
5.4.1 Vitesses élevées 139
5.4.2 Faibles vitesses ascensionnelles 141
5.4.3 Vitesses ascensionnelles négatives 142
5.5 Analyse de la perte de pression 144
5.5.1 Effet des zones d'entrée/sortie sur la perte de pression 144
5.5.2 Perte de pression dans des lits monodisperses 145
5.5.3 Prédiction de la perte de charge en empilements polydisperses 151
5.5.4 Synthèse sur l'étude de la perte de pression 155
5.6 Analyse quantitative des champs de vitesse 156
5.6.1 Notion de distribution de vitesse et méthodologie d'analyse 156
5.6.2 Résultats généraux 158
5.6.3 Distribution de vitesse dans les empilements réguliers 160
5.6.4 Distribution de vitesse dans les empilements aléatoires 163
5.6.5 FDP des vitesses transversales 181
5.6.6 Comparaison entre empilement aléatoire et structuré 183
5.6.7 Synthèse sur les empilements aléatoires bipériodiques de billes 184
5.6.8 Distribution de vitesses dans les empilements bipériodiques de cylindres 185
5.6.9 Analyse des distributions de vitesse pour des empilements de billes avec parois 188
5.6.10 Synthèse sur l'analyse des distributions des vitesses 195
5.7 Résultats préliminaires de l'écoulement réactif 196
5.7.1 Physique et équations 196
5.7.2 Mise en œuvre dans PeliGRIFF 197
5.7.3 Premiers résultats avec écoulement réactif autour d'une particule 198
5.7.4 Conclusion pour l'étude qualitative de l'écoulement réactif en mono-particule 203
5.8 Conclusion du chapitre 203

6 Conclusion et Perspectives 209

Références bibliographiques 215

7 Annexe A. Calcul de contact dans Grains3D 225

8 Annexe B. Relations entre les paramètres de contact..... 229

9 Annexe C. Effet de la variation des coefficients de rigidité normal k_n et de restitution e_n sur la porosité moyenne et radiale..... 233

10 Annexe D. Fully-resolved simulations of the flow through a packed bed of cylinders : effect of size distribution (Paper accepted in *'Chemical Engineering Science'*) 236

Nomenclature

Acronymes

CS	Cubique simple
CC	Cubique centré
CFC	Cubique à faces centrées
FDP	Fonction densité de probabilité
VVH	Vitesse volumique horaire
VER	Volume élémentaire représentatif

Lettres latines

a	Arête du cube	[m]
a_S	Aire spécifique liquide/solide	[m^2/m^3 liquide]
C	Concentration	[mol/m^3]
C_L	Concentration au cœur du liquide	[mol/m^3]
C_S	Concentration à l'interface du solide	[mol/m^3]
c	Compacité	[-]
D	Diamètre du réacteur	[m]
D_{app}	Diffusion apparente	[m^2/s]
D_{eq}	Diamètre équivalent	[m]
D_{fluide}	Diffusion dans le fluide	[m^2/s]
D_m	Diffusion moléculaire	[m^2/s]
D_{solide}	Diffusion dans le solide	[m^2/s]

d	Diamètre de la particule	[m]
$d_{équivalent}$, d_{es}	Diamètre équivalent à une sphère de même volume	[m]
e	Epaisseur de couche/du sous-domaine dans le lit	[m]
F	Force de trainée	[N]
F^*	Force de trainée adimensionnée	[-]
H	Hauteur du lit	[m]
H_1	Hauteur fixe dans le lit (hauteur de départ)	[m]
H_2	Hauteur variable dans le lit	[m]
K	Coefficient de trainée	[-]
K_P	Perméabilité	[m^2]
k	Constante cinétique de réaction	[s^{-1}]
$k_{L/S}$	Coefficient de transfert de matière liquide/solide	[m/s]
L	Longueur	[m]
l_p	Longueur de la particule cylindrique	[m]
N	Nombre de particules	[-]
n	Nombre de sous-domaines du lit	[-]
P	Pression	[Pa]
p_i	Proportion de vitesses de la classe i	[-]
r	Rayon de la particule	[m]
r_a	Rapport d'aspect du cylindre	[-]
S_p	Surface de la particule	[m^2]
U	Vitesse de translation de la particule	[m/s]

$\bar{U}$	Vitesse moyenne	[m/s]
U_{ls}	Vitesse superficielle de liquide	[m/s]
U_x	Vitesse horizontale	[m/s]
U_z	Vitesse verticale	[m/s]
U'_z	Fluctuation de vitesse verticale	[m/s]
$U_{z\text{-}moy}$	Moyenne des vitesses verticales	[m/s]
$U_z(r)$	Position radiale de la vitesse verticale	[m/s]
u	Vitesse sur la particule	[m/s]
V_i	Volume des particules de la classe i	[m^3]
V_p	Volume de la particule	[m^3]
x_i	Compacité adimensionnelle des particules de la classe i	[-]
y_i	Diamètre adimensionnel des particules de la classe i	[-]

Lettres grecques

α	Coefficient d'Ergun	[-]
β	Coefficient d'Ergun	[-]
Γ	Perte de pression adimensionnée à faible vitesse	[-]
ΔH	Différence de hauteurs dans le lit	[m]
Δh	Différence entre deux tailles de mailles	[m]
ΔP	Perte de pression	[Pa]
ΔU	Largeur de classe de vitesse	[m/s]
ε	Porosité globale	[-]

ε_{grain}	Porosité dans le grain	[-]
θ	Position angulaire	[rad]
μ	Viscosité dynamique du fluide	[Pa.s]
ρ	Densité du fluide	[kg/m^3]
σ	Ecart-type	[-]
τ	Tortuosité	[-]
ϕ_p	Sphéricité de la particule	[-]
$\varphi_{L/S}$	Flux de matière liquide/solide	[mol/m^{2}s]
χ_i	Fraction volumique de la classe i	[-]
ψ	Perte de pression adimensionnée à forte vitesse	[-]
ω	Vitesse angulaire de la particule	[rad/s]

Indices

c/cyl	Cylindre
i	Classe de particule
l	Liquide
sd	Solide
s/sph	Sphère
p	Particule
w	Relatif aux parois
x	Position horizontale
z	Position axiale

Nombres adimensionnels

Re	Nombre de Reynolds
Sh	Nombre de Sherwood
Sc	Nombre de Schmidt
Nu	Nombre de Nusselt
Pr	Nombre de Prandtl
Pe	Nombre de Péclet

1 Introduction générale

Contexte : test de catalyseur hétérogène

Une grande partie des procédés de raffinage et de pétrochimie mettent en œuvre des réactions chimiques entre des phases fluides et des catalyseurs solides en réacteur à lit fixe. Ces grains de catalyseurs ont une taille de quelques millimètres et peuvent avoir différentes formes (sphères, cylindres, trilobes…). Le réacteur doit permettre au fluide d'arriver jusqu'à la surface du grain puis de pénétrer dans la porosité du grain où la réaction a lieu.
Le processus de développement de nouveaux catalyseurs nécessite des évaluations de performance des catalyseurs prototypes (en termes de sélectivité, conversion, durabilité, résistance aux polluants, ...). Au début du développement, les catalyseurs passent par une étape de sélection basée sur leur performance. Ces tests sont rapides (durée d'environ un jour) et utilisent une faible quantité de catalyseurs (< 10 ml). La sélection est basée sur une ou deux mesures de performance (ex : désulfuration). L'objectif est d'être très sélectif. La seconde étape est la validation des catalyseurs sélectionnés. Ces tests peuvent durer plusieurs jours voire des semaines. Les résultats obtenus sur la performance de catalyseurs sont alors plus détaillés (composition chimique, propriétés d'usage) et doivent être répétables. Les quantités de catalyseur et de charge à mettre en œuvre sont plus importantes (10 à 50 ml). La troisième étape est l'extrapolation. Les tests sont plus longs (des semaines, voire des mois) et permettent de tester les performances avec des charges variées sur toute la plage éventuelle d'utilisation (température, pression, ...). Les tests ont pour objectifs de réunir les éléments suffisants pour pouvoir dimensionner les unités industrielles et être capable de prédire les performances. Les tests de validation sont fréquemment opérés de manière à pouvoir alimenter la base de données des tests d'extrapolation. Les quantités de catalyseur peuvent atteindre le litre dans certains cas. Tous ces tests sont réalisés dans des conditions proches des unités industrielles : débit (ratio débit / quantité de catalyseur), pression (40-150 bars), température, charge...

L'enjeu est de réaliser ces essais dans des réacteurs permettant l'extrapolation au fonctionnement industriel le plus simplement possible et avec les coûts les plus réduits. Il existe deux mises en œuvre qui sont classiques :

- Le réacteur agité avec panier en mode semi-fermé qui permet de réaliser des tests à la journée et donne une information sur la conversion (sélectivité) en fonction du temps.

- Le réacteur à lit fixe qui permet de réaliser des tests en mode ouvert sur des temps plus longs. Dans ce travail, nous nous sommes focalisés sur le réacteur à lit fixe.

Réacteurs à lit fixe

Un réacteur à lit fixe est formé par un conteneur généralement cylindrique qui contient des particules de catalyseurs immobiles (en général des billes ou des extrudés), ce qui forme le lit catalytique (Figure 1.1). L'espace poral du lit est traversé par une charge fluide (gaz / liquide), qui est le siège de transferts de matière et de chaleur.

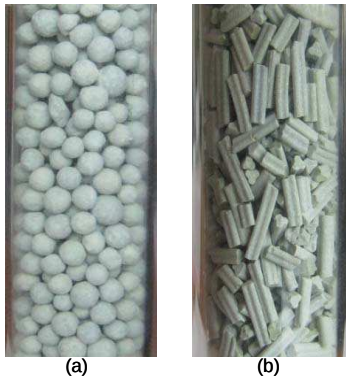


Figure 1.1 : Exemples d'empilements de billes et d'extrudés dans un réacteur cylindrique

Les réacteurs de laboratoire en lit fixe ont l'avantage de donner des résultats généralement extrapolables directement aux unités industrielles en réalisant des tests avec un même temps de séjour chimique (ou son inverse, qui est la vitesse volumique horaire, dite VVH) que dans les réacteurs industriels. Strictement parlant, l'extrapolation directe est valable si l'hydrodynamique et les phénomènes de transfert impactent la réactivité du catalyseur de la même manière quelles que soient les dimensions du réacteur.

En pratique, en raffinage/pétrochimie, les réactions sont généralement lentes et les phénomènes de transport non limitants (sauf dans le cas des hydrogénations sélectives). Un réacteur à lit fixe industriel peut avoir une hauteur de 1.5 à 15 m et un diamètre de 2 à 5 m. Les unités pilotes ont un diamètre qui varie entre 3 et 20 mm et une hauteur entre 40 mm et 200 mm (Tableau 1.1).

Tableau 1.1: Conditions opératoires des réacteurs industriels et des unités pilotes en lit fixe

	Réacteur industriel	Unité pilote en lit fixe
Diamètre du réacteur	2 m - 5 m	3 mm - 20 mm
Hauteur du lit (mm)	1.5 m -15 m	40 mm - 200 mm
VVH (h^{-1})	1 - 30	1 - 30
Vitesse superficielle liquide (mm/s)	1 - 100	0.03 - 3

Réduction d'échelle des unités pilotes

Pour des raisons économiques, la taille des unités pilotes en lit fixe a diminué au fil des années, le volume catalytique étant passé d'un litre de catalyseurs (dans les années 1970) à moins de 10 cm^3 de nos jours (tests de validation), voire 0.5 cm^3 en screening (Figure 1.2).



Volume = 1 à 10 l
(années 70)



16 réacteurs de volume = 0.5 cc
(à partir des années de 2010)

Figure 1.2 : Exemple de réduction de taille des unités pilotes

La réduction des dimensions du réacteur permet de diminuer la quantité de catalyseur prototype à fabriquer et à tester (puis à détruire). L'opération à iso temps de séjour conduit à avoir des débits proportionnels aux volumes catalytiques : la réduction de taille permet une réduction de la quantité de charge consommée. Les charges ex-raffinerie sont assez compliquées à obtenir (problématique de collecte, d'autorisation administrative), aussi sont-elles à économiser. Lorsqu'une charge de référence est épuisée, il faut réaliser les essais de référence sur des catalyseurs connus. Un autre avantage de la réduction d'échelle est de

diminuer l'emprise au sol des unités, ce qui permet d'opérer plus de réacteurs par hall d'essai, voire de mutualiser certains équipements en parallélisant les réacteurs.

La réduction d'échelle conduit à une modification des dimensions des réacteurs alors que la taille des grains de catalyseur reste constante. Trois conséquences de cette réduction d'échelle des unités pilotes sont à noter :

- La première est qu'elle conduit à opérer les unités avec des chargements différents : les taux de vide sont plus importants, le ratio surface de réacteur sur le volume catalytique est plus élevé de sorte que les phénomènes liés à la présence des parois sont plus marqués.

- La deuxième conséquence est que l'opération à iso-temps de séjour mène à des vitesses plus faibles par rapport au cas industriel, et le transfert de matière du fluide à la surface du grain diminue considérablement.

- Enfin comme les débits sont faibles dans les unités pilotes en lits fixes de laboratoire, le problème de la non-uniformité de la répartition du fluide peut créer des passages préférentiels et affecter, ainsi, le transfert de matière liquide/solide. Ce transfert de matière est aussi limité dans le cas des réactions rapides.

Quelques résultats sur le lien entre répétabilité d'empilement et performance apparente

Expérimentalement, IFPEN a observé des variations de performance apparente en répétant les mêmes essais de désulfuration poussée de gazole dans un lit catalytique de 1 cm de diamètre et 4 cm de haut. Les écarts de répétabilité étaient de l'ordre de grandeur des écarts de performance entre catalyseurs de sorte que le classement des catalyseurs n'était pas fiable. Les variations ont pu être réduites d'un facteur 4 en allongeant le réacteur. Ces essais ont mis en évidence que la manière dont les grains s'arrangent dans le réacteur a une influence sur l'activité apparente du réacteur. L'effet du chargement est plus ou moins visible selon le plan de chargement. L'état de l'art actuel ne permet pas de définir des critères de dimensionnement.

Des travaux de simulation numérique (à l'aide du logiciel Comsol®) ont été réalisés à IFPEN pour étudier le lien entre la structure (position/orientation/espacement) du lit et le transfert de matière. Le transfert de matière liquide/solide dans un "petit" lit constitué de 8 cylindres a été simulé pour différentes configurations de cylindres soumis à un écoulement liquide laminaire [1]. Le calcul consiste à réaliser une expérience de "dissolution" numériquement en imposant

une concentration de traceur constante (C = 1) sur la surface des cylindres, le fluide entrant avec une concentration en traceur nulle. Les cylindres ont été disposés verticalement, horizontalement de façon alternée (horizontale et verticale) et complètement aléatoire. Les résultats des simulations ont montré qu'il y a une forte dépendance entre l'arrangement des cylindres et la concentration de sortie : un facteur 5 est observé entre les cas à faible et à forte concentration (Figure 1.3). Un effet de porosité est également mis en évidence.

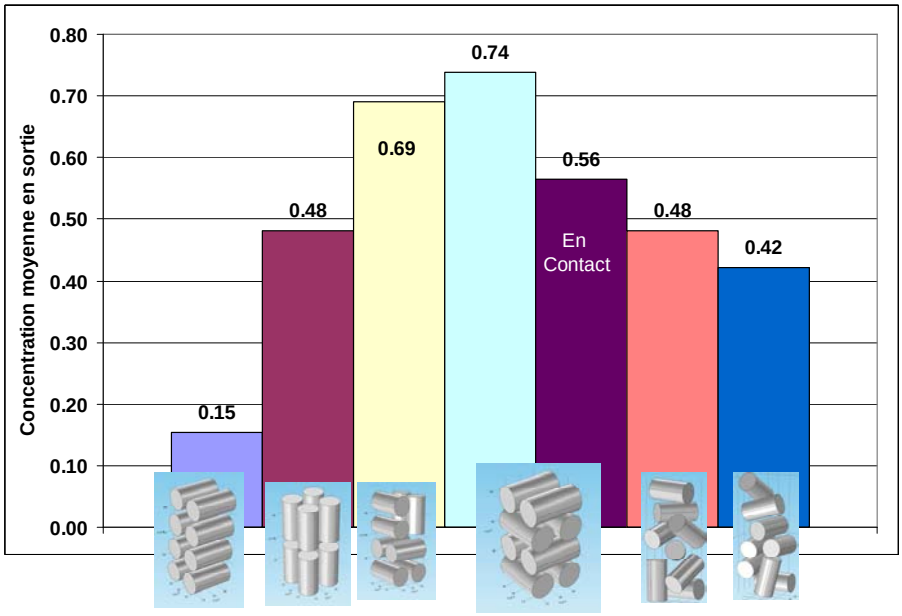


Figure 1.3 : Concentration moyenne à la sortie du lit pour des arrangements différents de cylindres

Objectif et structure de la thèse

L'objectif de ce travail est de comprendre le lien entre la structure de l'empilement, qui est aléatoire et localement hétérogène, l'hydrodynamique et la réactivité dans des réacteurs à lit fixe de petite taille, afin d'obtenir des résultats répétables et optimaux extrapolables à l'échelle industrielle.

Le présent manuscrit est composé de six chapitres. Après le chapitre introductif, le deuxième est dédié à une étude bibliographique focalisée sur quatre points importants pour cette étude. Le premier point concerne la caractérisation géométrique de la structure des empilements dans les travaux antérieurs. Le deuxième point concerne les empilements numériques, une revue des méthodes pour les générer et l'évaluation de leur représentativité, puisque ces empilements vont représenter le siège de tous les phénomènes d'écoulement réactif par la

suite. Le troisième point concerne la caractérisation de l'écoulement à travers ces empilements en termes de champs de vitesse et de perte de pression. Les techniques de mesure expérimentales ainsi que les principales méthodes de calcul numérique des champs de vitesse seront exposées. Une présentation et une discussion sur la corrélation de type Ergun pour le calcul de la perte de pression seront présentées. Le quatrième et dernier point de l'état de l'art sera dédié à la présentation des corrélations de transfert de matière et à une revue des principaux travaux sur le transfert de matière/réaction.

Le troisième chapitre présentera l'intérêt de la démarche numérique adoptée pour ce travail avec une présentation des codes de calculs numériques qui seront utilisés dans cette thèse : Grains3D pour le calcul de l'empilement et PeliGRIFF pour le calcul de l'écoulement et de transfert/réaction. Les grandeurs qui sont choisies à l'issue de l'étude bibliographique pour caractériser géométriquement l'empilement seront données ainsi que la méthodologie d'étude de la partie hydrodynamique et réactive.

Le quatrième chapitre traitera la caractérisation géométrique des lits de billes et de cylindres. Certaines grandeurs choisies pour la caractérisation géométrique sont celles de la littérature mais d'autres seront inédites et complèteront la littérature existante. Une étude locale de la structure des empilements ainsi qu'une étude de l'effet de la répétition du chargement seront effectuées et la variabilité locale de la structure sera quantifiée.

Le cinquième chapitre concernera la caractérisation de l'hydrodynamique. La validation du code PeliGRIFF sera effectuée à travers une comparaison à des solutions analytique ou numérique et en utilisant des systèmes simples avec une seule particule en condition tripériodique. Ensuite une étude à l'échelle de la particule de lits aléatoires de billes et de cylindres sera effectuée en termes de perte de pression et de champs de vitesse. Des calculs de répétition du chargement seront effectués pour quantifier l'effet de la variabilité locale du chargement aléatoire sur l'hydrodynamique. A la fin de ce chapitre une exploration préliminaire qualitative des capacités de PeliGRIFF à traiter les problèmes d'écoulement réactif sera présentée. Des systèmes avec une particule unique sphérique et cylindrique seront étudiés, avec une variation des coefficients de diffusion, des vitesses d'écoulement et de réaction, et une visualisation des champs de concentration autour de la particule. Cette étude préliminaire permettra de déterminer une méthodologie de travail pour effectuer le lien entre structure aléatoire et performances réactives dans les lits fixes de petite taille.

Enfin le dernier chapitre présentera la conclusion de ce travail avec les principaux résultats trouvés et les perspectives envisageables.

2 État de l’art

Dans la première partie de l’état de l'art, nous nous intéresserons aux grandeurs qui caractérisent les empilements de particules solides dans la littérature à savoir essentiellement la porosité moyenne et la porosité radiale moyennée sur toute la hauteur du lit . La deuxième partie de l'état de l'art résumera les connaissances sur les "empilements numériques" : les méthodes pour les générer, ainsi que leur représentativité. La troisième partie concerne la caractérisation de l'écoulement dans un réacteur catalytique monophasique du point de vue des pertes de pression et des champs de vitesse. Enfin, la dernière partie passera en revue les principaux travaux existants sur la simulation d'écoulement réactif à travers des empilements de particules.

2.1 Caractérisation des empilements

Il y a deux types d’approche pour caractériser géométriquement un empilement (sans écoulement) : soit le considérer comme une sorte de "boite noire" caractérisée par des grandeurs effectives (porosité, perméabilité, dispersion, coefficients de transfert...), soit considérer les non-homogénéités locales du milieu poreux et le traiter avec toutes ses ‘complexités’ et ses détails structuraux. Un empilement de particules peut être réalisé soit expérimentalement, soit numériquement.

Les études les plus courantes dans la littérature portent sur des empilements de sphères monodisperses [2–5], polydisperses [6,7] et sur des cylindres monodisperses [8]. Les empilements sont réalisés dans des tubes cylindriques ou des tubes annulaires [9] pour représenter par exemple la présence d'un thermocouple au centre du réacteur.

2.1.1 Porosité globale moyenne

2.1.1.1 Définition et mesure

La porosité ε (moyenne ou globale) d'un milieu poreux, consolidé ou non, est définie comme étant le rapport du volume du vide présent au sein de l'empilement par rapport au volume total du réacteur. Le taux de solide est son complémentaire, généralement appelé compacité c , soit le volume de solide divisé par le volume total du réacteur.

Il existe de nombreuses méthodes de mesure du taux de vide. Une manière de le mesurer est l'immersion dans un liquide. Si les solides ne sont pas poreux le volume de vide correspond au volume de liquide qui a occupé les pores. La mesure de la porosité moyenne pour un empilement peut aussi être effectuée par la mesure de la hauteur de l'empilement et le nombre de particules introduites. Connaissant le volume des particules et les dimensions du réacteur, le volume du vide peut alors être déduit. Une autre méthode est la tomographie 3D suivie d'un traitement d'images. Cette technique [10,11] consiste à exposer l'échantillon à une source de rayonnement (X ou gamma). Ces rayonnements sont atténués différemment selon les matériaux traversés. Pour chaque angle de rotation, une projection de l'objet est obtenue. Des algorithmes mathématiques permettent le traitement de ces images projetées puis la reconstruction de l'objet 3D. La tomographie (par rayons X) permet une résolution de l'ordre de quelques micromètres [10] (Figure 2.1).

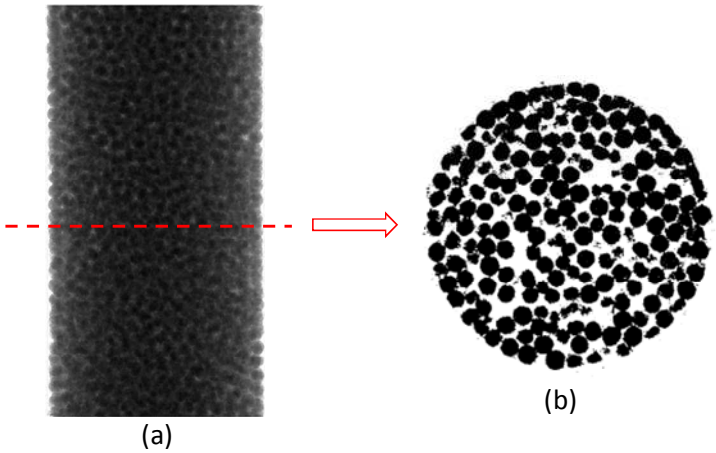


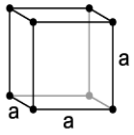
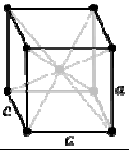
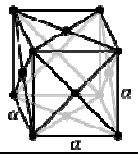
Figure 2.1 : (a) Image de microtomographie aux rayons X d'un empilement de sphères monodisperses (d= 0.326 mm) dans un tube de diamètre = 5mm et (b) coupe transversale de l'empilement après reconstruction et binarisation (en noir : particules, blanc : vide)[10]

Lorsque l'empilement est numérique, la porosité peut être obtenue de manière analogue à la méthode de la hauteur ou à celle utilisée en tomographie 3D.

Toutes les méthodes de mesure de la porosité moyenne présentées ci-dessus sont des 'méthodes statiques' qui sont applicables sans aucun écoulement de fluide dans le réacteur.

Toutes les caractéristiques des lits, dont la porosité, dépendent de l'agencement des billes qui peuvent être empilées de façon structurée ou aléatoire. L'empilement structuré est composé d'une juxtaposition de plusieurs mailles élémentaires qui se reproduisent. Pour les structures cubiques régulières de sphères, on peut citer le cubique simple (CS), le cubique centré (CC) et cubique face centré (CFC), les agencement et les porosités sont donnés dans le Tableau 2.1.

Tableau 2.1 : Structures cubiques régulières

Empilement	CS	CC	CFC
Structure de la maille			
Porosité	0.48	0.32	0.26

Leva et Grummer [2] ont mesuré les hauteurs des lits pour calculer leurs porosités moyennes. Ils ont empilé des particules de formes variées (bille, cylindre ...), avec différents tailles et matériaux dans des cylindres de différents diamètres, avec ou sans tassement. Ils ont conclu que la porosité moyenne dépend essentiellement :

- du mode de chargement: dense ("*dense"*) ou peu dense ("*loose"*) ;
- du rapport d'aspect *D /d* : rapport du diamètre du réacteur cylindrique *D* sur celui des particules empilées *d* ;
- de la forme des particules ;
- de l'état de surface des particules (rugosité du matériau).

2.1.1.2 Effet tassement : modes de chargement 'loose' et 'dense'

La porosité moyenne dépend grandement du mode de chargement. Par exemple, Klerk [5] a proposé une classification pour des sphères monodisperses dans des réacteurs ayant de grands ratios de diamètres (*D/d*), les méthodes pour obtenir ces chargements ainsi que les gammes de porosité moyenne correspondantes (Tableau 2.2). Selon le protocole de chargement, la porosité varie entre 0.369 et 0.44.

Tableau 2.2 : Différents modes de chargement et porosités correspondantes

Densité de chargement	Obtention du chargement	Porosité ε
très peu dense - 'very loose'	défluidisation progressive du lit fluidisé ou sédimentation	$\varepsilon \approx 0.44$
peu dense - 'loose'	chute des particules l'une après l'autre	$0.4 \leq \varepsilon \leq 0.41$
moyennement dense - 'poured'	versement d'une quantité de particules	$0.375 \leq \varepsilon \leq 0.391$
dense - 'dense'	remplissage et vibration du lit	$0.369 \leq \varepsilon \leq 0.375$

Le seul chargement assurément répétable étant le 'dense', il est recommandé dans la littérature.

2.1.1.3 Effet du ratio *D/d*

La Figure 2.2 présente la porosité moyenne d'empilements de sphères monodisperses pour différents rapports de diamètres *D/d* avec un mode de chargement peu dense ("loose") mesurée par [2,5]. Les ratios *D/d* utilisés par Klerk varient entre 1.7 et 19.3 et ceux de Leva entre 2 et 17 environ. Le rapport d'aspect *D/d* est généralement pris comme critère de dimensionnement dans la littérature (revue de Mederos [12]).

Quand le ratio diamètre du réacteur sur diamètre de particules diminue, la porosité augmente. A partir d'un ratio *D/d* entre 8 et 12, la porosité n'évolue plus, ce qui permet de définir un réacteur de "grand diamètre" et un chargement compact. La présence de paroi (pour les faibles rapports de diamètre) empêche d'atteindre l'empilement compact. La comparaison des données des deux auteurs indique des écarts parfois marqués à faible ratio *D/d*. Ceci peut être expliqué par les hauteurs de lits qui ne sont pas renseignées, par une définition différente du chargement 'loose', ce qui peut engendrer une structure locale différente.

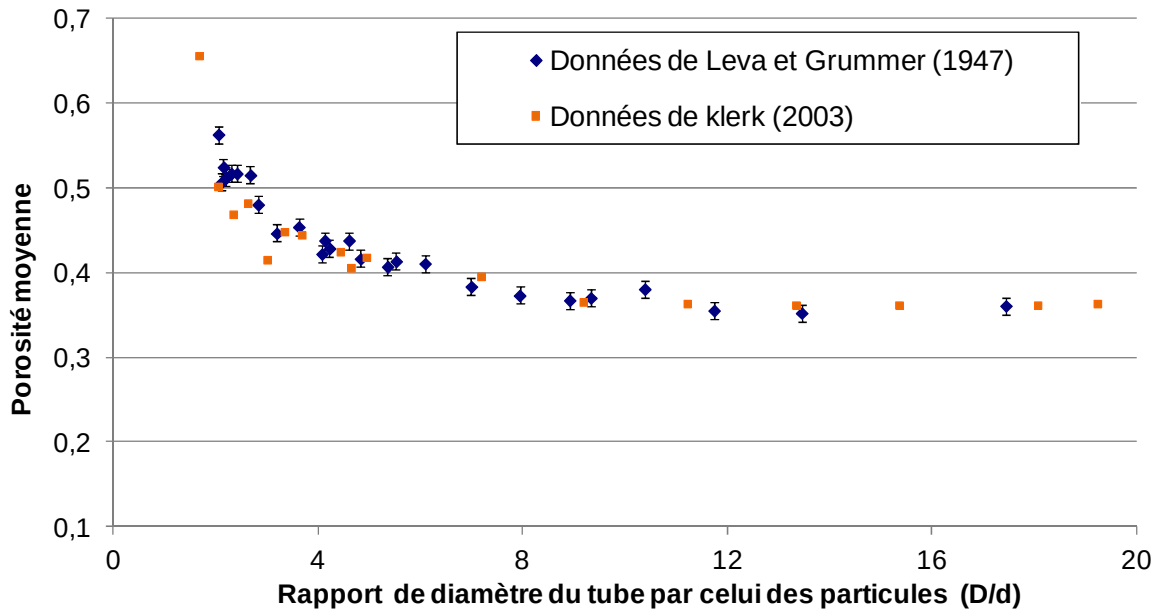


Figure 2.2 : Résultats expérimentaux de la variation de la porosité moyenne dans un lit de sphères monodisperses avec un chargement "loose" [2,5]

Zou et Yu [13,14] ont expérimentalement quantifié l'effet de parois sur la porosité moyenne pour des empilements de sphères et de cylindres, et ont développé un modèle pour des empilements de cylindres.

Ils ont considéré des ratios de diamètre *D/d* supérieurs à 3 et des rapports d'aspect élevés (longueur/diamètre du cylindre = l_p/d allant jusqu'à 16). Ils ont trouvé que l'effet de parois sur la porosité est lié au rapport d'aspect et ce pour les modes de chargement 'loose' (Figure 2.3) et 'dense' (non présenté ici). Ce rapport d'aspect traduit le degré d'anisotropie de la particule, donc sa 'facilité' à s'empiler dans le lit. Quand il augmente, l'écart entre les courbes de la porosité en fonction de *D/d* devient plus important (comparer les courbes ayant l_p/d = 2 et 4 avec l_p/d = 2 et 16 dans la Figure 2.3)

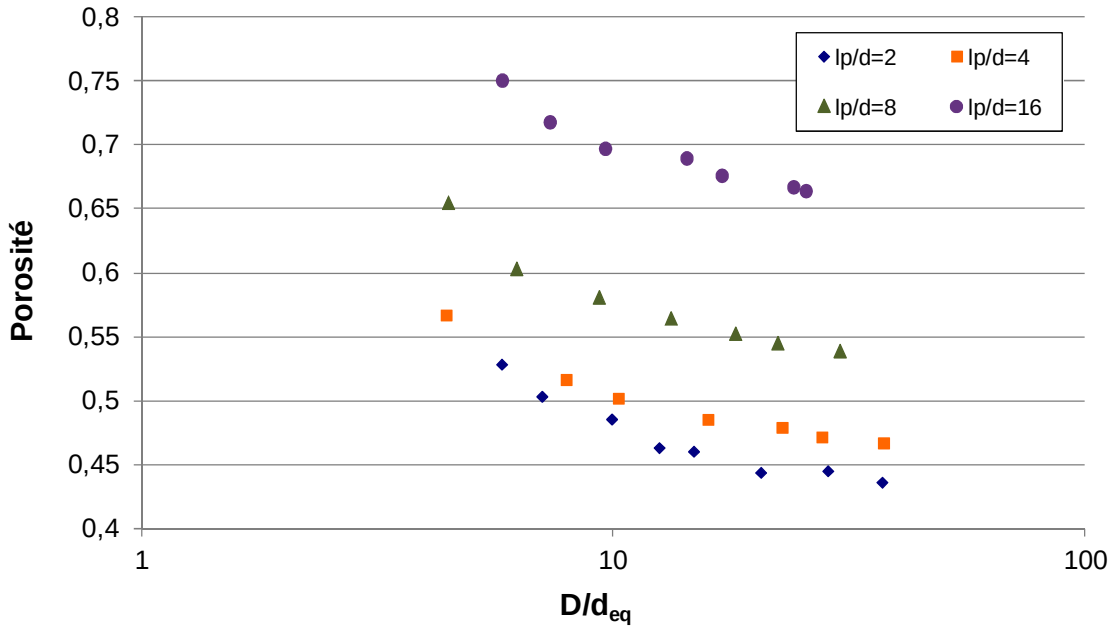


Figure 2.3 : Effet des parois sur la porosité moyenne pour un chargement' loose' de cylindres [14]

Des prédictions de la porosité globale dans des lits aléatoires de billes monodisperses en fonction du rapport *D/d* ont aussi été proposées.

Dixon 1988 [15] propose une corrélation empirique de forme polynomiale de l'expression de la porosité globale en fonction du ratio *D/d.* La porosité globale dans le cas limite (*D/d* grand) est égale à 0.4.

$$\varepsilon = 0.4 + 0.05\frac{d}{D} + 0.412\left(\frac{d}{D}\right)^2$$ ***Équation 2.1***

Klerk [5] propose une relation de forme exponentielle décroissante (Équation 2.2) avec des coefficients issus de l'ajustement des données expérimentales de Carman [16] (écart maximal relatif par rapport aux données de Carman = 2%).

Équation 2.2

$$\varepsilon = \varepsilon_b + 0.35\exp\left(-0.39\,D/d\right)$$

ε_b est la porosité moyenne du lit en absence de parois.

Klerk, mentionne que son modèle (Équation 2.2) n'est valable que pour les particules monodisperses, avec des ratios $D/d > 2$, et qu'il est très sensible à la valeur de ε_b, qui dépend du mode de chargement et l'état de surface des particules (rugueuse / lisse), sans pour autant exprimer cette dépendance par une relation.

Zou et Yu [13] proposent des relations en fonction du mode de chargement : dense (Équation 2.3) et peu dense (Équation 2.4) dans le cas d'empilements de sphères. Les corrélations découpent le domaine d/D en 3 parties :

- réacteur large, $d/D < 0.25$, forme exponentielle décroissante
- réacteur intermédiaire, forme polynomiale d'ordre 2 avec un terme négatif
- réacteur étroit, $d/D > 0.53$, formule complexe.

$$\varepsilon = \begin{cases} 0.372 + 0.002\left(\exp\left(15.306\dfrac{d}{D}\right) - 1\right), d/D \le 0.253 \\ 0.681 - 1.363\dfrac{d}{D} + 2.241\left(\dfrac{d}{D}\right)^2, 0.253 < d/D \le 0.530 \\ 1 - \dfrac{2}{3} \times \dfrac{(d/D)^3}{\sqrt{2(d/D) - 1}}, 0.530 < d/D \end{cases} \qquad \textit{Équation 2.3}$$

$$\varepsilon = \begin{cases} 0.4 + 0.01\left(\exp\left(10.686\dfrac{d}{D} - 1\right) - 1\right), d/D \le 0.256 \\ 0.846 - 1.898\dfrac{d}{D} + 2.725\left(\dfrac{d}{D}\right)^2, 0.256 < d/D \le 0.538 \\ 1 - \dfrac{2}{3} \times \dfrac{(d/D)^3}{\sqrt{2(d/D) - 1}}, 0.538 < d/D \end{cases} \qquad \textit{Équation 2.4}$$

La disparité des résultats expérimentaux et la variété des formes de corrélation indiquent que l'effet du ratio D/d n'est pas bien compris.

2.1.1.4 Effet de la hauteur

Zou et Yu [13], en plus des effets des parois latérales sur la porosité moyenne, ont étudié expérimentalement l'effet de la hauteur du lit (qu'ils ont appelée "*thickness effect*") sur la porosité moyenne. Zou et Yu ont constaté que pour un ratio *D/d* relativement grand (74/3 = 24.6), la porosité dépend fortement du rapport *H/d* (Figure 2.4). A faible ratio *H/d* (< 100), la porosité décroit très rapidement avec *H/d*, puis se stabilise. Pour ce ratio de *D/d* de 74/3, une mesure de porosité avec une précision de 0.01 sur la porosité nécessite une hauteur minimale de l'ordre de 200 diamètres de particule.

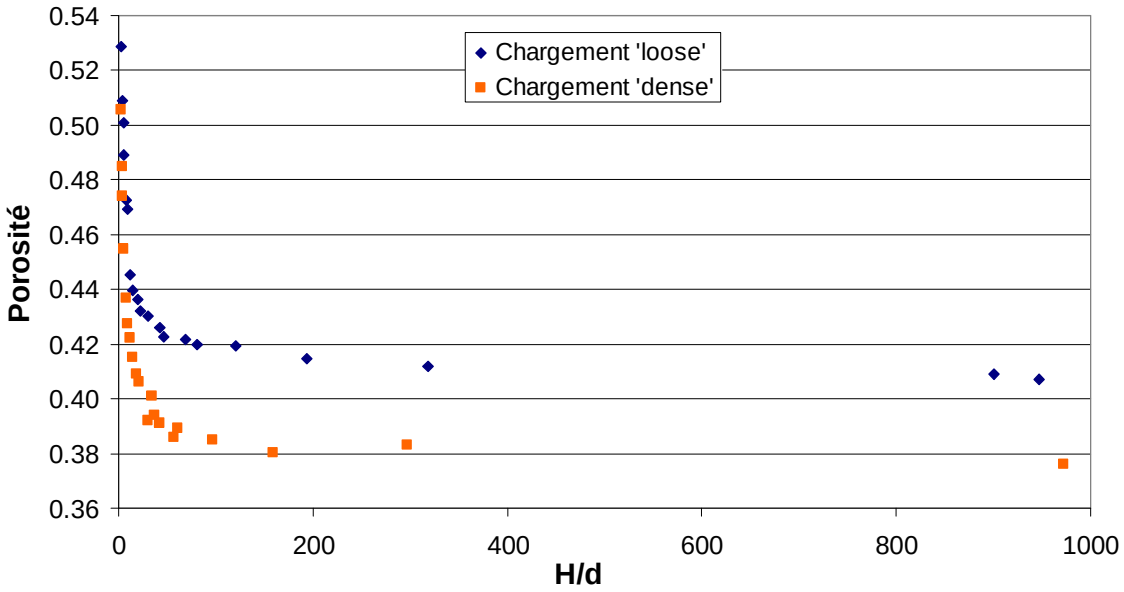


Figure 2.4 : Effet de la hauteur du lit pour un rapport d'aspect D/d=74/3 [13]

L'effet du ratio *H/d* sur la porosité dépend peu du ratio *D/d* (Figure 2.5) pour *D/d* > 10 : l'écart de porosité entre une hauteur « infinie » et un ratio *H/d* de 5 est de l'ordre 0.03, ce qui correspond à l'écart entre un chargement dense et peu dense (voir Tableau 2.2). Pour des valeurs de *D/d* plus faibles, l'écart peut être plus important (jusqu'à 0.07).

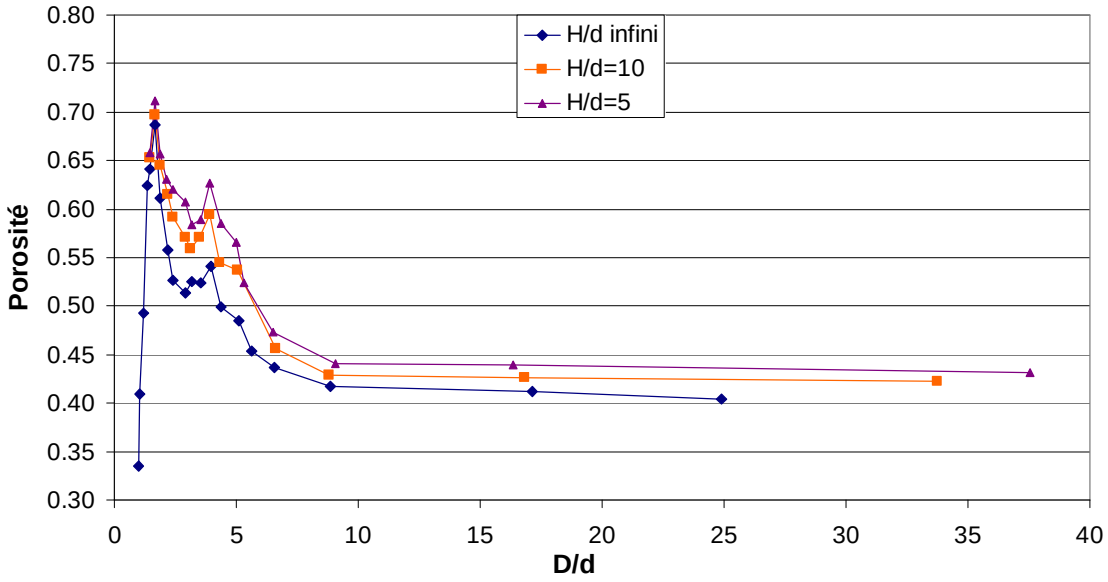


Figure 2.5 : Variation de la porosité moyenne pour un mode de chargement "loose" à différents rapports d'aspects D/d et hauteurs du lit [13]

L'effet de l'épaisseur du lit sur la porosité est donc important mais a été souvent négligé dans la littérature où les hauteurs de lit ne sont pas toujours renseignées.

2.1.1.5 Effet de répétabilité

Leva [2] et Klerk [5] ont réalisé des chargements tassés et non tassés qu'ils ont répétés. L'écart moyen entre répétitions pour les données de Leva est de l'ordre de +/- 0.01 et celui relatif aux données de Klerk est de l'ordre de 0.002. Les hauteurs de lits ne sont pas renseignées dans le cas de Klerk et Leva. En outre, les ratios des diamètres *D/d* utilisés sont proches : entre 1.7 et 19.3 pour Klerk et entre 2 et 17 environ pour Leva. Donc, ces deux paramètres (hauteurs de lits et ratio *D/d*) ne permettent pas de donner une explication sure sur le fait que les effets de répétabilité soient plus importants pour le cas de Leva.

Nous proposons que cette différence entre répétabilités soit liée aux méthodes de mesure de la porosité adoptées par les deux auteurs. La méthode de mesure de Klerk est basée sur une détermination du volume des billes, à partir de mesures précises de leurs masses et densités. La densité des particules a été mesurée expérimentalement, et leur masse par pesée à l'aide d'une balance électronique. Le volume des particules peut donc être déduit. Le volume de l'espace poral est la différence entre le volume du réacteur rempli de billes et celui des particules déjà déterminé. En revanche, Leva s'est contenté de mesurer la hauteur de chaque

lit après chargement pour déterminer le volume du solide, et il n'a pas mesuré le vrai volume des particules. Connaissant la quantité des particules insérées, la porosité peut être évaluée.

2.1.1.6 Conclusion sur la porosité moyenne

La porosité moyenne dans un lit fixe a été amplement étudiée dans la littérature. C'est la grandeur la plus 'évidente' à déterminer pour caractériser un lit. Néanmoins, les travaux de la littérature portent sur les empilements de sphères, rarement sur les cylindres, et uniquement dans le cas monodisperse. Les hauteurs de lit sont souvent non renseignées alors que c'est une donnée qui influence la porosité si $H/d < 200$.

L'étude des répétitions des chargements n'indique pas une grande variabilité de la porosité moyenne, celle-ci reste assez faible (0.01 environ).

2.1.2 Porosité radiale

2.1.2.1 Définition et Mesure

La porosité radiale mesure les variations de porosité en fonction du rayon du réacteur. C'est une porosité locale calculée dans un volume élémentaire compris entre deux cylindres de rayon r et r + dr sur une hauteur donnée (Figure 2.6).

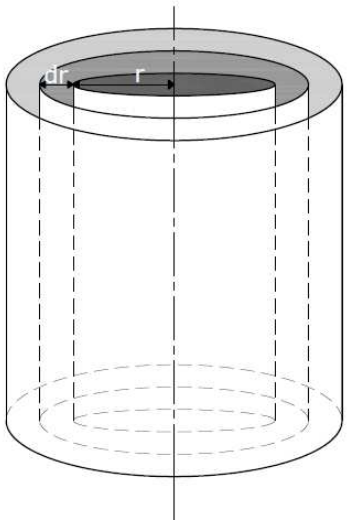


Figure 2.6 : Calcul de la porosité radiale dans des cylindres concentriques

La méthode de mesure expérimentale consiste à mettre en rotation rapide un lit fixe contenu dans un cylindre et à injecter un volume de liquide connu. L'axe de rotation est celui du cylindre de sorte que le liquide est centrifugé en paroi de réacteur. Une mesure de la quantité de liquide sortant en fonction du volume injecté, par exemple par tomographie, permet de déduire le profil de porosité en fonction du rayon. Küfner et Hofmann [17] ont utilisé la polymérisation de résine dans l'empilement pour effectuer des images de coupe transversale de la colonne de particules qu'ils ont ensuite analysées. La mesure de la porosité radiale est donc une mesure moyenne sur une hauteur, souvent non renseignée dans les publications.

Plus récemment, des techniques de tomographie et de reconstruction ont permis d'obtenir une image tridimensionnelle du lit fixe. Un calcul mathématique exact de la porosité radiale peut également être fait en se basant sur les positions des particules obtenues lors des simulations numériques d'empilements.

2.1.2.2 Principales tendances et effet de parois

Les études ont été réalisées avec des empilements de matériaux, formes et tailles différents [3,5,8,17–22] : sphères, cylindres, cylindres creux, anneaux. Mais il apparait très clairement que les travaux les plus nombreux se sont concentrés sur les sphères monodisperses.

Les résultats sont généralement présentés en fonction de la distance à la paroi normalisée par le diamètre (ou diamètre équivalent) de la particule (Figure 2.7). Cette présentation permet d'avoir la paroi du tube à l'origine de l'axe des x. Les caractéristiques principales des courbes de porosité radiale sont :

- La porosité radiale est maximale près des parois ;
- En s'éloignant des parois, la forme de la courbe de porosité radiale est oscillatoire amortie, de période un diamètre de particule ;
- Le premier minimum correspond à un rayon de particule ;
- Pour des grands lits, la porosité radiale tend vers la porosité moyenne du lit après 5 à 10 diamètres de particules.

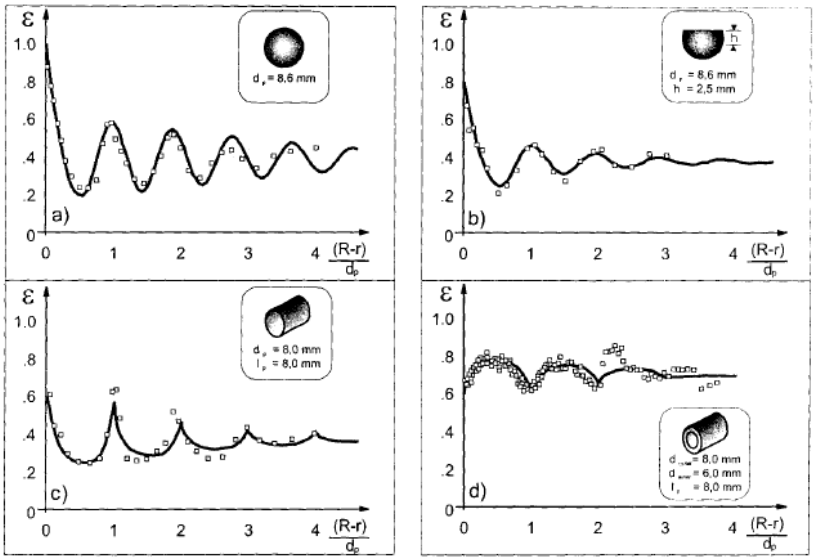


Figure 2.7 : Profils de porosité radiale mesurés (points) et calculés (ligne) [8]

Pour les faibles rapports d'aspect *D/d* (4 < *D/d* < 8), le profil de la porosité radiale est plus variable notamment à une distance < 2*d* de la paroi. Ces variations sont souvent appelées « effet de paroi ». Ces oscillations de porosité ont une conséquence sur les écoulements : la vitesse près des parois est fortement liée à cette variation de la porosité [23]. Tous les phénomènes de transferts (masse/chaleur) seront aussi influencés par cette variation.

2.1.2.3 Corrélations de porosité radiale

Sur la base de ces mesures, plusieurs corrélations semi-empiriques ont été proposées pour décrire la variation de la porosité radiale. Elles sont en général des fonctions exponentielles / sinusoïdales donnant une variation décroissante de la courbe. Selon l'expression mathématique de la corrélation, Wang [24] classe ces modèles de porosité radiale en deux catégories : corrélations de type oscillatoire qui est une combinaison d'une fonction exponentielle et sinusoïdale [3,5,21,25] et corrélations de type exponentiel décroissantes uniquement [26,27]).

Un exemple de ces corrélations est celle proposée par Klerk [5] (Équation 2.5 et Équation 2.6) avec des coefficients issus d'ajustement de plusieurs données expérimentales :

$$\varepsilon(r) = 2.14z^2 - 2.53z + 1 \text{ pour } z \le 0.637 \qquad \textit{Équation 2.5}$$

$$\varepsilon(r) = \varepsilon_b + 0.29\exp(0.6z)(\cos(2.3\pi(z-0.16))) + 0.15\exp(0.9z) \quad \text{pour } z > 0.637$$

Équation 2.6

Avec : $z = (R-r)/d$

Bien que ces corrélations permettent de bien décrire le comportement de la porosité en proche paroi (porosité maximale près des parois et qui décroit progressivement en allant vers le centre), certaines ne sont pas en mesure de bien représenter le comportement de l'empilement au centre notamment pour les rapports $D/d < 10$, comme par exemple Suzuki [10] qui, pour $D/d = 9.1$, a trouvé que sa corrélation prévoit une porosité au centre moins élevée que celle mesurée. Eppinger [28] signale aussi des différences au centre du lit, en comparant avec la corrélation de Klerk (Équation 2.6), pour des ratios D/d compris entre 4 et 10. Ce point reste à préciser.

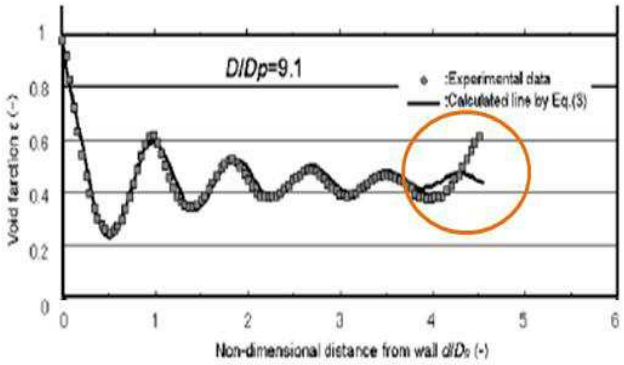


Figure 2.8 : Comparaison des profils de porosité radiale mesurés par tomographie et calculés par la corrélation de Suzuki [10]

2.1.2.4 Conclusion sur la porosité radiale

La porosité radiale est une grandeur qui prend en compte les hétérogénéités de la structure locale induite par les parois. Elle a été amplement utilisée dans la littérature pour caractériser un lit ou valider des calculs. Les travaux examinés pour étudier la porosité radiale concernent surtout les sphères monodisperses, quelques-uns s'intéressent aux empilements de cylindres sans pour autant traiter la polydispersité. L'étude de l'effet de la structure aléatoire, via la répétition du chargement, n'a pas été évoquée. Et, à notre connaissance, aucune publication ne s'est intéressée à la détermination du volume minimal de réacteur qui stabilise le profil radial

de porosité. Ces aspects manquants seront traités par la suite dans le chapitre 'étude des empilements'.

2.2 Empilements numériques

2.2.1 Méthodes de constructions des empilements numériques

Les empilements numériques constituent une alternative séduisante aux expérimentations. Les résultats du calcul sont la position de toutes les particules, ce qui permet par calcul d'accéder à toute information souhaitée, locale ou moyennée.

Deux familles de méthodes de réalisation d'empilements ont été identifiées dans les travaux existants :

- Une famille de méthodes qui produit un empilement par des considérations géométriques sans prendre en compte la dynamique du solide et les hétérogénéités générées lors du remplissage à cause des chocs et des rebonds,
- Les méthodes mécaniques, dont la plus populaire est la méthode des éléments discrets (DEM), qui vise à modéliser le processus d'empilement en résolvant les équations instationnaires de la dynamique du solide.

Les méthodes géométriques consistent à partir d'une configuration initiale aléatoire ou régulière, puis à déplacer les particules de manière à obtenir une solution satisfaisant des critères à priori.

Une première famille de méthode consiste à minimiser le recouvrement et la distance entre objets, généralement des sphères [29] [30] [31]. Une autre approche géométrique est proposée par l'équipe de Freund et al. [32–35] ; elle est basée sur l'algorithme de Soppe [36], et comprend deux étapes: la première consiste à faire chuter des billes initialement à des positions aléatoires verticalement jusqu'au contact avec une autre. La deuxième étape consiste à compacter l'empilement en déplaçant les particules de manière aléatoire, la direction de la gravité étant la plus probable. Les critères de convergence sont d'une part la minimisation de l'énergie potentielle et d'autre part un critère de plausibilité basé sur la stabilité mécanique. Cet algorithme nécessitant un grand nombre de tirages aléatoires, il est qualifié de méthode Monte-Carlo par les auteurs (Figure 2.9).

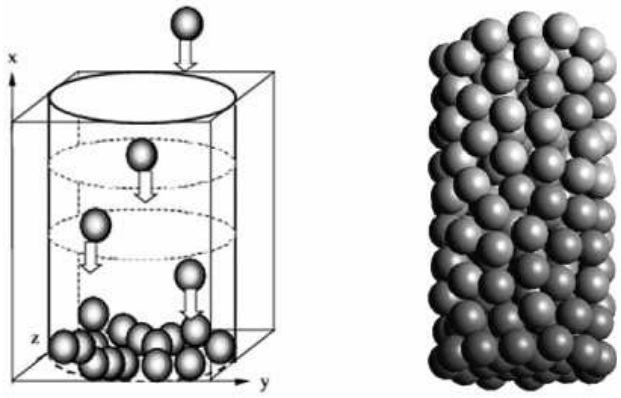


Figure 2.9 Génération d'un empilement aléatoire par la méthode de Freund & al : remplissage du tube (à droite) et état final de l'empilement (à gauche) [33]

La méthode des éléments discrets (DEM) consiste à "charger" numériquement le réacteur en calculant les trajectoires (translation et rotation) de toutes les particules jusqu'à leur immobilisation suite à un grand nombre de chocs inélastiques [28,37–40]. Pour chacune des particules un système de bilan des forces appliquées (entre les particules d'une part et entre la particule et les parois d'autre part) est résolu. Le système de particules atteint l'état final stable quand la vitesse de la particule est nulle. La méthode est basée sur les équations du mouvement de Newton, et traite les collisions entre les particules en mouvement en autorisant un recouvrement minime dans leur contact qui permet de calculer la force de contact. Wachs et al. [39] ont utilisé le code Grains3D basé sur la méthode des éléments discrets pour générer des empilements numériques mono et polydisperses de particules convexes. Le calcul des forces de contact ainsi que les caractéristiques de ce contact sont présentés dans l'annexe A (cf. § 7), d'après [39].

Quelques exemples d'empilements numériques sont présentés dans la Figure 2.10 ci-dessous.

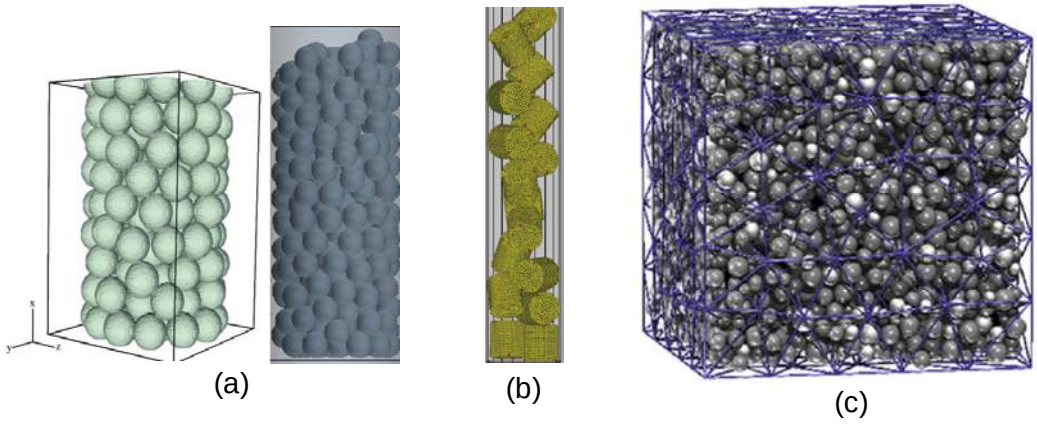


Figure 2.10 : Empilements numériques pour des particules (a) sphériques [41] + [38] ***(b) cylindriques*** [38] ***(c) sphériques polydisperses*** [40]

2.2.2 Représentativité des empilements numériques

La représentativité des empilements numériques reste une question importante, notamment pour les méthodes géométriques. La méthode de validation des empilements numériques se base sur l'état final de l'empilement, avec une comparaison avec des données expérimentales ou parfois les corrélations, en termes de porosité moyenne et profil de porosité radiale. Par exemple Zeiser et al. ont validé leurs calculs d'empilement par la méthode de Monte-Carlo par la comparaison avec les données expérimentales de porosité radiale de Benenati et Brosilow [18]. Ils ont retrouvé une bonne concordance aussi bien qualitativement que quantitativement. Eppinger et al. [28] ont validé leurs calculs d'empilement en termes de porosité moyenne et radiale. La porosité moyenne a été comparée par rapport à la corrélation de Dixon (Équation 2.1) avec un écart maximal entre les données des simulations et celles issues de la corrélation égal à 0.0025 (Figure 2.11). Les profils de porosité radiale ont été comparés avec la corrélation définie par Klerk [5] (Équation 2.6) (Figure 2.12). Une bonne adéquation entre les résultats numériques et la corrélation a été retrouvée pour différents ratios *D/d*, sauf au centre, comme mentionné ci-dessus (Figure 2.12).

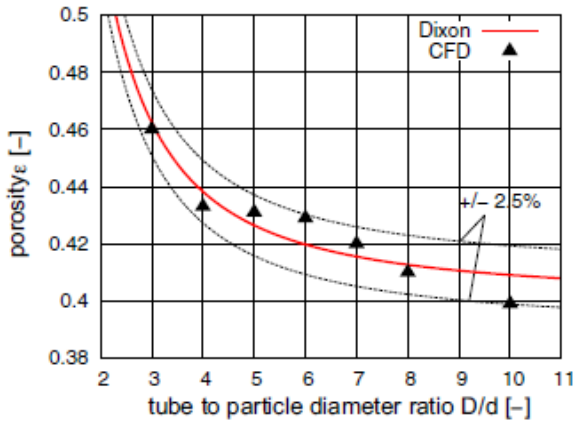


Figure 2.11 : Porosité globale du lit pour différents ratios D/d

Dans tous ces calculs, la « validation » est basée sur une comparaison avec des valeurs moyennées (porosité axiale, radiale), au risque de masquer des écarts.

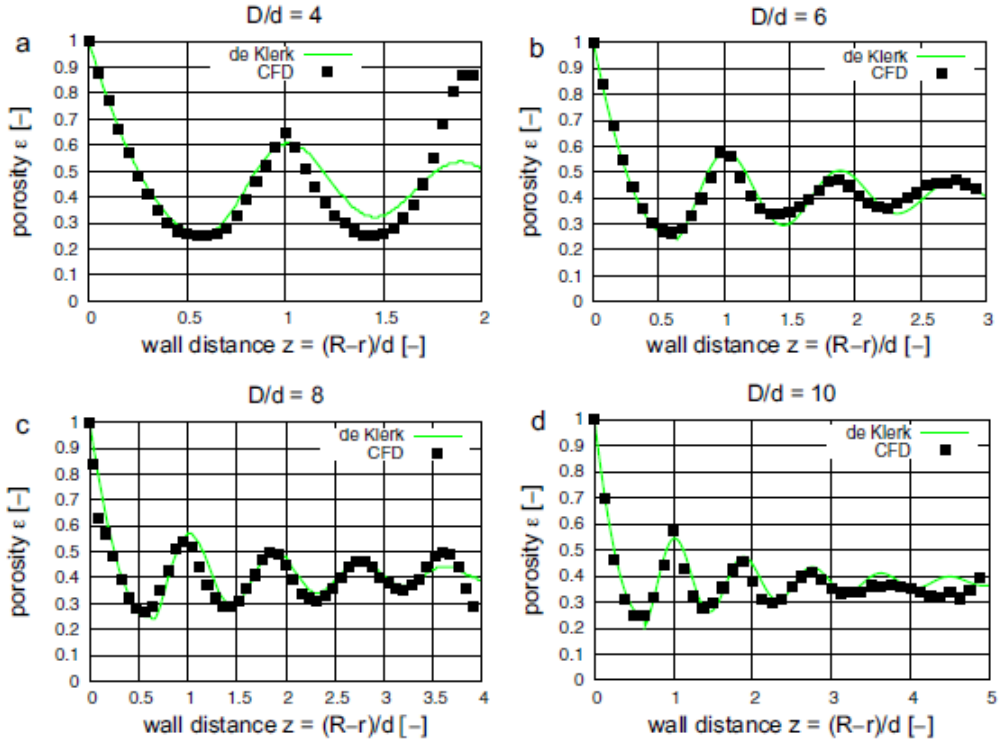


Figure 2.12 Comparaison des données des profils radiaux de porosité calculés à partir des simulations de DEM appelé CFD sur la figure [28] ***et des corrélations de Klerk 2003***[5]

Des méthodes d'analyse sophistiquées ont été aussi proposées. Lochamnn et al. [7] ont publié une étude du nombre de coordination (nombre de contact) et de la fonction 'densité de probabilité de paires'. Jerier et al. [40] ont également calculé des courbes de densité moyennée en fonction du diamètre de la sphère. Dans les deux cas, les analyses portent sur des empilements numériques sans comparaison avec des résultats expérimentaux et ne peuvent donc être considérées comme des données de validation.

Le consensus semble être qu'actuellement, en matière de structure géométrique, les empilements de particules calculés numériquement quelles que soient les méthodes sont suffisamment représentatifs de la réalité.

2.2.3 Conclusion sur la caractérisation des empilements

Il existe deux façons de construire un lit de particules : expérimentale ou numérique. Pour la littérature examinée, la représentativité de ces empilements n'est pas liée à la méthode de leur construction.

Dans les travaux publiés, l'analyse géométrique d'un empilement se fait par caractérisation globale, en calculant la porosité moyenne (grandeur macroscopique ou globale) ou la porosité radiale (grandeur semi-globale qui considère partiellement les hétérogénéités structurales du lit). Il y a de nombreux travaux concernant les empilements de sphères monodisperses et très peu concernant des sphères polydisperses. Peu de travaux pour des empilements de cylindres ont été trouvés, avec absence totale d'études sur l'effet de la polydispersité et de l'orientation. L'effet de la répétition du chargement n'a été étudié que dans le cadre de la porosité moyenne.
Il n'existe pas de travaux sur l'évolution de la porosité selon l'axe vertical (porosité axiale), ni de recherche de volume élémentaire qui soit inférieur à celui du lit complet, et qui stabilise les profils de porosité. Ces aspects seront traités dans le chapitre 'étude des empilements'.

2.3 Caractérisation de l'écoulement

Dans cette partie nous nous intéressons à la caractérisation de l'écoulement avec deux objectifs : caractériser le lit fixe par une mesure (mesure de perméabilité / perte de pression par exemple) et caractériser les aspects locaux des écoulements pour le relier ultérieurement au transport de matière et aux réactions chimiques.

2.3.1 Méthodes de mesure des champs de vitesse

Il existe plusieurs techniques non intrusives qui sont utilisées pour la visualisation et la mesure de l'écoulement à travers un milieu poreux. Une première série de techniques est basée sur un accès optique au fluide, dont une adaptation d'indices de réfraction (du fluide et du solide) ou une observation en proche paroi de réacteur transparent. Il s'agit de la technique LDA [42] (Laser Doppler Anemometry) et de PIV (Particle Image Velocimetry). La PIV [43,44] permet le suivi des particules lors de leur déplacement dans un volume d'une faible épaisseur qui est éclairé par une nappe laser. Le champ de vitesse est déduit du déplacement des particules entre deux impulsions laser à l'aide d'algorithmes de corrélation de textures.
Une autre technique est l'imagerie par résonance magnétique nucléaire (IRM) [45–47][33,48–51] avec des contraintes sur la taille du lit fixe et les matériaux. L'IRM est basée sur l'excitation (résonance) d'atomes d'hydrogène contenus dans le milieu. L'objet est placé dans un champ magnétique uniforme, et un autre champ magnétique variable est appliqué, pendant des intervalles de temps courts. Les atomes reviennent à leur état d'origine progressivement. En fonction de leurs propriétés et de leur voisinage, la réponse des atomes au signal

d'excitation ne sera pas identique. Le signal qui traduit l'évolution du système dans le temps pour revenir à son état d'équilibre est recueilli et utilisé pour en déduire la vitesse du fluide.
Ces deux familles de méthode ont été utilisées au sein d'empilements structurés ou aléatoires de particules.

Toutes ces techniques citées permettent une grande précision dans les mesures pour accéder à une information très détaillée (échelle de mesure varie entre 1 et 300 micromètres pour les mesures de Lebon et al. [45]). Elles mettent en évidence les variations locales de l'écoulement liées à la structure du milieu poreux. En revanche, la majorité des travaux ne dépassent pas le stade du constat ou de la validation des calculs numériques et n'ont pas étudié l'aspect aléatoire dans l'explication des phénomènes, à travers des répétitions de chargement.

2.3.2 Calcul numérique

La simulation numérique permet de calculer les écoulements dans des milieux poreux. Historiquement, la simulation numérique des écoulements s'est surtout développée avec une approche macroscopique sur des milieux continus équivalents qui représentent les milieux hétérogènes à l'échelle inférieure. Les modèles qui décrivent ce milieu continu équivalent sont obtenus par prise de moyenne volumique [52]. Mais après quelque temps, et grâce à l'accessibilité à des moyens de calcul plus conséquents, des modélisations locales (à l'échelle du pore) sont devenues réalisables.

2.3.2.1 Méthodes utilisées pour le calcul numérique à l'échelle du pore (ou du grain)

Les méthodes qui utilisent la mécanique des fluides numérique pour représenter le mouvement du fluide à travers une structure poreuse plus ou moins compliquée peuvent être divisée en trois catégories : les méthodes basées sur la résolution des équations dans une géométrie simplifiée du système étudié obtenue à partir d'un scan 3D de la géométrie (réseau de pores), celles qui utilisent la méthode de Lattice-Boltzmann (LB) et celles basées sur une approche de type volumes finis/éléments finis.
Des auteurs ont opté pour une méthode des réseaux de pores. Le vrai système granulaire est scanné par une technique d'imagerie (comme la microtomographie par exemple [53]). Cette représentation 3D du système étudié est ensuite simplifiée pour extraire un réseau de pores. La partie poreuse est assimilée à un réseau formé par de micro-canaux qui connectent les pores à travers les particules. Les écoulements mono ou polyphasiques avec ou sans réaction

sont alors simulés dans un réseau de tubes monodimensionnels avec diverses hypothèses sur les types d'écoulement : comme par exemple une perte de pression selon une loi de Poiseuille, une perte de pression lors des constrictions, … et sur la géométrie : forme des canaux, avec ou sans pore. L'inconvénient est que les calculs sont réalisés sur une approximation de la géométrie, ce qui limite la précision sur la description des transferts de matière.

La méthode LB, à partir d'une approche probabiliste, décrit le mouvement d'une densité de particules fluide dans un domaine discrétisé. L'équation continue de Boltzmann pour une densité de particules fluide f (x, c, t) ayant une certaine vitesse c à un endroit x et un temps t donnés est donnée par :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + c_i \frac{\partial f}{\partial x_i} + \frac{F_i}{m} \frac{\partial f}{\partial c_i} = \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{collisiosn} \qquad \textit{Équation 2.7}$$

Ces particules peuvent se déplacer ou rentrer en collision (terme de droite dans l'équation qui représente les collisions) dans une maille du réseau appelée 'lattice' (Figure 2.13). Les quantités : densité, quantité de mouvement et énergie cinétique du fluide peuvent être retrouvées en intégrant la fonction f et par un calcul de moments d'ordre 0, 1 et 2 en prenant en compte toutes les vitesses possibles c des particules.

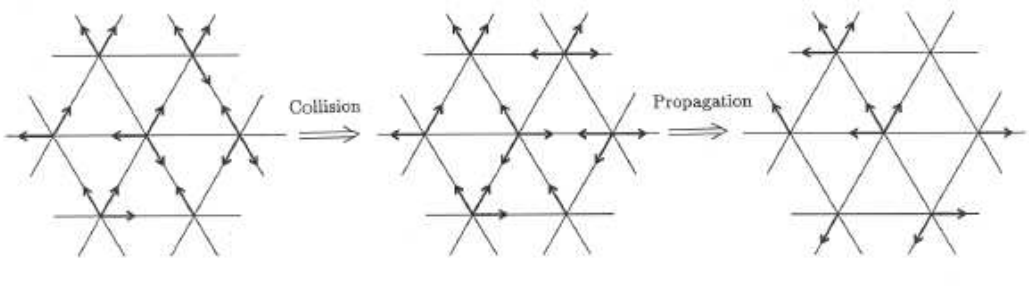


Figure 2.13 : Déplacement/collision de particules dans un Lattice [54]

La troisième famille de méthodes utilise les méthodes de volumes finis/éléments finis. La plupart des codes CFD disponibles rentrent dans le cadre de cette classe de méthodes.
Les équations de conservation sont discrétisées et résolues dans chacun des éléments du maillage du domaine. Le maillage peut être structuré (régulier) ou non, par exemple avec un maillage qui suit la forme des surfaces solides ou une densité d'éléments (nombre d'éléments/unité de volume) variable à cause de leur taille variable. Lorsque le maillage n'épouse pas la forme de l'objet, ces méthodes sont appelées 'méthodes à interfaces immergées' (Immersed Boundary Method), car les particules sont 'immergées' dans un

domaine fluide décrit par une grille cartésienne fixe. Le fluide est décrit selon une approche eulérienne et les particules selon une approche lagrangienne.
Cette approche est utilisée pour étudier les interactions fluide-solide et est avantageuse dans le cas où les particules solides sont en mouvement, pouvant présenter des configurations tridimensionnelles compliquées. Cependant, comme l'interface fluide-solide ne coïncide pas forcément avec les points du maillage cartésien, l'identifier revient à imposer une condition pour forcer le fluide à ces endroits précis. Le plus important et compliqué à la fois, pour les méthodes de type 'interfaces immergées', est d'imposer la bonne condition à la surface des particules pour bien les repérer dans la grille et/ou éviter les problèmes de 'fuite' du fluide à l'intérieur de la particule. Cette méthode sera utilisée dans la suite de notre travail.

2.3.3 Les limites du calcul numérique

La représentativité du résultat est liée à la possibilité de fournir une géométrie représentative suffisamment étendue, de résoudre le problème avec une précision suffisante ce qui nécessite des ressources informatiques importantes (parallélisation) même pour des problèmes d'une dizaine de particules. Par exemple, la simulation d'écoulement dans un lit de particules de diamètre 3 mm correspond à une taille des passages entre particules de l'ordre de 0.3 à 1 mm. Afin de capturer les couches limites, les mailles du domaine doivent être au moins 10 à 20 fois plus petites que la taille du passage, donc de l'ordre de 30 à 50 micromètres. Représenter un lit de 10 cm^3 de volume avec une résolution de 50µm nécessite environ 80 millions de mailles.
Il est actuellement impossible de simuler des écoulements 3D en détail à l'intérieur d'un lit à l'échelle industrielle (de grande taille) avec une résolution adéquate. Les lits fixes de taille laboratoire commencent à être envisageables.

De par la contrainte de la taille du système, le temps de calcul peut aussi être important à cause du temps caractéristique très faible pour certains problèmes, ce qui peut induire des temps physiques de calcul qui sont importants (de quelques semaines à quelques mois) et qui restent assujettis à la puissance actuelle des machines disponibles. Le temps de calcul ne constitue pas un problème critique pour les écoulements stationnaires (ce qui est la majorité des cas de cette étude), mais devient potentiellement critique pour les problèmes instationnaires car ceux-ci nécessitent un temps long pour obtenir des statistiques fiables.
Les pas de temps sont liés aux problématiques de stabilité numérique des schémas. Des critères de stabilité numérique peuvent limiter la taille du pas de temps, et par conséquent le temps de calcul.

Les méthodes utilisant un maillage qui suit la forme des surfaces solides présentent une autre difficulté : le traitement de points de contact entre les particules. Au point de contact, l'espace entre les particules est très étroit et les surfaces des particules sont localement parallèles. Les maillages non structurés conduisent à devoir mailler très finement près des points de contact, voire à devoir déformer les particules soit pour éliminer le contact (réduire le diamètre des particules), soit pour agrandir la zone de contact (agrandir les particules ou ajouter un cylindre près du point de contact). Une telle façon de faire pour s'affranchir de ces problèmes de contact peut ne pas (ou très peu) influencer la précision des calculs [28]. Mais, à notre point de vue, cette méthode nécessite une vérification du degré de sensibilité du calcul à la déformation des particules pour chaque problème étudié. Ceci doit être fait surtout pour les lits aléatoires dont la structure locale est aléatoire car c'est une méthode qui reste non fidèle à la géométrie originelle.

2.3.4 Perte de pression

La perte de pression correspond à l'énergie par unité de volume de fluide requise pour faire circuler le ou les fluides à travers le lit de particules. Cette grandeur est liée à la perméabilité qui caractérise la facilité du milieu poreux à laisser passer le fluide.. Les pertes d'énergie ont plusieurs origines : frottement visqueux, déviation de flux, élargissement et rétrécissement [53], turbulence, forces capillaires en écoulement gaz/liquide, rugosité du solide, ...

Dans notre étude, uniquement l'écoulement monophasique est étudié. Les paramètres qui influencent la perte de pression dans des lits de particules tels que énumérés par Eisfield [23] sont : le nombre de Reynolds particulaire (local), la porosité moyenne, la forme de la particule, la distribution de taille des particules.

2.3.4.1 Dérivation de l'équation de type 'Ergun'

Ici, l'approche expliquée par McCabe et al. [55] pour exprimer la perte de pression dans le lit de particules est présentée. Dans un vrai lit de particules, l'écoulement se fait à travers l'espace poral dans des 'canaux' tortueux de longueur inégale. Exprimer la perte de pression dans ces canaux n'est pas aisé car ils sont difficiles à caractériser. Pour ce faire, il faut 'idéaliser' l'écoulement dans ces canaux tortueux et l'exprimer en fonction de quantités mesurables qui sont la porosité du lit, la vitesse superficielle et le diamètre de la particule.

L'idée consiste donc, à considérer que l'espace poral dans le lit est un ensemble de lignes de courant qui ont la forme de tubes réguliers dont la porosité totale est celle du lit. Un diamètre équivalent de tous ces canaux est donné par :

$$D_{eq} = \frac{2\phi_p d\varepsilon}{3(1-\varepsilon)} \qquad \textit{Équation 2.8}$$

ε est la porosité du lit, d est le diamètre de la particule et ϕ_p est sa sphéricité exprimée par :

$$\phi_p = \frac{6V_p}{dS_p} \qquad \textit{Équation 2.9}$$

V_p et S_p sont le volume et l'aire de la particule.

La vitesse superficielle U_{ls} est liée à la vitesse moyenne $\overline{U}$ dans un tube par :

$$\overline{U} = \frac{U_{ls}}{\varepsilon} \qquad \textit{Équation 2.10}$$

Le régime d'écoulement peut être laminaire ou turbulent dans ces micro-canaux qui forment le lit. Pour le régime laminaire, dans les tubes uniformes, la relation de Hagen-Poiseuille est utilisée :

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{32\overline{U}\mu}{D_{eq}^2} \qquad \textit{Équation 2.11}$$

En introduisant la vitesse superficielle, la porosité, et le diamètre de particule dans l'Équation 2.11, on obtient :

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha \frac{\mu(1-\varepsilon)^2 U_{ls}}{\varepsilon^3 \phi_p^2 d^2} \qquad \textit{Équation 2.12}$$

L'Équation 2.12 a la même forme que les équations de Kozeny-Carman, et de Darcy en milieu poreux qui relie la perte de pression à la vitesse au moyen de la perméabilité intrinsèque du matériau (Équation 2.13). L'Équation 2.12 indique que la perte de pression est proportionnelle à la vitesse et à la viscosité. Elle est applicable pour les faibles nombres de

Reynolds (< 1) et traduit la perte d'énergie volumique par frottement visqueux à l'interface liquide/solide dans les canaux tortueux. La constante α est un coefficient empirique, il est en réalité fonction d'un terme correctif qui prend en compte cette tortuosité [55].

$$U = \frac{K_P \Delta P}{\mu L} \qquad \textit{Équation 2.13}$$

U est la vitesse macroscopique (ou celle de Darcy) à l'échelle du VER, K_P est la perméabilité, μ est la viscosité.

L'équation dite de Kozeny-Carman est un cas particulier de l'Équation 2.12 avec une constante α qui vaut 180. Carman [16] a obtenu cette valeur en ajustant de nombreuses données expérimentales pour des particules de différentes formes. Il est à noter que dans la littérature, le nom de 'l'équation de Kozeny-Carman' est utilisé pour désigner la variation linéaire de la perte de pression en fonction de la vitesse indépendamment de la valeur de la constante.

En présence d'effets inertiels, la perte de pression varie en fonction du carré de la vitesse, en remplaçant l'Équation 2.8 dans celle d'un écoulement turbulent dans un canal, l'Équation 2.14, dite de Bruke-Plummer, est donnée par :

$$\frac{\Delta P}{L} = \beta \frac{\rho(1-\varepsilon)U_{ls}^2}{\varepsilon^3 \phi_s d} \qquad \textit{Équation 2.14}$$

Cette équation traduit l'énergie nécessaire pour changer la direction de l'écoulement, ainsi que l'a montré aussi Larachi [53] récemment, lors de la succession du rétrécissement et de l'élargissement des 'canaux' que le fluide traverse en contournant les particules qui constituent le lit. Le coefficient β est un coefficient empirique lié à un facteur de friction [55].

Pour couvrir les deux régimes d'écoulement, Ergun [56] a exprimé la perte de pression en fonction du terme visqueux qui dépend de la vitesse (Équation 2.12) et du terme inertiel dépendant du carré de la vitesse (Équation 2.14), ce qui constitue l'équation dite d'Ergun (Équation 2.15).

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha \frac{\mu(1-\varepsilon)^2 U_{ls}}{\varepsilon^3 \phi_p^2 d^2} + \beta \frac{\rho(1-\varepsilon)U_{ls}^2}{\varepsilon^3 \phi_p d} \qquad \textit{Équation 2.15}$$

Les coefficients α et β sont respectivement égaux à 150 et 1.75. Ce sont des coefficients empiriques issus d'ajustement de données expérimentales pour des particules sphériques.

Selon le régime d'écoulement, deux formes adimensionnées de la perte de pression existent dans la littérature.

La première correspond aux écoulements à basse vitesse :

$$\Gamma = \frac{\Delta P d^2}{\mu U_{ls} L^2} \qquad \textit{Équation 2.16}$$

La deuxième expression [23] calculée par rapport à l'énergie cinétique, est intéressante pour les fortes vitesses :

$$\psi = \frac{\Delta P d}{\rho U_{ls}^2 L} \qquad \textit{Équation 2.17}$$

2.3.4.2 Discussion sur la loi d'Ergun

La relation d'Ergun [56] exprime la perte de charge pour un lit de particules monodisperses en fonction de paramètres liés à la nature du fluide (densité, viscosité) et aux propriétés géométriques du lit (taille de la particule, porosité).
En outre, il y a une forte dépendance entre la porosité et la perte de pression dans les lits de particules : une petite variation de porosité peut causer une grande variabilité en termes de perte de pression.

L'utilisation de la loi d'Ergun est valable généralement pour la gamme de Reynolds $1 < Re < 300$, où les effets visqueux et inertiels sont comparables [57]. En régime turbulent ($Re > 300$), la loi d'Ergun surestime la perte de pression [57]. En régime visqueux ($Re < 1$), elle sous-estime la perte de pression, d'environ 17% [57,58]. Il est plus adéquat d'utiliser l'équation de Carman dans ce cas.

L'Équation 2.15 est valable pour des lits de particules sphériques. Des travaux ont proposé des modifications des constantes d'Ergun pour obtenir une meilleure précision de la perte de pression dans les cas des particules non sphériques et les systèmes avec parois, comme nous le présenterons dans les paragraphes qui suivent.

2.3.4.3 Prise en compte de l'effet de la forme des particules dans les constantes d'Ergun

La corrélation d'Ergun étant a priori la plus représentative en conditions industrielles, elle a été utilisée comme base pour toute une famille de corrélation de prédiction de perte de

pression dans des lits de particule non sphériques. MacDonald et al. [59] proposent des coefficients empiriques α et β pour des particules de formes non sphériques : α = 180 et β = 1.8 pour les particules lisses, et α = 180 et β = 4 pour celles qui sont rugueuses.

Nemec et Niven [57,60] ont utilisé le diamètre de la sphère équivalent d_{es} et introduit l'expression de la sphéricité ϕ_p de la particule dans l'expression des coefficients empiriques 150 et 1.75 de l'Équation 2.15.

L'Équation 2.15 devient :

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha(\phi_p)\frac{\mu(1-\varepsilon)^2 U_{ls}}{\varepsilon^3 d_{es}^{\ 2}} + \beta(\phi_p)\frac{\rho(1-\varepsilon)U_{ls}^{\ 2}}{\varepsilon^3 d_{es}} \qquad \textit{Équation 2.18}$$

Après un ajustement avec plusieurs données expérimentales, les expressions de α et β en fonction de ϕ_p deviennent :

$$\alpha(\phi_p) = \frac{150}{\phi_p^{3/2}} \qquad \textit{Équation 2.19}$$

$$\beta(\phi_p) = \frac{1.75}{\phi_p^{3/2}} \qquad \textit{Équation 2.20}$$

La sphéricité est définie comme dans l'Équation 2.9.

2.3.4.4 Prise en compte de l'effet de parois dans l'équation d'Ergun

Les corrélations précédentes supposent un milieu poreux infiniment grand. En présence de paroi, par exemple dans les petits réacteurs, la perte de pression est différente et des adaptations ont été proposées. Foumeny et al. [61] ont mentionné que la relation d'Ergun n'est pas valable pour les rapports de diamètres D/d < 10 car les expériences d'Ergun ont été effectuées dans des tubes larges où l'effet de parois est très réduit. Eisfield et Schnitzlein [23] ont réalisé une revue sur le sujet et trouvent que la formulation proposé par Reichelt (1972) est celle qui décrit mieux les expérimentations.

$$\psi = \frac{K_1 \alpha_w^2}{\mathrm{Re}}\frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} + \frac{\alpha_w}{\beta_w}\frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon^3} \qquad \textit{Équation 2.21}$$

ψ est la perte de charge adimensionnée.

Avec les termes correcteurs de l'effet de parois:

$$\alpha_w = 1 + \frac{2}{3(D/d)(1-\varepsilon)} \qquad \textit{Équation 2.22}$$

$$\beta_w = \left[k_1 \left(\frac{d}{D} \right)^2 + k_2 \right]^2 \qquad \textit{Équation 2.23}$$

K_1 , k_1 et k_2 sont des constantes qui dépendent de la forme des particules (Tableau 2.3). Elles ont été ajustées par Eisfield et Schnitzlein [23] pour différentes formes de particules (sphériques ou non) sur la base de plusieurs données expérimentales.

Tableau 2.3 : Valeurs des coefficients ajustés de l'Équation 2.21

Forme de la particule	K_1	k_1	k_2
sphère	154	1.15	0.87
cylindre	190	2	0.77
quelconque	155	1.42	0.83

2.3.4.5 Calculs numériques de perte de pression

Les champs de pression sont un des résultats des calculs CFD. Les données expérimentales ou des corrélations sont utilisées pour valider les résultats [28,35,41,42,62–66], même si parfois, les corrélations utilisées pour valider les calculs ne sont pas les meilleures pour décrire les expérimentations.

Les études de la perte de pression sont surtout des études pour des empilements de particules sphériques, avec très peu d'études en empilements de cylindres ou sur l'effet de la répétition du chargement sur la perte de pression.

Une des rares études sur les cylindres a été réalisé par Baker et al. [66] qui se sont basés sur les images d'IRM d'un empilement de cylindres, pour constuire la géométrie utilisées dans les calculs de CFD. Ils ont trouvé un bon accord avec les mesures expérimentales de perte de pression et celles issues de leur code en volumes finis, et ce en régimes laminaire et turbulent.

La seule étude que nous avons trouvée concernant la répétabilité est celle de Freund et al. [41] qui ont comparé la perte de pression pour un empilement avec un rapport d'aspect D/d = 3, avec la corrélation de Zahvornokov qui tient en compte l'effet de parois. Ils ont constaté que pour deux lits de sphères en écoulement rampant et ayant la même porosité moyenne, l'écart

entre pertes de pression peut monter jusqu'à 4 %, ce qui confirme l'intérêt de répéter les mesures expérimentales, ce qui n'est pas fait souvent. Ceci sera traité dans le chapitre de l'hydrodynamique présenté dans la suite.

2.3.4.6 Remarques liées à la mesure de la perte de pression

Pour les lits fixes de petite taille, la mesure de perte de pression n'est pas aisée. Dans les conditions d'écoulement, elle est très faible, de l'ordre de quelques mbar, pour la zone catalytique et autant pour les zones de particules chargées avant et après le lit (zones de pré-chauffe). Une mesure dans des conditions de débit plus important, probablement hors unité, est envisageable mais couteuse en temps d'opération. En pratique elle n'est pas réalisée car la précision sur la mesure ne permet pas de détecter un problème alors qu'une mesure de hauteur de chargement le permet simplement.

2.3.5 Champs de vitesse

Des simulations des écoulements locaux monophasiques ont été effectuées dans des géométries constituées d'empilements de particules structurés [64,67] et aléatoires [42,68] [28,33,41,69–73]. La majorité des travaux portent sur des empilements de sphères monodisperses et très peu de sphères polydisperses [74] ou de cylindres [75].
Les calculs CFD ont été amplement validés par les mesures expérimentales de champs de vitesse effectuées par les différentes techniques de mesure, comme l'exemple les travaux de Freund et al [33] qui ont démontré une bonne concordance de leurs résultats avec les mesures expérimentales à travers une technique d'imagerie par résonnance magnétique (Figure 2.14).

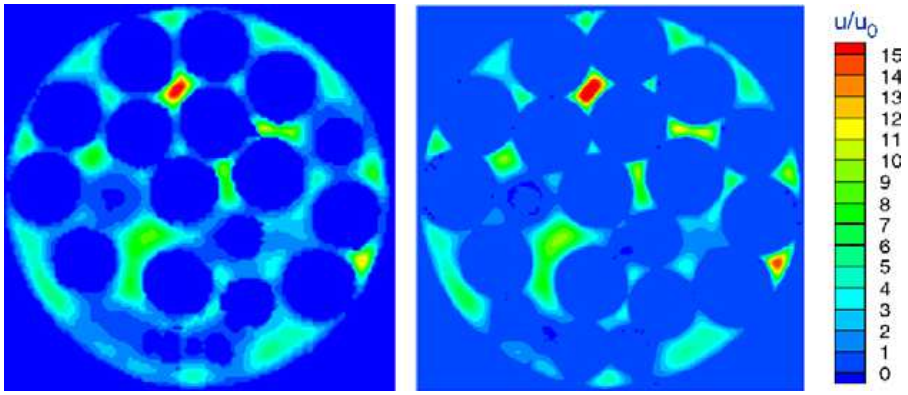


Figure 2.14 Comparaison entre de mesures du champ de vitesse avec la technique IRM (à gauche) et des simulations de Lattice-Boltzmann (à droite) [33]

Les calculs ont également montré leur fiabilité pour une large gamme de nombre de Reynolds [51,76,77]. Ils ont permis d'accéder à une information locale très détaillée, avec une analyse qualitative des champs vitesse. Comme par exemple les travaux d'Eppinger et al. [28] qui ont effectué des calculs d'écoulement dans des lits de sphères monodisperses avec un ratio de diamètres entre 3 et 10 et pour les régimes laminaire, transitoire et turbulent (*Re* = 1, 100 et 1000). La vitesse locale peut être très élevée avec parfois un facteur 12 par rapport à la vitesse d'entrée. Les zones stagnantes et celles de vitesses négatives, sont plus visibles pour *Re* >100, et représentent environ 12% du volume total. Le pourcentage de zones stagnantes et négatives est beaucoup plus faible pour le régime laminaire (autour de 1%).

Plusieurs travaux [8,17,25,78,79] ont partiellement pris en compte l'effet de la structure du lit et les hétérogénéités macroscopiques qui sont représentées par un profil radial de porosité. En utilisant une loi de perte de pression de type Ergun (ou Darcy) avec une porosité locale, il est alors possible de prédire le profil de vitesse d'écoulement moyen avec la position radiale *r* (Figure 2.15). Il est observé que le profil radial de la vitesse verticale ($U_z(r)$) et celui de la porosité sont corrélés et les pics des courbes coïncident (minimum et maximum de vitesse qui coïncident avec les maximum et minimum de porosité) [28,33,65,79–81]. La zone de proche parois présente des vitesses élevées en raison des chemins préférentiels qui se forment à cause de la forte porosité dans ces zones ce qui peut créer des 'canaux fluides' [35]. Les mesures expérimentales confirment assez généralement que ce type de modèle prédit correctement les profils de vitesse. Les modèles semi-locaux tiennent compte de la structure moyenne locale de l'empilement sans pouvoir appréhender les effets aléatoires et sont majoritairement faits pour des empilements de sphères.

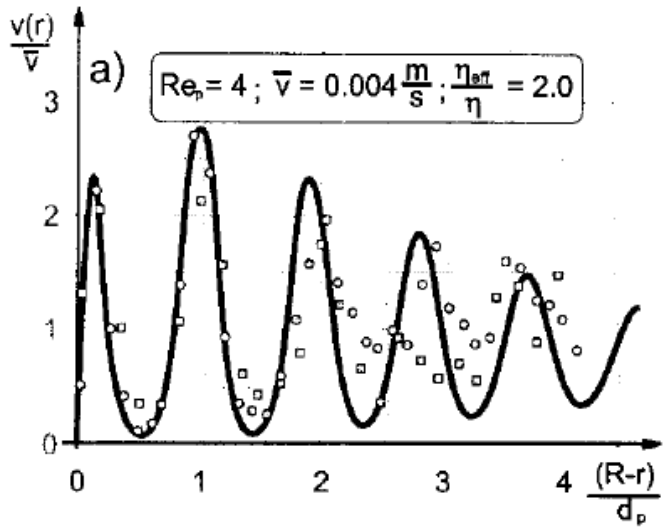


Figure 2.15 : Profil de vitesse radiale pour un lit de sphères-Résultats du modèle (ligne) et résultats expérimentaux (points) [8]

D'autres auteurs ont quantifié l'écoulement du fluide dans un lit de particules en étudiant les fonctions densité de probabilité de la vitesse verticale. Le champ de vitesse est considéré comme une fluctuation d'une variable aléatoire. Les lits étudiés pour en quantifier statistiquement les champs de vitesse sont des lits de sphères monodisperses qui sont structurés (empilements cubique et rombohédrique [64,72]) ou aléatoires ([72]).

2.3.6 Conclusions

Dans cette partie, nous avons mis en évidence les méthodes de caractérisation de lits de particules en termes de champs de vitesses et de perte de pression. Les simulations numériques d'écoulement à travers un lit catalytique montrent un bon niveau de précision par rapport aux données expérimentales. Il apparait également que les calculs sont parfois plus précis que les corrélations de référence.

La plupart des travaux effectués concernent les lits de sphères avec très peu d'études sur les cylindres. Les lits polydisperses de cylindres n'ont pas été étudiés jusqu'ici. Les études numériques concluent fréquemment une conformité avec l'expérimentation en allant rarement plus loin, par exemple en explorant en détail l'importante quantité d'information locale disponible. Une étude souligne des écarts de perte de pression suite à la répétition du chargement. Ces points méritent d'être explorés, ce qui sera traité dans le chapitre hydrodynamique.

2.4 Calcul de transfert / réaction

En génie chimique, le transfert de matière liquide/solide est caractérisé par le coefficient k_{ls} qui met en relation le flux de matière liquide/solide ($\varphi_{L/S}$), d'une part, avec le gradient de concentration et l'aire interfaciale liquide/solide a_s, d'autre part.

$$\varphi_{L/S} = k_{lS} a_S \left(C_L - C_S\right) \qquad \textit{Équation 2.24}$$

C_L et C_S sont les concentrations dans le cœur du liquide et près de la surface du solide respectivement.

Note : le formalisme est le même pour le transfert gaz – solide.

La corrélation la plus utilisée pour prédire le transfert liquide/solide est celle de Ranz-Marshall développée à la base pour une sphère dans un milieu infini puis étendu à un milieu « infini » de plusieurs billes :

$$Sh = 2 + a\,\mathrm{Re}^{b}\,Sc^{c} \qquad \textit{Équation 2.25}$$

avec :

$$Sh = \frac{k_s d}{D_m} \qquad \textit{Équation 2.26}$$

$$\mathrm{Re} = \frac{\rho_L U_{ls} d}{\mu_L} \qquad \textit{Équation 2.27}$$

$$Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D_m} \qquad \textit{Équation 2.28}$$

Sh et *Re* sont les nombres de Sherwood et Reynolds relatifs à la particule et *Sc* le nombre de Schmidt, *a*, *b* et *c* sont des constantes, U_{ls} la vitesse superficielle liquide, *d* le diamètre de la particule, D_m la diffusion moléculaire, μ_L et ρ_L sont la viscosité dynamique et la densité du liquide.

Pour la relation de Ranz Marshall, la valeur de *a* vaut 1.8, celle de *b* =1/2 et *c* = 1/3.

Les mêmes corrélations peuvent être utilisées pour le transfert de chaleur, sous le nom de relation de Kunii et Levenspiel, en remplaçant le nombre de Sherwood (*Sh*) par Nusselt (*Nu*), et le nombre de Schmidt (*Sc*) par Prandtl (*Pr*).

Les calculs numériques de transfert de chaleur et de matière montrent une bonne adéquation avec les mesures [69,71,79,82–86]. Nijemeisland et Dixon [69] ont simulé à l'aide du logiciel commercial Fluent l'écoulement et le transfert de chaleur pour un empilement de 44 sphères avec un petit rapport d'aspect *D/d* = 2 (donc structuré) dans le cas d'un écoulement laminaire et turbulent. Ils ont pu obtenir un très bon accord avec les résultats expérimentaux.

La même équipe [82,85] a ensuite couplé le transfert thermique (chauffage de l'extérieur) et une réaction endothermique de reformage à l'intérieur des grains dans une géométrie de lit régulière avec une symétrie d'ordre 3 (Figure 2.16). Ils ont pu cartographier les champs de température et de concentration, et ils ont noté de forts gradients près des parois et non au

centre. Ils proposent que ces effets de non-uniformité dans la distribution des champs seront plus accentués dans le cas des lits aléatoires.

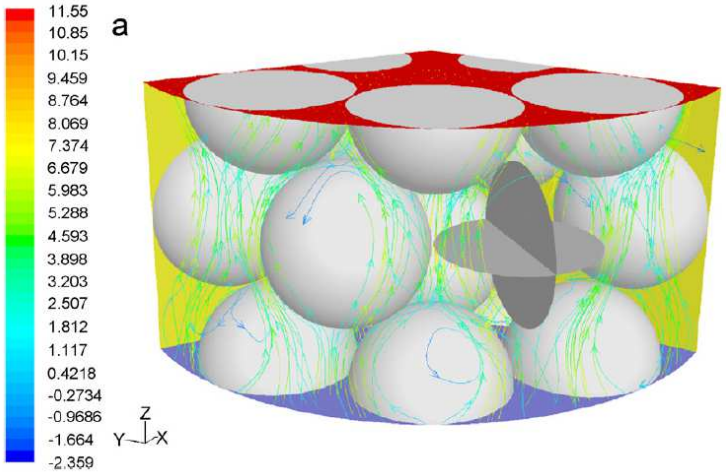


Figure 2.16 : Profils de vitesse simulés par Dixon [85]

Zeiser et al. [87] ont simulé une réaction de surface (type A+B --> C) pour une mono-particule irriguée par un flux instationnaire avec un *Re* = 166. L'effet de la diffusion moléculaire et de la dispersion ont été étudié. Les non uniformités locales de la distribution du fluide autour de la particule influence le transfert de matière donc les champs de concentration dans tout le domaine.

Freund et al. [34] ont aussi simulé une réaction en surface des particules (du type A --> B) dans un empilement de sphères monodisperses de ratio *D/d* = 5 à bas Reynolds (*Re* = 6.5). Des pics de concentration (quasiment égaux à la valeur d'entrée) de l'espèce A sont observés près des parois en corrélation avec les passages préférentiels en proche paroi (Figure 2.17).

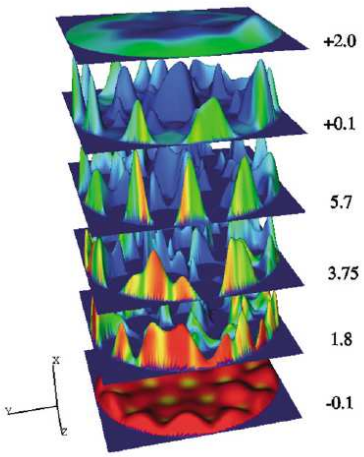


Figure 2.17 : Champs de concentration dans des plans de coupes d'un lit de billes monodisperses (D/d = 5, Re = 6.5) [34]

Les calculs CFD retrouvent bien les corrélations usuelles de transfert de matière [79,88,89], et sont capables de bien mettre en évidence des phénomènes délicats à l'intérieur du réacteur. Néanmoins, il y a peu de travaux sur des empilements de cylindres [90–92], sur l'effet de la polydispersité de l'empilement ainsi que sur celui de la répétition du chargement sur le transfert/la réaction.

2.5 Conclusions et aspects manquants

L'état de l'art a permis d'identifier les principales méthodes de caractérisation des empilements : mesure de porosité moyenne (avec un effet de la hauteur), de la perte de pression et de la porosité radiale et des champs de vitesse. L'effet de répétabilité a été étudié expérimentalement sur la porosité moyenne et observé sur la perte de pression (par CFD). Il n'existe pas de travaux liant ces caractéristiques avec la performance apparente du réacteur.

Cette partie bibliographique a permis de choisir les propriétés géométriques qu'il faut considérer pour caractériser géométriquement l'empilement d'un point de vue global (porosité moyenne, pression) et semi-global (porosité radiale), mais aussi d'identifier d'autres grandeurs qui n'ont pas encore été mesurées (telles que la porosité axiale et l'orientation des cylindres) se basant sur des tendances observées lors d'études expérimentales.

Elle a également permis de mettre l'accent sur les aspects manquants dans la littérature dans l'étude des réacteurs à lit fixe de petite taille résumés dans le Tableau 2.4 ci-dessous.

Notre étude complètera la littérature sur les points suivants : l'étude la porosité axiale, l'orientation des cylindres et éventuellement la tortuosité, l'étude de l'effet de la répétition du chargement en empilements de billes et de cylindres et l'étude de l'effet de la polydispersité en empilements de billes et de cylindres.
Pour tous les points cités, l'étude se fera en couplant empilement, écoulement et transfert de matière.
Pour ce faire, dans cette étude, le code Grains3D sera utilisé et permettra de traiter les contacts entre des objets convexes pour générer les empilements de particules. PeliGRIFF simulera l'écoulement et le transfert avec une méthode à maillage fixe et des performances parallèles adaptées.

Tableau 2.4 : Résumé des aspects manquants dans la littérature pour des empilements de billes et de cylindres

Etude / Empilement	Caractéristique	structure de l'empilement	hydrodynamique	Ecoulement réactif / thermique
sphères	Monodisperse	3	3	2
	Polydisperse	1	2	0
	Répétabilité	0	1 [41]	0
	Autre	pas de caractérisation en termes de porosité axiale		
cylindres	Monodisperse	2	2	2
	Polydisperse	0	0	0
	Répétabilité	0	0	0
	Autre	▪ pas de caractérisation en termes de porosité axiale ▪ pas d'études sur l'orientation des cylindres		

La légende numérique dans le Tableau 2.4 correspond au degré de connaissance évalué d'après la littérature examinée :

3 : abondance de travaux

2 : quelques études

1 : une étude

0 : absence de travaux

3 Méthodologie

L'objectif du travail est d'étudier les interactions entre la structure d'empilement, qui est aléatoire, et la réactivité apparente du réacteur à lit fixe. Afin de permettre la mise en évidence de liens entre empilement et réactivité, il est nécessaire de pouvoir caractériser à minima les empilements et leur réactivité et ceci pour de nombreux empilements.

Dans ce qui suit, le choix et l'intérêt de la démarche adoptée, ainsi que les paramètres mesurés dans chaque partie seront présentés.

3.1 Intérêt d'une démarche numérique

Une approche expérimentale du problème nécessiterait de caractériser à la fois l'empilement de particules et la performance réactionnelle de lits fixes. Les performances réactionnelles sont mesurables dans des réacteurs contrôlés en pression et température. Le sujet du travail nécessite de s'intéresser à la structure localement hétérogène des lits fixes qui peut affecter l'écoulement et les performances réactives sans pour autant avoir un effet visible sur les grandeurs macroscopiques. Une solution est alors d'utiliser des techniques d'imagerie par tomographie et reconstruction 3D. Seule la tomographie aux rayons X permet d'atteindre une résolution spatiale suffisante qui est de l'ordre de 10 à 50 µm. Par contre, elle ne permet pas d'étudier le contenu de réacteurs métalliques de densité très élevée pour être traversés par les rayons X. Il est possible d'opérer sur des réacteurs en matériau transparent aux rayons X mais cela implique d'opérer à pression réduite (quelques bars) et réduit considérablement le champ de réactions utiles.

Notre étude s'intéresse aux effets de répétabilité de chargement. Pour l'explorer expérimentalement, il faudrait réaliser plusieurs répétitions de chargement avec des grains identiques, mesurer la performance réactionnelle et recommencer. En pratique, cela est impossible du fait de la désactivation progressive des catalyseurs et des modifications potentielles de performance lors des opérations de détente, refroidissement, déchargement, rechargement, remise en température et pression. Il ne peut être assuré que les catalyseurs aient exactement la même activité catalytique d'une répétition à une autre. Cette variabilité pourrait être du même ordre de grandeur voire supérieure aux effets d'empilement.

Un dernier point en défaveur d'une approche expérimentale est que les paramètres « clés » régissant le lien entre empilement et réactivité ne sont pas connus. Leur identification doit être basée sur des études statistiques, donc avec de très nombreuses réalisations, générant ainsi un coût important. Il est également possible d'avoir à recommencer des tests si les caractérisations pertinentes n'ont pas été mesurées la première fois.

Une approche numérique permet de lever certains de ces verrous. La position des objets est connue, ce qui permet d'envisager toutes sortes d'analyses et de caractérisations avant et après les calculs de réactivité. Par construction, les calculs répétés seront réalisés avec des objets strictement identiques d'un calcul à l'autre. L'approche numérique permet également de « régler » les paramètres des empilements à volonté et donc de tester ces paramètres un par un (ou de réduire les corrélations). La condition de succès de l'approche numérique est qu'il faut disposer d'empilements représentatifs d'une part, et d'autre part de codes de simulation et de puissance de calcul suffisants pour analyser les écoulements et les profils de concentration. Comme on peut le voir dans la littérature des outils de calculs d'empilement permettent actuellement de simuler des lits fixes de quelques milliers de particules. Il existe donc aujourd'hui des solutions pour calculer les écoulements monophasiques en lit fixe.

Pour ces raisons, une approche numérique a été préférée pour ce travail. Ce choix conduit à structurer la thèse en plusieurs parties :

- Réalisation et caractérisation des empilements,
- Simulation hydrodynamique et analyse des résultats,
- Simulation de l'écoulement réactif.

Les réactions ont lieu dans la phase liquide (au contact de la phase active qui est dans le solide), la phase gaz apportant un des réactifs. Pour une étude de sensibilité sur l'effet d'empilement, il est raisonnable de simplifier la physique à un écoulement monophasique liquide.

En unité pilote, les vitesses de circulation de liquide sont faibles, typiquement de l'ordre de 10 cm par heure, soit ~30µm/s. Les écoulements sont donc laminaires.

3.2 Les outils numériques retenus

Deux codes développés à l'IFPEN, Grains3D [39] et PeliGRIFF [93,94], ont été retenus pour cette étude.

3.2.1 Grains3D : Génération de l’empilement

Les empilements de particules ont été simulés en utilisant la méthode des éléments discrets (Discrete Element Method) implémentée dans le code Grains3D [39]. La méthode consiste à calculer les trajectoires et rotations de toutes les particules du système en tenant compte de forces volumiques et des collisions inélastiques avec les autres particules et les parois. La force de contact est proportionnelle au recouvrement calculé. Les équations utilisées dans cette méthode pour calculer le contact sont présentées dans l'annexe A (cf. §7). Le résultat du calcul est un fichier contenant la position et l'orientation des particules à chaque pas de temps. Le lit fixe est "empilé" lorsque le déplacement des particules est inférieur à quelques micromètres.

Grains3D permet de générer des empilements d’objets convexes. Dans notre étude, les objets sont des particules sphériques ou cylindriques. Les calculs sont faits en présence de gravité. Les objets peuvent être identiques ou différents tant en forme qu’en dimension, ce qui permet de simuler des distributions granulométriques polydisperses.

Grains3D permet d’utiliser deux types de condition aux limites en limite du domaine de calcul : « obstacle » ou « périodicité ». Les obstacles sont des surfaces planes indéformables sur lesquelles les particules rebondissent : ils sont utilisés pour délimiter le fond, le haut et si besoin les parois de réacteur. Un réacteur cylindrique est modélisé par un ensemble de surfaces planes dont la coupe forme un polygone approximant un cercle (Figure 3.1 et Figure 3.2 - (a), (b)).

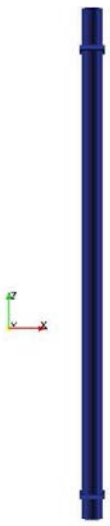


Figure 3.1 : Réacteur cylindrique simulé par Grains3D

La périodicité permet de simuler des milieux semi-infinis : lorsqu'une particule coupe la face de périodicité, une particule « clone » identique avec la même vitesse (translation et rotation) est créée sur la face opposée du domaine. La périodicité peut être utilisée sur deux cotés du domaine, cas « bi périodique », pour réaliser des empilements semi-infinis dans deux directions avec tassement gravitaire (Figure 3.2 - (c)).

Les particules sont insérées dans le réacteur dans une « fenêtre » d'insertion. La procédure consiste à choisir une particule au hasard parmi celles encore à insérer, à tirer son orientation au hasard et à la positionner dans la fenêtre d'insertion sans contact avec une autre particule. La particule tombe alors sous l'action de son poids. Une nouvelle particule est insérée à fréquence imposée et tant qu'il reste de la place dans la fenêtre d'insertion. Cette méthode permet d'imiter une procédure de chargement réalisée par un opérateur qui verse les grains de catalyseurs dans le réacteur.

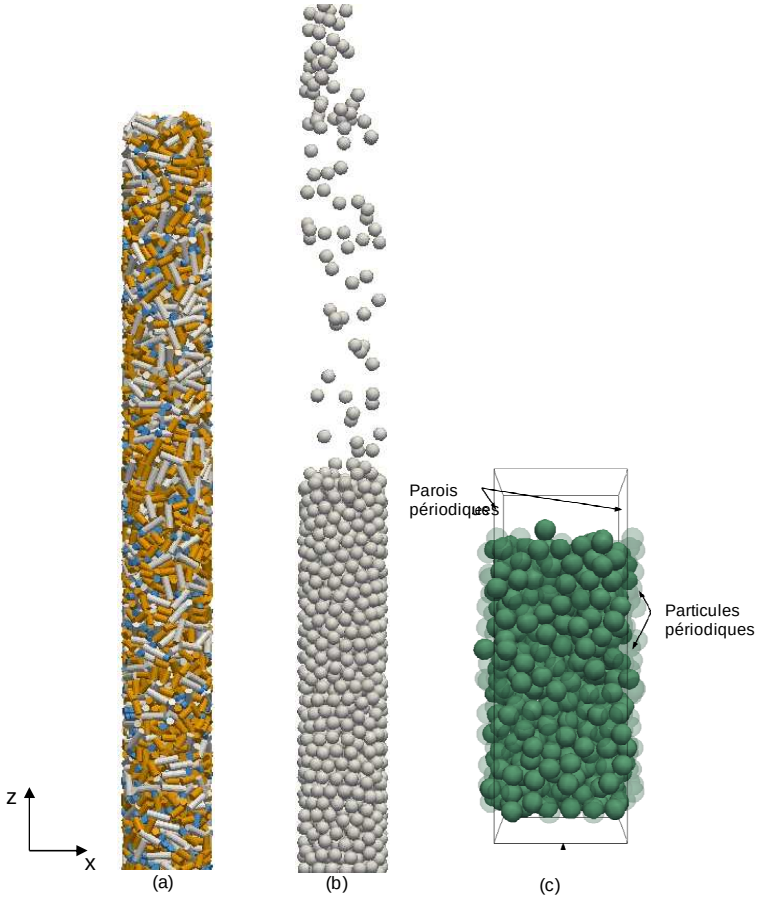


Figure 3.2 : Exemples d'empilements simulés : a) cylindres polydisperses (de longueurs = 1, 3 et 5 mm) dans un réacteur cylindrique, b) sphères monodisperses dans un réacteur cylindrique (d = 3mm) c)sphères monodisperses(d = 3mm) dans un domaine bipériodique (semi-infini)

3.2.2 PeliGRIFF : Calcul hydrodynamique et de transfert / réaction

PeliGRIFF est un solveur de mécanique des fluides incompressible développé à partir de la bibliothèque Pelican et très efficace en calcul parallèle. PeliGRIFF utilise un schéma numérique en volumes finis, du second ordre, explicite en espace. La spécificité de PeliGRIFF est son couplage fort avec le code de DEM Grains3D qui permet de résoudre l'hydrodynamique en interaction avec des particules solides mobiles (ou fixes). PeliGRIFF est basé sur une approche de domaines fictifs avec multiplicateurs de Lagrange (Distributed Lagrange Multiplier/Fictitious Domain : DLM/FD) pour assurer un couplage fort aux interfaces entre le fluide et les particules [93,94].

La grille de discrétisation spatiale est une grille fixe avec des nœuds équidistants dans toutes les directions, y compris à l'intérieur des objets solides. Contrairement à d'autres méthodes numériques alternatives, le maillage n'épouse pas la forme de l'objet, sans raffinement près des objets et des points de contact. Les équations sont résolues à tous les points du maillage y compris dans les particules qui sont remplies d'un fluide fictif.

Pour le cas où les particules sont en mouvement, à chaque pas de temps leurs propriétés données par le code granulaire sont mises à jour (vitesse de translation et de rotation). Chaque particule est reconnue par son centre de gravité et son diamètre (et éventuellement longueur), un terme de forçage est imposé au niveau de la surface et à l'intérieur de la particule pour assurer le mouvement de corps rigide:

$$\mathbf{u} - (\mathbf{U} + \boldsymbol{\omega} \wedge \mathbf{r}) = 0 \qquad \textit{Équation 3.1}$$

$\boldsymbol{u}$: la vitesse du fluide sur la particule, $\boldsymbol{U}$: la vitesse de translation de la particule, $\boldsymbol{\omega}$ sa vitesse angulaire, $\boldsymbol{r}$ le vecteur position. Cette contrainte est relaxée par l'introduction d'un multiplicateur de Lagrange.

Dans notre cas, dans des lits fixes où les particules sont immobiles, la contrainte (Équation 3.1) se réduit simplement à une vitesse nulle ($u = 0$) car les particules sont immobiles.

Au niveau de la surface des particules, une interpolation d'ordre deux est utilisée sur la base des points où la vitesse dans le maillage cartésien est calculée (Figure 3.3).

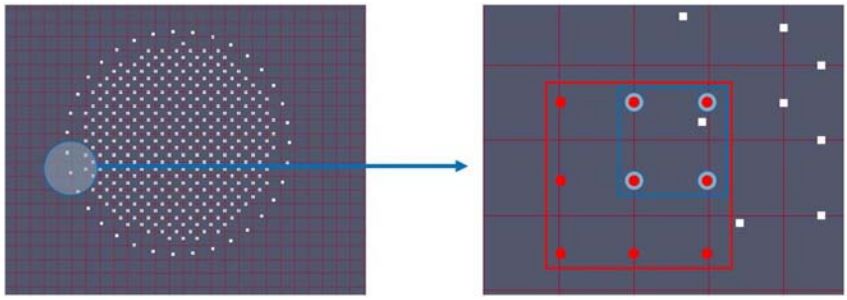


Figure 3.3 : Distribution des points DLM/FD à la surface d'une particule (à gauche), interpolation linéaire vs quadratique (à droite)

Ce type de maillage structuré conduit à devoir mailler tout l'espace y compris dans les particules (environ 60% du domaine) et peut conduire à des temps de calcul importants dans le cas du lit fixe. Pour un empilement de sphères de 3 mm dans un réacteur de 100 mm de haut et de 19 mm de diamètre, il faut utiliser environ 20 points/diamètre de particule (~ 14 millions de mailles pour tout le domaine) d'où le besoin d'une bonne efficacité en calcul parallélisé.

PeliGRIFF permet des conditions aux limites de vitesse (vitesse constante sur une face du domaine[1]), de pression (pression constante sur une face), et de périodicité. Cette dernière condition consiste en une périodicité spatiale selon 1, 2 ou 3 directions de la vitesse. Les conditions tripériodiques permettent par exemple de calculer les écoulements autour d'une sphère dans une boite cubique, ce qui correspond à un empilement structuré (cubique simple) infini. Les conditions bipériodiques sont utilisées pour simuler l'écoulement dans un lit fixe de dimensions « infinies » perpendiculairement à l'écoulement.

[1] PeliGRIFF ne permet pas à ce jour d'imposer une vitesse nulle sur des surfaces du domaine qui ne sont pas planes. Cela explique le fait de ne pas réaliser des calculs hydrodynamiques en tube cylindrique.

La Figure 3.4 présente des exemples de simulations réalisées lors de cette thèse.

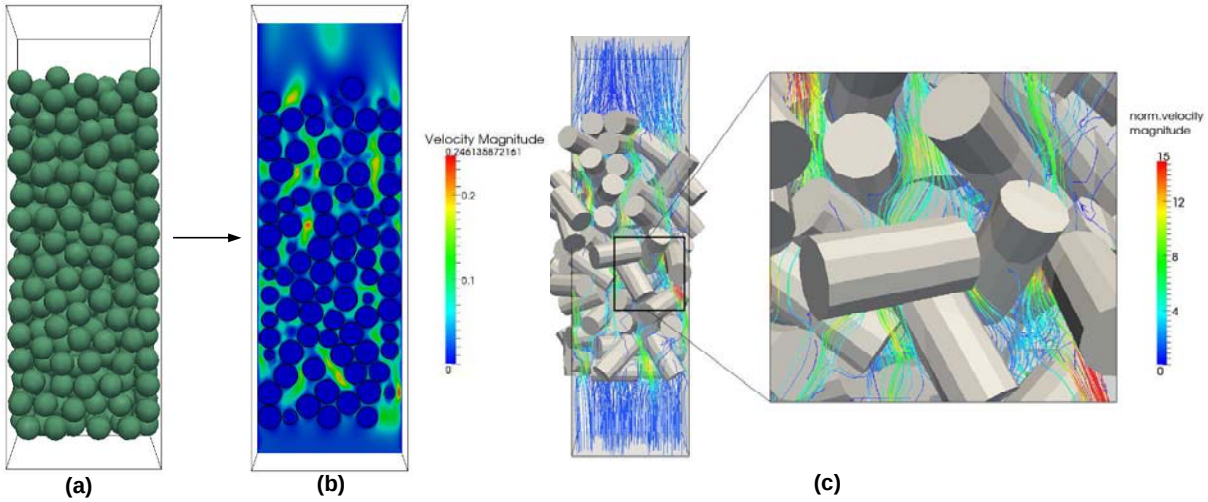


Figure 3.4 : (a) Empilement de sphères avec parois, (b) Coupe verticale au centre du lit (a), (c) Vitesse et structure locales d'un lit de cylindres bipériodiques

Un module réactif a été implémenté dans PeliGRIFF basé sur l'équation de convection-diffusion (Équation 3.2) avec terme source. Celle-ci représente le transport d'un scalaire par convection et diffusion. La diffusion du réactif se fait aussi bien dans le fluide qu'à l'intérieur du grain : le coefficient de diffusion apparente D_{app} dépend du contenu de chaque maille (Équation 3.3). Un terme qui représente une réaction d'ordre 1 à l'intérieur du grain de catalyseur a été pris en compte (Équation 3.4).

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla.(-D_{app}\nabla C) + \mathbf{u}.\nabla C = R \qquad \textit{Équation 3.2}$$

$$D_{app} = \varepsilon D_{fluide} + (1-\varepsilon) D_{solide} \qquad \textit{Équation 3.3}$$

$$R = -k.C \qquad \textit{Équation 3.4}$$

où D_{app}, D_{fluide}, D_{solide} sont les coefficients de diffusion moléculaire apparent (ou global), dans le fluide et dans le solide respectivement, k est la constante cinétique de réaction et ε correspond à la porosité locale (à l'échelle de la maille).

Le module réactif ne permet pas de prendre en compte une éventuelle variation des propriétés physiques (densité, viscosité) pendant la réaction : physiquement, cela correspond au cas d'un réactif « très » dilué.

3.3 Caractérisation de l'empilement

L'étude bibliographique nous a permis d'identifier comme grandeurs caractéristiques principales de l'empilement : les porosités moyenne et radiale. Afin d'aller plus loin dans cette caractérisation, nous avons aussi développé des outils de mesure de porosité axiale, de tortuosité et d'orientation des cylindres.

Ces outils ont été développés sous Visual Basic pour évaluer ces grandeurs à partir des coordonnées de chaque particule. Ce paragraphe présente ces différentes mesures. Leur utilisation et les résultats sont présentés au chapitre 4 relatif aux empielemnts.

3.3.1 Porosité axiale en réacteur cylindrique

Le calcul de la porosité axiale vise à étudier l'évolution axiale de la porosité sur des tranches de réacteur. Pour calculer la porosité axiale, le lit est divisé en plusieurs couches d'épaisseur *e,* dans chacune d'elles la porosité moyenne est calculée selon l'Équation 3.5. Pour des sphères, le calcul est réalisé de manière analytique en évaluant pour chaque particule la portion exacte de volume comprise entre les plans *z* et *z+e*. Pour les cylindres, le calcul n'est pas analytique mais numérique avec une discrétisation des cylindres et du réacteur.

$$\varepsilon_e(z) = 1 - \frac{1}{\pi R^2 e}\int_z^{z+e}\int_0^R\int_0^{2\pi}\delta(r,\theta,z)\,r\,dr\,d\theta\,dz \qquad \textit{Équation 3.5}$$

δ : fonction indicatrice de présence du solide. δ = 1 dans le solide, 0 ailleurs.

3.3.2 Porosité radiale

L'expression de la porosité en fonction de *r* est calculée en moyennant selon *z* et θ la fonction de présence des particules δ(*r*, θ, *z*) qui vaut 1 dans les solides et 0 dans l'espace poral (Figure

3.5). Le lit catalytique fixe est divisé en plusieurs couches annulaires d'épaisseur *dr* et de hauteur *H* égales (Équation 3.5).

$$\varepsilon_{\Delta r}(r) = 1 - \frac{1}{\pi H[(r+\Delta r)^2 - r^2]} \int_r^{r+\Delta r} \int_0^H \int_0^{2\pi} \delta(r,\theta,z)\, r.dr.d\theta.dz \qquad \textit{Équation 3.6}$$

L'intégration est réalisée en discrétisant le cylindre en éléments de volume $r\ dr\ d\theta\ dz$ dans le repère cylindrique (r, θ, z). Un test d'appartenance de ce volume élémentaire ($r\ dr\ d\theta\ dz$) à une particule est ensuite effectué. L'intégration se fait sur toute la hauteur *H* du réacteur.

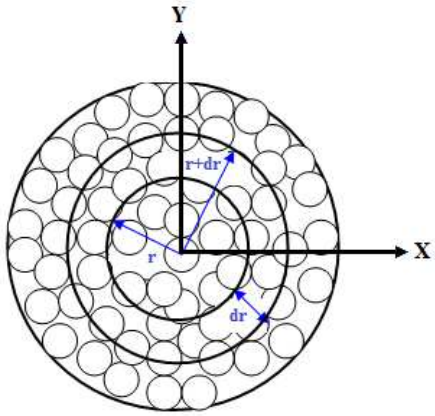


Figure 3.5 : Coupe transversale dans le plan (X, Y) du réacteur cylindrique

3.3.3 Tortuosité

Ici, la tortuosité est définie comme étant l'allongement du chemin possible parcouru par le fluide en présence du solide comparé à l'écoulement sans solide. Il s'agit donc d'une tortuosité géométrique. Il n'existe pas de méthode de calcul standard pour déterminer cette grandeur et nous proposons d'utiliser le rapport entre la longueur du chemin parcouru par le fluide en contournant les particules par la longueur de son chemin en absence de celles-ci (Figure 3.6). Par construction, la tortuosité sera supérieure ou égale à 1.

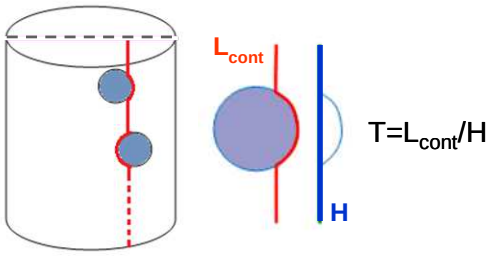


Figure 3.6 : Principe de calcul de la tortuosité (ici le diamètre est en pointillé sur la figure de gauche et son angle d'orientation = 0°)

La tortuosité a été évaluée dans un lit de sphères de diamètre d = 3 mm dans un réacteur de diamètre D = 12 mm (cas appelé D/d = 12/3, comme il sera présenté dans le chapitre empilements) en une cinquantaine de points de départ différents équidistants sur un diamètre et sur des diamètres orientés à 0°, 45°, 90°, et 135° par rapport à l'axe des x, et jusqu'à parcourir toute la longueur du réacteur (Figure 3.7). La tortuosité présente un profil symétrique par rapport à l'axe du réacteur et dépend très peu de la position du plan de coupe choisi (ou de son orientation).

Comme attendu, la tortuosité est minimale (égale à 1) au niveau des parois du réacteur : les chemins situés le long des parois ne rencontrent aucune bille. Dans ce calcul, il n'y a pas de billes au centre : ratio D/d est un entier pair (Figure 3.9) et la tortuosité y est également minimale. La tortuosité est très reliée au nombre de billes sur le chemin sans être tout à fait corrélée (Figure 3.10).

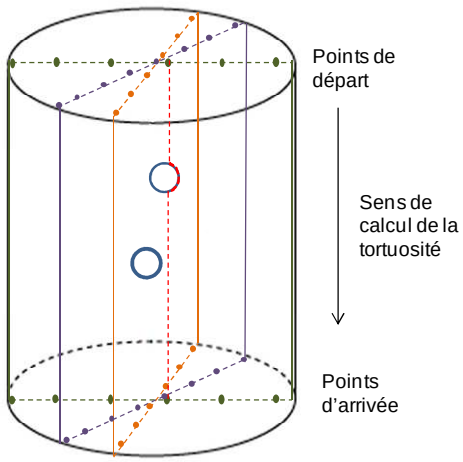


Figure 3.7 : Calcul de tortuosité dans trois différents plans orientés

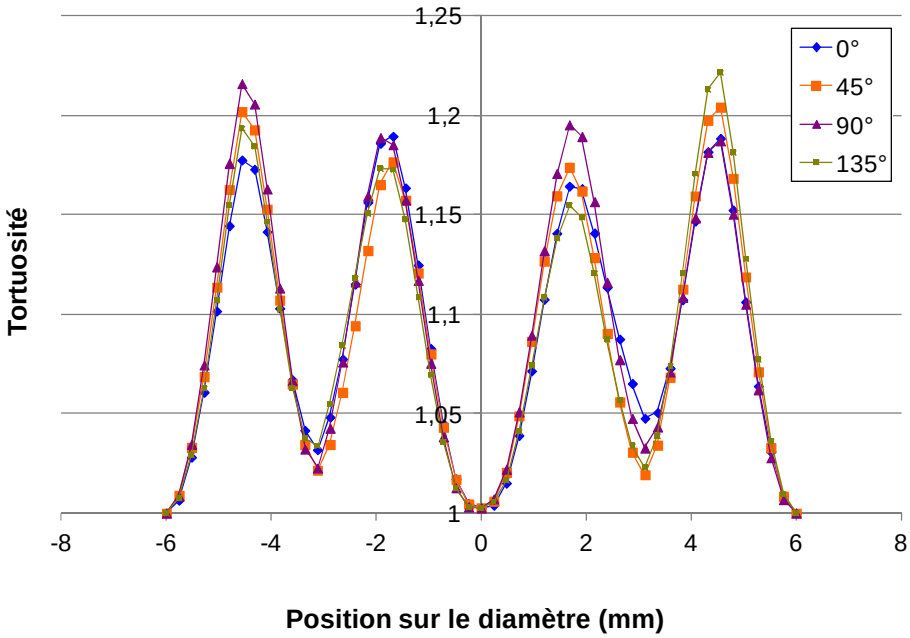


Figure 3.8 : Variation de la tortuosité en fonction de la position sur le diamètre, Cas D/d = 12/3, Calcul 1

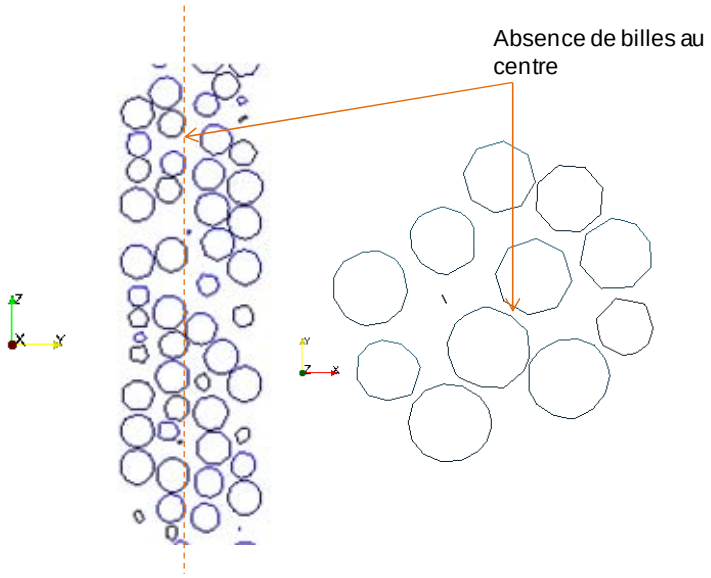


Figure 3.9 : Coupes longitudinale et transversale dans l'empilement D/d = 12/3

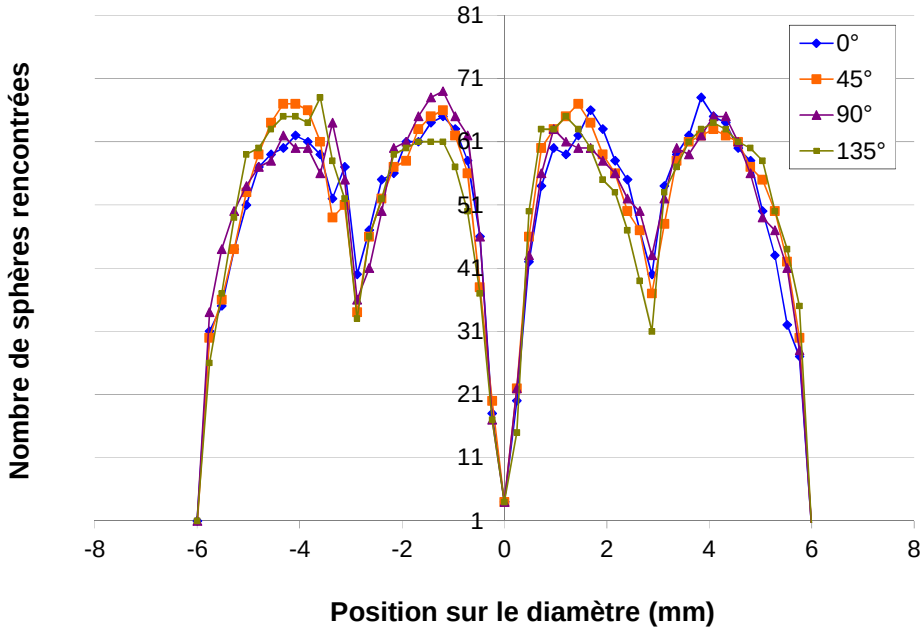


Figure 3.10 : Variation du nombre de sphères rencontrées en fonction de l'emplacement sur le diamètre Cas D/d=12/3, Calcul 1

Nous concluons que le calcul de tortuosité n'apporte pas d'élément supplémentaire par rapport à un calcul de porosité radiale (Figure 3.11 par exemple). Les mêmes remarques ont également été notées pour les autres ratios de diamètres (*D/d*). Cette approche n'a donc pas été étendue dans la suite de la thèse pour d'autres géométries ou formes de particules.

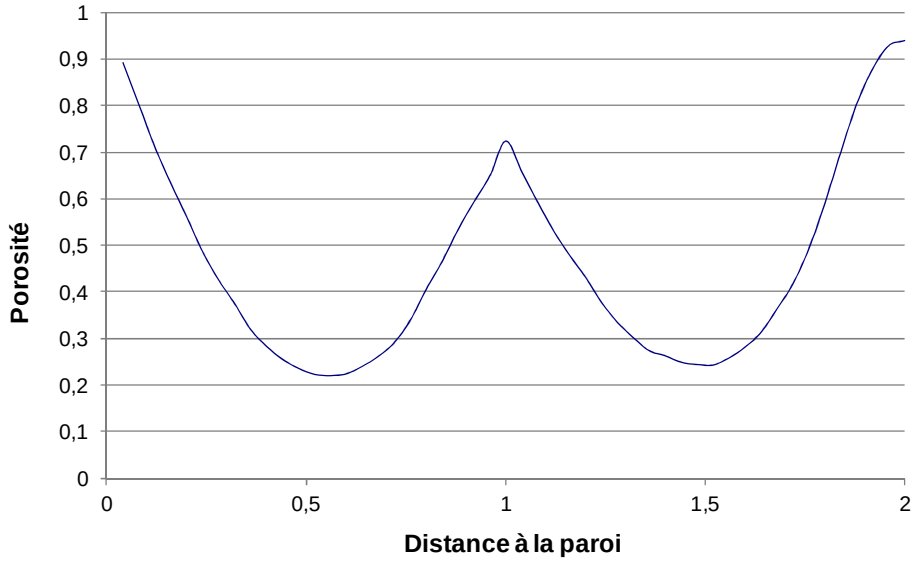


Figure 3.11 : Variation de la porosité radiale, Cas D/d=12/3, Calcul 1

3.3.4 Orientation des cylindres

Deux types d'orientations des cylindres ont été calculés par rapport à la direction horizontale et par rapport à la direction radiale.

L'orientation verticale consiste à calculer l'angle entre l'axe du cylindre et le plan horizontal (Figure 3.12).

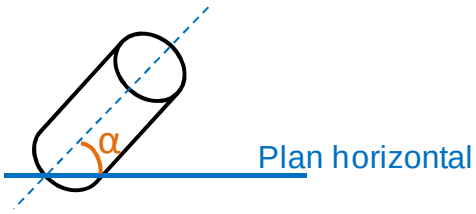


Figure 3.12 : Orientation verticale des cylindres

L'orientation radiale est l'angle entre la projection de l'axe du cylindre sur le plan transversal du tube et la direction radiale (Figure 3.13). Un angle de 0° correspond à une orientation radiale du cylindre (parallèle à un rayon), un angle de 90° correspond à une orientation tangentielle (perpendiculaire à un rayon).

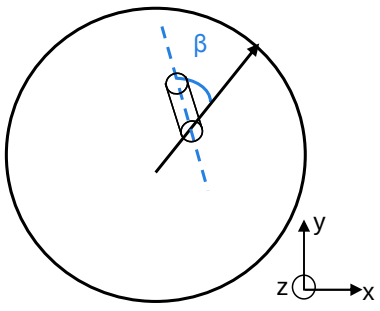


Figure 3.13 : Orientation radiale des cylindres-Vue de dessus du réacteur

Ces angles sont aisément calculés à partir des données de sortie de Grains3D et sont présentés sous forme d'histogrammes.

3.4 Etude hydrodynamique

Les calculs hydrodynamiques ont été réalisés dans des systèmes structurés simples qui sont bi ou tripériodiques de billes et de cylindres, utilisés pour la prise en main et la validation du code, puis dans des empilements aléatoires.

Les calculs sont ensuite analysés en termes de pression et de vitesse. Les champs de vitesse sont analysés en utilisant une approche statistique : la vitesse est considérée comme une occurrence d'une variable aléatoire, et nous reconstruisons sa fonction de densité de probabilité.

Le traitement des résultats obtenus par PeliGRIFF se fait au moyen d'un module de post-traitement qui utilise les sorties du dernier pas de temps calculé. Ce post-traitement permet de :

- calculer la porosité moyenne dans un sous-domaine défini ayant la largeur du système et une épaisseur définie
- calculer la pression moyenne dans les plans du domaine passant par les centres des mailles (où est calculée la pression)
- donner l'histogramme de la vitesse (norme ou l'une de ses composantes) dans des sous-domaines spécifiés du système étudié.

3.5 Calcul réactif

Dans cette partie, une exploration qualitative des résultats d'écoulement réactif avec visualisation des champs de concentration est effectuée. Des calculs de transfert de matière avec réaction à l'intérieur du grain sont effectués dans des systèmes avec une seule particule (bille ou cylindre) dans un domaine bipériodique.

Des études paramétriques sur les vitesses d'entrée, les coefficients de diffusion moléculaire, ainsi que l'orientation du cylindre ont été menées.

3.6 Conclusion du chapitre

L'objectif de ce travail est de comprendre le lien entre structure aléatoire locale de l'empilement dans un réacteur à lit fixe, l'hydrodynamique et la réactivité, en vue de définir des critères de conception de réacteur permettant de garantir des résultats répétables et optimaux. Une approche numérique est choisie pour répondre à cet objectif en utilisant les codes Grains3D, pour le calcul granulaire, et PeliGRIFF, pour le calcul de l'écoulement réactif. Dans ce chapitre, les principaux paramètres et méthodes de mesure ont été spécifiés. Nos calculs seront validés, au fur et à mesure, à travers une comparaison avec des solutions analytiques, numériques ou des résultats expérimentaux de la littérature.

Le travail s'organise en trois parties :

1. Etude de l'empilement : elle comprend la génération numérique d'empilements aléatoires de billes et de cylindres, à l'aide de Grains3D et leur caractérisation géométrique en termes de porosité moyenne, radiale, axiale et orientation des cylindres. Certaines grandeurs choisies pour la caractérisation géométrique sont classiques dans la littérature (porosités moyenne et radiale) mais d'autres sont originales (porosités axiale et orientation des cylindres) et complèteront la littérature existante. Une étude locale de la structure des empilements ainsi qu'une étude de l'effet de la répétition du chargement seront effectuées et la variabilité locale de la structure sera quantifiée.

2. Etude de l'écoulement : monophasique, à nombre de Reynolds modéré, dans des empilements aléatoires de billes et de cylindres mono ou polydisperses. La validation du code PeliGRIFF sera effectuée à travers une comparaison à des solutions analytique ou numérique sur des systèmes simples de particule unique en conditions tripériodiques. Ensuite une étude à l'échelle de la particule de lits aléatoires de billes et de cylindres sera effectuée en termes de perte de pression et de champs de vitesse. Des calculs de répétitions du chargement seront effectuées pour quantifier l'effet de la variabilité locale du chargement aléatoire sur l'hydrodynamique, aussi bien dans un même lit qu'entre lits répétés.

3. Des résultats préliminaires de l'écoulement réactif sur des systèmes simples avec une seule particule (bille et cylindre) : une exploration qualitative de quelque cas test sera présentée avec une variation des coefficients de diffusion, des vitesses d'écoulement et des constantes de réaction, et une visualisation des champs de concentration autour de la particule.

4 Empilements de particules

4.1 Introduction

L'objectif de cette partie est d'étudier la structure géométrique d'un lit de particules sphériques ou cylindriques représentatif des réacteurs d'unités pilotes. Les empilements sont aléatoires et nous nous intéresserons aux non-uniformités ainsi qu'à la répétabilité.

De manière similaire à la littérature, les empilements seront analysés au moyen de la porosité moyenne, radiale, axiale et de l'orientation des cylindres. Les caractérisations sont effectuées sur des empilements numériques obtenus par DEM. La représentativité de ces empilements numériques sera confirmée au fur et à mesure via des comparaisons avec les résultats expérimentaux.

4.2 Analyse des empilements de billes

Le paragraphe est organisé comme suit : Présentation des empilements générés, Caractérisation des empilements en réacteur.

4.2.1 Liste des empilements étudiés

Le diamètre des particules sphériques *d* est fixé à 3 mm (cas monodisperses) et 2, 3 et 4 mm (cas polydisperse) avec des pourcentages pour chaque classe de particule de 20, 60 et 20% respectivement. Ces dimensions correspondent à la granulométrie de certains catalyseurs d'hydrogénations sélectives.
Le diamètre des réacteurs cylindriques *D* est fixé à 12 et 19 mm, ce qui correspond à des dimensions standards de réacteur de test de catalyseur. Les empilements sont caractérisés par le rapport d'aspect, ratio *D/d* qui peut varier entre 2 et 12. Le nombre de particules a été ajusté pour que les hauteurs finales soient représentatives des chargements de catalyseurs en petite unité pilote (50 à 250 mm).
A des fins de comparaison, un empilement semi-infini selon les directions horizontales a été également simulé et analysé. Dans cette géométrie, également appelée bipériodique, les objets coupés par un plan latéral sont dupliqués à une distance de une période.
Les caractéristiques de construction des empilements sont détaillées dans le Tableau 4.1.

Ces empilements sont générés en insérant un nombre prédéterminé de particules de manière aléatoire dans une fenêtre rectangulaire de hauteur variant entre 1 et 30 diamètres et de longueur = largeur comprises entre 1 et 3 diamètres de billes (selon les cas). Les billes sont insérées en vrac, de façon continue à partir de la fenêtre d'insertion et chutent sous l'effet de leur poids puis rebondissent de manière inélastique entre elles et avec les parois. L'empilement est considéré comme terminé lorsque les déplacements maximums des billes sont inférieurs à $d/60$ (environ 50 µm). La hauteur de l'empilement est une conséquence de la simulation. Lorsque les calculs sont répétés, l'initialisation du générateur de position aléatoire est également aléatoire, de sorte que les particules et leurs positions initiales sont différentes pour chaque répétition de calcul.

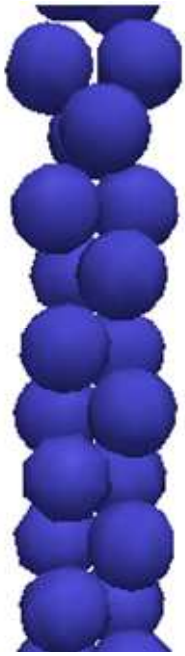
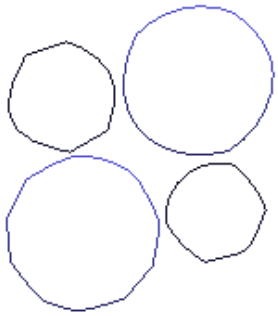
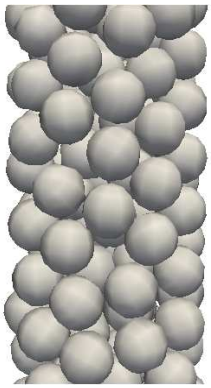
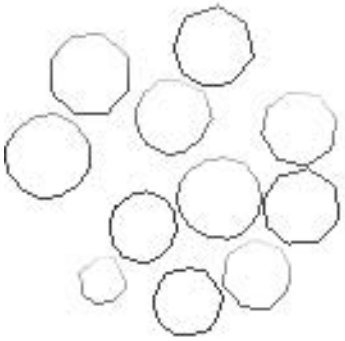
Tableau 4.1 : Tableau récapitulatif des empilements de sphères réalisés

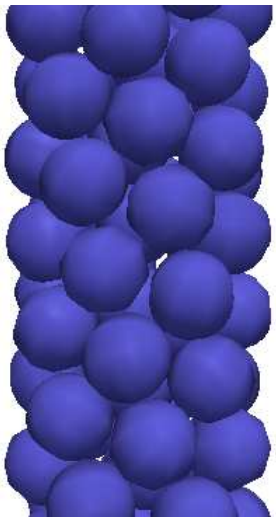
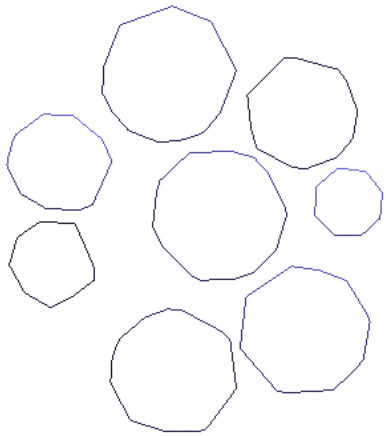
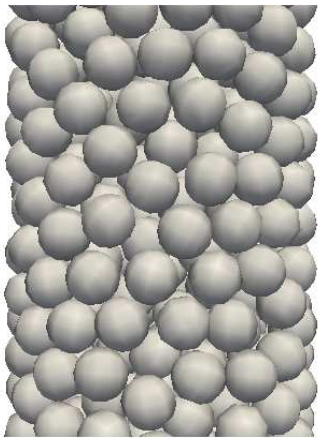
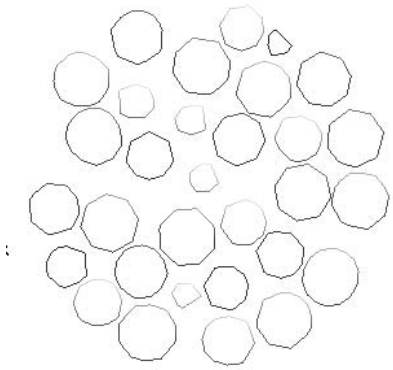
Diamètre 'D' du réacteur cylindrique/ longueur 'L' de la boite bipériodique	**Nom du cas**	**Diamètre des sphères (mm)**	**Nb de billes insérées**	**Hauteurs* (mm)**	**Nombre de répétitions des calculs**
D = 12 mm	D/d = 12/6 (D/d=2)	6	90	120.3	10
	D/d = 12/3 (D/d=4)	3	840	197.7	10
D = 19 mm	D/d = 19/6 (D/d=3.16)	6	240	184.75	8
	D/d = 19/3 (D/d=6.33)	3	2000	175.64	8
	D/d = 19/3-poly	2-3-4	420, 1260, 420	184.8	1
D = 36 mm	D/d = 36/3 (D/d=12)	3	6085	153.7	1
L = 18 mm (bipériodique)	S1	3	540	40	1

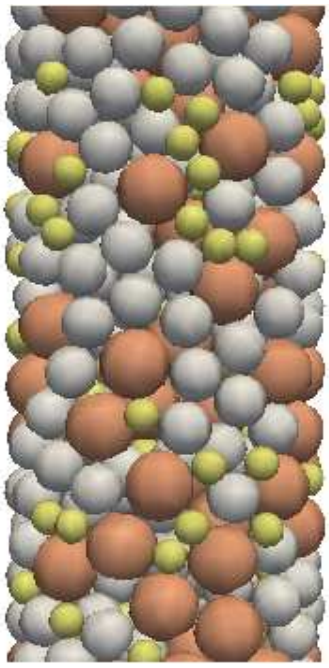
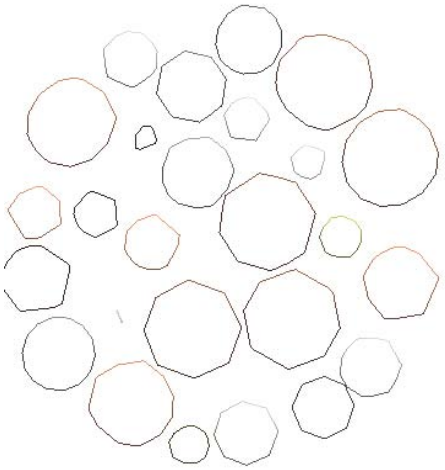
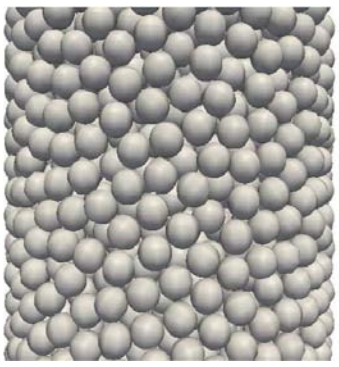
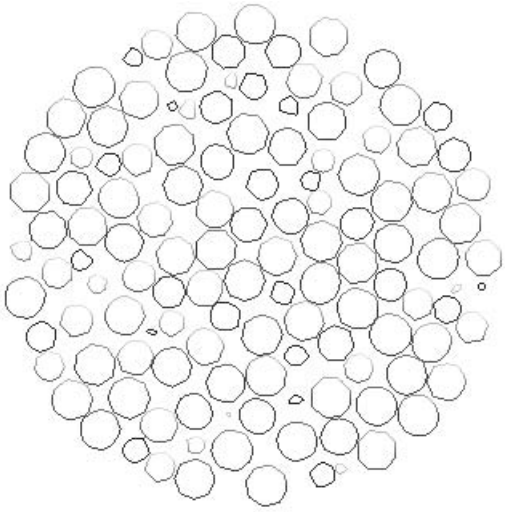
(*) moyenne si les calculs ont été répétés

Le Tableau 4.2 montre des exemples de granulométries des lits simulés.

Tableau 4.2 : Tableau récapitulatif des granulométries d'empilements de sphères en réacteur cylindrique

Nom du cas	Vue 3D du lit	Vue 3D, Zoom	Coupe dans le plan (X, Y) au milieu du lit
D/d = 12/6 (*D/d* = 2)			
D/d = 12/3 (*D/d* = 4)			

D/d = 19/6 (*D/d* = 3.16)			
D/d = 19/3 (*D/d* = 6.33)			

D/d = 19/3-poly (*d* = 2, 3, 4 mm)			
D/d = 36/3 (*D/d*=12)			

N.B : pour les codes couleurs dans les photos : particule bleue: *d* =6mm, grise : *d* = 3mm, jaune : *d*=2mm, orange : *d*=4mm

4.2.2 Empilement semi-infini

Avant de présenter les résultats en présence de parois, nous commençons les analyses par la recherche du volume minimal nécessaire pour obtenir une porosité indépendante de la position dans un empilement semi-infini, volume appelé Volume Elémentaire Représentatif (VER).

L'étude est réalisée sur l'empilement S1 (Tableau 4.1), un empilement aléatoire de billes de 3 mm de diamètre dans une boite de 18 mm de côté avec des conditions aux limites latérales de bipériodicité. La hauteur *H* d'empilement est de 40 mm (Figure 4.1). La porosité moyenne de l'empilement est de 0.4, indiquant que l'empilement est bien de type non tassé 'loose'.

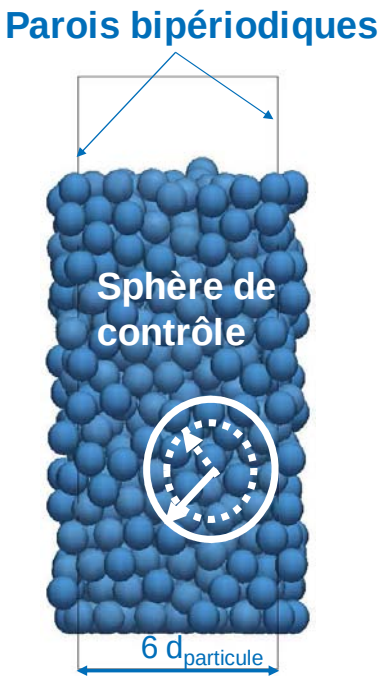


Figure 4.1 : Empilement bipériodique de billes, cas S1, avec une représentation du volume de contrôle sphérique

La porosité moyenne est calculée en fonction du rayon du volume de contrôle (sphérique) et de la position du centre de la sphère. Les résultats pour 4 positions du centre de la sphère de contrôle sont présentés en Figure 4.2.

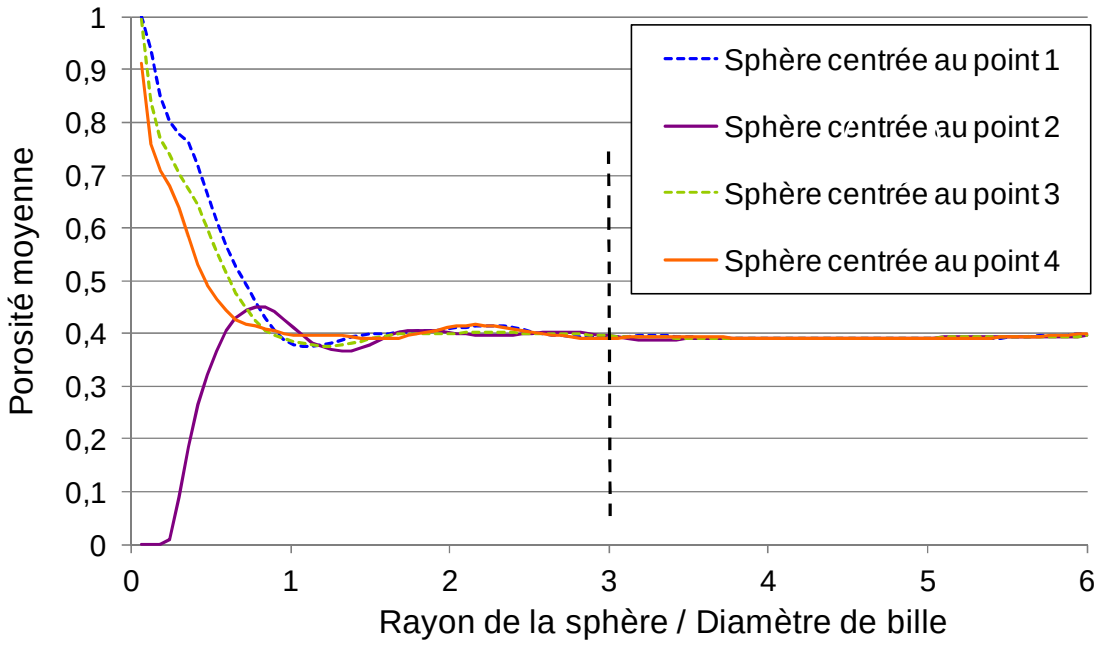


Figure 4.2 : Porosité moyenne dans une sphère de rayon variable et centrée en 4 positions différentes et aléatoires

Il existe une différence entre les courbes dans la région qui correspond à un rayon de la sphère de contrôle < 3 diamètres de billes. Ceci peut être dû à la structure aléatoire locale du lit examiné d'autant plus que la sphère de contrôle change de position. Les courbes de porosité moyenne se stabilisent pour un rayon de sphère de contrôle de l'ordre de 3 diamètres de particule pour toutes les positions de la sphère de contrôle. La dimension du VER (rayon) est estimée à 3 diamètres de particule.

Ce résultat est très inférieur à celui estimé mathématiquement par Dagan qui a estimé le volume élémentaire à 26 diamètres de particule pour des sphères monodisperses [95].

4.2.3 Porosité axiale d'empilements avec paroi

4.2.3.1 Porosité axiale

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'évolution de la porosité moyenne en fonction de la position axiale dans le lit. La porosité moyenne est calculée sur un volume de contrôle cylindrique dont la section est celle du réacteur et dont la hauteur est un paramètre d'étude. Il existe des formules analytiques pour déterminer le volume d'une sphère coupée par un ou

deux plans parallèles, de sorte que les calculs sont réalisés de manière analytique (exacte). Les profils de porosité axiale sont calculés en choisissant a priori une hauteur pour le volume de contrôle, en divisant le lit en plusieurs sous-domaines disjoints de hauteur égale à celle du volume de contrôle et en calculant pour chaque sous-domaine la porosité moyenne. Quand la hauteur du volume de contrôle est égale à la hauteur du lit fixe, alors le profil se résume à la porosité moyenne du lit. Un exemple de profil de porosité axiale est présenté en Figure 4.3 pour le calcul 1 du cas *D/d* =19/3. Les calculs ont été réalisés avec des hauteurs de sous-domaine d'épaisseurs comprises entre 0.2 et 175 mm, ce qui correspond à un nombre de couches de 1024 à 1 respectivement. Cette approche permet d'examiner à la fois les variations de la porosité le long de l'axe du réacteur et l'effet du « volume de mesure ».

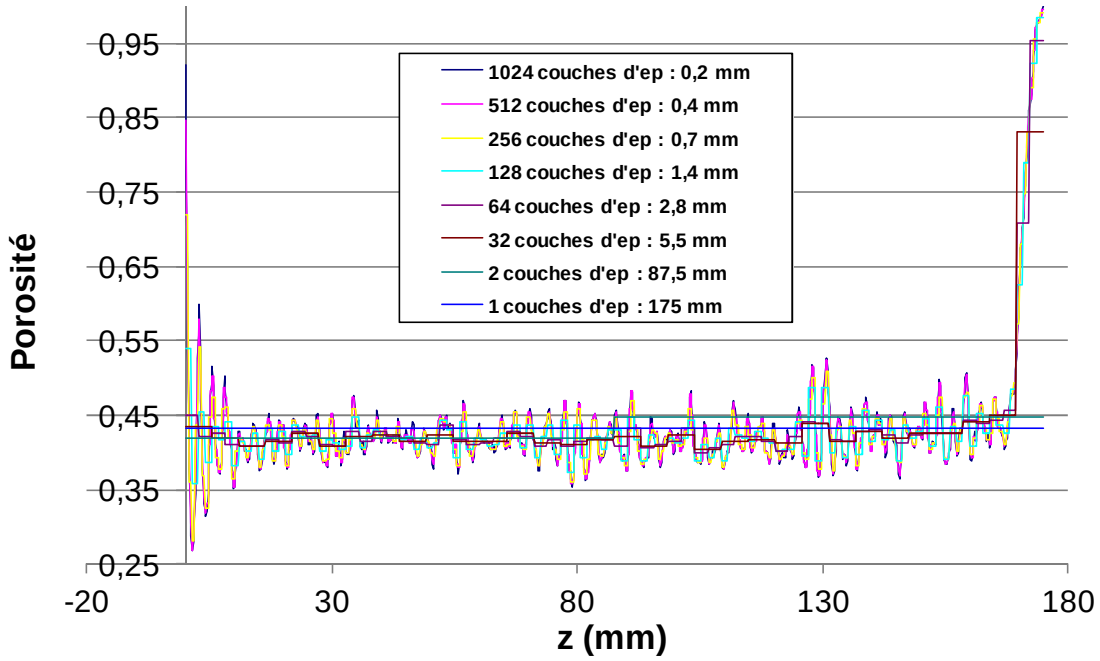


Figure 4.3 : Variation de la porosité axiale, Cas D/d=19/3, Calcul 1

Tous les empilements étudiés ont des profils de porosité axiale qui présentent la même évolution. Une première caractéristique est la présence d'oscillations à faible *z* (sur quelques couches), avec une porosité tendant vers 1 quand *z* tend vers 0 c'est-à-dire près du fond du réacteur. Ces oscillations s'amortissent en 4 diamètres de bille et correspondent à la distance requise pour passer d'un empilement contraint par la paroi du fond à un empilement aléatoire. Une deuxième caractéristique commune est qu'en tête de lit (*z* élevé), la porosité moyenne augmente fortement pour tendre vers 1 : les couches supérieures du lit ne sont pas « pleines ». L'épaisseur de la zone de tête de lit à porosité réduite est également de l'ordre de 4 diamètres de particule.

Les deux zones présentent les plus fortes variations de porosité. La porosité moyenne, si on exclut ces zones, est sensiblement plus faible (Tableau 4.3). En dehors des zones du fond et de la tête du lit, la porosité moyenne est d'environ 0.41. En comparant avec des empilements cubiques réguliers, cette porosité se trouve entre l'empilement cubique centré (ε = 0.32) et cubique simple (ε = 0.48).

Tableau 4.3 : Variation de la porosité moyenne en fonction de la partie de lit considérée (Cas D/d=6.33, Calcul 1)

Porosité moyenne sur toute la hauteur du lit	**Porosité moyenne (en éliminant 25 % à la tête et au fond du lit)**	**Porosité moyenne (en éliminant 33 % à la tête et au fond du lit)**
0.4318	0.4173	0.4154

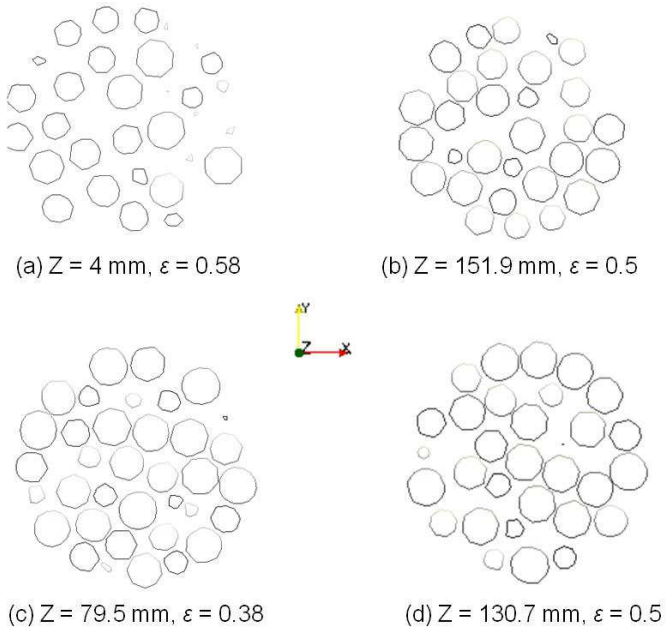


Figure 4.4 : Différentes coupes transversales dans l'empilement D/d = 19/3, Calcul 1, les coupes sont choisies ainsi : (a) zone du fond du lit (b) zone de la tête du lit, (c) minimum local de porosité en zone centrale (d) maximum local de porosité en zone centrale

Une représentation de la structure locale de l'empilement dans des plans qui correspondent à des minima/maxima de porosité est donnée dans la Figure 4.4 ci-dessus. Les plans de coupe sont choisis pour correspondre aux zones de fond et de tête de lit (coupes (a) et (b)) ainsi qu'au centre du lit (coupes (c) et (d)). Dans les plans où la porosité est forte (cas (a), (b) et (d)), des trous assez marqués sont observés entre les particules. Si la structure 3D est

considérée, ceci peut être engendré par un arrangement local de quelques particules avec un vide au milieu empêchant l'insertion de particules supplémentaires.

Dans un lit fixe d'unité pilote, le catalyseur est chargé entre deux couches de lit de particules chimiquement inertes, de sorte que la zone contrainte par le fond et la zone plus poreuse en tête de lit ne sont pas représentatives d'un chargement réel. En conséquence, dans la suite, toutes les analyses seront réalisées en ne prenant pas en compte une épaisseur de 4 diamètres de particule en fond et tête de lit.

En dehors de ces zones de tête et de fond, le profil de porosité présente des zones avec des variations locales importantes par exemple vers z = 80, z = 130 (Figure 4.3) et qui apparaissent dans le lit de manière aléatoire. Inversement sur certaines zones, la porosité moyenne est très stable, par exemple vers z = 45 (Figure 4.3). Ces fluctuations sont visibles à toutes les échelles d'analyse, les variations étant bien sûr plus réduites pour des couches d'épaisseurs plus importantes. Un seuil semble tout de même existé entre les échelles plus courtes que le diamètre du grain /2 (soit 0.2, 0.4, 0.7 et 1.4 mm), qui permettent d'observer des fluctuations locales, et les échelles de diamètre supérieur ou égale au diamètre du grain qui ne conservent que des fluctuations à moyenne échelle.

Les fluctuations à moyenne échelle ne semblent pas indiquer une stabilisation de la porosité. Nous allons examiner ce point plus en détail dans le paragraphe suivant : existe-t-il une épaisseur de couche qui permette d'avoir une porosité moyenne indépendante de sa position axiale ?

4.2.3.2 Recherche d'un VER sur la porosité axiale

Dans cette partie, nous allons chercher s'il existe une épaisseur de couche minimale qui permette d'avoir une porosité moyenne indépendante de sa position axiale, ce que nous appellerons VER sur la porosité axiale.

La méthode consiste à calculer pour différentes épaisseurs de couche e, la porosité moyenne dans le volume de section égale à celle du réacteur et compris entre z et $z + e$ pour tous les z entre l'entrée et la sortie du réacteur. Un exemple est présenté en Figure 4.5 pour des hauteurs de couche comprises entre 1 et 50 mm. Si une des épaisseurs de couche retenues conduit à un profil axial stable sur toute la longueur (hors extrémités, voir discussion du paragraphe précédent), alors cette épaisseur de couche est la dimension du VER. Les résultats sont identiques pour tous les empilements. Un exemple est présenté en Figure 4.5. Comme attendu, nous retrouvons des fluctuations importantes en début de lit (effet du fond) et en fin de lit (couches plus poreuses aux extrémités du lit).

Que ce soit avec une épaisseur = 50 mm (Figure 4.5) ou 120 mm (Figure 4.6), les courbes de porosité axiale ne sont pas stables. Nous concluons que s'il existe un VER en empilement avec paroi, sa dimension est supérieure à 40 diamètres de particules. La présence des parois du réacteur change profondément la manière dont l'empilement est structuré.

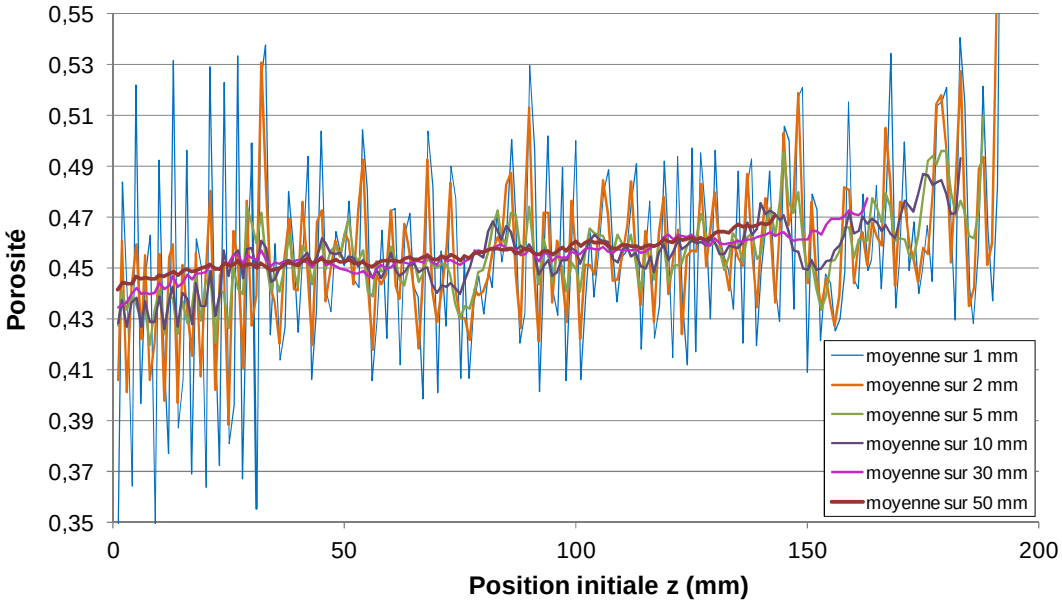


Figure 4.5: Profil de porosité moyenne selon la cote de départ et la longueur d'intégration (Cas D/d=4, Calcul 1)

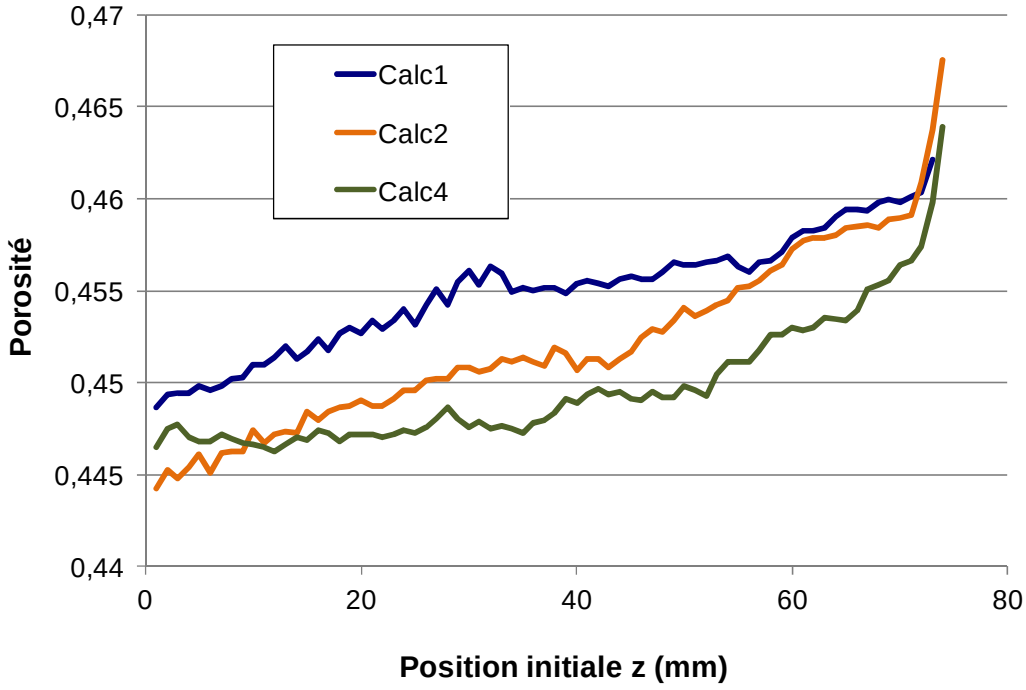


Figure 4.6: Profil de porosité moyenne selon la cote de départ pour une longueur d'intégration égale à 120mm, D/d= 12/3

Dans l'exemple de la Figure 4.5 et Figure 4.6, la porosité axiale moyenne augmente le long du lit. Ceci n'est pas un résultat général ; des courbes de porosités axiales croissantes, décroissantes ou stables peuvent être observées sur au moins une partie des lits selon les géométries et répétitions (Figure 4.7, Figure 4.8 et Figure 4.9). La croissance de porosité est tout de même la plus fréquente et peut être expliquée par le moindre poids exercé au-dessus de la tête du lit qu'au-dessous qui contribue à moins tasser les couches supérieures.

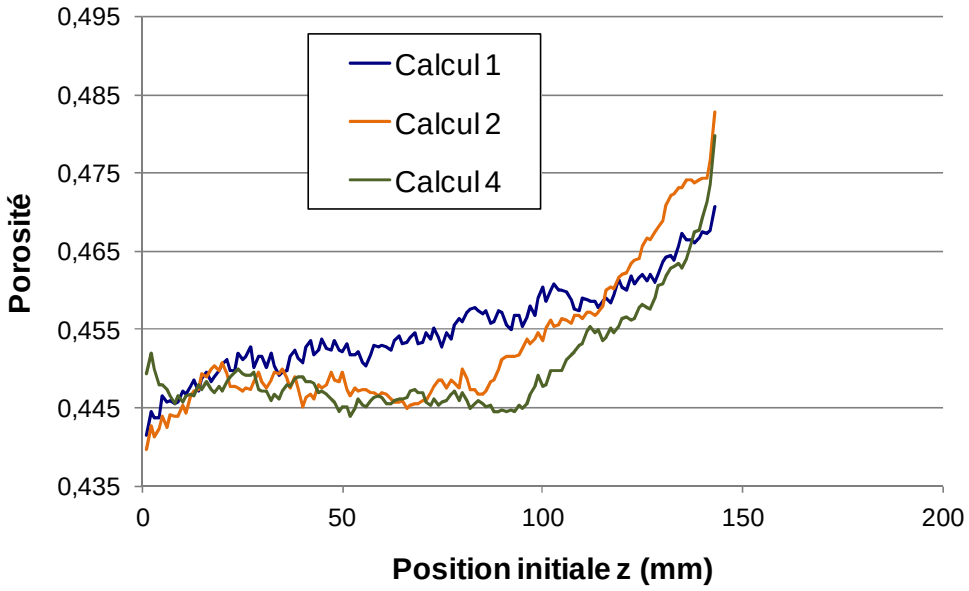


Figure 4.7: Profil de porosité moyenne selon la cote de départ pour une longueur d'intégration égale à 50mm, D/d= 12/3

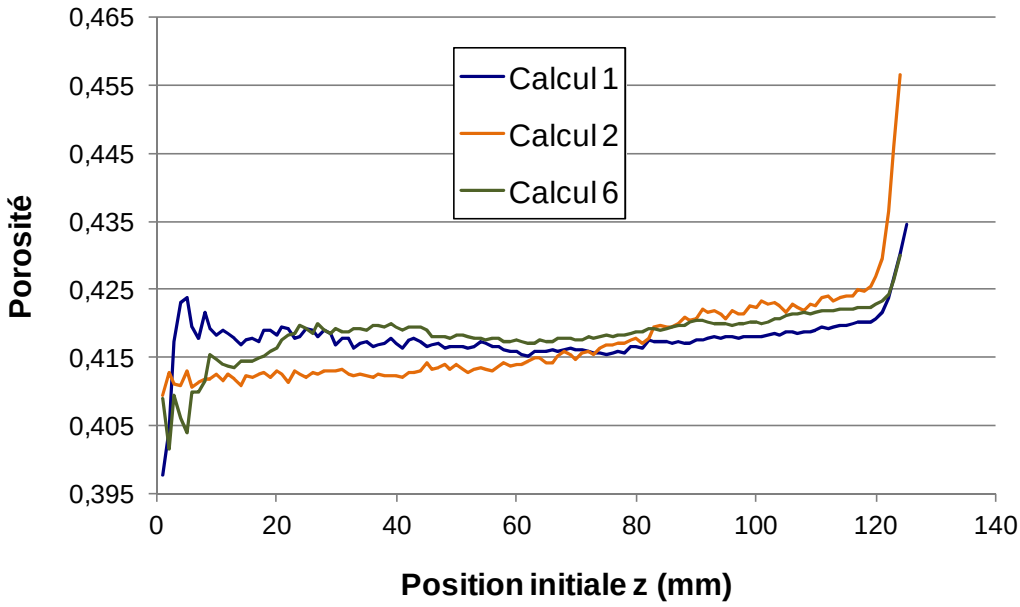


Figure 4.8: Profil de porosité moyenne selon la cote de départ pour une longueur d'intégration égale à 50mm, D/d = 19/3

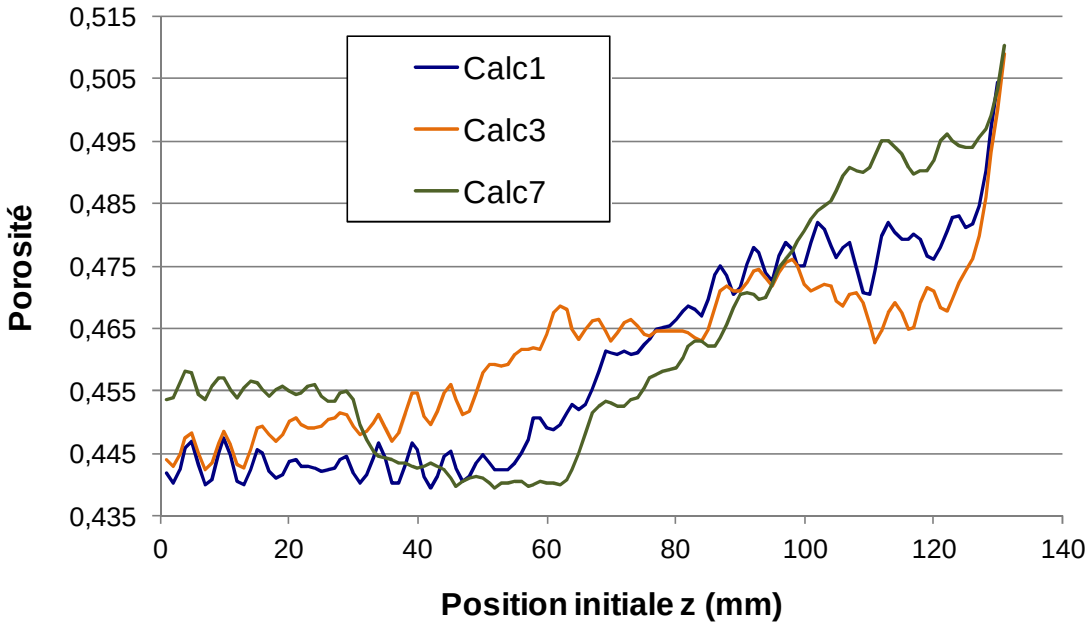


Figure 4.9: Profil de porosité moyenne selon la cote de départ pour une longueur d'intégration égale à 50mm, D/d= 19/6

L'étude du VER sur la porosité axiale n'a pas permis de déterminer une épaisseur minimale permettant de stabiliser la porosité moyenne sur une tranche de réacteur. Si cette épaisseur minimale existe, elle est supérieure à 120 mm. L'examen détaillé des porosités axiales indique une probabilité élevée mais non égale à 1 d'avoir une évolution à la hausse de la porosité dans le réacteur avec potentiellement un lit mieux tassé dans la partie inférieure (en excluant la zone proche du fond).

4.2.3.3 Variabilité de la porosité axiale

Les calculs d'empilement ont été répétés entre 8 et 10 fois pour les cas 9.5/3 [2], 12/3 et 19/3. Les porosités moyennes de tous les lits et chacune de leur répétition sont présentées en Figure 4.10. Nous avons déjà discuté que la porosité moyenne diminue quand le ratio D/d augmente. Il semble que les écarts entre répétitions suivent une tendance similaire (Figure 4.11) même si le cas D/d = 12/3 = 4 présente une variabilité plus importante.

[2] Le lit 19/6 a été analysé après une homothétie géométrique d'un facteur 2 de sorte que l'empilement corresponde à un lit de 9.5/3

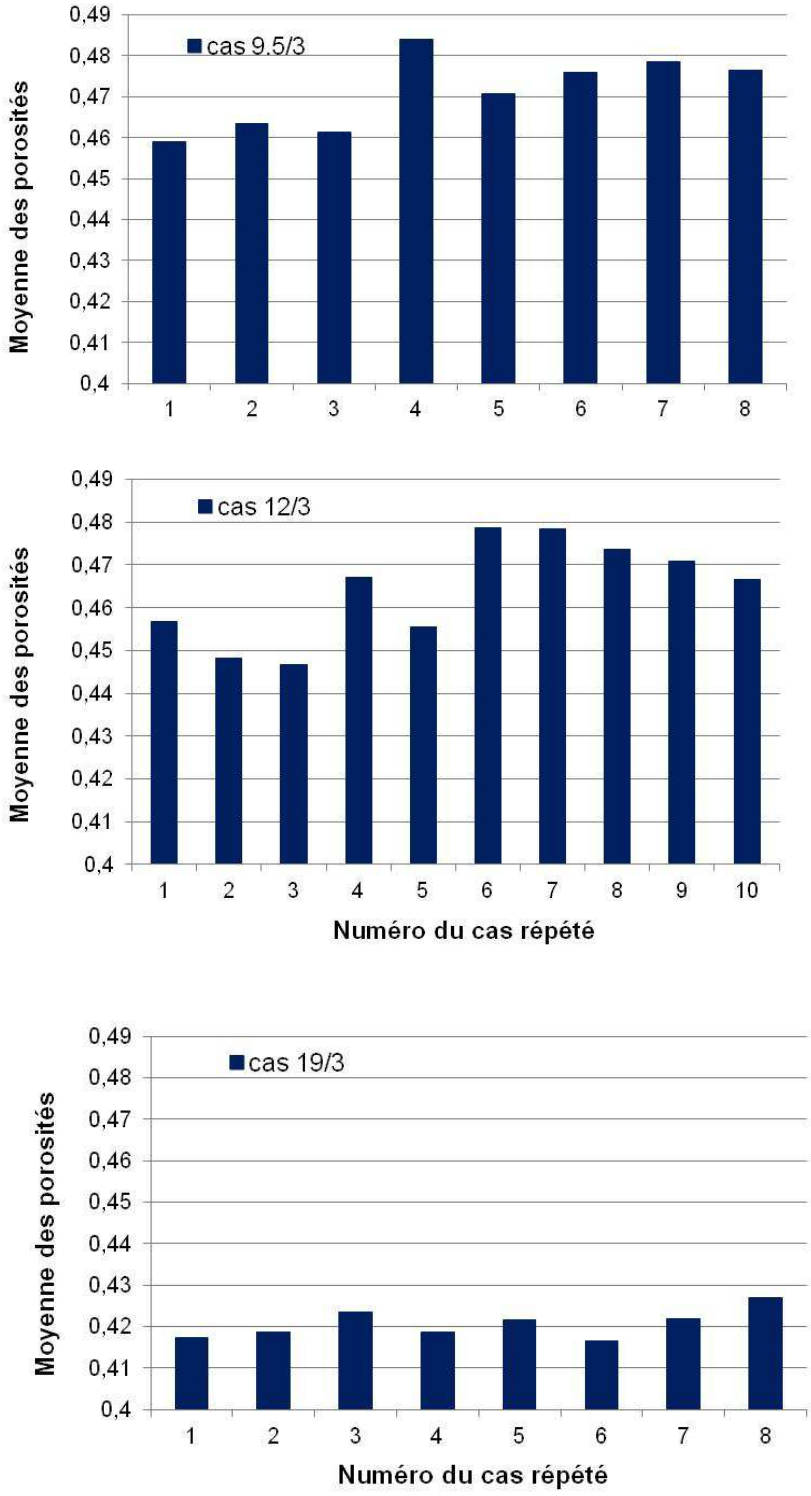


Figure 4.10 : Histogramme des porosités moyennes globales pour chaque répétition, D/d=9.5/3, 12/3, et 19/3

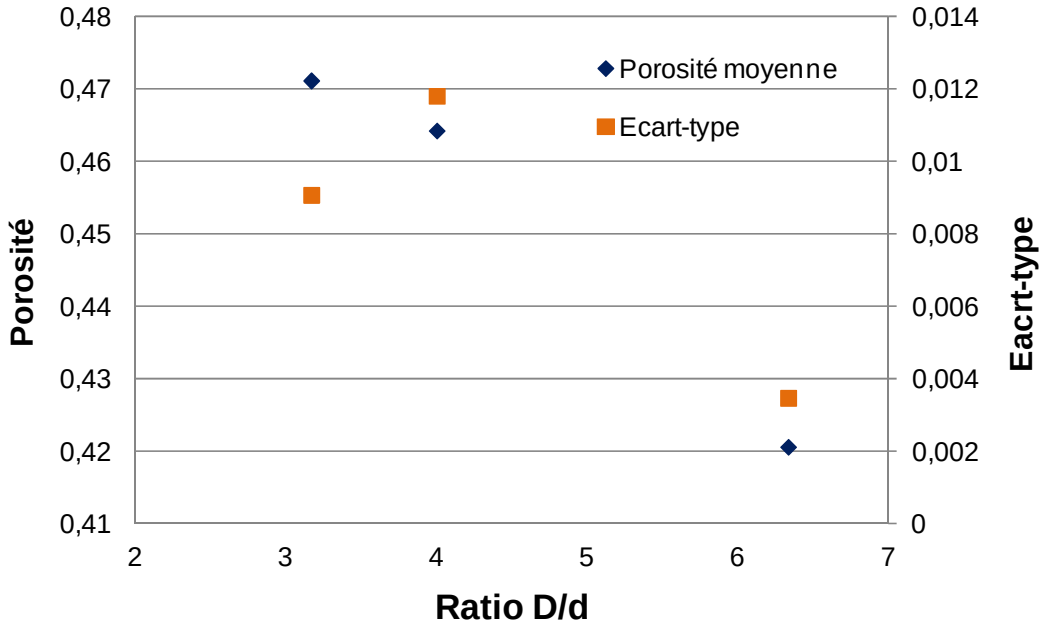


Figure 4.11 : Moyenne et écart-type des porosités sur les calculs répétés en fonction du ratio D/d

Pour toutes les répétitions des 3 lits, la porosité moyenne a été calculée dans des sous-domaines d'épaisseur 3 mm et de hauteur égale à 54 mm (à l'intérieur du lit pour éviter les effets des extrémités), soit 18 domaines. Pour chaque répétition de chaque cas, les écart-types ont été calculés sur les 18 valeurs. Ces écart-types représentent la variabilité de la porosité à l'intérieur de chaque lit et nous les appellerons « écart-types internes » (Figure 4.12). Les écart-types internes varient beaucoup selon les calculs répétés mais présentent une tendance à la baisse en augmentant le diamètre du réacteur. Cette tendance peut avoir deux origines : un effet de diamètre (taille de la bille) ou un effet de nombre de billes dans le volume considéré. En effet, l'analyse est réalisée sur 627 billes dans le cas 19/3 et 143 dans le cas 9.5/3.

L'évaluation des écart-types sur 9 tranches dans le cas D/d = 19/3 (soit sur 315 billes) donne une distribution d'écart-types internes très peu différente d'une évaluation sur 18 tranches (soit sur 627 billes) (Figure 4.13). Donc les écart-types internes dépendent uniquement du ratio D/d et non du nombre de billes.
L'analyse de porosité moyenne axiale montre qu'avec des empilements de billes en réacteur étroit, la variabilité interne diminue quand le diamètre du tube augmente (mais ne dépend pas du nombre de billes).

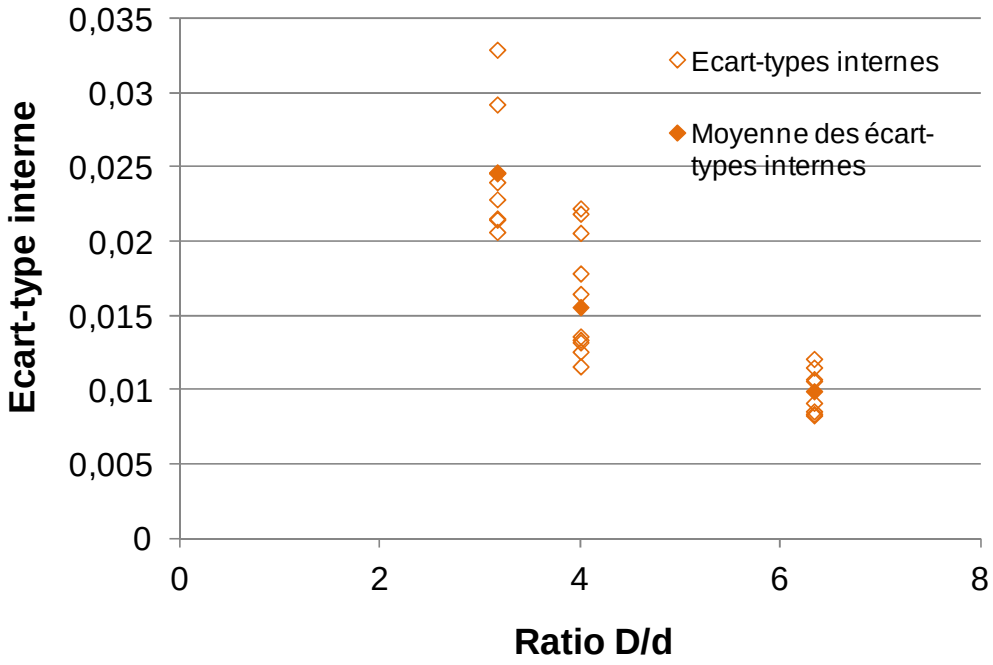


Figure 4.12 : Evaluation de la variabilité dans le lit au moyen des écart-types internes (sur 18 couches) pour toutes les répétitions des 3 cas de chargement.

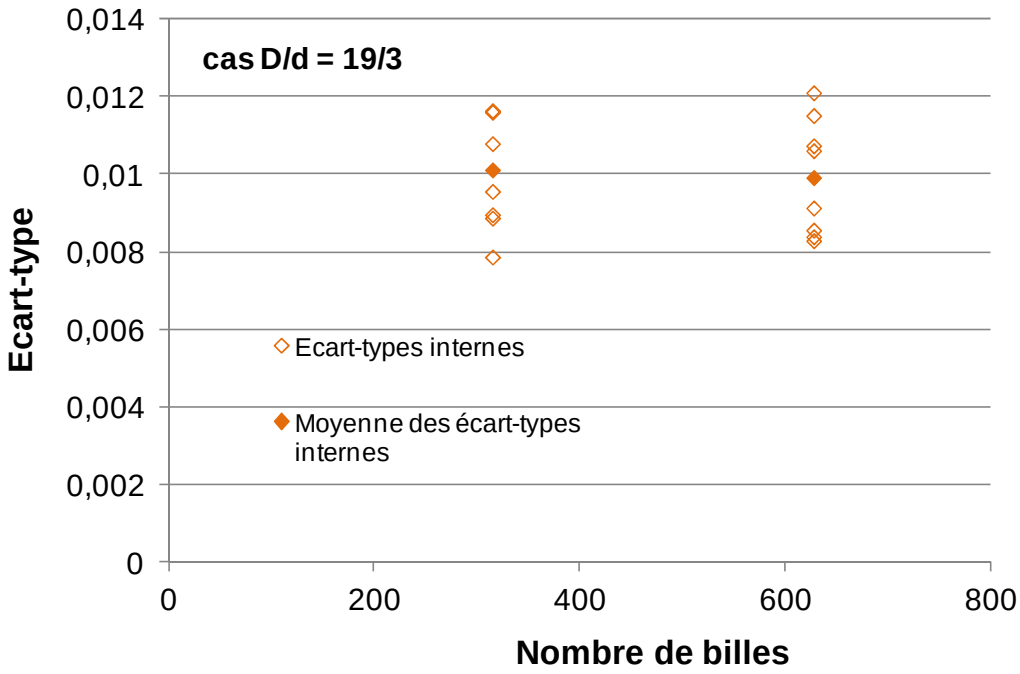


Figure 4.13 : Ecart-types internes pour toutes les répétitions du cas 19/3 en analysant sur 9 et 18 couches de même épaisseur, (correspondant à 315 et 627 billes, respectivement)

4.2.3.4 Synthèse sur la porosité axiale

L'étude de la porosité axiale a permis d'identifier :

- une zone d'épaisseur de 4 diamètres en fond de lit correspondant à la transition entre empilement contrainte par le fond et empilement aléatoire
- une zone d'également 4 diamètres de particule en tête de lit correspondant aux couches non pleines et moins bien tassées.

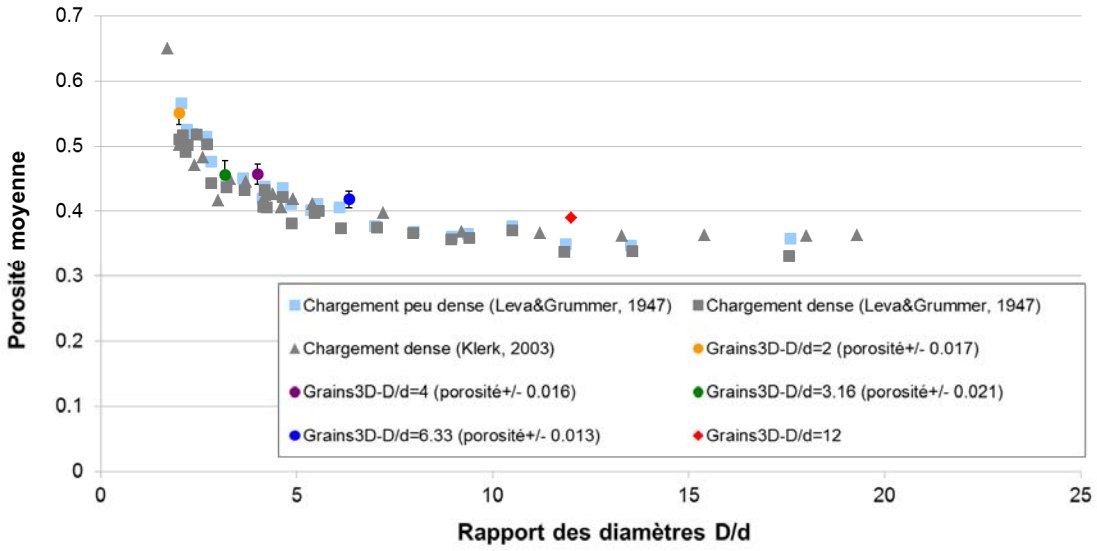
Dans la suite, ces deux zones seront exclues des analyses car non représentatives de la zone réactive des lits fixes d'unité pilote.

La porosité moyenne sur une tranche de lit présente des fluctuations quelle que soit l'épaisseur de la tranche : il n'a pas été possible de trouver une épaisseur minimale pour stabiliser la porosité axiale moyenne (à part bien sur la hauteur maximale). Dans les systèmes étudiés, une tendance à la hausse de la porosité est assez courante bien que non systématique. La variabilité interne en termes de porosité axiale ne dépend pas du nombre de billes dans le réacteur, mais plutôt du ratio *D/d*, elle diminue quand le diamètre du tube augmente.

4.2.4 Porosité moyenne

Les porosités moyennes des empilements simulés avec Grains3D ont été confrontés avec ceux des expériences effectuées par Leva et Grummer [2] et Klerk [5] avec des empilements de billes monodisperses (Figure 4.14). L'incertitude a été évaluée en se basant sur les répétitions des calculs selon la formule : I=2*écart type[3]. Les empilements simulés avec Grains3D présentent des densités de type chargement « dense » au sens de Klerk et « loose » au sens de Leva et Gummer.

[3] Cette définition est celle utilisée en métrologie : 95 % des points sont dans l'intervalle [m-2σ, m+2σ], m est la moyenne, et σ est l'écart-type.



Les résultats obtenus par Grains 3D sont cohérents avec les résultats expérimentaux de la littérature en termes de porosité moyenne. La représentativité de nos calculs en ce qui concerne la porosité moyenne est vérifiée sur l'état final de l'empilement (c'est à dire en fin de calcul, après la stabilisation du lit), ce qui est la méthode toujours adoptée dans la littérature.

4.2.5 Porosité radiale

4.2.5.1 Porosité radiale dans les empilements monodisperses

Les profils radiaux de porosité ont été calculés par intégration numérique en géométrie cylindrique, en effectuant une moyenne sur la hauteur et l'angle de révolution, comme décrit dans le chapitre méthodologie. Les résultats sont présentés en fonction de la distance à la paroi adimensionnée par le diamètre de particule. Dans cette représentation, la paroi est à gauche et le centre du lit à droite.

La Figure 4.15 présente le profil de porosité radiale pour les ratios D/d = 19/3, 12/3 et 36/3.

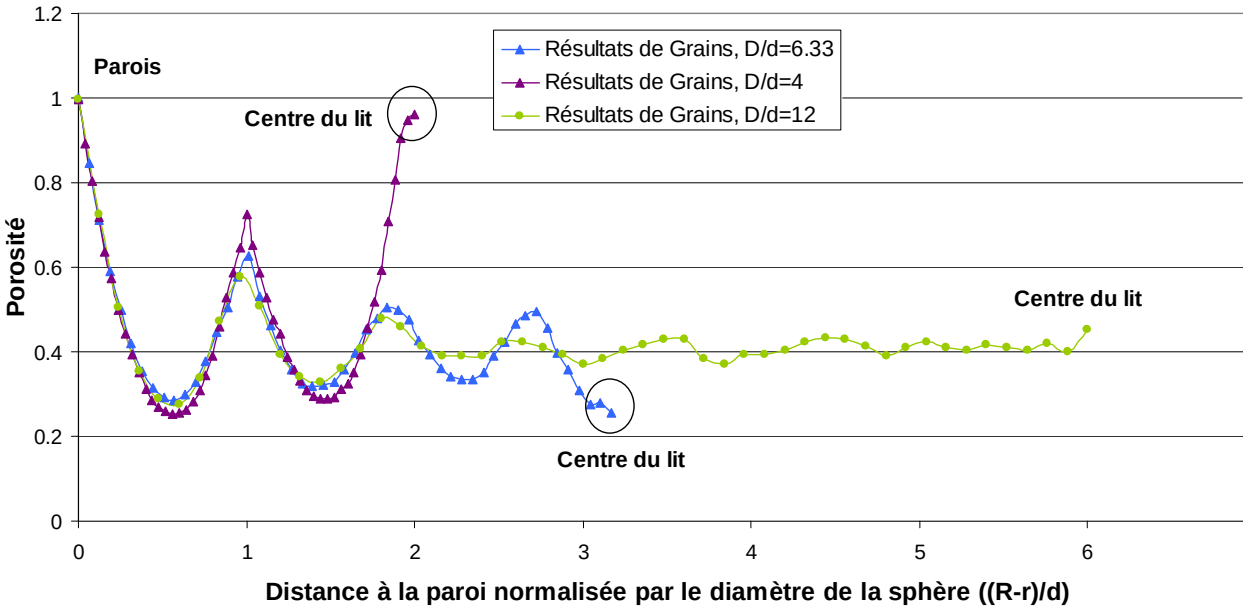


Figure 4.15 : Variation de la porosité radiale pour 3 empilements de sphères

Les courbes de porosité en fonction de la distance à la paroi présentent les caractéristiques suivantes :

- Une porosité égale à 1 en paroi (comme attendu),
- Une allure oscillatoire décroissante de la courbe (pour $D/d > 4$), similaire quelque soit le rapport de diamètre D/d,
- Les premiers extrema (maximum et minimum) sont observés pour toutes les courbes à un demi-diamètre de particule (premier minimum) et un diamètre de particule (premier maximum),
- pour les grands ratios D/d, les courbes ont tendance à se stabiliser progressivement vers le centre du lit à la valeur de porosité moyenne.

Ces résultats sont conformes aux mesures trouvées dans la littérature, par exemple Mueller [3] (Figure 4.16), avec toutefois un comportement différent près du centre si les rapports d'aspect diffèrent légèrement (Figure 4.16 en bas). Nous retrouvons le fait que la corrélation de Mueller (Équation 4.1 à Équation 4.6) ne permet pas de prédire la porosité radiale près du centre, comportement également mentionné par Suzuki [10].

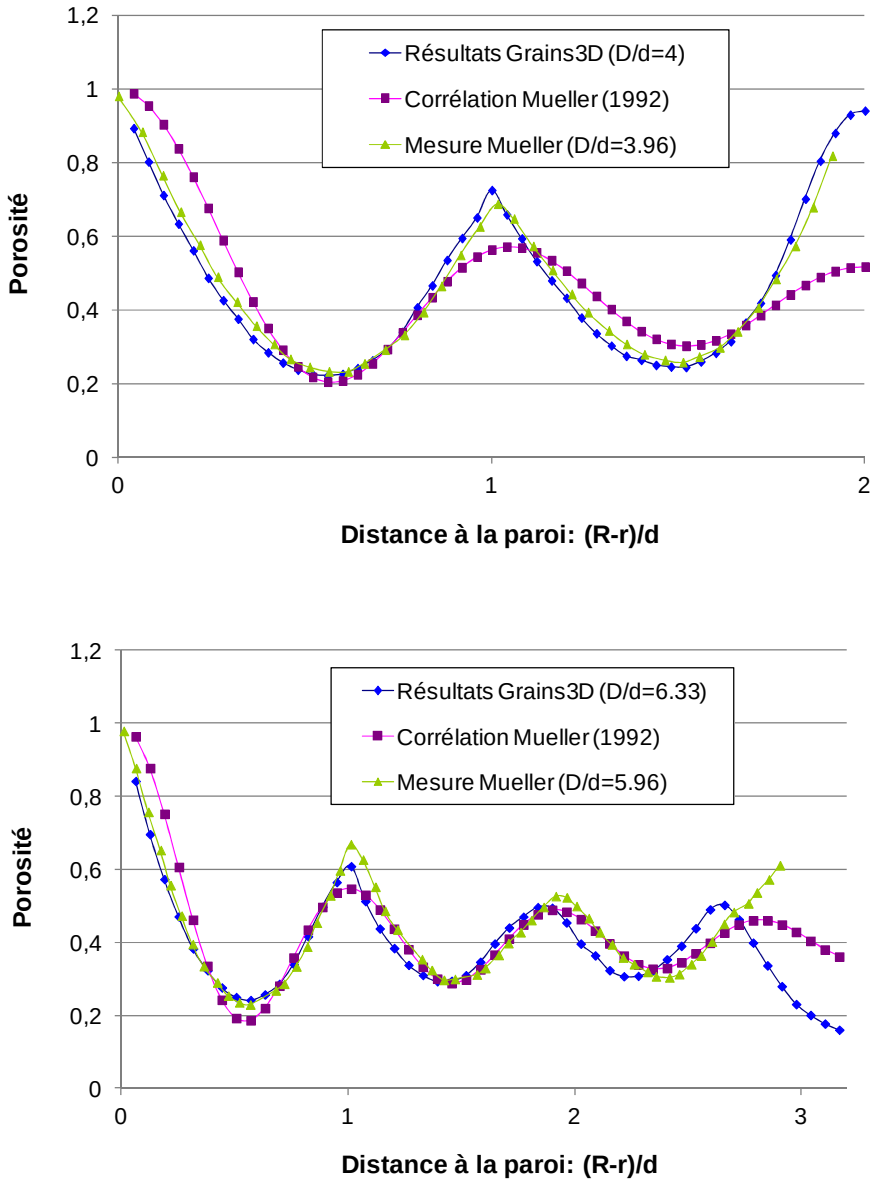


Figure 4.16 : Profils de porosité radiale-comparaison avec la littérature (Mueller)[3]

$$\varepsilon = \varepsilon_b + (1-\varepsilon_b) J_0(ar^*) e^{-br^*} \qquad \textit{Équation 4.1}$$

Avec :

$$a = 7.45 - \frac{3.15}{D/d}, \quad 2.02 \le D/d \le 13 \qquad \textit{Équation 4.2}$$

$$a = 7.45 - \frac{11.25}{D/d}, \qquad 13 \geq D/d \qquad \textit{Équation 4.3}$$

$$b = 0.315 - \frac{0.725}{D/d} \qquad \textit{Équation 4.4}$$

$$r^* = r/d\,, \qquad 0 \leq r/d \qquad \textit{Équation 4.5}$$

$$\varepsilon_b = 0.365 + \frac{0.220}{D/d} \qquad \textit{Équation 4.6}$$

La sensibilité de la porosité du centre du profil radial au ratio *D/d* est expliquée par des raisons d'encombrement géométrique permettant ou non la présence de particules au centre du lit. La Figure 4.17 représente la projection de la position des centres des billes sur un plan perpendiculaire à l'axe longitudinal du lit pour deux cas. Les billes s'arrangent sous forme de cercles concentriques, très marqués à la paroi et de plus en plus flous en se rapprochant du centre. Les particules se positionnent en priorité par rapport aux parois puis se positionnent de manière plus aléatoire en allant vers le centre. Selon le ratio *D/d*, il y aura présence ou non de billes au centre du réacteur (Figure 4.17). Dans le cas *D/d* = 19/3, la présence des billes est possible au centre, ce qui se traduit par une porosité moyenne basse. Dans le cas *D/d* = 12/3, l'encombrement au centre causé par le rapprochement des particules rend peu probable la présence de billes au centre : la porosité y est alors minimale.

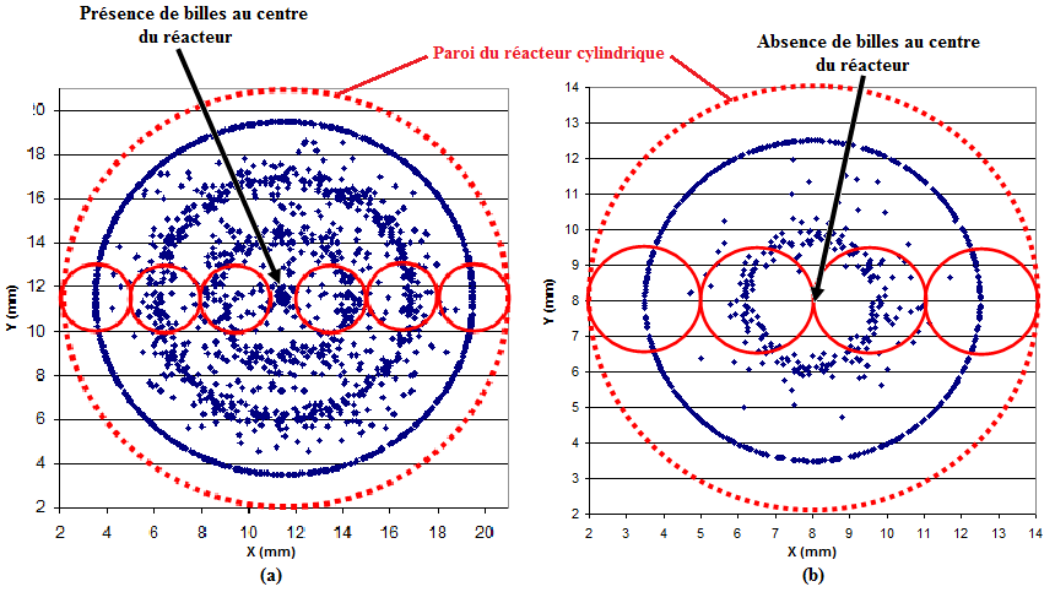


Figure 4.17 : Positions des centres des billes dans le plan (X,Y) pour des rapports d'aspects a) D/d= 19/3 et b) D/d= 12/3

La position des billes au centre du réacteur, permet d'expliquer la différence entre les résultats expérimentaux et simulations d'une part et les corrélations d'autre part. L'encombrement stérique peut changer radicalement suite à une faible variation du ratio *D/d*, ce que les corrélations auront du mal à décrire.

Un corollaire est que ces corrélations sont déconseillées pour les rapports *D/d* faibles (*D/d* < 7). Mieux vaut réaliser le calcul et intégrer la porosité.

4.2.5.2 Porosité radiale dans les empilements polydisperses

Les profils radiaux de porosité des cas monodisperse et polydisperse montrent des allures différentes (Figure 4.18). Le profil radial de porosité en empilement polydisperse s'aplatit plus rapidement (après deux diamètres[4] de bille). Près des parois, les deux profils sont très semblables du fait des parois qui obligent les particules à se structurer. Ceci est bien visible dans la Figure 4.19 qui montre les positions des centres des billes dans le cas polydisperse : près des parois trois cercles concentriques bien nets sont formés qui sont classés par taille de particule (les plus petites sont les plus proches des parois), ensuite les cercles deviennent de plus en plus flous et les petites particules ont tendance à se placer de façon à boucher les espaces vides, ce qui contribue à lisser le profil radial de porosité.

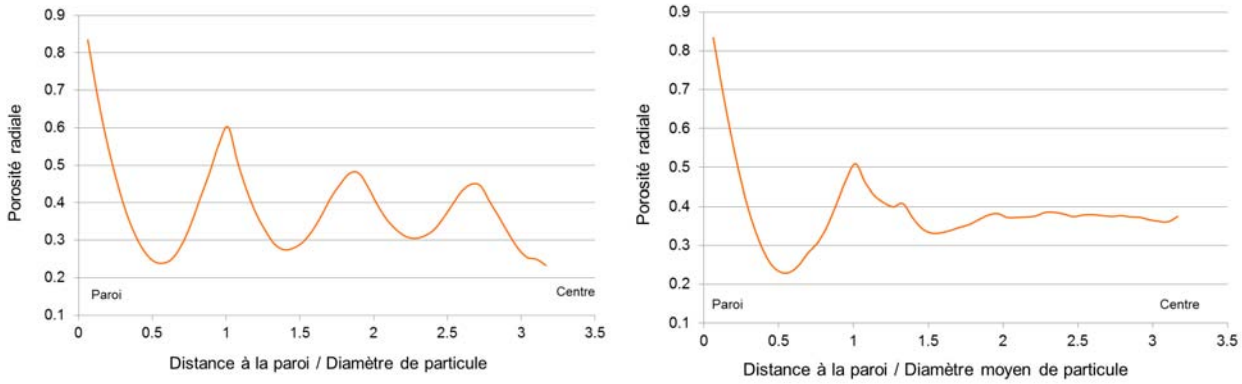


Figure 4.18 : Profil radial de porosité pour un empilement monodisperse (à gauche) et polydisperse (à droite), analyse entre une hauteur égale à 20 et 160 mm du lit, D/d = 19/3 et 19/3poly

[4] Le diamètre fait ici référence au diamètre moyen pondéré

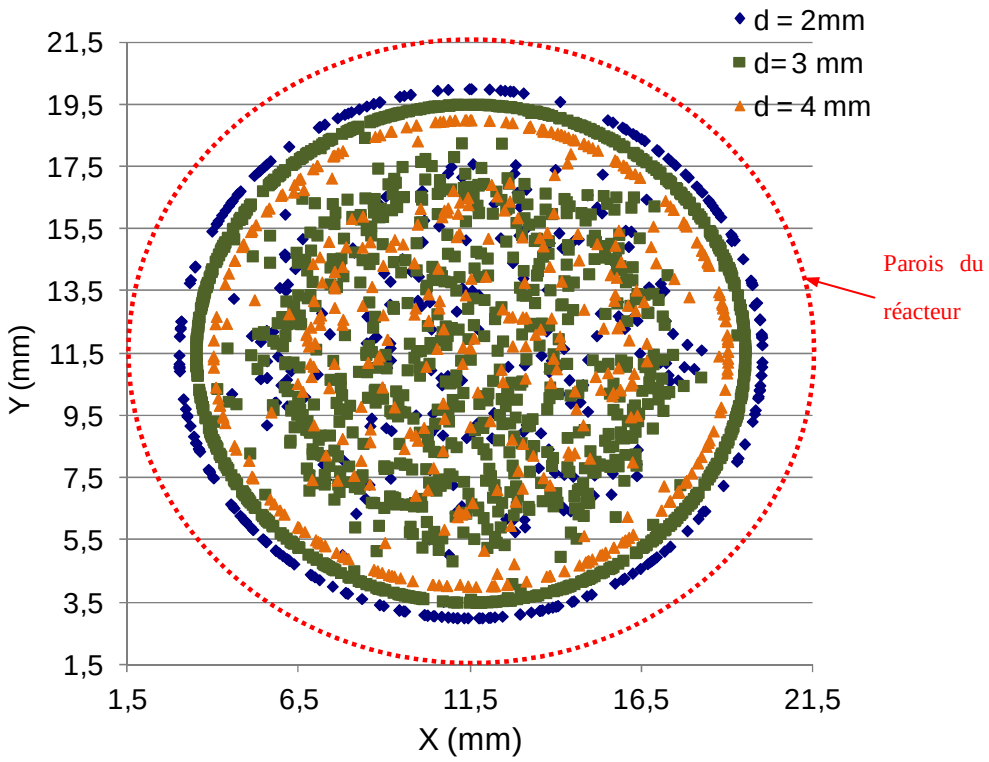


Figure 4.19 : Positions des centres des billes dans le plan (X,Y) D/d= 19/3 poly

4.2.5.3 VER sur les profils radiaux de porosité

De manière analogue à la porosité axiale, l'idée dans ce paragraphe est de déterminer une épaisseur minimale d'intégration qui permette d'obtenir des profils radiaux stabilisés.

Les calculs sont présentés pour les cas *D/d* = 19/3 monodisperse et 19/3 polydisperse. Pour mémoire, des billes de 3 mm de diamètre et des billes de 2, 3 et 4 mm de diamètres avec comme proportions respectives 20 %, 60 % et 20 % (Tableau 4.1 et Figure 4.20) sont respectivement insérées dans des réacteurs de 19 mm de diamètre fermés à leur extrémité inférieure par un fond plat. Ils sont remplis avec des billes de 3 mm de diamètre et par des billes de 2, 3 et 4 mm de diamètre ayant comme proportions respectives 20 %, 60 % et 20 % (Tableau 4.1 et Figure 4.20).

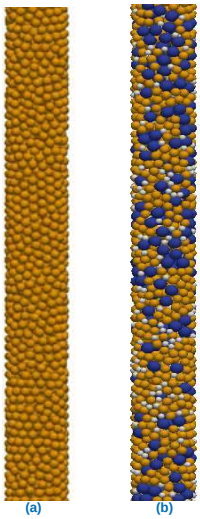


Figure 4.20 : Empilements de sphères :
(a) monodisperse et (b) polydisperse de diamètres 2 mm (gris clair), 3 mm (orange) et 4 mm (bleu)

Le principe du calcul consiste à fixer une cote $z = H_1$ comme référence et à calculer le profil radial de porosité entre H_1 et une hauteur H_2 variable. Nous recherchons l'épaisseur de lit ΔH (= H_2-H_1) minimale telle que le profil de porosité ne dépende plus ni de ΔH ni de H_1. (Figure 4.21). Comme vu précédemment, la porosité nécessite une distance d'établissement de l'ordre de 12 mm en fond de lit (4 diamètres de particule). Le sommet du lit présente une porosité plus élevée sur une couche de l'ordre également de 4 diamètres de particule. Les profils de porosité radiaux présentés dans la suite ont été calculés entre les cotes z = 20 et z = 160 mm de manière à exclure les couches près du fond du lit et les couches moins tassées en tête de lit.

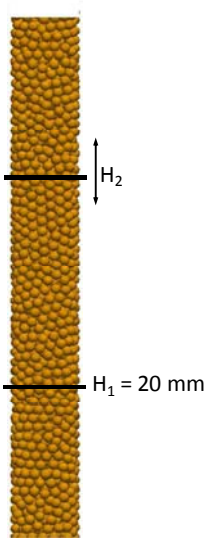


Figure 4.21 : Variation de la hauteur du réacteur pour chercher le VER

a) Empilement de billes monodisperses avec parois

Les courbes obtenues pour des billes de 3 mm dans un réacteur de 19 mm de diamètre (Figure 4.22 épaisseur entre 3 et 21 mm et Figure 4.23 épaisseur entre 20 et 140 mm) ont le même profil que celles obtenues en intégrant sur toute la hauteur de lit, mais avec des différences significatives au centre où la porosité peut varier fortement en fonction de la présence ou non de billes.

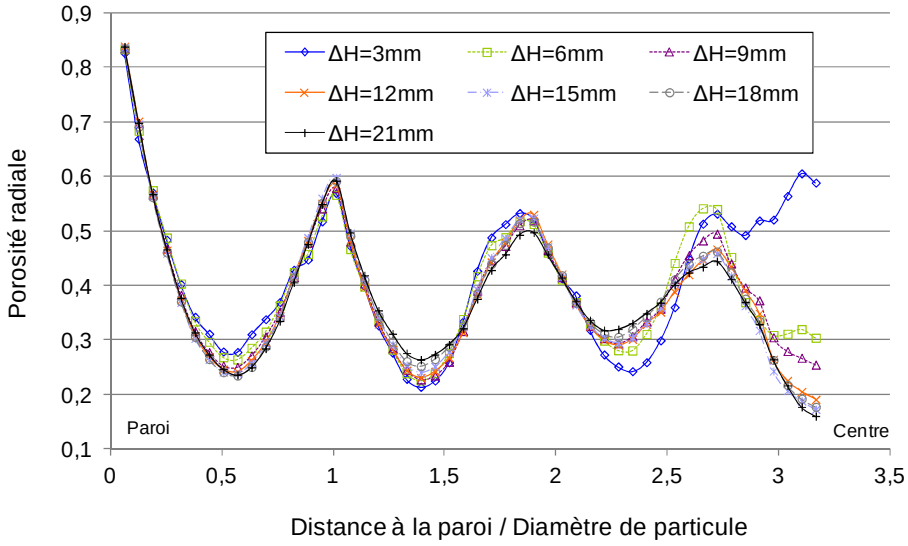


Figure 4.22 : Profil radial de porosité pour des hauteurs H de lit entre 3 et 21 mm empilement de billes de 3 mm dans un tube de 19 mm de diamètre (échelle de la bille)

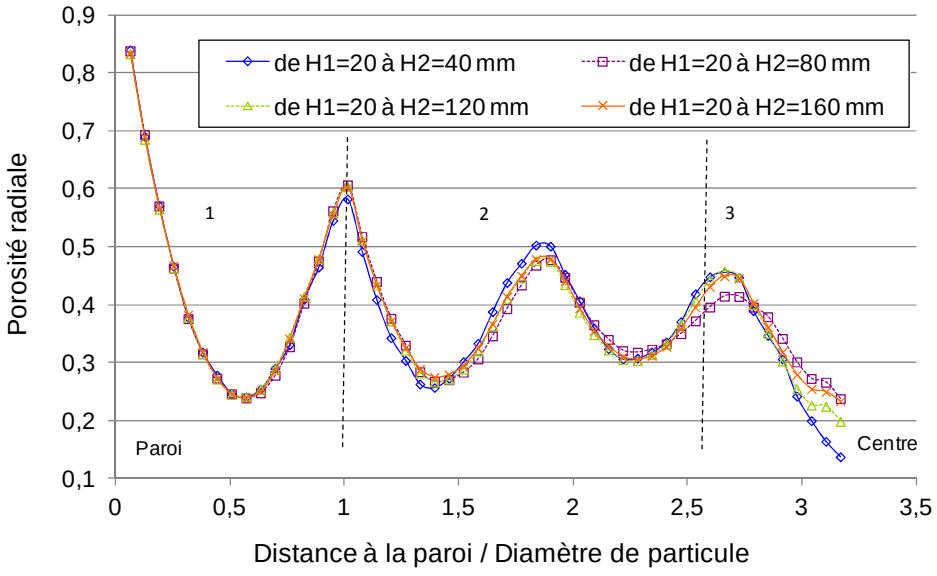


Figure 4.23 : Profil radial de porosité pour des hauteurs de lits entre 20 et 140 mm, empilement de billes de 3 mm dans un tube de 19 mm de diamètre

En proche paroi (zone 1, à 1 diamètre de particule de la paroi), les courbes convergent vers le profil asymptotique en 6 diamètres de billes (épaisseur = 18 mm, Figure 4.22). Près du centre (zone 3 à moins d'une particule de l'axe du réacteur cylindrique), une hauteur de 140 mm (46 diamètres de particule) n'a pas permis d'obtenir un profil radial de porosité indépendant de la hauteur (Figure 4.23). Dans la zone intermédiaire (zone 2), les écarts entre profils sont faibles mais non nuls (moyenne des valeurs absolues des écarts maximaux[5] est d'environ 2%). Des résultats similaires ont été obtenus pour d'autres empilements monodisperses (non présentés).

La non convergence des courbes près du centre peut s'expliquer par la présence ou non de billes au centre, et l'effet aléatoire.

b) Empilement de billes polydisperses avec parois

Le profil radial de porosité d'empilement polydisperse de billes est fortement différent du cas monodisperse (Figure 4.24) et s'aplatit à une distance de 2 diamètres moyens de particule.

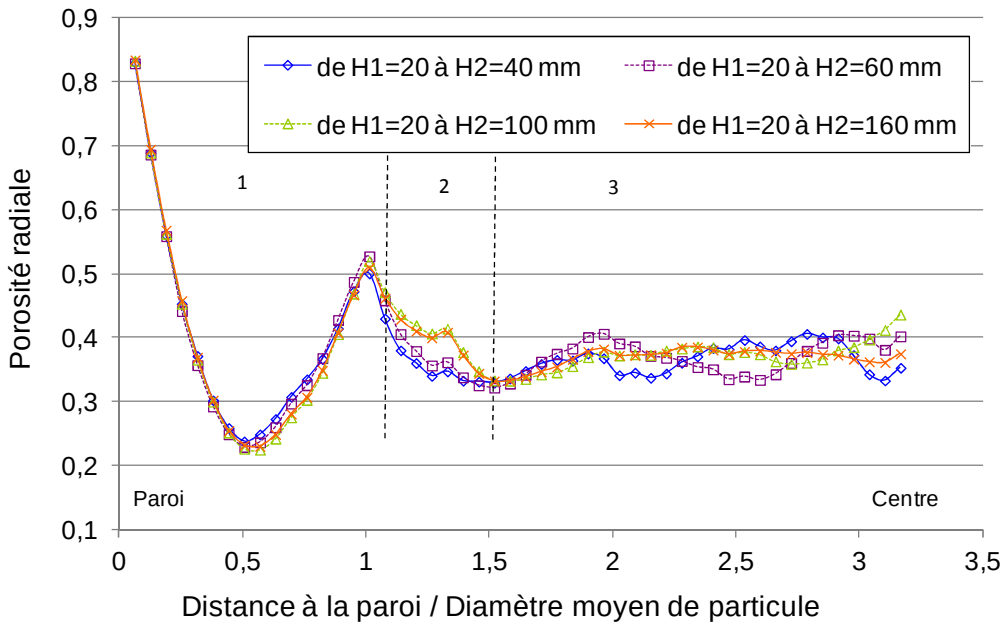


Figure 4.24 : Profil de porosité radial pour des hauteurs de lits entre 20 et 140 mm, empilement de billes de 2, 3 et 4 mm dans un tube de 19 mm de diamètre

[5] Écart calculé entre la porosité d'une épaisseur donnée et celle dans le plus grand sous domaine (d'épaisseur 140 mm)

Comme pour le cas monodisperse, trois zones sont distinguées :

- Zone 1 : pas d'effet de la hauteur du lit sur les profils radiaux de porosité car les parois empêchent une organisation aléatoire des billes.
- Zone 2 : zone intermédiaire à faible effet de la hauteur d'intégration est observé.
- Zone 3 : Les écarts entre courbes sont un peu plus élevés et la moyenne des écarts maximaux est d'environ 4%.

Pour le cas polydisperse, la convergence n'est également pas obtenue sur la hauteur examinée (140 mm). Les courbes de profil radial de porosité ne sont pas stabilisées sauf près de la paroi (moins de 1 diamètre moyen de particule).

c) Synthèse sur la recherche de VER sur la porosité radiale

Que ce soit en mono ou poly disperse, une hauteur d'intégration de 46 diamètres de particule (140 mm ~ 46 diamètre de particule) ne permet pas de stabiliser les profils radiaux. Ceci rejoint les conclusions de la recherche d'un VER sur la porosité axiale.

4.2.5.4 Variabilité sur la porosité radiale

Ici, nous nous intéressons aux variations entre des calculs répétés. Dans la Figure 4.25, la porosité radiale a été calculée sur toute la hauteur du lit hors extrémités pour le ratio D/d = 19/3 pour les 8 répétitions de chargements.

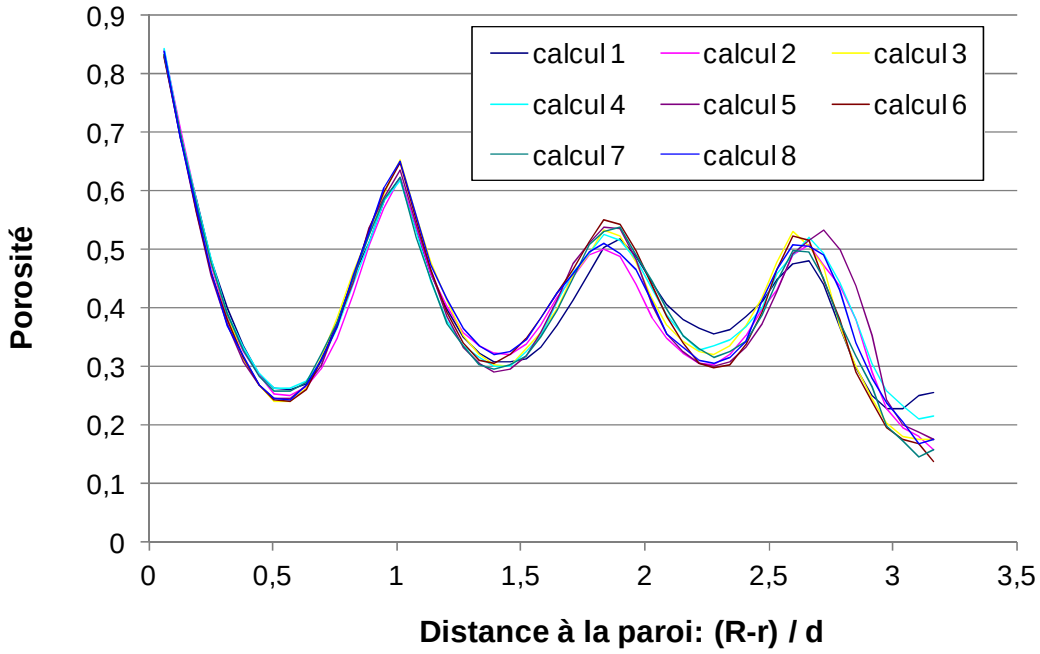


Figure 4.25 : Porosité radiale pour les calculs répétés du cas D/d=19/3 avec le mode d'injection aléatoire

Nous retrouvons les conclusions obtenues dans la recherche du VER : près des parois, les courbes se superposent du fait de la contrainte imposée par la présence des parois. Près du centre, les courbes se distinguent légèrement les unes des autres. Vers le centre, les billes peuvent se positionner de manière aléatoire et la variabilité entre calculs augmente.

Les écarts entre répétitions (Figure 4.25) et les écarts de profils dans un même lit pour des hauteurs différentes (Figure 4.23) sont du même ordre de grandeur. Cela est un indice que les écarts entre répétitions proviennent des effets aléatoires près du centre de chaque lit et pourraient être indépendants de la hauteur.

4.2.5.5 Synthèse sur la porosité radiale

En conclusion de l'étude de la porosité radiale dans les lits de sphère, en proche paroi, le positionnement des billes est contraint par les parois, ce qui conduit à une porosité répétable et indépendante de la hauteur jusqu'à 1 diamètre de particule de la paroi. Inversement, en s'éloignant des parois, les billes se positionnent de manière aléatoire. Près du centre, la présence ou l'absence de bille dépend fortement de la position et de manière non monotone du ratio *D/d*, ce qui conduit à des variations tant entre répétitions de calculs que dans la hauteur d'un même lit. Les corrélations ne peuvent pas décrire ce phénomène et sont déconseillées pour des lits à *D/d* faible (< 7). Une hauteur d'intégration de 140 mm n'est pas

suffisante pour stabiliser les profils radiaux, ce qui confirme le résultat obtenu sur la porosité axiale.

4.2.6 Synthèse sur les empilements de sphères avec et sans parois

Des empilements de sphères mono et polydisperses avec et sans parois ont été simulés et analysés en étudiant la porosité moyenne, les profils radiaux et axiaux de porosité, et en examinant les variations des résultats à l'issue de la répétition des calculs.

En bas du lit, l'empilement passe d'un mode contraint par la surface plane du fond à un mode aléatoire. En tête de lit, les couches supérieures ne sont pas pleines conduisant à une porosité plus faible et potentiellement un tassement plus faible du fait d'une moindre pression de la colonne de grains.
L'épaisseur de ces zones a été évaluée à 4 diamètres de billes chacune.

L'analyse de la porosité axiale a montré que les variations locales étaient visibles en moyennant sur des domaines de hauteur inférieure à un demi diamètre. Des variations à plus grandes échelles sont observées pour des domaines d'épaisseur plus importante et ces variations ne tendent pas vers 0 en augmentant la taille du domaine d'analyse. Bien que non systématique, une tendance à la hausse de la porosité en montant dans le lit est probable, probablement du fait d'un tassement moindre des couches supérieures.
La variabilité interne en termes de porosité axiale ne dépend pas du nombre de billes dans le sous-domaine analysé et diminue en fonction du ratio *D/d*.

Les profils radiaux de porosité sont conformes à ceux observés dans la littérature pour des ratios *D/d* identiques. Des modifications importantes sont constatées près du centre pour de légères variations du ratio *D/d*. Les corrélations ne permettent pas de décrire ces évolutions au centre et sont déconseillées notamment pour les faibles ratio *D/d*.

Le cas polydisperse quant à lui, est caractérisé par un profil radial de porosité qui est différent loin des parois, il s'aplatit beaucoup plus rapidement que le cas monodisperse et les oscillations disparaissent après 2 diamètres de billes de la paroi laissant la place à un profil plutôt constant. Ceci peut être expliqué par la présence de billes de petite taille qui s'insèrent dans les trous pour homogénéiser la porosité et masquer ainsi l'effet de la variabilité au centre.

L'analyse des profils axiaux et radiaux conduit aux mêmes conclusions concernant l'existence d'un VER (volume minimum qui soit indépendant de la position et pour lequel la porosité reste stable) : une hauteur de 140 mm (~ 46 diamètres de particule) n'est pas suffisante pour

stabiliser les profils axiaux et radiaux. Les sources de variation proviennent très certainement du positionnement des billes près du centre qui présente une absence de régularité.

Les études sur la répétabilité de la porosité radiale ont permis de mettre en évidence que près des parois, il n'y pas d'effet de l'empilement, par contre, proche du centre, les profils de porosité sont différents.

4.3 Caractérisation géométrique des empilements de cylindres

4.3.1 Liste des empilements simulés

Les empilements de cylindres ont été simulés pour des réacteurs de diamètres variés (6, 10 et 19 mm) et trois différentes distributions de cylindres : (3 mm), (1, 3 et 5 mm) et (2, 3 et 4 mm). Les pourcentages des classes de cylindres pour les deux cas polydisperses sont respectivement 25, 50 et 25 %. Le diamètre des cylindres est de 1.6 mm dans tous les cas (Tableau 4.4). Ces dimensions correspondent d'une part aux dimensions des réacteurs d'unité pilote et d'autre part au diamètre des grains extrudés les plus utilisés en raffinage pétrochimique.

Tableau 4.4 : Tableau récapitulatif des calculs des empilements de cylindre dans un réacteur cylindrique

Diamètre du réacteur cylindrique	Nom du cas	Longueur des cylindres (mm)	Moyenne des hauteurs des lit répétés (mm)	Nombre de répétitions des calculs
D = 6 mm	D6 L3	3	182.6	6
	D6 L234	2-3-4	192.2	6
	D6 L135	1-3-5	194.2	6
D = 10 mm	D10 L3	3	172.5	6
	D10 L234	2-3-4	192.5	6
	D10 L135	1-3-5	167.1	6
D = 19 mm	D19 L3	3	189.44	6
	D19 L234	2-3-4	192.9	5
	D19 L135	1-3-5	184.5	5

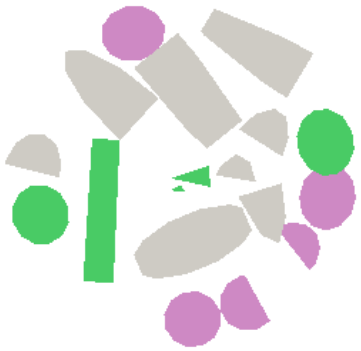
Diamètre des cylindres : 1.6 mm dans tous les cas.

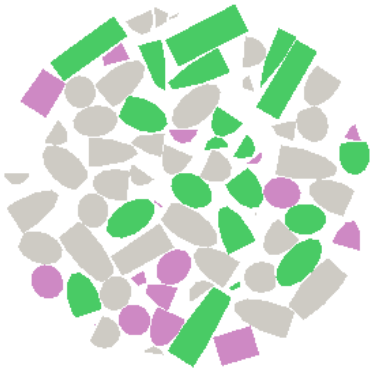
Des exemples de lits de cylindres simulés sont représentés dans le Tableau 4.5.

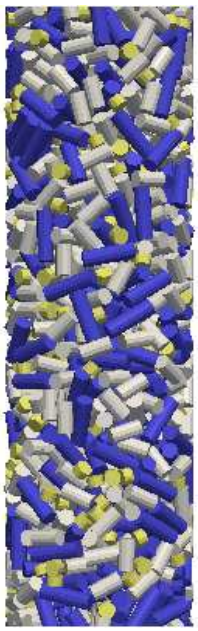
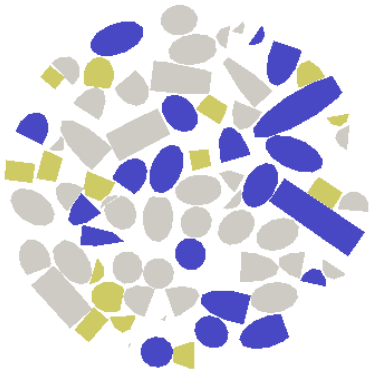
Tableau 4.5 : Tableau récapitulatif des empilements de cylindres en réacteur cylindrique

Nom du cas	**Vue 3D du lit**	**Zoom**	**Coupe dans le plan (X, Y) au centre du lit**
D6 L3			
D6 L234			

D6 L135			
D10 L3			

D10 L234			
D10 L135			

D19 L3			
D19 L234			

D19 L135			

N.B : pour les codes couleurs dans les photos : longueur de la particule grise : l_p = 3 mm, rose : l_p = 2 mm, verte : l_p = 4 mm, bleue: l_p = 5 mm, jaune : l_p = 1 mm.

4.3.2 Etude de la porosité axiale

La méthodologie utilisée est identique à celle présentée pour les sphères à la différence que les calculs sont réalisés par discrétisation du volume et intégration numérique car il n'existe pas de solution analytique au calcul du volume d'un cylindre orienté de manière quelconque coupé par deux plans. Comme pour les sphères, une plus grande variabilité de la porosité est observée au niveau de la tête du lit et de son fond (Exemple du cas D10L30 de la Figure 4.26)

- l'effet de paroi (fond) : tous les cylindres de la première couche sont au même niveau, ce qui n'est pas le cas pour les couches suivantes.
- au niveau des couches supérieures, le lit n'est pas assez tassé, et les couches sont plus poreuses.

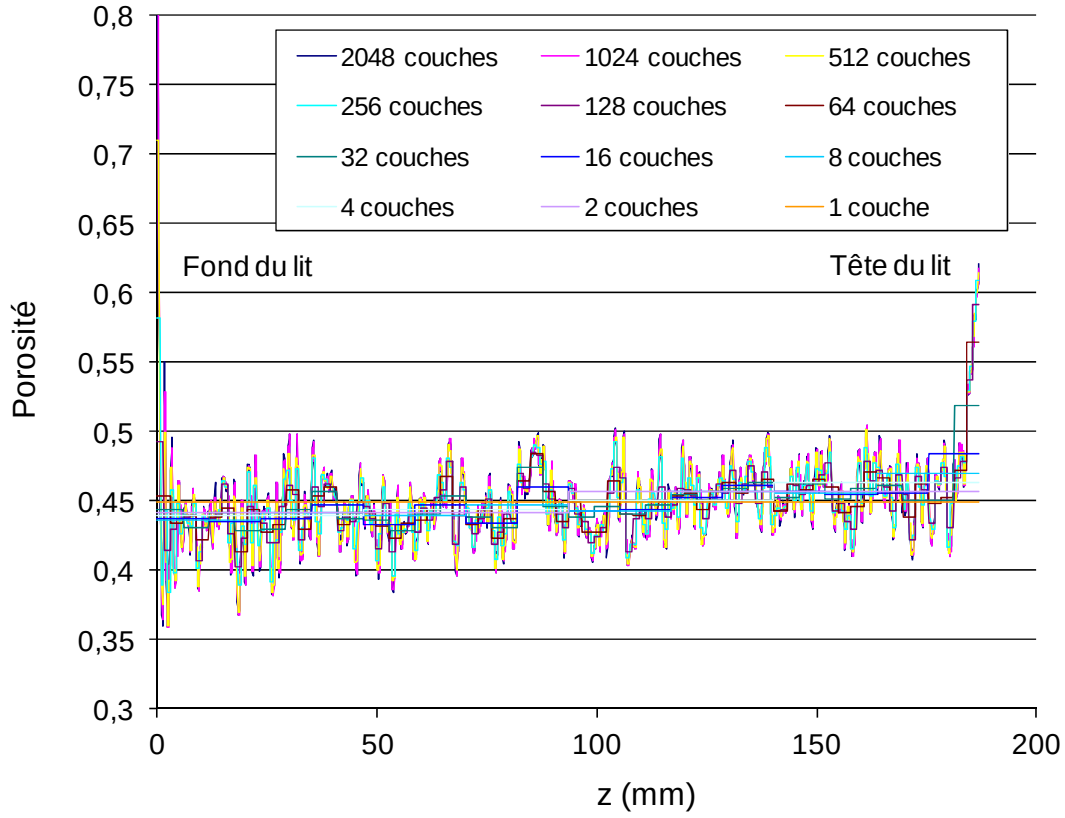


Figure 4.26 : Variation de la porosité axiale du cas D19L3, Calcul 1

Pour les tous les cas analysés, l'épaisseur du fond et de la tête du lit est de l'ordre de 6 mm soit environ 4 diamètres (ou 2 longueurs de cylindre), ce qui est l'épaisseur également constatée pour les billes.

Des pics de porosité plus élevée que le cas des sphères sont observés dans le lit. Pour les sphères la majorité des pics dépassent à peine 0.45 (Figure 4.3), mais pour les cylindres il y a plus d'amplitude qui approchent 0.5. Ceci peut être dû à la forme anisotrope des cylindres qui les contraint à se positionner de façon à créer plus de 'trous' dans l'empilement.

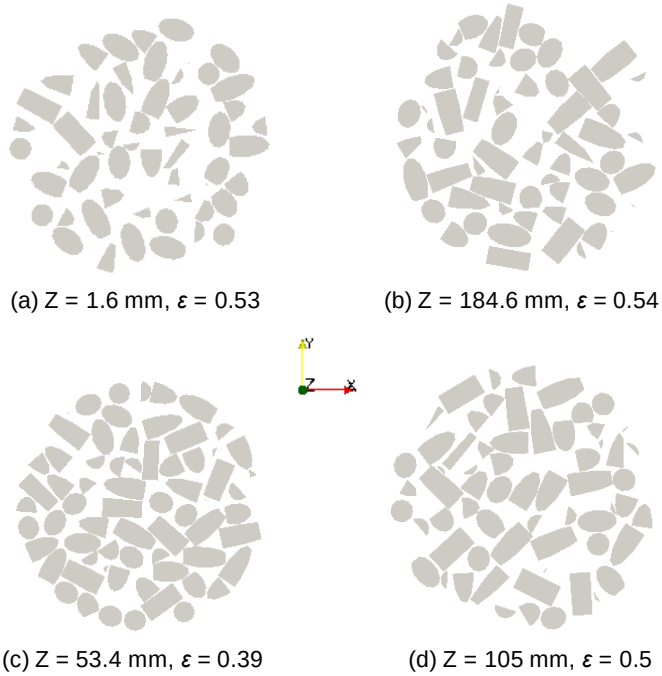


Figure 4.27 : Différentes coupes transversales dans l'empilement D19L3, Calcul 1, les coupes sont choisies ainsi : (a) zone du fond du lit (b) zone de la tête du lit, (c) minimum local de porosité en zone centrale (d) maximum local de porosité en zone centrale

Des coupes dans différents plans (x, y) ont été prises au sein de l'empilement D19L3 (Figure 4.27) afin de visualiser plus en détail la structure locale et les minimas/maximas de porosité observés dans la Figure 4.26 en zones d'entrée/sortie (coupes (a) et (b)) ainsi qu'en zone centrale du lit (coupes (c) et (d)). Il y a une forte hétérogénéité de structure qui peut être notée, ainsi que des vides entre les particules, sous forme de trous assez marqués, observés dans les coupes où la porosité est élevée (notamment les cas a et b).

4.3.3 Porosité moyenne

Les lits ont été analysés sans les extrémités (épaisseur de 4 diamètres de particule) et comparés aux travaux de Leva et al. [2], qui ont réalisé des empilements peu denses de cylindres monodisperses avec différents matériaux (Figure 4.28), différents diamètres et longueurs ce qui donne des rapports d'aspect (longueur/ diamètre équivalent) entre 1 et 1.13. Le $d_{équivalent}$ est le diamètre du cylindre équivalent à celui d'une sphère de même volume. Le diamètre équivalent pour nos particules vaut 2.258 mm. La porosité moyenne est plus importante dans les tubes de plus petit diamètre, comme attendu du fait de la contrainte d'encombrement stérique imposée par les parois.

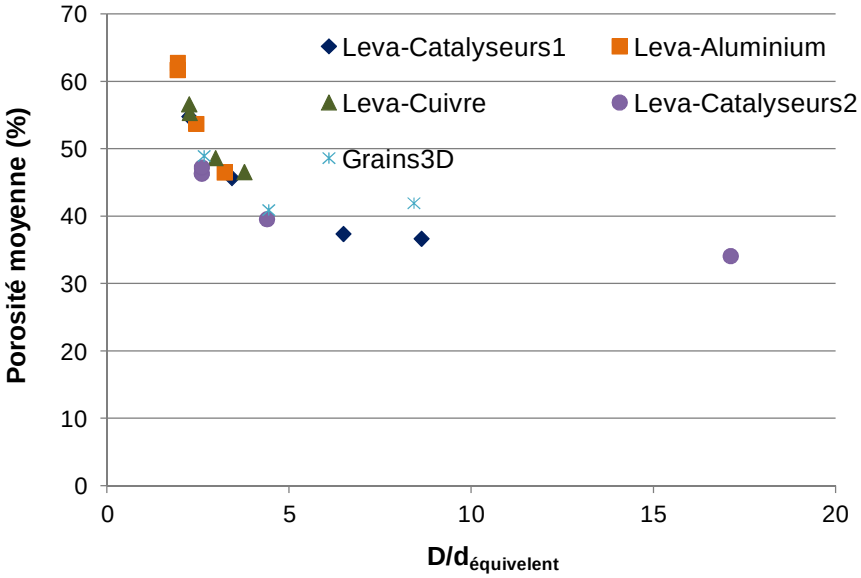


Figure 4.28 : Porosités moyennes dans des lits monodisperses de cylindres [2]

Les porosités moyennes de nos calculs (Tableau 4.6) sont comparables avec les résultats de Leva sauf pour le cas D19 L3 (cas avec un diamètre *D* du réacteur = 19 mm et une longueur de la particule cylindrique = 3 mm).

Une distribution plus étalée de longueur de cylindre (cas L135 dans tous les cas et L234 - D6) conduit à une porosité moyenne plus élevée qu'une population mono-longueur. Cette constatation est valable dans notre cas où la longueur moyenne pour les empilements polydisperses est celle utilisée dans les cas monodisperses. Un élargissement du réacteur conduit à une baisse de sensibilité à la distribution de longueur.

Tableau 4.6 : Porosité moyenne calculée pour les cas de base simulés

Cas	**Porosité moyenne**	**Porosité moyenne (Leva et Grummer** [2]**)**
D6 L3	0.49	0.5 +/- 0.05
D6 L234	0.5	
D6 L135	0.53	
D10 L3	0.41	0.41 +/- 0.05
D10 L234	0.44	
D10 L135	0.47	
D19 L3	0.42	0.38 +/- 0.05
D19 L234	0.41	
D19 L135	0.45	

4.3.3.1 Position des centres

Les cylindres sont positionnés sous forme de cercles concentriques en proche paroi et très rapidement (entre 1 et 2 diamètres selon les cas), l'arrangement devient aléatoire. (Figure 4.29). Les particules les plus longues s'empilent près des parois, les particules courtes se mettent plutôt dans les trous pour remplir les vides.

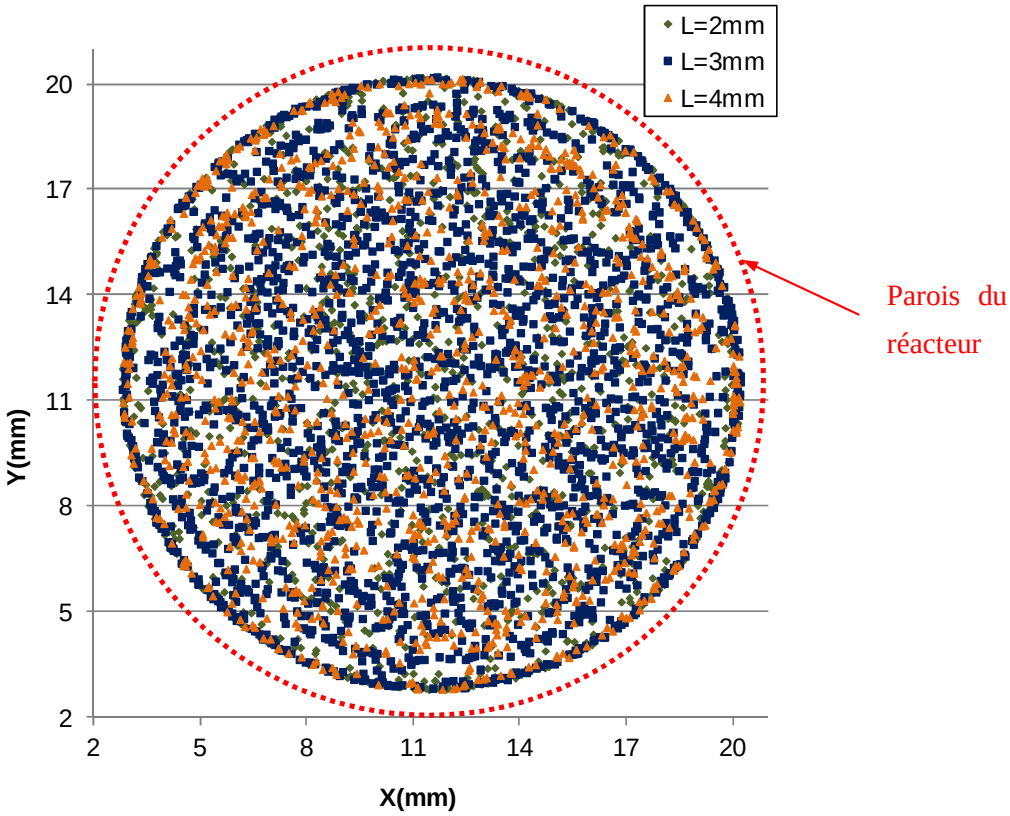


Figure 4.29 : Projection des positions des centres des extrudés dans le plan (X,Y) du cas D19 L234, Calcul 1

4.3.4 Orientations des cylindres

Les résultats numériques permettent d'envisager une étude du positionnement angulaire ce qui n'a pas été traité dans la littérature.

Dans un premier temps, nous nous intéressons à l'angle entre l'axe des particules et le plan horizontal. Un angle égal à 0° correspond à un cylindre horizontal, un angle de 90° à un cylindre vertical. Un exemple est présenté en Figure 4.30. Nous constatons que pour tous les cas et toutes les classes de particule, les cylindres sont plutôt horizontaux avec un angle

moyen par rapport à la verticale inférieur à 30°, valeur proche de celle constatée lors d'essais expérimentaux effectués à l'IFPEN.

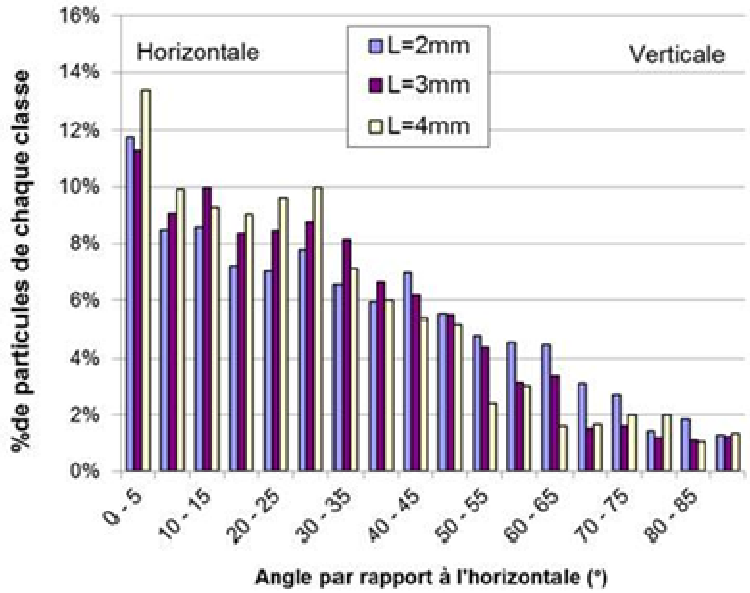


Figure 4.30 : Orientation verticale des cylindres du cas D19 L234, Calcul 1 pour les 3 classes de particules

Une autre direction intéressante est celle de l'axe des cylindres projeté sur le plan horizontal. Un angle de 0° correspond à un cylindre orienté selon un rayon, un angle de 90° correspond à un angle perpendiculaire au rayon, soit donc tangentiellement au réacteur. Un exemple de la répartition des angles « radiaux » est présenté en Figure 4.31.

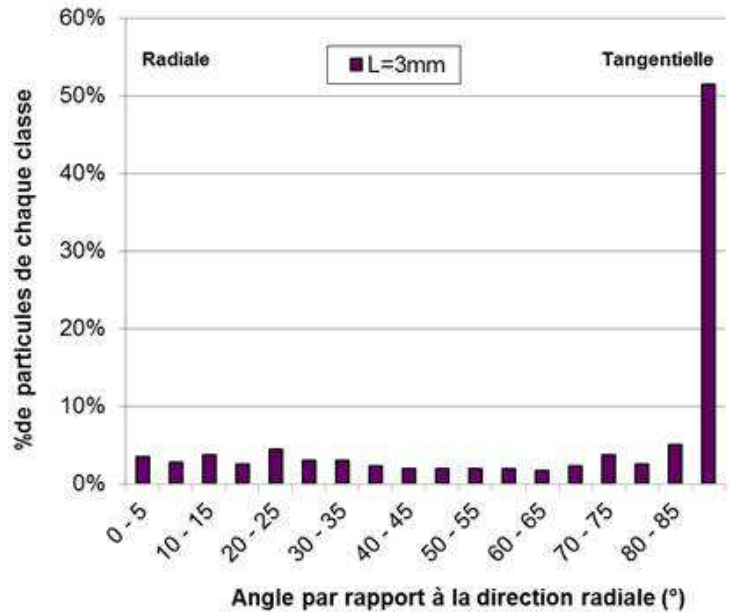


Figure 4.31 : Orientation radiale des cylindres du cas D6 L3, Calcul 4

Tous les cas calculés présentent un pic dominant dans la direction tangentielle (~ 90°). Dans les cas polydisperses L135 et certains de L234[6], il y a également présence d'un pic "secondaire" dans la direction radiale (angle égal à 0°) pour les petites particules (Figure 4.32). Les cylindres de longueur 1 mm et 1.6 mm de diamètre sont des disques de sorte que la direction de plus grande longueur est perpendiculaire à l'axe du cylindre : les orientations 0 et 90° sont analogues.

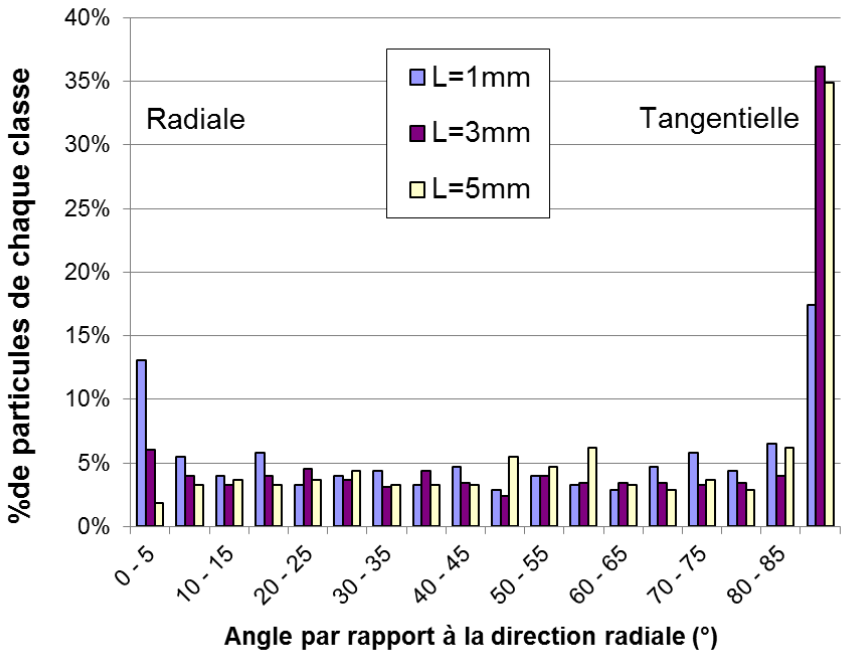


Figure 4.32 : Orientation radiale des cylindres du cas D10 L135, Calcul 1

Pour résumer, les cylindres se placent de manière essentiellement tangentielle et préférentiellement avec une orientation horizontale avec un angle moyen par rapport à la verticale de 30°. Cet angle rappelle celui utilisé dans les packings de colonne à garnissage structurés.

[6] D6L234 calcul 1 et 3 à 5, D10L234 calculs 1 et 4, D19 L234 calcul 1

4.3.5 Porosité radiale

La Figure 4.33 présente le profil de porosité radiale du cas D10 L135 ainsi que les six répétitions correspondantes. Pour tous ces cas, le calcul est réalisé sur une hauteur du lit de 150 mm en enlevant les extrémités. Les résultats sont analogues pour tous les cas.

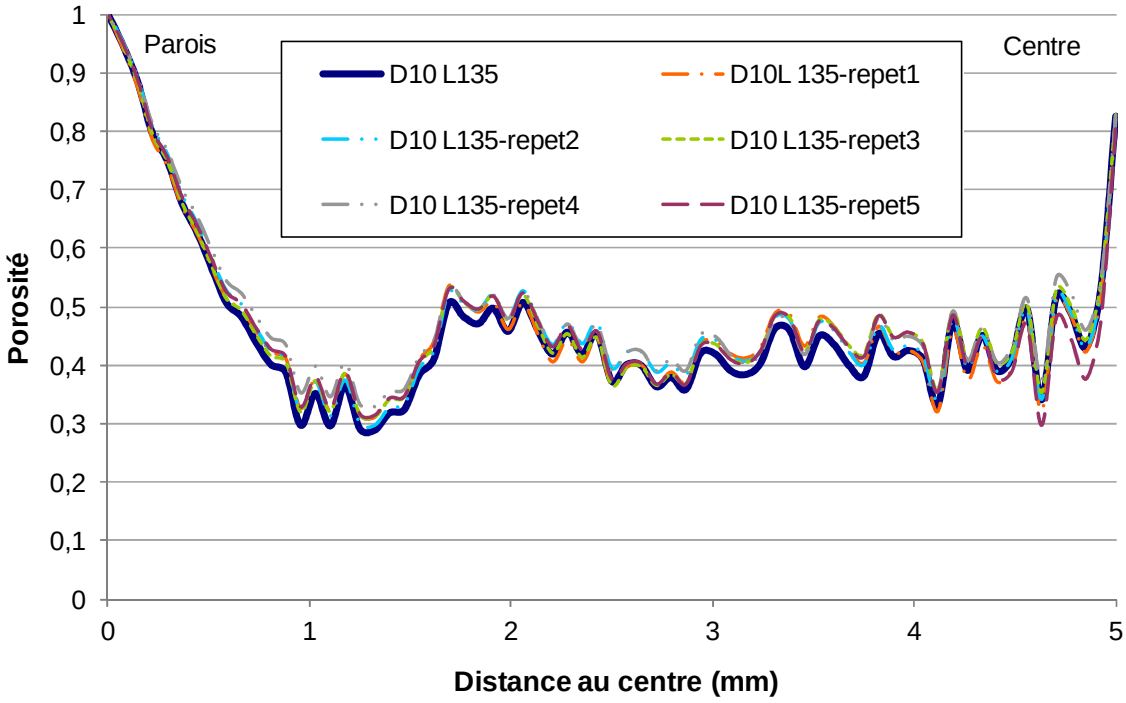


Figure 4.33 : Porosité radiale du cas D10 L135 et répétitions du calcul.

Pour les empilements de cylindres, la porosité radiale décroit de 1 aux parois en allant vers le centre. Elle atteint sa valeur minimale à 1-1.2 mm du bord, remonte à une valeur haute à 1.6-1.8 mm de la paroi (soit presque 1 diamètre de cylindre), puis reste stable pour finalement remonter nettement près du centre. Le profil de porosité radiale est plus régulier que pour les empilements de sphères.

Ce comportement du profil de la porosité radiale des cylindres est différent de celui retrouvé dans la littérature [8] avec des cylindres d'élongation 1 pour un réacteur plus grand ($D > 4\,d$). Ceci indique que les courbes de porosités pour des cylindres sont très dépendantes du cas étudié.

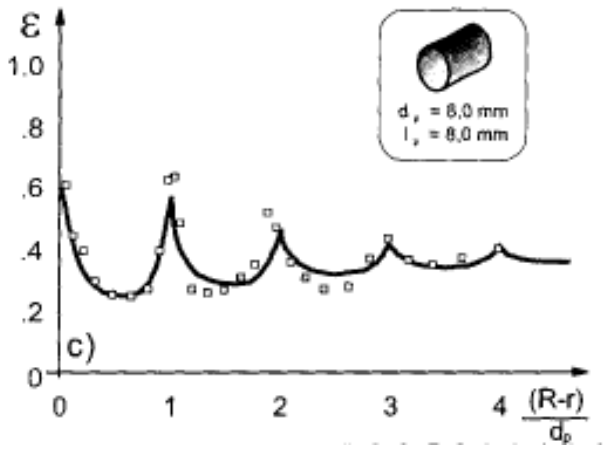


Figure 4.34 : Profil de porosité radiale pour des cylindres monodisperses d'après [8]

La répétition des calculs a un faible effet sur la porosité, en particulier au centre, ce qui est contraire aux calculs avec des billes.

4.3.6 Synthèse sur les empilements de cylindres

Dans cette partie, une analyse de la structure locale d'empilements non tassés mono et polydisperses de cylindres dans des réacteurs de petite taille a été réalisée, avec une étude, à notre avis unique, de l'effet de la distribution de taille des cylindres sur les propriétés géométriques de l'empilement et de l'effet des répétabilités des chargements.

Les cylindres sont positionnés sous forme de cercles concentriques en proche paroi et très rapidement (entre 1 et 2 diamètres selon les cas), l'arrangement devient aléatoire. Les particules les plus longues s'empilent près des parois, les particules courtes se mettent plutôt dans les trous pour remplir les porosités. Les cylindres se placent de manière tangentielle avec préférentiellement une orientation horizontale correspondant à un angle moyen par rapport à la verticale de 30°.

La distribution de longueur conduit à une augmentation de la porosité moyenne et ce d'autant plus que le cylindre est étroit. L'analyse de la porosité axiale a montré des pics de porosité plus importants que le cas des sphères. De la même façon que pour les sphères, les effets du fond et de la tête du lit ont été observés sur une épaisseur de 4 diamètres de particule. Au centre du réacteur, les particules cylindriques ont une position plus aléatoire que les billes, ce qui conduit d'une part à des profils radiaux très irréguliers notamment avec des distributions polydisperses et également des écarts entre répétitions d'empilement très faibles.

4.4 Conclusions sur la caractérisation des empilements

Dans ce chapitre, des empilements mono et polydisperses de billes et de cylindres dans des réacteurs de différents diamètres représentatifs des réacteurs utilisés en unité pilote ont été simulés et caractérisés. La caractérisation géométrique d'empilements de sphères et de cylindres a permis de retrouver des données expérimentales d'empilement non dense (valeur de porosité moyenne) ce qui a permis de confirmer la représentativité de nos empilements simulés.

Les points suivants ont été mis en évidence:

- L'existence de variations de porosité axiale significatives à l'échelle d'une ½ particule.
- Effet du fond lors de l'empilement : la distance pour passer d'un empilement contraint par une paroi plane à un empilement aléatoire est de l'ordre de 4 diamètres de particules.
- En tête de lit, sur une épaisseur de 4 diamètres de particule, les empilements sont moins tassés.
- Les parois sont très structurantes : à la paroi, les particules s'empilent en cercles. Cette structuration se propage vers le centre d'autant mieux que les particules sont isotropes et mono disperses.
- La porosité au centre, est la plus variable du fait de la présence ou non de particules. Une faible variation du ratio *D/d* peut conduire à de fortes variations sur l'encombrement stérique au centre et interdire ou autoriser la présence de billes.
- Les corrélations ne permettent pas de rendre compte des profils de porosité radiaux
  - à faible ratios *D/d* pour des particules sphériques mono disperses, notamment au centre,
  - dans tous les cas pour des particules polydisperses ou non isotropes (cylindres).
- Bien que non systématique et non répétable, tout du moins pour des billes, une tendance à l'augmentation de la porosité moyenne en progressant vers le haut du lit est souvent observée. Nous pensons que cela est dû à la diminution de la pression de la colonne de grains vers la tête de lit.
- L'analyse de porosité moyenne axiale montre qu'avec des empilements de billes en réacteur étroit, la variabilité interne dépend du ratio *D/d* et diminue quand le diamètre du tube augmente.

- En présence de paroi, tant sur la porosité axiale que la porosité radiale, il n'a pas été possible de déterminer une hauteur minimale conduisant à une stabilisation de la porosité (hauteur d'analyse : 140-150 mm pour des objets de 3 mm), ce qui exclut l'approche macro pour étudier ces empilements. Les réacteurs catalytiques de petite taille sont donc opérés avec des empilements non stabilisés et faiblement répétables.
- Les empilements de cylindres sont plus répétables que ceux de billes, principalement du fait de la déstructuration rapide de l'empilement en s'éloignant des parois. En absence de parois (milieux semi-infinis), les conclusions ci-dessus ne sont plus valables : le VER sur la porosité a été évalué à 6 diamètres de particule.

Cette étude de la structure de l'empilement sert de base pour connaître et quantifier les paramètres géométriques ainsi que l'effet de la variabilité de la structure locale ce qui peut influencer la réactivité des réacteurs en lit fixe. Des simulations de l'hydrodynamique seront présentées dans le chapitre suivant pour quantifier l'impact de ces variations locales de la structure de l'empilement et de la répétabilité du chargement sur l'hydrodynamique dans le lit.

5 Étude de l'hydrodynamique

5.1 Introduction

Le mouvement du fluide est responsable des phénomènes de transfert externe c'est-à-dire le transfert des réactifs jusqu'à la surface du catalyseur dans lequel se produit la réaction. Ce transfert est une étape déterminante dans le processus réactionnel, car il impacte les concentrations en surface du grain de catalyseur. L'étude de l'effet de la variabilité locale de la structure sur l'hydrodynamique est une étape intermédiaire pour mieux comprendre cet effet sur les performances du réacteur.

Dans ce chapitre, une validation du code PeliGRIFF est présentée tout d'abord pour différentes configurations d'écoulement à travers des empilements structurés de billes et de cylindres. La suite du chapitre est consacrée à l'étude de l'écoulement du fluide à travers un lit de particules sphériques ou cylindriques par l'analyse à l'échelle des pores de la perte de charge et des champs de vitesse. La perte de pression sera étudiée au travers d'empilements bipériodiques de sphères et de cylindres mono et polydisperses. Les champs de vitesse seront étudiés qualitativement, et quantitativement dans des empilements de sphères (sans et avec parois) et de cylindres (sans parois). Les effets d'un chargement aléatoire seront aussi abordés via la répétition de chargements et l'interaction entre la variabilité de la structure locale et l'hydrodynamique.

Ce chapitre sera terminé par une étude préliminaire de l'écoulement réactif avec des systèmes comprenant une seule particule sphérique ou cylindrique afin d'aller vers une compréhension plus détaillée du lien entre la structure aléatoire du lit et les performances réactives dans une prochaine étape de l'étude.

5.2 Validation de PeliGRIFF et sensibilité au maillage

La stratégie de validation consiste à comparer les résultats de PeliGRIFF à :

- une solution analytique pour des empilements tripériodiques structurés (infinis) en régime de Stokes (Reynolds faible),
- des solutions numériques de référence dans des empilements structurés tri ou bipériodiques pour des Reynolds plus importants ($10 < Re < 140$).

Le nombre de Reynolds est un nombre adimensionnel, basé sur le diamètre *d* de la particule, la vitesse de l'écoulement *U*, la densité ρ et la viscosité μ du fluide.

$$\mathrm{Re} = \frac{\rho U d}{\mu} \qquad \textit{Équation 5.1}$$

Remarque : La gamme de Reynolds qui nous intéresse pour les lits fixes des « unités pilotes » ne dépasse généralement pas 10.

L'étude de la sensibilité au maillage permettra de quantifier l'erreur de calcul due au raffinement de la grille, et de choisir le niveau de résolution spatiale qui donne une solution 'acceptable' (à une erreur près) avec un compromis entre précision de la solution et taille du système, donc temps de calcul.

5.2.1 Empilement infini de sphères

5.2.1.1 Validation à Reynolds proche de zéro

d) Cas de référence

Pour un écoulement autour d'une sphère avec des conditions aux limites tripériodiques, il existe une solution analytique (donc exacte), proposée par Zick et Homsy, de la force de trainée en fonction des propriétés du fluide et du rayon *r* de la sphère et du domaine [96]. Dans cette approche, l'inertie du fluide est négligeable et les frottements visqueux entre le fluide et la particule associés aux efforts de pression sont pris en compte à travers une force de traînée (Équation 5.2).

$$F = 6\pi\mu r K U \qquad \textit{Équation 5.2}$$

Avec *K* : coefficient de traînée, *r* : rayon de la particule, *U* : vitesses moyenne en face de sortie et μ viscosité dynamique du fluide.

Zick et Homsy présentent les résultats au moyen du coefficient de traînée *K* (Équation 5.3) qui dépend de la compacité *c* ($c = 1 - \varepsilon$).

$$K = \frac{\Delta P \times 2r^2}{L \times 9\mu c U} \qquad \textit{Équation 5.3}$$

Les résultats de Zick et Homsy [96] concernant sa variation en fonction de la compacité sont résumés dans le Tableau 5.1.

Tableau 5.1: Valeur du coefficient de traînée d'après la solution analytique

Compacité	***K***
0.000125	1.096
0.001	1.212
0.008	1.525
0.027	2.008
0.064	2.810
0.125	4.292
0.216	7.442
0.343	15.4
0.45	28.1
0.5236	42.1

La validation de PeliGRIFF, dans cette partie, est basée sur le calcul du coefficient de trainée *K* (Équation 5.3). Le rapport *d/L* (*d = 2r* est le diamètre de la particule et *L* le coté du cube sur la Figure 5.1) a été varié pour obtenir différentes compacités *c*. La viscosité a été ajustée de façon à maintenir un nombre de Reynolds particulaire égal à 0.01.

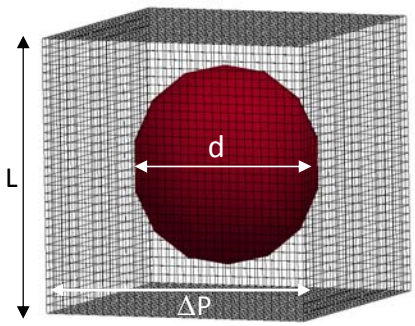


Figure 5.1: Domaine d'étude tripériodique et conditions aux limites appliquées

e) Sensibilité au maillage

La sensibilité au maillage est étudiée en comparant la solution numérique obtenue par PeliGRIFF avec la solution analytique de Zick et Homsy [96] pour différents degrés de raffinement du maillage (entre 40 et 120 points / côté du cube). La porosité pour l'étude de sensibilité au maillage est fixée à 0.45, et la valeur théorique de *K* correspondante est de 28.1.

La comparaison calcul – théorie est présentée sur la Figure 5.2.

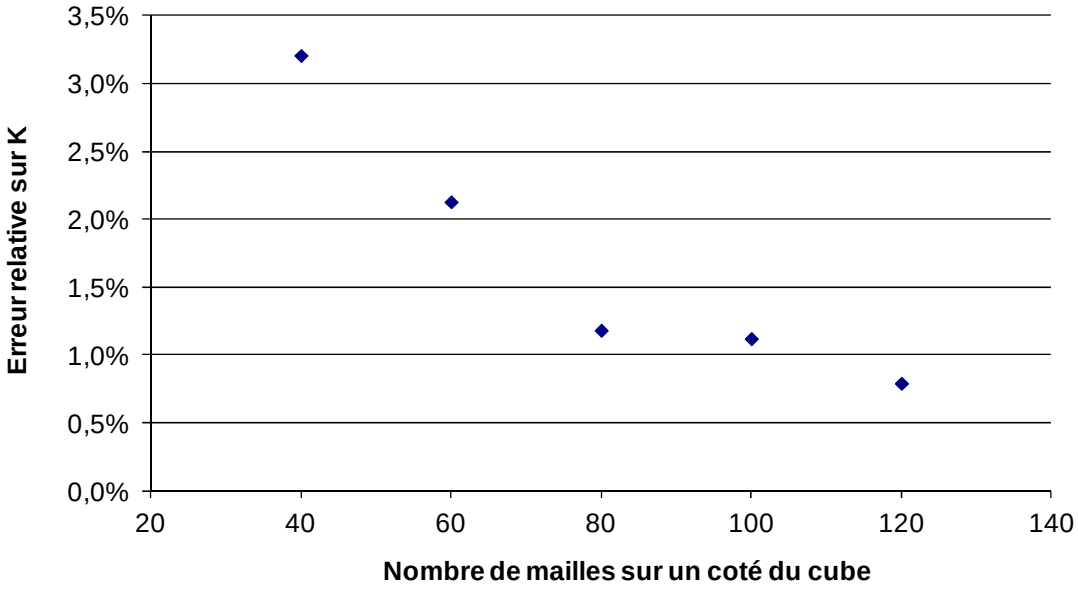


Figure 5.2: Sensibilité au maillage : erreur calculée par rapport à la valeur théorique de K selon Zick & Homsy [96]

En augmentant le nombre de mailles, l'erreur relative tend vers 0 avec un ordre de convergence [7] d'environ 1.2. Même avec un nombre de mailles réduit, la qualité de la solution PeliGRIFF est excellente. Un maillage de 40 points / côté du cube est suffisant pour obtenir une bonne solution (à moins de 3.5% d'erreur par rapport à la solution analytique). Ce raffinement de maillage sera donc conservé dans la suite : ceci correspond à un maillage de 38 points par diamètre de particule

[7] L'ordre de convergence p est la pente de la droite log(*E*) en fonction de log(*h*), tel que $\log(E) = \log(C) + p\log(h)$, h est le pas d'espace, C est une constante, E est l'erreur relative entre la solution calculée et celle de référence.

f) Calcul du coefficient de traînée pour différentes porosités

Avec la même géométrie et les mêmes conditions aux limites que précédemment (Figure 5.1) et un maillage égal à 40 points / côté du cube, l'effet de la porosité a été évalué en modifiant le diamètre de la sphère. La viscosité dynamique a été ajustée de façon à maintenir constant le nombre de Reynolds (Re = 0.01). Dans ces calculs, les billes ne se touchent pas sauf pour le dernier cas où la compacité est maximale (Tableau 5.2).

Tableau 5.2: Données de chaque simulation

Rapport *d/2L*	**Compacité (1 - ε)**	**Nombre de Reynolds**
0.124	0.008	0.01
0.186	0.027	0.01
0.248	0.06	0.01
0.31	0.125	0.01
0.37	0.215	0.01
0.43	0.343	0.01
0.47	0.45	0.01
0.5	0.5236	0.01

Les résultats sont confrontés à ceux de Zick et Homsy [96] en calculant le coefficient de traînée K (Figure 5.3). Il est constaté que les résultats sont en très bon accord, même à forte compacité. A compacité maximale dans cette géométrie (c = 0.5236), l'erreur est d'environ 3.7 % pour le maillage considéré.

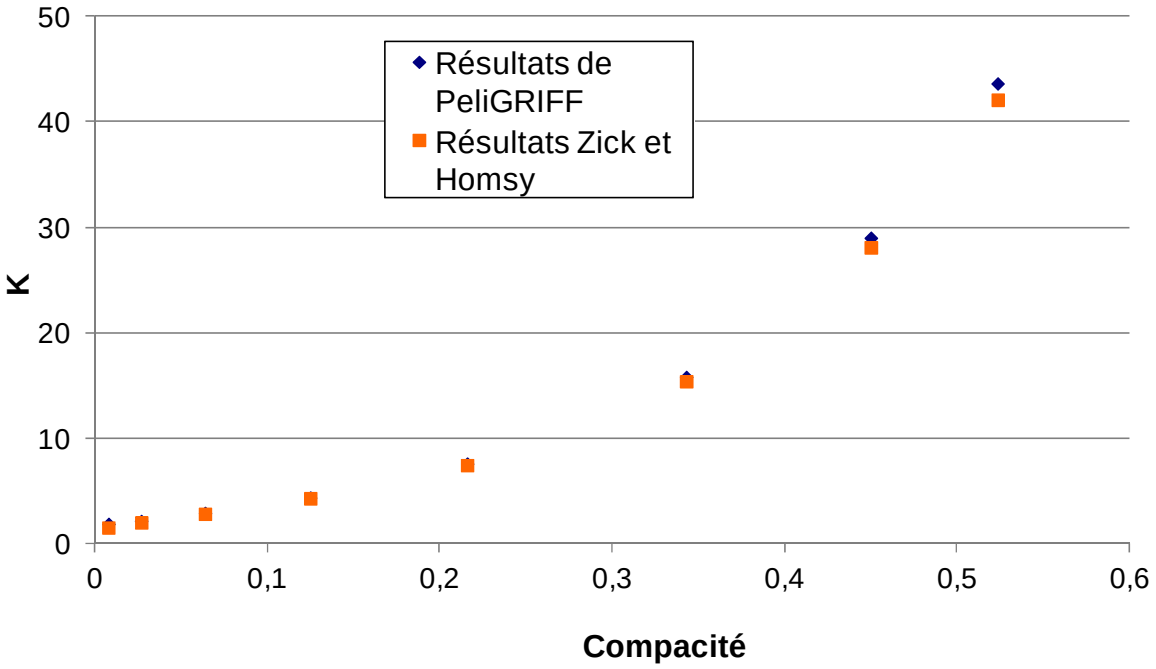


Figure 5.3: Coefficient de traînée calculé pour différentes compacités

Ces calculs effectués à différentes concentrations en solide permettent de conclure que PeliGRIFF permet de bien décrire la perte de pression à faible nombre de Reynolds en géométrie tripériodique, en particulier pour des systèmes à faible porosité (de l'ordre de 0.4), qui est le cas des lits fixe.

5.2.1.2 Validation en écoulement laminaire non rampant

Ici, le nombre de Reynolds varie entre 10 et 140.

Hill et al. [58] ont calculé les pertes de pression dans un empilement structuré et périodique de sphères en utilisant la méthode de Lattice Boltzmann pour une gamme plus large du nombre de Reynolds (Re < 140).
Pour comparer les résultats de PeliGRIFF à ceux de Hill, la même géométrie décrite dans la section précédente a été utilisée : un écoulement horizontal autour d'une sphère avec des conditions aux limites tripériodiques est simulé. La porosité vaut 0.799. Une perte de pression est imposée selon la direction x et la vitesse de sortie est ensuite mesurée. Une distribution spatiale de la vitesse U_x normalisée par la vitesse de sortie est présentée dans la Figure 5.4. Hill a présenté les résultats sous la forme d'une variable adimensionnée ψ (Équation 5.4).

$$\psi = \frac{\Delta P d}{L \rho U^2}$$ ***Équation 5.4***

U est la vitesse moyenne en face de sortie (m/s)

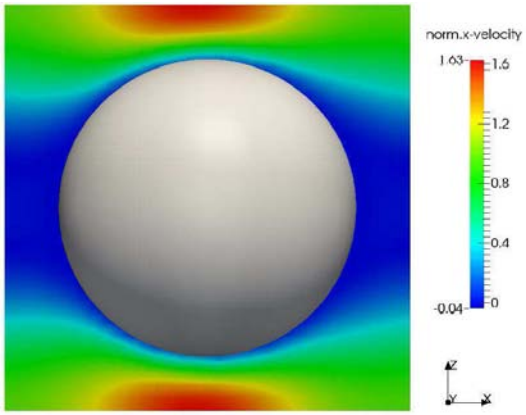


Figure 5.4 : Vitesse selon l'axe des x normalisée par la vitesse de sortie, plan de coupe pris au centre du domaine

L'écart relatif entre les pertes de pression adimensionnées (calculées par l'Équation 5.4) de PeliGRIFF et les simulations Lattice-Boltzmann est présenté dans la Figure 5.5.
En général, les résultats présentent un bon accord avec un écart relatif qui ne dépasse pas les 12 %. L'écart relatif augmente avec le nombre de Reynolds. Les nombres de Reynolds élevés (*Re* > 80) présentent un écart relatif > 7 %. Pour les bas Reynolds (< 25) qui est la gamme de Reynolds utilisée pour notre étude, l'écart relatif est < 4.2 % .

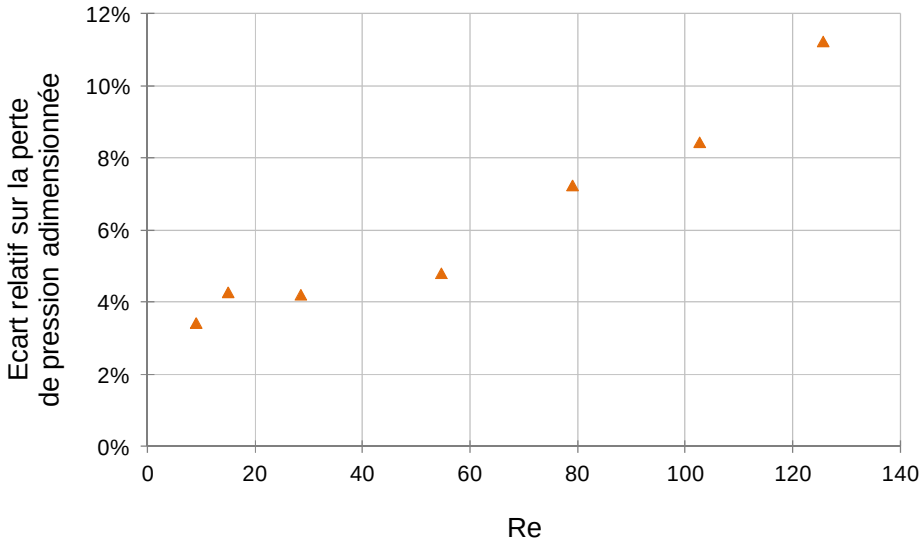


Figure 5.5 : Ecart relatif sur la perte de pression adimensionnée, simulations de PeliGRIFF vs Lattice Boltzmann issues des travaux de Hill et al. (ε = 0.799)

5.2.2 Empilement structuré semi infini de sphères

Kanarska [97] a simulé l'écoulement avec un code de DNS dans un empilement régulier de 12 sphères de diamètre 4 mm. Les parois latérales sont bipériodiques, une vitesse uniforme ascendante a été imposée en entrée à 0.02 m/s et la pression est uniforme en face de sortie (Figure 5.6). La porosité est égale à 47.64 % dans cette configuration. Le nombre de Reynolds vaut 9.41.

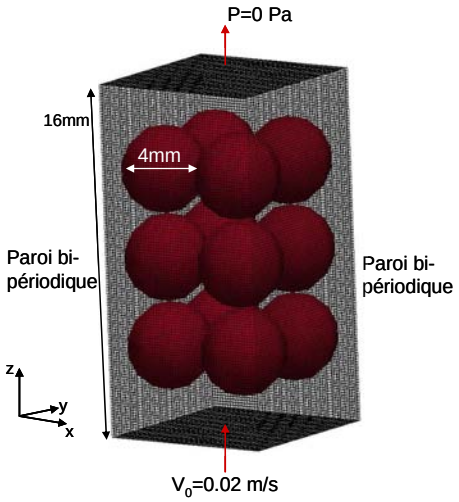


Figure 5.6 : Domaine d'étude et conditions aux limites imposées

Les calculs, reprenant exactement la même géométrie et conditions aux limites que Kanarska, ont été réalisés pour des maillages entre 8 et 128 points/diamètre de particule.

L'écart relatif sur la pression d'entrée (P_{in}) résultante est calculé par rapport à la solution obtenue avec le maillage le plus fin (= 128 points /diamètre de bille). La solution calculée converge avec un ordre 1.2 (Figure 5.7) et de manière beaucoup plus rapide que Kanarska. PeliGRIFF fournit une solution avec un écart de 5 % pour un maillage moyennement raffiné (24 points par diamètre de sphère).

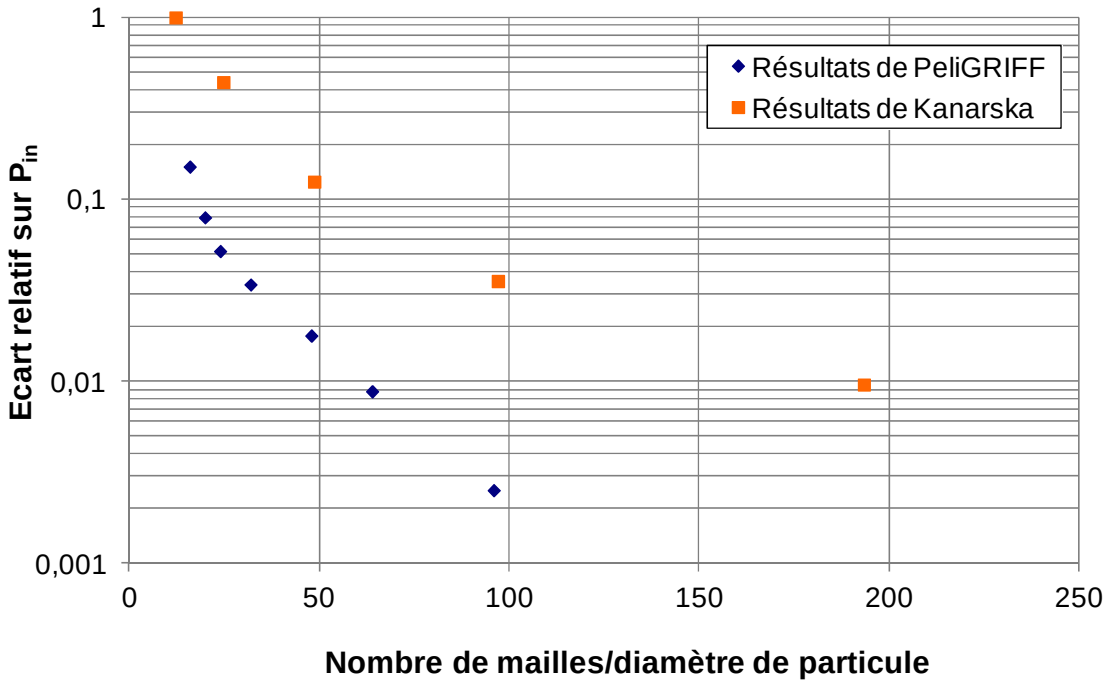


Figure 5.7 : Ecart relatif sur la pression d'entrée, Comparaison des résultats de Kanarska [97] ***et PeliGRIFF***

5.2.3 Sensibilité au maillage pour un empilement structuré infini de cylindres

L'absence de travaux dans la littérature sur des systèmes structurés de cylindres ne permet pas de comparer à une référence. L'étude de sensibilité au maillage pour le cas des cylindres est effectuée en comparant la solution obtenue pour une taille de maille donnée à la solution obtenue avec la résolution maximale. Le système étudié, est similaire à celui étudié par Hill et al. [58] et décrit dans la section précédente (§5.2.1.1) mais pour un objet cylindrique dans une boite cubique tripériodique. Une perte de charge est imposée dans la direction horizontale et le débit résultant est calculé en face de sortie.

Une particule cylindrique est caractérisée par son rapport d'aspect (anisotropie) et son orientation qui influencent l'interaction avec le fluide. Ici, le rapport d'aspect est fixé et l'orientation du cylindre est variée de façon à découpler les effets respectifs (rapport d'aspect et orientation). Pour les calculs, un cas simple avec un rapport d'aspect r_a égal à 1 est choisi. Trois orientations du cylindre sont considérées entre la direction horizontale (celle de l'écoulement) et l'axe longitudinal du cylindre: 0°, 45° et 90° (Figure 5.8 (a), (b) et (c), respectivement). Deux nombres de Reynolds ont été simulés pour représenter les régimes visqueux et inertiel (Re = 0.01 et Re = 50).

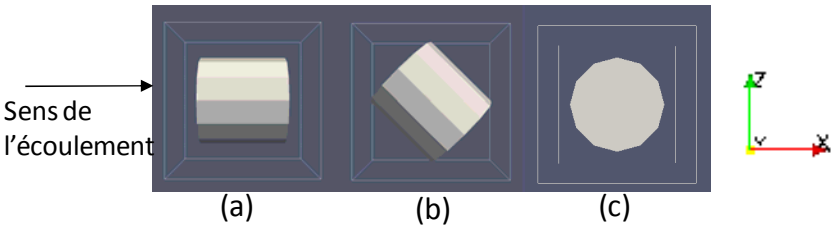


Figure 5.8 : Différentes orientations pour la simulation de l'écoulement autour d'un cylindre dans une boite tripériodique : (a)0° (b) 45° (c) 90°

La Figure 5.9 montre l'écart relatif de la vitesse en face de sortie calculé par rapport à la solution ayant le maillage le plus fin (128 points/coté du cube) en fonction du nombre de mailles par diamètre de particule $d_p/\Delta h$ pour les trois orientations et nombres de Reynolds considérés. Δh représente la différence entre une taille donnée de la maille et celle de référence (cas avec 128 mailles/coté du cube, donc la taille d'une maille est 1/128 m).

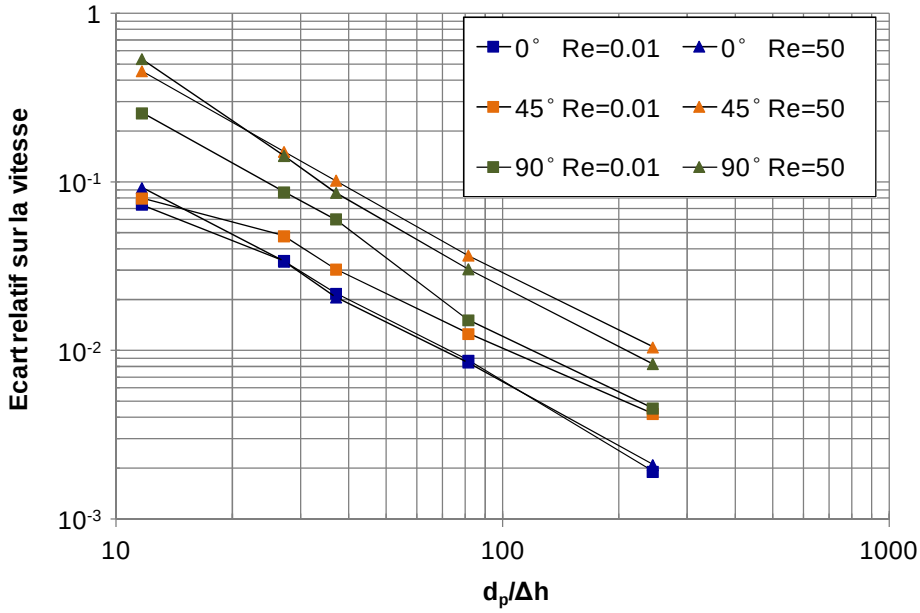


Figure 5.9 : Ecart relatif sur la vitesse de sortie (ε = 0.799 et r_a = 1)

Un écart relatif plus important est observé quand le nombre de Reynolds augmente. La convergence en maillage dépend de l'orientation du cylindre. Du fait des conditions aux limites tripériodiques, les écoulements ont une structure différente pour chaque orientation. Avec une orientation de 0°, le fluide passe autour du cylindre et ne circule pas dans la zone entre les deux cylindres (zone morte). Avec une orientation de 45°, l'écoulement se stabilise en haut de la cellule : la perte de pression est plus faible pour la succession plan incliné / cylindre (haut) que pour la succession cylindre / plan incliné (bas). En effet cette dernière

conduit à un décollement des lignes de courant. Voir les deux configurations dans la Figure 5.10.

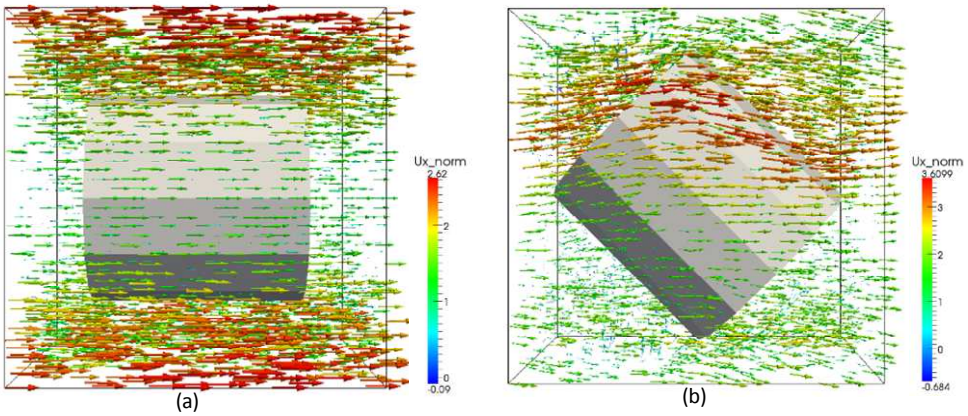


Figure 5.10 : Ecoulement autour d'un cylindre avec deux orientations différentes : (a) 0° (b) 45°

Pour les deux nombres de Reynolds simulés, un maillage qui correspond à 40 points / coté du cube (soit $d_p / \Delta h = 37$) /donne une erreur relative qui ne dépasse pas 10 % environ. Pour le régime visqueux (cas de nos simulations), une résolution de 40 points/coté du cube (soit $d_p / \Delta h = 37$) donne une erreur relative < 6 % pour les trois orientations.

5.2.4 Conclusions concernant la sensibilité au maillage

Dans cette partie, les écoulements à travers différents systèmes structurés de billes et de cylindres ont été simulés et analysés. La sensibilité au maillage pour ces systèmes a permis de choisir la résolution qui sera utilisée pour la suite du travail : 20 points / diamètre de billes (résolution qui s'avère suffisante pour un empilement bipériodique de billes avec un Reynolds proche de 10) et 32 points / diamètre de cylindre (cf. annexe D). Ces choix ont conduit à des résultats d'une bonne précision, dans les systèmes étudiés.

5.3 Description des géométries utilisées pour les calculs hydrodynamiques

Les empilements aléatoires sont générés à l'aide de Grains3D avec des conditions bipériodiques dans les directions horizontales. Les simulations hydrodynamiques sont réalisées avec PeliGRIFF également en conditions bipériodiques sur les parois. Les conditions aux limites sont : en entrée, une vitesse verticale ascendante et uniforme imposée au niveau de

la face inférieure (entrée), et une pression uniforme imposée à la face supérieure (sortie). Le Tableau 5.3 résume les cas simulés pour les lits de sphères et de cylindres.

Tableau 5.3 : Résumé des simulations de sphères et de cylindres

Série de calculs	**Nom du cas**	**Dimension de la particule (mm)**	**Nombre de Reynolds***	**Nombre de particules**	**Hauteur de chargement (mm)**	**Nombre de répétitions**
Série 1 (Cylindres)	C2	l_c = 2 d_c = 1.6 r_a = 1.25	0.37	380	40	3
	C3	l_c = 3 d_c = 1.6 r_a = 1.875	0.43	250	40	3
	C4	l_c = 4 d_c = 1.6 r_a = 2.5	0.47	180	40	3
	C234-25/50/25	l_c = 2 l_c = 3 l_c = 4 d_c = 1.6 r_a ** = 1.875	0.43	260	42	3
	C234-40/20/40	l_c = 2 l_c = 3 l_c = 4 d_c = 1.6 r_a ** = 1.875	0.42	260	42	3
Série 2 (Sphères)	S2	d_s = 1.97	0.37	380	40	3
	S3	d_s = 2.26	0.43	260	40	3
	S4	d_s = 2.5	0.47	190	40	3
	S234-25/50/25	d_s =1.97 d_s = 2.26 d_s = 2.5	0.43	272	42	3
	S234-40/20/40	d_s = 1.97 d_s = 2.26 d_s = 2.5	0.42	270	42	3
Série 3 (Sphères)	S1-0.07	d_s = 3	0.07	540	41.5	1
	S1-0.7	d_s = 3	0.7	540	41.5	1
	S1-7	d_s = 3	7	540	41.5	10
	S1-7 parois	d_s = 3	7	540	44	1
	S1-14	d_s = 3	14	540	41.5	1
	S2-7	d_s = 3	7	1000	74	1
	S3-7	d_s = 3	7	1500	108	1
	S4-7	d_s = 3	7	2000	146	1

S : sphère, C : cylindre

* Deux nombres de Reynolds peuvent être définis: un *Re* global (macro),à l'échelle de la colonne, et un *Re* local (micro) à l'échelle du pore. Ici il s'agit du *Re* local.

** r_a est calculé par rapport à la longueur moyenne (= 3mm)

Les gammes de débit et de vitesse superficielle utilisées dans cette étude sont données dans le Tableau 5.4. Pour toutes les simulations de sphères et de cylindres, le nombre de Reynolds ne dépasse pas 14.

Tableau 5.4 : Gamme de débits et de vitesses superficielles utilisée dans l'étude de l'hydrodynamique

Vitesses superficielles du fluide (m/s)	0.00011 - 0.04
Débits (m^3/s)	$7\ 10^{-9}$ - $1.3\ 10^{-5}$

La première série de simulations concerne les cylindres (série 1 dans le Tableau 5.3). Les dimensions choisies sont typiquement celles utilisées dans les systèmes industriels : trois classes de longueur de particule ont été considérées (2, 3 et 4 mm) avec un même diamètre pour tous les cylindres (d_c = 1.6 mm), ce qui correspond à des rapports d'aspect r_a de 1.25, 1.875 et 2.5. L'effet de la polydispersité a été également examiné en considérant les trois classes de cylindres dans le même empilement mais avec deux proportions différentes : 25/50/25% et 40/20/40% pour chacune des classes (Figure 5.11). Le nombre de Reynolds particulaire pour tous les cas est maintenu inférieur à 0.5. Tous les lits de cylindres ont approximativement la même hauteur qui est d'environ 40 mm. La taille du domaine dans le plan horizontal correspond à 8*8 mm^2 avec des zones en amont et en aval du lit égales à 4mm. Comme les lits de cylindres nécessitent un maillage plus fin que les sphères (cf. §5.2.4), ces domaines sont composés d'environ 25 millions de mailles ce qui correspond à une résolution spatiale de 32 points / diamètre (cf. annexe D). Avec la variation de la structure de l'empilement (longueur des particules, polydispersité des lits), l'effet de la répétition du chargement a été examiné (trois remplissages aléatoires pour chaque lit).

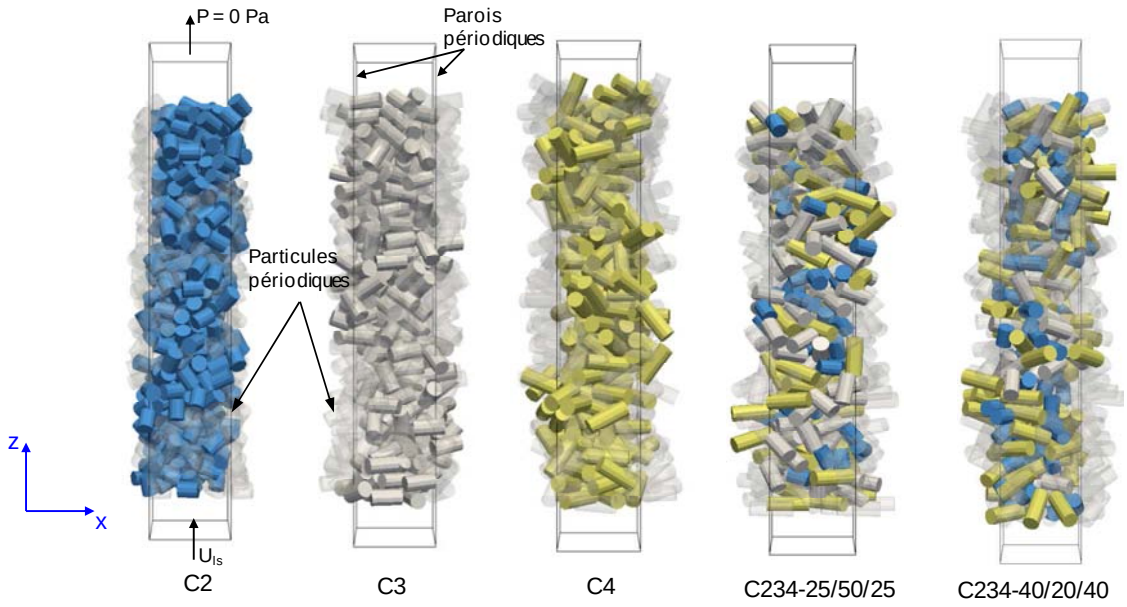


Figure 5.11 Lits de cylindres mono et polydisperses

Pour étudier l'effet de la forme des particules, des simulations de lits de sphères mono et polydisperses ont été également réalisées (série 2 dans le Tableau 5.3). Ces particules ont le même volume équivalent que les cylindres. La même taille du domaine bipériodique et le même maillage utilisé pour les simulations de cylindres ont été conservés. Plusieurs configurations spatiales de chaque cas de calcul sont aussi réalisées pour tester la répétabilité des résultats.

La troisième série de simulations (série 3 dans le Tableau 5.3), concerne des lits monodisperses de sphères avec différents nombres de Reynolds (S1-0.07, 0.7, 7, 14), différentes hauteurs de lits (S1-7, S2-7, S3-7 et S4-7) ainsi que des répétitions de l'empilement. Le diamètre des sphères (d_s = 3 mm) est celui utilisé pour les particules dans les réacteurs à lit fixe. La Figure 5.12 montre un lit de sphères avec les conditions aux limites choisies, une zone d'entrée et de sortie du fluide ont été ajoutées en amont et en aval de l'empilement pour permettre de stabiliser l'écoulement. La taille du domaine dans les directions périodiques (x et y) correspond à 18*18 mm^2. Ce qui donne un domaine composé d'environ 5 millions de mailles avec la résolution choisie qui est de 20 points / diamètre bille.

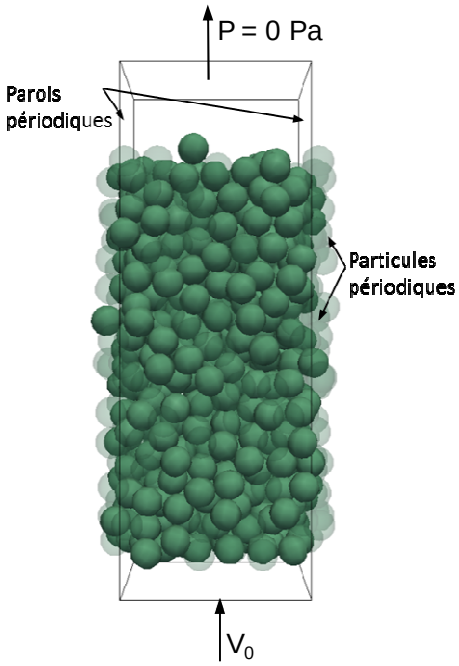


Figure 5.12 Exemple de lit de billes monodisperses, S1-7

5.4 Analyse qualitative des champs de vitesse

Une analyse qualitative des champs de vitesse est présentée pour les lits S1-0.07, 0.7, 7 et 14, c'est-à-dire des calculs pour le même empilement avec un Reynolds compris entre 0.07 et 14.

Une focalisation sur les vitesses élevées, proches de zéro et négatives sera présentée : les vitesses élevées sont intéressantes car elles favorisent le transport par convection, ce qui a un rôle sur les échanges réactifs. Les faibles vitesses (ou nulles) sont liées aux zones où stagne le fluide et les vitesses négatives renseignent sur les zones de recirculation associées au degré de mélange dans le fluide. Pour comprendre les écoulements dans un lit de particules, il faut prendre en compte leur structure tridimensionnel et leur agencement qui peuvent être assez complexes : avec une coupe dans l'empilement, une zone donnée du lit peut sembler avoir une forte porosité (donc une vitesse forte y est attendue), mais la structure locale des particules peut aussi créer une barrière qui empêche le fluide d'arriver dans cette zone à forte porosité.

5.4.1 Vitesses élevées

Des vitesses verticales élevées sont observées : jusqu'à $U_z = 17*U_{ls}$. U_{ls} étant la vitesse superficielle liquide. Les zones à vitesses élevées ($U_z/U_{ls} > 10$) sont peu allongées avec une longueur d'environ un diamètre de bille et une largeur qui ne dépasse pas le demi-diamètre

(Figure 5.13). Pour tous les nombres de Reynolds simulés (lits S1-0.07, 0.7, 7 et 14), les mêmes observations ont été faites : les zones de forte vitesse sont uniformément réparties dans l'empilement (exemple du zoom présenté dans la Figure 5.14) et sont globalement aux mêmes endroits pour tous les cas.

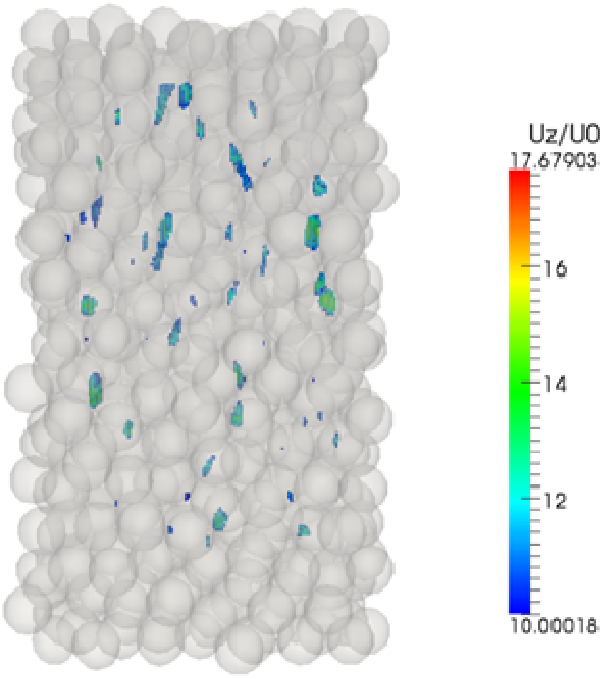


Figure 5.13 : Localisation des zones à vitesse verticale élevée normalisée par la vitesse d'entrée ($U_z / U_0 > 10$), S1 - 0.7

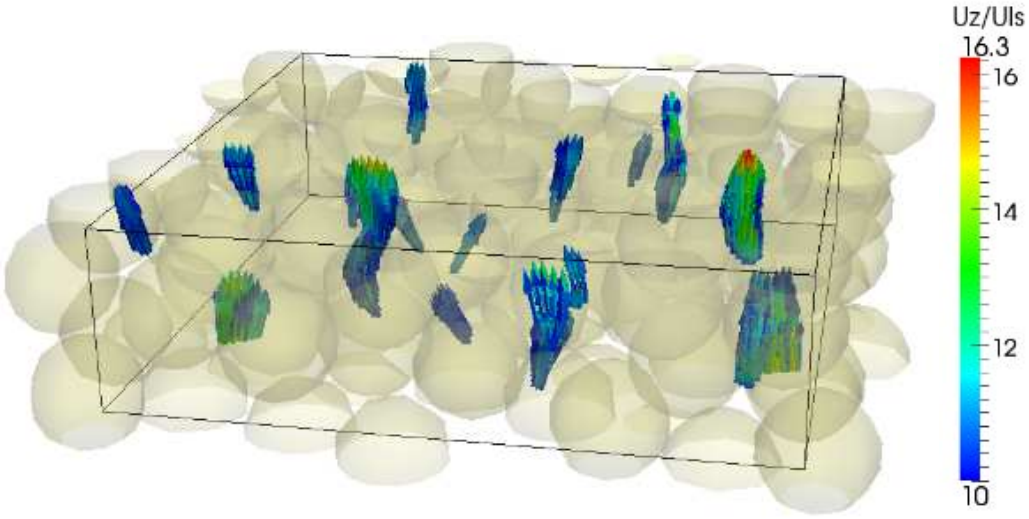


Figure 5.14 : Zoom sur une partie du lit montrant les zones à vitesse verticale élevée normalisée par la vitesse d'entrée ($U_z / U_{ls} > 10$), S1 - 0.7

Les vitesses locales élevées ont aussi comme contrepartie la présence de zones à faible vitesse.

5.4.2 Faibles vitesses ascensionnelles

Pour tous les nombres de Reynolds simulés, les vitesses ascensionnelles proches de zéro mais non nulles ($0.0001 < U_z/U_{ls} < 0.5$) sont surtout localisées autour des particules et dans les zones où les particules sont assez rapprochées les unes des autres. Les zones à faibles vitesses forment parfois de petits canaux entre les billes (Figure 5.15). Ces zones à faibles vitesses peuvent représenter des zones stagnantes, le fluide n'y est quasiment pas en mouvement et à cet endroit le transfert à la surface du grain se fera essentiellement par diffusion. On observe aussi des zones avec un écoulement horizontal (Figure 5.16).

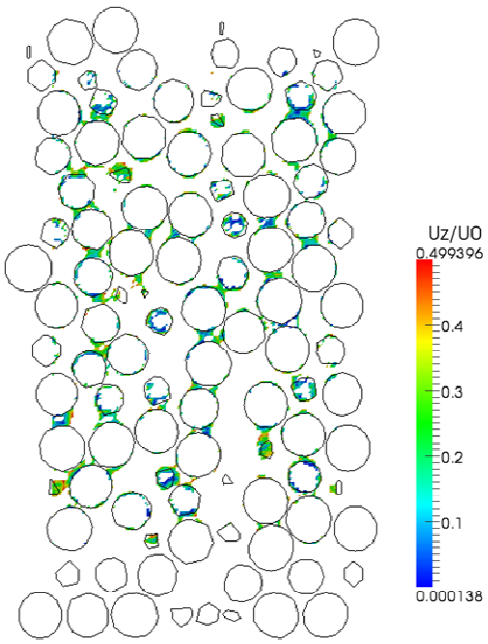


Figure 5.15 : Coupe de l'empilement montrant les zones de faible vitesse ($0.0001< U_z/U_{ls} < 0.5$), S1 - 0.7

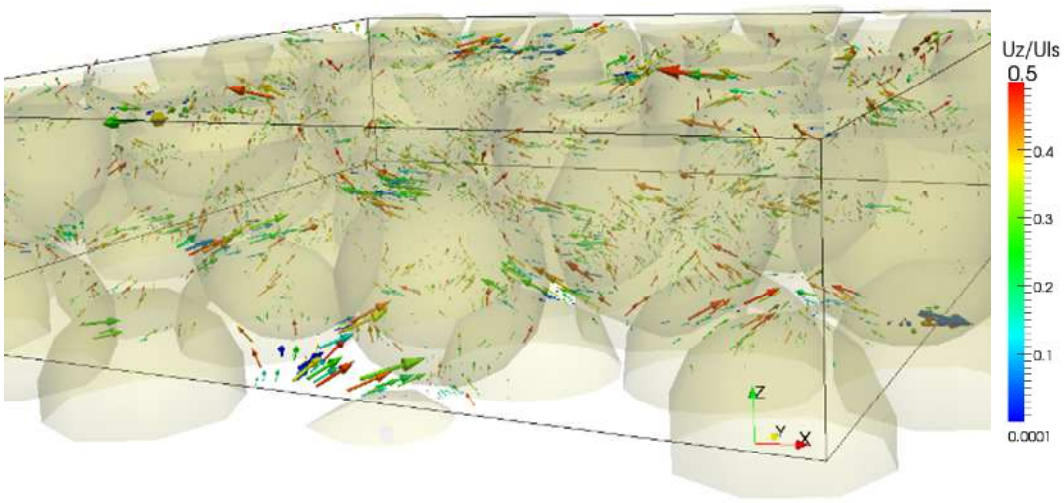


Figure 5.16 : Vecteurs vitesses dans les zones de faible vitesse (0.0001< U_z/U_{ls} < 0.5), S1-7

5.4.3 Vitesses ascensionnelles négatives

L'observation de la Figure 5.17 qui présente les résultats pour les différents nombres de Reynolds, montre l'existence de zones à vitesse verticale négative, mais elles sont rares et très dispersées dans les cas d'écoulement à très faible Reynolds (0.07 et 0.07). Elles deviennent plus nombreuses quand *Re* augmente et leur répartition devient plus homogène. Par contre, leur taille reste quasiment la même pour les différents Reynolds (de l'ordre d'un quart de diamètre de bille). Le mélange du liquide par recirculation est donc rare dans les empilements aléatoires (exemple du zoom dans la Figure 5.18).

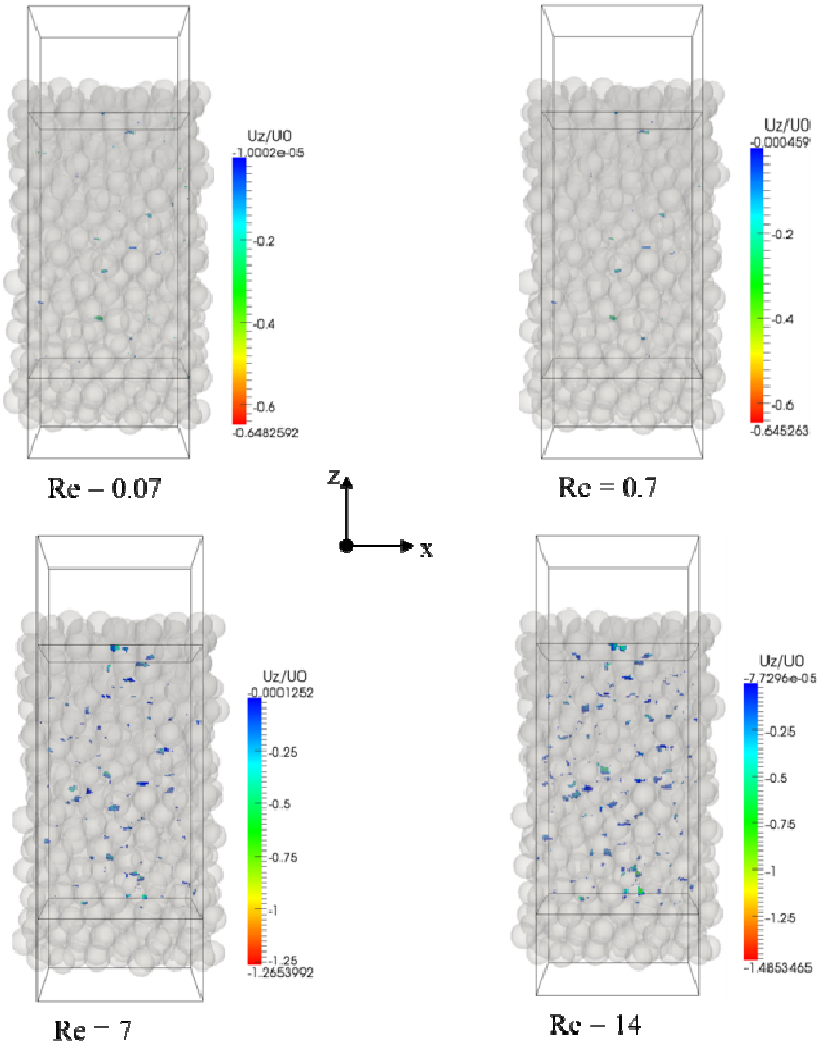


Figure 5.17 : Localisation des zones à vitesse verticale négative

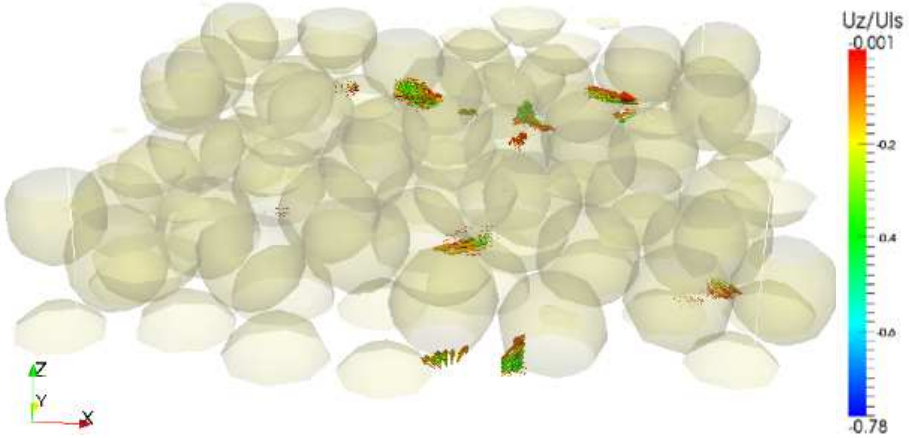


Figure 5.18 : Zoom local sur les zones à vitesse verticale négative au centre du lit, S1-7

5.5 Analyse de la perte de pression

Dans cette partie, la perte de pression dans des lits de sphères et de cylindres a été étudiée (cas C2, C3, C4 et C234, S2, S3, S4, S234, soit 1ère et 2ème séries du Tableau 5.3). Les paramètres suivants ont été considérés :

- La forme de la particule (à même volume équivalent) : sphères et cylindres,
- La taille de la particule : le diamètre des billes et la longueur des cylindres ont été variés,
- La polydispersité : pour chaque forme, différentes classes de particules (selon leur taille) dans un même lit,
- La répétition du chargement : remplissages différents avec les mêmes particules.

5.5.1 Effet des zones d'entrée/sortie sur la perte de pression

Dans le chapitre 'étude des empilements', il a été observé que la porosité du lit était différente en bas et en haut du lit sur une couche d'épaisseur = 4 d_p. Ce paragraphe vise à confirmer l'impact des zones d'entrée/sortie sur la perte de pression. Donc, l'étude complète celle sur la porosité effectuée dans le chapitre précédent. Le lit S3 a été divisé en plusieurs sous-domaines contigus d'épaisseur égale à 2 diamètres. La perte de pression est calculée aux bornes de chacun de ces sous domaines et représentée dans la Figure 5.19.

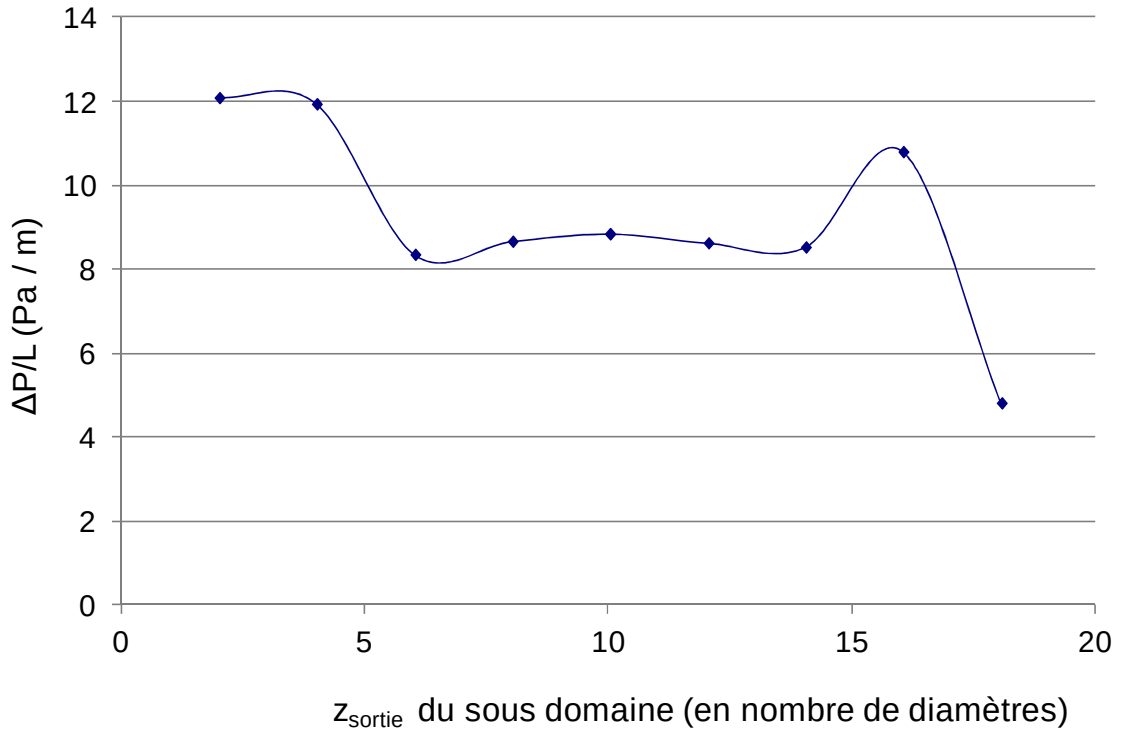


Figure 5.19 Perte de pression à travers des sous domaines contigus du lit S3

La Figure 5.19 montre qu'à une épaisseur de 4 d_p (= deux sous-domaines) du fond et de la tête du lit, la perte de pression est quasiment constante.
Pour la suite, l'analyse se fera dans des zones au centre du lit, en éliminant une épaisseur de 4 diamètres de particule en début/fin du lit de façon à se placer dans une zone où la porosité (cf. chapitre 'étude des empilements') et aussi la perte de pression sont stables.

5.5.2 Perte de pression dans des lits monodisperses

Le calcul de la perte de pression est effectué dans les lits monodisperses de billes (S2, S3 et S4) et de cylindres (C2, C3 et C4) ainsi que leurs trois répétitions respectives sans les extrémités. Comme nous travaillons à faible Reynolds, la perte de pression est étudiée sous sa forme adimensionnée par les forces visqueuses, Γ selon l'Équation 5.5.

$$\Gamma = \frac{\Delta P d^2}{L \mu U_{ls}} \qquad \textit{Équation 5.5}$$

5.5.2.1 Empilements de billes

a) Cas monodisperse

La Figure 5.20 montre que l'équation de Kozeny-Carman (Équation 5.6), qui est valable en régime visqueux, décrit bien nos résultats tant pour les calculs répétés que pour les moyennes de ces calculs avec un écart relatif maximum de 3 % calculé entre la perte de charge adimensionnée moyenne donnée par la relation de Kozeny - Carman et celle de PeliGRIFF. Comme attendu, l'équation d'Ergun sous-estime la perte de charge [57,58].

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha \frac{\mu (1-\varepsilon)^2 U_{ls}}{\varepsilon^3 d^2} \qquad \textit{Équation 5.6}$$

Avec, α = 180 pour Kozeny-Carman et α = 150 pour Ergun.

Les calculs ont été répétés pour trois chargements aléatoires du même nombre de particules, et ont conduit à des répartitions spatiales de porosité différentes dans chaque lit, ce qui permet d'évaluer l'effet de la structure sur la perte de pression. Il a été constaté que dans certains cas, une variabilité de la porosité[8] de moins de 1 % peut correspondre à une variabilité d'environ 9 % sur la perte de charge[9] (exemple du cas S3-repet3). Les écarts à la corrélation de Kozeny-Carman dépendent des répétitions des calculs : la porosité moyenne ne suffit pas à expliquer toute la variabilité sur la perte de pression. Des effets de structure locale et de tortuosité de l'empilement influencent également la perte de pression dans un empilement de sphères monodisperses.

[8] Ecart relatif calculé par rapport à la porosité moyenne des trois répétitions

[9] Ecart relatif calculé par rapport à la perte de pression adimensionnée moyenne des trois répétitions

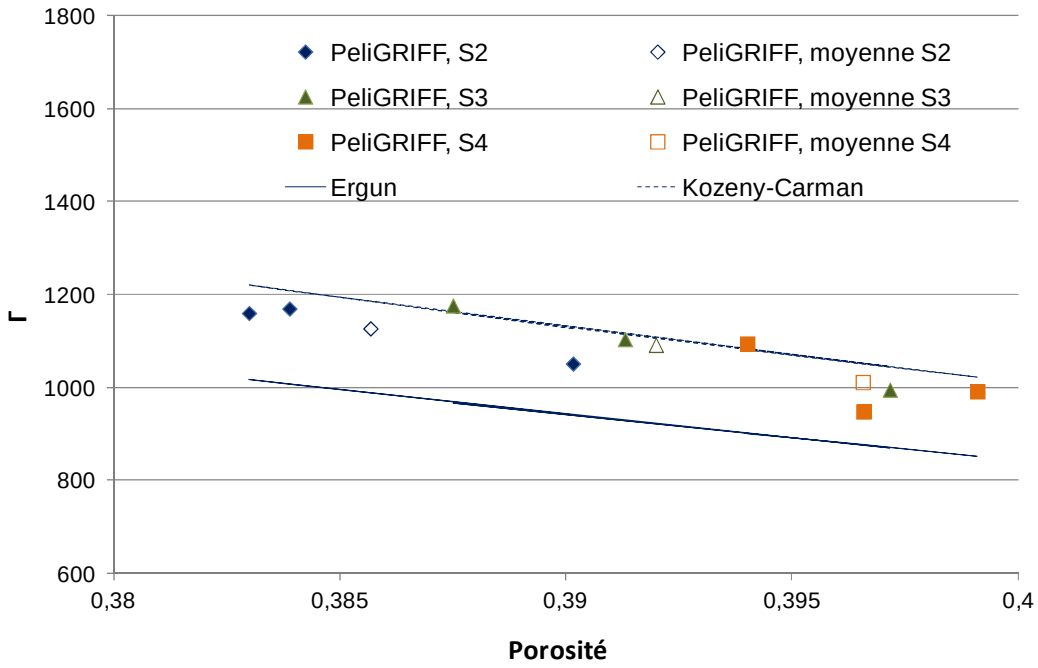


Figure 5.20 Perte de pression adimensionnée (symbole plein : valeur pour chaque calcul répété, symbole vide : valeur moyenne des répétitions) et comparaison aux relations d'Ergun et Kozeny-Carman

b) Cas polydisperse

Le chargement des lits polydisperses a été répété trois fois, de même que le calcul de perte de pression. (Figure 5.21). La variabilité de la perte de pression est un peu moins élevée que celle obtenue pour les lits monodisperses : celle-ci peut atteindre 7.5 % pour une variabilité de la porosité qui ne dépasse pas 1 % (cas S234-25/50/25-repet3), ce qui est inférieur au cas monodisperse. On peut penser que cette réduction de l'écart de variabilité entre lits mono et polydisperses de billes, est due à la présence des petites billes qui ont plus de facilité à homogénéiser la structure locale du lit.

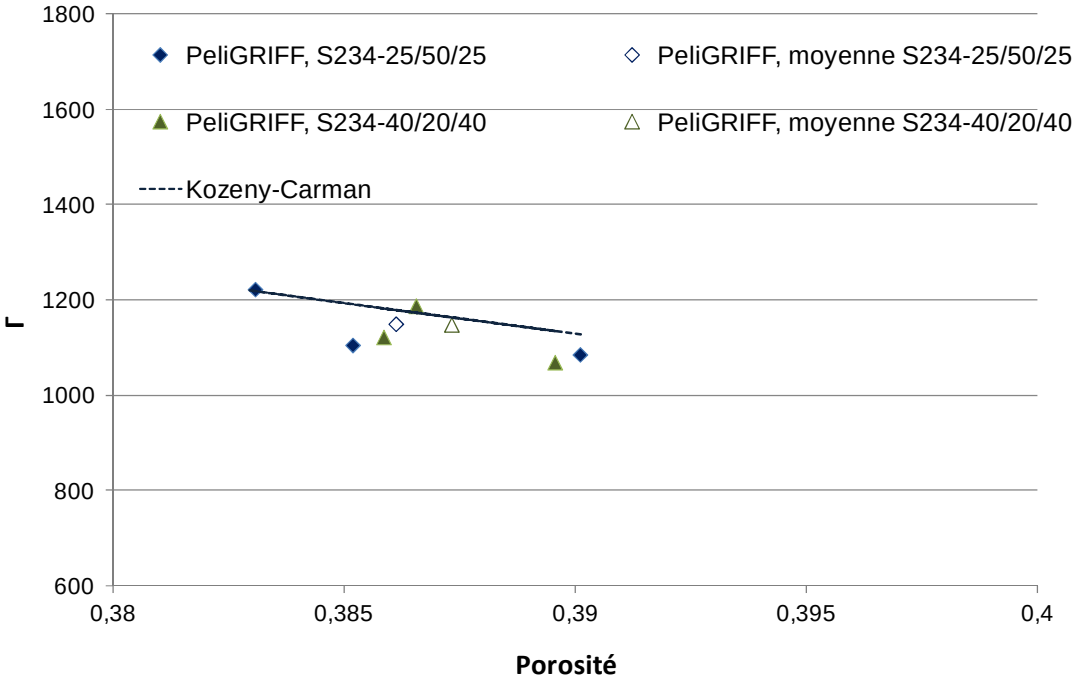


Figure 5.21 Comparaison de la perte de pression adimensionnée obtenue par PeliGRIFF pour des lits de sphères polydisperses, 3 répétitions de chargements pour chaque cas

5.5.2.2 Empilements de cylindres

a) Cas monodisperse

Pour les particules cylindriques, en régime visqueux, l'Équation 5.7 est utilisée comme référence pour comparer les calculs. Il s'agit d'une équation d'Ergun réduite au terme visqueux avec utilisation d'un facteur de forme.

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha(\phi_p)\frac{\mu(1-\varepsilon)^2 U_{ls}}{\varepsilon^3 d_{es}^2} \qquad \textit{Équation 5.7}$$

tel que :

$$\alpha(\phi_p) = \frac{150}{\varphi_p^{3/2}} \qquad \textit{Équation 5.8}$$

Le facteur de forme ϕ_p est défini ainsi :

$$\phi_p = \frac{S_{es}}{S_p} \qquad \textit{Équation 5.9}$$

S_{es}, S_p sont les surfaces de la sphère de même volume, et de la particule cylindrique, respectivement.

d_{es} est le diamètre du cylindre équivalent à celui d'une sphère de même volume:

$$d_{es} = \frac{6V_p}{S_p} \qquad \textit{Équation 5.10}$$

V_p et S_p sont le volume et la surface de la particule cylindrique, respectivement.

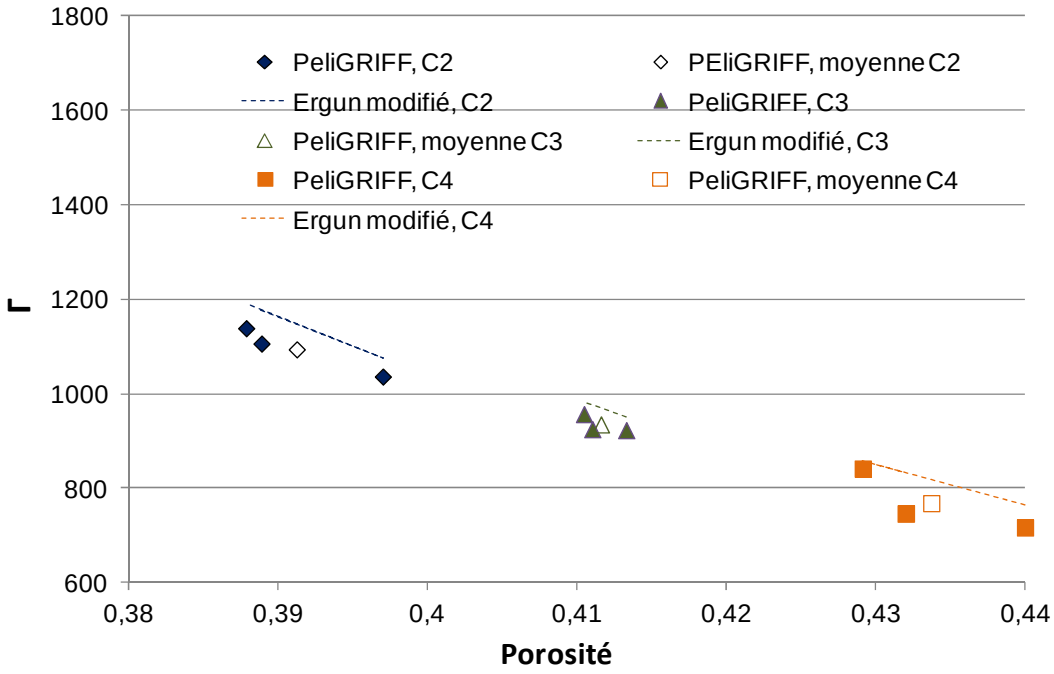


Figure 5.22 Perte de pression adimensionnée (symbole plein : valeur pour chaque calcul, symbole vide : valeur moyenne des répétitions) et comparaison aux relations d'Ergun modifiées

La relation d'Ergun modifiée décrit assez bien les résultats des calculs pour les 3 rapports d'aspects (répétitions et moyennes) bien que surestimant les pertes de pression (Figure 5.22). Pour le plus grand rapport d'aspect (r_a = 2.5, cas C4), un écart relatif maximum de 6% a été observé entre les résultats de PeliGRIFF et l'Équation 5.7 en termes de perte de pression adimensionnée moyenne (définie par l'Équation 5.7 en utilisant le diamètre équivalent décrit par l'Équation 5.10).

Les trois répétitions des chargements des lits de cylindres pour chacun des rapports d'aspect donnent des structures locales différentes pour chacun des lits. L'effet de la structure aléatoire sur la perte de pression peut atteindre 10 % malgré une faible variabilité sur la porosité (de l'ordre de 1 %).

Une comparaison entre les formes des particules est donnée dans le Tableau 5.5. Plus le rapport d'aspect des cylindres augmente, plus la différence entre les lits de sphères et de cylindres augmente en termes de perte de pression et de porosité (colonne de l'écart relatif entre $\overline{\Gamma}_{cyl}$ et $\overline{\Gamma}_{sph}$). La perte de pression dans les lits de cylindres est plus faible. Afin de découpler l'effet de la microstructure (due à la forme des particules) et l'effet de porosité entre lits (plus importante en lits de cylindres), la perte de charge adimensionnée calculée par PeliGRIFF pour les billes a été extrapolée aux porosités des lits de cylindres et comparée aux pertes de pression des lits de cylindres (colonne écart relatif entre $\overline{\Gamma}_{cyl}$ et $\overline{\Gamma}_{sph}(\varepsilon_{cyl})$). A porosité égale, la perte de pression des cylindres est plus élevée que pour les billes (à cause de la forme anisotrope des cylindres). La différence augmente avec l'élongation des cylindres. En outre, à faible rapport d'aspect (cas C2 et C3), les pertes de pression se rejoignent.

Tableau 5.5 : Tableau des perte de charges moyennes pour les billes et les cylindres

Cas (C ou S)	$\overline{\varepsilon}_{sph}$	$\overline{\varepsilon}_{cyl}$	Ecart relatif en % $(\overline{\varepsilon}_{sph}, \overline{\varepsilon}_{cyl})$	$\overline{\Gamma}_{sph}$	$\overline{\Gamma}_{cyl}$	Ecart relatif $(\overline{\Gamma}_{cyl}, \overline{\Gamma}_{sph})$	$\overline{\Gamma}_{sph}(\varepsilon_{cyl})$	Ecart relatif en % $(\overline{\Gamma}_{cyl}, \overline{\Gamma}_{sph}(\varepsilon_{cyl}))$
2	0.386	0.391	1.3	1126	1092	-3	1085	0.6
3	0.392	0.412	5.1	1090	933	-14.4	865	7.3
4	0.397	0.434	9.3	1010	767	-24.1	685	10.7

S_i : lit de sphères de même volume équivalent que les cylindres du lit C_i , i = 2, 3 ou 4.
C_i : lit de cylindres de diamètre 1.6 mm et de longueur i mm, i = 2, 3 ou 4.

b) Cas polydisperse

Les lits de cylindres polydisperses ont été aussi répétés trois fois pour étudier l'effet de la structure aléatoire. La perte de pression adimensionnée est représentée pour toutes les répétitions (Figure 5.23). Les lits de cylindres polydisperses présentent la même variabilité, en termes de perte de pression, que les lits monodisperses (voir Figure 5.22) avec une variabilité par rapport à la moyenne de l'ordre de 10 %.

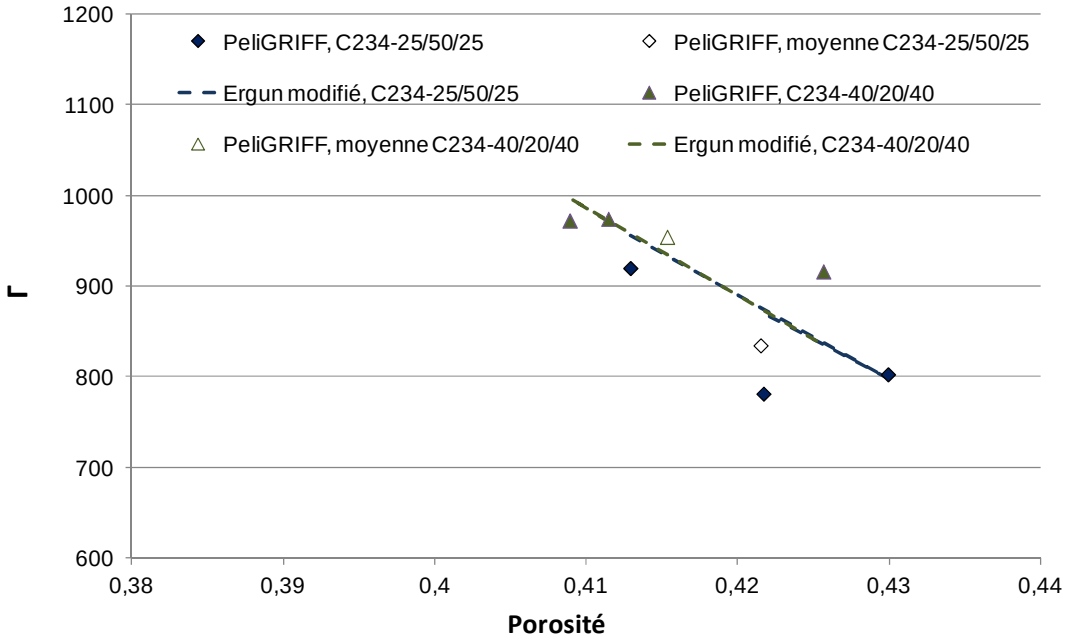


Figure 5.23 Comparaison de la perte de pression adimensionnée obtenue par PeliGRIFF pour des lits de cylindres polydisperses avec 3 répétitions du chargement pour chaque cas

5.5.3 Prédiction de la perte de charge en empilements polydisperses

5.5.3.1 Littérature

L'objectif ici est de comparer la perte de pression du lit polydisperse avec celles des lits monodisperses. Pour ce faire, nous nous basons sur la démarche proposée par Van der Hoef et al. [98,99] pour exprimer la perte de pression dans un lit polydisperse de billes en fonction de celles de lits monodisperses ayant les mêmes classes de particules.

Le lit polydisperse est composé de *i* classes de billes. La fraction volumique de chaque classe *i* dans le lit polydisperse est donnée par :

$$\chi_i = \frac{N_i d_i^{\,3}}{\left(\sum N_i d_i^{\,3}\right)} \qquad \textit{Équation 5.11}$$

Avec, N_i et d_i sont le nombre et le diamètre des billes appartenant à la classe *i*.

Le diamètre moyen des particules dans le lit polydisperse (diamètre de Sauter) est donné par :

$$< d >= \left(\sum \frac{\chi_i}{d_i} \right)^{-1} \qquad \textit{Équation 5.12}$$

Le diamètre adimensionné des billes de chaque classe est défini par :

$$y_i = \frac{d_i}{< d >} \qquad \textit{Équation 5.13}$$

Le nombre de Reynolds moyen est défini par

$$< \mathrm{Re} >= \frac{\rho U < d >}{\mu} \qquad \textit{Équation 5.14}$$

U est la vitesse du fluide, ρ et μ sont sa densité et sa viscosité.

La force de traînée totale appliquée à un système composé de plusieurs classes de particules, est la somme des forces de traînée F_i appliquées sur chaque classe de particules, ce qui donne (Équation 5.15) :

$$V \frac{\Delta P_{poly}}{L} = \sum_{i=1}^{N} N_i F_i \qquad \textit{Équation 5.15}$$

V est le volume total de tout l'empilement polydisperse, il est lié à la porosité selon :

$$\varepsilon = 1 - \sum_i \frac{N_i V_i}{V} \qquad \textit{Équation 5.16}$$

Avec, V_i est le volume de chaque particule de la classe *i*, qui s'exprime par :

$$V_i = \frac{\pi}{6} d_i^3 \qquad \textit{Équation 5.17}$$

La force de traînée adimensionnée F_i*, de la classe i est définie par l'Équation 5.18 :

$$F_i^* = \frac{\varepsilon F_i}{3\pi\mu\, d_i U} \qquad \textit{Équation 5.18}$$

ε : la porosité moyenne du lit

Van der Hoef et al [98,99] proposent une corrélation pour la force de traînée adimensionnée pour chaque classe de particules (Équation 5.19). Cette relation a été ajustée sur un nombre important de simulations couvrant une large gamme de nombre Reynolds et de porosité (0.1< *Re* <500 et 0.35< ε <0.6).

$$F_i^*(\varepsilon) = F^*(\varepsilon)(\varepsilon y_i + (1-\varepsilon) y_i^2 + 0.0064 y_i^3) \qquad \textit{Équation 5.19}$$

F(ε)* est la force de traînée adimensionnée relative à un lit de particules monodisperses ayant la même porosité *ε* que le lit polydisperse et ayant un nombre de Reynolds égal à <*Re*>.

En utilisant, l'Équation 5.15 et l'Équation 5.18, on obtient :

$$V\frac{\Delta P_{poly}}{L}=\sum_{i=1}^{N}\frac{3\pi N_i\mu d_i U}{\varepsilon}F_i^* \qquad \textit{Équation 5.20}$$

A l'aide de l'Équation 5.16 et l'Équation 5.17, la perte de pression totale devient :

$$\frac{\Delta P_{poly}}{L}=\sum_{i=1}^{N}\frac{18\mu U(1-\varepsilon)}{\varepsilon d_i^2}\frac{(1-\varepsilon_i)}{(1-\varepsilon)}F_i^* \qquad \textit{Équation 5.21}$$

ε_i est la porosité moyenne du lit composé des particules de la classe *i*.

Avec la corrélation de Van der Hoef (Équation 5.19) et en posant $x_i=\frac{1-\varepsilon_i}{1-\varepsilon}$, nous obtenons :

$$\frac{\Delta P_{poly}}{L}=\sum_{i=1}^{N}\frac{18\mu U(1-\varepsilon)}{\varepsilon d_i^2}x_i(\varepsilon y_i+(1-\varepsilon)y_i^2+0.0064y_i^3)F^*(\varepsilon) \qquad \textit{Équation 5.22}$$

Finalement, l'expression de la perte de pression dans un lit polydisperse est :

$$\frac{\Delta P_{poly}}{L}=\sum_{i=1}^{cl}x_i(\varepsilon y_i+(1-\varepsilon)y_i^2+0.0064y_i^3)\frac{\Delta P_i}{L}(\varepsilon) \qquad \textit{Équation 5.23}$$

$\frac{\Delta P_i}{L}(\varepsilon)$ représente la perte de pression dans un lit de sphères monodisperses de diamètre d_i et de porosité ε qui est celle du lit polydisperse, elle est exprimée par :

$$\frac{\Delta P_i}{L}(\varepsilon)=\frac{18\mu U(1-\varepsilon)}{\varepsilon d_i^2}F^*(\varepsilon) \qquad \textit{Équation 5.24}$$

L'approche de Van der Hoef permet de prédire la perte de pression d'un lit fixe de billes polydisperses à partir des pertes de pression de lits monodisperses, composés des mêmes populations de particules qui constituent le lit polydisperse. Selon cette approche, la perte de pression d'un lit polydisperse est la moyenne pondérée des pertes de pression de lit monodisperse.

Dans la suite, nous allons comparer cette approche avec les calculs de PeliGRIFF pour :

- les lits de billes avec 3 classes de diamètres (S234-25/50/25 et S234-40/20/40)
- les lits de cylindres avec 3 classes de longueurs (C234-25/50/25 et C234-40/20/40)

5.5.3.2 Résultats pour les billes

Dans le Tableau 5.6, les pertes de pression adimensionnées moyennes des trois lits répétés, dans le cas d'empilements de sphères polydisperses, issues de PeliGRIFF et de l'Équation 5.23 sont présentées. En utilisant l'Équation 5.23, la perte de pression monodisperse a été extrapolée à la porosité du lit polydisperse.

Tableau 5.6 : Perte de pression moyenne adimensionnée dans deux lits polydisperses de sphères et comparaison avec la corrélation de Van der Hoef

Lit	$\overline{\Gamma}_{PeliGRIFF}$	$\bar{\varepsilon}_{poly}$	<d> (m)	Classe i	y_{i*}	x_i **	$\overline{\Gamma}_{VanderHoef}$	Ecart relatif en % ($\overline{\Gamma}_{PeliGRIFF}$, $\overline{\Gamma}_{VanderHoef}$)
S234-25/50/25	1149	0.3861	0.002272	2	0.868	0.167	1174	-2.15
				3	0.995	0.501		
				4	1.092	0.332		
S234-40/20/40	1147	0.3873	0.002278	2	0.865	0.267	1152	-0.3
				3	0.992	0.201		
				4	1.088	0.532		

$_*$ diamètre adimensionné, ** fraction volumique adimensionnée

Un écart relatif absolu qui ne dépasse pas 2.2 % dans les deux cas de compositions différentes de lits a été trouvée, ce qui traduit une bonne adéquation entre les résultats de PeliGRIFF et ceux issus de l'Équation 5.23. Nous montrons par ce calcul que la relation de Van der Hoef et al. qui a été uniquement dérivée pour les empilements bi-disperses de sphères puis validée pour des empilements polydisperses de sphères avec des distributions log-normale et gaussienne de tailles de particule [74], semble également valable pour des lits polydisperses de cylindres composés de trois populations de particules.

5.5.3.3 Résultats pour les cylindres

La comparaison des lits de cylindres en termes de pertes de pression adimensionnées moyennes des trois lits répétés est présentée dans le Tableau 5.7. Le diamètre utilisé pour les cylindres dans le calcul de l'Équation 5.23 est le diamètre équivalent à celui des sphères ayant le même volume, c'est-à-dire les sphères qui composent les lits S234/25/50/25 et S234/40/20/40. L'écart relatif absolu entre les résultats de PeliGRIFF et la relation de Van der Hoef est inférieur à 4 % dans le cas des deux lits.

Tableau 5.7 : Perte de pression moyenne adimensionnée dans deux lits polydisperses de cylindres et comparaison avec la corrélation de Van der Hoef

Lit	$\overline{\Gamma}_{PeliGRIFF}$	$\overline{\varepsilon}_{poly}$	<d> (m)	Classe i	y_{i*}	x_i **	$\overline{\Gamma}_{VanderHoef}$	Ecart relatif en % ($\overline{\Gamma}_{PeliGRIFF}$, $\overline{\Gamma}_{VanderHoef}$)
C234-25/50/25	1199	0.4215	0.002272	2	0.868	0.167	1248	3.9
				3	0.995	0.501		
				4	1.092	0.332		
C234-40/20/40	1378	0.4153	0.002278	2	0.865	0.267	1337	-2.5
				3	0.992	0.201		
				4	1.088	0.532		

* diamètre adimensionné, ** fraction volumique adimensionnée

La corrélation de Van der Hoef semble donc pouvoir être étendue à des lits polydisperses de cylindres pour les cas que nous avons considérés.

5.5.4 Synthèse sur l'étude de la perte de pression

La perte de pression a été étudiée pour des lits ayant différentes compositions : différentes formes (billes et cylindres) et tailles de particules. La polydispersité et la répétabilité ont été également examinées.

La variabilité locale de la structure, qui traduit le caractère aléatoire de l'empilement affecte le calcul de la perte de charge. La répétition d'un même chargement donne des résultats différents même avec une porosité moyenne du lit qui ne varie que très faiblement (une variabilité pouvant atteindre 10 % sur la perte de charge avec une variabilité de 1.5 % sur la porosité). Le même ordre de variabilité a été retrouvé pour les lits de sphères monodisperses et de cylindres. En revanche, pour les sphères polydisperses, la variabilité est un peu moins élevée (de l'ordre de 7.5 %), et nous proposons que cette réduction de la variabilité peut être due à la présence des petites billes qui ont tendance à 'boucher' les espaces libres plus facilement et ainsi homogénéiser la structure locale.

La perte de pression dans des lits de cylindres est moins importante que dans des lits de sphères principalement car la porosité est plus élevée pour les empilements de cylindres. Cet écart est d'autant plus important que le rapport d'aspect des cylindres devient grand. Néanmoins, à porosité égale, les cylindres ont une perte de charge plus élevée que les sphères. Les pertes de charge entre billes et cylindres se rejoignent pour des cylindres de faible rapport d'aspect, ce qui est cohérent avec le fait que les porosités et les « formes » se rapprochent.

Une relation de prédiction de la perte de pression en lit polydisperse a été déterminée en fonction de celles dans des lits monodisperses de même porosité, et a été vérifiée pour les empilements polydisperses de billes et de cylindres (avec trois populations différentes de particules). Cette relation a un intérêt pratique car elle permet de déduire rapidement un ordre de grandeur de la perte de charge dans des lits polydisperses, en utilisant les corrélations de la littérature. Cette relation doit être utilisée avec précaution pour les cylindres car elle a été seulement vérifiée sur peu de calculs et en considérant les diamètres équivalents des cylindres. Il serait aussi intéressant de tester cette corrélation sur une distribution de particules comportant plus de classes.

5.6 Analyse quantitative des champs de vitesse

Dans cette partie, une analyse des profils de vitesse verticale et de sa répartition à travers des empilements bipériodiques monodisperses de billes et de cylindres est présentée.

L'objectif de cette analyse est de comparer quantitativement la distribution spatiale des champs de vitesses issus de différentes simulations de lits de particules de même taille. Cette analyse permettra de quantifier l'effet de la structure aléatoire du lit et de sa répétabilité sur la distribution locale des vitesses.

5.6.1 Notion de distribution de vitesse et méthodologie d'analyse

L'analyse statistique des vitesses est basée sur le traitement des champs de vitesse comme la réalisation en chaque point d'une variable aléatoire à laquelle une fonction densité de probabilité peut être associée, comme cela est décrit dans Cenedese [44] qui a effectué des mesures expérimentales de PIV sur des empilements de particules cylindriques. L'analyse consiste à construire cette fonction de densité de probabilité (*FDP*) pour la vitesse verticale (U_z) ou horizontale (U_x). A des fins de comparaison, les vitesses sont normalisées par la vitesse superficielle liquide U_{ls}. Quelques études numériques ont utilisé cette quantité statistique représentative de la distribution de vitesse pour analyser l'hydrodynamique dans un lit fixe : Maier [47] a effectué des simulations numériques de Lattice-Boltzmann pour étudier l'écoulement d'un fluide visqueux dans une colonne de billes. Il a constaté que la distribution de vitesse est affectée par la porosité et le nombre de Reynolds. Gunjal [64] et Rong [72] ont également effectué des simulations de Lattice-Boltzmann dans des lits périodiques de sphères monodisperses avec une gamme de porosité qui varie entre 0.37 et 0.8.

Toutes ces études ont utilisé les *FDP*s pour extraire une information quantitative mais aucune ne s'est intéressée à l'effet de la variabilité locale et l'utilisation de la distribution de vitesse comme moyen pour la quantifier.

La construction de la *FDP* repose sur les valeurs de vitesse calculées sur le maillage. Dans PeliGRIFF, les valeurs de vitesse sont calculées au centre des faces des mailles (Figure 5.24) selon 3 cas :

- pour les mailles qui ne contiennent que du solide, la vitesse dans la maille est nulle et n'est pas comptée.
- pour les mailles ne contenant que du liquide (l), la vitesse U_l est celle obtenue en faisant la moyenne des vitesses calculées par le code aux centres des faces des mailles
- pour les mailles qui contiennent du liquide (l) et du solide (sd), la vitesse $U_{l,sd}$ est celle interpolée au centre de la maille comme précédemment, pondérée par la porosité dans la maille.

Les valeurs près des solides (moins d'une maille de la surface) sont donc moins précises.

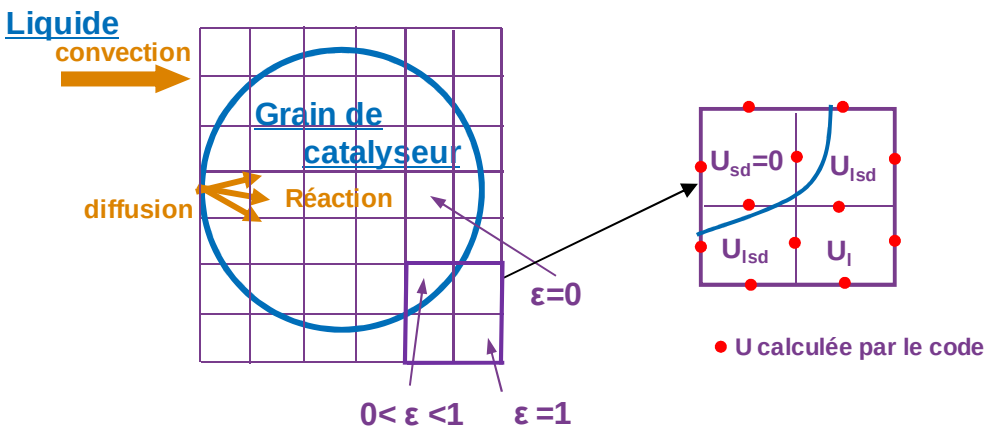


Figure 5.24 : Calcul des vitesses dans les mailles pour la représentation les distributions de vitesses

La courbe de densité de probabilité, qui est en fait un histogramme, est calculée en définissant a priori des classes et en comptant le nombre de valeurs de vitesse appartenant à chaque classe.

Une fois que le nombre de points de vitesse dans la classe est obtenu, il est rapporté au nombre total de points de vitesses ce qui permet d'obtenir des histogrammes de vitesse. Les résultats sont présentés en fonction de la vitesse adimensionnée U/U_{ls}. Afin de présenter une courbe de densité de distribution dont l'aire soit égale à 1 en fonction de U/U_{ls} (Équation 5.25), l'histogramme est normalisé (divisé) par la largeur de classe adimensionnée.

$$\sum P(U/U_{ls})\Delta U = 1 \qquad \textit{Équation 5.25}$$

ΔU : la largeur de la classe adimensionnée par la vitesse superficielle liquide (m/s)

Les histogrammes sont représentés sous forme de courbe continue car un grand nombre de classe a été utilisé (400 classes). Dans la suite, les termes « histogramme » et « courbe de probabilité » sont utilisés sans différenciation.

5.6.2 Résultats généraux

La forme des courbes de distribution de vitesse est identique pour tous les cas de chargement aléatoire (Figure 5.25). Nous distinguons trois zones caractéristiques sur ces courbes de distribution de vitesse :

- Au niveau de la partie gauche de la distribution, les vitesses négatives ont une proportion non nulle (environ 1 %) : du fluide circule à contre-courant (zone de recirculation).
- Un pic très marqué proche de $U_z/U_{ls} = 0.5$, dont l'évaluation est la moins précise.
- Une décroissance exponentielle vers 0 pour $U_z/U_{ls} > 1$, la courbe devient quasiment plate lorsque l'on approche les fortes vitesses (pour $U_z/U_{ls} > 12$).

Dans la suite, nous n'étudierons pas le pic à faible vitesse en détail car il correspond aux couches limites près des particules solides où la précision est la plus réduite.

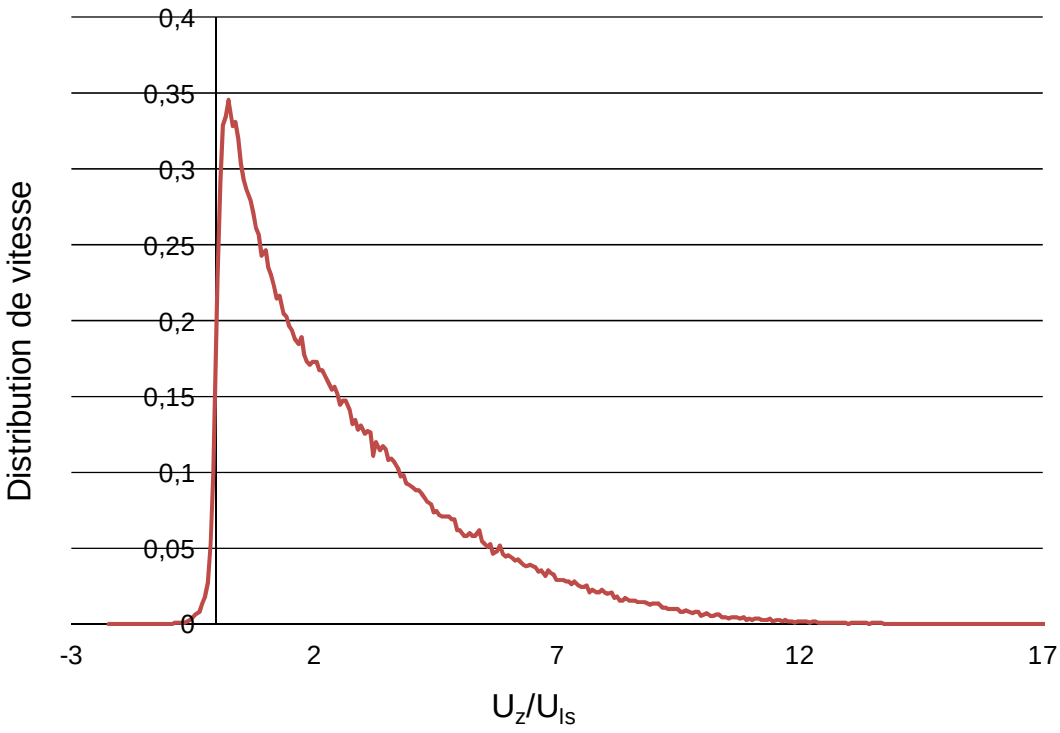


Figure 5.25 : Courbe de distribution de vitesse (P(U)dU), cas S1-7

Dans la littérature, la même forme a été également décrite : Maier [47] et Rong et al. [72]. A noter que Rong a observé une allure bimodale avec un deuxième pic au niveau des vitesses intermédiaires ($U_z / U_{ls} > 2$). Cette allure bimodale est uniquement observée pour les nombres de Reynolds élevés ($Re > 30$) et pour des porosités élevées ($\varepsilon > 0.45$). (Figure 5.26).

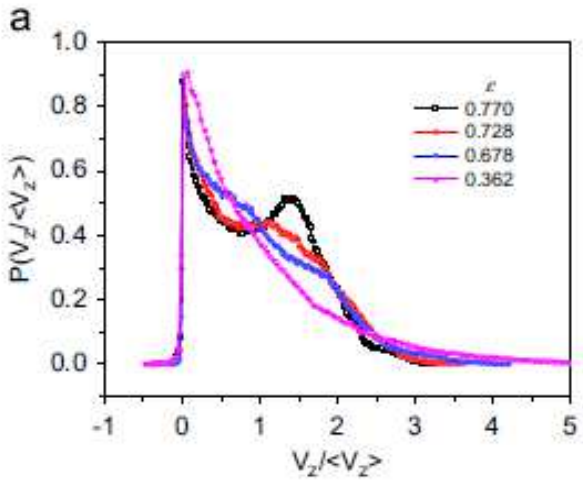


Figure 5.26 : FDP pour la vitesse verticale normalisée, d'après Rong et al. [72]

5.6.3 Distribution de vitesse dans les empilements réguliers

Un écoulement infini à travers différentes structures cubiques (cubiques simple (CS), cubique centré (CC) et cubique face centré (CFC)) a été simulé. Les conditions aux limites sont périodiques dans les trois directions de l'espace avec une perte de pression imposée dans la direction x (Figure 5.27). La viscosité et la densité du fluide ont été ajustées de façon à obtenir un même nombre de Reynolds particulaire pour les trois structures égal à 0.25 (Tableau 5.8). Ce nombre de Reynolds a été calculé sur la base de la vitesse en face de sortie.

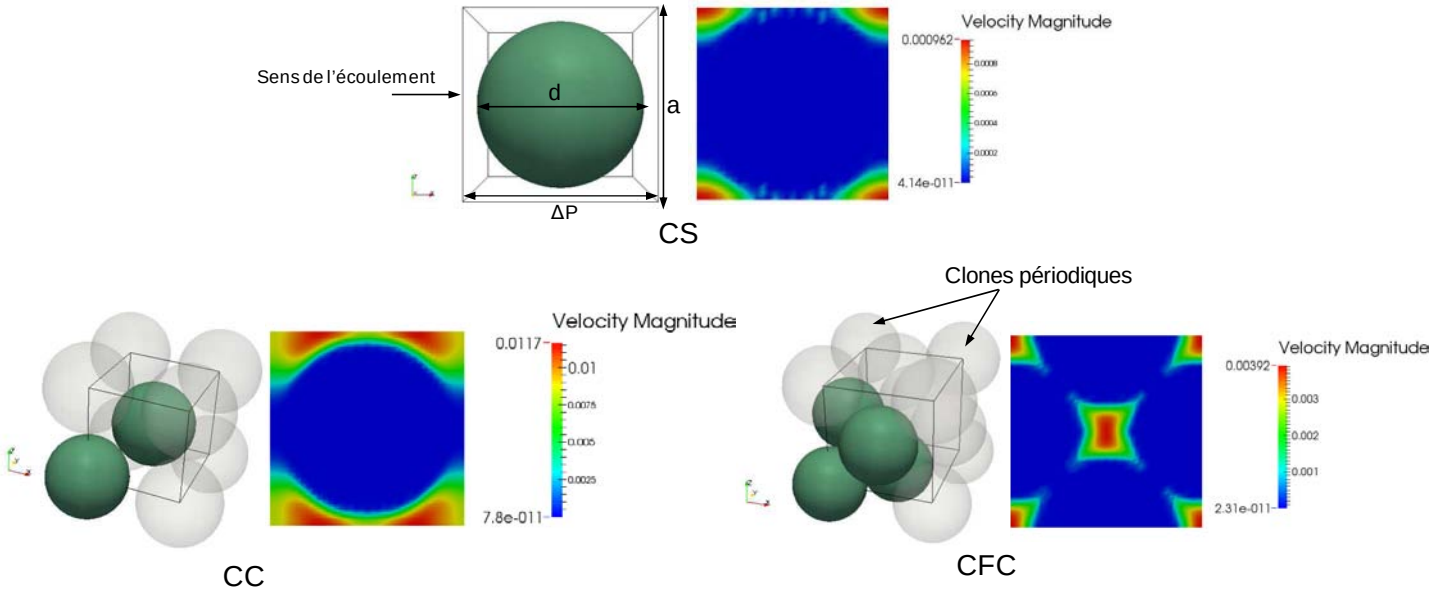


Figure 5.27 : Empilements cubiques et écoulement dans un plan vertical au centre du domaine

Tableau 5.8 : Quelques données relatives aux simulations des empilements cubiques

	CS	CC	CFC
d/2*a**	0.499	0.433	0.3535
Porosité	0.48	0.31	0.26
Vitesse de sortie (m/s)	0.00255	0.001	0.00053
Nombre de Reynolds	0.25	0.25	0.25

* : a : est l'arête de la maille cubique, d : est le diamètre de la particule (Figure 5.27)

Pour un maillage de 32 points/diamètre de bille, les distributions de vitesse obtenues sont présentées sur la Figure 5.28.

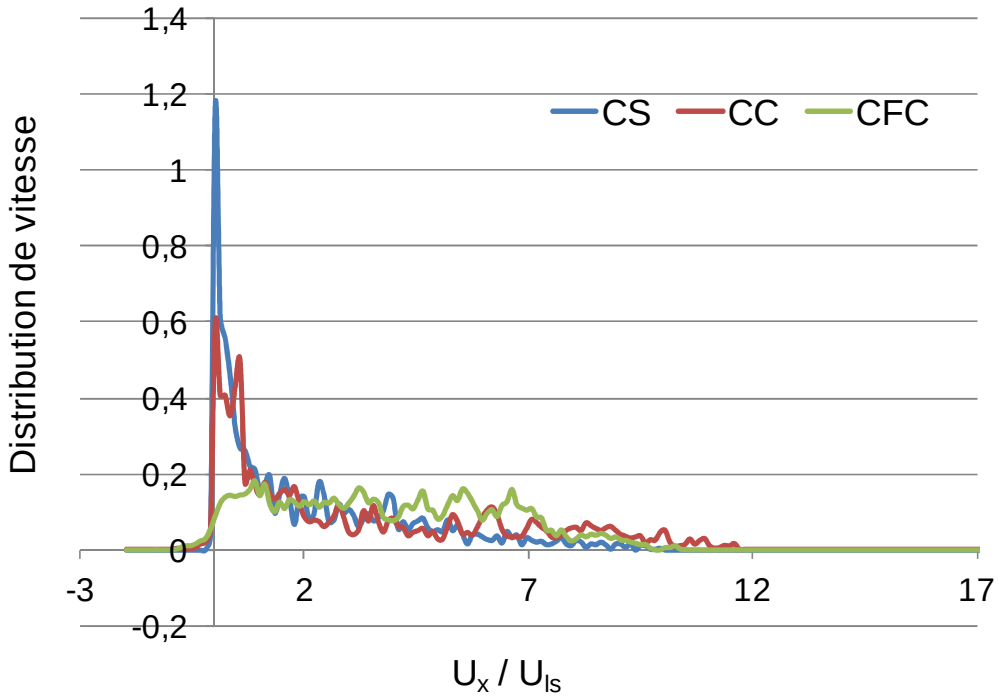


Figure 5.28 : Distribution de vitesse pour les empilements cubiques

Selon le type d'arrangement, les courbes n'ont pas la même allure. Les constatations suivantes sont à souligner :

- Pour toutes les courbes, les vitesses négatives représentent un pourcentage très faible (moins de 1 %) car il s'agit du régime de Stokes (faible nombre de Reynolds : $Re < 1$).
- Le pic de la distribution à vitesse nulle est très important pour l'empilement CS : les zones entre 2 billes ne sont pas irriguées et sont des zones stagnantes (cf. Figure 5.29). L'écoulement s'organise en passages rapides et droits, dans les zones entre particules.

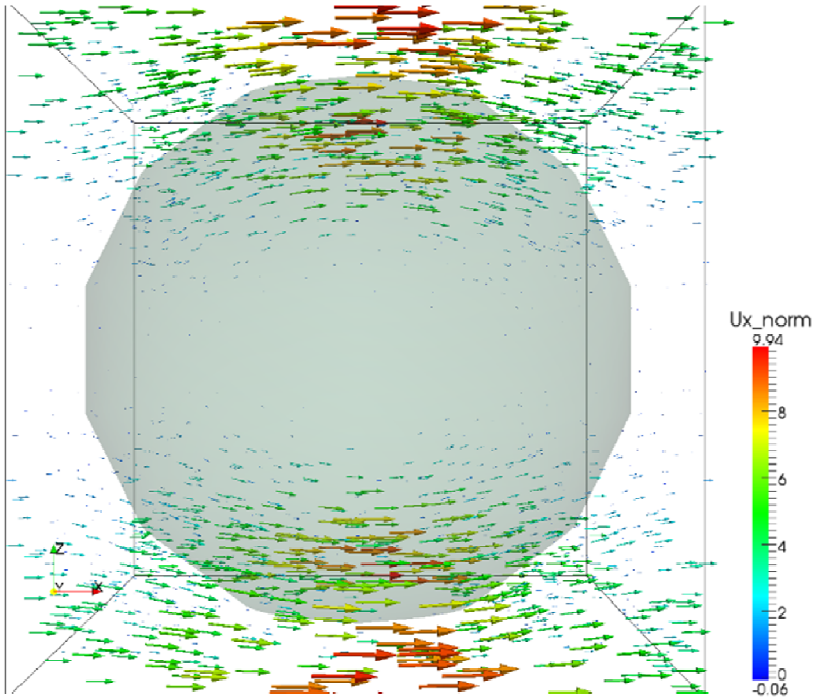


Figure 5.29 : Champs de vitesse horizontale normalisée pour l'empilement CS

- Pas de pic de vitesse nulle dans le cas du CFC. La tortuosité de l'empilement oblige le fluide à contourner constamment les particules (Figure 5.30). Il n'y a pas de zones stagnantes.

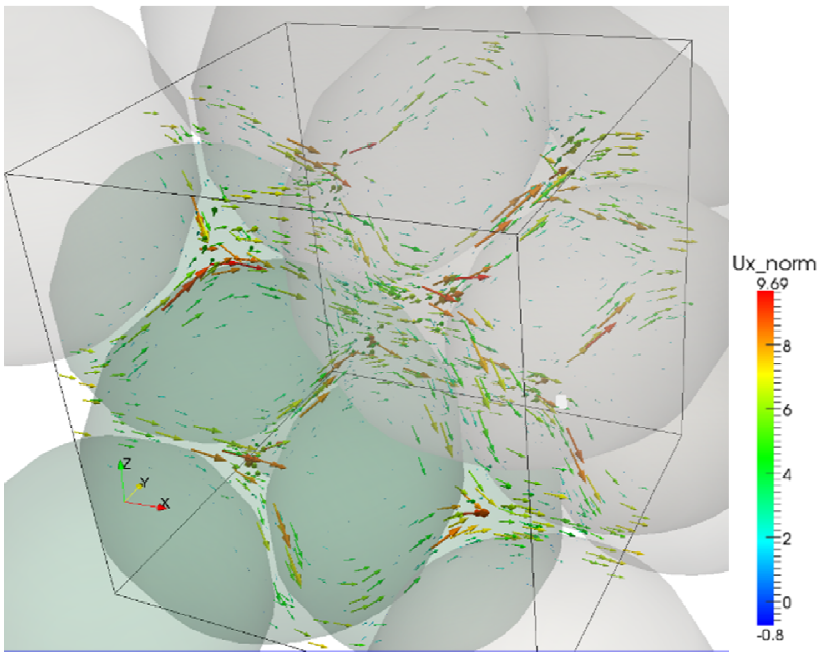


Figure 5.30 : Champs de vitesse horizontale normalisée pour l'empilement CFC

Ces résultats et observations sont similaires à ceux de Gunjal [64] (Figure 5.31).

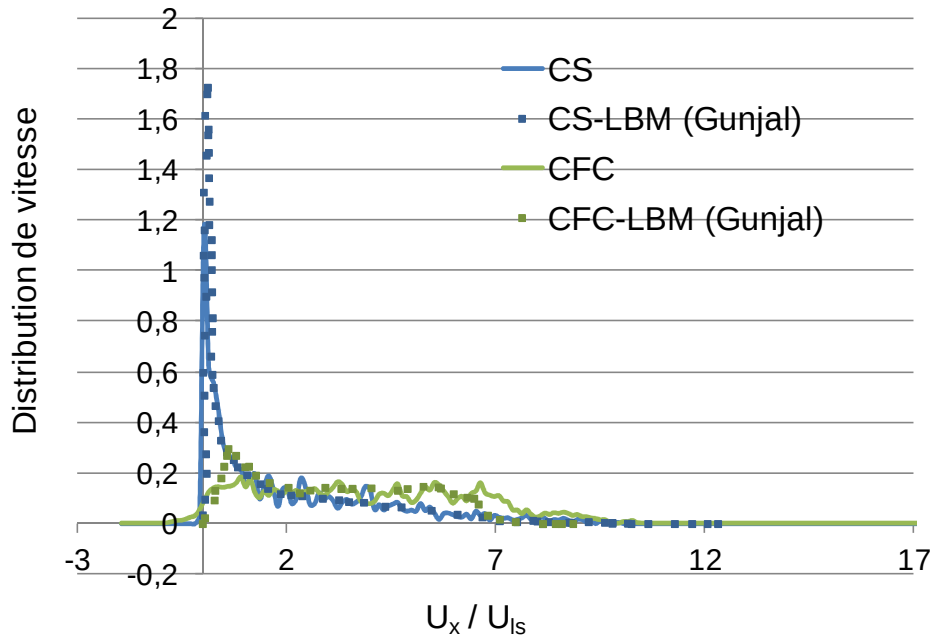


Figure 5.31 : Comparaison des distributions de vitesse avec les calculs Lattice-Boltzmann 'LBM' (Gunjal, 2005), cas CS et CFC

- Les structures les plus tortueuses (CC et CFC) présentent plus de vitesses importantes que le CS. Ces vitesses peuvent dépasser $12U_{ls}$.
- Les *FDP*s de tous les empilements présentent des oscillations, caractéristiques de milieux « périodiques ». Les oscillations sont plus marquées dans la structure CFC pour les vitesses $U_x/U_{ls} > 4$.

Plus la porosité diminue et plus la structure devient tortueuse et compliquée, plus la courbe s'aplatit (cas du CFC).

5.6.4 Distribution de vitesse dans les empilements aléatoires

Dans cette partie, une analyse des profils de vitesse verticale et de sa répartition à travers des empilements bipériodiques monodisperses de billes et de cylindres est présentée. Les systèmes étudiés sont les lits S1-0.07 à 14, S2-7, S3-7, S4-7, S1-parois et pour les lits de cylindres C2, C3 et C4 comme indiqué dans le Tableau 5.9 ci-dessous.

Tableau 5.9 : Cas analysés

Série de calculs	Nom du cas	Dimension de la particule (mm)	Nombre de Reynolds*	Nombre de particules	Nombre de répétitions
Sphères	S1-0.07	d_s = 3	0.07	540	1
	S1-0.7	d_s = 3	0.7	540	1
	S1-7	d_s = 3	7	540	10
	S1-7 parois	d_s = 3	7	540	1
	S1-14	d_s = 3	14	540	1
	S2-7	d_s = 3	7	1000	1
	S3-7	d_s = 3	7	1500	1
	S4-7	d_s = 3	7	2000	1
Cylindres	C2	l_c = 2 d_c = 1.6 r_a = 1.25	0.37	380	3
	C3	l_c = 3 d_c = 1.6 r_a = 1.875	0.43	250	3
	C4	l_c = 4 d_c = 1.6 r_a = 2.5	0.47	180	3
	C234-25/50/25	l_c = 2 l_c = 3 l_c = 4 d_c = 1.6 r_a ** = 1.875	0.43	260	3
	C234-40/20/40	l_c = 2 l_c = 3 l_c = 4 d_c = 1.6 r_a ** = 1.875	0.42	260	3

S : sphère, C : cylindre

* Deux nombres de Reynolds peuvent être définis: un *Re* global (macro),à l'échelle de la colonne, et un *Re* local (micro) à l'échelle du pore. Ici il s'agit du *Re* local.

** r_a est calculé par rapport à la longueur moyenne (= 3mm)

5.6.4.1 Effet des zones d'entrée et de sortie d'un lit de particules

Ici, l'effet des zones d'entrée et de sortie du fluide (début et fin du lit de particules) sur la courbe de distribution de vitesses est examiné comme ceci a été fait pour la porosité (chapitre empilements) et la perte de pression (cf. §5.5.1). Le lit S1-7 a été divisé en sept tranches disjointes contigües d'égale épaisseur = 2*d_s. Les distributions de vitesse sont différentes pour les zones d'entrée (tranche 1) et de sortie (tranche 7) et caractérisées par un pic de faible

vitesse plus marqué en tête de lit en raison de l'augmentation de la porosité liée au manque de billes dans les couches supérieures ($\varepsilon > 0.43$) (Figure 5.32).

Le même comportement des tranches d'entrée et de sortie a été observé pour les différents empilements. Par conséquent, dans tout ce qui suit, l'analyse des distributions de vitesse se fera sans prendre en compte les zones d'entrée et de sortie d'épaisseur = $2*d_s$ ou $2*d_c$, pour les empilements de billes et de cylindres respectivement. Cette épaisseur est moins importante que celle fixée pour la porosité ou la perte de pression (4 d_p). La fonction de distribution de vitesse semble moins sensible à la structure locale que la porosité et la perte de pression.

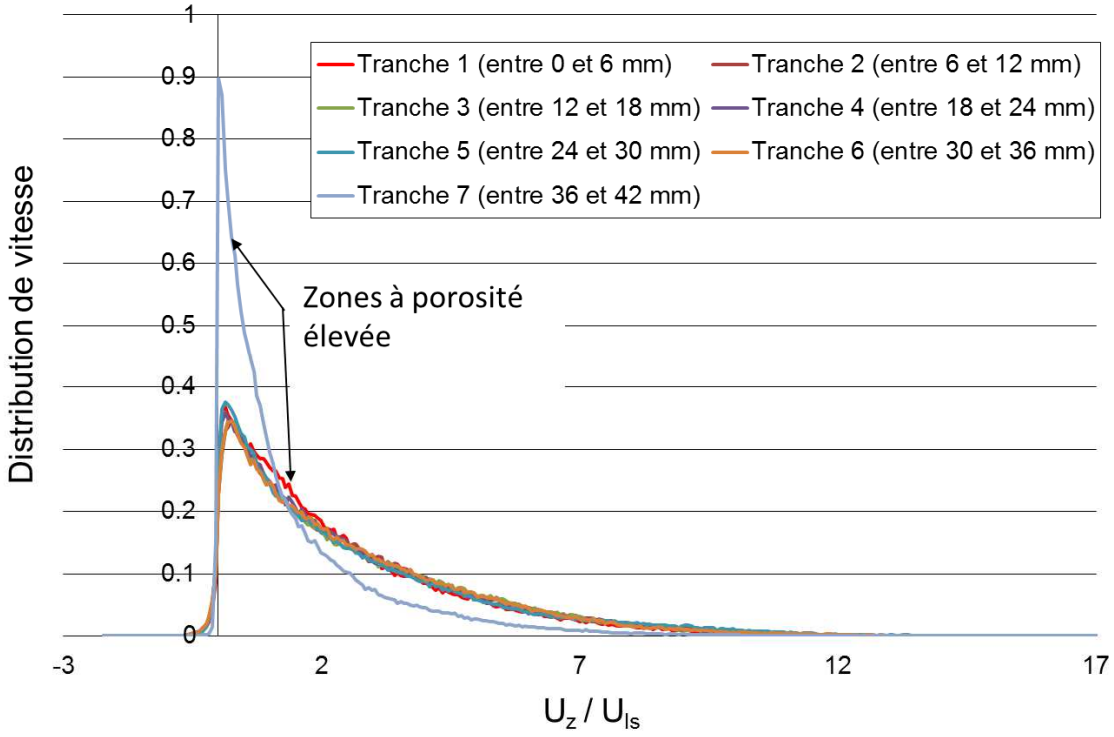


Figure 5.32 : Effet des zones d'entrée/sortie sur la distribution de vitesse, cas S1-7

5.6.4.2 Validation des calculs de distribution de vitesse

Ici une comparaison avec les résultats expérimentaux de distribution de vitesse de Cenedese [44] est effectuée. Dans cette publication, les champs de vitesse ont été mesurés par PIV dans des lits de cylindres de diamètre 3 ou 10 mm et de longueurs entre 1 et 3 fois leur diamètre. Les rapports d'aspect r_a des particules sont dans la même gamme des rapports d'aspect utilisés pour nos simulations de cylindres : 1.25, 1.875 et 2.5. Les expériences sont effectuées en régime visqueux avec des vitesses d'injection de l'ordre de quelques millimètres par seconde. Cenedese a ensuite traité les champs de vitesse comme des occurrences de variables

aléatoires (mesure dans un plan, donc 2 champs de vitesse) et a travaillé sur les statistiques de ces deux variables. L'analyse de résultats de PIV est effectuée en termes de distribution des fluctuations des vitesses verticales U'_z normalisées par l'écart type (Équation 5.26).

$$U'_z = \frac{(U_{z-moy} - U_z)}{\sigma_{U_z}} \qquad \textit{Équation 5.26}$$

La vitesse verticale moyenne ($U_{z\text{-}moy}$) dans un sous domaine est donnée par l'Équation 5.27 :

$$U_{z-moy} / U_{ls} = \frac{1}{\Delta(U_z / U_{ls})} \sum p_i * U_{zi} / U_{ls} \qquad \textit{Équation 5.27}$$

Avec p_i = proportion des vitesses verticales dans une classe i donnée

Les comparaisons avec PeliGRIFF ont été réalisées sur les séries de données issues du travail de Cenedese [44] qui sont les plus proches de nos cas, à savoir, pour le diamètre des particules : d_c = 1.6 mm (PeliGRIFF) et d_c = 3 mm (Cenedese), et pour le nombre de Reynolds : Re = 0.37, 0.43 et 0.47 (PeliGRIFF) et 0.012 et 0.015 (Cenedese). Les résultats de comparaison sont représentés en termes de fluctuation de la vitesse verticale U'_z en utilisant la définition de l'Équation 5.26.

La comparaison des distributions de vitesse calculées dans la totalité des lits de cylindres montre une très bonne adéquation entre les résultats de PeliGRIFF et ceux de Cenedese pour les trois rapports d'aspects étudiés (cas C2 dans la Figure 5.33, C3 dans la Figure 5.34 et C4 dans la Figure 5.35).

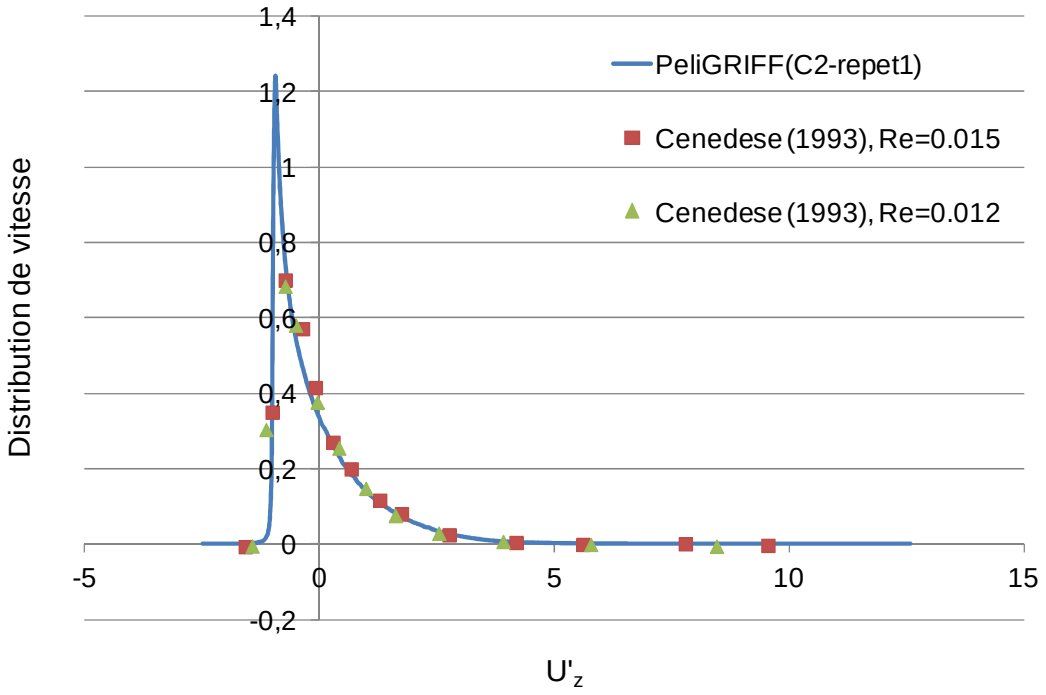


Figure 5.33 : Comparaison des distributions de vitesse issues du calcul de PeliGRIFF(C2-repet1), Re = 0.37 aux résultats expérimentaux de Cenedese et al. [44]

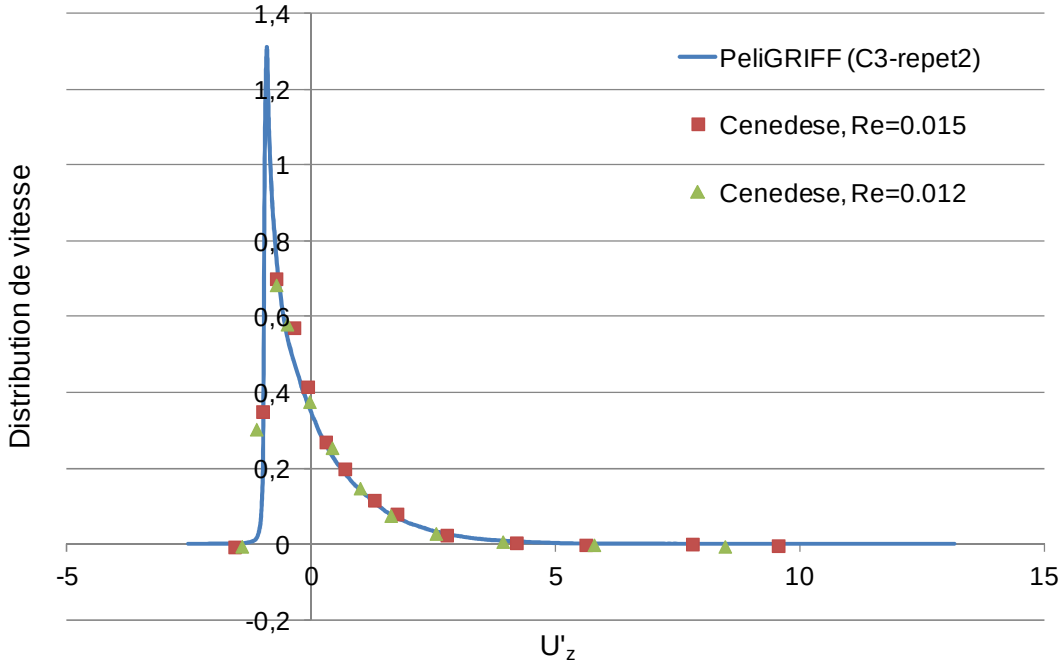


Figure 5.34 : Comparaison des distributions de vitesses issues du calcul de PeliGRIFF(C3-repe2), Re = 0.43 aux résultats expérimentaux de Cenedese et al. [44]

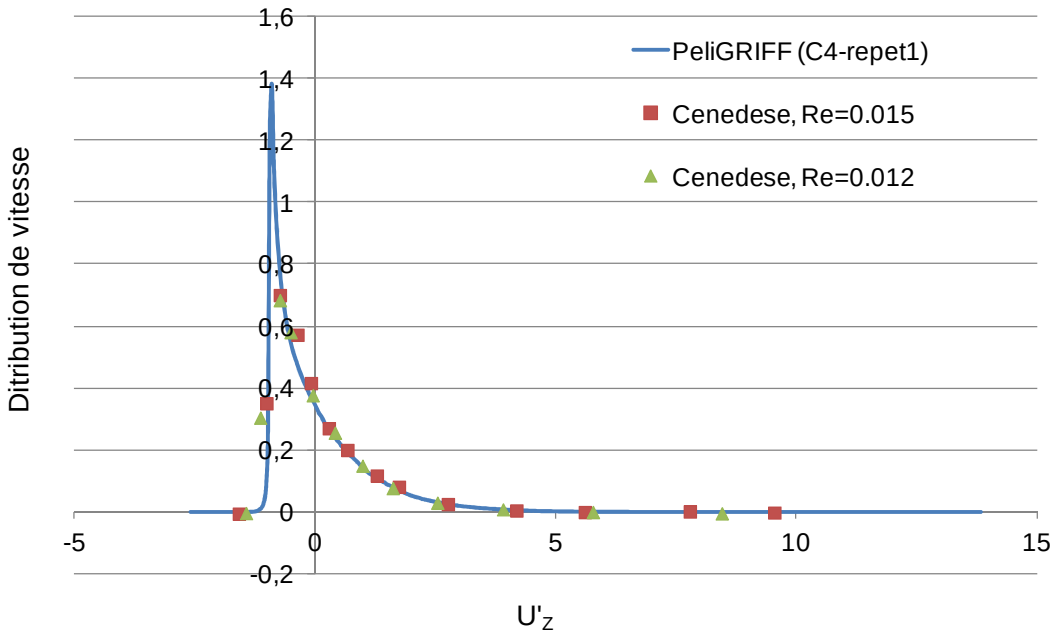


Figure 5.35 : Comparaison des distributions de vitesses issues du calcul de PeliGRIFF(C4-repe1), Re = 0.47 aux résultats expérimentaux de Cenedese et al. [44]

5.6.4.3 Méthodes de comparaison des distributions de vitesse

Pour chaque forme de particules (sphères ou cylindres), la représentation des courbes de distribution de vitesse est effectuée en utilisant des classes identiques de vitesse ce qui rend possible la comparaison directe de ces courbes entre elles. La comparaison entre courbes se base sur deux méthodes :

- le calcul d'écart entre la fonction de distribution de vitesse d'un lit ou d'une zone de lit donnée, et avec celle d'une référence choisie,
- test de la variance (test de Fisher) pour évaluer si deux populations sont statistiquement semblables.

La méthode de comparaison avec une référence vise à quantifier la variabilité au sein du lit étudié. Dans notre étude, deux niveaux de variabilité sont à prendre en compte :

- Variabilité interne : différence entre deux parties d'un même lit. Dans ce cas, la référence est généralement la *FDP* de tout le lit, c'est-à-dire la moyenne des *FDP*s des parties intermédiaires
- Variabilité externe : différence entre deux lits correspondant à des chargements différents, par exemple de longueurs différentes ou des répétitions de chargement.

La référence par rapport à laquelle le calcul des écarts est effectué est choisie de telle sorte qu'elle prend en considération toutes les variabilités qui existent dans le système pour donner l'information la plus moyennée et la plus exhaustive possible. Elle dépend fortement du nombre de sous domaines considérés et de l'arrangement des grains dans chacun des sous domaines. L'occurrence d'un défaut dans une couche donnée de l'empilement peut fortement influencer cette référence.

L'information obtenue à partir des calculs d'écart reste parfois complexe avec des courbes présentant des oscillations marquées entremêlées (Figure 5.36, (2)). Afin d'avoir un seul indicateur de la variabilité au sein du système étudié, nous avons introduit une autre fonction appelée 'enveloppe des écarts'. Cette fonction est le maximum des valeurs absolues des écarts entre la fonction de distribution de vitesse et la référence choisie. Elle donne une limite supérieure des variations des écarts calculés et réduit les courbes des écarts à une seule information (Figure 5.36, (3)).

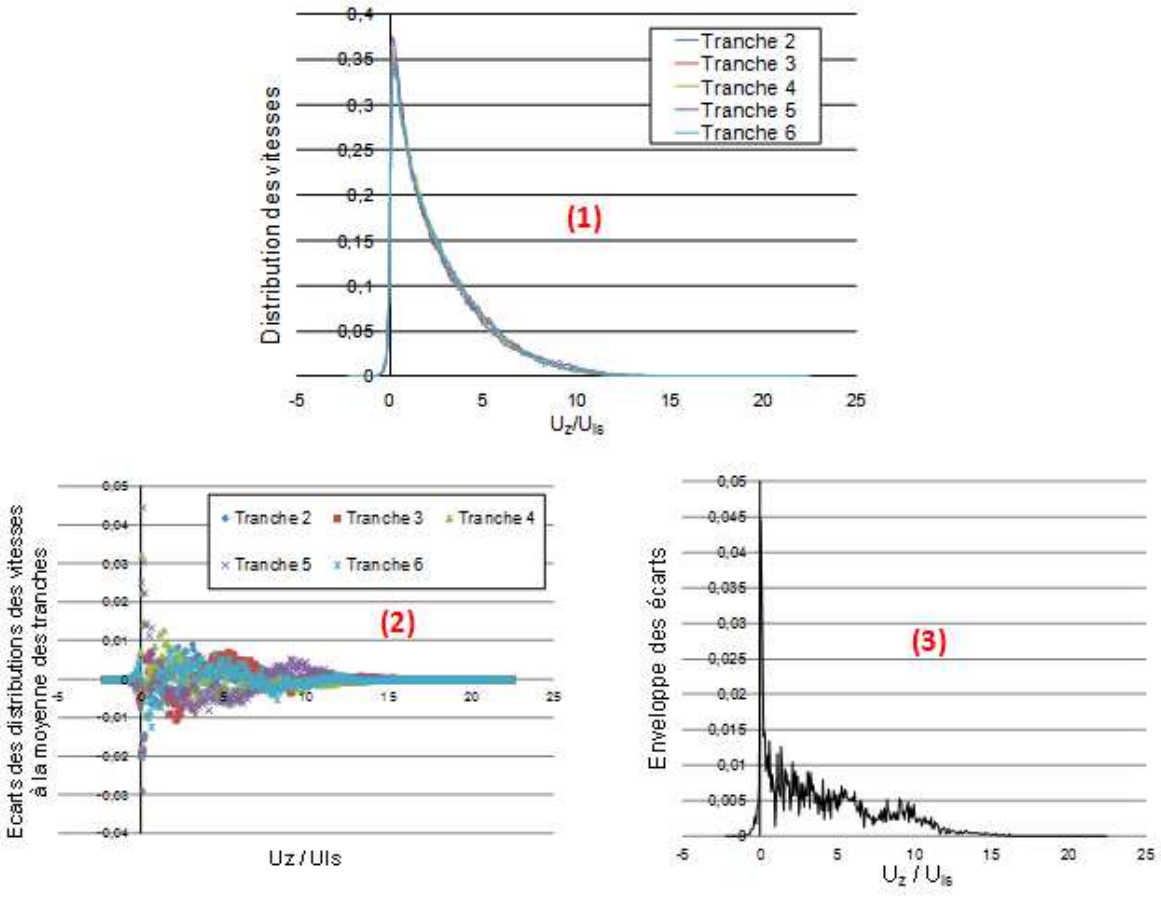


Figure 5.36 : Etapes de comparaison des FDPs, cas S1-7 :
(1) Distributions de vitesse, (2) Ecarts des distributions de vitesse (3) Enveloppe des écarts

La deuxième méthode de comparaison utilise les tests statistiques. La méthode consiste à appliquer le test de la variance (test de Fisher) pour tester si deux sous domaines appartenant à des lits différents sont statistiquement identiques. On considère que les distributions de vitesse

relative aux sous domaines de chaque lit sont des variables aléatoires. On veut tester si celles-ci suivent la même loi dans les différents lits. L'hypothèse qu'on cherche à tester est H_0 : « les sous domaines appartenant à des lits différents sont statistiquement identiques » contre H_1 : « les sous domaines appartenant à des lits différents ne sont pas statistiquement identiques» avec un risque d'erreur α_0. On rejette H_0 au risque α_0 si le rapport de variance des échantillons qui est calculé dépasse la valeur théorique lue dans la table de Fisher-Snédécor.

Le test de Fisher est appliqué pour chaque classe de vitesse et le résultat présente le pourcentage de classes de vitesse pour lesquelles les sous-domaines apparaissent statistiquement identiques.

5.6.4.4 Effet du nombre de Reynolds

Dans cette partie, nous avons considéré les empilements S1-0.07, 0.7, 7 et 14, présentés dans le Tableau 5.9. Les différents nombres de Reynolds sont calculés sur la base du diamètre de la particule (d_s = 3mm) et la vitesse d'entrée U_{ls}. L'étude paramétrique est réalisée en variant la vitesse d'entrée. Les distributions de vitesse sont représentées dans la Figure 5.37.

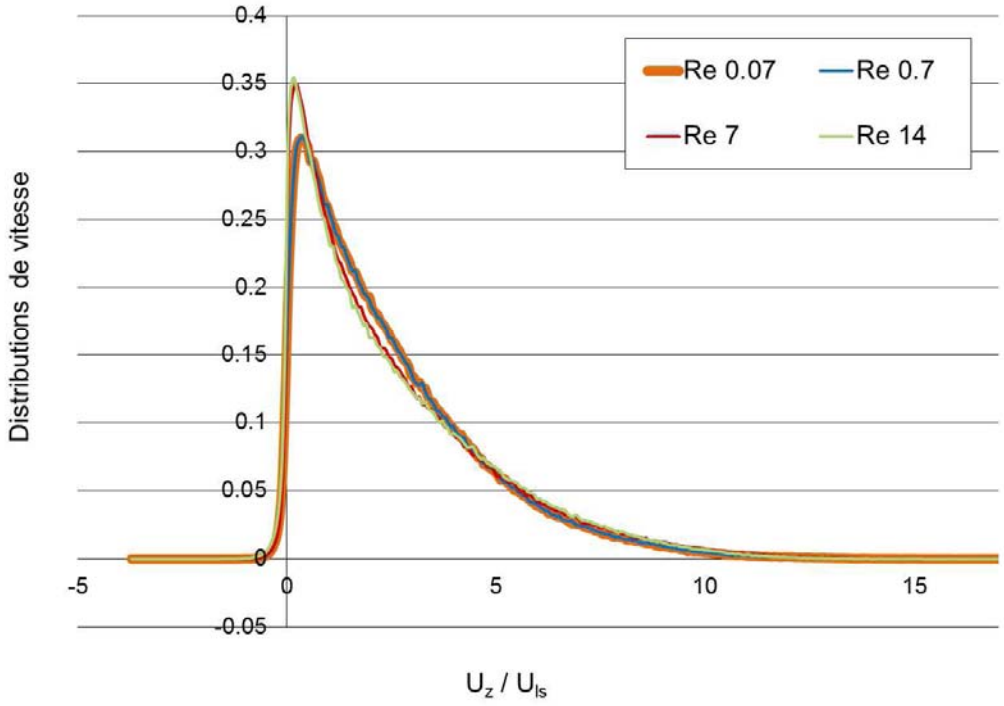


Figure 5.37 : Distribution de vitesses pour différents nombres de Reynolds, S1

Pour les très faibles nombres de Reynolds (0.07 et 0.7), correspondant à un écoulement rampant laminaire, il n'existe pas de différences significatives entre les courbes. Ceci a été également souligné par Rong et al. [72] pour $Re \leq 1.2$ (Figure 5.38) .

Par contre, quand le Reynolds augmente (*Re* égal à 7 ou 14), la forme des courbes change avec notamment un pic plus important et une diminution des occurrences de vitesses près de U_z/U_{ls} = 2.5. Rong avec un calcul à Reynolds plus élevé (*Re* = 87.4) retrouve également un pic plus important de la courbe des *FDPs*.

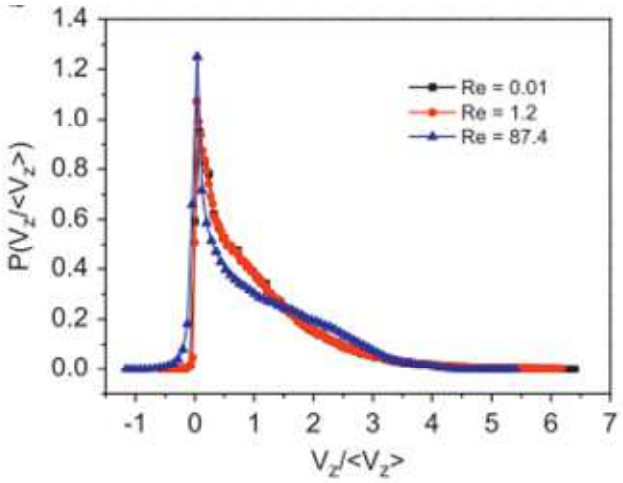


Figure 5.38 : Distribution de vitesses pour différents nombres de Reynolds, d'après Rong et al. [72]

Afin d'approfondir la comparaison, les courbes sont comparées à celles du *Re* le plus faible sur la Figure 5.39. En augmentant le Reynolds, la quantité de points à faible vitesse augmente significativement, celle avec des vitesses moyennes (U_z/U_{ls} = 1 à 5) diminue et celle à forte vitesse (U_z/U_{ls} > 8) augmente, ce qui est lié à l'épaisseur des couches limites autour des particules. Concernant les vitesses négatives, leur proportion s'avère plus importante également pour les nombres de Reynolds ≥ 7 (Figure 5.39). A faible *Re*, les zones de recirculation sont très peu nombreuses (comme vu précédemment).

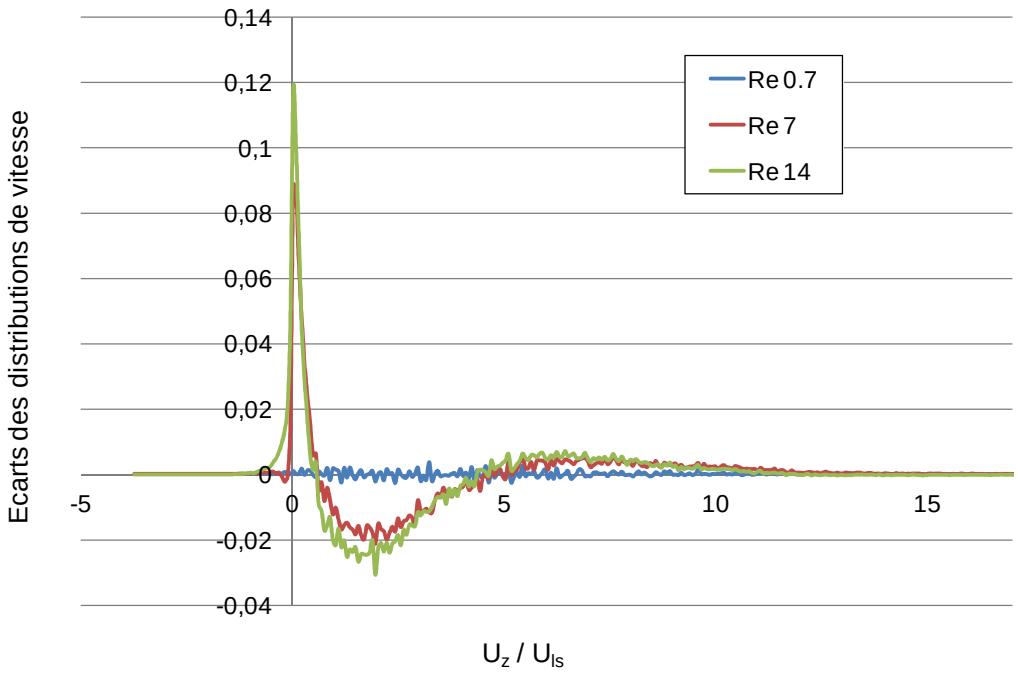


Figure 5.39 : Ecart des distributions de vitesse par rapport au cas S1-0.07

5.6.4.5 Effet de la hauteur dans un même lit

Dans cette section, le lit le plus long (de hauteur totale = 146 mm) a été considéré (S4-7 avec le même diamètre des sphères = 3mm), et découpé en *n* sous domaines disjoints et qui sont de moins en moins épais, avec *n* appartenant à l'intervalle [2, 3, 4, 5, 7, 11, 16, 22]. Le cas avec *n* = 22 est le cas qui contient le plus de sous domaines. Il contient donc plus d'information sur la variabilité. Les autres cas permettent d'évaluer l'effet de la taille du domaine sur la variabilité.

L'enveloppe des écarts a été calculée pour chaque découpage du lit S4 (Figure 5.40 et Figure 5.41) : plus l'épaisseur des sous-domaines est faible, plus la variabilité dans le lit (interne) augmente. Cette dépendance de la variabilité avec la taille du domaine pourrait être uniquement un effet de « moyenne ».

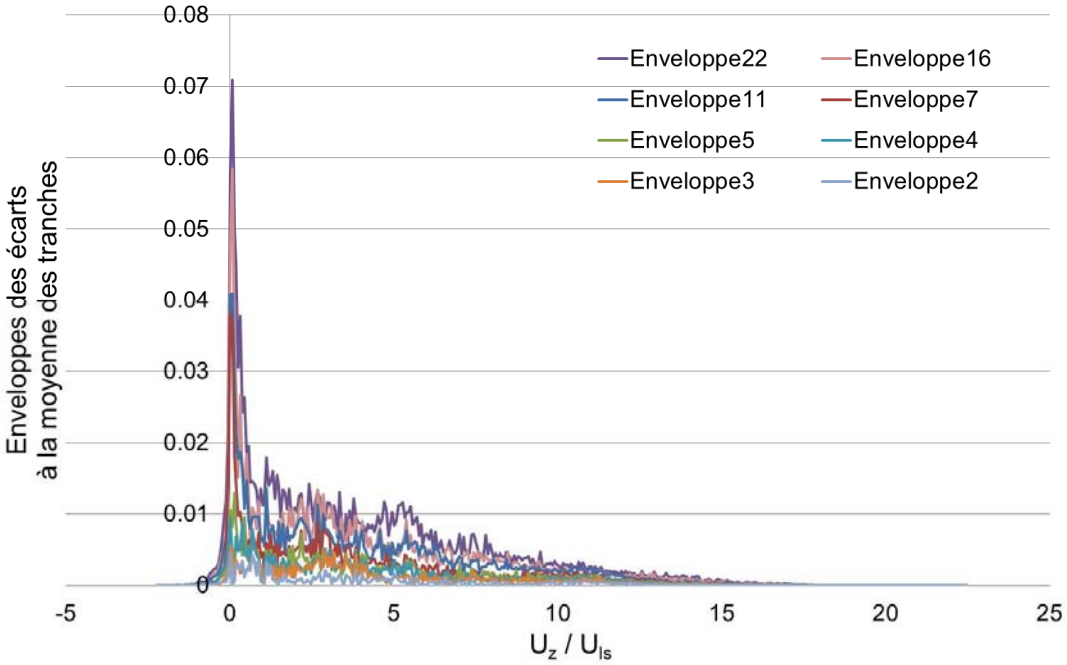


Figure 5.40 : Enveloppes des écarts, S4-7

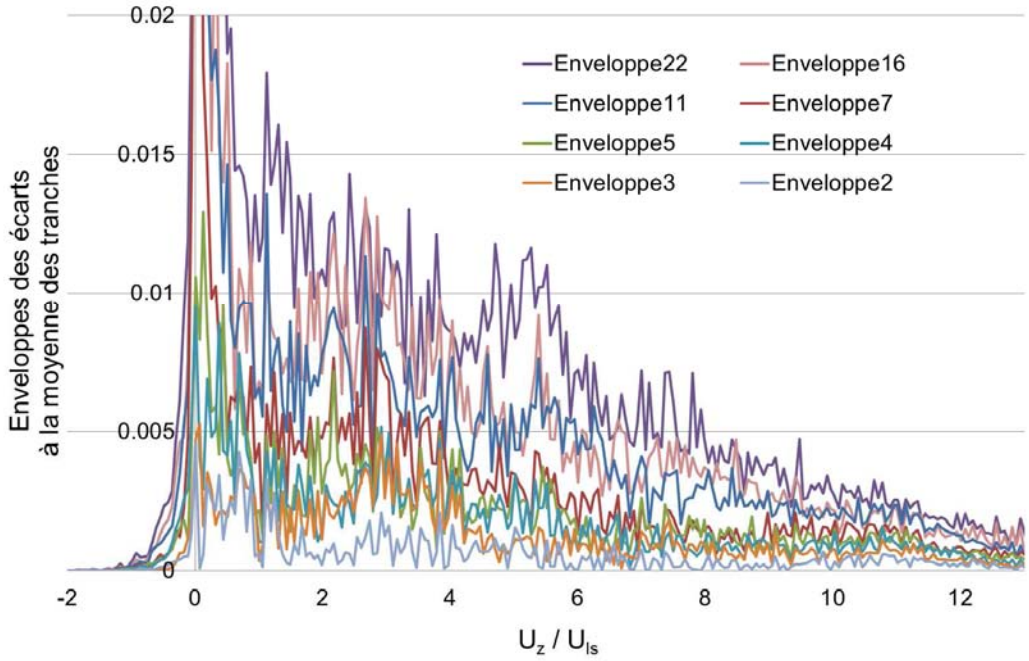


Figure 5.41 : Zoom sur les enveloppes des écarts, S4-7

a) Fonction enveloppe des écarts modélisée

Afin de vérifier cette hypothèse d'un effet de moyenne, nous proposons d'approximer les courbes enveloppes par un ensemble de fonctions de forme exponentielle (Équation 5.28).

$$y = a\exp(-\frac{U_z}{bU_{ls}}) \qquad \textit{Équation 5.28}$$

Avec : *a* est l'ordonnée à l'origine, *b* est la constante de relaxation.

Les paramètres *a* et *b* sont calés pour chaque courbe enveloppe. Un exemple de calage est présenté sur la Figure 5.42. La fonction exponentielle donne l'allure des courbes enveloppes sauf près 0 (pour des rapports $U_z / U_{ls} < 0.8$).

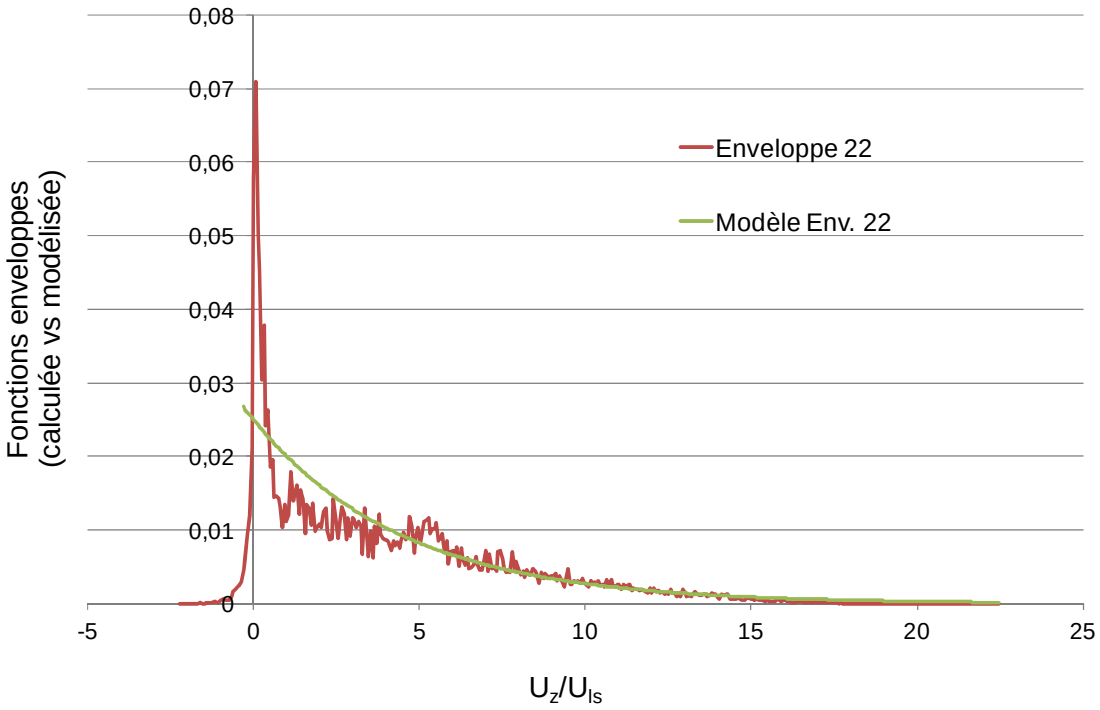


Figure 5.42 : Exemple d'ajustement de la fonction enveloppe, S4(n = 22)

De manière intéressante, un bon calage de toutes les courbes enveloppes est obtenu avec :

- La même constante de relaxation '*b*'
- Une ordonnée à l'origine '*a*' proportionnelle au nombre de couches qui constituent le lit (donc inversement proportionnelle à la hauteur de couche. Le coefficient '*a*' s'exprime de la manière suivante :

$$a_n = \alpha.n = \frac{\beta}{h_n}$$ ***Équation 5.29***

Avec a_n : ordonnée à l'origine pour la courbe enveloppe à n couches et h_n est la hauteur de la couche.

Les fonctions « enveloppes modélisées » sont représentées dans la Figure 5.43 pour le lit S4-7.

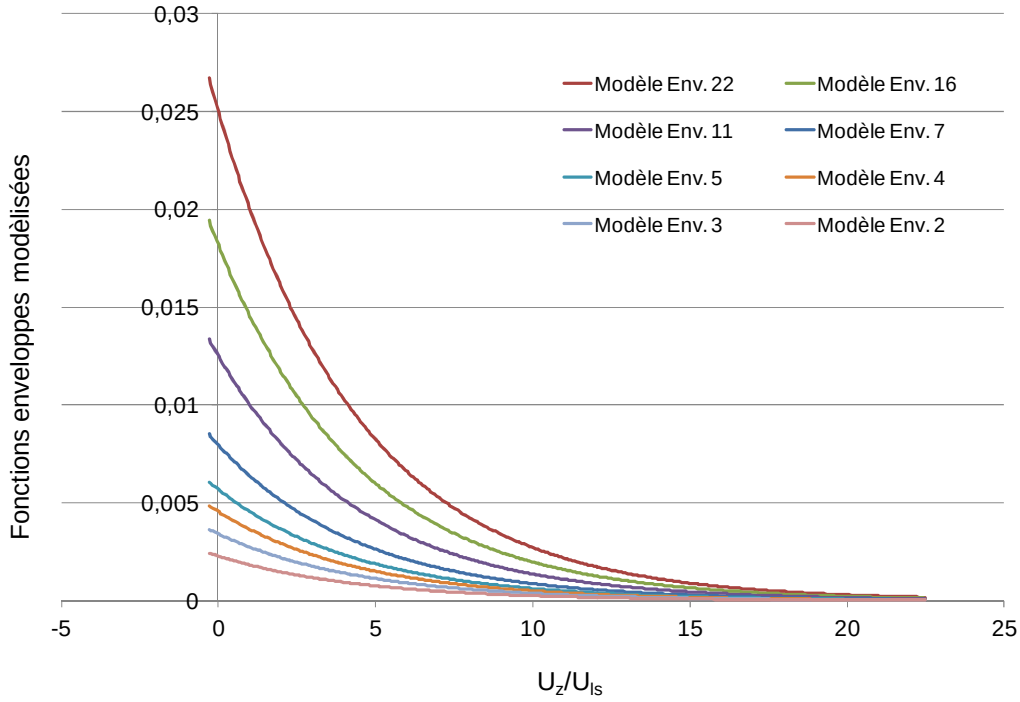


Figure 5.43 : Fonctions enveloppes modélisées, S4

Cette approche montre que, en dehors du pic à faible vitesse, l'ordre de grandeur de la variabilité est inversement proportionnel à la hauteur de lit considérée. Il s'agit bien d'un effet de moyenne. Pour comparer des lits ou des sous-domaines, il est donc nécessaire de travailler avec la même hauteur ou de corriger les évaluations de variabilité par rapport à la hauteur considérée.

5.6.4.6 Effet de différentes longueurs de lit

Dans cette partie, plusieurs lits de différentes longueurs sont étudiés (Tableau 5.10). L'objectif est de comparer les *FDP*s pour voir si une différence issue de la longueur existe. Les lits sont

comparés avec des domaines de même hauteur de manière à s'affranchir des effets de moyenne décrits ci-dessus. Les lits S1, S2, S3 et S4-7 sont divisés en des régions disjointes d'égales épaisseurs (= 2*d_s).

Tableau 5.10: Nombre de particules et hauteur de chaque lit

Lit	Nombre de billes empilées	Hauteurs du lit complet (mm)	Hauteur analysée (mm)	Nombre de sous-domaines (sans les extrémités)	Hauteur sous domaine (mm)
S1-7	540	41.5	30	5	6
S2-7	1000	74	60	10	6
S3-7	1500	108	96	16	6
S4-7	2000	146	132	22	6

L'analyse est réalisée en comparant les enveloppes des écarts à la moyenne du lit le plus long (Figure 5.44). Les fonctions enveloppes des 4 lits sont similaires et ne peuvent être discriminées. Cela indique que la variabilité interne ne dépend pas de la hauteur du lit.
En se plaçant maintenant à l'échelle d'un lit de même longueur, le résultat de la section précédente sur l'effet de moyenne indique que l'on attend 4.4 fois plus de variabilité sur le lit de 30 mm que celui de 132 mm. Ce n'est pas ce qui est observé. Nous émettons l'hypothèse que l'effet de moyenne est compensé par une probabilité d'occurrence de sources de variabilité proportionnelle au volume.

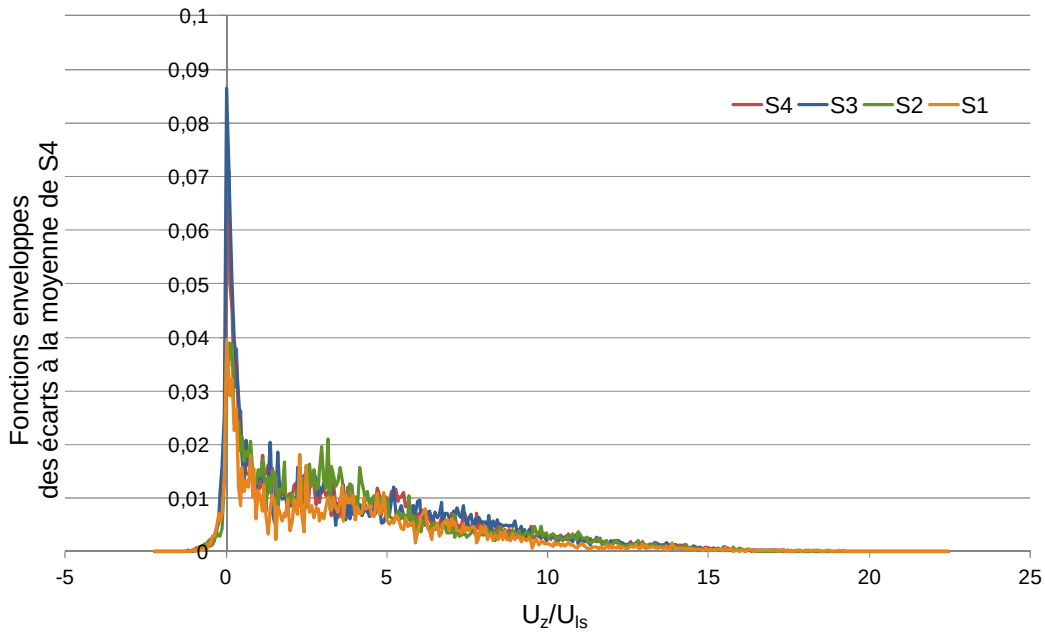


Figure 5.44 : Fonctions enveloppes, S1, S2, S3 et S4 par rapport à S4

Une conséquence pratique de ce résultat est que l'allongement d'un lit fixe ne conduit pas à réduire la variabilité de la distribution de vitesse. Cela est cohérent avec l'étude de porosité du chapitre empilement qui a montré l'absence de convergence vers un état stationnaire sur la porosité axiale en augmentant la longueur de lit.

5.6.4.7 Comparaison entre Variabilité externe et Variabilité interne

Dans cette partie, nous nous intéressons aux différences d'écoulement entre des lits chargés aléatoirement avec les mêmes objets (variabilité externe).
Dix lits différents ont été simulés avec un mode d'insertion aléatoire de chaque bille (d_p = 3 mm). Ces lits sont des répétitions (appelés repet1 à 10 sur la Figure 5.45 et Figure 5.46) du lit S1-7 (appelé original sur les deux mêmes figures citées précédemment). La comparaison est réalisée à *Re* = 7. Les courbes de distributions des vitesses sont très proches (Figure 5.45).

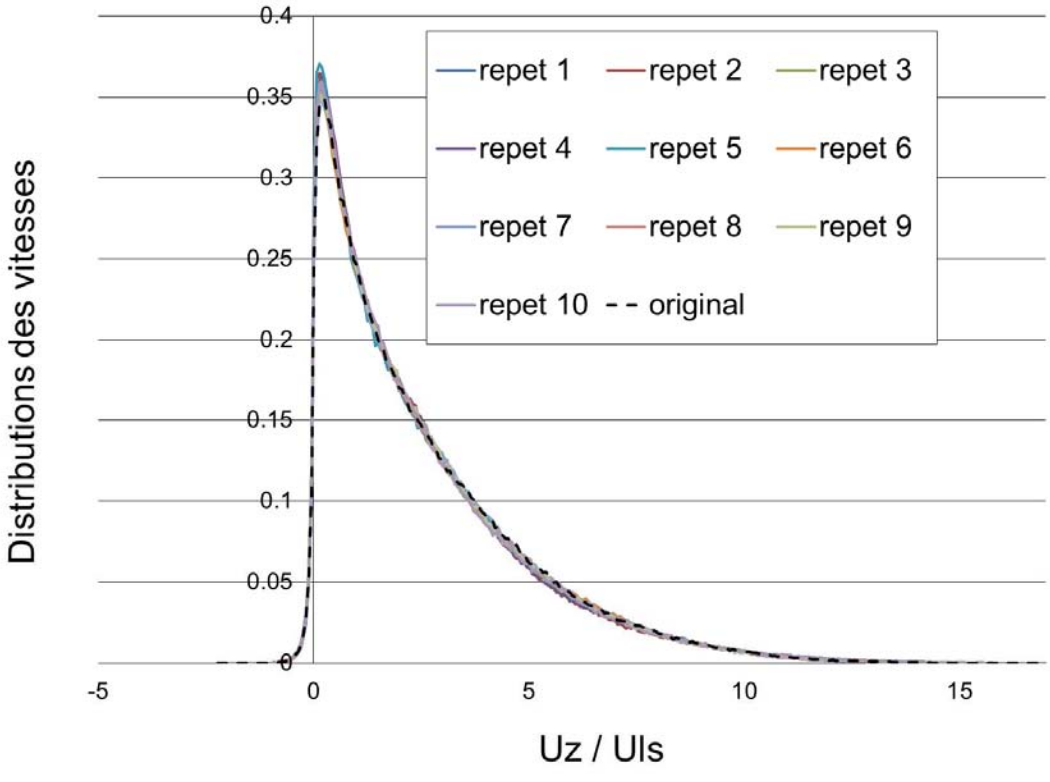


Figure 5.45 : Ecarts des distributions de vitesse, S1-7(sur la légende : original = lit S1-7 et repet = chargement répété du lit S1-7)

Des différences apparaissent si l'écart à la courbe moyenne de tous les lits est tracé (Figure 5.46). Par exemple, le calcul n°5 se distingue par moins de vitesses moyennes (entre 1 et 3) et plus de vitesses élevées (entre 3 et 8). Loin des vitesses nulles (pour $U_z/U_{ls} > 1$), les fluctuations sont faibles et ont pour ordre de grandeur ~ $3*10^{-3}$.

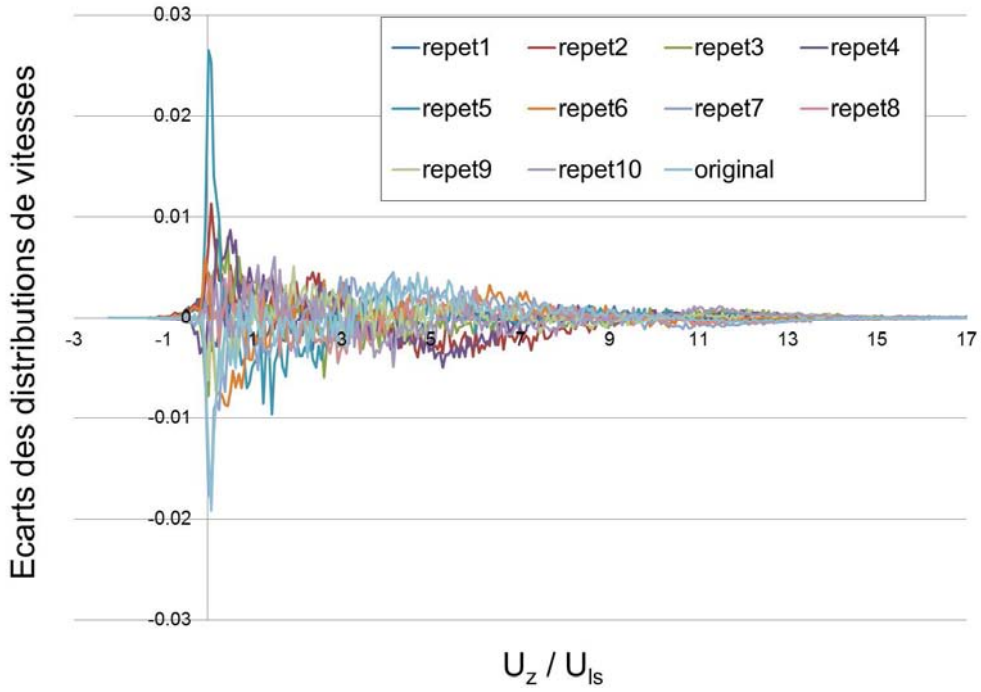


Figure 5.46 : Ecarts des distributions de vitesse par rapport à la moyenne de toutes les répétitions, (sur la légende : original = lit S1-7 et repet = chargement répété du lit S1-7)

A titre de comparaison avec la variabilité externe (entre répétitions), la Figure 5.47 donne la variabilité interne au sein d'un même lit (S1-7 original) issue d'une division en sous domaines d'égale épaisseur (= $2*d_s$ = 6 mm). Les écarts entre distributions de vitesse de chaque sous-domaine ont été calculés en prenant comme référence la moyenne des *FDP* de toutes les tranches du lit (sans les extrémités).

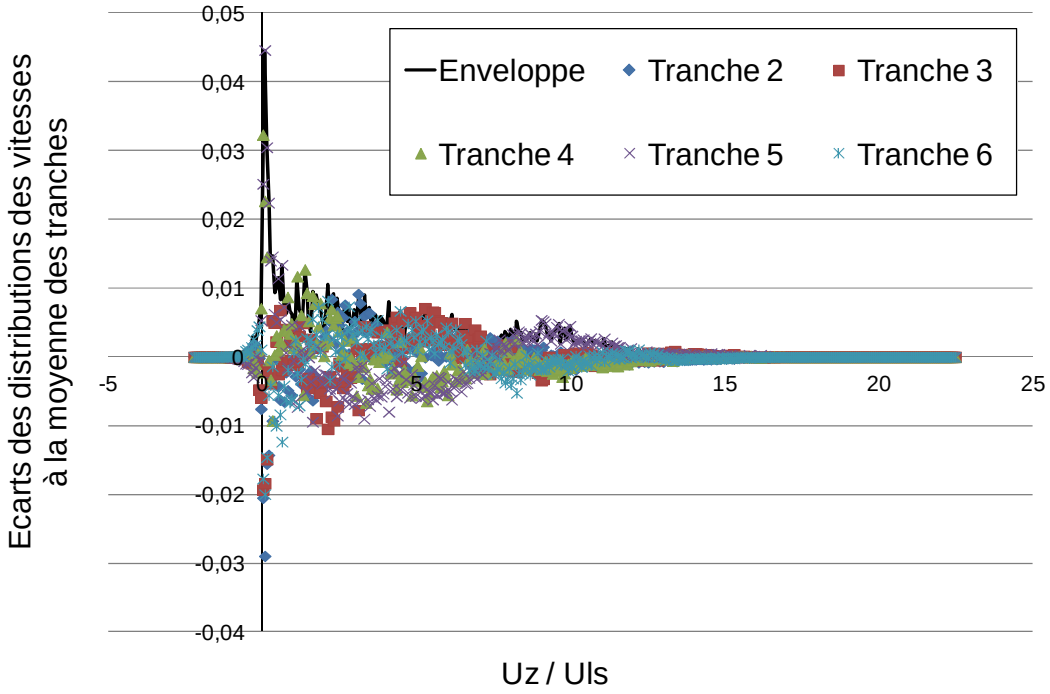


Figure 5.47 : Ecarts des distributions de vitesses, S1-7 (original)

Sauf pour les vitesses nulles, la variabilité interne (entre les différents sous domaines) de S1-7 est de l'ordre de 0.01, pour des sous-domaines d'épaisseur $2*d_s$. Afin de comparer cette variabilité interne avec la variabilité externe (entre lits) du paragraphe précédent sur des lits cinq fois plus longs, il est nécessaire de corriger la variabilité externe ($\sim 3*10^{-3}$) du ratio des hauteurs de domaine de moyenne soit un facteur 5 dans le cas présent. (voir § 5.6.4.5). La variabilité externe 0.015 (~ 0.003*5) est de l'ordre de la variabilité interne (0.01).

Pour aller plus loin dans cette comparaison, le test de la variance a été appliqué sur les lits S1-7-original et S1-7-repet1. La conclusion est que pour 99.5 % des classes, les sous domaines sont statistiquement identiques entre les 2 lits au risque α = 5%. Il est donc impossible de déterminer l'origine d'un sous-domaine d'un des 2 lits en étudiant la distribution des vitesses.

Une comparaison entre quatre lits extraits d'un même long lit (S4) et un lit court (S1) a été effectuée au moyen des fonctions enveloppes des écarts calculés. Pour ces calculs, la référence de comparaison est la moyenne des 5 lits. Sur la base des enveloppes (Figure 5.48), il n'y a pas de distinction entre les quatre lits extraits de S4 et le lit S1.

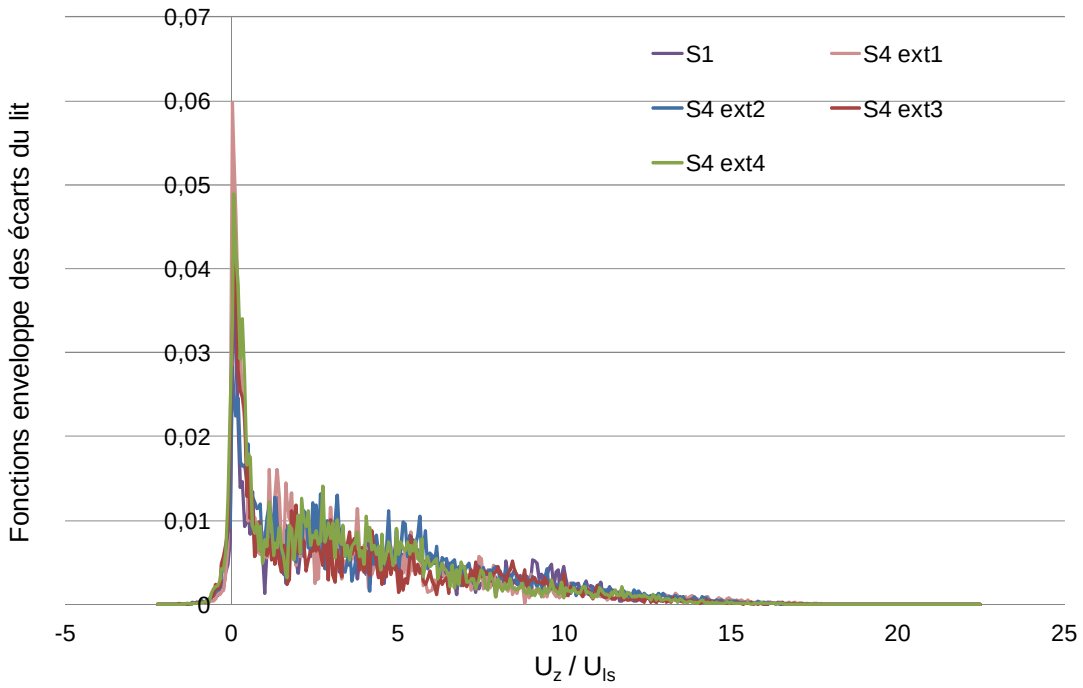


Figure 5.48 : Fonctions enveloppes des écarts, S1 et S4-extrait 1, 2, 3 et 4

Pour résumer cette analyse quantitative de la vitesse verticale effectuée dans des lits bipériodiques de billes monodisperses, les points suivants concernant la variabilité peuvent être dégagés :

- La variabilité est la même pour les dix lits répétés
- La variabilité entre lits répétés (variabilité externe) est du même ordre de grandeur que la variabilité dans un de ces lits (variabilité interne).
- La variabilité interne est identique pour des sous domaines extraits de lit de grandeurs différentes

Nous concluons que pour des billes, en l'absence de paroi, la variabilité au niveau hydrodynamique entre des lits différents et dans un lit ont la même origine : une création de structures aléatoires sans ordre apparent sur les hauteurs étudiées (< 15 cm).

5.6.5 FDP des vitesses transversales

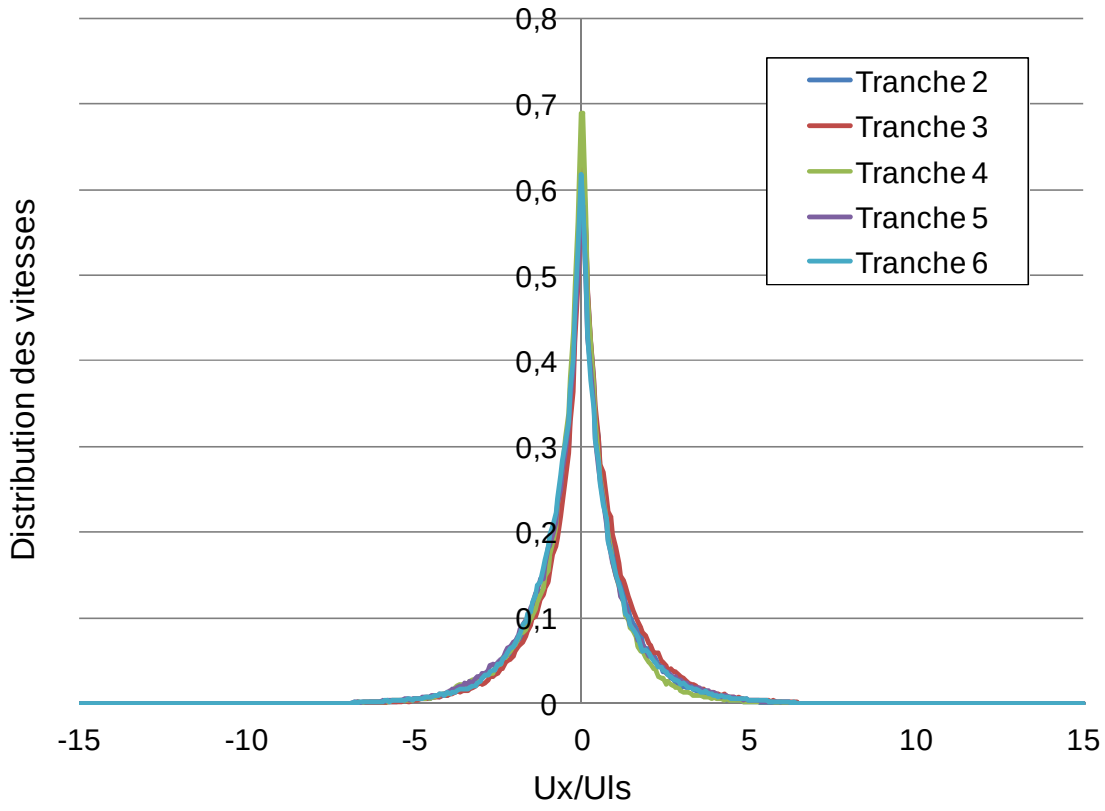


Figure 5.49 : Courbe de distribution de vitesse de la vitesse horizontale normalisée, S1-7

La distribution statistique de vitesses U_x (ou U_y) présente une symétrie autour de zéro avec des vitesses horizontales pouvant atteindre 5*U_{ls} environ (Figure 5.49). La même forme de courbe a été aussi retrouvée par Rong et al. [72]. Les zones d'entrée et de sortie (non représentées ici) ont une allure différente comme observé pour la vitesse axiale : elles ont les pics les plus importants. En outre, le pic de la courbe (U_x = 0, ce qui correspond à un écoulement direct) est plus important, pour le sous-domaine 4 (sur la Figure 5.49) qui correspond au sous domaine le plus poreux. Pour les autres sous-domaines du lit, il n'y a pas de lien systématique entre la porosité moyenne du sous-domaine et le pic de la *FDP*, ce qui met un autre facteur en jeu, qui est la structure locale de l'empilement, pour expliquer l'augmentation des vitesses faibles dans chaque sous-domaine (Figure 5.50).

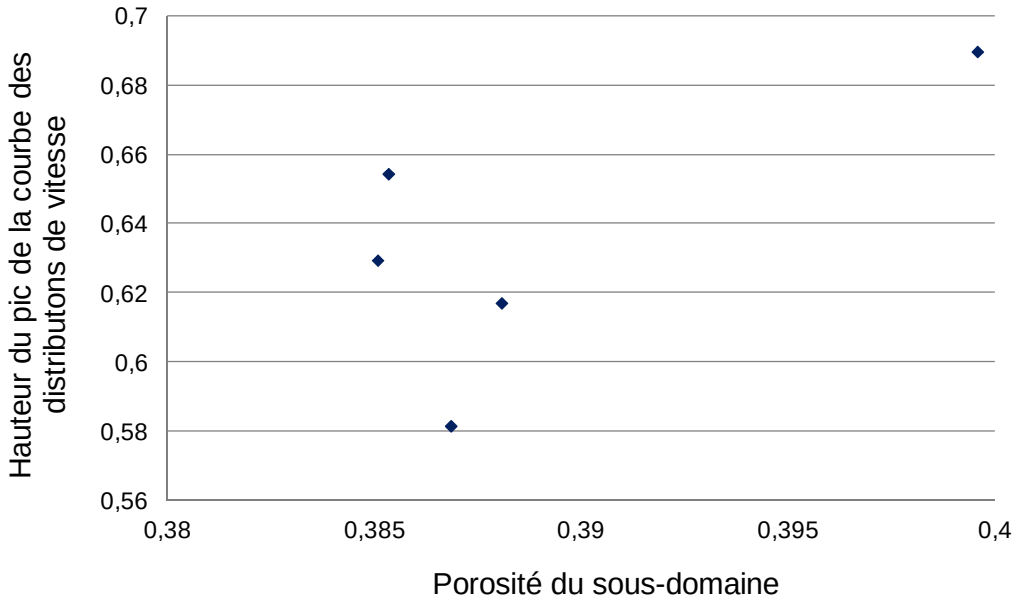


Figure 5.50 Hauteur du pic des courbes des FDP en fonction de la porosité de chaque sous-domaine, S1-7

L'écoulement transversal induit par l'obligation du fluide de contourner les obstacles, est intéressant pour la réaction car il permet de transporter radialement le réactif et participe à la dispersion radiale et au mélange entre veines de courant parallèles.

Une comparaison de nos résultats avec ceux de Cenedese [44] est donnée dans la Figure 5.51, selon la démarche expliquée précédemment dans la section (§5.6.4.2). Un bon accord est à nouveau retrouvé pour des configurations différentes.

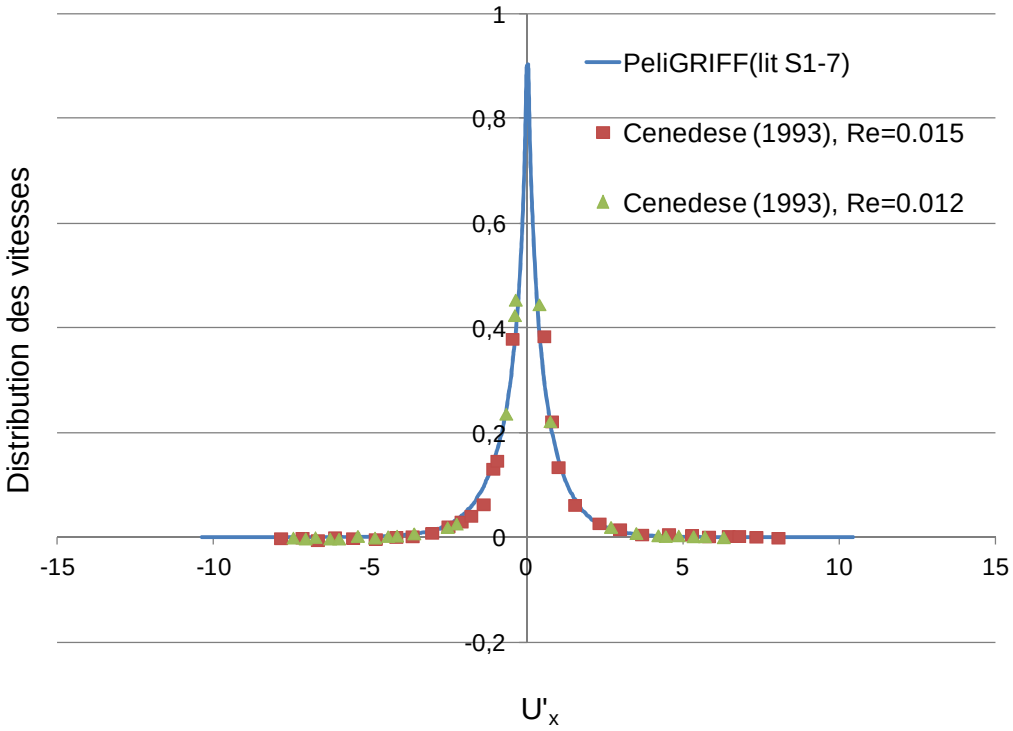


Figure 5.51 : Comparaison des distributions de vitesses transversales issues du calcul de PeliGRIFF(S1-7), vs les résultats expérimentaux de Cenedese et al. [44]

5.6.6 Comparaison entre empilement aléatoire et structuré

Une étude des *FDP*s des vitesses verticales a été effectuée pour les empilements cubiques réguliers et aléatoires. Les points suivants ont été relevés :

- Les *FDP*s des empilements aléatoires se rapprochent plus des cas CS (cubique simple) et CC (cubique centré) que du CFC. Ces deux empilements étant ceux avec la porosité la plus proche des empilements aléatoires.
- Le pic à faible vitesse des *FDP*s est moins important dans le cas aléatoire (< 0.4, sans les extrémités) que les empilements CS et CC, il se rapproche plus du cas CFC au niveau des faibles vitesses. Cet aplatissement du pic peut être expliqué par la tortuosité qui est plus marquée dans le cas aléatoire (Figure 5.52) et qui évite les zones stagnantes apparaissant quand deux particules sont alignées.

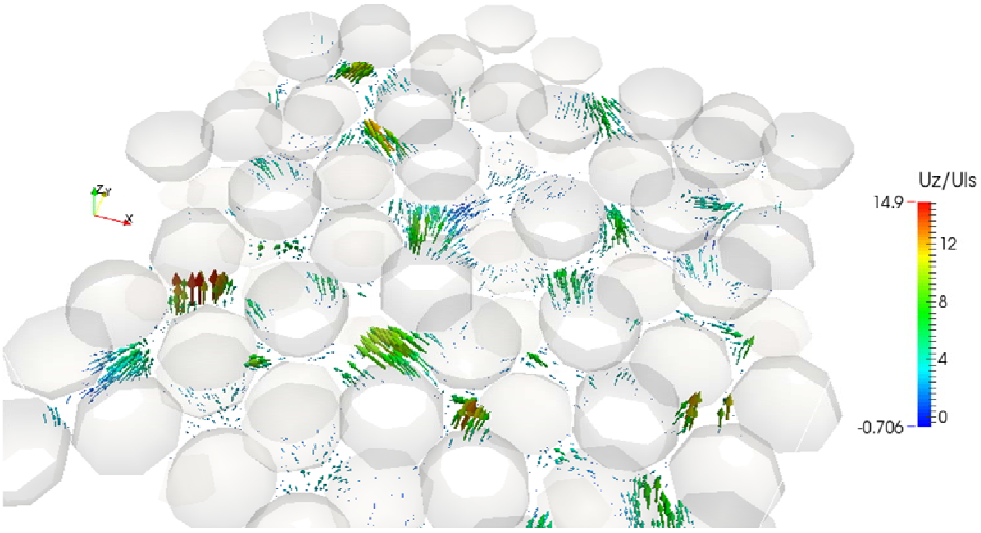


Figure 5.52 Zoom sur une partie du lit S1-7 montrant l'écoulement tortueux dans le cas d'empilement aléatoire

- L'effet de la tortuosité est plus marqué dans les empilements aléatoires et de fortes vitesses atteignant les 12* U_{ls} sont observées, comme pour le CFC.
- Des variabilités plus importantes sont attendues pour les empilements de particules anisotropes, c'est un point qui va être abordé dans ce qui suit pour les empilements de cylindres.

5.6.7 Synthèse sur les empilements aléatoires bipériodiques de billes

L'analyse des empilements bipériodiques de sphères met en évidence les points suivants en termes de variabilité :

- Il existe une variabilité interne aux réacteurs. Avec la même épaisseur, la distribution de vitesse varie d'une couche à un autre,
- La variabilité est faible,
- L'augmentation de volume d'un réacteur ne change pas la variabilité : il y a une compétition entre l'effet de moyenne d'une part et la création de source de structures aléatoires d'autre part. Il n'a pas été possible de déterminer un volume permettant la stabilisation des *FDP*, alors que l'analyse de l'empilement pour des sphères avait identifié un VER sphérique de 3 d_p (cf. chapitre empilements),
- L'absence de VER qui stabilise les *FDPs* confirme qu'une analyse selon une approche macro basée sur la notion de perméabilité n'est pas possible à adopter,

- La répétition d'un chargement conduit à un lit différent dont la *FDP* présente la même variabilité,
- La variabilité interne est du même ordre de grandeur que la variabilité externe.

5.6.8 Distribution de vitesses dans les empilements bipériodiques de cylindres

La même démarche a été appliquée pour des lits bipériodiques de cylindre afin de quantifier la variabilité des champs de vitesse. Les points suivants sont abordés :

- Evaluation de la variabilité interne en comparant les distributions de vitesse dans différents sous-domaines,
- Evaluation de la variabilité interne avec 3 répétitions de chaque lit,
- Comparaison entre la variabilité interne et externe.

5.6.8.1 Variabilité interne

Pour la variabilité interne, nous avons calculé les distributions de vitesse dans chaque lit composé de 11 sous domaines (après élimination des zones d'entrée/sortie) et qui ont une épaisseur égale à 2*d_c. Les écarts entre distributions de vitesse et la moyenne de tous les sous domaines ont été calculés pour chaque répétabilité à part. La variabilité interne est de l'ordre de 0.015 - 0.02, soit plus que pour les billes. Ceci est observé pour les trois longueurs de cylindres 2, 3 et 4 mm et toutes les répétabilités. (Figure 5.53 par exemple comparée à la Figure 5.47). Nous proposons que cela est dû à l'anisotropie (asymétrie) et à la forme (présence de coins) de la particule.

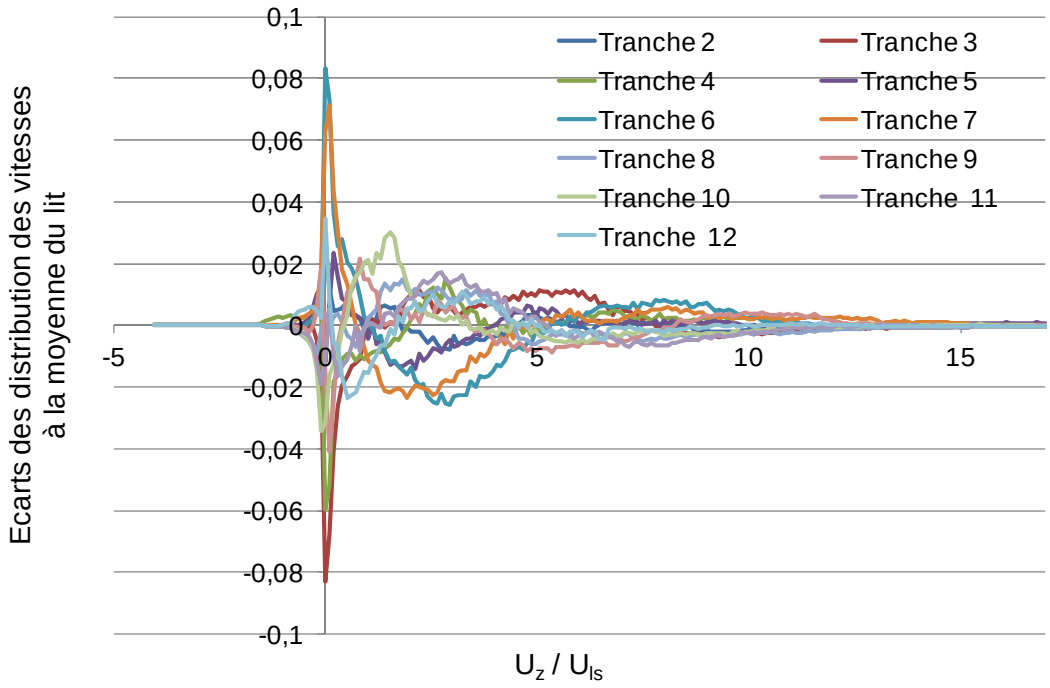


Figure 5.53 :Ecarts entre distributions de vitesses à la moyenne du lit C3-repet1

5.6.8.2 Variabilité externe

La variabilité externe est évaluée en comparant 3 répétitions de chaque lit. Les écarts entre distributions de vitesse sont calculés avec pour référence la moyenne des trois répétitions. La même allure des courbes a été observée pour les 3 longueurs de lits (exemples : Figure 5.54 pour les cylindres de 2 mm et Figure 5.55 pour les cylindres de 4 mm de longueur). Les courbes présentent plus de variabilité que dans le cas des sphères (Figure 5.46). La variabilité externe corrigée du nombre de domaine et de leur hauteur (cf.§5.6.4.5) est de l'ordre de 0.027 pour les cas C2 (0.0025*11 sous domaines) et de l'ordre de 0.044 pour les cas C4 (0.004*11 sous domaines). La variabilité externe augmente quand les cylindres deviennent plus longs (C4). Ceci est dû à un écoulement dans des structures moins répétables.

D'autre part, contrairement au cas des sphères, la variabilité externe, pour les cylindres, est supérieure à la variabilité interne : 0.027 pour C2 en variabilité externe, face à 0.02 en variabilité interne, ce qui correspond à un écart de ~30 % entre les deux variabilités pour C2.

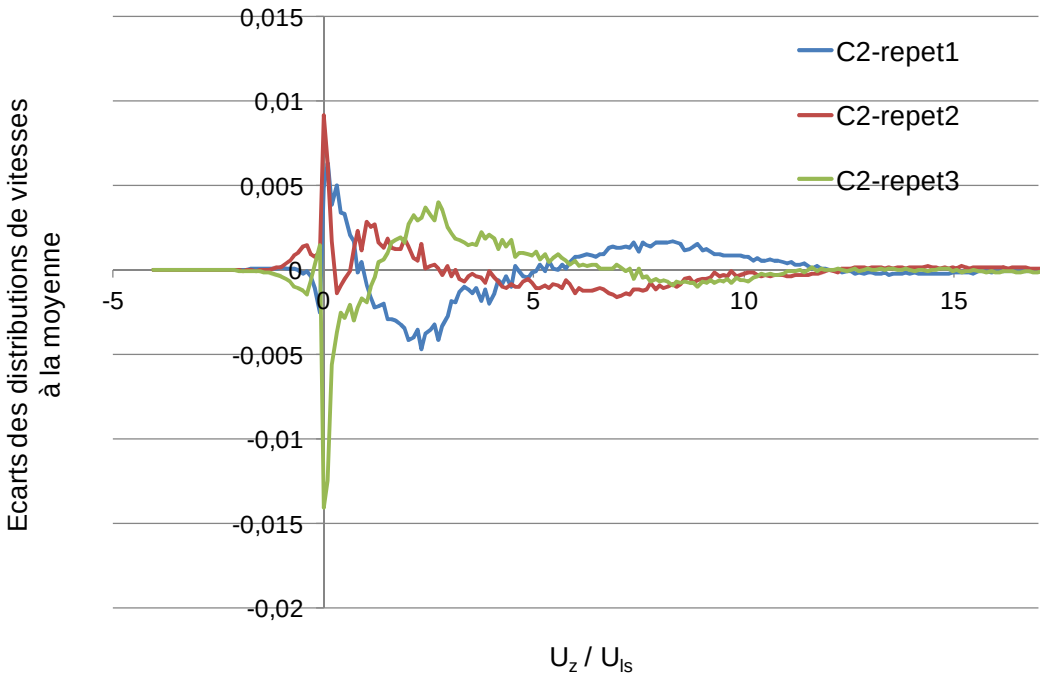


Figure 5.54 : Ecarts entre distributions de vitesse, pour 3 répétitions du lit C2, comparés à la moyenne de toutes les répétabilités

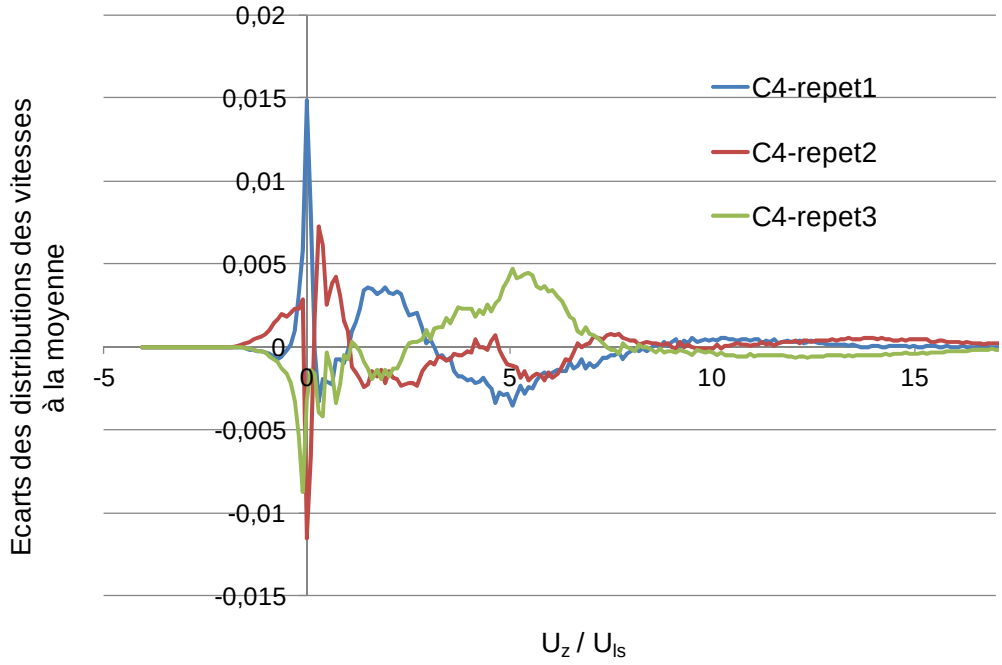


Figure 5.55 : Ecarts entre distributions de vitesse, pour 3 répétitions du lit C4, comparés à la moyenne de toutes les répétabilités

Le test de la variance indique que pour les cylindres, il y a plus de classes qui sont statistiquement différentes (au risque α = 5 %) : 12.5 % pour C4 comparées à 1.25 et 0.25 % des classes pour C2 et C3 respectivement. Les répétitions des lits C4 sont plus « différentes » entre elles que les répétitions des lits C2 et C3. Les 12.5 % de classes différentes pour les longs cylindres concernent plutôt les fortes vitesses réparties sur les deux gammes de vitesse suivantes : $4.96 < U_z/U_{ls} < 5.77$ et $14 < U_z/U_{ls} < 19$. Nous proposons que ce comportement est lié à l'anisotropie plus importante des cylindres de 4 mm de longueur (r_a = 2.5).

5.6.9 Analyse des distributions de vitesse pour des empilements de billes avec parois

Dans ce paragraphe, l'empilement et l'écoulement ont été simulés à l'intérieur d'une boite parallélépipédique de largeur et longueur égales à 18 mm selon les deux directions horizontales, tout en conservant les mêmes paramètres du cas S1-7 (c'est à dire avec 540 billes de diamètre 3 mm, une hauteur de lit d'environ 40 mm). Une condition de non glissement sur les parois latérales est imposée pour le calcul hydrodynamique.

La porosité est plus élevée que dans le cas bipériodique (0.45 contre 0.39 dans le cas bipériodique), de sorte que le lit est plus long que celui simulé avec des conditions bipériodiques ce qui conduit à le diviser en 8 zones au lieu de 7.

5.6.9.1 Analyse qualitative des champs de vitesse verticale

La coupe de vitesse verticale effectuée au centre de l'empilement (Figure 5.56) présente les mêmes caractéristiques que pour les empilements bipériodiques : la structure 3D locale influence l'écoulement du fluide.

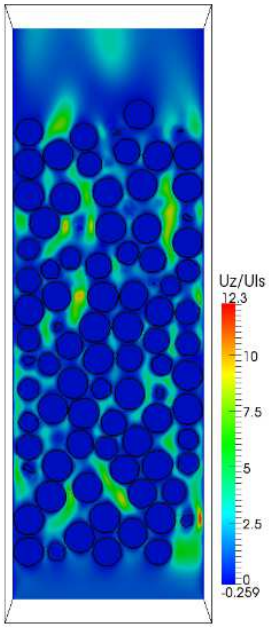


Figure 5.56 Coupe verticale au centre du lit représentant les vitesses verticales normalisées, empilement S1-parois

Les zones à fortes vitesses verticales peuvent atteindre 13 fois $U_{ls.}$ Ce sont des vitesses moins élevées que la valeur trouvée pour les empilements sans parois (U_z/U_{ls} ~ 15 à 17, voir §5.4). La comparaison entre les Figure 5.56, d'une part, entre la Figure 5.57, d'une part, et les Figure 5.58 et Figure 5.59, d'autre part, montre que les zones de fortes vitesses (U_z/U_{ls} > 8) sont plutôt localisées près des parois où le fluide a plus de facilité à passer puisque la porosité y est plus élevée.

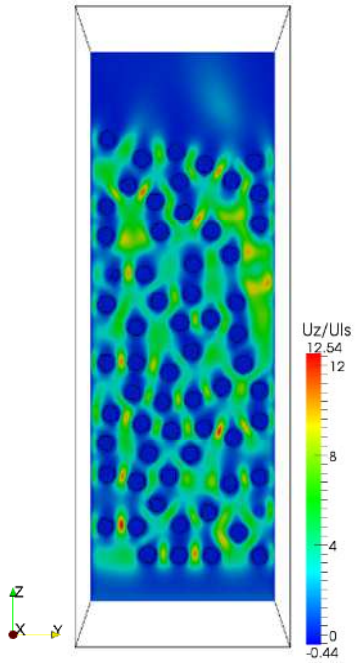


Figure 5.57 Coupe verticale en proche parois (plan selon (Y, Z) pris à 0.3 mm de la paroi) représentant les vitesses verticales normalisées, empilement S1-parois

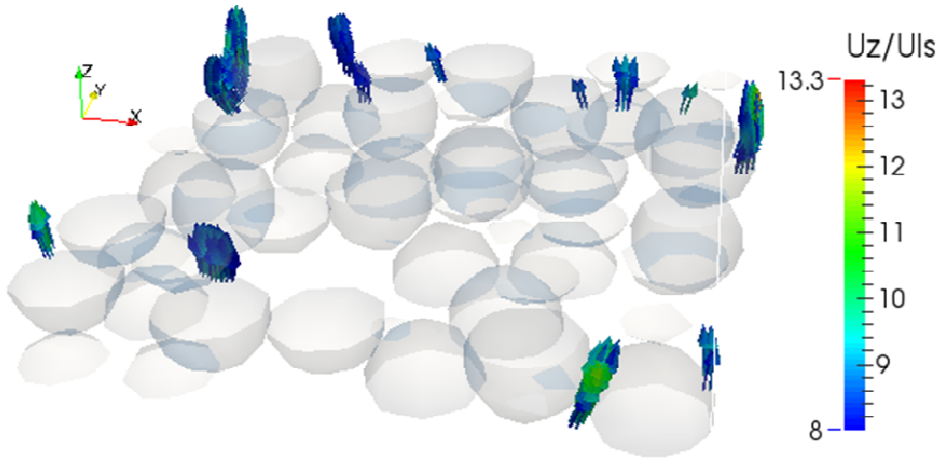


Figure 5.58 Zoom des zones à vitesses verticales maximales (U_z/U_{ls} > 8) dans une coupe horizontale du lit S1-parois

Il existe des zones de faible vitesse verticale ($0.0001 < U_z/U_{ls} < 0.1$) localisées surtout près de la surface des particules.

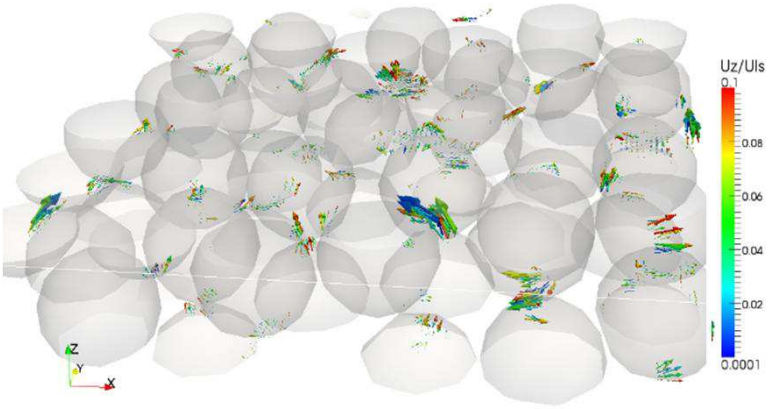


Figure 5.59 Zones à faibles vitesses verticales ($0.0001 < U_z/U_{ls} < 0.1$) dans une partie au centre du lit S1-parois

Les zones à vitesses négatives ($U_z/U_{ls} < -0.001$) sont réparties de façon homogène mais ne remplissent pas beaucoup de volume (Figure 5.60).

.



Figure 5.60 Zones à vitesses négatives (U_z/U_{ls} < -0.001) au centre du lit, empilement S1-parois

5.6.9.2 Distributions des vitesses verticales

Le lit a été divisé en huit sous-domaines d'épaisseur 2*d_s. Les courbes de *FDP*s ont la même forme que celle décrite dans le paragraphe §5.6.1 mais avec un pic près de zéro plus important et des vitesses élevées plus faibles (Figure 5.61 qui compare les lits S1-7 et S1-paroi).

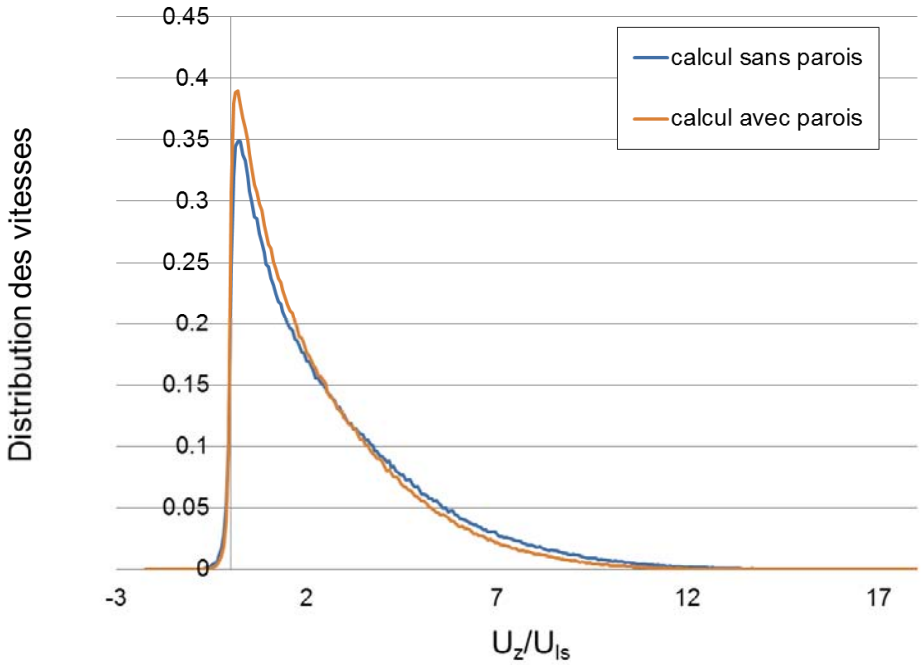


Figure 5.61 : Moyenne des FDPs pour les tranches (sans extrémités) dans les lits S1-parois et S1-7

La *FDP* du calcul avec parois a un pic plus important de ~10 % (0.39 face à 0.35). Ceci peut être expliqué par une augmentation de la surface de contact pour le cas avec paroi (facteur d'augmentation de surface entre les deux cas de l'ordre de 10 %).
En outre, les fortes vitesses sont moins fréquentes dans le cas avec parois. Les écarts de vitesse moyenne ($U_{z\text{-}moyenne}$ = 2.5*U_{ls} pour le cas sans parois, et 2.2*U_{ls} pour le cas sans parois) sont totalement expliqués par la porosité plus élevée dans le lit avec parois (ε = 0.45 avec parois, 0.39 sans parois)

5.6.9.3 Distribution des vitesses transversales

La Figure 5.62 montre les distributions de vitesse transversale dans le lit S1-parois (sans les extrémités). Les courbes présentent la même allure symétrique autour de l'axe des ordonnées comme observé dans le cas bipériodique (Figure 5.49) avec des vitesses maximales de l'ordre de 4*U_{ls}.

.

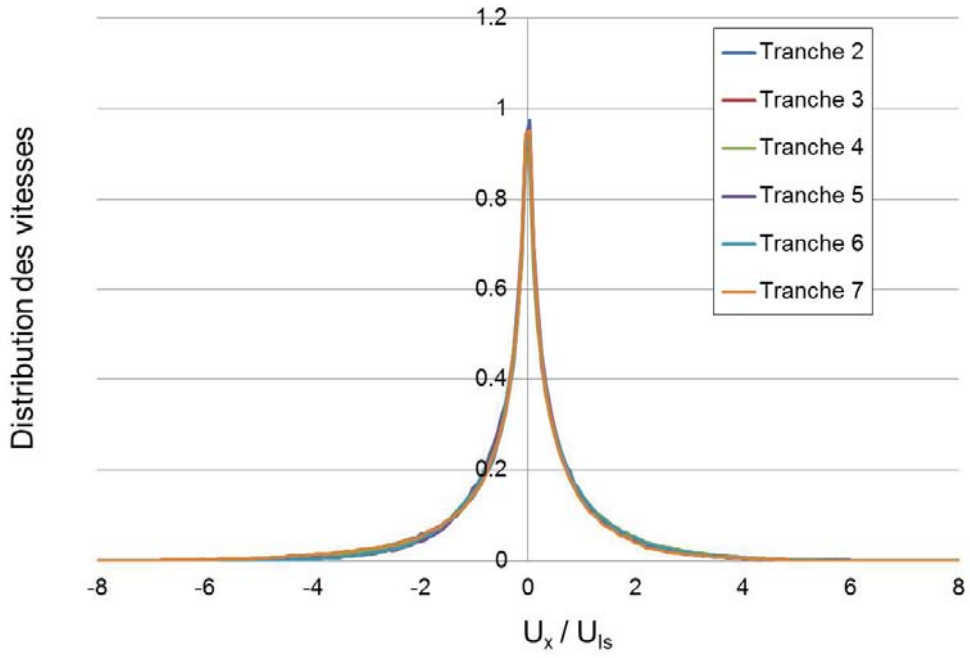


Figure 5.62 : Distribution de vitesse perpendiculairement au flux pour différentes tranches dans le lit S1-parois

Une comparaison des *FDP*s moyennes des cas sans et avec parois (Figure 5.63) montre que les vitesses horizontales proches de zéro (-0.5 < U_x/U_{ls} < 0.5) sont plus fréquentes dans le cas

avec parois. A partir de $U_x/U_{ls} > 1$ et $U_x/U_{ls} < -1$, les vitesses horizontales deviennent plus importantes dans le lit sans parois. Les parois canalisent plus l'écoulement.

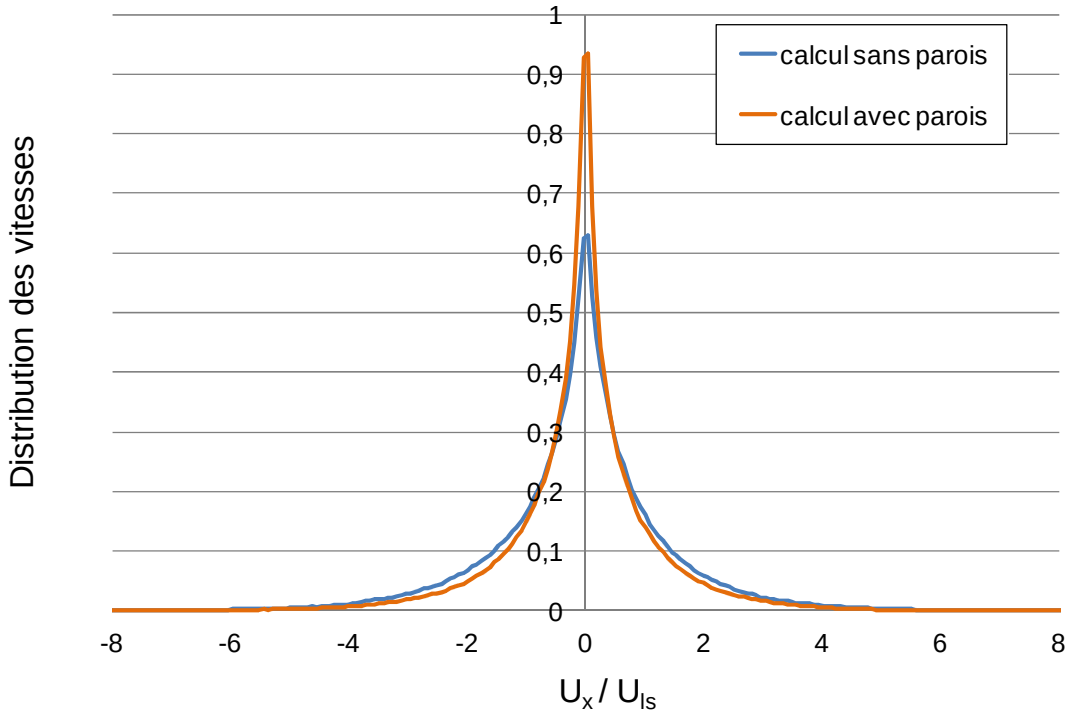


Figure 5.63 : Moyenne des FDPs perpendiculairement au flux pour les tranches (sans extrémités) des lits S1-parois et S1-7

5.6.9.4 Variabilité interne sur les vitesses verticales

Pour étudier la variabilité interne, le lit S1-parois a été divisé en 6 sous-domaines d'égale épaisseur (= $2*d_s$). Les écarts entre distributions de vitesse de chaque sous-domaine ont été calculés (Figure 5.64) avec pour référence le lit complet (hors extrémités). La Figure 5.65 représente l'enveloppe des écarts avec et sans paroi. Entre $1< U_z/U_{ls} <3$, la variabilité entre les différents sous domaines de S1-parois est de l'ordre de 0.01 qui est du même ordre de grandeur que le lit bipériodique. Pour les plus grandes vitesses ($U_z/U_{ls} > 3$), la variabilité pour le cas sans paroi est plus faible.

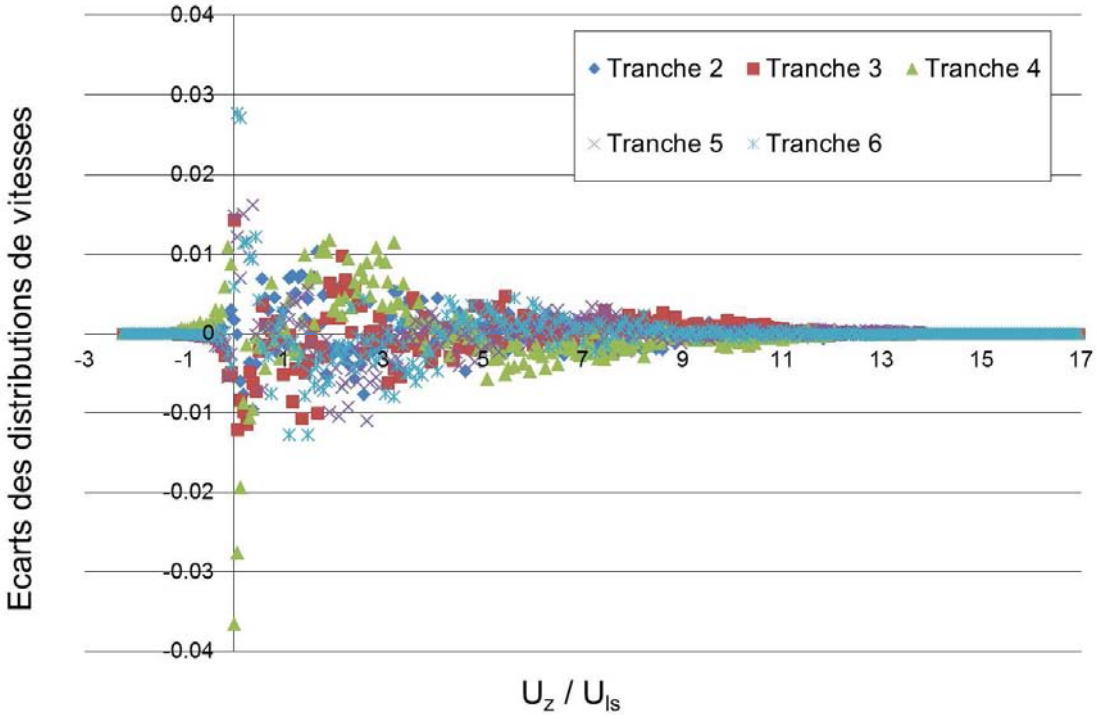


Figure 5.64 : Ecarts des distributions de vitesses, S1-parois

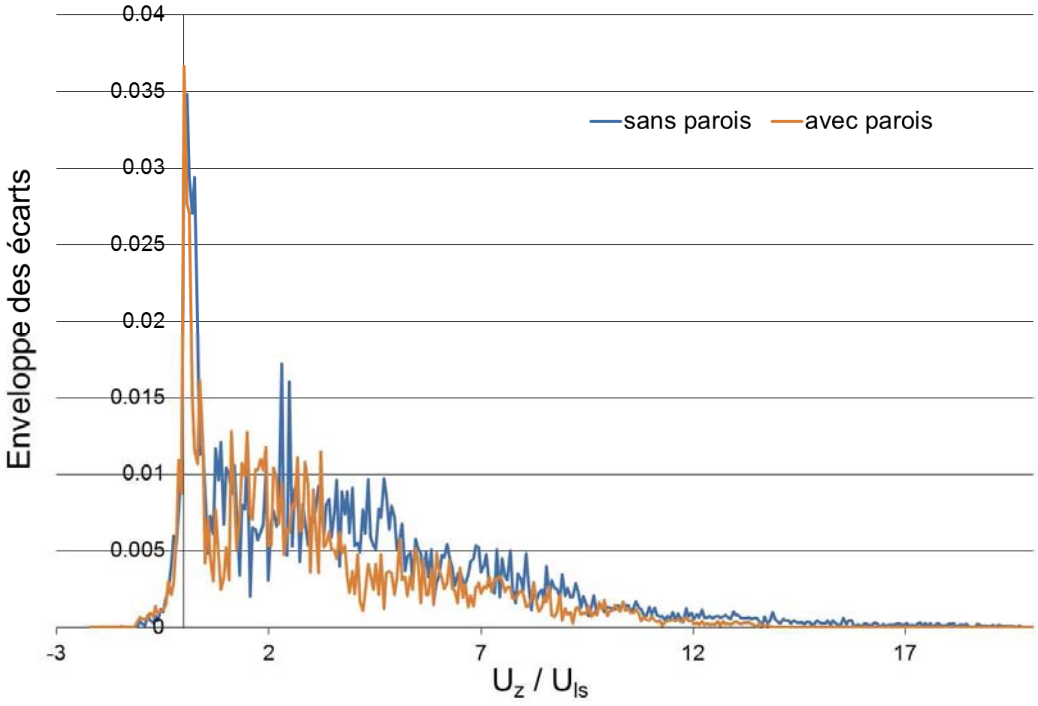


Figure 5.65 : Enveloppes des écarts des distributions de vitesses, S1-parois et S1-7

5.6.9.5 Synthèse sur les lits de billes avec paroi

La présence de paroi conduit à une légère altération de la forme des *FDPs* avec les caractéristiques suivantes qui ont été relevées :

- L'augmentation de la probabilité de zone à basse vitesse,
- La diminution de la probabilité de zone à forte vitesse,
- La diminution de la variabilité à forte vitesse.

5.6.10 Synthèse sur l'analyse des distributions des vitesses

Dans cette partie, une comparaison des fonctions de densité de probabilité de vitesse dans des empilements structurés et aléatoires de billes et de cylindres monodisperses a été effectuée. L'effet de la structure locale aléatoire et de la répétabilité de l'empilement sur l'écoulement a été examiné.

Des systèmes périodiques ont été étudiés : cubique simple (CS), cubique centré (CC) et cubique face centré (CFC). Les vitesses proches de zéro sont plus importantes pour l'empilement CS du fait de la présence de zones « masquées ». Plus l'empilement devient tortueux, plus les vitesses importantes augmentent (jusqu'à $U_x = 12U_{ls}$), les zones mortes diminuent et les variabilités deviennent plus marquées (cas du CFC comparé au CS).

Ces constatations sur les empilements réguliers sont utiles pour expliquer les distributions de vitesse dans les lits aléatoires. Bien que les empilements réguliers ne présentent pas les hétérogénéités locales de structure mais ils permettent de dégager des tendances. Les lits aléatoires sont caractérisés par leur structure locale aléatoire et tortueuse, et leur porosité plutôt proche du CC. Leurs *FDPs* présentent des vitesses verticales maximales importantes qui peuvent dépasser $15*U_{ls}$, avec des variabilités assez marquées. Pour les lits de cylindre où l'anisotropie de la particule complique davantage la structure, les variabilités sont plus importantes.

A faible Reynolds ($Re \leq 0.7$), les champs de vitesse ne dépendent pas du *Re* (régime rampant). Quand le Reynolds augmente ($Re \geq 7$), les champs de vitesse évoluent avec en particulier plus de zones à vitesse axiale négative, ce qui est analogue au cas d'une sphère isolée où des zones de recirculation sont crées derrière la sphère quand le Reynolds augmente, ainsi qu'une modification de la forme de la *FDP* que nous attribuons à un amincissement des couches limites.

Une analyse de variabilité interne et externe a montré que :

- L'augmentation du volume du lit ne lisse pas la variabilité : du fait d'une compétition entre l'effet de la moyenne d'une part et l'augmentation des structures aléatoires d'autre part.
- Pour les empilements de billes sans parois : la variabilité interne (dans un lit) est du même ordre de grandeur que la variabilité externe (entre lits).
- Pour les empilements de cylindres sans parois : la variabilité externe est légèrement supérieure à la variabilité interne, il existe quelques différences entre lits qui augmentent avec l'élongation des objets.
- Pour l'empilement de billes avec parois : la variabilité interne est du même ordre de grandeur que le lit sans parois sauf pour les vitesses importantes où elle est plus faible pour le lit avec parois. Nous proposons comme explication que les parois offrent plus de frottement et canalisent plus l'écoulement.

5.7 Résultats préliminaires de l'écoulement réactif

A la suite des travaux sur la structuration géométrique et l'hydrodynamique dans les empilements aléatoires de grains de catalyseur, cette partie présente une introduction à l'étude de l'écoulement réactif dans le but d'atteindre l'objectif final du travail qui est l'identification de la relation entre empilement aléatoire et réactivité apparente de micro réacteurs à lit fixe.

5.7.1 Physique et équations

En simplifiant le schéma réactionnel à une unique réaction sur un réactif de concentration C, l'objectif est de résoudre dans le fluide l'équation locale de transport comportant un terme diffusif et convectif (Équation 5.30) ; et dans le solide, qui représente un grain de catalyseur poreux, l'équation de diffusion (sans convection) avec un terme puits (Équation 5.31).

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla.(-D_{fluide}\nabla C) + \mathbf{u}.\nabla C = 0 \qquad \textit{Équation 5.30}$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla.(-D_{solide}\nabla C) = R \qquad \textit{Équation 5.31}$$

avec :

$$R = -k.C \qquad \textit{Équation 5.32}$$

Le coefficient de diffusion dans le solide D_{solide} est, en effet, un coefficient de diffusion effectif qui est fonction de la diffusion à l'extérieur du grain solide D_{fluide}, c'est à dire entre la surface d'échange de la matrice solide et le fluide interstitiel. La diffusion dans le grain solide tient compte de la porosité dans le grain ε_{grain} et de la tortuosité τ.

$$D_{solide} = D_{fluide} \frac{\varepsilon_{grain}}{\tau} \qquad \textit{Équation 5.33}$$

Le ratio D_{fluide}/D_{solide} est typiquement entre 5 et 20 [100]. Dans la suite où les coefficients de diffusion de solide et dans le fluide seront différents, nous supposerons un ratio de 10 entre les deux.

Si les changements de concentration ne modifient pas la densité ou la viscosité, l'équation de convection-diffusion peut être résolue indépendamment des équations de Navier-Stokes ; ce cas correspond par exemple à la réaction d'un produit fortement dilué ou d'un réactif dont les propriétés diffèrent peu du produit de la réaction.

De même, en cas d'écoulement stationnaire, les équations de Navier-Stokes et celle de convection-diffusion peuvent être résolues de manière découplée, c'est à dire les champs de vitesse et de pression sont d'abord calculés, puis l'évaluation temporelle de la concentration dans le système est effectuée, ce qui permet de faire varier les propriétés du réactif pour un même écoulement.

5.7.2 Mise en œuvre dans PeliGRIFF

Le module réactif, qui a été développé au cours de la thèse, a été testé dans la partie finale de cette thèse et une partie du travail a consisté à réfléchir à sa validation.

Numériquement, le problème est assez sensible : les faibles coefficients de diffusion conduisent à de forts gradients notamment près des interfaces fluide/solide. Une question clé est de déterminer la résolution spatiale requise pour capturer les couches limites massiques.

La méthode pour valider PeliGRIFF consiste à traiter les cas suivants:

- Transfert de matière externe en absence d'écoulement sur une sphère et comparaison avec la solution analytique connue pour les sphères ($Sh = 2$)

- Transfert de matière externe avec écoulement sur une sphère et comparaison avec la corrélation de Ranz-Marshall
- Transfert interne en absence d'écoulement et comparaison avec la solution analytique (module de Thiele) pour les sphères et les cylindres (avec des cylindres très longs).

Ces méthodes nécessitent d'imposer une concentration uniforme sur la surface de la particule, fonctionnalité nouvelle dans PeliGRIFF. Une de nos conclusions est que la validation de PeliGRIFF avec un écoulement réactif nécessite de pouvoir définir cette condition limite.

Sans attendre le développement du module de concentration imposée en surface de la particule, des calculs 3D ont été réalisés afin d'explorer la physique des écoulements réactifs. Dans la partie suivante, des résultats seulement qualitatifs sont présentés.

5.7.3 Premiers résultats avec écoulement réactif autour d'une particule

Le maillage choisi ici est identique à celui utilisé en hydrodynamique : pour les billes 24 points/diamètre de bille, et 32 points/diamètre de cylindre.

5.7.3.1 Cas d'une sphère avec écoulement

Le système considéré est présenté dans la Figure 5.66, avec une concentration uniforme en entrée, et une condition de vitesse verticale non nulle sur la face d'entrée. Les calculs ont consisté en une étude paramétrique avec pour paramètres la vitesse de l'écoulement et la constante de réaction. Les vitesses d'entrée imposées sont 10^{-4} et 10^{-2} m/s, la diffusion moléculaire dans le fluide D_m est égale à 10^{-6} m^2/s, celle dans le solide = 10^{-7} m^2/s. Ceci correspond à des nombres de Péclet allant de 0.3 à 30 suivant les vitesses d'entrée. Le nombre de Péclet *Pe* étant défini ainsi :

$$Pe = \frac{U_{ls} d}{D_m} \qquad \textit{Équation 5.34}$$

U_{ls} est la vitesse d'entrée, d le diamètre de la particule, D_m est le coefficient de diffusion moléculaire dans le fluide.

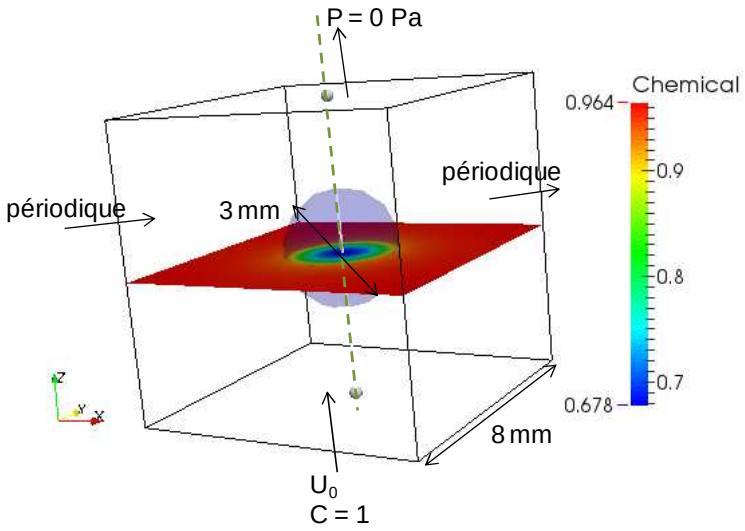


Figure 5.66 : Champs de concentration, à travers un plan (x, y) au centre du domaine, avec conditions aux limites imposées, cas d'une sphère de diamètre 3 mm

La réaction dans le solide est une réaction d'ordre un, uniforme avec une constante *k* de réaction égale à 0.01, 0.1, 1, 10 et 100 s^{-1}.

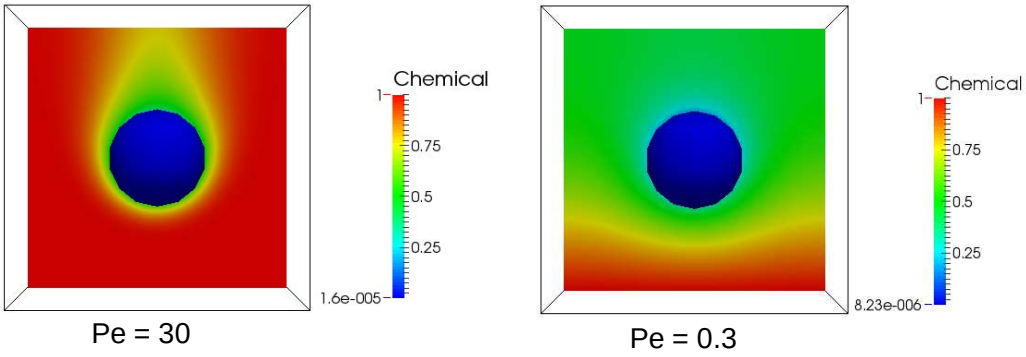


Figure 5.67 : Champ de concentration à travers une coupe dans le plan (x, z) au centre du domaine, cas avec k =10 s^{-1},

Selon le nombre de Péclet, le champ de concentration est très différent (Figure 5.67). Avec un *Pe* = 30, la concentration en réactif diminue uniquement dans le sillage de la particule , tandis qu'avec un *Pe* = 0.3, la concentration en réactif diminue avant la particule et sur tout l'espace situé en aval : la diffusion moléculaire est suffisamment forte par rapport à la convection pour homogénéiser les gradients de concentration.

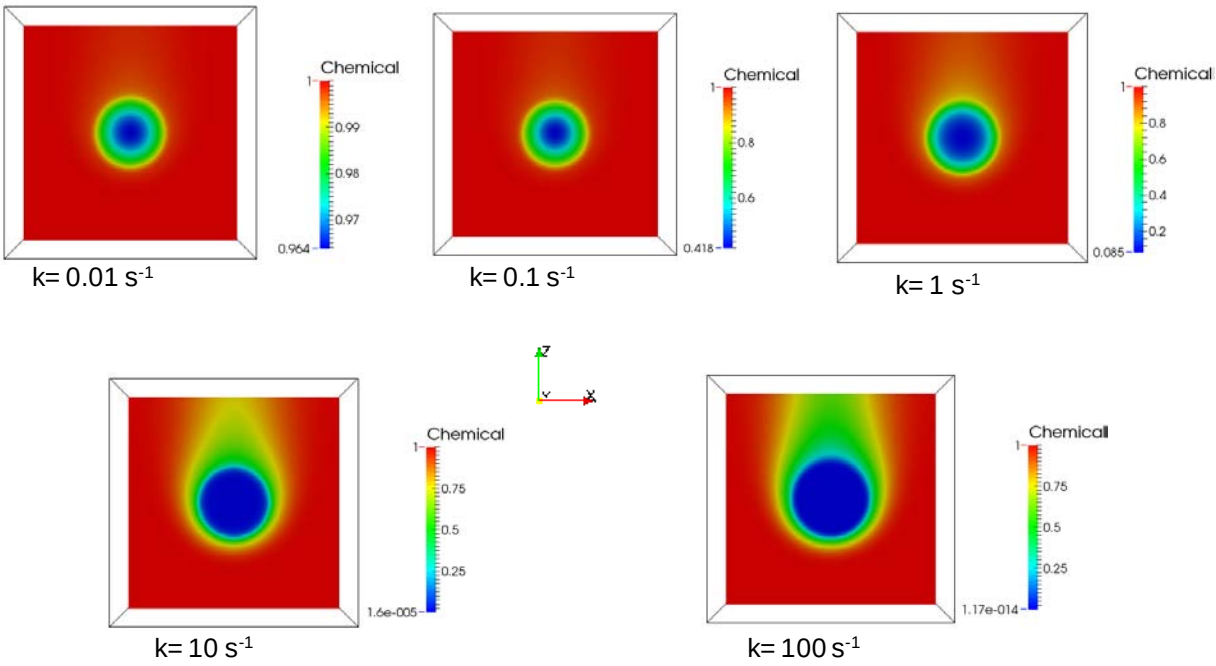


Figure 5.68 : Champ de concentration à travers une coupe dans le plan (x, z) au centre du domaine, pour différentes constantes de réaction k et un nombre de Péclet Pe =30

Pour un *Pe* = 30, les champs de concentration sont présentés dans des plans au centre du domaine pour différentes vitesses de réaction simulées (Figure 5.68). Plus la vitesse de réaction est élevée, plus le sillage est marqué et plus le profil de concentration dans le grain est plat (limitations internes).

La concentration en surface de la sphère n'est pas constante (Figure 5.69), ce qui indique qu'une approche par module de Thiele ne peut pas être adoptée.

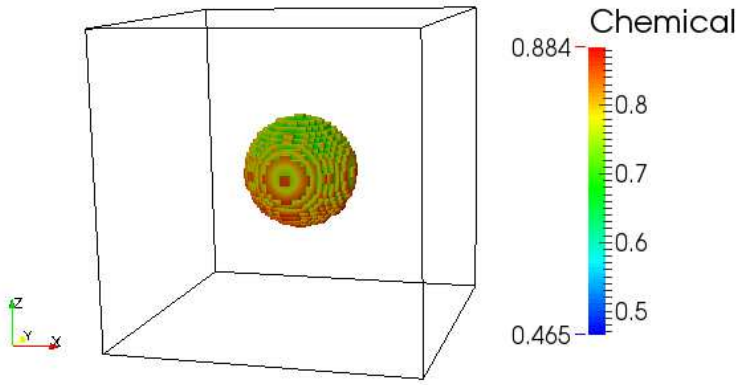


Figure 5.69 : Concentration sur la sphère, k = 0.1 s^{-1}

5.7.3.2 Cas d'un cylindre semi-infini avec écoulement

Des calculs similaires ont été réalisés avec un cylindre placé au centre d'une boite bipériodique, de côté 8 mm, dans les directions horizontales avec un écoulement vertical ascendant en entrée (face inférieure). Le cylindre est placé horizontalement et a une longueur égale à la taille de la boite bipériodique = 8 mm, et un diamètre de 3.2 mm (Figure 5.70). Cette géométrie correspond à un cylindre de longueur infinie. Les calculs sont effectués avec une pression uniforme imposée en sortie et une concentration constante (C = 1) imposée en entrée. La diffusion dans le fluide est prise égale à $5*10^{-7}$ m^2/s.

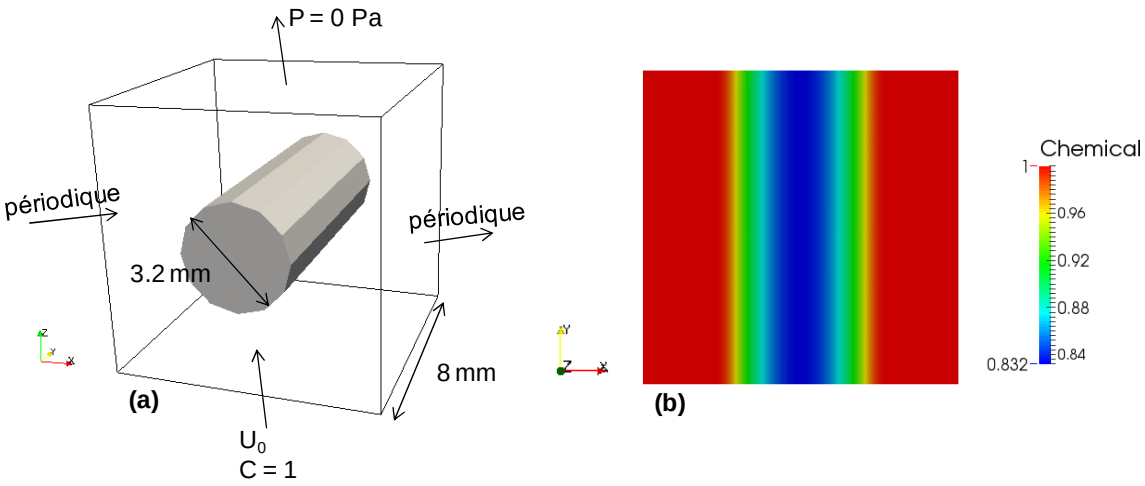


Figure 5.70 : (a) Dimensions et conditions aux limites du système étudié et (b) champ de concentration à travers un plan (x, y) perpendiculaire à l'écoulement passant par le centre du cylindre), cas d'un cylindre 'semi-infini'

Du fait des conditions aux limites, les calculs ne peuvent être comparés à une solution connue mais permettent de mettre en évidence un décalage de la zone de basse concentration dans le grain vers l'aval (Figure 5.71). Il apparait que la théorie de Thiele qui suppose une symétrie de révolution dans le grain pourrait ne plus être applicable.

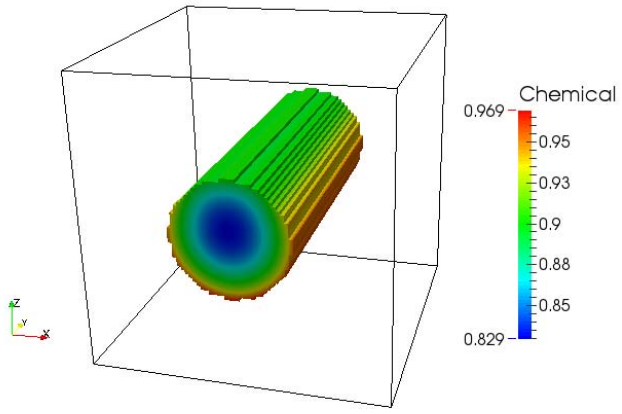


Figure 5.71 : Champs de concentration, à la surface du cylindre, cas d'un cylindre 'semi-infini'

Des calculs sur un cylindre de longueur 3 mm orienté par rapport à l'écoulement, (Figure 5.72), indiquent que la concentration en surface d'une particule n'est pas uniforme (Figure 5.73). Les calculs sont effectués avec une diffusion dans le solide inférieure à la diffusion moléculaire dans le fluide (D_m = 10^{-6} m^2/s et D_{solide} = 10^{-7} m^2/s), avec une vitesse à l'entrée égale à 0.05 m/s ce qui correspond à un nombre de Péclet de 600. La constante de réaction *k* est prise égale à 0.5, 3 et 10 s^{-1}.

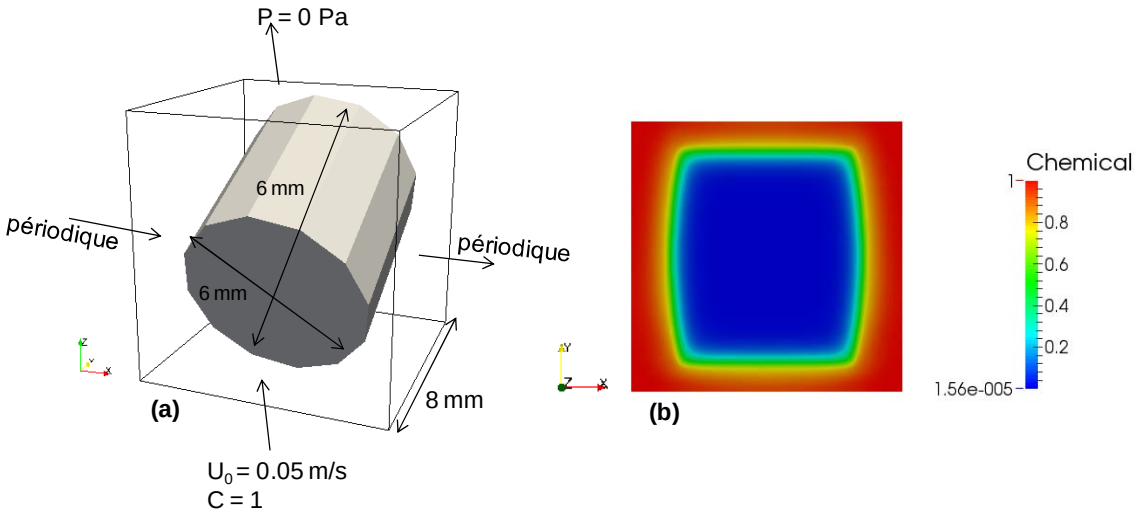


Figure 5.72 : (a) Dimensions et conditions aux limites du système étudié et (b) champs de concentration à travers un plan (x, y) au centre du domaine, cas d'un cylindre 'orienté'

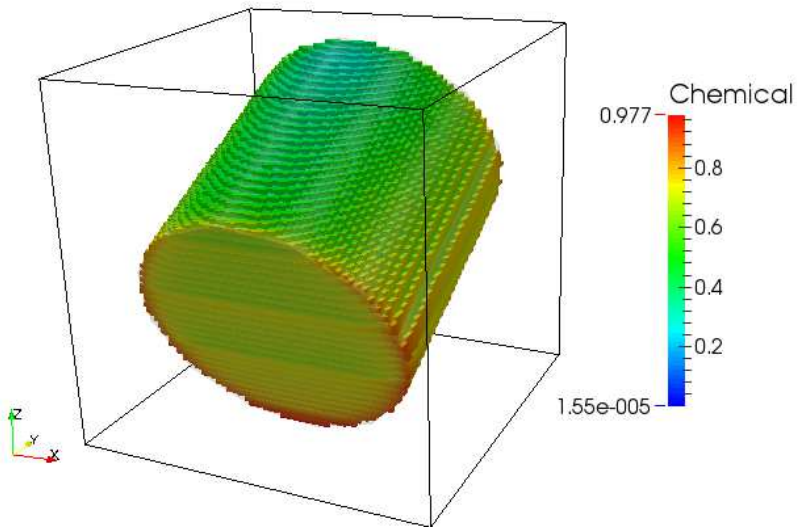


Figure 5.73 : Concentration en surface du grain, Pe =600, k = 10 s^{-1}

5.7.4 Conclusion pour l'étude qualitative de l'écoulement réactif en mono-particule

Dans cette partie, une exploration qualitative de quelques simulations d'écoulement réactif avec une seule particule dans un domaine bipériodique a été effectuée. La validation du module réactif et la sensibilité au maillage nécessite le développement de la condition aux limites C = constante sur une surface.

5.8 Conclusion du chapitre

L'étude de l'hydrodynamique dans des empilements structurés et aléatoires de particules a été réalisée à travers une étude de la perte de pression et des champs de vitesse. Les systèmes étudiés ont été très variés, plusieurs paramètres les caractérisent :

- nature de la structure : empilements structurés / aléatoires,
- forme des particules : billes / cylindres,
- taille des particules : empilements mono / polydisperses,
- conditions aux limites du domaine : sans parois (empilements bipériodiques 'semi-infinis' ou tripériodique 'infinis') ou avec parois ('finis').

L'effet de la variabilité de la structure locale et de la répétition du chargement sur les champs de pression et de vitesse a été mis en évidence et quantifié : en terme de perte de pression, la variabilité est du même ordre de grandeur pour les lits de sphères monodisperses et les lits de cylindres. En termes de champs de vitesse, la variabilité interne et externe pour des empilements de billes sont du même ordre de grandeur, tandis que pour les lits de cylindres la variabilité externe est légèrement supérieure à celle interne et augmente avec l'augmentation de la longueur de la particule cylindrique.

Une constatation générale ressort pour tous les lits aléatoires étudiés, il faut omettre une partie du lit pour s'affranchir des effets du fond (empilement sur une surface plane) et de la tête de l'empilement (couches non remplies), qui sont des zones à très fortes variations. Cette couche a une épaisseur = $2d_p$ pour étudier l'hydrodynamique, et $4d_p$ pour la perte de pression (et également pour la porosité, cf. chapitre 'étude des empilements'). Les champs de vitesse semblent être moins sensibles à la structure de l'empilement.

L'étude de la perte de pression a permis de mettre en évidence les points suivants :

- il existe une variabilité entre lits en termes de perte de pression sans stabilisation avec une augmentation de la hauteur de lit, comme nous l'avons constaté également pour les profils de porosité,
- la variabilité locale de l'empilement affecte la perte de pression mais de manière inférieure à l'effet de porosité,
- la variabilité locale de la perte de pression est du même ordre de grandeur pour les lits monodisperses de billes et de cylindres. Pour les lits polydisperses de billes, la variabilité dans les lits de billes est faible,
- une corrélation qui estime la perte de pression en lits polydisperses à partir de celles de lits monodisperses, a été vérifiée pour les lits de sphères et de cylindres avec trois classes de particules.

L'étude des champs de vitesse en empilements structurés a permis de souligner les points suivants :

- pour le cas CS (où les billes sont alignées), il y a présence de zones stagnantes,
- le cas CFC, qui est le plus tortueux, est caractérisé par moins de zones stagnantes et plus de zones à vitesses importantes

Ces empilements structurés bien qu'ils ne reproduisent pas les hétérogénéités locales dans un empilement aléatoire, ont l'avantage de représenter des cas de référence qui renseignent sur les empilements aléatoires (porosité du lité aléatoire proche du cas CC, le CFC, cas le plus proche d'un lit aléatoire de point de vue tortuosité présente moins de zones stagnantes).

En empilements aléatoires, les tendances générales pour les *FDP*s se résument en :

- la présence de zones stagnantes et des zones à forte vitesse qui peuvent atteindre $15U_{ls}$,
- la faible occurrence de vitesses axiales négatives,
- la majorité des vitesses se situent entre 0 et $8*U_{ls}$.

L'étude de l'hydrodynamique, effectuée dans cette partie, constitue une étape cruciale dans la compréhension du lien entre structure et performances réactive en vue d'optimiser le réacteur. Le but finale de cette étude reste le lien entre structure aléatoire de l'empilement et les performances réactives. La première exploration qualitative effectuée avec des systèmes en mono-particule, présentée à la fin de ce chapitre, a permis d'identifier les besoins en termes de développement du code et de la méthode de travail à adopter pour accomplir la dernière étape de cette étude. Grace à cette étude qualitative, nous avons pu mettre en évidence la sensibilité du champ de concentration en présence de limitations internes.

En guise de perspectives pour la partie hydrodynamique, nous proposons :

- une vérification de la relation de perte de pression pour les lits de cylindres polydisperses ayant plus que trois classes de particules,
- une étude des *FDP*s pour les empilements polydisperses de billes et de cylindres,
- une étude des *FDP*s pour les empilements de cylindres avec parois,
- une étude sur le VER (s'il existe) pour les empilements avec parois, c'est à dire étudier les *FDP*s pour différentes hauteurs de lits,
- la détermination des distributions des angles que fait l'écoulement avec la direction transversale et verticale.

Pour la partie réactive, il faudrait compléter l'étude préliminaire en mono-particule, par:

- Le développement nécessaire dans le code pour avoir une condition de concentration constante sur la surface de la particule.
- La validation en mono-particule (bille/cylindre) :
  - selon une approche par transfert interne :
    - Etude de la sensibilité au maillage en absence d'écoulement, comparaison à la solution analytique de Thiele
  - selon une approche par transfert externe :
    - Comparaison avec la solution analytique (Sh = 2) en l'absence d'écoulement,

- Comparaison avec la corrélation de Ranz-Marshall, en présence d'écoulement,
- Evaluation de la diffusion numérique induite par le calcul et vérification qu'elle reste acceptable.

- Corrélation de transfert de matière fluide/solide pour les cylindres :
  - Définition d'une corrélation de transfert de matière pour une particule cylindrique prenant en compte l'orientation par rapport à l'écoulement et le rapport d'aspect,
  - Ensuite, étendre la corrélation à un lit fixe de cylindre.

- Etude en présence de réaction dans le grain :
  - Sur une particule, sphère (3D) puis cylindre (2D) évaluer comment évolue l'efficacité « apparente » du grain en présence d'écoulement : déplacement du profil de concentration, amélioration ou diminution du flux total réagissant en comparaison avec la solution sans écoulement,
  - Extension au cas d'un lit fixe : existe-t-ils des critères de validité des modèles de Thiele en présence de limitations au transfert externe.

- Etude de l'effet de la répétition du chargement du lit sur les performances réactives, pour les billes et les cylindres.

6 Conclusion et Perspectives

Cette thèse avait pour objectif la compréhension du lien entre la structure de l'empilement, qui est aléatoire et localement hétérogène, l'hydrodynamique et la réactivité dans des réacteurs à lit fixe de petite taille. Ceci en vue d'assurer des résultats justes et répétables valables pour l'extrapolation à l'échelle industrielle.

Le problème étudié peut être perçu comme un problème à différentes complexités complémentaires : un empilement poreux de particules caractérisé par sa structure aléatoire et localement hétérogène, l'écoulement du fluide dans cette structure poreuse, et la réaction/transfert de matière au cœur des particules.

Une revue bibliographique a permis d'identifier les principales méthodes de caractérisation des empilements qui peuvent être réalisés expérimentalement ou simulés numériquement. Malgré l'abondance des informations issues de ces travaux de caractérisation des empilements, de l'écoulement et de transfert de matière, il n'existe pas d'études liant les caractéristiques structurales du lit de particules avec la performance apparente du réacteur. D'autres aspects manquants ont été soulignés dans l'ensemble de ces travaux, comme l'absence de l'étude de l'effet de la répétition du chargement, ainsi que le manque (ou pour certains cas de figures l'absence) de travaux qui traitent les empilements polydisperses (distribution granulométrique) et ceux de cylindres souvent utilisés dans les réacteurs. Cette partie bibliographique a permis également d'identifier les propriétés géométriques qu'il faut considérer pour caractériser géométriquement l'empilement.

La méthodologie retenue pour ce travail est purement numérique avec deux principaux avantages. D'une part, elle permet de définir précisément les conditions initiales (structure aléatoire, vitesse, …) et d'obtenir des résultats très précis et locaux. D'autre part, les études numériques écartent les risques de désactivation des catalyseurs en cas de répétition de tests ou de variation des performances entre lots de catalyseurs. Grains3D a été le code utilisé pour simuler les empilements de particules et PeliGRIFF celui utilisé pour simuler, à l'échelle des grains, l'écoulement monophasique dans ces empilements ainsi que le transfert de matière/réaction dans un grain de catalyseur. Ces deux codes sont des codes développés à IFPEN.

Dans le troisième chapitre consacré à l'étude des empilements, des lits de billes et de cylindres mono et polydisperses dans des réacteurs de différents diamètres ont été simulés et étudiés. Les empilements simulés ont les dimensions des unités pilotes utilisées en industrie. Des

outils en Visual Basic ont été développés pour analyser géométriquement la structure globale et locale des empilements, au travers de descripteurs géométriques classiquement rencontrés dans la littérature (porosités moyenne et radiale) et d'autres inédits (porosité axiale et orientation des cylindres).

La caractérisation géométrique d'empilements de sphères et de cylindres a permis de reproduire des données expérimentales d'empilement non tassé (valeur de porosité moyenne, profils de porosité radiale), ce qui prouve leur représentativité. Il ressort que les parois latérales sont très structurantes notamment pour les faibles rapports de diamètre de réacteur par celui des particules (*D/d)* et les empilements monodisperses de particules isotropes. Au centre, le caractère aléatoire est beaucoup plus marqué. Les corrélations de la littérature ne permettent pas de bien décrire la porosité au centre, notamment pour les faibles rapports d'aspect et les particules non sphériques : une faible variation du ratio *D/d* peut conduire, en effet, à de fortes variations de porosité due à la présence ou non de particules au centre. Pour les empilements simulés sans parois, le volume élémentaire représentatif (VER) a été évalué à une sphère ayant un rayon de trois diamètres de particules. Néanmoins, pour les empilements avec parois, nous n'avons pas pu identifier de volume minimum permettant de stabiliser les profils de porosité radiale et axiale. Pour les hauteurs examinées (140 mm ~ environ 46 diamètres de billes), les profils de porosité ne sont pas stabilisés. L'absence de VER rend donc impossible l'adoption d'une approche macroscopique pour modéliser ce type de configuration. Pour les rapports d'aspect étudiés, la présence de parois accentue l'effet aléatoire. L'étude de la variabilité à l'intérieur d'un même empilement de billes a montré que celle-ci dépend du ratio *D/d* et diminue d'autant plus que ce rapport augmente.

L'étude de l'hydrodynamique locale a permis de quantifier l'effet de la variabilité locale et de la répétition du chargement sur l'écoulement. Les paramètres hydrodynamiques étudiés sont les pertes de pression et les champs de vitesse. Plusieurs systèmes d'empilements de billes et de cylindres mono et polydisperses ont été étudiés, avec ou sans parois. Comme pour l'empilement, afin de s'affranchir des effets du fond (les premières particules sont déposées sur un fond plat) et de la tête du lit, il faut omettre une épaisseur correspondant à 4 diamètres de particule pour la perte de pression et 2 diamètres de particule pour la vitesse. Les champs de vitesse semblent être les moins sensibles à la structure de l'empilement par rapport à la perte de pression et la porosité. Ces deux dernières nécessitent l'omission d'une couche d'épaisseur = 4 diamètres de particule.

L'étude de la variabilité de la perte de pression a montré qu'une faible variation de porosité (de l'ordre de 1.5 %) peut induire de fortes variations en termes de perte de pression (jusqu'à 10 %) et ce pour l'ensemble des lits répétés de sphères monodisperses et de cylindres. Pour les lits de sphères polydisperses la variabilité est moindre (de l'ordre de 7.5 %), une explication

possible serait la présence de petites particules qui homogénéisent la structure localement. A porosité égale, la perte de pression est plus importante dans les lits de cylindres que ceux des sphères. L'écart est encore plus accentué avec l'augmentation du rapport d'aspect des cylindres.

Une relation de la littérature qui prédit la perte de pression dans des lits polydisperses à partir des pertes de pression dans des lits monodisperses avec les mêmes classes de particules a confirmé son applicabilité pour les lits de sphères et ceux de cylindres composés de trois classes de particules. Cette relation, malgré un nombre limité de cas simulés pour la tester, représente un intérêt pratique pour une prédiction rapide de la perte de pression dans des lits polydisperses, à partir de celles dans des lits monodisperses.

L'étude des champs de vitesse a été effectuée à l'aide d'une approche statistique basée sur les fonctions de densité de probabilité (*FDPs*) de vitesse en considérant chaque point de l'espace poral comme une variable aléatoire. L'effet de la structure locale et la répétition du chargement ont été également examinés pour des lits de sphères et de cylindres.

Dans un premier temps, des empilements cubiques réguliers ont été étudiés : cubique simple, cubique centré et cubique à faces centrées. Ils ont contribué à la validation de PeliGRIFF, d'une part, et à ressortir des tendances utiles pour l'étude des empilements aléatoires par la suite, d'autre part. Une constatation importante, est que plus la structure devient tortueuse (cas du cubique face centré), plus les vitesses importantes sont présentes (pour atteindre jusqu'à 12 fois la vitesse superficielle U_{ls}), les zones stagnantes diminuent et les variabilités augmentent.

Pour les lits aléatoires les vitesses verticales locales peuvent atteindre 15 *U_{ls}. La majorité des vitesses verticales sont comprises entre 0 et 8*U_{ls}. Les vitesses négatives (à contre-sens de l'écoulement principal) sont rares. L'augmentation du nombre de Reynolds ($Re \geq 7$) a un effet sur la forme des *FDPs* des vitesses et crée plus de zones à vitesse négative. La présence de parois dans le lit conduit à des vitesses importantes un peu plus faibles que le cas sans parois à cause des frottements exercés par les parois et l'augmentation de la surface de contact avec les particules. L'étude de la variabilité interne (dans un même lit) et externe (entre lits dont le chargement est répété) a montré que ces deux dernières sont du même ordre de grandeur pour les lits de sphères avec et sans parois. En revanche, pour les lits de cylindres, la variabilité externe dépasse légèrement la variabilité interne, autrement dit, il y a plus de différences entre deux lits qu'entre deux régions du même lit. L'écart entre lits de cylindres augmente avec l'augmentation du rapport d'aspect de la particule cylindrique, donc de son anisotropie.

Pour les lits simulés sans parois (cas bipériodiques), il n'existe pas de volume minimum de traitement pour lequel les *FDPs* de vitesse se stabilisent : en augmentant la hauteur du lit (donc son volume), les variations ne sont pas lissées. Nous en déduisons qu'avec

l'augmentation du volume du lit, il y a création de nouvelles structures aléatoires et donc d'une sorte de compétition entre effet de moyenne et variation locales plus importantes en nombre.

Les parties études des empilements et de l'hydrodynamique ont permis de confirmer que les réacteurs à lit fixe de petite taille sont opérés dans des empilements non stabilisés et faiblement répétables en termes de structure géométrique. Néanmoins, en écoulement, ces lits sont plus répétables dans le cas des sphères et des cylindres 'courts' que des cylindres 'longs'.

La dernière étape de cette étude serait de comprendre le lien entre la structure locale de l'empilement et les performances réactives. Une étude préliminaire concernant les écoulements réactifs a été menée. Les travaux se sont limités à une exploration qualitative de cas en écoulement réactif avec des systèmes simples d'une seule particule (cf. §5.7). La validation du code en transfert de matière, incluant la sensibilité au maillage n'a pas pu être accomplie en raison des capacités actuelles de PeliGRIFF (impossibilité pour le moment d'imposer une concentration constante en surface de la particule). Nous avons montré qu'en présence d'écoulement et de limitations aux transferts de matière interne, le champ de concentration dans la particule se déplace en aval et que la concentration en surface n'est plus uniforme. A l'issue de cette étude préliminaire, une méthodologie de travail est proposée en prolongement à cette étude afin de finaliser l'étude réactive du système.

Plusieurs axes peuvent être proposés afin de poursuivre ce travail. Pour la partie étude de l'hydrodynamique, il serait intéressant de vérifier la relation de perte de pression en lits polydisperses pour des lits composés de plus de trois classes de particules cylindriques. Dans un second temps, compléter l'étude des *FDPs* de vitesse par des cas polydisperses de billes et de cylindres. Enfin, simuler des cas avec parois pour des billes polydisperses et des cylindres pour compléter l'étude réalisée sur l'existence éventuelle d'un VER.

Pour la partie réactive, et après développement du code pour permettre d'imposer une concentration constante sur la surface de la particule, il faudra commencer par valider cet ajout dans le code et étudier la sensibilité au maillage en utilisant une approche par transfert interne (en comparant avec la solution analytique de Thiele en absence d'écoulement) et par transfert externe (en comparant avec la solution analytique en absence d'écoulement et la corrélation de transfert de matière de Ranz-Marshall en présence d'écoulement). Il serait intéressant d'étudier le transfert de matière pour le cas d'un cylindre seul en fonction de son orientation et de sa forme (rapport d'aspect) puis pour une collection de cylindres dans un lit aléatoire. En présence d'écoulement, il serait intéressant d'évaluer l'efficacité "apparente" de la particule au moyen de l'écart par rapport au modèle de Thiele qui suppose une concentration uniforme. A-t-on accroissement ou diminution de l'efficacité du grain ? Les calculs sur des lits de particules, notamment des études de répétabilité avec les mêmes particules mais

empilées différemment, permettront d'aller vers la définition de critères pour limiter les risques d'effets aléatoires du chargement sur les performances apparentes du réacteur.

Références bibliographiques

[1] Rolland, M., 2014, “Des limites à la réduction d’échelle en réacteur de test catalytique en lit fixe?,” Thèse de l’Université Claude Bernard - Lyon 1.

[2] Leva, M., 1947, “Pressure Drop through packed tubes part3: Prediction of voids in packed tubes,” Chem. Eng. Prog., **43**(10), pp. 713–718.

[3] Mueller, G. E., 1992, “Radial void fraction distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers,” Powder Tchnology, **72**, pp. 269–275.

[4] Mcwhirter, J. D., Crawford, M. E., and Klein, D. E., 1997, “Wall Region Porosity Distributions for Packed Beds of Uniform Spheres with Modified and Unmodified Walls,” Transp. Porous Media, **27**, pp. 99–118.

[5] De Klerk, A., 2003, “Voidage variation in packed beds at small column to particle diameter ratio,” AIChE J., **49**(8), pp. 2022–2029.

[6] Suzuki, M., Kada, H., and Hirota, M., 1999, “Effect of size distribution on the relation between coordination number and void fraction of spheres in a randomly packed bed,” Adv. Powder Technol., **10**(4), pp. 353–365.

[7] Lochmann, K., Oger, L., and Stoyan, D., 2006, “Statistical analysis of random sphere packings with variable radius distribution,” Solid State Sci., **8**, pp. 1397–1413.

[8] Giese, M., Rottschafer, K., and Vortmeyer, D., 1998, “Measured and Modeled Superficial Flow Profiles in Packed Beds with Liquid Flow,” **44**(2), pp. 484–490.

[9] Mueller, G. E., 1999, “Radial void fraction correlation for annular packed beds,” AIChE J., **45**(11), pp. 2458–2460.

[10] Suzuki, M., Shinmura, T., Iimura, K., and Hirota, M., 2008, “Study of the Wall Effect on Particle Packing Structure Using X-ray Micro Computed Tomography,” Adv. Powder Technol., **19**(2), pp. 183–195.

[11] Wang, Z., Afacan, A., Nandakumar, K., and Chuang, K. T., 2001, “Porosity distribution in random packed columns by gamma ray tomography,” Chem. Eng. Process., **40**, pp. 209–219.

[12] Mederos, F. S., Ancheyta, J., and Chen, J., 2009, “Review on criteria to ensure ideal behaviors in trickle-bed reactors,” Appl. Catal. A Gen., **355**(1-2), pp. 1–19.

[13] Zou, R. ., and Yu, A. ., 1995, “The packing of spheres in a cylindrical container: the thickness effect,” Chem. Eng. Sci., **50**(9), pp. 1504–1507.

[14] Zou, R. ., and Yu, A. ., 1996, “Wall effect on the packing of cylindrical particles,” Chem. Eng. Sci., **51**(7), pp. 1177–1180.

[15] Dixon, A. G., 1988, “Correlations for wall and particle shape effects on fixed bed bulk voidage,” Can. J. Chem. Eng., **66**(5), pp. 705–708.

[16] Carman, P. C., 1937, “Fluid flow through granular beds,” Trans. Chem. Eng., **15**, pp. 150–166.

[17] Küfner, R., and Hofmann, H., 1990, “Implementation of radial porosity and velocity distribution in a reactor model for heterogeneous catalytic gasphase reactions (TORUS-Model),” Chem. Eng. Sci., **45 N°8**, pp. 2141–2146.

[18] Benenati, R. ., and Brosilow, C. ., 1962, “Void fraction distribution in beds of spheres,” AIChE J., **8**(3), pp. 359–361.

[19] Thadani, M. C., and Peebles, F. N., 1966, “Variation of Local Void Fraction in Randomly Packed Beds of Equal Spheres,” I&EC Process Des. Dev., **5**(3), pp. 265–268.

[20] Kubie, J., 1988, “Influence of containing walls on the distibution of voidage in packed beds of uniform spheres,” Chem. Eng. Scrence, **43**(6), pp. 1403–1405.

[21] Mueller, G. ., 1991, “Prediction of radial porosity distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers,” Chmical Eng. Sci., **46 N°2**, pp. 706–708.

[22] Ridgway, K., and Tarbuck, K., 1968, “Voidage fluctuations in randomly-packed beds of spheres adjacent to a containing wall,” Chem. Eng. Sci., **23**, pp. 1147–1155.

[23] Eisfeld, B., and Schnitzlein, K., 2001, “The influence of confining walls on the pressure drop in packed beds,” Chem. Eng. Sci., **56**, pp. 4321–4329.

[24] Wang, Y., Chen, J., and Larachi, F., 2013, “Modelling and simulation of trickle-bed reactors using computational fluid dynamics: A state-of-the-art review,” Can. J. Chem. Eng., **91**(1), pp. 136–180.

[25] Bey, O., and Eigenberger, G., 1997, “Fluid flow through catalyst filled tubes,” Chem. Eng. Sci., **52**(8), pp. 1365–1376.

[26] Vortmeyer, D., and Schuster, J., 1983, “Evaluation of steady flow profiles in rectangular and circular packed beds by a variational method,” Chem. Eng. Sci., **38**(10), pp. 1691–1699.

[27] Sun, C. G., Yin, F. H., Afacan, A., Nandakumar, K., and Chuang, K. T., 2000, “Modelling and simulation of flow maldistribution in random packed columns with gas-liquid countercurrent flow,” Trans IChemE, **78**, pp. 378–388.

[28] Eppinger, T., Seidler, K., and Kraume, M., 2011, “DEM-CFD simulations of fixed bed reactors with small tube to particle diameter ratios,” Chem. Eng. J., **166**(1), pp. 324–331.

[29] Bargieł, M., and Mościński, J., 1991, “C-language program for the irregular close packing of hard spheres,” Comput. Phys. Commun., **64**, pp. 183–192.

[30] Salvat, W. I., Mariani, N. J., Barreto, G. F., and Martínez, O. M., 2005, “An algorithm to simulate packing structure in cylindrical containers,” Catal. Today, **107-108**, pp. 513–519.

[31] Khirevich, S., Höltzel, A., Daneyko, A., Seidel-Morgenstern, A., and Tallarek, U., 2011, “Structure-transport correlation for the diffusive tortuosity of bulk, monodisperse, random sphere packings.,” J. Chromatogr. A, **1218**, pp. 6489–97.

[32] Zeiser, T., Steven, M., Freund, H., Lammers, P., Brenner, G., Durst, F., and Bernsdorf, J., 2002, “Analysis of the flow field and pressure drop in fixed-bed reactors with the help of lattice Boltzmann simulations.,” Phil. Trans. R. Soc. Lond. A, **360**, pp. 507–520.

[33] Freund, H., Bauer, J., Zeiser, T., and Emig, G., 2005, “Detailed Simulation of Transport Processes in Fixed-Beds,” Ind. Eng. Chem. Res., **44**(16), pp. 6423–6434.

[34] Freund, H., Zeiser, T., Huber, F., Klemm, E., Brenner, G., Durst, F., and Emig, G., 2003, “Numerical simulations of single phase reacting flows in randomly packed fixed-bed reactors and experimental validation,” Chem. Eng. Sci., **58**, pp. 903–910.

[35] Zeiser, T., Freund, H., and Bernsdorf, J., 2002, “CFD Calculations of Flow, Dispersion and Chemical Reactions in Fixed Bed Tubular Reactors Using the Lattice Boltzmann Method,” High Perform. Scientific and Engineering Computing, **21**, pp. 53–62.

[36] Soppe, W., 1990, “Computer simulation of random packings of hard spheres,” Powder Technol., **62**, pp. 189–196.

[37] Cundall, P. A., 1988, “Formulation of a three-dimensional distinct element model—Part I. A scheme to detect and represent contacts in a system composed of many polyhedral blocks,” Int. J. Rock Mech. Min. Sci. Geomech. Abstr., **25**(3), pp. 107–116.

[38] Bai, H., Theuerkauf, J., Gillis, P. A., and Witt, P. M., 2009, “A Coupled DEM and CFD Simulation of Flow Field and Pressure Drop in Fixed Bed Reactor with Randomly Packed Catalyst Particles,” Ind. Eng. Chem. Res., **48**(8), pp. 4060–4074.

[39] Wachs, A., Girolami, L., Vinay, G., and Ferrer, G., 2012, “Grains3D, a flexible DEM approach for particles of arbitrary convex shape — Part I: Numerical model and validations,” Powder Technol., **224**(0), pp. 374–389.

[40] Jerier, J.-F., Richefeu, V., Imbault, D., and Donzé, F.-V., 2010, “Packing spherical discrete elements for large scale simulations,” Comput. Methods Appl. Mech. Eng., **199**(25-28), pp. 1668–1676.

[41] Freund, H., Zeiser, T., Huber, F., Klemm, E., Brenner, G., Durst, F., and Emig, G., 2003, “Numerical simulations of single phase reacting flows in randomly packed fixed-bed reactors and experimental validation,” Chem. Eng. Sci., **58**(3-6), pp. 903–910.

[42] Calis, H. P. A., Nijenhuis, J., Paikert, B. C., Dautzenberg, F. M., and Bleek, C. M. van den, 2001, “CFD modelling and experimental validation of pressure drop and flow profile in a novel structured catalytic reactor packing,” **56**, pp. 1713–1720.

[43] Patil, V. a., and Liburdy, J. a., 2013, “Flow characterization using PIV measurements in a low aspect ratio randomly packed porous bed,” Exp. Fluids, **54**(4), pp. 1497–1516.

[44] Cenedese, A., and Viotti, P., 1996, “Lagrangian analysis of nonreactive pollutant dispersion in porous media by means of the particle image velocimetry technique,” Water Resour. Res., **32**(8), pp. 2329–2343.

[45] Lebon, L., Oger, L., Leblond, J., Hulin, J. P., Martys, N. S., and Schwartz, L. M., 1996, “Pulsed gradient NMR measurements and numerical simulation of flow velocity distribution in sphere packings,” Phys. Fluids, **8**(2), pp. 293–301.

[46] Kutsovsky, Y. E., Scriven, L. E., Davis, H. T., and Hammer, B. E., 1996, “NMR imaging of velocity profiles and velocity distributions in bead packs,” Phys. Fluids, **8**(4), pp. 863–871.

[47] Maier, R. S., Kroll, D. M., Kutsovsky, Y. E., Davis, H. T., and Bernard, R. S., 1998, "Simulation of flow through bead packs using the lattice Boltzmann method," Phys. Fluids, **10**(1), pp. 60–74.

[48] Guardo, A., Coussirat, M., Recasens, F., Larrayoz, M. A., and Escaler, X., 2006, "CFD study on particle-to-fluid heat transfer in fixed bed reactors: Convective heat transfer at low and high pressure," Chem. Eng. Sci., **61**, pp. 4341–4353.

[49] Yuen, E. H. L., Sederman, a. J., Sani, F., Alexander, P., and Gladden, L. F., 2003, "Correlations between local conversion and hydrodynamics in a 3-D fixed-bed esterification process: An MRI and lattice-Boltzmann study," Chem. Eng. Sci., **58**(3-6), pp. 613–619.

[50] Sederman, a. J., Johns, M. L., Alexander, P., and Gladden, L. F., 1998, "Structure-flow correlations in packed beds," Chem. Eng. Sci., **53**(12), pp. 2117–2128.

[51] Suekane, T., Yokouchi, Y., and Hirai, S., 2003, "Inertial flow structures in a simple-packed bed of spheres," AIChE J., **49**(1), pp. 10–17.

[52] S.Whitaker, 1999, The method of volume averaging, Kluwer Academic Publishers.

[53] Larachi, F., Hannaoui, R., Horgue, P., Augier, F., Haroun, Y., Youssef, S., Rosenberg, E., Prat, M., and Quintard, M., 2014, "X-ray micro-tomography and pore network modeling of single-phase fixed-bed reactors," Chem. Eng. J., **240**, pp. 290–306.

[54] Hoef, M. A. Van Der, Ye, M., Annaland, M. V. S., Iv, A. T. A., Sundaresan, S., and Kuipers, J. A. M., 2006, "Multi-scale modeling of gas-fluidized beds," Adv. Chem. Eng., **31**, pp. 65–149.

[55] McCabe, W., Smith, J., and Harriott, P., 1993, Unit operations of chemical engineering, McGraw-Hill International Editions.

[56] ERGUN, S., 1952, "Fluid flow through packed columns," Chem. Eng. Prog., **48**(2), pp. 89–94.

[57] Nemec, D., and Levec, J., 2005, "Flow through packed bed reactors: 1. Single-phase flow," Chem. Eng. Sci., **60**(24), pp. 6947–6957.

[58] Hill, R. J., Koch, D. L., and Ladd, J. C., 2001, "Moderate Reynolds number flows in ordered and random arrays ofarrays of spheres," J. Fluid Mech., **448**, pp. 243–278.

[59] Macdonald, I. F., El-Sayed, M. S., Mow, K., and Dullien, F. a. L., 1979, "Flow through Porous Media-the Ergun Equation Revisited," Ind. Eng. Chem. Fundam., **18**(3), pp. 199–208.

[60] Niven, R. K., 2002, “Physical insight into the Ergun and Wen & Yu equations for fluid flow in packed and fluidised beds,” **57**, pp. 527–534.

[61] Foumeny, E. ., and Benyahia, F., 1993, “Correlations of pressure drop in packed beds taking into account the effect of confining wall,” Int. J. Heat Mass Transf., **36**(2), pp. 536–540.

[62] Guardo, A., Coussirat, M., Larrayoz, M. A., Recasens, F., and Egusquiza, E., 2005, “Influence of the turbulence model in CFD modeling of wall-to-fluid heat transfer in packed beds,” Chem. Eng. Sci., **60**(6), pp. 1733–1742.

[63] Bernsdorf, J., Brenner, G., and Zeiser, T., 2001, “Numerical analysis of the pressure drop in porous media flow using the lattice Boltzmann computational technique,” Comput. Fluid Dyn., pp. 493–498.

[64] Gunjal, P. R., Ranade, V. V., and Chaudhari, R. V., 2005, “Computational study of a single-phase flow in packed beds of spheres,” AIChE J., **51**(2), pp. 365–378.

[65] Zeiser, T., Brenner, G., and Durst, F., 2003, “Application of the lattice Boltzmann CFD method on HPC systems to analyse the flow in fixed-bed reactors,” High Perform. Comput. Sci. Eng. ’02, pp. 439–450.

[66] Baker, M. J., Young, P. G., and Tabor, G. R., 2011, “Image based meshing of packed beds of cylinders at low aspect ratios using 3d MRI coupled with computational fluid dynamics,” Comput. Chem. Eng., **35**(10), pp. 1969–1977.

[67] Logtenberg, S. A., and Dixon, A. G., 1998, “Computational fluid dynamics studies of fixed bed heat transfer 1,” Chem. Eng. Process., **37**, pp. 7–21.

[68] Maier, R. S., Kroll, D. M., Bernard, R. S., Howington, S. E., Peters, J. F., and Davis, H. T., 2000, “Pore-scale simulation of dispersion,” Am. Inst. Phys., **12**(8), pp. 2065–2079.

[69] Nijemeisland, M., and Dixon, A. G., 2001, “Comparison of CFD simulations to experiment for convective heat transfer in a gas–solid fixed bed,” Chem. Eng. J., **82**, pp. 231–246.

[70] Heinen, C., Tillich, J., Buggisch, H., Zeiser, T., and Freund, H., 2005, “MRI investigation and complementary numerical simulations of flow-through random bead packings with low aspect ratio.,” Magn. Reson. Imaging, **23**, pp. 369–70.

[71] Dixon, A. G., and Nijemeisland, M., 2001, “CFD as a Design Tool for Fixed-Bed Reactors,” Ind. Eng. Chem. Res., **40**(23), pp. 5246–5254.

[72] Rong, L. W., Dong, K. J., and Yu, a. B., 2013, “Lattice-Boltzmann simulation of fluid flow through packed beds of uniform spheres: Effect of porosity,” Chem. Eng. Sci., **99**, pp. 44–58.

[73] Maier, R. S., Kroll, D. M., Bernard, R. S., Howington, S. E., Peters, J. F., and Davis, H. T., 2000, “Pore-scale simulation of dispersion,” Am. Inst. Phys., **12**(8), pp. 2065–2079.

[74] Sarkar, S., Hoef, M. A. Van Der, and Kuipers, J. A. M., 2009, “Fluid – particle interaction from lattice Boltzmann simulations for flow through polydisperse random arrays of spheres,” Chem. Eng. Sci., **64**, pp. 2683–2691.

[75] Ping, D., Shi-De, F., and Ying, Z., 2004, “Numerical analysis of fluid flow through a cylinder array using a lattice Boltzmann model,” **4**, pp. 434–440.

[76] Manz, B., and Gladden, L. F., 1999, “Flow and Dispersion in Porous Media : Lattice-Boltzmann and NMR Studies,” Fluid Mech. Transp. Phenom., **45**(9), pp. 1845–1854.

[77] Zeiser, T., Lammers, P., and Klemm, E., 2001, “CFD-calculation of flow, dispersion and reaction in a catalyst filled tube by the lattice Boltzmann method,” Chem. Eng. Sci., **56**, pp. 1697–1704.

[78] Vortmeyer, D., and Schuster, J., 1983, “Evaluation of steady flow profiles in rectangular and circular packed beds by a variatinal method,” Chem. Eng. Sci., **38**(10), pp. 1691–1699.

[79] Papageorgiou, J. N., and Froment, G. F., 1995, “Simulation models accounting for radial voidage profiles in fixed-beds reactors,” **50**(19), pp. 3043–3056.

[80] Magnico, P., 2003, “Hydrodynamic and transport properties of packed beds in small tube-to-sphere diameter ratio: pore scale simulation using an Eulerian and a Lagrangian approach,” Chem. Eng. Sci., **58**, pp. 5005–5024.

[81] Castillo-Araiza, C. O., Jiménez-Islas, H., and Lopez-Isunza, F., 2007, “Heat-Transfer Studies in Packed-Bed Catalytic Reactors of Low Tube / Particle Diameter Ratio,” Ind. Eng. Chem. Res., **46**, pp. 7426–7435.

[82] Dixon, A. G., Taskin, M. E., Nijemeisland, M., and Stitt, E. H., 2010, “CFD Method To Couple Three-Dimensional Transport and Reaction inside Catalyst Particles to the Fixed Bed Flow Field,” Ind. Eng. Chem. Res., **49**(19), pp. 9012–9025.

[83] Nijemeisland, M., and Dixon, A. G., 2004, “CFD study of fluid flow and wall heat transfer in a fixed bed of spheres,” AIChE J., **50**(5), pp. 906–921.

[84] Taskin, M. E., Dixon, A. G., and Stitt, E. H., 2007, "CFD Study of Fluid Flow and Heat Transfer in a Fixed Bed of Cylinders," Numer. Heat Transf. Part A Appl., **52**, pp. 203–218.

[85] Dixon, A. G., Ertan Taskin, M., Hugh Stitt, E., and Nijemeisland, M., 2007, "3D CFD simulations of steam reforming with resolved intraparticle reaction and gradients," Chem. Eng. Sci., **62**, pp. 4963–4966.

[86] Dixon, A., Nijemeisland, M., and Stitt, E., 2006, "Packed tubular reactor modeling and catalyst design using computational fluid dynamics," Adv. Chem. Eng., **31**, pp. 307–389.

[87] Zeiser, T., Lammers, P., and Klemm, E., 2001, "CFD-calculation of flow, dispersion and reaction in a catalyst filled tube by the lattice Boltzmann method," Chem. Eng. Sci., **56**, pp. 1697–1704.

[88] Augier, F., Idoux, F., and Delenne, J. Y., 2010, "Numerical simulations of transfer and transport properties inside packed beds of spherical particles," Chem. Eng. Sci., **65**, pp. 1055–1064.

[89] Deen, N., and Kuipers, J., 2013, "Direct Numerical Simulation of Fluid Flow and Mass Transfer in Dense Fluid–Particle Systems," Ind. Eng. Chem. Res., **52**, pp. 11266–11274.

[90] Tabib, M., Johansen, S., and Amini, S., 2013, "A 3D CFD-DEM methodology for simulating industrial scale packed bed chemical looping combustion reactors," Ind. Eng. Chem. Res., **52**, pp. 12041–12058.

[91] Graf von der Schulenburg, D. a., and Johns, M. L., 2011, "Catalyst effectiveness factor distributions in isothermal packed bed reactors," Chem. Eng. Sci., **66**(13), pp. 3003–3011.

[92] Combest, D., 2012, "Interstitial-scale modeling of packed-bed reactors," PhD Thesis-Washington University in St. Louis.

[93] Wachs, A., 2011, "PeliGRIFF, a parallel DEM-DLM/FD direct numerical simulation tool for 3D particulate flows," J. Eng. Math., **71**(1), pp. 131–155.

[94] Wachs, A., 2009, "A DEM-DLM / FD method for direct numerical simulation of particulate flows : Sedimentation of polygonal isometric particles in a Newtonian fluid with collisions," Comput. Fluids, **38**(8), pp. 1608–1628.

[95] DAGAN, G., 1986, “Statistical-Theory of Groundwater-Flow and Transport - Pore to Laboratory, Laboratory to Formation, and Formation to Regional Scale,” Water Resour. Res., **22**, p. 120S–134S.

[96] Zick, A., and Homsy, G., 1982, “Stokes flow through periodic arrays of spheres,” J. Fluid Mech., **115**, pp. 13–26.

[97] Kanarska, Y., Lomov, I., and Antoun, T., 2011, “Computers & Fluids Mesoscale simulations of particulate flows with parallel distributed Lagrange multiplier technique,” Comput. Fluids, **48**(1), pp. 16–29.

[98] Beetstra, R., Hoef, M. Van der, and Kuipers, J., 2007, “Drag force of intermediate Reynolds number flow past mono and bidisperse arrays of spheres,” AIChE J., **53**(2), pp. 489–501.

[99] Hoef, M. a. Van Der, Beetstra, R., and Kuipers, J. a. M., 2005, “Lattice-Boltzmann simulations of low-Reynolds-number flow past mono- and bidisperse arrays of spheres: results for the permeability and drag force,” J. Fluid Mech., **528**, pp. 233–254.

[100] Sharma, R., and Newson, E., 1991, “Effective diffusion coefficients and tortuosity factors for commercial catalysts,” Ind. Eng. Chem. Res., **30**, pp. 1428–1433.

7 Annexe A. Calcul de contact dans Grains3D

Les forces de contact et la méthode de calcul de contact utilisée dans le code Grains3D qui est basé sur la méthode des éléments discrets sont présentées.

Le mouvement d'une particule est décrit par la deuxième loi de loi de Newton :

$$\sum \boldsymbol{F} = m\boldsymbol{a} \qquad \textit{Équation 7.1}$$

L'hypothèse de rigidité de la particule permet de décomposer sa vitesse en une vitesse de translation $\boldsymbol{U}$ et une vitesse de rotation $\boldsymbol{\omega}$:

$$\boldsymbol{v} = \boldsymbol{U} + \boldsymbol{\omega} \wedge \boldsymbol{r} \qquad \textit{Équation 7.2}$$

$\boldsymbol{r}$ est un vecteur position.

Le mouvement d'une particule $i \in [0, N\text{-}1]$ est décrit par le système d'équations suivantes :

$$M_i \frac{d\boldsymbol{U}_i}{dt} = \boldsymbol{F}_i \qquad \textit{Équation 7.3}$$

$$\boldsymbol{J}_i \frac{d\boldsymbol{\omega}_i}{dt} + \boldsymbol{\omega}_i \wedge \boldsymbol{J}_i\boldsymbol{\omega}_i = \boldsymbol{M}_i \qquad \textit{Équation 7.4}$$

$$\frac{dx_i}{dt} = \boldsymbol{U}_i \qquad \textit{Équation 7.5}$$

$$\frac{d\theta_i}{dt} = \boldsymbol{\omega}_i \qquad \textit{Équation 7.6}$$

M_i est la masse d'une particule, $\boldsymbol{J}_i$ est le moment d'inertie, x_i est la position du centre de masse, $\boldsymbol{\theta}_i$ est la position angulaire et N est le nombre total de particules.

$\boldsymbol{F}_i$ et $\boldsymbol{M}_i$ sont les sommes de toutes les forces et moments appliqués sur une particule. Dans ce cas, seules la gravité et les forces de contact sont prises en compte. Les expressions de $\boldsymbol{F}_i$ et $\boldsymbol{M}_i$ deviennent donc :

$$\boldsymbol{F_i} = M_i \boldsymbol{g} + \sum_{j=0, j\neq i}^{N-1} \boldsymbol{F}_{ij} \qquad \textit{Équation 7.7}$$

$$\boldsymbol{M_i} = \sum_{j=0, j\neq i}^{N-1} \boldsymbol{R}_j \wedge \boldsymbol{F}_j \qquad \textit{Équation 7.8}$$

$\boldsymbol{g}$ étant la gravité, $\boldsymbol{R}_j$ est un vecteur dirigé du centre de gravité de la particule *i* vers le point de contact avec la particule *j* et $\boldsymbol{F_{ij}}$ est la force de contact entre les particules *i* et *j*.

La résultante de la force de contact qui s'applique sur une particule *i* qui est en contact avec une particule *j* est donnée par la relation :

$$\boldsymbol{F}_{ij} = \boldsymbol{F}_{ij,el} + \boldsymbol{F}_{ij,dn} + \boldsymbol{F}_{ij,t} \qquad \textit{Équation 7.9}$$

Chacune de ces forces est définie comme suit :

Force élastique de restitution (de Hook)	$\boldsymbol{F}_{ij,el} = k_n \delta_{i,j} \boldsymbol{n}_C$	*Équation 7.10*
Force dissipative normale	$\boldsymbol{F}_{ij,dn} = -2\gamma_n m_{ij} \boldsymbol{U}_{rn}$	*Équation 7.11*
Force de frottement tangentiel	$\boldsymbol{F}_{ij,t} = -\min\{\mu_C \lvert\boldsymbol{F}_{el}\rvert, \lvert\boldsymbol{F}_{dt}\rvert\} t_C$ $avec : \boldsymbol{F}_{dt} = -2\gamma_t m_{ij} \boldsymbol{U}_{rt}$	*Équation 7.12*

Avec :

k_n : coefficient de rigidité normale, δ_{ij} : distance de recouvrement entre une particule *i* et *j*, $\boldsymbol{n}_C$: vecteur unitaire normale au point de contact *C*, γ_n est le coefficient de frottement dynamique normal, m_{ij} est la masse réduite des particules *i* et *j* telle que $m_{i\,j} = M_i * M_j / (M_i + M_j)$, $\boldsymbol{U}_{rn}$ est la vitesse relative normale entre les particules *i* et *j*, $\boldsymbol{F}_{dt}$ est le frottement dissipatif, t_C est le vecteur unitaire tangentiel au point de contact, γ_t est le coefficient de frottement dissipatif tangentiel, $\boldsymbol{U}_{rt}$ est la vitesse relative tangentielle entre les deux particules et μ_C est le coefficient de frottement dynamique de Coulomb.

Selon [39], le coefficient de rigidité normale k_n est relié au recouvrement maximal entre particules, donc il est de nature purement géométrique. Il affecte principalement le temps de contact et donc le pas de temps.

L'étape de détection du contact entre deux objets A et B dans Grains3D est basée sur l'algorithme Gilbert-Johnson-Keerthi 'GJK' [39]. Son principe est résumé dans les trois étapes suivantes :

1. Réduction de la taille des objets A et B en appliquant une homothétie H de centre le centre de l'objet et de rapport inférieur à 1.
2. Calcul de la distance séparant les 2 objets images H(A) et H(B)
3. Détermination des caractéristiques de contact qui sont :
   - le centre de contact

$$C = \frac{C_A + C_B}{2} \qquad \textit{Équation 7.13}$$

C_A et C_B sont les points des objets A et B qui réalisent une distance minimale, respectivement.

   - le vecteur normal au point de contact

$$\boldsymbol{n}_C = \frac{C_B - C_A}{\|C_B - C_A\|} \qquad \textit{Équation 7.14}$$

   - le recouvrement

$$\delta = d(H(A), H(B)) - r_A - r_B \qquad \textit{Équation 7.15}$$

r_A et r_B sont appelés les épaisseurs de croute i.e. la différence de "taille" des objets réels et image après application de l'homothétie H. Il y a contact lorsque le recouvrement δ est négatif ou nul.

Les équation sont résolues de façon explicite avec un schéma Leep-Frog d'ordre 2 en temps et les rotations sont calculées à l'aide de quaternions [39].

8 Annexe B. Relations entre les paramètres de contact

Ici, les relations entre les paramètres de contact entre deux particules sphériques de même masse *m* et rayon *R* sont présentées [39].

Le coefficient de rigidité normale k_n peut être lié à la nature matériau. Pour deux particules de même masse m et de même rayon *R*, il s'exprime par:

$$k_n = \frac{ER}{3(1-\sigma^2)} \qquad \textit{Équation 8.1}$$

E: étant le module d'Young

R: le rayon d'une particule

σ : le coefficient de poisson

Si on considère que ces deux sphères entrent en collision normale avec une vitesse initiale U_0 et sans gravité, le système de forces qui s'applique sur une particule est exprimé par :

La force élastique de restitution (de Hook) $$\boldsymbol{F}_{ij,el} = k_n \delta_{i,j} \boldsymbol{n}_C \qquad \textit{Équation 8.2}$$

La force dissipative $$\boldsymbol{F}_{ij,dn} = -\gamma_n m \boldsymbol{U}_{rn} \qquad \textit{Équation 8.3}$$

La deuxième loi de Newton appliquée au système des deux particules est exprimé par:

$$m\boldsymbol{a} = 2(\boldsymbol{F}_{ij,el} + \boldsymbol{F}_{ij,dn}) \qquad \textit{Équation 8.4}$$

A l'aide de l'Équation 8.4, l'évolution temporelle de la distance de recouvrement δ pendant le contact est donnée par :

$$\frac{d^2\delta}{dt^2} + 2\gamma_n \frac{d\delta}{dt} + \omega_0^2 \delta = 0 \qquad \textit{Équation 8.5}$$

$$\text{Avec : } \omega_0^2 = \frac{2k_n}{M} \qquad \textit{Équation 8.6}$$

$$\delta(t=0) = 0 \qquad \textit{Équation 8.7}$$

$$\frac{d\delta}{dt} + (t=0) = v_0 \qquad \textit{Équation 8.8}$$

La solution de cette équation est donnée par :

$$\delta(t) = \frac{v_0}{\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}} e^{-\gamma_n t} \sin(\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}\, t) \qquad \textit{Équation 8.9}$$

A partir de l'Équation 8.9, nous pouvons déduire le temps de contact T_C (il y a contact lorsque $\delta < 0$), le temps de contact maximal et le recouvrement maximal :

$$T_C = \frac{\pi}{\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}} \qquad \textit{Équation 8.10}$$

$$T_{\max} = \frac{\pi}{\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}} \arctan\left(\frac{\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}}{\gamma_n}\right) \qquad \textit{Équation 8.11}$$

$$\delta_{\max} = \delta(t = T_{\max}) = \frac{v_0}{\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}} e^{-\gamma_n T_{\max}} \sin(\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}\, T_{\max}) \qquad \textit{Équation 8.12}$$

Le coefficient de restitution e_n, est défini comme étant le rapport de la vitesse après le choc par celle avant le choc:

$$e_n = \left| \frac{\frac{d\delta}{dt}(t = T_C)}{v_0} \right| = e^{(-\gamma_n T_C)} = e^{\left(-\gamma_n \frac{\pi}{\sqrt{\omega_0^2 - \gamma_n^2}}\right)} \qquad \textit{Équation 8.13}$$

Donc, d'après cette équation, le coefficient de frottement dissipatif normal est donné par :

$$\gamma_n = \frac{\omega_0 \ln e_n}{\pi^2 + (\ln e_n)^2}$$ ***Équation 8.14***

9 Annexe C. Effet de la variation des coefficients de rigidité normal k_n et de restitution e_n sur la porosité moyenne et radiale

Dans une simulation d'empilement avec Grains3D, les paramètres introduits sont les paramètres (e_n, μ_c, k_n et γ_t), e_n, est le coefficient de restitution, μ_c est le coefficient de frottement de Coulomb, k_n est le coefficient de rigidité normal et γ_t est le coefficient de frottement dissipatif tangentiel.

Nous avons effectué une étude paramétrique sur e_n et k_n, en utilisant un empilement de sphères pour un rapport de diamètres D/d = 19/3 (cf. chapitre Empilements pour la description du cas), pour voir l'effet sur la porosité moyenne et radiale à la fin de la simulation.

Coefficient de rigidité normale k_n

k_n est un coefficient qui influence le temps de calcul et a un effet sur le recouvrement des particules. En effet, pour un coefficient e_n donné, k_n modifie inversement le recouvrement maximal mais la force élastique reste inchangée puisque c'est le produit des deux (Équation 7.10). La diminution de k_n permet un gain en termes de temps de calcul car cela induit l'augmentation du temps de contact et donc du pas de temps.

En pratique, dans les simulations et pour des raisons de stabilité, le pas de temps est pris dans l'intervalle [T_C/50, T_C/10], T_C étant le temps de contact.

Une estimation du pas de temps Δt pour un contact non dissipatif (i.e. γ_n = 0) entre deux particules et un temps de contact $T_C = 25\Delta t$:

$$\Delta t = \frac{\pi}{25}\sqrt{\frac{m}{2k_n}} = \frac{\pi}{25}\sqrt{\frac{2\pi R^2\rho(1-\sigma^2)}{E}} \qquad \textit{Équation 9.1}$$

Le pas de temps diminue si on prend en compte la dissipation d'énergie.

Pour nos simulations, c'est à dire dans des cas d'empilements de particules, nous avons varié le coefficient k_n et le pas de temps Δt et nous avons remarqué que la diminution de k_n d'un

facteur 100 a permis de diminuer la durée du calcul d'environ 10 fois (Tableau 9.1), tout en obtenant des résultats équivalents.

Tableau 9.1 : Variation de k_n avec le pas de temps et la durée du calcul

k_n	$4*10^5$	$4*10^4$	$4*10^3$
Δt (s)	10^{-6}	$3*10^{-6}$	$7*10^{-6}$
Durée du calcul	11h 27m	3h 28m	1h 30m

Coefficient de restitution e_n

C'est le coefficient qui traduit le 'rebond' de la particule suite à son contact normal avec un obstacle ou une autre particule. Ce coefficient est lié à la façon dont les particules s'insèrent dans le réacteur. Il influence le contact entre les particules, d'une part, et entre une particule et la couche inférieure du lit, d'autre part. Donc, il peut avoir un effet sur l'agencement des billes. Pour cette raison, nous avons gardé le même empilement i.e. une insertion identique de particules (même particule et même position choisies dans la fenêtre d'insertion), et nous avons varié ce coefficient entre 0.7 et 0.95 afin de ne pas contredire l'hypothèse de particules indéformables.

Le Tableau 9.2 illustre les porosités moyennes calculées pour l'ensemble du lit pour chaque valeur de e_n.

Tableau 9.2: Variation du coefficient de restitution d'énergie et porosité moyenne du lit correspondante

e_n	0.7	0.8	0.85	0.9	0.95
Porosité moyenne du lit	0.4245	0.428	0.4323	0.4358	0.4232

Pour la plage utilisée du coefficient e_n, la variation de la porosité par rapport la valeur moyenne de tous les calculs est inférieur à 2 %, ce qui reste très faible. Le coefficient e_n a donc un effet très faible sur l'état final dus système.

Nous avons représenté, ensuite la porosité radiale pour chaque coefficient e_n.

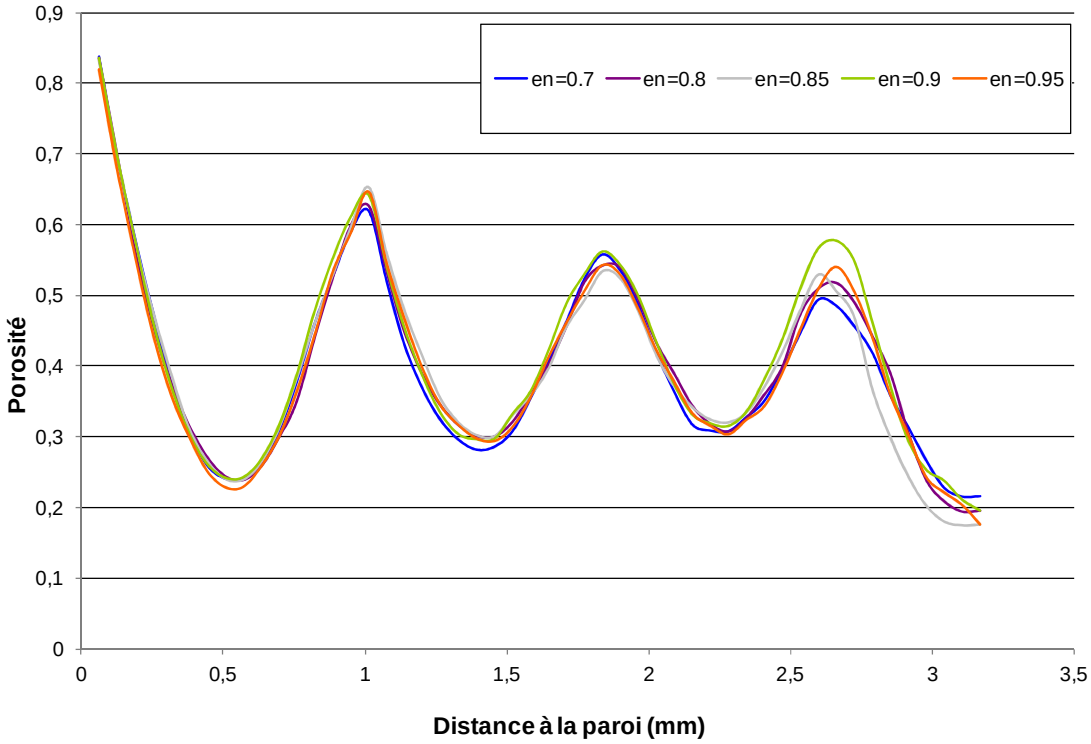


Figure 9.1: Profil de porosité radiale pour différentes valeurs de e_n et répétabilités du cas e_n=0.85

Pour les différents e_n choisis, la variation de la porosité radiale est prononcée surtout au niveau de centre du lit, où la structure aléatoire est la plus hétérogène. Loin du centre, les parois imposent une certaine structuration.

10 Annexe D. Fully-resolved simulations of the flow through a packed bed of cylinders : effect of size distribution (Paper accepted in *'Chemical Engineering Science'*)

Fully-resolved simulations of the flow through a packed bed of cylinders: effect of size distribution

Ferdaous Dorai[a], Carlos Moura Teixeira[a], Matthieu Rolland[a], Eric Climent[b], Manuel Marcoux[b], Anthony Wachs[c,*].

[a] *Process Intensification Department, IFP Energies nouvelles, Rond-point de l'Echangeur de Solaize, BP 3, 69360 Solaize, France.*

[b] *Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, 2 Allée du Professeur Camille Soula, 31400 Toulouse, France.*

[c] *Fluid Mechanics Department, IFP Energies nouvelles, Rond-point de l'Echangeur de Solaize, BP 3, 69360 Solaize, France.*

Abstract

Fully-resolved simulations of the flow through a fixed bed of pellets are performed to better understand the effect of the local microstructure on the energy loss, i.e., pressure drop through the bed. Both mono-disperse and poly-disperse systems as well as spherical and cylindrical pellets (solid particles) are investigated. Using a DEM-DLM/FD simulation method inspired by [1] and implemented here in a Finite Volume context with second order reconstruction of the particle boundary, we evidence that the computed solution converges nicely with mesh refinement and provide guidelines on the grid size to guarantee a satisfactory level of accuracy. Based on these trustworthy simulation results, we investigate the impact of the particle shape as well as the degree of poly-dispersity in the system on the pressure drop over the fixed bed in the viscous regime. Unprecedented simulation results on the flow through a bed of poly-disperse cylinders indicate that the correlation for poly-disperse spheres suggested in [2] may still be valid for cylinders of moderate aspect ratio.

Key words: Packed bed; Catalyst reactor; Granular Dynamics; Particulate flow; Parallel computing;

* Corresponding author.
Email address: anthony.wachs@ifpen.fr (Anthony Wachs).

1 Introduction

Most catalytic refining and petrochemical reactions are operated with fixed bed reactors. In these reactors, catalyst pellets are generally randomly stacked in a large cylindrical vessel and the reactants, usually gas and liquid, are flowing through the bed to react inside the catalyst pellets. Catalyst pellets are made of a porous support onto which are deposited active materials (noble metals, sulphides, ...). They are typically from 0.2 to 5mm in size with spherical, cylindrical or more complex shapes (tri-lobic or quadri-lobic extrudates). Overall pellet activity depends on support (pore size distribution, physicochemical properties like acidity) and also on active phase properties (dispersion, amount of metals, size of crystallites, depth of penetration in the support ...).

Traditional trend in the chemical industry has always been towards more economical processes, that is more active, longer lasting catalysts in combination with more efficient processes. More efficient processes can be designed based on a better comprehension of the physics ruling reactor performances in term of chemical but also thermal and mechanical (pressure drop) responses. A finer representation of the catalytic process allows smaller over-designs and a better integration with other equipments (including resistance to pollutants, ...). Thus, catalyst development has been more and more concerned with the acquisition of accurate knowledge that can be up-scaled to industrial design, thus requiring better reactors and better analytical techniques.

Designing a new catalyst requires the ability to manufacture numerous small batches of catalyst prototype and assess their performances on simulated or real feedstocks. Assessing the catalyst performance is performed in pilot units at pressure and temperature similar to those of the industry for thermodynamic reasons. Historically, pilot unit reactor technology has been chosen to match that of the industrial processes : the idea is that keeping the same technology should make the physics unchanged and thus result in a straightforward up-scaling. Development cost and delays can be reduced if the amount of prototype catalyst to be tested is reduced. Fixed bed pilot units size has thus been decreasing steadily over the years : from units requiring a few litres of catalyst in the 80's to a current range of 0.1 to 50ml reactor volume.

Size reduction, or down-scaling of pilot unit has been a major challenge in the recent years. Sie [3] proposed a comprehensive review on the subject. Major down-scaling issues are : change in mass transfer from fluid to catalyst pellets, change in overall reactor hydrodynamic (axial dispersion).

Universally, up-scaling is based on the conservation of the "residence time" in the reactor or its inverse, the LHSV (Liquid Hourly Space Velocity) defined

as the flow-rate of feedstock divided by the catalyst volume (expressed in 1/h). LHSV can be rewritten as the ratio of the superficial velocity to the length of reactors. Industrial reactors are typically 5 to 30 meters long. Such length is not compatible with a laboratory environment : velocities in the pilot units are 10 to 100 times slower than in industrial plants [3]. This decrease in velocities has been shown to have a significant negative effect on external mass transfer rate, that is the ability of the reactor to supply the catalyst with reactants. A comprehensive review on mass transfer has been written by Dudukovic et al [4]. Another consequence of velocity reduction is a drastic change in flow patterns and especially a decrease in the wetted area of catalyst pellets. Solutions proposed in the 90's have been to operate in upflow (bubble flow mode) or to fill up the porosity with fine inert powder that promotes full wetting [3].

Another drawback of size reduction, is the potential loss of the plug-flow behaviour. In industrial fixed bed reactors, molecules exit the reactor in the same order as they enter : this is ideal plug-flow. In small size reactors, the residence time distribution is not ideal : some molecules stay longer than the average, some molecules stay shorter. A common explanation is related to the increased importance of wall effects : near the reactor walls, the overall bed porosity is significantly higher than in the centre of the reactor leading to bypass flows of reactants in a region of a typical width of 2-3 diameters [5]. As the reactor diameter decreases, while keeping the catalyst pellets unchanged, the wall effect gains in relative intensity. Small deviation from ideality can be described using a dispersive plug-flow model, in which a dispersion term is used to represent all the non-ideality. A review on dispersion has been proposed by Delgado [6]. Dispersive behaviour means that contact time with catalyst pellets depends on each path in the reactor : conversion is not identical on all paths so that the apparent reactor performance is an average of the activity on each path. For very high conversion reactions, assessment of catalyst activity or even target performance may not be achieved. The higher the conversion, the more plug-flow the reactor should be [7]. As in small scale fixed beds, dispersion depends on the ratio of reactor length to particle diameter [6,3], plug flow behaviour can be achieved by filling up the space between catalyst pellets by fine inert powder [3].

Interestingly, it has been observed that at very low tube to particle diameter ratio (below 7-10), dispersion is smaller than for larger (in the sense higher tube to particle diameter ratio) reactors [8]. This is known as the Knox Parcher effect. For small reactors, there is no porosity difference near the wall and the centre : the pellets packing structure becomes quite uniform. Theoretical statistical considerations [9] indicate also that a minimum bed height of about 15 particle diameters is required for dispersive plug-flow model to be valid. Below this length, the theory indicates that random effects should predominate. Recently, we proved using direct numerical simulation (DNS) of reactive flow in

a box containing 8 cylinders [10] that orientation and position of catalyst pellets could change significantly the apparent reactor performance. Further size reduction requires to rethink traditional chemical engineering fixed bed design rules and to investigate local effects, namely the interaction at pellet scale of pellet position and orientation (random) with flow and reactant transport.

Computing the detailed kinematics of the flow through a porous media is not an easy task for the two following primary reasons:

(1) the domain geometry is quite intricate which leads to issues in generating the mesh of the computational fluid domain, and
(2) creating the geometry, i.e., the assembly of pellets (solid particles), itself, is not straightforward.

For the latter, one common option in the literature is to perform a dynamic granular simulation of the filling stage, i.e., as all particles are poured into the container, where all collisions between particles are calculated. This type of method is not only efficient in the sense that it supplies a realistic assembly of particles but also mimics the filling process and hence allows one to investigate the influence of the type of filling process on the final microstructure of the assembly of particles (porosity, tortuosity, local defects, ...). Among the various computational methods available to simulate granular dynamics (Event-Driven method, Non-Smooth Contact Dynamics, Discrete Element, ...), the Discrete Element Method (DEM) [11] is likely to be the most commonly used, with hundreds of publications in the international literature every year. DEM is conceptually simple and easy to implement for spherical particles, and has been shown to yield physically sensible results. Its extension to non-spherical and angular particles is however more complicated in relation to the determination of the network of contacts. It is primarily a geometric problem. Fortunately, various collision detection techniques have been devised to account for non-smooth shapes (see, e.g., [12] for a review of these techniques), and among them the one suggested by our group and based on the use of a Gilbert-Johnson-Keerthi (GJK) algorithm for the geometric detection of the contact points [13]. Our numerical code, Grains3D, has been validated in assorted granular flow configurations and in particular enables one to fill a container with any kind of convex shapes [13,14].

For the former, there are essentially two main options to proceed: (i) creating a boundary fitted unstructured mesh and solving the fluid problem in the fluid domain only, with no slip boundary conditions at the particle surface or (ii) employing a regular simple structured mesh and account for the presence of the fixed particles treated as obstacles by forcing the fluid velocity to locally be zero. Solution (i) constitutes the traditional way of examining this type of flow [15,16,17], its advantage being the ability to refine the mesh wherever necessary (e.g., the boundary layer close to the particle surface) while it re-

quires to generate a new mesh anytime the microstructure changes (which can be a tedious process and might necessitate a very sophisticated meshing tool). Solution (ii) belongs to the class of non-boundary fitted methods like Immersed Boundary (IBM) [18,19], lattice-Bolztmann (LBM) with bounce-back collision rule at particle boundary [2,20,21,22], Distributed Lagrange Multiplier/Fictitious Domain (DLM/FDM) [23,24,1,25],or Force Coupling (FCM) [26], to name the most popular ones only. Each of the four aforementioned methods (IBM, LBM, DLM/FDM, FCM) has been applied with reasonable success to a variety of flow configurations (including both fixed and moving solid particles). Here, we use PeliGRIFF (*Parallel Efficient LIbrary for GRains In Fluid Flow*), the DLM/FDM based parallel flow solver developed in our group [1,25]. We shall evidence later in the paper that the combination of Grains3D and PeliGRIFF is an appropriate computational strategy to compute the flow and the pressure drop in a packed bed of cylinders.

The rest of the paper is organized as follows. *Section 2* gives a short presentation of our two numerical tools together with validations of our DLM/FDM on low porosity problems with spheres. Then, we analyse in *Section 3* the flow through a loosely packed bed of cylinders. In particular, we assess the effect of size distribution on the pressure drop through the bed and discuss the validity of the extension of the correlation of [2,27] proposed for spheres to cylinders for the estimation of the pressure drop. Finally, we sum up in *Section 4* our results and list the perspectives on the present study.

Remark To avoid any misunderstanding, all dimensional quantities are denoted throughout the sequel of the paper with a "$*$" superscript.

2 Numerical model

For the sake of clarity, we shortly present below the numerical methods we employ to simulate the flow through the packed bed of cylinders. We use two different solvers: the former enables us to construct the pack of solid particles and the latter computes the flow through the packed bed. For a more detailed presentation of these two numerical tools, the reader is referred to the publications cited in the two following sub-sections.

2.1 Granular solver

Creating a packed bed of solid particles in not an easy task, especially for non-spherical particles. Besides, even for spheres, it is far from being entirely straightforward. There are essentially two options: (i) using a classical Monte

Carlo procedure to distribute the spheres in the domain until the desired compacity is reached, or (ii) performing an actual dynamic granular simulation under controlled conditions of the pouring process of the particles in the domain and letting the system relax to rest. We chose the latter option for two primary reasons: (i) it is much more versatile in the sense that it can be extended to non-spherical shapes and (ii) it is physically more sensible since it models an actual granular flow.

Our granular solver is based on the Discete Element Method (DEM) [11] and a soft-sphere collision model. The soft-sphere collision model implies to allow the rigid particles to slightly overlap as they touch and to use a geometric measure (usually a distance) of the overlap to calculate the contact forces. The contact force model considered in all our simulations is very standard: its mechanical analog is a Hookean spring and a dashpot in the normal direction and a dashpot and a Coulomb frictional element that limits the force to its Coulomb upper bound in the tangential direction [13]. Other more sophisticated alternatives exist (see, e.g., [28] for a comprehensive overview). Each collision between two nearby particles is numerically integrated over time, leading to time steps much smaller than the physical contact time. DEM is not limited to binary collisions and collisions between multiple particles are addressed without any particular trouble.

The motion of the granular material is determined by applying Newton's second law to each particle $i \in < 0, N-1 >$, where N is the total number of particles. Since particles are rigid, their velocity vector $\boldsymbol{v}^*$ satisfies $\boldsymbol{v}^* = \boldsymbol{U}^* + \boldsymbol{\omega}^* \wedge \boldsymbol{R}^*$, where $\boldsymbol{U}^*$, $\boldsymbol{\omega}^*$ and $\boldsymbol{R}^*$ denote the translational velocity vector, the angular velocity vector and the position vector with respect to the center of mass, respectively. This decomposition classically leads to a force equation for $\boldsymbol{U}^*$ and a torque equation for $\boldsymbol{\omega}^*$. The complete set of equations to be considered is the following one:

$$M_i^* \frac{d\boldsymbol{U}_i^*}{dt^*} = \boldsymbol{F}_i^* \tag{1}$$

$$\boldsymbol{J}_i^* \frac{d\boldsymbol{\omega}_i^*}{dt^*} + \boldsymbol{\omega}_i^* \wedge \boldsymbol{J}_i^* \boldsymbol{\omega}_i^* = \boldsymbol{M}_i^* \tag{2}$$

$$\frac{d\boldsymbol{x}_i^*}{dt^*} = \boldsymbol{U}_i^* \tag{3}$$

$$\frac{d\boldsymbol{\theta}_i^*}{dt^*} = \boldsymbol{\omega}_i^* \tag{4}$$

where M_i^*, $\boldsymbol{J}_i^*$, $\boldsymbol{x}_i^*$ and $\boldsymbol{\theta}_i^*$ stand for the mass, inertia tensor, center of mass position and angular position of particle i. $\boldsymbol{F}_i^*$ and $\boldsymbol{M}_i^*$ are the sum of all forces and torques applied on particle i, respectively. In our study, only gravity and contact forces act on a particle; thus $\boldsymbol{F}_i^*$ and $\boldsymbol{M}_i^*$ can be further decomposed

as:

$$\boldsymbol{F}_i^* = M_i^* \boldsymbol{g}^* + \sum_{j=0, j\neq i}^{N-1} \boldsymbol{F}_{ij}^* \tag{5}$$

$$\boldsymbol{M}_i^* = \sum_{j=0, j\neq i}^{N-1} \boldsymbol{R}_j^* \wedge \boldsymbol{F}_{ij}^* \tag{6}$$

where $\boldsymbol{R}_j^*$ is a vector pointing from the center of mass of particle i to the contact point with particle j and $\boldsymbol{F}_{ij}^*$ is the contact force.

In our code, Grains3D, we use a sophisticated collision detection strategy based on a Gilbert-Johnson-Keerthi (GJK) distance algorithm [29,30] that enables us to examine any kind of combination of convex particle shapes and sizes (as illustrated in FIG. 1 where various convex shapes are packed in a cylindrical container). For a detailed description of Grains3D, the reader is referred to [13]. Here, we apply Grains3D to a polydisperse set of 3D cylindrical particles.

2.2 Flow solver around the fixed particles

The DLM/FD method used in our code PeliGRIFF implies to use a cartesian structured mesh of constant grid size, to solve the fluid conservation equations everywhere in the domain and to force the rigid body motion (motionless in the particular case of the application treated in this paper) in the regions (filled of fictitious fluid) occupied by the particles [23,24,1,25]. Assorted variants at the discrete level have been suggested in the literature. Here, we combine the DLM/FDM with a Finite Volume/Staggered Grid discretization scheme for the fluid equations, an implicit solution of the resulting DLM/FD saddle-point problem by a Uzawa algorithm, a collocation-point method to discretize the particles on the fluid mesh and a second-order interpolation on the fluid velocity at the particle boundary. Further detail can be found in [31].

Even in steady situations, the flow solution is obtained as the steady state of a time evolving problem. The solving algorithm is of the operator-splitting type and comprises two stages as follows, where governing equations are written in a dimensionless form:

(1) A classical L2-projection scheme for the solution of the Navier & Stokes

problem: find $\boldsymbol{u}^{n+1/2}$ and p^{n+1} such that

$$\begin{aligned}\frac{\tilde{\boldsymbol{u}}-\boldsymbol{u}^n}{\Delta t}-\frac{1}{2\mathcal{R}e}\nabla^2\boldsymbol{u}^{n+1/2}&=-\nabla p^{n+1}+\frac{1}{2\mathcal{R}e}\nabla^2\boldsymbol{u}^n,\\&\quad-\frac{1}{2}\left(3\boldsymbol{u}^n\cdot\nabla\boldsymbol{u}^n-\boldsymbol{u}^{n-1}\cdot\nabla\boldsymbol{u}^{n-1}\right)-\alpha\boldsymbol{\lambda}^n,\end{aligned}\tag{7}$$

$$\nabla^2\psi=\frac{1}{\Delta t}\nabla\cdot\tilde{\boldsymbol{u}}\ ,\ \ \frac{\partial\psi}{\partial n}=0\ on\ \partial\Omega,\tag{8}$$

$$\begin{aligned}\boldsymbol{u}^{n+1/2}&=\tilde{\boldsymbol{u}}-\Delta t\nabla\psi,\\p^{n+1}&=p^n+\psi-\frac{\Delta t}{2\mathcal{R}e}\nabla^2\psi.\end{aligned}\tag{9}$$

(2) A fictitious domain problem: find $\boldsymbol{u}^{n+1}$ and $\boldsymbol{\lambda}^{n+1}$ such that

$$\frac{\boldsymbol{u}^{n+1}-\boldsymbol{u}^{n+1/2}}{\Delta t}+\boldsymbol{\lambda}^{n+1}=\alpha\boldsymbol{\lambda}^n,\tag{10}$$

$$\boldsymbol{u}^{n+1}=\boldsymbol{0}\ \ in\ P(t).\tag{11}$$

where $\boldsymbol{u}$, p, $\boldsymbol{\lambda}$, ψ and Δt denote the dimensionless fluid velocity, fluid pressure, DLM/FD Lagrange multiplier to relax the constraint (11), pseudo-pressure field and time step respectively. Ω and $\partial\Omega$ represent the flow domain and its boundary respectively and $P(t)$ the region occupied by the particles. Finally, $\mathcal{R}e$ stands for the Reynolds number and reads:

$$\mathcal{R}e=\frac{\rho_f^*U_c^*L_c^*}{\eta^*}\tag{12}$$

where ρ_f^*, U_c^*, L_c^* and η^* are the fluid density, characteristic velocity, characteristic length and fluid viscosity respectively. In the case of the flow through a fixed bed of particles, obvious choices for U_c^* and L_c^* are the fluid inlet velocity and the equivalent particle diameter, but other choices are also conceivable.

Our objective is to examine the flow through a fixed bed of cylinders at a low but finite Reynolds number (laminar and steady regime). However, simulating this type of flow at a low porosity (less than 0.5) with a reasonably good accuracy still represents a challenging problem for non-boundary fitted methods like IBM, LBM, DLM/FDM or FCM. Hence, we first validate our method by comparing our computed results with analytical exact solutions and other numerical data from the literature on problems involving spheres. In particular, we evidence that our method, unlike other works using IBM or LBM, does not require any hydrodynamic radius calibration and provides satisfactory solutions with the actual (geometric) particle radius. This allows us to then extend our study to cylinders and simply use their actual geometric features (diameter and height).

2.3 Validation of the method on the flow through a periodic array of spheres: Stokes and inertial regimes, structured and random arrays

The DLM/FDM has already been validated in numerous flow configurations in the past literature [23,24,1,25] but very often in dilute regimes. As the solid volume fraction increases, the accuracy of the computed solution deteriorates and predictions show a large discrepancy unless an adequate remedy is devised. In most IBM and LBM works, the hydrodynamic radius is adjusted such that the numerical method properly predicts the hydrodynamic force experienced by a spherical particle in a dilute regime. The calibrated or effective hydrodynamic radius (slightly larger than the actual geometric radius in LBM [2,20,21,32] while slightly lower in IBM [33,34]) is then used as well in more concentrated and/or inertial regimes. Though this calibration procedure has permitted to supply valuable information on the flow through structured and random array of spheres, it is still somehow questionable, in the sense that it is not clear what is the motivation to perform this calibration, except to correct an intrinsic drawback of the numerical method. Recently, Deen et al [35] have suggested another fully-resolved numerical method that provides satisfactory results up to high solid volume fraction (low porosity) that does not rely on any calibration procedure of the hydrodynamic radius. In our code PeliGRIFF, we follow the same guideline and hence highlight below that using a second-order outwards-oriented interpolation (as in a Q2 quadratic finite element) instead of a classical multi-linear one of the fluid velocity at the particle boundary allows us to supply accurate results, though we consider the actual radius. A set of DLM/FD points and the two types of interpolation (multi-linear and quadratic) are illustrated in FIG. 2 in 2D for a circular cylinder.

The first test case is the flow through an infinite structured simple cubic array of spheres at $\mathcal{R}e = 0$. This problem is a very appropriate candidate to validate our code since it possesses an exact analytical solution derived in [36] up to the maximum structured packing $\phi_{max} = \pi/6 \simeq 0.524$, where $\phi = 1 - \epsilon$ is the solid volume fraction and ϵ the porosity. In our simulations, the system is modelled as follows: a single sphere is set at the center of a cubic computional domain with periodic boundary conditions in all 3 directions. A pressure drop is imposed in one of the 3 directions, e.g. x, and the resulting flow rate Q^* is measured. Following [36], the relation between the mean velocity V^* and the imposed pressure drop ΔP^* involves a drag coefficient K and is defined as follows:

$$\frac{\Delta P^*}{L^*} = \frac{9}{2}\frac{\eta^*}{a^{*2}}\phi K V^* \tag{13}$$

where L^* and a^* denote the cube edge length and sphere radius, respectively, and $V^* = Q^*/L^{*2}$. [36] supplies the analytical evolution of K as a function of ϕ. We plot in FIG. 3(a) the solution computed by PeliGRIFF for a $40 \times 40 \times 40$ mesh and a dimensionless time step $\Delta t = 0.01$. This plot evidences a very

satisfactory agreement with the analytical solution in [36] up to ϕ_{max}, the maximum error being less than 3%. We further examine the accuracy of our computed solution in FIG. 3(b) by plotting its convergence as a function of N_p, the number of DLM/FD points on the particle diameter (that varies as $1/h$, h being the grid size). This plot leads to the three following comments:

(1) for all ϕ, we get a clean and nice spatial convergence,
(2) generally the solution converges as N_p^{α} with $\alpha \in [1:1.5]$, which is deemed to be satisfactory for a second-order accurate scheme for a fluid flow without particles and a non-boundary fitted treatment of the particles. And again, we point out that no effective hydrodynamic radius or calibration procedure is employed. The radius of the sphere in our simulations is simply its geometric radius,
(3) for the same N_p, the error e between the computed solution and the analytical one increases with the solid volume fraction ϕ, which implies that a much higher resolution is required for dense particulate systems, e.g. a packed bed, than for dilute ones.

The second test case is similar except that the layout of spheres is random. This problem has been studied in [2,20] with a LBM in viscous regime ($\mathcal{R}e < 0.2$). Our simulations are performed for $(\mathcal{R}e, N_p, \Delta t) = (0.01, 16, 0.01)$. For each ϕ we generate five random layouts of particles and the mean velocity V is then averaged over these five configurations. The resulting flow field is illustrated in FIG. 4(a) for $\phi = 0.524$. As for a structured array of spheres, we compute the mean drag coefficient on each sphere K and compare our values with the predictions in [2,20]. The agreement with the LBM predictions is very good, as shown in FIG. 4(b), and our computed solution converges linearly with N_p, i.e. as $O(N_p^{-1})$ (not presented here for the sake of conciseness). The same ϕ dependence is observed in the convergence plots: dense systems requires a finer mesh than dilute ones for the same accuracy.

Our third and last test case is the flow through a semi-infinite structured array of spheres at $(\mathcal{R}e, \phi) = (18, \pi/6)$. The objective is to evidence that PeliGRIFF not only supplies accurate solutions in a Stokes flow but also in finite $\mathcal{R}e$ ones, i.e., regimes in which inertia is non-negligible. This test case is well documented in [37], it consists of a structured bed of 12 particles laid out as $3 \times 2 \times 2$ in the (x, y, z) frame. Periodic boundary conditions in the y and z directions model the semi-infinite configuration. The computational domain is bounded by entry and exit zones in the x direction (the direction of the flow). These two zones span one particle diameter d^* such that the total computational domain dimensions are $4d^* \times 2d^* \times 2d^*$. At the inlet boundary, a constant velocity field $(U^*, 0, 0)$ is imposed while classical outflow boundary conditions with a reference constant pressure (set to 0 for convenience purposes) are applied at the exit plane. Different computations with an increasing N_p are performed: $8, 16, 20, 24, 32, 48, 64, 96, 128, 160$ (the largest N_p value, i.e. 160,

implies a mesh comprising $640 \times 320 \times 320 \simeq 65$ millions of cells and ran on 128 cores of a supercomputer). FIG. 5(a) illustrates the flow field in the xz symmetry plane while FIG. 5(b) plots the convergence of the computed solution with mesh refinement. The solution converges as $N_p^{-1.65}$ and the error is less than 4% from $N_p = 32$ (Note that the error is computed with the Richardson extrapolation to infinite N_p as the reference solution). The friction coefficient Λ is defined as in [37]:

$$\Lambda = \frac{\Delta P^*}{L^*} \frac{(1-\phi)^3 d^{*2}}{\phi^2 \eta^* U^*} \tag{14}$$

Its value computed by PeliGRIFF is $\Lambda = 182$, in line with the numerical prediction of [37] and the assorted correlations considered therein.

3 Results

3.1 Assessment of the accuracy of the computed solution for the case of a random array of cylinders

Prior to examining the flow through a packed bed of cylinders, we first assess the accuracy of the computed solution in such a configuration. Though we thoroughly studied it in the case of spheres, there is no certainty that the rule in terms of number of points per diameter derived for spheres is still valid for cylinders. In fact, cylinders exhibit sharp edges and hence the flow field is tougher to capture in a proper way. For the sake of clarity, let us introduce the height H^* to diameter d^* ratio $a_r = H^*/d^*$ of a cylinder.

Thus, we first consider a small bed made of 20 mono-disperse cylinders with $a_r = 1.875$ (dimensionally $H^* = 3mm$ and $d^* = 1.6mm$) in a computational domain with the following boundary conditions (see FIG. 6(a)):

- periodic boundary conditions in the transverse (horizontal) directions to the main flow,
- a uniform inlet (upward oriented) velocity at the bottom wall,
- free outflow at the top wall (reference pressure set to 0 and homogeneous Neumann boundary conditions for all velocity components).

The computational domain dimensions are $11.25d^* \times 3.75d^* \times 3.75d^*$ (dimensionally $18mm \times 6mm \times 6mm$) and the bottom of the packed bed is located at $2.5d^*$ (dimensionally $4mm$) from the inlet bottom wall. The bed of 20 cylinders is the result of a dynamic granular simulation similar to the one employed in *Section 3.2*. The approximate value of ϕ is 0.6. In all simulations, the particulate Reynolds number $\mathcal{R}e$ is set to 0.43. As for spheres in *Section 2.3*, different

computations with an increasing number of points per cylinder diameter N_p : $24, 32, 40, 48, 56, 64, 72$, are performed. The last case $N_p = 72$ corresponds to a computational domain composed of $270 \times 270 \times 810 \simeq 60$ millions of cells and run on 128 cores of a supercomputer. Once again, we look at the convergence of the friction coefficent Λ as a function of N_p. Obtained results are plotted in FIG. 6(b) and highlight a convergence in $N_p^{-1.15}$, i.e., slightly better than linear. The convergence rate for cylinders is less than the one for spheres, as expected, since the problem is geometrically stiffer. However, convergence is achieved. Also, FIG. 6(b) reveals that a larger number N_p is required for cylinders than for spheres for an equivalent accuracy. The outcome is clear: not only the solution converges slower for cylinders than spheres but the magnitude of the error is larger for the same N_p. Computing the flow through a packed bed of cylinders requires an approximately 50% finer mesh than for a packed bed of spheres for an equivalent accuracy, which translates into $1.5^3 \simeq 4$-fold more cells, i.e., a 4 folds larger computing cost. From $N_p = 40$, the error is less than 4% and in the sequel all presented results are obtained with a $N_p = 40$ mesh.

3.2 Effect of size distribution on the pressure drop through a bed of poly-disperse cylinders

Our final goal is to examine the flow through a packed bed of poly-disperse cylinders. The configuration is similar to the one adopted in *Section 3.1* but the bed height is larger. In fact, the computational domain height is fixed to $48mm$ with entry and exit lengths of $4mm$, thus the bed itself is approximately $40mm$ high in all the cases. We consider three classes of cylinders of diameter $1.6mm$ and increasing length $2mm$, $3mm$ and $4mm$, called L2, L3 and L4 respectively. Two poly-disperse distributions centered on L3 are selected: L234-25/50/25 and L234-40/20/40 that comprise 25% of L2, 50% of L3 and 25% of L4, and 40% of L2, 20% of L3 and 40% of L4, respectively. For comparison purposes, we perform additional simulations in the following configurations

- mono-disperse beds of cylinders L2, L3 and L4,
- mono-disperse beds of spheres of equivalent diameter to L2, L3 and L4 (equivalent diameter meaning here that spheres have the same volume as corresponding cylinders), called S2, S3 and S4 respectively,
- poly-disperse beds of spheres S2, S3 and S4 with similar distribution.

For each configuration, we run three simulations with varying microstructure. To do so, the bed of pellets is created by randomly seeding them at the top of the domain and letting them settle under gravity and contact until a motionless packed bed is obtained. These granular dynamics simulations are performed with the soft-sphere DEM code Grains3D [13], which is also employed as the collision algorithm in freely moving particles simulations [1,25].

This enables us to calculate a meaningful mean value of the pressure drop [2] as well as to estimate the variability of the flow associated to the local microstructure of the bed of pellets.

FIG. 7 illustrates the microstructure of the mono-disperse and poly-disperse beds of cylindrical pellets. In our simulations, the bed height to pellet length ratio varies from 10 to 20. This is rather small and inlet and outlet length effects are non-negligible in the pressure drop calculation. Besides, it is rather hard to determine in a reliable way the actual height of the bed (see the free surface of particles in FIG. 7) and hence the corresponding porosity. Therefore, the method adopted to extract the pressure drop accross the bed from our simulation results is the following: we consider a sub-domain in the vertical direction in the core of the bed that corresponds to discarding approximately one pellet length both at the entry and exit of the bed. The local porosity in this sub-domain is numerically computed using the fluid mesh and subdividing cells that are sliced by a pellet boundary into sub-cells. From 4 sub-divisions, we verified on known solutions, e.g., a single cylinder in a box, that this method provides porosity estimates with less than 0.1% error, which is deemed to be very satisfactory.

In all simulations, inlet velocity U^* and fluid viscosity η^* are adjusted such that the corresponding particulate Reynolds number is approximately $\mathcal{R}e \simeq 0.4$. Hence, all simulations are performed in the Stokes (viscous) regime. Using $N_p = 40$ leads to a mesh that comprises $150 \times 150 \times 1200 = 27$ millions of cells. Jobs are run on 64 cores on a supercomputer. The dimensionless time step is set to 0.005. Simulations are run using a transient algorithm from a quiescent initial state until a steady state is reached. The average computing time is around 3 days.

3.2.1 Ergun's correlation in Stokes regimes for mono-disperse pellets

The most classical and widely employed relation giving the pressure drop over a bed as a function of the inlet velocity U^*, local porosity ϵ, particle diameter d^*, fluid viscosity η^* and density ρ_f^* has been suggested by Ergun in 1952 [38] that reads:

$$\frac{\Delta P^*}{L^*} = A\frac{\eta^*(1-\epsilon)^2 U^*}{d^{*2}\epsilon^3} + B\frac{\rho_f^*(1-\epsilon)U^{*2}}{d^*\epsilon^3} \tag{15}$$

A and B are two constants determined from an experimental data fitting procedure. Ergun suggested 150 and 1.75 respectively for a bed of mono-disperse spheres. In Stokes (viscous) regimes ($Re < 1$), the latter term in the right-hand-side of (15), i.e. the inertial contribution, can be dropped. Besides, it is generally admitted (see, e.g., [39] among many others) that (15) under-predicts the pressure drop in Stokes regimes and Carman [40] suggested $A = 180$ as a better match. In the present work, we focus on the viscous regime since $\mathcal{R}e \simeq 0.4$ in our simulations. Computed dimensionless pressure drops Γ

defined as $\frac{\Delta P^*}{L^*}/\frac{\eta^* U^*}{d^{*2}}$ are plotted in FIG. 8 as a function of the porosity ϵ for the 9 PeliGRIFF simulations (3 different microstructures for each S_i, $i \in < 2, 4 >$) together with Ergun's and Carman's correlations. For each spherical particle diameter S_i, both the 3 values related to different microstructure and the mean porosity - mean Γ are shown. Overall, mean values exhibit a much better agreement with Carman's correlation than with Ergun's, as expected in a viscous regime. Interestingly, in the small system we considered (especially in the direction transverse to the flow which spans a few particle diameters only), the variability of the microstructure is rather noticeable and its impact on the pressure drop significant in relation to the ϵ dependence of the Ergun's relation. In other words, small variations of the local porosity of the bed lead to large variations of the pressure drop in a loosely packed bed. FIG. 8 indicates that for the same system, relative variations of ϵ around its mean value up to 1.5% results in almost 10% similar relative variations for the dimensionless pressure drop Γ. This remarkably emphasizes the local microstructure effects in small scale bed of particles, even for spherical and mono-disperse shapes. Based on average values, the fully-resolved predictions of PeliGRIFF of the pressure drop through the bed are 3% less than Carman's correlation, which confirms that Carman's correlation supplies a reliable and reasonably good estimate of the pressure drop in the viscous regime, while conversely we confirm that Ergun's markedly under-predicts it, as already suggested in the literature [21,39]. Fitting our results provide $A \simeq 175$.

We now consider beds of mono-disperse cylinders with constant diameter and 3 different lengths L2, L3 and L4. Previous works in the literature [41,39] advocated to modify the classical Ergun's correlation for non-spherical particles by introducing the following additional parameters:

- the particle sphericity φ_p defined as:

$$\varphi_p = \frac{A^*_{es}}{A^*_p} = \frac{36\pi V^{*2}_p}{A^*_p} \tag{16}$$

  where A^*_{es}, A^*_p and V^*_p denote the surface area of the equivalent volume sphere, the surface area of the particle and the particle volume respectively.
- the diameter of the arbitrarily shaped particle d^*_p defined as:

$$d^*_p = \frac{6V^*_p}{A^*_{es}} \tag{17}$$

- the equivalent volume sphere diameter d^*_{es} defined as:

$$d^*_{es} = \frac{6V^*_p}{A^*_p} = d^*_p \varphi_p \tag{18}$$

- a φ_p-dependent Ergun constant $A(\varphi_p)$

Thus, the modified Ergun's correlation in the viscous regime for non-spherical particles reads [39]:

$$\frac{\Delta P^*}{L^*} = A(\varphi_p)\frac{\eta^*(1-\epsilon)^2 U^*}{d_{es}^{*2}\epsilon^3} \tag{19}$$

In [39], the authors suggest the following relation for cylinders:

$$A(\varphi_p) = \frac{150}{\varphi_p^{3/2}} \tag{20}$$

based on a fitting procedure on a rather limited number of experimental data in a laminar-inertial regime $1 < \mathcal{R}e < 1000$. It is also worth observing that though reasonably good, (20) is up to 10% off from the experimental data for certain cylinder aspect ratio (see Fig. 2(a) in [39]). In FIG. 9(a) are plotted the dimensionless pressure drop computed by PeliGRIFF for the three classes of cylinders L2, L3 and L4 together with the Ergun's correlation modified for cylinders suggested in [39]. A generally satisfactory agreement is obtained with the maximum difference being of the order of 6% for the highest aspect ratio $a_r = 2.5$, as evidenced in TAB. 1. We also tried to fit our results in terms of variation of the constant A with the sphericity φ_p. In the viscous regime, our results suggest a 5/4 power law variation rather than a 3/2 one, but this should be considered with care as additional simulations would be suited to confirm this result.

As for spheres, we observe relative deviations around the mean pressure drop value up to 10% due to the different local microstructure resulting from the 3 runs for each class of cylinder. Once again, we confirm experimental results that reproducibility of pressure drop estimate (measurement in experiments vs calculation in numerical simulation) is hard to guarantee, or said differently can lead up to 20% (+/-10%) change between the lowest and highest values. However, we expected that reproducibility for cylinders would be even worse than for spheres, in relation to their ability to orientate themselves in the bed whereas the isotropy of spheres prevents them from affecting too much the porosity and microstructure of the bed [39]. We believe that our analysis is partly biased here by the rather small transverse dimensions of our computational domain. In fact, computed results are markedly more scattered as the ratio between the sphere diameter or cylinder length to the domain transverse length decreases, as evidenced in FIG. 8 for S4 and FIG. 9(a) for L4 (blue results). Finally, we analyze the impact of the particle shape on the dimensionless pressure drop Γ in TAB. 2. As expected, the difference between spheres and cylinders increases with the cylinder aspect ratio a_r. From $e_\Gamma(L, S)$, we get the total effect of the particle shape on Γ, as a combination of particles orientation and porosity in the bed. However, it is beneficial to the understanding how the flow through a bed of cylindrical particles differs from the one through a bed of spheres to sort out the effect of porosity from the effect of shape only, at equivalent porosity. $e_\Gamma(L, S(\overline{\epsilon_L}))$ represents a measure of the

effect of particle orientation only, as it compares Γ for each class of cylinders with Γ obtained for a bed of spheres at the same porosity ϵ, extrapolated from the results computed with PeliGRIFF for spheres. Interestingly, for a low aspect ratio $a_r = 1.25$, the resulting porosity is the major factor that affects Γ, while from $a_r = 1.875$ the effect of shape and orientation of cylinders and the resulting porosity acts in opposite ways and the former partly compensates the latter ($+10.7\%$ vs -24.1%). It is likely that for even higher aspect ratio a_r, the effect of particle shape and orientation will prevail, but this should be verified first.

3.2.2 Extension to poly-disperse pellets

We now report on the results computed for beds of poly-disperse particles. In [2,27], the authors suggest a correction to the average hydrodynamic force exerted by the fluid on a class of spherical particles of diameter d_i in a bed of poly-disperse spheres. Following [2], the relation between the total dimensional $F^*_{f->s}$ and dimensionless F hydrodynamic force exerted by the fluid on a sphere of diameter d reads:

$$F = \frac{(1-\phi)F^*_{f->s}}{3\pi\eta^* d^* U^*} \tag{21}$$

From a simple balance of force in the domain of volume V^* containing N particles : $V^* \frac{\Delta P^*}{L^*} = N F^*_{f->s}$, we get the relation between F and $\frac{\Delta P^*}{L^*}$:

$$F = \frac{1-\phi}{\phi} \frac{d^{*2}}{18\eta^* U^*} \frac{\Delta P^*}{L^*} \tag{22}$$

In other words, from (13), F is nothing else than $(1-\phi)K$. For a bed of poly-disperse spheres, Van der Hoef and co-workers [2,27] suggested the following correlation obtained by fitting a large number of LBM simulations for the dimensionless hydrodynamic force F_i acting on the class of spheres of diameter d_i:

$$F_i(\phi, \mathcal{R}e_i) = ((1-\phi)y_i + \phi y_i^2 + 0.064(1-\phi)y_i^3) F(\phi, < \mathcal{R}e >) \tag{23}$$

where $F(\phi, < \mathcal{R}e >)$ is the dimensionless hydrodynamic force for a bed of mono-disperse spheres of diameter d_i at the same global volume fraction ϕ and equivalent Reynolds number $< \mathcal{R}e >$. Since we are interested in the viscous regime here, we drop the $\mathcal{R}e$ dependence. In (23), $y_i = d^*_i / < d^* >$ where $< d^* >$ is the Sauter diameter classically defined as:

$$< d^* > = \frac{\sum_{i=0}^{c} N_i d_i^{*3}}{\sum_{i=0}^{c} N_i d_i^{*2}} \tag{24}$$

where c denotes the number of classes of spheres. (23) can be translated in terms of pressure drop $\frac{\Delta P^*}{L^*}$ once again starting from the balance of force in

the domain for a bed of poly-disperse spheres:

$$V^* \frac{\Delta P^*_{poly}}{L^*} = \sum_{i=0}^{c} N_i F^*_{f->s,i} = \sum_{i=0}^{c} N_i \frac{3\pi\eta^* d_i^* U^*}{1-\phi} F_i(\phi) \tag{25}$$

Introducing the volume of sphere of diameter d_i^* as $V^*_{p,i} = \pi d_i^{*3}/6$ and the volume fraction of class i as $\phi_i = N_i V^*_{p,i}/V^*$, we get:

$$\frac{\Delta P^*_{poly}}{L^*} = \sum_{i=0}^{c} \frac{18\eta^* U^* \phi}{(1-\phi) d_i^{*2}} \frac{\phi_i}{\phi} F_i(\phi) \tag{26}$$

Using (23) and $x_i = \phi_i/\phi$, we get:

$$\frac{\Delta P^*_{poly}}{L^*} = \sum_{i=0}^{c} \frac{18\eta^* U^* \phi}{(1-\phi) d_i^{*2}} x_i((1-\phi)y_i + \phi y_i^2 + 0.064(1-\phi)y_i^3) F(\phi) \tag{27}$$

Finally, we have:

$$\frac{\Delta P^*_{poly}}{L^*} = \sum_{i=0}^{c} x_i((1-\phi)y_i + \phi y_i^2 + 0.064(1-\phi)y_i^3) \frac{\Delta P^*_i}{L^*}(\phi) \tag{28}$$

$$\frac{\Delta P^*_i}{L^*}(\phi) = \frac{18\eta^* U^* \phi}{(1-\phi) d_i^{*2}} F(\phi) \tag{29}$$

where $\frac{\Delta P^*_i}{L^*}(\phi)$ corresponds to the pressure drop through a bed of mono-disperse spheres of diameter d_i and volume fraction ϕ. We compare in TAB. 3 the values of $\frac{\Delta P^*_{poly}}{L^*} / \frac{\eta^* U^*}{<d^*>^2}$ for the two different beds S234-25/50/25 and S234-40/20/40 computed by PeliGRIFF to the reconstructed values based on mono-disperse computed ones $\frac{\Delta P^*_i}{L^*} / \frac{\eta^* U^*}{<d^*>^2}$ extrapolated to $\overline{\phi_{poly}}$ (using (15) with $A = 175$ and $B = 0$) and (28). Discrepancies amount to -2.1% and -0.3% respectively, which is deemed to be very satisfactory. In fact, we get a very good agreement with the work of [2,27] and confirm that their correlation is reliable, even for a 3-disperse bed (in [2,27] the validity of the proposed correlation is verified for bi-disperse systems only).

In TAB. 4, we gather our computed results for poly-disperse cylinders. Similarly to beds of mono-disperse pellets, poly-disperse cylinders exhibit higher pressure drops than their spherical counterparts. To the best of our knowledge, there does not exist in the literature any correlation for the dimensionless hydrodynamic force and equivalently dimensionless pressure drop for a bed of poly-disperse cylinders. This drove us to test the validity of the correlation of Van der Hoef and co-authors when applied to cylinders. To be more specific, we use (28) in which $\frac{\Delta P^*_i}{L^*}(\phi)$ is the value of the pressure drop for the class of cylinder L_i obtained by our code extrapolated to $\overline{\phi_{poly}}$ and $< d^* >$ (using (15) with $A = 150/\varphi_p^{5/4}$ and $B = 0$) and the function $(1-\phi)y_i + \phi y_i^2 + 0.064(1-\phi)y_i^3$ is calculated using the equivalent sphere diameter. In other words, the weights

of $\frac{\Delta P_i^*}{L^*}(\phi)$ for cylinders L2, L3 and L4 are the same as the ones for the corresponding equivalent volume spheres S2, S3 and S4, respectively. Surprisingly, using this rather coarse approximation (since $(1-\phi)y_i + \phi y_i^2 + 0.064(1-\phi)y_i^3$ does not account for any orientation effect or particle sphericity φ_p) yields reasonably good agreement with less than 4% discrepancy in both cases.

Finally, the variability of the dimensionless pressure drop associated to the different microstructures of the bed in the 3 simulations for each poly-disperse beds are of the same order as for mono-disperse beds, i.e. a maximum of $+/-10\%$ around the mean value. This statement holds both for spheres and cylinders. And once again, we would like to underline that this rather constant variabality in our simulations is partly biased by the small transverse dimensions of our computational domain.

4 Discussion and perspectives

We have performed fully-resolved simulations of the flow through a packed bed of mono and poly-disperse pellets in the viscous regime. We considered both spheres and cylinders. The results on beds made of mono- and poly-disperse cylinders are, to the best of our knowledge, new computational results. The set of computed results enabled us to investigate the global effect of the microstructure of the bed on flow kinematics and pressure drop.

From a computational standpoint, fully-resolved simulations of this type of system provide insight into the heart of the flow, with detailed information on local velocity, hydrodynamic forces exerted on individual particles, and so on, but are extremely demanding in terms of computing resources. We have highlighted that accurate and reliable solutions can be obtained while a fine enough mesh is used to discretize the particles. For cylinders, we have shown with an adequate mesh convergence analysis that at least 40 points or cells are necessary over the cylinder diameter at a high volume fraction as the one encountered in a loosely packed bed. This leads to meshes generally comprising a few tens of millions of cells, at least. And hence a numerical tool that scales decently on large supercomputers on up to a few hundreds of cores is suitable.

From an industrial standpoint, we confirm that micro reactors (with classical reactor diameter spanning a few pellet diameters only) have a tendency to be subject to high variability in terms of pressure drop, up to $+/-10\%$ around the mean value. In our simulations, variability did not change much from spheres to cylinders, though it is reported in the literature (see, e.g., [39]) that it should be higher for cylinders in relation to their ability to orientate themselves in the bed. Though this statement is intuitively correct, we did not find any strong evidence supporting it in our computed results. However,

we emphasize once again that the limited transverse dimensions of our system may affect this observation.

We examined the effect of poly-dispersity both for spheres and cylinders. We remind the reader that in the case of cylinders, the poly-dispersity is created with cylinders of constant diameter but variable length, in an attempt to model realistic process engineering catalytic reactors (in which pellets are produced by extrusion and thus have a constant diameter). However, in our poly-disperse systems, the aspect ratio of the different classes of cylinders is also affected. The considered poly-dispersity hence represents a particular case (examining systems of poly-disperse cylinders of constant aspect ratio may have led to slightly different observations). For the same mass of pellets, cylinders lead to lower pressure drop through the bed essentially because the porosity of the bed of cylinders is larger. And this effect increases as the aspect ratio of the cylinder increases. However, at equivalent porosity, cylinders do dissipate more energy, as one would intuitively expects from their non-smooth shape. We verified, in the viscous regime only, that the correlation proposed by Van der Hoef and co-workers [2,27] is indeed rather reliable on our 3-disperse beds of spheres. We also examined how valid their correlation would be for poly-disperse cylinders and get unexpectedly good agreement. These are preliminary results only as the number of simulations performed is quite limited so far but it provides plausible clues that the functional form of the correlation $(1-\phi)y_i + \phi y_i^2 + 0.064(1-\phi)y_i^3$ works quite well for other shapes than spheres, at least at high solid volume fraction. This could potentially have important consequences for the design of catalytic fixed bed reactors.

Future work is two-fold. From a physical standpoint, we will perform additional simulations to provide a pressure drop correlation for beds of poly-disperse cylinders inspired by [2,27], add the effect of the reactor wall (localized high porosity) in an attempt to model realistic micro-reactors and examine the local effects of the microstructure on velocity distribution and pressure drop. In terms of numerical development of the model, the next stage is to implement additional advection-diffusion-reaction conservation equations for the chemical species and address the impact of the coupling between hydrodynamics and chemical reactions on the overall conversion efficiency of the micro-reactor.

Acknowledgements

This work was granted access to the HPC resources of CINES under the allocations 2013-c20132b6699 and 2014-c20142b6699 made by GENCI.

References

[1] A. Wachs. A DEM-DLM/FD method for direct numerical simulation of particulate flows: Sedimentation of polygonal isometric particles in a Newtonian fluid with collisions. *Computers & Fluids*, 38(8):1608–1628, 2009.

[2] M.A. Van der Hoef, R Beetstra, and J.A.M. Kuipers. Lattice-Boltzmann simulations of low-Reynolds-number flow past mono-and bidisperse arrays of spheres: results for the permeability and drag force. *Journal of Fluid Mechanics*, 528:233–254, 2005.

[3] S.T. Sie. Scale effects in laboratory and pilot plant reactors for trickle-flow processes. *Revue Institut Français du Pétrole*, 46:501–515, 1991.

[4] M.P. Dudukovic, F. Larachi, and P.L. Mills. Multiphase Catalytic Reactors: A Perspective on Current Knowledge and Future Trends. *Catalysis Reviews*, 44(1):123–246, 2002.

[5] M. Giese, K. Rottschafer, and D. Vortmeyer. Measured and modelled superficial flow profiles in packed beds with liquid flow. *AIChE Journal*, 44(2):484–490, 1998.

[6] J. M. P. Q. Delgado. A critical review of dispersion in packed beds. *Heat Mass Transfer*, 42:279–310, 2006.

[7] H. Gierman. Design of Laboratory Hydrotreating Reactors. *Applied Catalysis*, 43:277–286, 1988.

[8] John H. Knox and Jon F. Parcher. Effect of Column to Particle Diameter Ratio on the Dispersion of Unsorbed Solutes in Chromatography. *Analytical Chemistry*, 41:1599–1606, 1969.

[9] G. Dagan. *Flow and Transport in Porous Formations*. Springer-Verlag, 1989.

[10] M. Rolland. Significant Effect of catalyst Position and Orientation in Fixed-Beds Reactors. In *9th World Congress of Chemical Engineering, Seoul, Korea*, 2013.

[11] P.A. Cundall and O.D.L. Strack. A discrete numerical model for granular assemblies. *Geotechnique*, 29(1):47–65, 1979.

[12] M. Kodamn, R. Bharadwaj, J. Curtis, B. Hancock, and C. Wassgren. Cylindrical object contact detection for use in discrete element method simulations. Part I - Contact detection algorithms. *Chemical Engineering Science*, 65(22):5852–5862, 2010.

[13] A. Wachs, L. Girolami, G. Vinay, and G. Ferrer. Grains3D, a flexible DEM approach for particles of arbitrary convex shape - Part I: numerical model and validations. *Powder Technology*, 224:374–389, 2012.

[14] F. Dorai, M. Rolland, A. Wachs, M. Marcoux, and E. Climent. Packing fixed bed reactors with cylinders: Influence of particle length distribution. *Procedia Engineering*, 42:1454–1468, 2012.

[15] T. Atmakidis and E.Y. Kenig. Numerical analysis of mass transfer in packed-bed reactors with irregular particle arrangements. *Chemical Engineering Science*, 81:77–83, 2012.

[16] D.P. Combest, P.A. Ramachandran, and M.P. Dudukovic. Interstitial-scale transport in packed beds. In *International Symposia on Chemical Reaction Engineering*, 2012.

[17] A. G Dixon, M.E. Taskin, M. Nijemeisland, and E.H. Stitt. CFD method to couple three-dimensional transport and reaction inside catalyst particles to the fixed bed flow field. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 49(19):9012–9025, 2010.

[18] C.S. Peskin. Numerical analysis of blood flow in the heart. *Journal of Computational Physics*, 25(3):220–252, 1977.

[19] M. Uhlmann. An immersed boundary method with direct forcing for the simulation of particulate flows. *Journal of Computational Physics*, 209(2):448–476, 2005.

[20] R.J. Hill, D.L. Koch, and A.J.C. Ladd. The first effects of fluid inertia on flows in ordered and random arrays of spheres. *Journal of Fluid Mechanics*, 448(2):213–241, 2001.

[21] R.J. Hill, D.L. Koch, and A.J.C. Ladd. Moderate-Reynolds-number flows in ordered and random arrays of spheres. *Journal of Fluid Mechanics*, 448(2):243–278, 2001.

[22] D.A. Graf von der Schulenburg and M.L. Johns. Catalyst effectiveness factor distributions in isothermal packed bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 66(13):3003–3011, 2011.

[23] R. Glowinski, T.W. Pan, T.I. Hesla, and D.D. Joseph. A distributed Lagrange multiplier/fictitious domain method for particulate flows. *International Journal of Multiphase Flow*, 25(5):755–794, 1999.

[24] Z. Yu and X. Shao. A direct-forcing fictitious domain method for particulate flows. *Journal of Computational Physics*, 227(1):292–314, 2007.

[25] A. Wachs. Rising of 3D catalyst particles in a natural convection dominated flow by a parallel DNS method. *Computers & Chemical Engineering*, 35(11):2169–2185, 2011.

[26] E. Climent and M.R. Maxey. Numerical simulations of random suspensions at finite Reynolds numbers. *International Journal of Multiphase Flow*, 29(4):579–601, 2003.

[27] R. Beetstra, M.A. Van der Hoef, and J.A.M. Kuipers. Drag force of intermediate Reynolds number flow past mono-and bidisperse arrays of spheres. *AIChE journal*, 53(2):489–501, 2007.

[28] A. Dviugys and B. Peters. An approach to simulate the motion of spherical and non-spherical fuel particles in combustion chambers. *Granular Matter*, 3(4):231–266, 2001.

[29] E.G. Gilbert, D.W. Johnson, and S.S. Keerthi. A fast procedure for computing the distance between complex objects in three-dimensional space. *Robotics and Automation, IEEE Journal of*, 4(2):193–203, 1988.

[30] G. Van den Bergen. A fast and robust GJK implementation for collision detection of convex objects. *Journal of Graphics, Gpu, and Game Tools*, 4:7–25, 1999.

[31] A. Wachs, A. Hammouti, and G. Vinay. Accuracy of Finite Volume/Staggered Grid DLM/FD simulations of particulate flows. *submitted to Journal of Computational Physics*, 2013.

[32] A.J.C. Ladd and R. Verberg. Lattice-Boltzmann simulations of particle-fluid suspensions. *Journal of Statistical Physics*, 104(5):1191–1251, 2001.

[33] K. Höfler and S. Schwarzer. Navier-Stokes simulation with constraint forces: Finite-difference method for particle-laden flows and complex geometries. *Physical Review E*, 61:7146–7160, Jun 2000.

[34] W.P. Breugem. A second-order accurate immersed boundary method for fully resolved simulations of particle-laden flows. *Journal of Computational Physics*, 231(13):4469–4498, 2012.

[35] N.G. Deen, S.H.L. Kriebitzsch, M.A. van der Hoef, and J.A.M. Kuipers. Direct numerical simulation of flow and heat transfer in dense fluid-particle systems. *Chemical Engineering Science*, 81:329–344, 2012.

[36] A.A. Zick and G.M. Homsy. Stokes flow through periodic arrays of spheres. *Journal of Fluid Mechanics*, 115(1):13–26, 1982.

[37] Y. Kanarska, I. Lomov, and T. Antoun. Mesoscale simulations of particulate flows with parallel distributed Lagrange multiplier technique. *Computers & Fluids*, 48:16–29, 2011.

[38] S. Ergun. Fluid flow through packed columns. *Chem. Eng. Prog.*, 48:89–94, 1952.

[39] D. Nemec and J. Levec. Flow through packed bed reactors: 1. Single-phase flow. *Chemical Engineering Science*, 60(24):6947–6957, 2005.

[40] P.C. Carman. Fluid flow through granular beds. *Transactions-Institution of Chemical Engineeres*, 15:150–166, 1937.

[41] R.K. Niven. Physical insight into the Ergun and Wen & Yu equations for fluid flow in packed and fluidised beds. *Chemical Engineering Science*, 57(3):527–534, 2002.

List of Tables

1 Dimensionless mean pressure drop across a bed of monodisperse cylinders for the three classes considered L2, L3, L4 and comparison with the modified Ergun correlation suggested in [39], where $e_\Gamma(Pel, Erg) = 100|\overline{\Gamma_{Pel}} - \overline{\Gamma_{Erg}}|/\overline{\Gamma_{Erg}}$ 24

2 Dimensionless mean pressure drop across a bed of monodisperse particles : effect of particle shape from spheres to cylinders, where $e_\Theta(i,j) = 100(\overline{\Theta_i} - \overline{\Theta_j})/\overline{\Theta_j}$ 25

3 Dimensionless mean pressure drop across a bed of poly-disperse spheres for the two poly-disperse beds considered S234-25/50/25 and S234-40/20/40 and comparison with the correlation suggested in [2,27], where $e_\Gamma(Pel, VdH) = 100(\overline{\Gamma_{Pel}} - \overline{\Gamma_{VdH}})/\overline{\Gamma_{VdH}}$ 26

4 Dimensionless mean pressure drop across a bed of poly-disperse cylinders for the two poly-disperse beds considered L234-25/50/25 and L234-40/20/40 and comparison with the correlation suggested in [2,27] for spheres in which $< d >$ and the function $1-\phi)y_i + \phi y_i^2 + 0.064(1-\phi)y_i^3$ is evaluated with equivalent sphere diameters (i.e. with the same weighting as for S234), where $e_\Gamma(Pel, VdH) = 100(\overline{\Gamma_{Pel}} - \overline{\Gamma_{VdH}})/\overline{\Gamma_{VdH}}$ 27

Type	a_r	φ_p	$\bar{\epsilon}$	$\overline{\Gamma_{Pel}}$	$\overline{\Gamma_{Erg}}$	$e_\Gamma(Pel, Erg)$
L2	1.25	0.8689	0.391	1092	1147	+4.8
L3	1.875	0.8389	0.412	933	969	+3.7
L4	2.5	0.8046	0.434	767	818	+6.2

Table 1
Dimensionless mean pressure drop across a bed of mono-disperse cylinders for the three classes considered L2, L3, L4 and comparison with the modified Ergun correlation suggested in [39], where $e_\Gamma(Pel, Erg) = 100|\overline{\Gamma_{Pel}} - \overline{\Gamma_{Erg}}|/\overline{\Gamma_{Erg}}$

Class	$\overline{\epsilon_{S_i}}$	$\overline{\epsilon_L}$	$e_\epsilon(L,S)$	$\overline{\Gamma_{Pel,S}}$	$\overline{\Gamma_{Pel,L}}$	$e_\Gamma(L,S)$	$\Gamma_{Pel,S(\overline{\epsilon_L})}$	$e_\Gamma(L,S(\overline{\epsilon_L}))$
2	0.386	0.391	1.3	1126	1092	−3.0	1085	+0.6
3	0.392	0.412	5.1	1090	933	−14.4	865	+7.3
4	0.397	0.434	9.3	1010	767	−24.1	685	+10.7

Table 2
Dimensionless mean pressure drop across a bed of mono-disperse particles : effect of particle shape from spheres to cylinders, where $e_\Theta(i,j) = 100(\overline{\Theta_i} - \overline{\Theta_j})/\overline{\Theta_j}$

Type	$\overline{\Gamma_{Pel}}$	$\overline{\phi_{poly}}$	$< d >$	$y_{i\in<2:4>}$	$x_{i\in<2:4>}$	$\overline{\Gamma_{VdH}}$	$e_\Gamma(Pel, VdH)$
S234-25/50/25	1149	0.6139	0.002272	0.868	0.167	1174	-2.15
				0.995	0.501		
				1.092	0.332		
S234-40/20/40	1147	0.6127	0.002278	0.865	0.267	1152	-0.3
				0.992	0.201		
				1.088	0.532		

Table 3
Dimensionless mean pressure drop across a bed of poly-disperse spheres for the two poly-disperse beds considered S234-25/50/25 and S234-40/20/40 and comparison with the correlation suggested in [2,27], where $e_\Gamma(Pel, VdH) = 100(\overline{\Gamma_{Pel}} - \overline{\Gamma_{VdH}})/\overline{\Gamma_{VdH}}$

Type	$\overline{\Gamma_{Pel}}$	$\overline{\phi_{poly}}$	$< d >$	$y_{i\in<2:4>}$	$x_{i\in<2:4>}$	$\overline{\Gamma_{VdH}}$	$e_\Gamma(Pel, VdH)$
L234-25/50/25	1199	0.5785	0.002272	0.868	0.167	1248	+3.9
				0.995	0.501		
				1.092	0.332		
L234-40/20/40	1371	0.5847	0.002278	0.865	0.267	1337	−2.5
				0.992	0.201		
				1.088	0.532		

Table 4
Dimensionless mean pressure drop across a bed of poly-disperse cylinders for the two poly-disperse beds considered L234-25/50/25 and L234-40/20/40 and comparison with the correlation suggested in [2,27] for spheres in which $< d >$ and the function $1-\phi)y_i+\phi y_i^2+0.064(1-\phi)y_i^3$ is evaluated with equivalent sphere diameters (i.e. with the same weighting as for S234), where $e_\Gamma(Pel, VdH) = 100(\overline{\Gamma_{Pel}} - \overline{\Gamma_{VdH}})/\overline{\Gamma_{VdH}}$

List of Figures

1 Packing of different shapes in a cylindrical container with Grains3D 30

2 DLM/FD points on the staggered grid for a 2D circular cylinder: (a) the set of interior and boundary points, (b) in blue the 4-point multi-linear interpolation stencil and in red the 9-point Q2 outwards-oriented quadratic interpolation stencil for the x velocity component 31

3 Comparison of PeliGRIFF results with the analytical solution of Zick & Homsy for the case of the flow through an infinite structured cubic-centered array of spheres at $\mathcal{R}e = 0$: (a) evolution of the drag coefficient K as a function of the solid volume fraction ϕ, (b) convergence of the computed solution as a function of the number of points per particle diameter N_p for increasing solid volume fraction ϕ 32

4 Stokes flow through a random array of spheres: (a) porous media structure and flow field at $\phi = 0.524$ (front half domain: dimensionless velocity vectors, behind half domain: particles layout, cut plane: contours of dimensionless velocity magnitude, from 0 (blue) to maximum (red)), (b) mean drag coefficient K on a sphere, comparison with other works of the literature 33

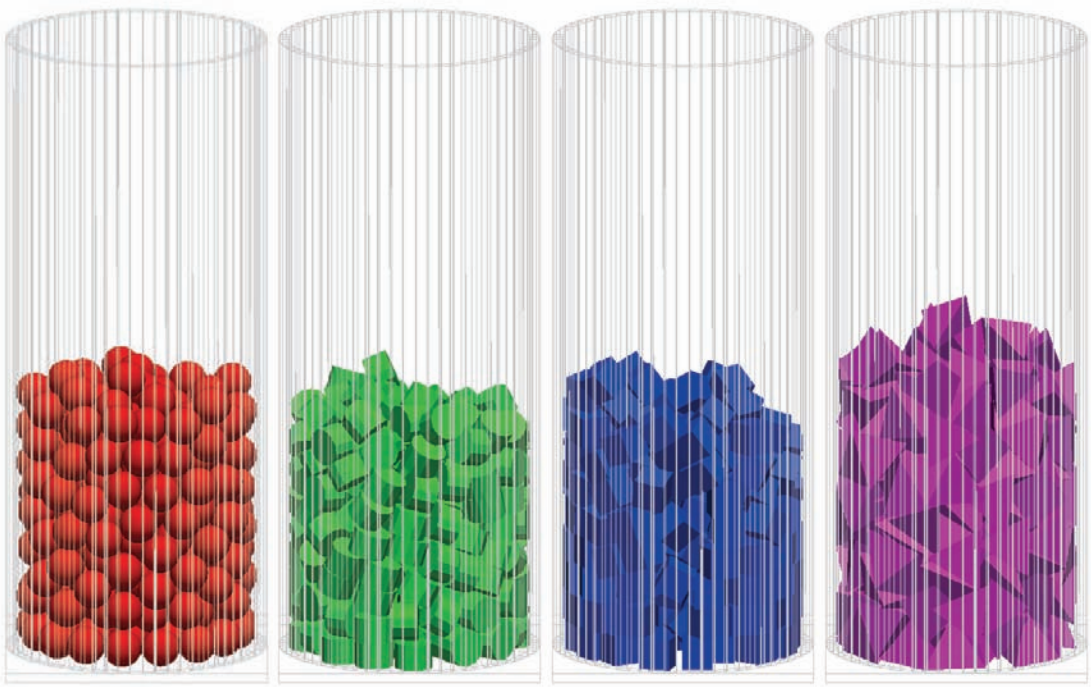
5 Flow though a semi-infinite structured array of spheres at $\mathcal{R}e = 18$: (a) flow field (streamwise velocity component, in m/s), (b) convergence of the computed solution as a function of the number of points per particle diameter N_p 34

6 A small bed of mono-disperse cylinders to assess the accuracy of the computed solution : (a) domain and boundary conditions (Note: transparent particles are periodic particles), (b) convergence of the computed solution as a function of the number of points per cylinder diameter N_p 35

7 Packed beds of cylinders: (a) blue particles L2, (b) grey particles L3, (c) yellow particles L4, (d) L234-25/50/25 distribution, (e) L234-40/20/40 distribution (transparent particles = periodic particles) 36

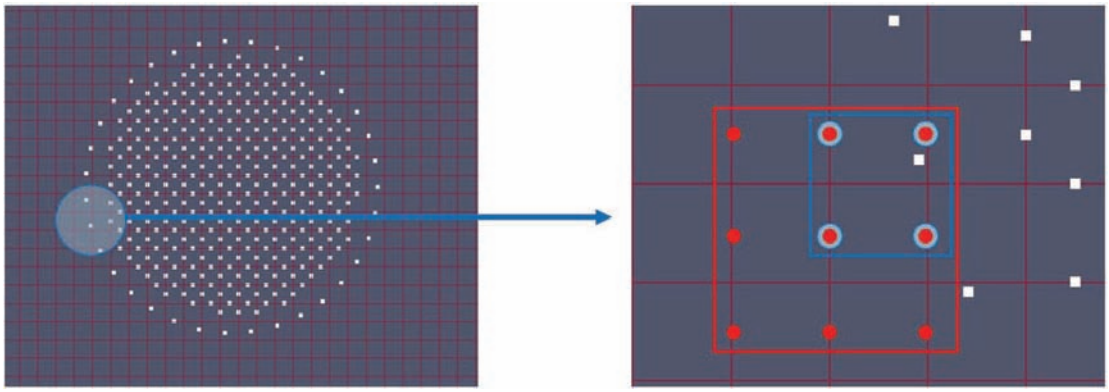
8 Comparison of $\Gamma = \frac{\Delta P^*}{L^*} / \frac{\eta^* U^*}{d^{*2}}$ obtained by PeliGRIFF for a bed of mono-disperse spheres as a function of the porosity ϵ with Ergun's and Carman's correlations 37

9 Pressure drop through a bed of mono-disperse cylinders of varying aspect ratio: (a) $\Gamma = \frac{\Delta P^*}{L^*} / \frac{\eta^* U^*}{d_{es}^{*2}}$ as a function of the porosity ϵ, comparison between results computed with PeliGRIFF and the modified Ergun's correlation in the viscous regime, (b) Variation of constant A as a function of the sphericity φ_p, correlation fitted using results computed with PeliGRIFF and the one suggested in [39] 38



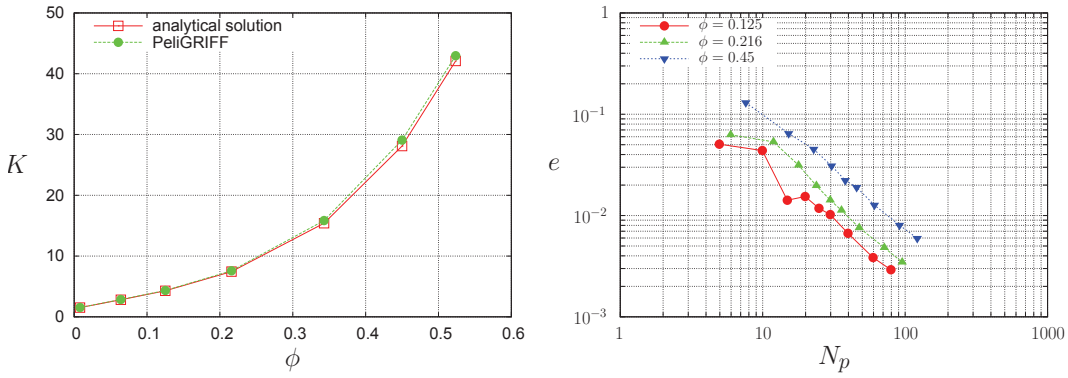
(a) Sphere (b) Cylinder (c) Cube (d) Tetrahedron

Figure 1. Packing of different shapes in a cylindrical container with Grains3D



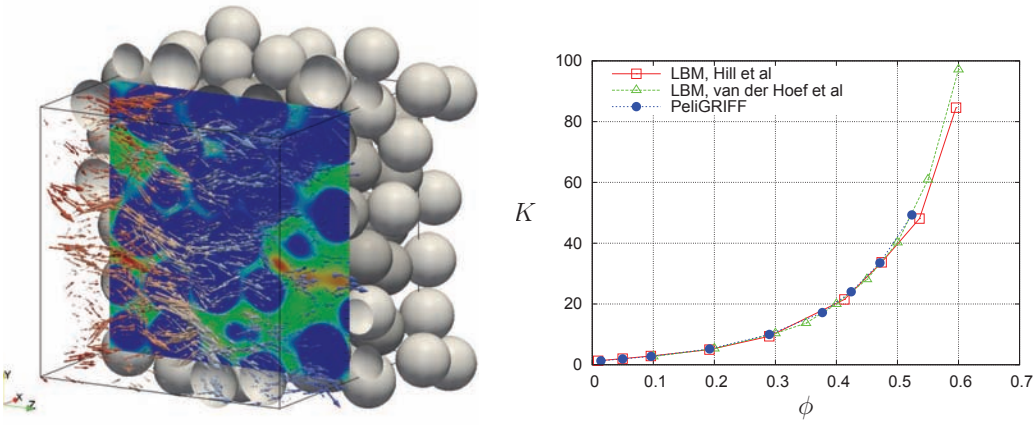
(a) (b)

Figure 2. DLM/FD points on the staggered grid for a 2D circular cylinder: (a) the set of interior and boundary points, (b) in blue the 4-point multi-linear interpolation stencil and in red the 9-point Q2 outwards-oriented quadratic interpolation stencil for the x velocity component



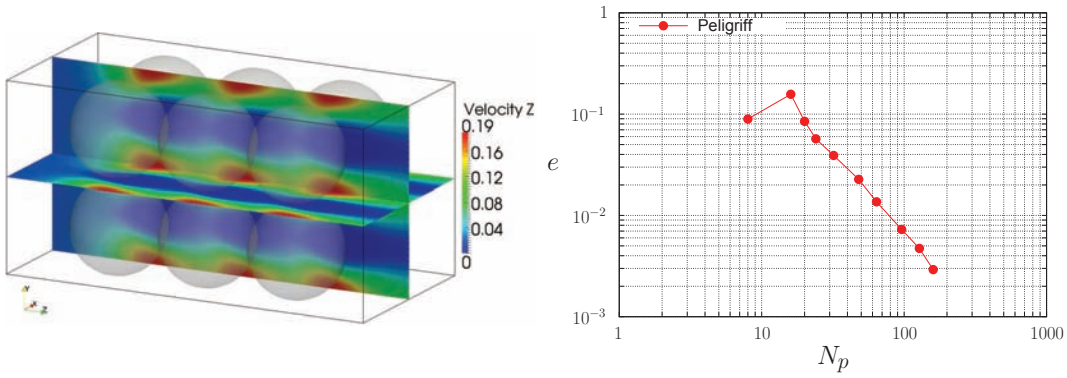
(a) (b)

Figure 3. Comparison of PeliGRIFF results with the analytical solution of Zick & Homsy for the case of the flow through an infinite structured cubic-centered array of spheres at $\mathcal{R}e = 0$: (a) evolution of the drag coefficient K as a function of the solid volume fraction ϕ, (b) convergence of the computed solution as a function of the number of points per particle diameter N_p for increasing solid volume fraction ϕ



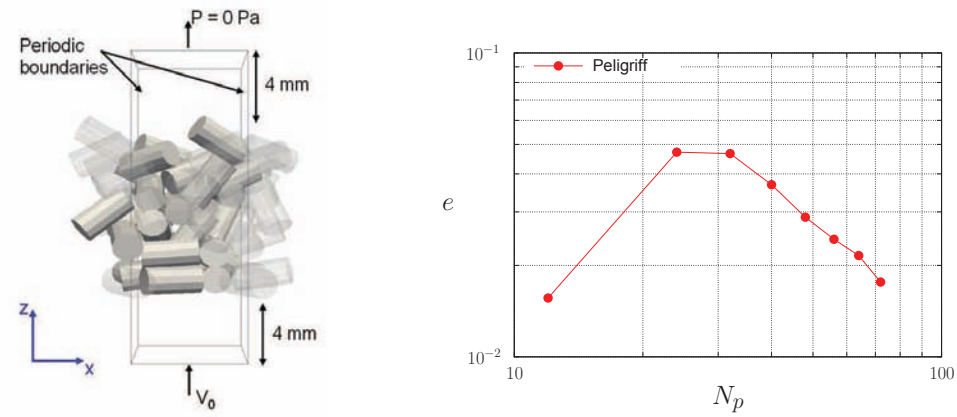
(a) (b)

Figure 4. Stokes flow through a random array of spheres: (a) porous media structure and flow field at $\phi = 0.524$ (front half domain: dimensionless velocity vectors, behind half domain: particles layout, cut plane: contours of dimensionless velocity magnitude, from 0 (blue) to maximum (red)), (b) mean drag coefficient K on a sphere, comparison with other works of the literature



(a) (b)

Figure 5. Flow though a semi-infinite structured array of spheres at $\mathcal{R}e = 18$: (a) flow field (streamwise velocity component, in m/s), (b) convergence of the computed solution as a function of the number of points per particle diameter N_p



(a) (b)

Figure 6. A small bed of mono-disperse cylinders to assess the accuracy of the computed solution : (a) domain and boundary conditions (Note: transparent particles are periodic particles), (b) convergence of the computed solution as a function of the number of points per cylinder diameter N_p

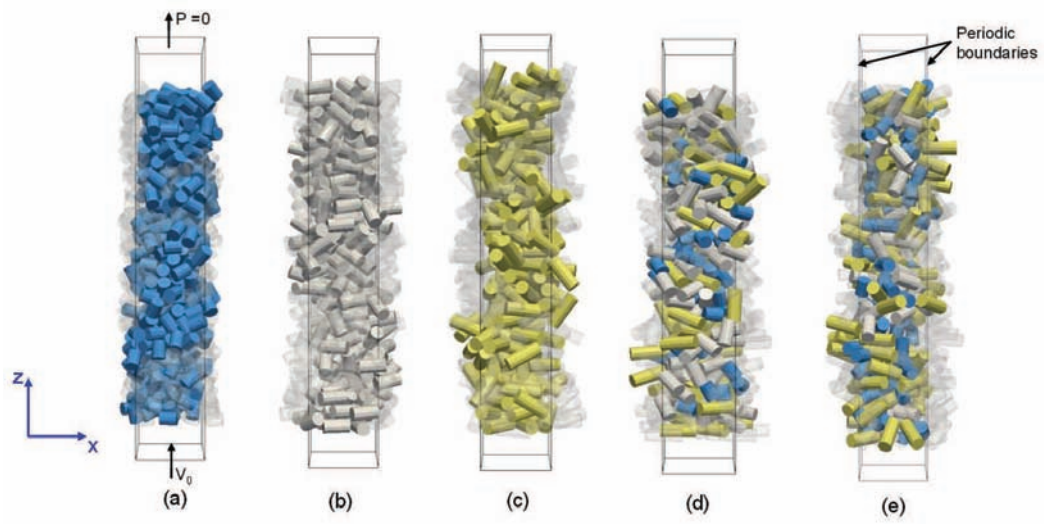


Figure 7. Packed beds of cylinders: (a) blue particles L2, (b) grey particles L3, (c) yellow particles L4, (d) L234-25/50/25 distribution, (e) L234-40/20/40 distribution (transparent particles = periodic particles)

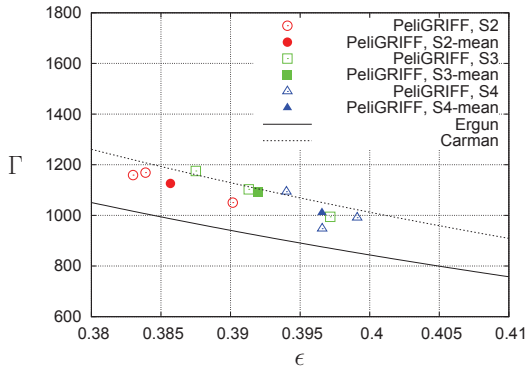
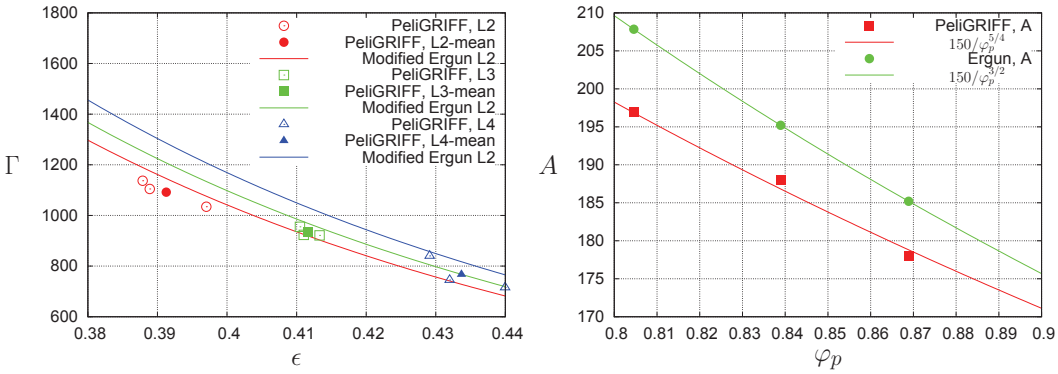


Figure 8. Comparison of $\Gamma = \frac{\Delta P^*}{L^*} / \frac{\eta^* U^*}{d^{*2}}$ obtained by PeliGRIFF for a bed of mono-disperse spheres as a function of the porosity ϵ with Ergun's and Carman's correlations



(a) (b)

Figure 9. Pressure drop through a bed of mono-disperse cylinders of varying aspect ratio: (a) $\Gamma = \frac{\Delta P^*}{L^*} / \frac{\eta^* U^*}{d_{es}^{*2}}$ as a function of the porosity ϵ, comparison between results computed with PeliGRIFF and the modified Ergun's correlation in the viscous regime, (b) Variation of constant A as a function of the sphericity φ_p, correlation fitted using results computed with PeliGRIFF and the one suggested in [39]