

Chapitre 3

Populations de particules

{chap:populations}

3.1 Introduction

{sec:populations-introduction}

Une cuve d'électrolyse d'aluminium industrielle est caractérisée par le fait que plusieurs phénomènes physiques entrent en jeu et interagissent sur à des échelles similaires. Tout d'abord, le courant électrique continu qui traverse une cuve d'électrolyse industrielle moderne est de l'ordre de 500 kA à 1 MA. Une telle intensité de courant génère d'une part un champ d'induction magnétique qui affecte l'opération de la cuve, mais également de ses voisines de série. D'autre part, la chute de potentiel d'environ 4 V à travers les électrodes et les fluides [Hau95] provoque la dissipation de grandes quantités d'énergie sous forme thermique. Cette production chaleur est nécessaire car elle permet de maintenir le bain électrolytique sous forme liquide. Cependant, une surchauffe trop importante est néfaste pour une cuve, qui risque alors de subir une usure et une fin de vie prématurée. + perte d'énergie !

Au niveau de la cathode en carbone qui forme le fond de la cuve, la réaction d'électrolyse



produit de l'aluminium sous forme métallique. L'aluminium métallique, qui est peu soluble dans l'électrolyte, est liquide à la température d'opération d'une cuve et de densité légèrement supérieure à celle de l'électrolyte. Il forme une couche de métal en fusion au fond de la cuve. C'est alors la surface du métal en fusion qui joue véritablement le rôle de cathode sur laquelle a lieu réaction d'électrolyse.

Le bain électrolytique et le métal liquide sont traversés par l'ensemble du courant électrique et, en présence du champ d'induction magnétique, subissent une force de Lorentz qui les met en mouvement. L'écoulement dans les fluides est bénéfique. Il permet de transporter la chaleur à l'extérieur du système plus rapidement que par conduction pure, homogénéise la distribution de la température et la composition chimique dans l'ensemble du bain et facilite le transport et la dispersion des particules d'alumine injectées à intervalles réguliers dans le bain.

Cependant, il est crucial que l'interface bain-métal soit aussi stable que possible. Pour des raisons d'économie d'énergie, la distance moyenne entre le fond des anodes¹ et l'interface est réduite autant que possible. Dans une cuve moderne, cette distance est de l'ordre de 2 à 4 cm. Si les écoulements dans les fluides deviennent trop rapides, des turbulences se

1. Le fond des anodes est définie comme la partie de la surface des anodes faisant face vers le bas, en direction de la cathode.

forment et viennent perturber la forme de l'interface. De plus, le système magnétohydrodynamique formé par le circuit électrique, le champ d'induction magnétique et les deux fluides peut devenir, sous certaines conditions, physiquement instable, c'est-à-dire que de petites perturbations du système sont amplifiées par elles-mêmes. De telles instabilités affectent la forme de l'interface bain-métal, et leur occurrence présente un défi qui a déjà fait l'objet de nombreux travaux de recherche. Le lecteur intéressé se référera par exemple à [DFR98a], [Sne85] ou encore [MR96].

Le métal liquide ayant une conductivité supérieure à celle du bain électrolytique ([WPT92], [Apf03]), le contact entre les anodes et la nappe de métal crée un court-circuit. Les court-circuits diminuent le rendement du procédé et peuvent créer des défauts à la surface des anodes qui affectent l'opération de la cuve à long terme.

De l'alumine doit être injectée régulièrement dans le bain électrolytique, sous forme de poudre, pour compléter l'alumine dissoute consommée par la réaction d'électrolyse. Puisque la majeure partie du bain est recouverte par les blocs anodiques et en raison de la présence de la croûte qui protège sa surface libre, l'injection de poudre d'alumine ne peut avoir lieu que en quelques points d'injection distribués le long du canal central. Dans une cuve industrielle, le nombre de points d'injection est typiquement compris entre 4 et 6. La dispersion et le transport des particules d'alumine et de la concentration d'alumine qui résulte de leur dissolution dépend crucialement de la présence et de la force de l'écoulement dans le bain électrolytique. De nombreux travaux de recherche ont pour objectif la modélisation et l'approximation numérique des écoulements dans le bain et le métal d'une cuve d'électrolyse industrielle. Dans ce travail, nous utiliserons les résultats de S. Pain [Pai06], G. Steiner [Ste09] et J. Rochat [Roc16] à cette fin. Le modèle d'écoulement proposé dans [Ste09] consiste à considérer un système couplé formé par le problème du potentiel électrique dans les conducteurs, par les équations de Maxwell dans le vide, dans le caisson ferromagnétique, dans le bain électrolytique et dans le métal, et finalement par des équations de Navier-Stokes dans chaque fluide. Dans ce problème, l'interface bain-métal est une inconnue. Les écoulements dans les fluides sont turbulents. Les structures des écoulements dont la taille est inférieure à la résolution de la grille de discrétisation sont modélisés par un modèle de longueur de mélange de Smagorinski [Roc16]. Dans ce chapitre nous utiliserons ce modèle, implémenté dans le logiciel Alucell, pour obtenir le domaine Ω occupé par le bain d'une cuve d'électrolyse industrielle, une approximation de la vitesse d'écoulement stationnaire u_h et une approximation de la densité de courant électrique stationnaire j_h dans Ω .

Ce travail porte sur la modélisation des particules d'alumine injectées dans le bain et leur dissolution. On suivra l'approche adoptée par T. Hofer [Hof11] et on représentera les particules sous la forme d'une distribution en taille et en espace n_p . Cette population évolue d'une part dans le bain par le biais de la vitesse d'écoulement u de celui-ci, et d'autre part par la dissolution des particules au cours du temps, en fonction de la concentration d'alumine locale dans le bain et de sa température telle que décrite par la vitesse de dissolution f introduite dans la section 2.3. En plus de la densité de particule n_p , nous modéliserons la concentration d'alumine dissoute c et la température Θ dans le bain, puisque la dissolution des particules en dépend.

Dans la section 3.2, nous introduisons les équations qui décrivent l'évolution de la densité de particules n_p , la concentration d'alumine c et la température du bain Θ . Dans la section 3.3 la discrétisation en temps du système formé par les équations pour n_p , c et Θ introduites dans 3.2. Finalement, dans la section 3.4 nous considérons et discutons l'application du modèle de transport et dissolution de particules d'alumine au cas d'une cuve d'électrolyse industrielle AP32.

3.2 Modèle de transport et dissolution d'alumine

(avec populations model)

Soit $\Omega \subset \mathbb{R}^3$ un domaine ouvert donné, occupé par le bain électrolytique. Ce bain est animé par une vitesse d'écoulement $u : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^3$ stationnaire donnée et telle que $\operatorname{div} u = 0$ dans Ω . On note T le temps final. Dans ce chapitre on note $c(t, x)$ la concentration d'alumine dissoute en mol m^{-3} et $\Theta(t, x)$ la température dans le bain en Kelvin à l'instant $t \in [0, T]$ et au lieu $x \in \Omega$.

et $\vec{u} \cdot \vec{n} = 0$
sur le bord
de Ω , où
 \vec{n} est la
normale
unitaire

à l'endroit

*

Vitesse de transport La force de gravité a pour effet d'entraîner les particules d'alumine vers le fond de la cuve. Nous avons vu dans la section 2.5 que le temps caractéristique nécessaire pour qu'une particule typique atteigne d'une part sa vitesse terminale de chute et d'autre part la vitesse de l'écoulement du bain est de l'ordre de quelques millisecondes. La vitesse maximale de l'écoulement stationnaire dans une cuve d'électrolyse d'aluminium étant de l'ordre de 0.1 m s^{-1} , cette période transitoire s'étend sur des distances d'environ $1 \times 10^{-4} \text{ m}$, ce qui est largement inférieure à la résolution spatiale des grilles que l'on utilise dans des calculs industriels. Par conséquent, nous ferons deux hypothèses simplificatrices dans le cadre du modèle de transport et dissolution de particules d'alumine. Premièrement, nous supposons que le champ de gravité a pour effet de transporter les particules vers le fond de la cuve. On prendra comme vitesse de transport la vitesse terminale de chute (2.70) d'une particule soumise à la force de traînée de Stokes. Cette force dépend du rayon des particules. Ce transport gravitationnel des particules, qui a lieu dans l'ensemble du bain, est modélisé par un champ $w(r) : \Omega \times [0, \infty) \rightarrow \mathbb{R}^3$ défini par

à noter
(on s'en va elle
est complètement
distante)

stationnaire

**

$$w(r) = -\frac{2g(\rho_{Al} - \rho_e)}{9\mu} r^2 \hat{e}_3$$

Remarque:

Si $\mu \sim 10^{-3} \Rightarrow w \sim 1 \text{ cm/s}$
(3.2)
Si $\mu \sim 1 \Rightarrow w \sim 10 \mu\text{m/s}$

en vertu de (2.70). On a noté \hat{e}_3 le vecteur unitaire vertical dirigé vers le haut. Clairement, le champ w est tel que $\operatorname{div} w = 0$ dans Ω . Deuxièmement, nous supposons que les particules suivent exactement les lignes de courant du champ de transport $u + w$ dans le domaine Ω . Par ailleurs, la concentration d'alumine dissoute c et la température du bain électrolytique Θ seront transportés par la vitesse d'écoulement u et diffusés?

*

de nombres

Populations de particules Dans une cuve industrielle, de l'alumine en poudre doit être injectée à intervalles réguliers dans le bain. Nous modélisons ces injections sous la forme d'une série d'événements instantanés, successifs dans le temps. Soient K le nombre total d'injections, et un ensemble de K réels τ_k tels que $0 \leq \tau_k < T \forall k$, les instants auxquels surviennent chaque injection. Soient pour toute injection $k = 1, 2, \dots, K$ la distribution initiale de particule $S_k : \Omega \times \mathbb{R}_+ \rightarrow \mathbb{R}$ issue de l'injection k , supposée donnée.

soit

*

*

où les τ_k
représentent

On note $n_p^k(t, x, r)$, $k = 1, 2, \dots, K$ la densité en taille et en espace de particule issues de l'injection k dans le bain électrolytique à l'instant $t \in [0, T]$. Autrement dit, la quantité $n_p^k(t, x, r) dx dr$ représente le nombre de particules à l'instant t , dans le volume infinitésimal dx autour du point $x \in \Omega$ et dont la taille est comprise dans l'intervalle $[r, r + dr]$. Soit $\Theta_{\text{Lat}} \geq 0$ le temps de latence avant que les particules ne commencent à se dissoudre suite à leur injection dans le bain. Ce temps de latence a fait l'objet d'une discussion dans la section 2.2. Chaque population de particule n_p^k , $k = 1, 2, \dots, K$ satisfait $x \in \Omega$, $r \in \mathbb{R}_+$

*

*

(x et x+dx)

4

les équations

lorsque $x \in \Omega, r \in \mathbb{R}^+$:

$$n_p^k(t, x, r) = 0,$$

$$n_p^k(\tau_k, x, r) = S_k(x, r),$$

$$\frac{\partial n_p^k}{\partial t} + (u(x) + w(r)) \cdot \nabla n_p^k = 0,$$

$$\frac{\partial n_p^k}{\partial t} + (u(x) + w(r)) \cdot \nabla n_p^k + \frac{\partial}{\partial r} (f(r, c, \Theta) n_p^k) = 0,$$

$$\tau_k < t \leq \tau_k + \Theta_{\text{Lat}}, \quad (3.5)$$

$$\tau_k + \Theta_{\text{Lat}} < t \leq T. \quad (3.6)$$

où l'opérateur $\nabla = (\partial_{x_1}, \partial_{x_2}, \partial_{x_3})^t$. La vitesse de dissolution f qui intervient dans l'équation (3.6) a déjà été définie dans la section 2.3 par l'expression (2.50). Les équations (3.5) et (3.6) sont complétées par une condition de bord entrant. Plus précisément, soit Γ^- la partie du bord définie par

 $\partial\Omega$ de Ω

$$\Gamma^- = \{x \in \partial\Omega \mid \nu \cdot (u + w) < 0\}.$$

ou avec $\vec{u} \cdot \vec{n} = 0$?

$$\{eq:up-bc\}$$

$$(3.7)$$

$$\vec{n} = \vec{v}?$$

Ici, ν est le vecteur normal unitaire extérieur à la surface $\partial\Omega$. La condition aux limites sur le bord entrant s'écrit alors pour tout $k = 1, 2, \dots, K$ et $t > \tau_k$

$$\frac{\partial n_p^k}{\partial \nu}(t, x) = 0, \quad x \in \Gamma^-.$$

?

$$(3.8)$$

Question?

La densité totale de particules est donnée par

au temps $t \in [0, T]$, à l'endroit $x \in \Omega$ en fonction de r

$$n_p(t, x, r) = \sum_{k=1}^K n_p^k(t, x, r). \quad \forall t \in [0, T], x \in \Omega \text{ et } r > 0. \quad (3.9)$$

Les conditions initiales de l'eq (3.6) sont celles obtenues de (35) en $t = \tau_k + \Theta_{\text{Lat}}$.

Remarque 5. Les quantités n_p^k introduites ici sont similaires au champ n_p décrit dans la section 2.4, à ceci près que les champs n_p^k sont des fonctions du temps t et du rayon r des particules, mais aussi du lieu x dans le domaine Ω occupé par le bain électrolytique.

Consommation de l'alumine dissoute La concentration d'alumine dissoute est consommée par la réaction d'électrolyse. Si I est le courant électrique total imposé traversant la cuve, le débit total d'alumine dissoute consommée M en mols^{-1} est proportionnel à I , et s'écrit c'est-à-dire que

$$M = \frac{I[\text{Al}_2\text{O}_3]}{6F} \quad (3.10)$$

où $F = 96485.33 \text{ C mol}^{-1}$ est la constante de Faraday et $[\text{Al}_2\text{O}_3] = 0.102 \text{ kg mol}^{-1}$ la masse molaire de l'alumine. Le facteur 6 provient du fait qu'il faut 6 électrons pour réduire une molécule d' Al_2O_3 , et produire deux molécules d'aluminium métallique Al.

On suppose que la consommation d'alumine dissoute qui a lieu dans le bain électrolytique est proportionnelle à la densité de courant électrique locale $j : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^3$. On définit alors le terme source de la concentration d'alumine \dot{q}_1 associé à la consommation par la réaction d'électrolyse

$$\dot{q}_1(x) = -\frac{I[\text{Al}_2\text{O}_3]}{6F} \frac{|j(x)|}{\int_{\Omega} |j(x)| dx} \quad (3.11)$$

de sorte à avoir la consommation totale sur Ω

$$\int_{\Omega} \dot{q}_1(x) dx = -M. \quad \frac{I[\text{Al}_2\text{O}_3]}{6F} \quad (3.12)$$

(1) Consommation d'alumine dissoute signifie que la molécule d' Al_2O_3 a été dissoute selon la réaction $\text{Al}_2\text{O}_3 \rightarrow 2\text{Al}^{6+} + \frac{3}{2}\text{O}_2^{6-}$?

source négative = disparition

$$\bar{k}(t) = \max_{1 \leq k \leq K} \{ k : \tau_k + \Theta_{\text{Lat}} < t \}$$

3.2. MODÈLE DE TRANSPORT ET DISSOLUTION D'ALUMINE

45

Dissolution des particules d'alumine La masse perdue par la population de particules d'alumine n_p vient contribuer à la concentration d'alumine dissoute. On définit \dot{q}_2 le terme source de la concentration qui représente l'apport dû à la dissolution des particules de la manière suivante. Si $t \in [0, T]$, on note $\bar{k}(t)$ le plus grand entier tel que $\tau_{\bar{k}} + \Theta_{\text{Lat}} < t$. Alors on définit

$$\dot{q}_2(t, x) = - \sum_{k=1}^{\bar{k}(t)} \frac{4\pi\rho_{\text{Al}}}{[\text{Al}_2\text{O}_3]} \int_{\mathbb{R}_+} n_p^k(t, x, r) f(r, c(t, x), \Theta(t, x)) r^2 dr. \quad (3.13)$$

L'ensemble des indices $\{k\}_{k=1}^{\bar{k}(t)}$ représente l'ensemble des population de particules n_p^k qui se dissolvent dans le bain à l'instant $t \in [0, T]$.

Concentration d'alumine dissoute La concentration d'alumine dissoute c est transportée dans le bain par la vitesse d'écoulement u , mais est de plus sujette à une diffusion liée d'une part à l'agitation moléculaire, et d'autre part aux turbulences de l'écoulement. Soit $D_c : \Omega \rightarrow \mathbb{R}_+^*$ la diffusivité de la concentration d'alumine dissoute dans le bain, supposée donnée. Alors concentration c doit satisfaire l'équation

$$\frac{\partial c}{\partial t}(t, x) + u(x) \cdot \nabla c(t, x) - D_c(x) \Delta c(t, x) = \dot{q}_1(x) + \dot{q}_2(t, x), \quad \forall x \in \Omega, t \in (0, T). \quad (3.14)$$

Puisque qu'il ne peut y avoir de flux de masse d'alumine à travers le bord du domaine Ω , la concentration doit satisfaire la condition aux limites de Neumann homogène

$$\frac{\partial c}{\partial \nu}(t, x) = 0 \quad \forall x \in \partial\Omega, t \in [0, T]. \quad (3.15)$$

Termes source de la température du bain On fait l'hypothèse que le bain électrolytique est isolé thermiquement, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de flux d'énergie thermique à travers le bord du domaine occupé par le bain.

L'énergie thermique du bain provient de trois sources distinctes. Premièrement, les particules d'alumine sont injectées avec une température $\Theta_{\text{Inj}} < \Theta$. De l'énergie thermique est prélevée dans le bain pour rétablir l'équilibre thermique entre le bain et les particules. On note $p_1(t, x)$ la densité de puissance thermique extraite du bain pour réchauffer les particules, que l'on définit par

$$p_1(t, x) = -(\Theta_{\text{Init}} - \Theta_{\text{Inj}}) \sum_{k=1}^K \delta(t - \tau_k) \int_{\mathbb{R}_+} C_{\text{p,Al}} \rho_{\text{Al}} \frac{4}{3} \pi r^3 S_k(x, r) dr \quad (3.16)$$

où δ est une masse de Dirac. Dans (3.16), Θ_{Init} est ..., $C_{\text{p,Al}}$ et S_k sont, rappelés-le

Deuxièmement, la réaction de dissolution de la poudre d'alumine est endothermique. On note $p_2(t, x)$ la densité de puissance thermique utilisée par la réaction, que l'on définit pour tout $x \in \Omega$ et $t \in [0, T]$ par

$$p_2(t, x) = -\Delta H_{\text{Diss}} \dot{q}_2(t, x), \quad (3.17)$$

où ΔH_{Diss} est l'enthalpie molaire nécessaire à la dissolution de l'alumine. On rappelle que $\dot{q}_2(t, \cdot)$ est le débit molaire par unité de volume d'alumine dissoute à l'instant t .

Et troisièmement, la résistivité électrique de l'électrolyte engendre provoque la conversion d'une partie de l'énergie électrique en énergie thermique par effet Joule. Cette source

d'énergie thermique p_3 par effet Joule dépend de la densité de courant stationnaire j et s'écrit

$$p_3(x) = \sigma (j \cdot j). \quad (3.18)$$

où le nombre réel $\sigma > 0$ est la conductivité du bain que l'on suppose constante dans tout Ω .

Remarque 6. En réalité, la puissance nécessaire à réchauffer les particules $p_1(t, x)$ est proportionnelle à $\Theta(t, x) - \Theta_{\text{Inj}}$. Cependant, dans (3.16) on utilise la température initiale du bain Θ_{Init} à la place de $\Theta(t, x)$, ce qui revient à négliger l'écart entre $\Theta(t, x)$ et Θ_{Init} , qui est faible devant $\Theta_{\text{Init}} - \Theta_{\text{Inj}}$.

Température du bain Tout comme la concentration d'alumine, la température du bain électrolytique Θ est transportée par la vitesse d'écoulement u et diffusée dans le bain. La diffusion est due à la diffusion thermique au niveau moléculaire, et à une diffusion liée aux turbulences de l'écoulement. Soit $D_\Theta : \Omega \rightarrow \mathbb{R}_+^*$ la diffusivité de la température dans le bain, supposée donnée. Comme précédemment on a noté ρ_e , $C_{p,e}$ la densité et la chaleur spécifique de du bain électrolytique. Alors la température Θ doit satisfaire l'équation

$$\frac{\partial \Theta}{\partial t}(t, x) + u(x) \cdot \nabla \Theta - \operatorname{div}(D_\Theta(x) \nabla \Theta(t, x)) = \frac{1}{\rho_e C_{p,e}} \sum_{n=1}^3 p_n(t, x), \quad \forall x \in \Omega, t \in (0, T). \quad (3.19)$$

De plus, et conformément à l'hypothèse d'isolation thermique, la température Θ doit satisfaire une condition de Neumann homogène

$$\frac{\partial \Theta}{\partial \nu}(t, x) = 0, \quad \forall x \in \partial \Omega, t \in [0, T]. \quad (3.20)$$

Remarque 7: cf des page précédente.

Formulation du problème Le problème de transport et dissolution d'alumine en fonction de la température consiste à chercher des fonctions $n_p^k : (0, T) \times \Omega \times \mathbb{R}_+ \rightarrow \mathbb{R}$, $c : (0, T) \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}$ et $\Theta : (0, T) \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}$ qui satisfont les équations (3.3) à (3.6), (3.14) et (3.19) ainsi que les conditions aux limites (3.7), (3.15) et (3.20), auxquelles on ajoutera des conditions initiales appropriées.

La section suivante traite de la discrétisation en temps de ce système d'équations.

3.3 Discrétisation en temps

3.4 Dissolution de poudre d'alumine dans une cuve industrielle