

JR

05.02.2018

Chapitre 2

Particules d'alumine dans un bain électrolytique

{chap:particles}

2.1 Introduction

{see:particle-introduction}

Au cours de l'opération d'une cuve d'électrolyse, de l'oxyde d'aluminium doit être injecté dans le bain électrolytique afin de compenser l'alumine dissoute qui est consommée par la réaction d'électrolyse.

En raison de la faible surchauffe¹ du bain, la surface de celui-ci est recouverte, en tout temps, par une croûte solide. Cette croûte est principalement constituée par de l'électrolyte solidifié. Sa présence est désirable, elle joue le rôle d'isolant thermique, protège la structure supérieure de la cuve des éclaboussures et facilite la canalisation des émanations gazeuses.

Cependant, la présence de la croûte limite l'accès à la surface du bain, et en particulier, l'injection d'alumine nécessite la mise en place d'un mécanisme qui permette de la percer. Ces dispositifs appelés piqueurs, percent mécaniquement des ouvertures circulaires dans la croûte en plusieurs endroits et à intervalle régulier, et maintiennent des accès libres à la surface du bain.

Ces accès permettent à des injecteurs de déposer, à la surface du bain, des doses de poudre d'oxyde d'aluminium à intervalles réguliers. Cette poudre est constituée de particules grossièrement sphériques, sous forme cristalline et dont la température Θ_{inj} se situe entre 100°C et 150°C. Le diamètre des particules est pour la plupart compris entre 20µm et 100µm. Dans une situation idéale, après leur injection dans le bain, les particules se dispersent dans celui-ci et se dissolvent peu-à-peu tout en étant transportées par l'écoulement des fluides. Cette alumine dissoute vient contribuer à la concentration d'alumine dissoute. Les conditions d'exploitation des cuves d'électrolyse modernes sont de plus en plus dépendantes d'une dissolution rapide et uniforme des particules dans l'électrolyte. Malheureusement, dans un système industriel réel, de nombreux phénomènes viennent entraver le bon déroulement de ce processus.

Par exemple, il arrive fréquemment que les points d'injections aménagés par les piqueurs se bouchent [Dio+17]. Les raisons précises pour lesquelles un accès se bouche sont encore mal comprises. Une telle situation, une fois identifiée, nécessite de prendre des mesures particulières pour permettre à l'alumine d'atteindre l'électrolyte. Ensuite, lorsqu'une

1. La surchauffe du bain électrolytique est définie comme la différence entre la température du bain et la température du liquidus Θ_{Liq} .

18 CHAPITRE 2. PARTICULES D'ALUMINE DANS UN BAIN ÉLECTROLYTIQUE

dose d'alumine est déposée à la surface du bain, les particules ont tendance à s'agglomérer et former de petit radeau qui flottent et se maintiennent à la surface du bain ([Das15a],[Kas+17]). Par rapport à l'alumine qui se disperse immédiatement dans le volume du bain, les particules qui constituent ces radeaux sont beaucoup plus difficile à dissoudre. De plus, lorsque ces radeaux coulent ils peuvent, selon leur masse et leur taille, pénétrer dans la couche de métal et se retrouver au fond de la cuve au niveau de la cathode. Il forment alors des boues qui isolent électriquement la cathode, et provoque une usure mécanique prématurée.

Dans ce travail, nous nous intéresserons à trois aspects distincts liés au transport des particules d'alumine dans le bain électrolytique et à leur dissolution. Dans chacun des cas, nous supposons que les particules sont suffisamment dispersées dans le fluide pour s'autoriser à considérer des particules individuelles. En particulier, on négligera toutes interaction, directes ou indirectes par l'intermédiaire du bain, entre les particules présentes dans ledit bain. *

Premièrement, nous nous pencherons sur les phénomènes thermiques à proximité des particules immédiatement après leur injection, et en particulier à la formation et refonte d'une couche de bain solidifiée à la surface des particules. Tant qu'elle est présente, la couche de gel empêche la dissolution de la particule. Nous proposerons un modèle mathématique qui décrive l'évolution de la température dans une particule et dans l'électrolyte environnant, et la position du front de transition de phase. Nous utiliserons un modèle numérique pour estimer le temps nécessaire à la refonte de la couche de gel qui se forme typiquement à la surface des particules après leur injection.

Ensuite, nous nous intéresserons au rôle de la température du bain sur la capacité de dissolution des particules d'alumine. Nous proposerons une modèle qui décrive la dissolution, c'est-à-dire l'évolution du rayon d'une particule en fonction de sa surface de contact avec le bain, de la concentration et de la température locale du bain. On en dérivera un modèle qui décrive l'évolution d'une population de particules caractérisée par leur rayon. * *

Finalement, nous considérerons l'effet de force de gravité sur la trajectoire des particules. Lorsque les particules d'alumine sont déposées à la surface du bain, celle-ci sont entraînées par le fluide en mouvement par le biais de forces de trainées. De plus, la force de gravité les entraîne vers le fond de la cuve. Dans son travail, T. Hofer [Hof11] a négligé l'effet de la gravité sur le transport des particules dans le bain électrolytique. Nous déterminerons dans ce travail les conditions dans lesquelles cette hypothèse se vérifie. * *

OK. bien !

2.2 Formation de bain gelé

{sec:particle-freeze}

Dans cette section nous détaillons et étudions numériquement les phénomènes thermiques qui sont responsables du temps de latence préalable au début de la dissolution des grains d'alumine dans le bain électrolytique. Dans ce but, on considère un modèle de Stefan pour traiter le problème de la transition de phase dans le bain électrolytique environnant une région de bain solidifiée. Pour approcher numériquement l'évolution de la région de transition de phase autour de la particule de bain, on fera l'hypothèse d'une symétrie sphérique de la solution.

Commençons par remarquer que la chaleur spécifique $C_{p,Al}$ de l'alumine solide et sa densité ρ_{Al} conduisent à une capacité thermique massique $\rho_{Al}C_{p,Al}$ presque égale à celle du bain électrolytique $\rho_e C_{p,e}$. L'écart entre ces deux capacités thermiques étant de 32% seulement, nous remplacerons les caractéristiques thermiques de l'alumine solide par celles *

*
c'est bon
d'être
négligeable !
*

du bain électrolytique pour simplifier le modèle de solidification et liquéfaction dudit bain autour d'une particule d'alumine solide injectée dans ce bain.

Un modèle thermique avec transition de phase On considère une particule sphérique, placée à l'origine du système de coordonnées, de température initiale $\Theta_{\text{Inj}} < \Theta_{\text{Liq}}$, où Θ_{Liq} est la température du liquidus de l'électrolyte. Cette sphère est donc gelée, c'est-à-dire sous forme solide. Le reste de l'espace est occupé par le bain électrolytique à l'état liquide, au repos, et de température initiale $\Theta_{\text{Init}} > \Theta_{\text{Liq}}$.

On s'intéresse à l'évolution de la température au cours du temps dans le système formé par la particule et le bain liquide environnant. En particulier, la température de la particule étant inférieure à la température du liquidus Θ_{Liq} , le bain au voisinage de la surface de la particule va commencer par geler. Puis, la température du système s'équilibrant par diffusion thermique, cette couche de bain va peu à peu fondre. On cherche à déterminer l'évolution au cours du temps de l'épaisseur de cette couche de bain gelée.

On introduit maintenant le cadre nécessaire à l'écriture d'un modèle mathématique qui décrive l'évolution thermique de la particule et du bain.

Soit $\Omega \subset \mathbb{R}^3$ un domaine ouvert occupé par du bain électrolytique. On note $\Theta(t, x)$ la température de l'électrolyte au point $x \in \Omega$ et à l'instant $t > 0$.

Soient $\Omega_1(t) \subset \Omega$ le domaine occupé par l'électrolyte dans la phase solide, $\Omega_2(t) \subset \Omega$ le domaine occupé par l'électrolyte dans la phase liquide et $\Gamma(t) \subset \Omega$ la région de transition de phase définis par :

$$\Omega_1(t) = \{x \in \Omega \mid \Theta(t, x) < \Theta_{\text{Liq}}\}, \quad (2.1)$$

$$\Omega_2(t) = \{x \in \Omega \mid \Theta(t, x) > \Theta_{\text{Liq}}\}, \quad (2.2)$$

$$\Gamma(t) = \{x \in \Omega \mid \Theta(t, x) = \Theta_{\text{Liq}}\}. \quad (2.3)$$

Soit ρ_e la densité du bain que l'on suppose constante. En particulier, on suppose que la transition entre les phases solide et liquide a lieu à densité constante. Soient $C_{p,e}$, D_Θ la chaleur spécifique et le coefficient de diffusion thermique du bain, respectivement. Dans la suite, on fera l'hypothèse que les paramètres $C_{p,e}$ et D_Θ sont des fonctions de la température Θ , mais constants dans chaque phase, c'est-à-dire que

$$C_{p,e}(\Theta) = \begin{cases} C_{p,e,1}, & \text{si } \Theta < \Theta_{\text{Liq}}, \\ C_{p,e,2}, & \text{si } \Theta > \Theta_{\text{Liq}}, \end{cases} \quad \text{et} \quad D_\Theta(\Theta) = \begin{cases} D_{\Theta,1}, & \text{si } \Theta < \Theta_{\text{Liq}}, \\ D_{\Theta,2}, & \text{si } \Theta > \Theta_{\text{Liq}}, \end{cases} \quad (2.4)$$

où $C_{p,e,1}$, $C_{p,e,2}$, $D_{\Theta,1}$, $D_{\Theta,2}$ sont des réels positifs donnés.

La température de l'électrolyte Θ satisfait une équation de la chaleur dans chaque phase :

$$\rho_e C_{p,e,1} \frac{\partial \Theta}{\partial t} - D_{\Theta,1} \Delta \Theta = 0, \quad \forall x \in \Omega_1(t), \quad \forall t \in [0, \infty), \quad (2.5)$$

$$\rho_e C_{p,e,2} \frac{\partial \Theta}{\partial t} - D_{\Theta,2} \Delta \Theta = 0, \quad \forall x \in \Omega_2(t), \quad \forall t \in [0, \infty). \quad (2.6)$$

Soit ν la normale unité à l'interface Γ dirigée vers Ω_2 . Pour toute fonction $g : \Omega_1 \cap \Omega_2 \rightarrow \mathbb{R}$, on note $[g] : \Gamma \rightarrow \mathbb{R}$ le saut de la fonction g sur l'interface Γ défini par :

$$[g](x) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} g(x + \epsilon \nu) - g(x - \epsilon \nu) \quad \text{sur } \Gamma. \quad (2.7)$$

que la température est continue, $[\Theta] = 0$, et

A l'interface $\Gamma(t)$ entre les phases liquide et solide, on suppose que la condition de Stefan est vérifiée. On note $v_\Gamma(t, x)$ la vitesse de l'interface $\Gamma(t)$. La condition de Stefan s'écrit alors :

$$[D_\Theta \nabla \Theta \cdot \nu] = -\Delta H_{sl} v_\Gamma \quad \text{sur } \Gamma(t), \quad \forall t \in [0, \infty), \quad (2.8)$$

où ΔH_{sl} est l'enthalpie par unité de volume libérée lors de la transition de la phase solide à liquide du bain électrolytique.

La condition (2.8) correspond à un bilan d'énergie thermique au niveau de l'interface entre les phases. Le membre de gauche de la relation (2.8) correspond à la quantité d'énergie absorbée ou libérée par le déplacement du front de solidification, tandis que le membre de droite correspond à la somme des flux d'énergie thermique au niveau du front de solidification.

On suppose donnée une subdivision $\Gamma_N, \Gamma_D \subset \partial\Omega$ telle que $\Gamma_N \cap \Gamma_D = \emptyset$ et $\Gamma_N \cup \Gamma_D = \partial\Omega$, et les fonctions $\Theta_D : \Gamma_D \rightarrow \mathbb{R}$ et $\Theta_N : \Gamma_N \rightarrow \mathbb{R}$. Les équations (2.5), (2.6) et (2.8) sont complétées par les conditions aux limites :

$$\Theta(t, x) = \Theta_{Liq}, \quad \forall x \in \Gamma(t), \quad \forall t \in [0, \infty), \quad (2.9)$$

$$\Theta(t, x) = \Theta_D(x), \quad \forall x \in \Gamma_D(t), \quad \forall t \in [0, \infty), \quad (2.10)$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial \nu}(t, x) = \Theta_N(x), \quad \forall x \in \Gamma_N(t), \quad \forall t \in [0, \infty), \quad (2.11)$$

ainsi que par une condition initiale Θ_{init} appropriée à $t = 0$ pour Θ .

Le problème de Stefan classique consiste à chercher une fonction $\Theta : [0, \infty) \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}$ et deux sous-domaines Ω_1, Ω_2 qui satisfassent les équations (2.1) et (2.5)-(2.8) et (2.11). *

Le lecteur intéressé trouvera une discussion détaillée des différentes formulations des problèmes de Stefan et de leurs analyses mathématiques dans l'ouvrage de J. Hill [Hil87], ainsi que celui de L. I. Rubenstein [Rub71], par exemple.

Formulation faible du problème de Stefan On donne maintenant une forme alternative du problème de Stefan classique formé par les équations (2.5)-(2.11). Cette formulation, qu'on qualifie d'*enthalpique*, remplace le problème de frontière libre du problème de Stefan classique par un problème parabolique non-linéaire dégénéré. L'un des avantages est de ne pas avoir à suivre explicitement l'interface Γ . L'interface Γ est obtenue après calcul par un "post-processing".

Soit $f_s(\Theta)$ la fraction solide du bain électrolytique. La fraction solide est définie par :

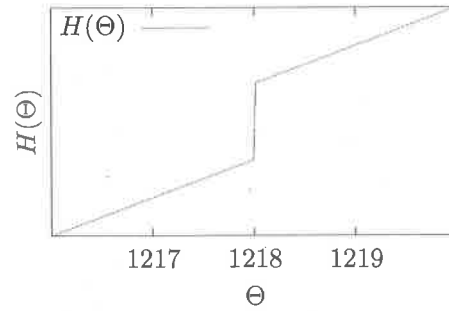
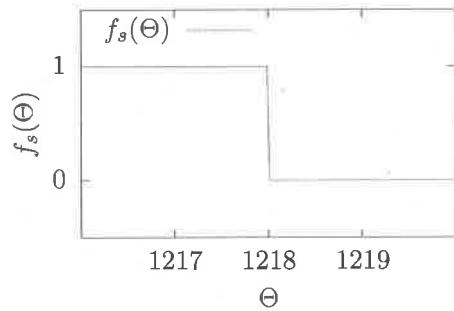
$$f_s(\Theta) = \begin{cases} 0 & \text{si } \Theta \geq \Theta_{Liq}, \\ 1 & \text{si } \Theta < \Theta_{Liq}. \end{cases} \quad (2.12)$$

Le comportement de la fonction f_s au voisinage de Θ_{Liq} est représenté sur le graphique de gauche de la figure 2.1.

Les propriétés thermiques du bain électrolytique sont caractérisées par la relation entre la température Θ et l'enthalpie par unité de masse H qui s'exprime de la manière suivante :

$$H(\Theta) = \int_0^\Theta \rho_e C_{p,e} ds + \Delta H_{sl}(1 - f_s(\Theta)), \quad (2.13)$$

où ρ_e est la densité du bain, ΔH_{sl} est l'enthalpie de transition de phase par unité de volume, et f_s la fraction solide du bain en fonction de la température.



$m\Delta\theta \Delta H = ?$

FIGURE 2.1 – Gauche : fraction solide du bain f_s en fonction de la température. Droite : Enthalpie du bain électrolytique en fonction de la température.

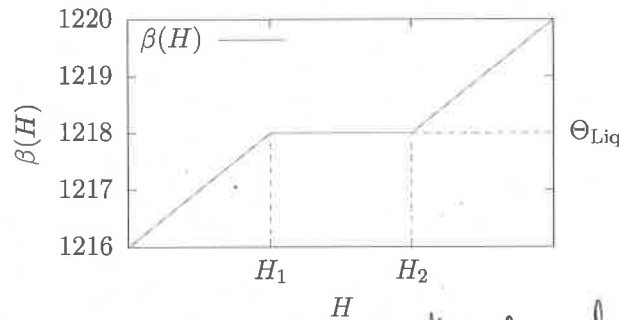


FIGURE 2.2 – Fonction $\beta(H)$. On a noté $H_1 = \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e} \rho_e$ et $H_2 = \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e} \rho_e + \Delta H_{\text{sl}}$ et $\Theta_{\text{Liq}} = 1218\text{K}$.
 mettre la valeur de H_1 et H_2 puisque vous mentionnez la valeur de Θ_{Liq} !

Le graphique de droite sur la figure 2.1 représente le comportement de la fonction $H(\Theta)$ au voisinage de la température de transition Θ_{Liq} .

Bien que la fonction H présente une discontinuité en $\Theta = \Theta_{\text{Liq}}$, elle est strictement monotone, et on peut définir une fonction $\beta(H)$ telle que $\beta(H(\Theta)) = \Theta$ pour tout Θ de la manière suivante :

$$\beta(H) = \begin{cases} \frac{H}{C_{p,e} \rho_e} & H < \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e} \rho_e, \\ \Theta_{\text{Liq}} & \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e} \rho_e < H < \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e} \rho_e + \Delta H_{\text{sl}}, \\ \frac{H - \Delta H_{\text{sl}}}{C_{p,e} \rho_e} & \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e} \rho_e + \Delta H_{\text{sl}} < H. \end{cases} \quad (\text{eq:beta}) \quad (2.14)$$

La fonction β est représentée sur la figure 2.2. Pour les besoins de la représentation, on a choisi ici $\Theta_{\text{Liq}} = 1218\text{K}$ et $\Delta H = ?$.

La formulation enthalpique du problème de Stefan consiste à chercher une paire de fonctions $\Theta, H : [0, \infty) \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}$ telles que :

$$\frac{\partial H}{\partial t} - \text{div}(\nabla \Theta) = 0, \quad \text{avec } \nabla \Theta = \nabla \Theta_1 + \nabla \Theta_2 ?$$

$$\Theta = \beta(H),$$

$$\Theta = \Theta_D,$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial \nu} = \Theta_N,$$

$$\Theta(0, x) = \Theta_{\text{init}}(x),$$

$$\forall (t, x) \in [0, \infty) \times \Omega, \quad (2.15) \quad \text{(eq:heat-one-phase)}$$

$$\forall (t, x) \in [0, \infty) \times \Omega, \quad (2.16) \quad \text{(eq:heat-temperature-enthalpy)}$$

$$\forall (t, x) \in [0, \infty) \times \Gamma_D, \quad (2.17) \quad \text{(eq:heat-one-phase-no-sigma)}$$

$$\forall (t, x) \in [0, \infty) \times \Gamma_N, \quad (2.18) \quad \text{(eq:heat-initial-condition)}$$

$$\forall x \in \Gamma, \quad (2.19)$$

22 CHAPITRE 2. PARTICULES D'ALUMINE DANS UN BAIN ÉLECTROLYTIQUE

Les fonctions Θ_{Init} , Θ_D et Θ_N ont été définies au paragraphe précédent, et β est définie par la relation (2.14). L'équation (2.15) est à comprendre au sens faible. Plus précisément, on peut montrer que si H et Θ sont solutions faibles de (2.15)-(2.16) et si H et Θ sont suffisamment régulières dans $\Omega_1(t)$ et $\Omega_2(t)$ définis par (2.1), alors Θ satisfait (2.5), (2.6) et (2.8).

En effet, soit $\Lambda = [0, \infty) \times \Omega$, soit

$$\Lambda_1 = \{(t, x) \in \Lambda \mid x \in \Omega_1(t), t \in [0, \infty)\}, \quad (2.20)$$

$$\Lambda_2 = \{(t, x) \in \Lambda \mid x \in \Omega_2(t), t \in [0, \infty)\}, \quad (2.21)$$

$$(2.22)$$

et soit Γ_{tx} dans l'espace-temps :

$$\Gamma_{tx} = \{(t, x) \in \Lambda \mid x \in \Gamma(t), t \in [0, \infty)\}. \quad (2.23)$$

Soit ν_{tx} la normale unité à Γ_{tx} dirigée vers Λ_2 , on note ν_t , ν_x les composantes temporelles et spatiales de ν_{tx} , i.e., $\nu_{tx} = (\nu_t, \nu_x)^t$. Soit H , Θ solutions faibles du problème de Stefan (2.15)-(2.16). On note le $v = (H, -D_\Theta \nabla \Theta)^t$. L'équation (2.15) s'écrit donc :

$$\text{Div } v = 0 \quad \text{dans } \Lambda, \quad (2.24)$$

où $\text{Div} = (\frac{\partial}{\partial t}, \nabla)$. Alors si Θ est suffisamment régulière dans $\Lambda_1 \cap \Lambda_2$, Θ est solution forte de (2.5), (2.6). De plus, on doit avoir :

$$[v \cdot \nu_{tx}] = 0 \quad \text{sur } \Gamma_{tx}, \quad (2.25)$$

ce qui est équivalent à (2.8) avec $\nu = \frac{\nu_x}{|\nu_x|}$ et $\nu_\Gamma = \frac{\nu_t}{\nu_x}$.

Le lecteur intéressé par les aspects fonctionnels liés à cette équivalence peut consulter le travail de thèse de P.-A. Gremaud [GR91], ou l'ouvrage de J. Hill [Hil87].

Schéma de discrétisation en temps Pour obtenir un schéma de discrétisation en temps du problème de Stefan, on part de la formulation enthalpique (2.15)-(2.18), et on suit le travail de M. Paolini et al. [PSV88].

Soit un temps final $T > 0$, $N \in \mathbb{N}^*$ le nombre de pas de temps. Soit $\tau = T/N$ le pas de temps et $t^n = \tau n$. On note L_β la constante de Lipschitz de la fonction β :

$$L_\beta = \sup_H |\beta'(H)|. \quad (2.26)$$

Soit μ un paramètre de relaxation fixé, tel que $0 < \mu \leq 1/L_\beta$.

On note $\Theta^n(x)$ et $H^n(x)$ les approximations de $\Theta(t^n, x)$ et $H(t^n, x) \forall x \in \Omega$. On suppose donnée la densité d'enthalpie initiale h^0 , et on pose $\Theta^0 = \Theta_{\text{Init}}$, $H^0 = H(\Theta_{\text{Init}})$, avec H donnée par (2.13). Pour $0 < n \leq N$, on résout successivement les équations :

$$\Theta^{n+1} - \frac{\tau}{\mu} \text{div} (D_\Theta \nabla \Theta^{n+1}) = \beta(H^n), \quad \text{dans } \Omega, \quad (2.27)$$

$$\Theta^{n+1}(x) = \Theta_D(t^{n+1}, x), \quad \forall x \in \Gamma_D, \quad (2.28)$$

$$\frac{\partial \Theta^{n+1}}{\partial \nu}(x) = \Theta_N(t^{n+1}, x), \quad \forall x \in \Gamma_N, \quad (2.29)$$

avec la correction pour la densité d'enthalpie à chaque pas de temps :

$$H^{n+1} = H^n + \mu (\Theta^{n+1} - \beta(H^n)), \quad \text{dans } \Omega. \quad (2.30)$$

Ce schéma numérique basé sur la formule de Chernoff (2.30) a été proposé en premier par M. Paolini [PSV88]. On décrit maintenant la discrétisation en espace des équations (2.27)-(2.29).

On pourrait mettre une remarque car (2.27) \Rightarrow

$$\mu \frac{\Theta^{n+1} - \beta(H^n)}{\tau} - \text{div} (D_\Theta \nabla \Theta^{n+1}) = 0 \Rightarrow \frac{H^{n+1} - H^n}{\tau} - \text{div} (D_\Theta \nabla \Theta^{n+1}) = 0 \quad \text{avec (2.30)}$$

2.2. FORMATION DE BAIN GELÉ

Formulations faibles en coordonnées sphériques La formulation faible du système d'équations (2.27)-(2.29) consiste, $\forall n \leq N$, à chercher une fonction $\Theta^{n+1} : \Omega \rightarrow \mathbb{R}$ telle que la relation :

$$\int_{\Omega} \Theta^{n+1} v \, dx + \frac{\tau}{\mu} \int_{\Omega} \nabla \Theta^{n+1} \nabla v \, dx - \int_{\Gamma_N} \Theta_N^{n+1} v \, d\sigma = \int_{\Omega} \beta(H^n) v \, dx \quad (2.31)$$

soit vérifiée pour toute fonction test $v : \Omega \rightarrow \mathbb{R}$ à symétrie sphérique.

On tire parti de la symétrie sphérique du système formé par la particule et le bain environnant en reformulant maintenant le problème (2.31) en coordonnées sphériques.

On note d'un tilde la composante radiale d'une fonction à symétrie sphérique, c'est-à-dire que si une fonction $f : \mathbb{R}^3 \rightarrow \mathbb{R}$ est à symétrie sphérique, alors on note $\tilde{f} : \mathbb{R}_+ \rightarrow \mathbb{R}$ la fonction telle que

$$\tilde{f}(r) \equiv \tilde{f}(\sqrt{x_1^2 + x_2^2 + x_3^2}) = f(x_1, x_2, x_3) \quad \forall (x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3. \quad (2.32)$$

Le gradient de la fonctions f en coordonnées sphérique s'écrit selon \tilde{f} :

$$\nabla f = \frac{d\tilde{f}}{dr} \hat{e}_r. \quad (2.33)$$

On se donne un réel $R_{\text{Max}} > 0$ et le domaine $\Omega = \mathcal{B}(0, R_{\text{Max}}) \subset \mathbb{R}^3$ la boule ouverte de centre 0 de rayon R_{Max} . On suppose maintenant que les données du problème de Stefan (2.15)-(2.18), i.e., les fonctions Θ_D , Θ_N ainsi que la condition initiale Θ_{Init} pour la température, sont à symétrie sphérique, c'est-à-dire qu'il existe des fonctions $\tilde{\Theta}_D$, $\tilde{\Theta}_N$ et $\tilde{\Theta}_{\text{Init}}$ telles que définies par la relation (2.32). *et ne dépendent que de r évent. t !*

Sous ces hypothèses, on cherche une solution du problème de Stefan (2.15)-(2.18) en utilisant le schéma de Chernoff (2.27)-(2.30) qui soit également à symétrie sphérique.

La subdivision du bord Γ_D , Γ_N doit également satisfaire la condition de symétrie sphérique. On distingue alors les deux seuls cas possibles : soit le bord de Dirichlet $\Gamma_D = \partial\mathcal{B}(0, R_{\text{Max}})$, soit le bord de Neumann $\Gamma_N = \partial\mathcal{B}(0, R_{\text{Max}})$.

Dans le premier cas, la formulation faible de l'équation (2.31) en coordonnées sphériques consiste à chercher une fonction $\tilde{\Theta}^{n+1} : [0, R_{\text{Max}}] \rightarrow \mathbb{R}$, $\tilde{\Theta}^{n+1}(R_{\text{Max}}) = \tilde{\Theta}_D^{n+1}$ telle que :

$$4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \tilde{\Theta}^{n+1} \tilde{v} r^2 \, dr + \frac{4\pi\tau}{\mu} \int_0^{R_{\text{Max}}} \frac{d\tilde{\Theta}^{n+1}}{dr} \frac{d\tilde{v}}{dr} r^2 \, dr = 4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \beta(\tilde{H}^n) \tilde{v} r^2 \, dr \quad (2.34)$$

pour toute fonction $\tilde{v} : [0, R_{\text{Max}}] \rightarrow \mathbb{R}$, $\tilde{v}(R_{\text{Max}}) = 0$.

Dans le deuxième cas, la formulation faible de l'équation (2.31) en coordonnées sphériques consiste à chercher une fonction $\tilde{\Theta}^{n+1} : [0, R_{\text{Max}}] \rightarrow \mathbb{R}$, telle que :

$$4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \tilde{\Theta}^{n+1} \tilde{v} r^2 \, dr + \frac{4\pi\tau}{\mu} \int_0^{R_{\text{Max}}} \frac{d\tilde{\Theta}^{n+1}}{dr} \frac{d\tilde{v}}{dr} r^2 \, dr - 4\pi \tilde{\Theta}_N^{n+1}(R_{\text{Max}}) \tilde{v}(R_{\text{Max}}) R_{\text{Max}}^2 = 4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \beta(\tilde{H}^n) \tilde{v} r^2 \, dr, \quad (2.35)$$

pour toute fonction $\tilde{v} : [0, R_{\text{Max}}] \rightarrow \mathbb{R}$. Les facteurs r^2 et 4π qui interviennent dans les intégrands de ces deux dernières formes faibles proviennent respectivement de l'élément de volume en coordonnées sphériques et de l'intégrale sur la surface de la sphère.

$$4\pi r^2 dr$$

Discretisation en espace On considère une subdivision uniforme de l'intervalle $[0, R_{\text{Max}}]$, et on note δ la taille des éléments de la subdivision. Pour discrétiser les problèmes faibles (2.34), (2.35) on utilise une méthode éléments finis Lagrange, continue et linéaire par morceau. Les intégrales qui interviennent dans les expressions (2.34), (2.35) sont approchées numériquement par une formule de quadrature de Gauss à 3 points. *sur chaque intervalle $[r_i, r_{i+1}]$.*

Un test exacte du problème de Stefan à symétrie plane On propose de valider l'implémentation du schéma numérique de discrétisation des formes faibles (2.34), (2.35) et du schéma de discrétisation en temps (2.27)-(2.30) en étudiant la convergence de l'erreur entre une solution exacte du problème de Stefan classique et son approximation numérique.

Un certain nombre de solutions exactes du problème de Stefan classique sont connues. On décrit à présent l'une d'elles, découverte en premier par J. Neumann. Cette solution a l'avantage de correspondre à une situation physique que l'on peut facilement interpréter.

Si, au lieu de définir une symétrie sphérique nous prenons une symétrie plane, i.e. \tilde{f} de (2.32) est remplacée par $\tilde{f}(x_1, x_2, x_3) = \tilde{f}(x_1)$, alors il suffit de changer d'ordre et de supprimer r^2 dans les intégrales figurant dans (2.34), (2.35)

Ann *à la ligne* on considère le problème de Stefan classique formé par les équations (2.5)-(2.6), et on fixe les données de la manière suivante. On fixe $C_{p,e}(\Theta) = 1$ et $D_\Theta(\Theta) = 1 \forall \Theta \in \mathbb{R}$, $\rho_e = 1$, $\Delta H_{sl} = 1$ et $\Theta_{\text{Liq}} = 0$. On s'intéresse à la température dans un matériau qui occupe la demi-droite positive, c'est-à-dire que $\Omega = \mathbb{R}_+$.

On choisit la condition initiale suivante pour la température Θ :

$$\Theta(0, x) = 0, \quad \forall x \in \mathbb{R}_+, \quad (2.36)$$

et la condition aux limites de Dirichlet sur le bord $\Gamma_D = \{0\}$:

$$\Theta(t, 0) = -1, \quad \forall t > 0. \quad (2.37)$$

On note $X(t) > 0$ la position du front de solidification à l'instant t . Dans ces conditions, on peut montrer [Hil87] par un calcul algébrique que la solution des équations (2.5)-(2.8) s'écrit :

$$X(t) = \sqrt{2\gamma t},$$

$$\Theta(t, x) = -\gamma \int_{x/\sqrt{2\gamma t}}^1 \exp\left(\frac{\gamma(1-\xi^2)}{2}\right) d\xi, \quad \forall (t, x) \in [0, \infty) \times [0, X(t)), \quad (2.39)$$

$$\Theta(t, x) = 0, \quad \forall (t, x) \in [0, \infty) \times [X(t), \infty), \quad (2.40)$$

où on a noté γ la constante réelle définie comme la solution de l'équation transcendante :

$$\gamma \int_0^1 \exp\left(\frac{\gamma(1-\xi^2)}{2}\right) d\xi = 1. \quad (2.41)$$

On trouvera les détails de la dérivation de cette solution, entre autres, dans l'ouvrage de J. Hill [Hil87].

On calcul une approximation numérique de γ à l'aide d'une itération de Newton, implémentée avec le logiciel MatLAB®. On obtient

$$\gamma = 0.768\,955. \quad (2.42)$$

La solution (2.39)-(2.40) pour la température Θ s'écrit de manière explicite en vue de son évaluation numérique sous la forme suivante :

$$\Theta(t, x) = \begin{cases} -\exp\left(\frac{\gamma}{2}\right) \sqrt{\frac{\pi\gamma}{2}} \left(\operatorname{erf}\frac{\gamma}{2} - \operatorname{erf}\frac{x}{2\sqrt{t}}\right), & \text{si } x \leq \sqrt{2\gamma t}, \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (2.43)$$

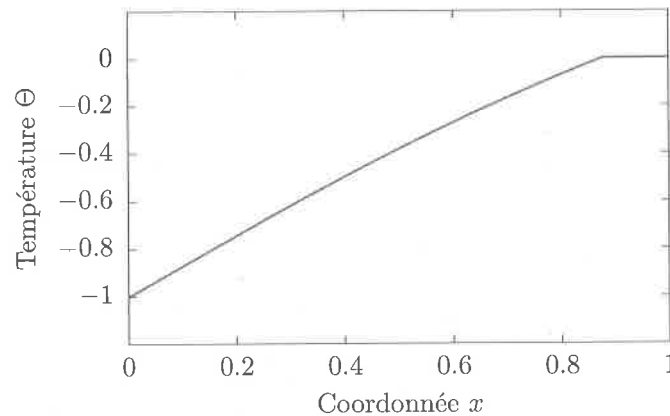


FIGURE 2.3 – Solution exacte de Neumann du problème de Stefan classique (2.5)-(2.8) évaluée à $t = 0.5$ sur l'intervalle $[0, 1] \subset \mathbb{R}_+$.

où la fonction $\text{erf} : \mathbb{R} \rightarrow (-1, 1)$ est la fonction d'erreur standard définie par :

$$\text{erf}(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-s^2) ds. \quad (2.44)$$

La solution exacte (2.43) est représentée sur la figure 2.3 à l'instant $t = 0.5$, avec γ donné par la relation (2.42).

D'un point de vue physique, la solution exacte de Neumann correspond à la situation suivante. Un matériau, qui présente une transition entre les phases solide et liquide à $\Theta_{\text{Liq}} = 0$, occupe le demi espace $\{(x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3 \mid x_1 > 0\}$. Ce matériau est initialement dans l'état liquide à la température $\Theta = \Theta_{\text{Liq}}$. Au temps initial, on le met en contact sur le bord $\{(x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3 \mid x_1 = 0\}$ avec un réservoir thermique à température constante $\Theta = -1$. Au cours de l'évolution temporelle, un front de transition de phase, de liquide à solide, se propage dans le matériau. Pour des raisons de symétrie, le front de transition reste en tout temps parallèle au bord $\{(x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3 \mid x_1 = 0\}$.

On utilisera cette solution exacte dans la suite pour valider le schéma de discrétisation des équations (2.15)-(2.18), que l'on décrit maintenant.

Validation numérique Pour valider l'implémentation du schéma numérique (2.27)-(2.30), on évalue la convergence de l'erreur entre la solution exacte définie par la relation (2.43) et Θ_δ^N , l'approximation de la température à l'instant T . Remarquons que puisque la solution de Neumann correspond à un problème spatial avec une symétrie plane, on omet les facteurs r^2 dans la forme faible (2.34). On fixe $\mu = L_\beta = 1$. On choisit $\Omega = [0, 1] \subset \mathbb{R}_+$ et $T = 0.5$. On impose des conditions aux limites de Dirichlet sur le bord de Ω , i.e., $\Gamma_D = \{0, 1\}$. On se donne $\Theta_D(0) = -1$ et $\Theta_D(1) = 0$. On choisit le pas de temps τ dans l'intervalle $[3.9 \times 10^{-5}, 5 \times 10^{-3}]$, et $\delta = O(\tau)$.

On constate sur la figure 2.4 que l'erreur L^2 entre la solution exacte et l'approximation numérique converge vers 0, avec un ordre approximatif $O(h^{3/4})$.

Formation de gel autour d'une particule Dans cette partie, on applique la méthode numérique (2.27)-(2.29) au calcul de la formation de gel autour d'une particule de bain

ce qui compte à mon avis, c'est l'erreur entre la solution exacte et $\beta(H^N)$! $\|\Theta(T, x_i) - \beta(H^N(T, x_i))\|_{L^2(\cdot)}$? Comment calculer $H^N(t, x_i)$?

Qu'est-ce que j'aurais mis ici au début (après "test exact")

appel $\delta = \frac{T}{N}$?

Cette remarque doit venir avant!

surestime ou sous-estime?

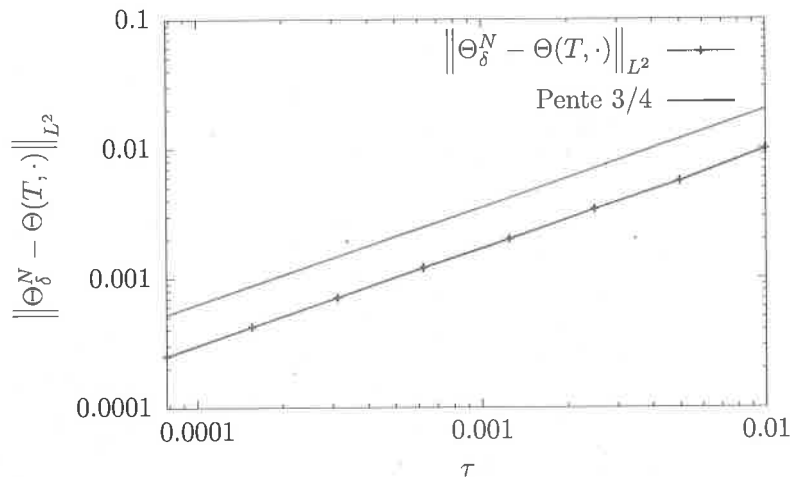


FIGURE 2.4 – Erreur L^2 entre la solution exacte de Neumann et l'approximation numérique.

Θ_δ^N

Que veut je dans cet exemple?

gelé. On donne dans le tableau 2.1 la valeur des différents paramètres physique liés aux propriétés thermiques du bain électrolytique.

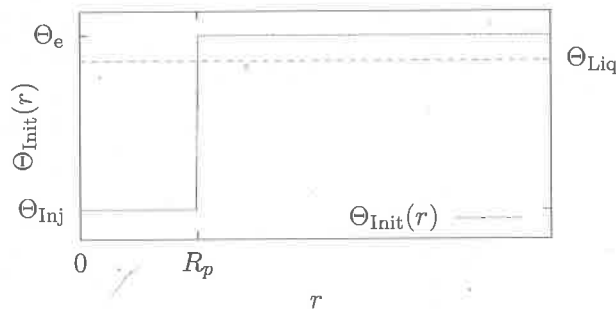


FIGURE 2.5 – Température initiale du système formé par la particule de bain gelé placée à l'origine du système de coordonnées, et du bain électrolytique environnant.

Un test à symétrie sphérique

Soit R_p le rayon de la particule placée à l'origine du système de coordonnées et soit $\Theta_{\text{Inj}} \in \mathbb{R}$ la température à laquelle se trouve les particules d'alumine au moment de leur injection dans la cuve. Soit Θ_e la température du bain électrolytique. La condition initiale du système formé par la particule et le bain environnant est définie par :

$$\tilde{\Theta}_{\text{Init}}(r) = \begin{cases} \Theta_{\text{Inj}} & \text{si } r < R_p, \\ \Theta_e & \text{si } r \geq R_p, \end{cases} \quad \forall r \in \mathbb{R}_+. \quad (2.45)$$

La figure 2.5 représente la température initiale au voisinage de la particule. En dehors de la particule, la température du bain est suffisante pour que celui-ci soit dans la phase liquide. Cependant, on suppose que le bain liquide est au repos en tout temps.

On note R_f la distance entre l'origine et la position du front de solidification, définie par la relation :

$$\beta(\tilde{H}(t, R_f(t))) = \Theta_{\text{Liq}}. \quad (2.46)$$

mettre en p 25

Mettre un titre comme en page 24!

TABLE 2.1 – Paramètres physiques qui interviennent dans le phénomène de formation de gel autour de des particules. *

Quantité	Valeur	Unité	Description
ρ_e	2130	kg m^{-3}	Masse volumique du bain électrolytique
$C_{p,e,1}$	1403	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	Chaleur spécifique de l'électrolyte dans la phase solide
$C_{p,e,2}$	1861.3	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	Chaleur spécifique de l'électrolyte dans la phase liquide
ΔH_{sl}	5.508×10^5	J kg^{-1}	Chaleur latente de transition de phase solide-liquide
Θ_{Inj}	423.15	K	Température de la particule de bain gelé au moment de l'injection
Θ_{Liq}	1223.15	K	Température du liquidus de l'électrolyte
D_Θ	2	$\text{J s}^{-1} \text{m}^{-1} \text{K}^{-1}$	Conductivité thermique de l'électrolyte

L'épaisseur de la couche de bain solidifiée R_g est définie par la relation :

$$R_g(t) = R_f(t) - R_p. \quad (2.47)$$

On définit alors le temps de latence $T_{Lat}(R_p) > 0$, le temps nécessaire à ce que l'épaisseur de bain solidifié atteigne à nouveau zéro :

$$R_g(T_{Lat}) = 0 \quad (2.48) \quad *$$

On considère une particule de bain solidifié de rayon initial $R_0 = 40\mu\text{m}$, $60\mu\text{m}$ et $80\mu\text{m}$. La surchauffe du bain électrolytique est définie ici comme la différence entre la température initiale du bain Θ_e et la température de liquidus Θ_{Liq} . La figure 2.6 présente l'évolution du rayon de la particule pour trois surchauffes différentes du bain électrolytique environnant.

On constate que le temps nécessaire à refondre le bain gelé diminue avec la surchauffe. De même, le temps de refonte diminue avec la taille de la particule.

La température initiale de la particule est $T_{Inj} = 423.15\text{K}$. Dans le cas le plus défavorable où $\Theta_e - \Theta_{Liq} = 2.5\text{K}$ et $r_0 = 80\mu\text{m}$, le temps nécessaire pour refondre entièrement la couche de gel est de l'ordre de 120ms. *

Dans les calculs présentés ici, on a fait plusieurs hypothèses simplificatrices. On a supposé que le fluide environnant est au repos, ce qui n'est certainement pas le cas dans une cuve d'électrolyse industrielle. Les forces de Lorentz et la formation de bulles de gaz agitent les fluides, et créent des turbulences qui sont, entre autres, de l'échelle des particules [Roc16]. Une agitation de l'électrolyte au voisinage d'une particule accélère le transport de l'énergie thermique, et tend à accélérer la refonte du bain gelé.

Pour des particules d'alumine suffisamment isolées dans le bain électrolytique suite à leur injection, on conclut que les temps caractéristiques du temps de latence dû à la présence de gel à la surface des particules sont largement inférieurs à la seconde. De plus, les phénomènes précités d'agitation du fluide et de chute verticale des particules, négligés dans ce modèle, tendent à diminuer ces temps caractéristiques. *

Pour ces raisons, dans la suite de ce travail on négligera la formation de gel à la surface des particules d'alumine. Cependant, selon les recommandations de V. Dassylva-Raymond

certaines mesures ?
(ou autres calculs?)

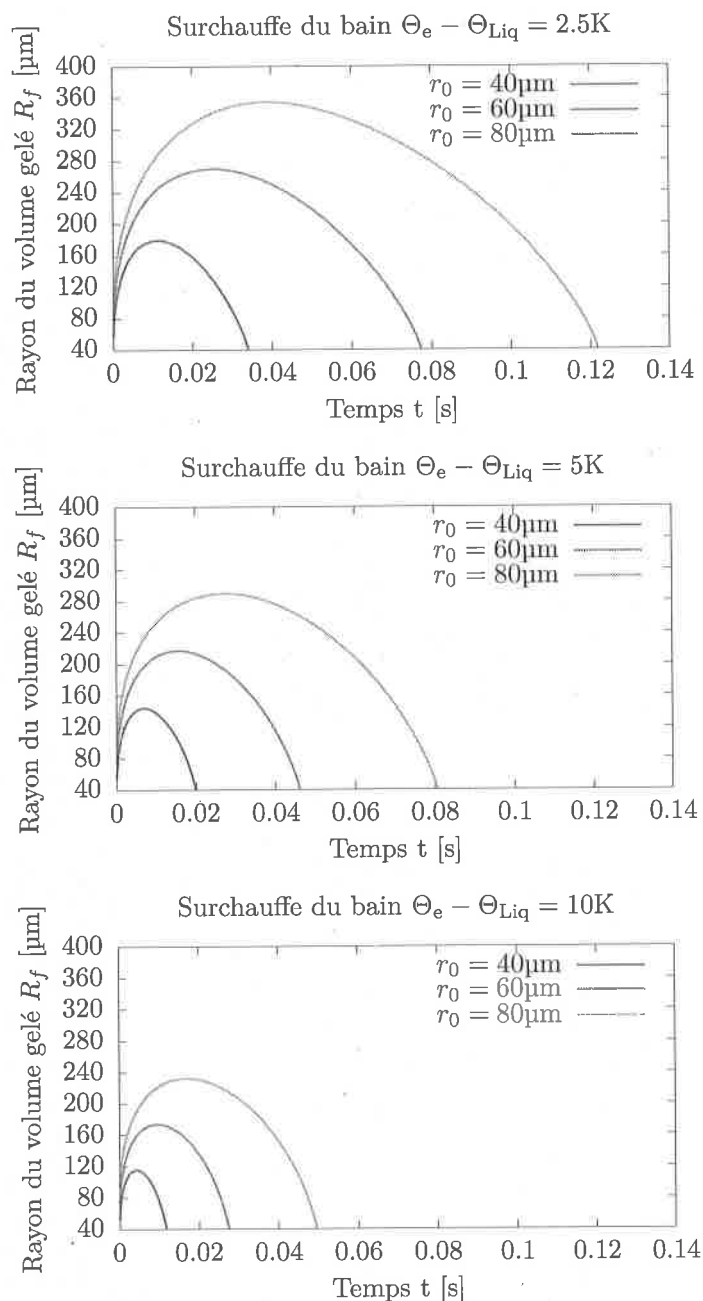


FIGURE 2.6 – Évolution du rayon de la sphère de bain gelé pour des températures de surchauffe de 2.5K, 5K et 10K et des particules de rayons initiaux $r_0 = 40\mu\text{m}$, $60\mu\text{m}$ et $80\mu\text{m}$.

*

[Das15b], on choisira, dans la suite, un temps de latence pour chaque dose de particules injectées dans le bain uniforme $\tau_{\text{Lat}} = 1\text{s}$, indépendante du rayon. Ce temps de latence se justifie par un effet collectif de toutes les particules d'une dose sur la température du bain environnant.

✱

2.3 Dissolution de particule dans le bain

{sec:particle-dissolution}

2.4 Dissolution d'une population de particule

{sec:particle-population-dissolution}

2.5 Chute de particules dans le bain

{sec:particle-fall}