

J.R

15/01/2018

# Méthodes numériques liées à la distribution d'alumine dans une cuve d'électrolyse d'aluminium

Thomas Hilke

12 janvier 2018



# Table des matières

Notations	5
<b>1 Introduction</b>	<b>7</b>
1.1 Procédé de Hall-Héroult . . . . .	7
1.2 But du travail . . . . .	11
1.3 Organisation du document . . . . .	11
<b>I Transport et dissolution de particules d'alumine</b>	<b>13</b>
<b>2 Particules d'alumine dans un bain électrolytique</b>	<b>15</b>
<b>3 Populations de particules</b>	<b>17</b>
<b>II Approximation d'écoulement dans le bain électrolytique</b>	<b>19</b>
<b>4 Une méthode numérique pour le calcul de l'écoulement de Stokes</b>	<b>21</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>23</b>



# Notations

Symbol	Description
--------	-------------

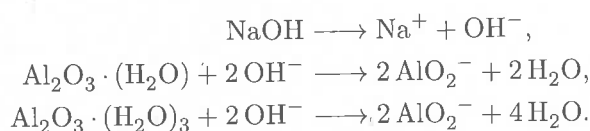


# Chapitre 1

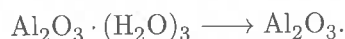
## Introduction

L'aluminium est un métal léger qui figure parmi les éléments métalliques les plus abondant sur Terre, avec une proportion d'environ 8% de la masse totale de la croûte terrestre. Malgré tout il n'apparaît jamais sous forme métallique en raison de sa forte affinité avec l'oxygène, et se trouve sous forme d'oxyde d'aluminium  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (appelé également alumine). L'alumine est un constituant de différents minerais, mais seul la bauxite est utilisée pour la production de l'aluminium.

La bauxite est constituée principalement par de l'oxyde d'aluminium hydraté, de silicate, d'oxyde de fer et d'impuretés en plus faibles proportions. Elle provient essentiellement d'Australie, de Chine et du Brésil. Par exemple, ces trois pays combinés ont extrait plus de 179 millions de tonnes de bauxite au cours de l'année 2014. Le procédé de Bayer permet ensuite d'isoler et purifier l'alumine de la bauxite. Après concassage et broyage du minerais, la soude caustique chaude dissout l'alumine :



Les autres composés restent insolubles, et sont éliminés par filtration. En refroidissant le filtrat, de l'hydrate d'alumine est récupéré par précipitation. Finalement, cet hydrate d'alumine est calciné pour éliminer les molécules d'eau :

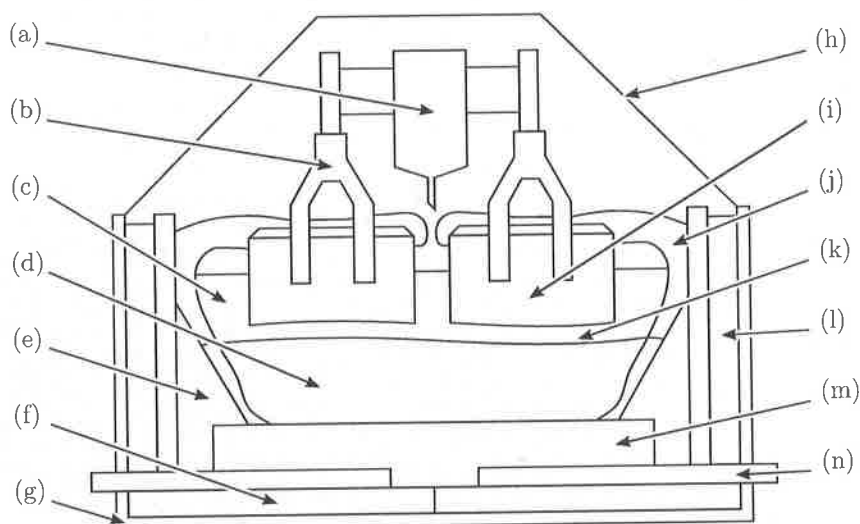


La deuxième partie du processus consiste à inverser la réaction d'oxydation pour finalement obtenir de l'aluminium sous forme métallique. C'est cet aspect du procédé, qui porte les noms de ses deux inventeurs Paul Héroult et Mark Hall, qui nous intéresse dans ce travail et que nous décrivons plus en détail dans le paragraphe qui suit.

### 1.1 Procédé de Hall-Héroult

On donne dans cette section un bref aperçu du procédé de Hall-Héroult. Le lecteur intéressé peut trouver de plus amples informations dans le travail de [Grj77].

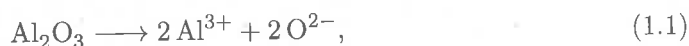
Le procédé consiste à dissoudre l'oxyde d'aluminium dans un bain composé de cryolite,



- |                                       |                                      |
|---------------------------------------|--------------------------------------|
| (a) Injecteur de dose d'alumine       | (h) Couvercle                        |
| (b) Broches de connections des anodes | (i) Anodes                           |
| (c) Bain électrolytique               | (j) Talus, croûte de bain solidifiée |
| (d) Aluminium métallique liquide      | (k) Interface bain-métal             |
| (e) Pâte de brasquage                 | (l) Isolation réfractaire            |
| (f) Isolation réfractaire             | (m) Cathode                          |
| (g) Caisson                           | (n) Barres bus collectrices          |

FIGURE 1.1 – Représentation de la structure des éléments internes d'une cuve d'électrolyse d'aluminium. *Vue de coupe. Coupe transversale.*

puis à réduire les ions d'aluminium en effectuant l'électrolyse de la solution :



Dans un cadre industriel, la réaction a lieu dans un bain électrolytique contenu dans un récipient dont une coupe verticale schématisée est représentée par la figure 1.1. Le bain électrolytique, dont le rôle est de permettre la dissociation des ions  $\text{Al}^{3+}$  et  $\text{O}^{2-}$  nécessaire à la réaction d'électrolyse, est essentiellement constitué par de la cryolite ( $\text{Na}_3 \cdot \text{AlF}_6$ ). Un nombre d'additifs sont ajoutés dans le bain afin de ramener la température de fusion de celui-ci à environ  $950^\circ\text{C}$ .

Le bain électrolytique est maintenu sous forme liquide dans un contenant constitué par une épaisseur de briques réfractaires au niveau des parois verticales et une cathode en carbone au fond. Le tout est soutenu par une structure appelée cuve. Les briques réfractaires jouent le rôle d'isolant thermique d'une part, et protègent le reste de la structure des attaques corrosives de l'électrolyte d'autre part.

La réaction d'électrolyse (1.2) produit de l'aluminium métallique au niveau de la cathode. La température de fusion de l'aluminium étant de  $660.3^\circ\text{C}$ , le métal produit est maintenu sous forme liquide. L'aluminium métallique est immiscible dans l'électrolyte. En raison de sa densité supérieure d'environ 10% à celle de l'électrolyte, le métal forme une



nappe au fond de la cuve et recouvre la cathode. C'est le métal liquide qui joue effectivement le rôle de cathode. Le bain électrolytique et le métal forment un système à deux phases séparées par une interface libre.  $(\ell_2)$  /  $(i)$

Dans une cuve industrielle, l'anode est subdivisée en une série de blocs anodiques d'environ  $1\text{m}^3$  chacun. Les blocs anodiques sont typiquement arrangés selon deux rangées parallèles. L'espace qui sépare les deux rangées est appelé canal central. Cette subdivision en blocs anodiques permet d'adapter individuellement la position verticale de chaque bloc, ainsi que de les remplacer individuellement sans perturber l'opération de la cuve. *on pourrait pu le mettre sur la figure*

L'électrolyte est alimenté en courant électrique à travers les blocs anodiques plongés dans le bain et maintenus dans la partie supérieure de celui-ci par un pont qui sert à la fois de support mécanique et de conducteur électrique. Le courant électrique traverse l'électrolyte, le métal liquide et atteint la cathode en carbone placée au fond de la cuve. Finalement, le courant est conduit en dehors de la cuve à travers des conducteurs horizontaux appelés *barres bus* placés sous la cathode. L'intensité du courant électrique qui traverse une cuve d'électrolyse industrielle peut atteindre 500kA, et jusqu'à 1MA dans les cuves les plus modernes.

Les courants électriques importants qui traversent la cuve d'électrolyse ainsi que les nombreuses cuves voisines dans une usine de production génèrent des champs d'induction magnétique importants. Le passage du courant électrique dans l'électrolyte et le métal en présence du champ d'induction magnétique engendre des forces de Lorentz qui mettent les fluides en mouvement.

Par la réaction d'électrolyse, l'alumine dissoute est transformée en aluminium métallique au niveau de l'interface avec le métal liquide, qui joue le rôle de cathode. Du côté de l'anode, l'électrolyse produit de l'oxygène, qui se recombine immédiatement avec le carbone de l'anode. Le  $\text{CO}_2$  qui en résulte forme des bulles millimétriques qui remontent à la surface pour s'échapper. Cette production de  $\text{CO}_2$  liée à l'oxydation du carbone provoque l'érosion des anodes au cours du temps. Régulièrement, la position verticale de chaque anode est ajustée pour compenser son érosion. Finalement, chaque anode arrivant en fin de vie doit être remplacée par une anode neuve. Ceci intervient environ une fois par jour et par cuve. \*

Le mouvement des fluides dans les cuves d'électrolyse est un aspect important pour plusieurs raisons, et qui a déjà fait l'objet de nombreuses études. On peut consulter par exemple les travaux de S. Pain [Pai06], Y. Safa (Safa2009), G. Steiner [Ste09] et S. Flotron [Flo13]. Le bain électrolytique est l'élément du circuit électrique qui est responsable, en raison de sa faible conductivité électrique, de l'essentiel de la production d'énergie thermique par effet Joule. Pour minimiser ces pertes d'énergie thermique, on cherche à minimiser la distance parcourue par le courant électrique entre les anodes et l'interface entre le bain et le métal. Cependant, les mouvements dans les fluides perturbent la forme de l'interface. En particulier, on cherche à tout prix à éviter que le métal entre en contact avec les anodes, et crée un court circuit. Une telle situation, qui risque de déstabiliser le système et perturber les cuves voisines, est à éviter à tout prix. Dans une cuve industrielle moderne, l'écart entre le plan anodique et l'interface, abrégée ACD<sup>1</sup>, est de l'ordre de 20mm à 40mm. *numériques* *pourquoi en gros ?* \* \*

A intervalles réguliers, de l'oxyde d'aluminium sous forme de poudre solide est injecté dans le bain afin de compenser la concentration consommée par la réaction d'électrolyse (1.2). La surface du bain est protégée par une croûte de bain solidifié et de poudre *Supérieure* \*

1. ACD est l'acronyme anglais de *Anode Cathode Distance*

(a) voir la Figure 1.1

d'alumine. Pour pouvoir injecter de l'alumine dans le bain, un piqueur perce cette croûte mécaniquement. Pour cette raison, l'injection d'alumine ne peut avoir lieu que de façon discontinue. La poudre est ensuite libérée par l'injecteur par doses d'environ 1kg au niveau de la surface du bain électrolytique, dans le canal central entre les deux rangées d'anodes. (cf Figure 1.1) Le transport de cette poudre dans l'ensemble du bain et sa dissolution dépendent fortement du mouvement du fluide. On cherche un équilibre fin entre des écoulements qui déforment peu l'interface bain-métal, mais suffisamment fort pour assurer le transport et la dissolution de la poudre d'alumine dans toutes les parties du bain électrolytique.

(d) voir p. 8

Le bain électrolytique, maintenu au-dessus de sa température de fusion, est un milieu extrêmement corrosif, y compris pour les structures qui servent à le contenir. Pour allonger la durée de vie des cuves, on cherche à minimiser les surfaces de contact avec le bain liquide. En particulier, on essaye de maintenir une couche de bain solide le long des parois, appelée talus, pour les protéger des attaques corrosives du bain liquide. On y arrive en cherchant un équilibre thermique qui dépend du flux d'énergie au niveau des parois et de la convection de la chaleur produite dans le bain par les mouvements des fluides. Pour ces différentes raisons, une bonne compréhension et maîtrise des écoulements dans une cuve d'électrolyse est essentielle à la bonne opération de celle-ci.

Au moment de l'injection, l'alumine se trouve dans un état cristallin, à une température d'environ 350°C. Lorsque les particules d'alumine entrent en contact avec le bain, une couche de bain solidifié se forme immédiatement à la surface de celles-ci, sont convectées par l'écoulement dans le fluide et chute dans le bain sous l'action de la gravité.

Une fois la couche de bain gelé qui enveloppe les particules refondues, celles-ci se dissolvent peu à peu. Dans certaines conditions, les particules s'agglomèrent et forment des agrégats qui descendent rapidement dans le bain et atteignent l'interface. Si la taille des agrégats est suffisante, il arrive qu'ils pénètrent le métal et terminent leur course au fond de la cuve, risquant de recouvrir peu à peu la cathode et de l'isoler électriquement [GWH16].

La température du bain joue un rôle crucial au niveau du comportement de l'alumine nouvellement injectée. Pour des raisons d'économie d'énergie, le bain est maintenu aussi proche que possible de la température de fusion de la cryolite, avec des surchauffes typiques de l'ordre de 10°C ou moins. Plus cette surchauffe est faible, plus l'impact sur la dissolution de l'alumine est important. Le temps nécessaire pour refondre la couche de bain gelé à la surface des particules augmente lorsque la surchauffe diminue. Dans la limite où la surchauffe est nulle, ce temps devient infini. De plus, la réaction de dissolution de l'alumine cristalline dans le bain est un processus endothermique. Il faut alors fournir une quantité d'énergie thermique non négligeable pour dissoudre les particules. Cette énergie est disponible uniquement si la surchauffe du bain environnant est suffisante.

L'ensemble de la cuve est placée dans un caisson, dont le matériau est choisi pour ses propriétés ferromagnétiques. La présence du caisson permet d'écranter une partie du champ d'induction magnétique et réduire l'intensité de celui-ci dans les fluides. Les forces de Lorentz peuvent ainsi être contrôlées, et diminuer l'intensité des vitesses dans les fluides de la cuve [DFR98], [DFR91]. Le caisson permet également de contrôler plus finement la dissipation thermique sur les bords de la cuve et la formation des talus.

(h) voir Fig 1.1

L'ensemble de la partie supérieure de la cuve est recouverte par un couvercle qui limite les dissipations thermiques, permet la collecte des émanations gazeuses potentiellement toxiques résultant de la réaction d'électrolyse, et protège les opérateurs travaillant à proximité.

Il peut conclure cette partie dite "description des procédés" par dire les parties de la description qui ont été étudiées.  
Les références autres que celles du groupe Picasso manquant absolument!!!

Les particules

\*

\*

constitue l'intérêt du travail qui va suivre.

Les phénomènes sont étudiés numériquement dans cette thèse.

## 1.2 But du travail

Comme on a pu l'apprécier ci-dessus, l'opération d'une cuve d'électrolyse d'aluminium industrielle est une tâche complexe qui nécessite de maîtriser, entre autre, la production d'énergie thermique par effet Joule et sa dissipation à l'extérieur de la cuve, les écoulements dans les fluides et la répartition de la concentration d'alumine dans le bain.

De fait, l'optimisation de l'exploitation d'une cuve d'électrolyse de Hall-Héroult, tant en terme de consommation énergétique qu'en terme de qualité de métal produit et d'impact sur l'environnement est une tâche qui fait l'objet de recherche et développements s'étalant maintenant sur plus de 100 ans.

Dans cette thèse nous nous intéresserons à la modélisation numérique de certains phénomènes physiques qui interviennent dans le fonctionnement d'une cuve d'électrolyse. La distribution de la concentration d'alumine dissoute dans le bain est un aspect important de l'opération d'une cuve d'électrolyse. Si la distribution de la concentration d'alumine n'est pas suffisamment uniforme, certaines zones seront suralimentées, tandis que d'autres seront sous-alimentées. Dans un cas comme dans l'autre, la réaction d'électrolyse ne peut pas avoir lieu correctement dans ces zones, ce qui tend à déstabiliser l'ensemble du système, péjore le rendement du système et engendre des émanations gazeuses toxiques. Nous aborderons en particulier la modélisation de l'interaction entre la température du bain électrolytique au cours du temps et la dissolution et diffusion de la poudre d'alumine.

Nous proposerons une généralisation du modèle proposé par T. Hofer [Hof11] pour prendre en compte les nouveaux effets évoqués, dans le but d'améliorer son pouvoir de prédiction.

L'état d'une cuve d'électrolyse n'est pas figé : il évolue sans cesse au fil des changements d'anodes, des variations de cadence des injecteurs, ou encore des perturbations des cuves voisines de la série. Le modèle numérique existant, introduit par G. Steiner dans son travail de thèse [Ste09] et implémenté dans le logiciel Alucell, permet d'obtenir une approximation numérique de l'état des écoulements des fluides et de la concentration d'alumine dans une cuve d'électrolyse avec un temps de calcul de l'ordre de 24 à 48h. Il est donc impossible d'utiliser ce modèle pour obtenir des informations sur l'état d'une cuve à chaque instant de sa vie, en fonction de paramètres extérieurs. Dans cette thèse nous proposerons un modèle d'écoulement de fluide et de concentration d'alumine dissoute stationnaire simplifié, qui permet d'obtenir des informations sur l'état d'une cuve dans un laps de temps bien plus court, de l'ordre de la minute.

Les opérateurs des cuves industrielles devraient alors pouvoir tirer parti des prédictions de ce modèle pour contrôler l'état des cuves et agir plus rapidement et de manière mieux informée dans les conditions d'exploitation exceptionnelles. ✕

## 1.3 Organisation du document

Ce travail se divise en deux parties. Dans la partie I, on considère plusieurs effets physiques liés à la gravité et aux interactions thermiques entre les particules d'alumine et le bain environnant, que l'on exprime sous forme de modèles mathématiques. On propose ensuite une extension du modèle de transport et dissolution d'alumine, introduit dans le travail de thèse de T. Hofer [Hof11], pour tenir compte de l'effet de la gravité sur la trajectoire des particules d'alumine et de l'effet de la température du bain sur leur dissolution. Dans la partie II on s'intéresse à diminuer le coût de calcul de l'écoulement dans le

bain électrolytique et le métal liquide. On propose une méthode numérique basée sur une décomposition en harmoniques de Fourier du problème de Stokes dans la dimension verticale. On propose de plus une méthode pour approximer la distribution de concentration d'alumine dans le bain électrolytique, sans recourir au calcul d'une solution transitoire.

Le paragraphe est à reconsiderer avec une description plus détaillée.

Ex: La partie I de ce travail concerne plusieurs phénomènes physiques liés à la dissolution de particules d'alumine et de populations de particules d'alumine dans un bain électrolytique. Nous commençons par étudier la solidification et liquéfaction du bain électrolytique autour d'une particule d'alumine de température  $80^{\circ}\text{C}$  injectée dans un bain à  $560^{\circ}\text{C}$ . (Paragraphe I.1.2...)  
Puis nous considérons ... (paragraphe I.1.3...)  
etc.

---

## **Première partie**

# **Transport et dissolution de particules d'alumine**



## Chapitre 2

# Particules d'alumine dans un bain électrolytique





## **Chapitre 3**

# **Populations de particules**



## Deuxième partie

# Approximation d'écoulement dans le bain électrolytique



## Chapitre 4

# Une méthode numérique pour le calcul de l'écoulement de Stokes



# Bibliographie

- [DFR91] Jean DESCLOUX, Michel FLUECK et M.V. ROMERIO. "Modelling for instabilities in Hall-Heroult cells : Mathematical and numerical aspects". In : (jan. 1991), p. 107–110.
- [DFR98] Jean DESCLOUX, Michel FLUECK et M.V. ROMERIO. *"A modelling of the stability of electrolysis cells"*. Jan. 1998. ISBN : 0 582 36926 6.
- [Flo13] Stéphane FLOTRON. "Simulations numériques de phénomènes MHD-thermiques avec interface libre dans l'électrolyse de l'aluminium". In : 5738 (2013).
- [Grj77] K. GRJOTHEIM. *Aluminium Electrolysis : The Chemistry of the Hall-Héroult Process*. Aluminium-Verlag, 1977. ISBN : 9783870171292.
- [GWH16] Pierre-Yves GEAY, Barry J. WELCH et Pierre HOMSI. "Sludge in Operating Aluminium Smelting Cells". In : *Essential Readings in Light Metals : Volume 2 Aluminum Reduction Technology*. Sous la dir. de Geoff BEARNE, Marc DUPUIS et Gary TARCY. Cham : Springer International Publishing, 2016, p. 222–228. ISBN : 978-3-319-48156-2. DOI : 10.1007/978-3-319-48156-2\_32.
- [Hof11] Thomas HOFER. "Numerical Simulation and Optimization of the Alumina Distribution in an Aluminium Electrolysis Pot". Thèse de doct. 2011.
- [Pai06] Sonia PAIN. "Simulation numérique du mouvement des fluides dans une cellule de Hall-Heroult". Thèse de doct. 2006.
- [Ste09] Gilles STEINER. "Simulation numérique de phénomènes MHD : Application à l'électrolyse de l'aluminium". Thèse de doct. 2009.