

Je trouve l'introduction claire et bien écrite !

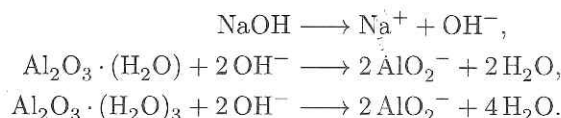
Chapitre 1

Introduction

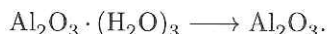
{chap:introduction}

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 Al_2O_3 (appelé également alumine). L'alumine est un constituant de différents minerais, mais seul la bauxite est utilisée pour la production de l'aluminium [Nor18].

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 182.9 millions de tonnes de bauxite au cours de l'année 2015 [Bra17]. Le procédé de Bayer permet ensuite d'isoler et purifier l'alumine de la bauxite. Après concassage et broyage du minerai, 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 :



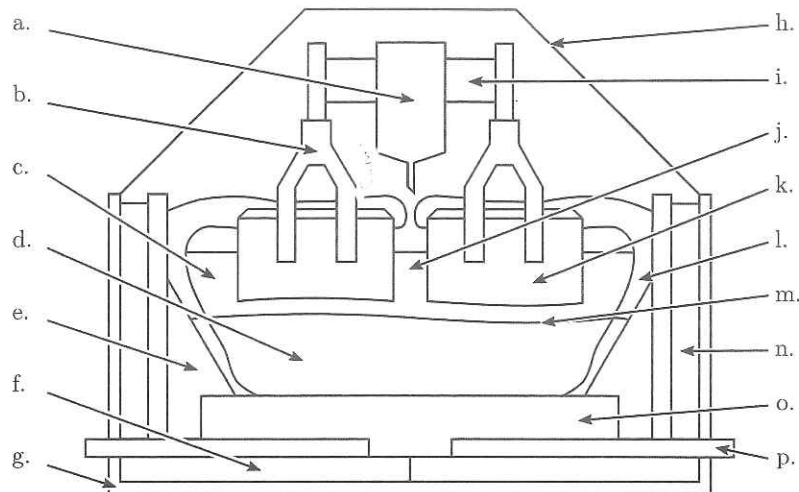
La deuxième partie du processus consiste à inverser la réaction d'oxydation pour finalement obtenir de l'aluminium sous forme métallique.

Cette deuxième partie, qui porte les noms de ses deux inventeurs Paul Héroult et Mark Hall, s'effectue industriellement dans des cuves d'électrolyse, à haute température et sous l'influence de forts champs d'inductions. Ce travail traite de la modélisation numérique de certains aspects du procédé de Hall-Héroult, que nous décrivons plus en détail dans la section qui suit.

1.1 Procédé de Hall-Héroult

{sec:introduction-hall-heroult}

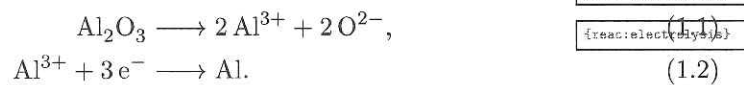
On donne dans cette section un bref aperçu du procédé de Hall-Héroult. Le lecteur intéressé peut trouver de plus amples informations dans le travail de [Grj77].



- | | |
|---|-------------------------------------|
| a. Piqueur, injecteur de dose d'alumine | i. Pont supportant le plan anodique |
| b. Broches de connexions des anodes | j. Canal central |
| c. Bain électrolytique | k. Anodes |
| d. Aluminium métallique liquide | l. Talus, croûte de bain solidifiée |
| e. Pâte de brasquage | m. Interface bain-métal |
| f. Isolation réfractaire | n. Isolation réfractaire |
| g. Caisson | o. Cathode |
| h. Couvercle | p. Barres bus collectrices |

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

Le procédé consiste à dissoudre l'oxyde d'aluminium dans un bain composé de cryolite, 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 transversale schématisée est représentée par la figure 1.1. Le bain électrolytique (voir fig. 1.1.m), dont le rôle est de permettre la dissociation des ions Al^{3+} et 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°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 (o. sur la fig. 1.1). Le tout est soutenu par une structure appelée cuve. Les briques réfractaires (f, n.) 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 (o.). La température de fusion de l'aluminium étant de 660.3°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 (m.).

Dans une cuve industrielle, l'anode est subdivisée en une série de blocs anodiques (k.) d'environ 1m^3 chacun. Les blocs anodiques sont typiquement arrangés selon deux rangées parallèles. L'espace qui sépare les deux rangées est appelé canal central (j.). 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.

L'électrolyte est alimenté en courant électrique à travers les blocs anodiques plongés dans le bain. Les blocs anodiques sont fixés à l'aide de broches (b.) à un pont (i.) 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* (p.) 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 CO_2 qui en résulte forme des bulles millimétriques qui remontent à la surface pour s'échapper. Cette production de 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 numériques. On peut consulter par exemple les travaux de S. Pain [Pai06], Y. Safa [SFR09], G. Steiner [Ste09] et S. Flotron [Flo13] à ce sujet. 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 ACD¹, est de l'ordre de 20mm à 40mm.

les ?
suggestion:
"ce qui créerait
un court circuit"

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

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 supérieure du bain est protégée par une croûte de bain solidifié et de poudre d'alumine. Pour pouvoir injecter de l'alumine dans le bain, un piqueur (a. sur la figure 1.1) 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 (j.) entre les deux rangées d'anodes. Le transport de cette poudre dans l'ensemble du bain et sa dissolution dépendent fortement du mouvement du fluide. On cherche un équilibre entre des écoulements qui déforment peu l'interface bain-métal, mais suffisant pour assurer le transport et la dissolution de la poudre d'alumine dans toutes les parties du bain électrolytique.

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 (l. sur la figure 1.1), 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 150°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. Ces particules sont convectées par l'écoulement dans le fluide et chutent dans le bain sous l'action de la gravité.

Une fois la couche de bain gelée 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]. Le transport et la dissolution des particules d'alumine constitue l'intérêt du travail qui va suivre.

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. Ces phénomènes seront étudiés numériquement dans cette thèse.

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

i'enlèverais
ces 2 phrases
w que tu en
parles en
fin de section
(cf ①)

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.

L'ensemble de la partie supérieure de la cuve est recouverte par un couvercle (h.) 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.

Dans cette thèse nous traiterons, dans une première partie, de la modélisation numérique du transport et de la dissolution des particules d'alumine suite à leur injection dans le bain électrolytique par les injecteurs. Plus précisément, nous nous intéresserons à l'interaction entre la dissolution des particules et de la température du bain dans leur voisinage. Dans une deuxième partie, nous nous pencherons sur la modélisation des écoulements dans la cuve. Nous proposerons un modèle numérique qui permette le calcul de la vitesse des fluides quasiment en temps réel.

1.2 But du travail

{sec:introduction-aims}

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