

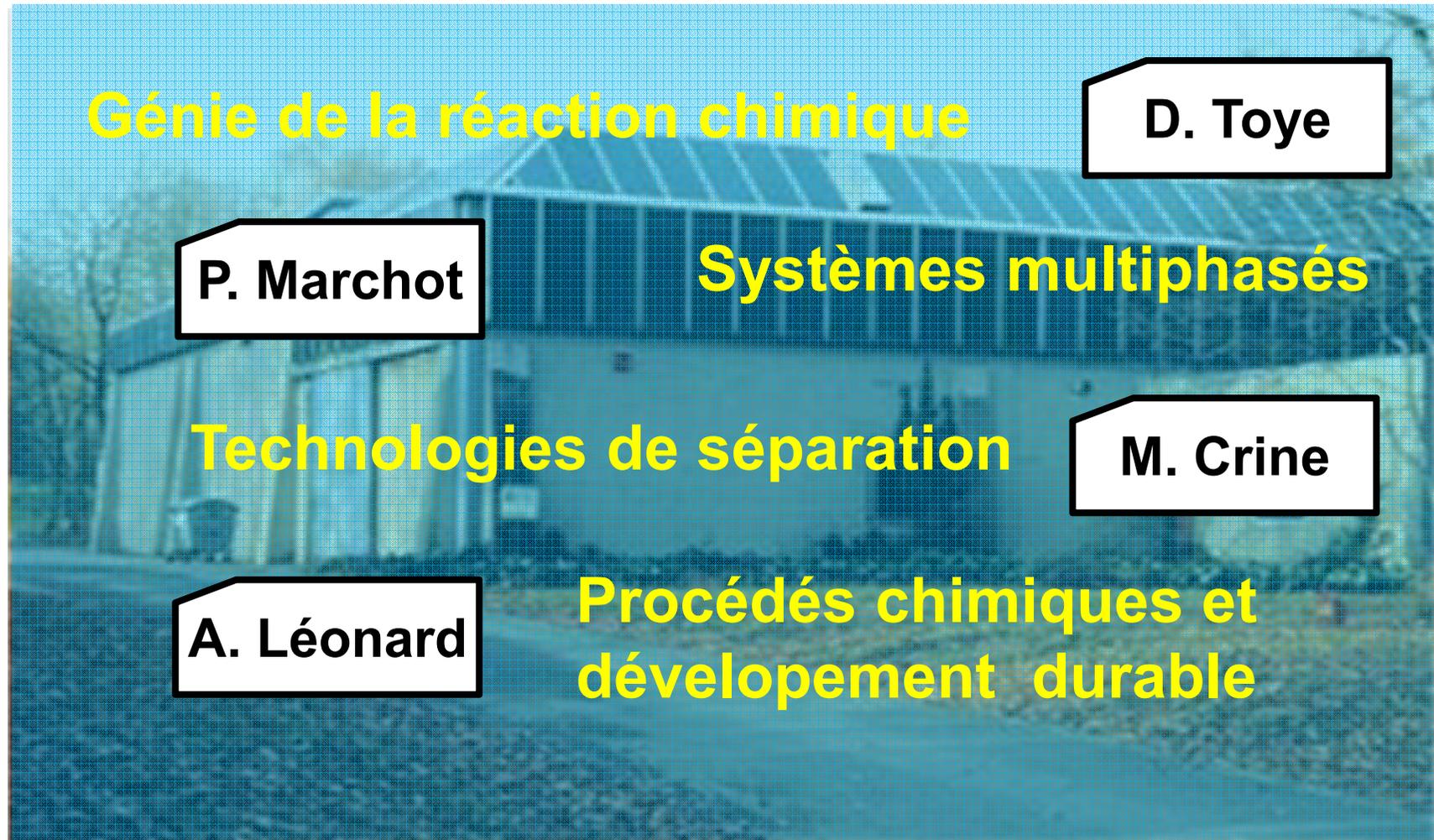


Approche de la Complexité en Génie des Procédés

M. Crine

Laboratoire de Génie chimique
Université de Liège, *Belgique*

Le travail d'une équipe au LGC (*)



Qu'est-ce qu'un système complexe ?

■ Intuitivement :

- Un très grand système « hyper compliqué », constitué d'un grand nombre de parties constitutives interagissant les unes avec les autres.

■ Plus rigoureusement :

- Un très grand système, constitué d'un grand nombre d'entités en interaction qui empêchent l'observateur de prévoir son comportement ou évolution :
 - émergence de propriétés nouvelles
 - incertitude
- La complexité est une notion développée en:
 - en Théorie de l'information,
 - en Philosophie,
 - en Physique,
 - en Biologie et...
 - en Génie des procédés

Systemes multi-échelles

- Le caractère “multi-échelles” est inhérent à la plupart des procédés de l’industrie chimique:
 - Liens entre propriétés (réactivité, cinétiques de transfert,..) micro- ou nanoscopiques et les propriétés d’usage « macroscopiques » ou les performances du procédé.
 - Une multitude d’échelles spatiales et temporelles
 - Une multitude d’interactions complexes, non linéaires entre ces échelles.
- Le caractère “multi-échelles” est indissociablement lié à la “complexité” du comportement du système.
- La prise en compte de ces interactions est indispensable au développement de modèles plus performants

Comment approcher la complexité ?

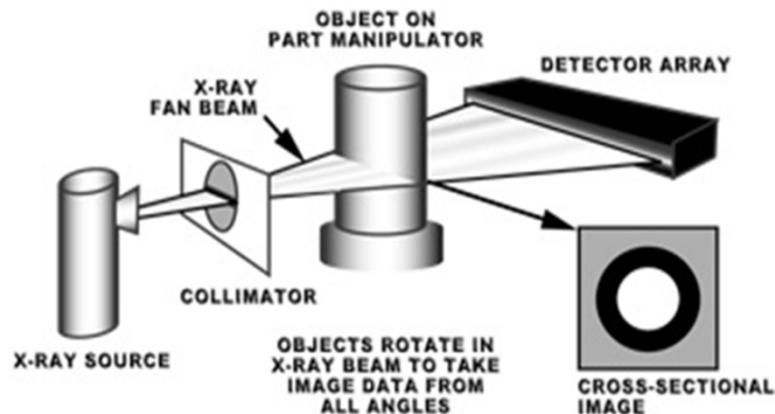
- Par le développement d'outils nouveaux tant sur le plan de la modélisation que sur celui de l'expérimentation.
- Sur le plan de la modélisation
 - Choix d'une série de modèles, relatifs à chaque échelle considérée et +/- fortement couplés.
 - Caractérisation des couplages, c.-à-d. de modèles d'interactions, entre échelles.
 - Choix de solveurs 'multi-niveau'.
- Sur le plan de l'expérimentation: Les techniques de visualisation non intrusives.
 - Les techniques tomographiques
 - Les techniques de vélocimétrie optique
 - Les techniques de trajectographie

La tomographie RX : les principes

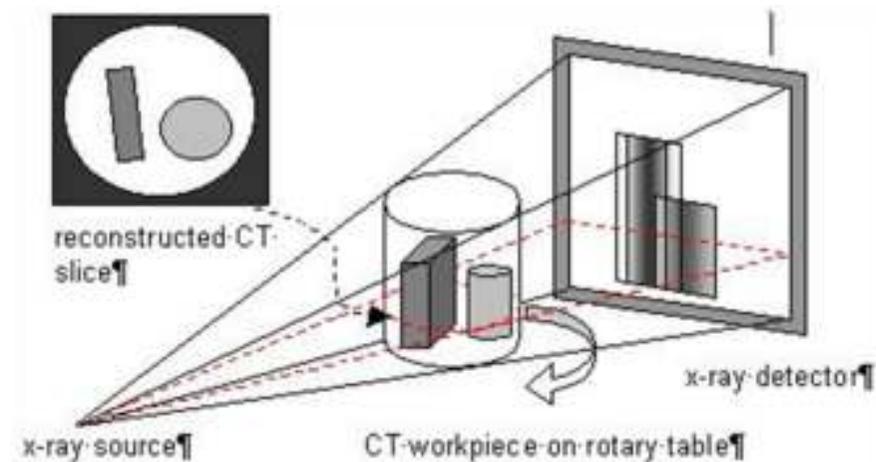
■ Objectifs

- Obtenir une image 2D ou 3D d'un objet en l'irradiant avec des rayons X sous de nombreux angles, en utilisant :
 - un faisceau plan angulaire (2D) ou
 - Un faisceau conique (3D)

Faisceau plan angulaire



Faisceau conique

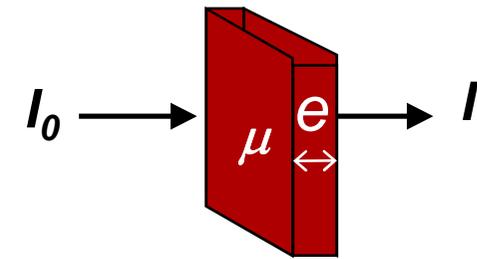


La tomographie : les principes

■ Rappels théoriques

- Techniques de visualisation basée sur la transmission d'un rayonnement (RX, γ ,...):

La loi de Beer-Lambert : $\frac{dI}{I} = -\mu de$



- μ : coefficient d'atténuation
 - $\mu = \text{const.}$: matériau homogène
 - $\mu = \text{fct.}(e)$: matériau hétérogène

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-\mu e)$$

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-\int_e \mu(e) de\right)$$



L'atténuation de l'intensité d'un rayonnement (X) lors de son parcours dans l'objet dépend des valeurs locales des coefficients d'atténuation rencontrées.

La tomographie RX : les principes

■ Le coefficient d'atténuation μ dépend :

- des propriétés du matériau
 - la densité ρ
 - le nombre atomique Z
 - la masse atomique A
- de l'énergie des rayons X E

$$\mu(E) = a \rho \frac{1}{E^n} \frac{Z^m}{A}$$

n and m dépendent de de la gamme d'énergie RX:

- Aux faibles énergies:
 $m = 3.8$; $n = 3.2$
- Aux fortes énergies:
 $m = 1$; $n = 1$

■ Les facteurs les plus importants :

- La densité (gaz-solide ; gaz-liquide) ρ^1
- Le nombre atomique : aux faibles énergies $\sim Z^2$ ($Z/A \sim \text{cte}$)
aux fortes énergies $\sim Z^0$ ($Z/A \sim \text{cte}$)

L'algorithme de reconstruction

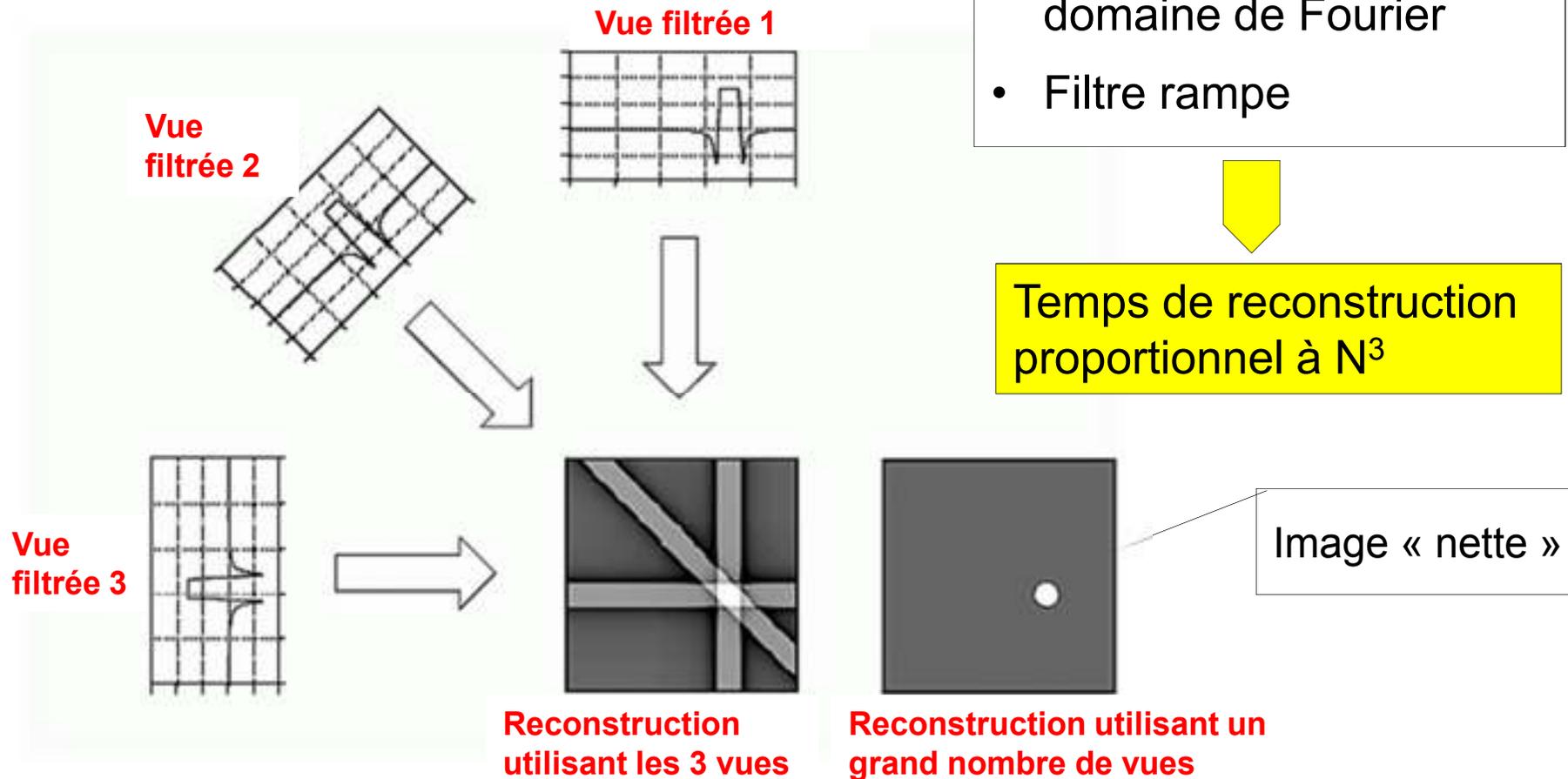
■ Rétroprojection filtrée



- Transformation dans le domaine de Fourier
- Filtre rampe



Temps de reconstruction
proportionnel à N^3

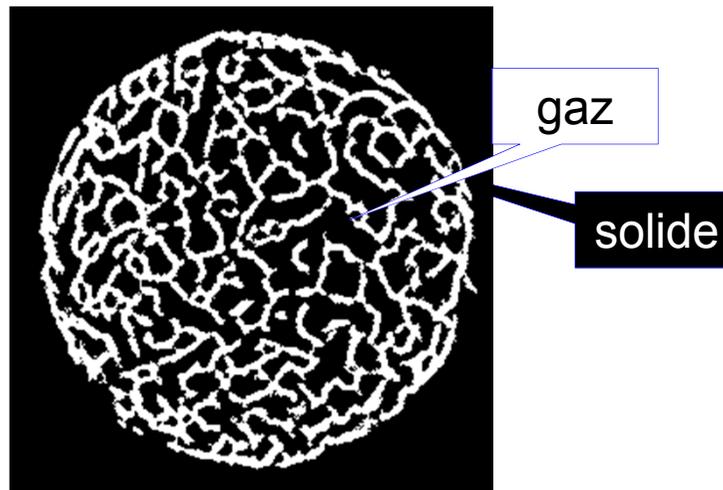


Un premier domaine d'application

- **La différence de densité:**

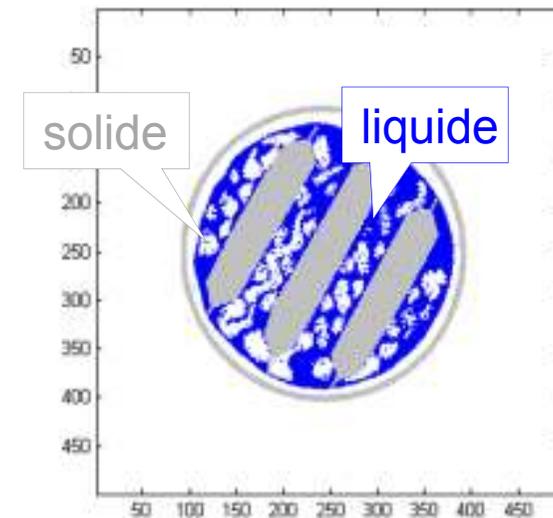
La tomographie RX permet de distinguer des phases en fonction de la différence de densité, par exemple:

*Un gaz et un solide dans
matériau poreux (bois de cerf)*



Léonard et al.(2007).
Journal of Microscopy-Oxford
225(Pt 3), 258-263

*Un gaz et un liquide dans un
contacteur gaz-liquide*



Aferka et al.(2010).
Canadian Journal of Chemical Engineering
88(4), 611-617

Un second domaine d'application

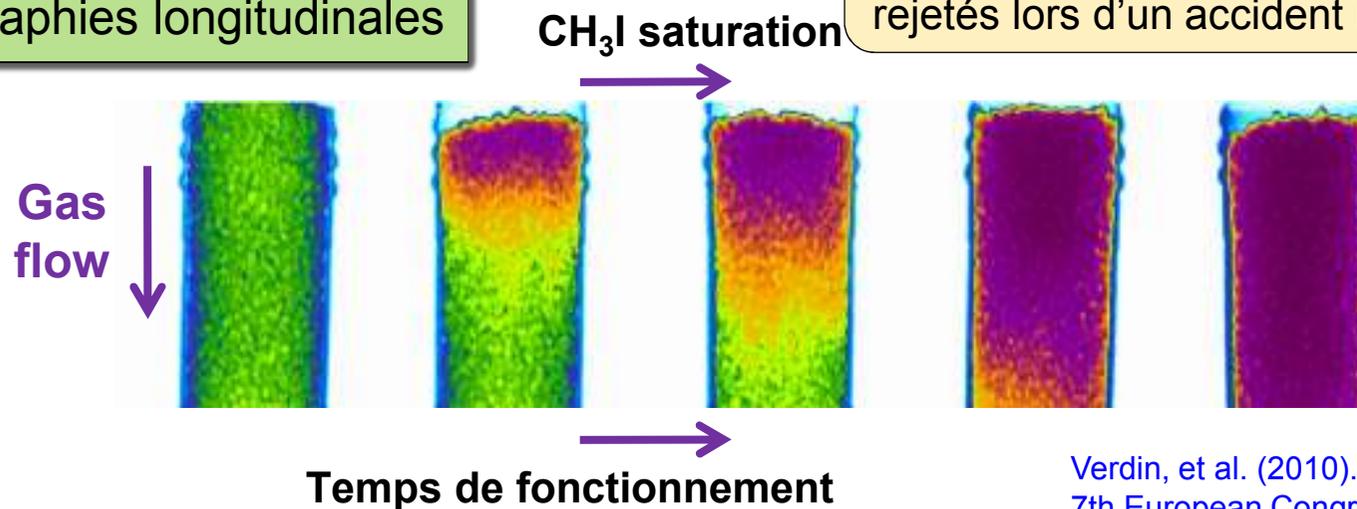
- **La différence de composition chimique :**

La tomographie RX permet de distinguer des phases en fonction de la différence de **nombre atomique**, par exemple:

L'adsorption de CH_3I ($Z_I = 53$) sur charbon actif ($Z_C = 6$) utilisé dans le filtre d'un masque à gaz

L'isotope radioactif de CH_3I est l'un des composés majeurs rejetés lors d'un accident nucléaire

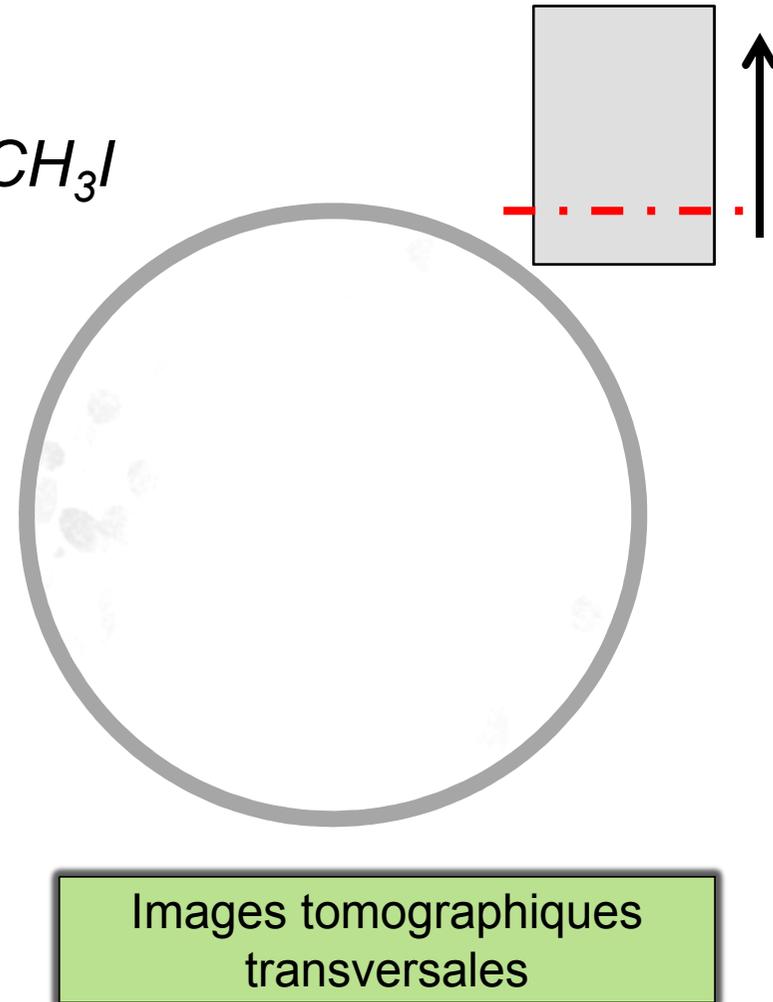
Radiographies longitudinales



Verdin, et al. (2010).
7th European Congress of Chemical
Engineering (ECCE7), Prague

Adsorption dans un lit de charbon actif

- Suivi du front de saturation en CH_3I
 - Succession d'images tomographiques de sections droites du lit.
 - De la sortie vers l'entrée du lit
 - Images en niveau de gris (augmentant avec la saturation en CH_3I)
 - Diamètre du lit : 14 mm
 - Diamètre part. : ~ 1mm



Analysons deux exemples

- Etude de l'écoulement gaz-liquide dans les empilages en utilisant
la technique de (macro)tomographie à rayons X
- L'étude de l'écoulement de gaz dans un milieu poreux en utilisant
la technique de (micro)tomographie à rayons X

Un premier exemple

- Etude de l'écoulement gaz-liquide dans les empilages en utilisant
la technique de (macro)tomographie à rayons X
- L'étude de l'écoulement de gaz dans un milieu poreux en utilisant
la technique de (micro)tomographie à rayons X

La (macro)tomographie RX

- Les équipements de (macro)tomographie doivent permettre de visualiser des objets de grande taille (**résolution spatiale**) et assez dense (**hautes énergies RX**)
- Il n'existe pas d'équipement standard commercial
- Un exemple : l'unité haute résolution, haute énergie du LGC

Plus d'info sur.

<http://www.chimapp.ulg.ac.be/pdf/LGC/RX420.pdf>

Source RX

Tache focale : 0.8 mm

Voltage : 30-420 kV

Courant : 2-8 mA

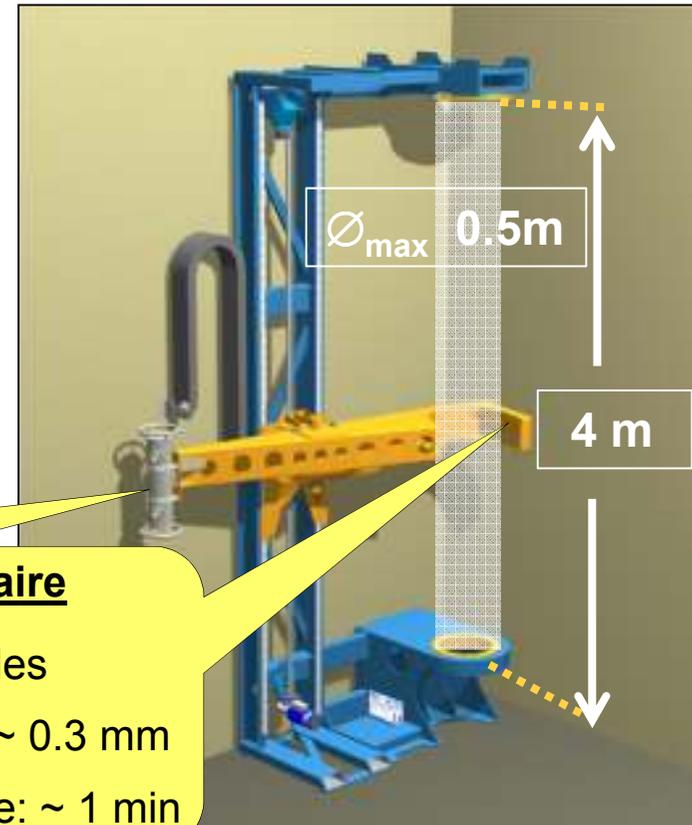
Faisceau plan angulaire (40°)

Detecteur linéaire

1280 photodiodes

Rés. spatiale : ~ 0.3 mm

Rés. Temporelle: ~ 1 min



Les équipements de macrotomographie

- Un nombre croissant d'équipements de macrotomographie disponibles, à l'échelle mondiale, dans des labos de Génie chimique :

- ❑ *Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (DE)*
(**Rayons X, rapide**)

- ❑ *University of Texas at Austin (USA)*
(**Rayons X**)

- ❑ *IIT Delhi (IN)*
(**Rayons gamma**)

- ❑ *IFP-EN (FR)*
(**Rayons gamma**)

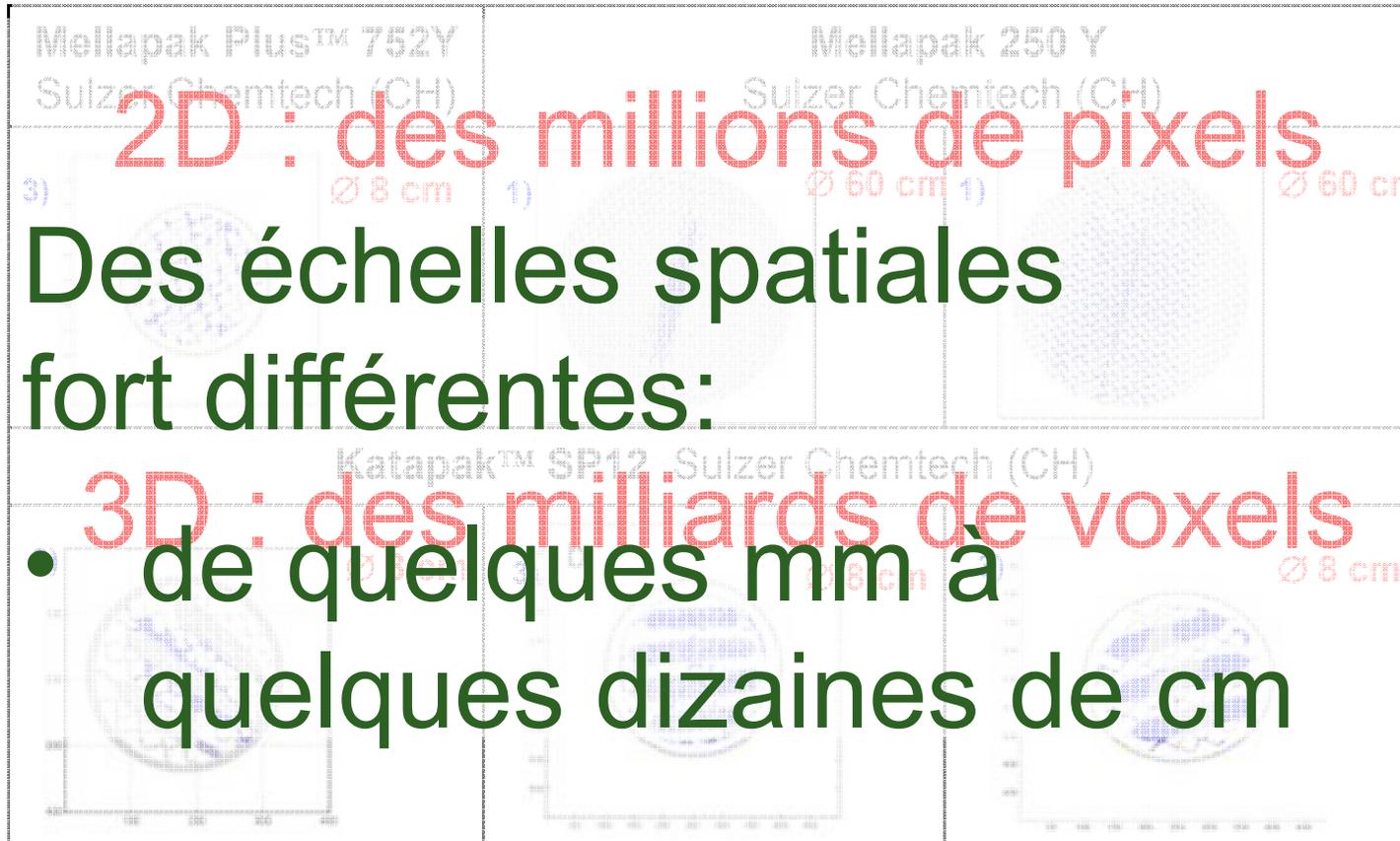
- ❑ *Missouri University of Science and Technology (USA)*
(**Rayons gamma**)

- **+/- rapide**
- **Haute résolution**

- **+ lent**
- **Résolution moyenne**
- **+ forte pénétration**

Analyse de la distribution du liquide

- Quelques exemples



1) Olujić et al. ,
2001 Houston
AIChE
Distillation
symposium

2) Aferka et al.,
2008,
CHISA'2008

3) Viva et al. ,
2011, CHERD

Comment en extraire une information ?

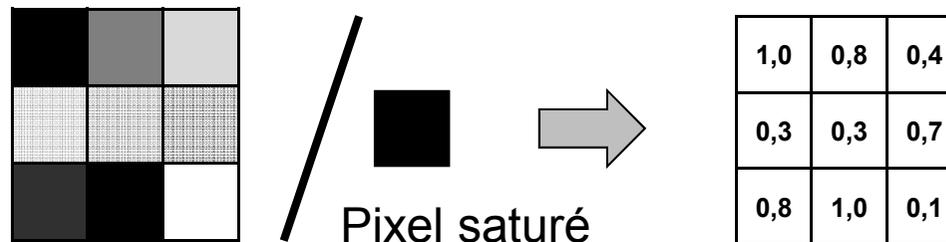
- Les données (mesures) issues de la tomographie sont souvent perçues comme “surabondantes” .
(« **Data rich, information poor** »)
 - Comment en extraire un ou plusieurs **métriques** caractérisant :
 - Les propriétés du système (matériau)
 - Le comportement hydrodynamique du système (appareil)
- **A quelle échelle ?**

Comment en extraire une information ?

1. Estimation d'une première **métrique**: la valeur moyenne de la rétention de liquide

■ Procédure

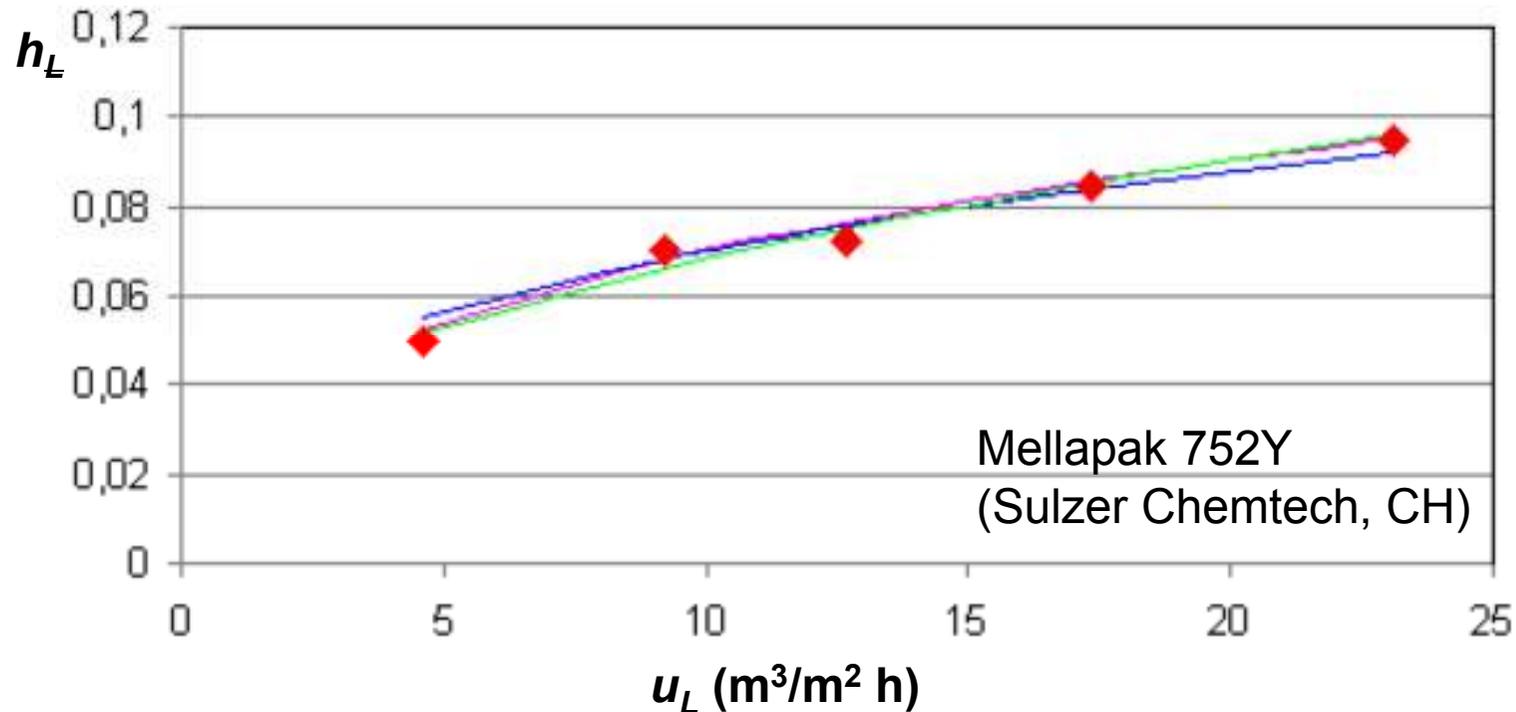
- Seuillage \Rightarrow élimination du bruit de fon numérique
- Normalisation : conversion des échelles de gris (atténuation RX) en valeurs locales de rétention de liquide



↪ Distribution des valeurs locales de la rétention liquide \Rightarrow valeur moyenne

La rétention moyenne en liquide

- Un traitement simple qui peut être aisément validé :
Comparaison avec des corrélations de la littérature



S. Aferka et al.
Chem. Engn. Sci.,
66, 3413-3422,
2011

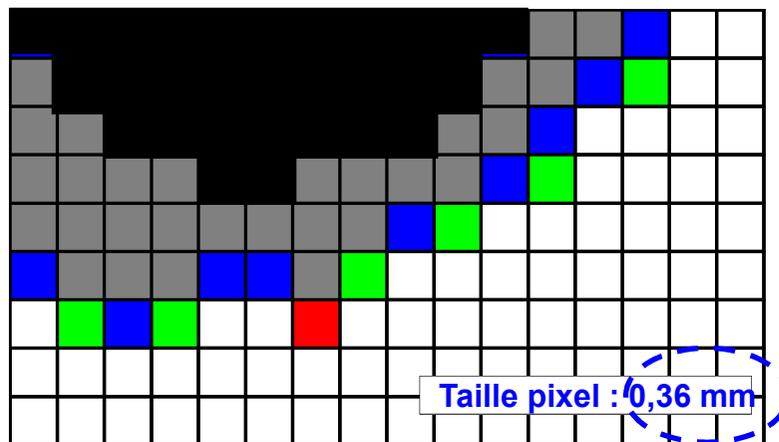
◆ : mesures tomographiques
— : corrélation Spiegel et al.

— : corrélation Olujic et al.
— : corrélation Sulcol (Sulzer)

Comment en extraire une information ?

2. Estimation d'un deuxième **métrique** : la valeur moyenne de l'aire interfaciale (gaz-liquide)

□ Dénombrement des pixels « interfaciaux »



□	Gaz	
■	Solide	
■	Liquide	
■	Liquide, 1 voisin 'gaz'	0
■	Liquide, 2 voisins 'gaz'	1
■	Liquide, 3 voisins 'gaz'	2
■		3

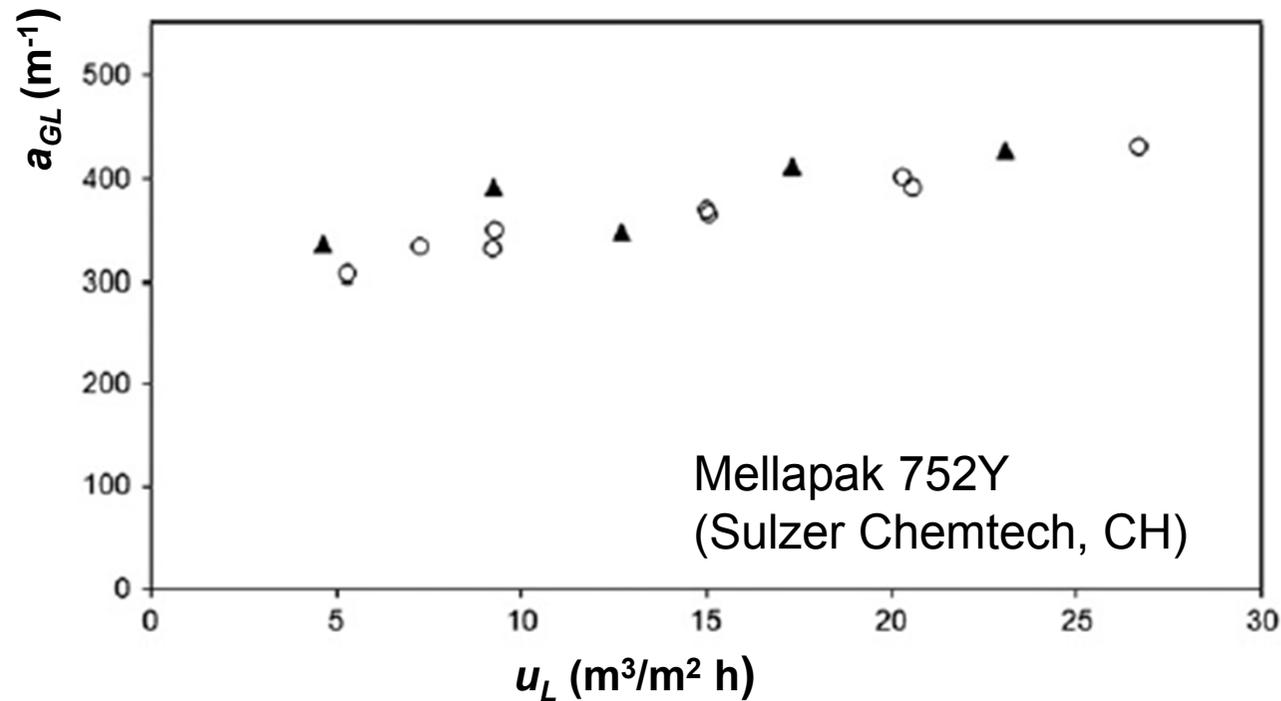
- Pixels 'liquide' comptabilisés en fonction du nombre de voisins 'gaz'

- Aire interfaciale '2D' a_{GL}

$$a_{GL} = \frac{\sum_{nt} 0.36 \times nb_{vois.}}{0.36 \times 0.36 \times nt}$$

L'aire interfaciale gaz-liquide moyenne

- Un traitement encore assez simple de l'image mais qui est parfaitement validé par comparaison avec une technique différente: *la méthode chimique*



S. Aferka et al.
Chem. Engn. Sci.,
66, 3413-3422,
2011

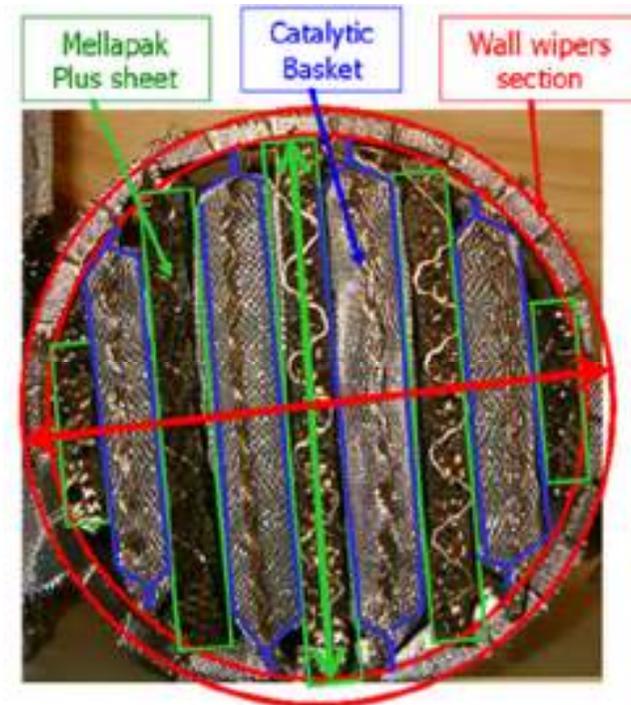
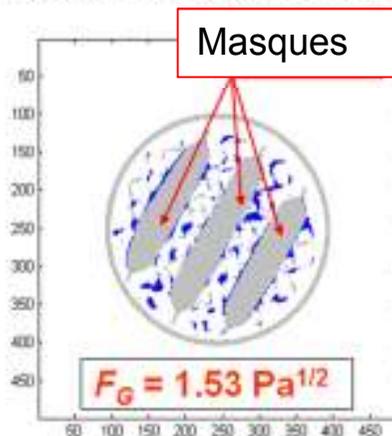
▲ : mesures tomographiques ○ : méthode chimique (absorption de CO_2)

Comment en extraire une information ?

3. Evaluation d'un troisième métrique : la rétention de liquide à différentes échelles intermédiaires

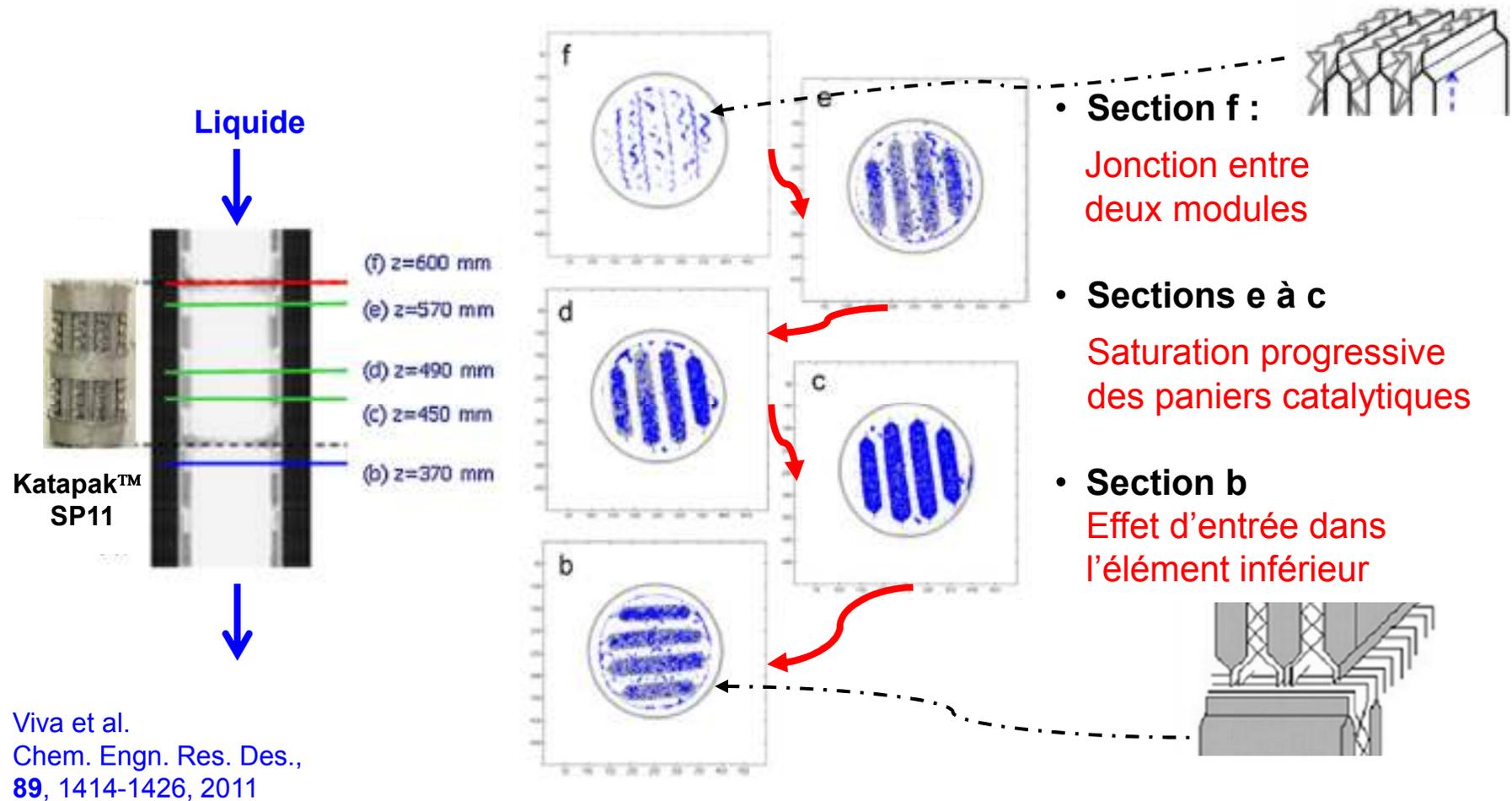
- Analyse de la répartition du liquide entre les zones de contact et les zones catalytiques (paniers) d'un empilage de distillation catalytique.
- Le Katapak™ SP11 (Sulzer Chemtech)

En appliquant des masques sur les zones de contact et les zones catalytiques, on peut dénombrer séparément les pixels appartenant aux deux zones



Comment en extraire une information ?

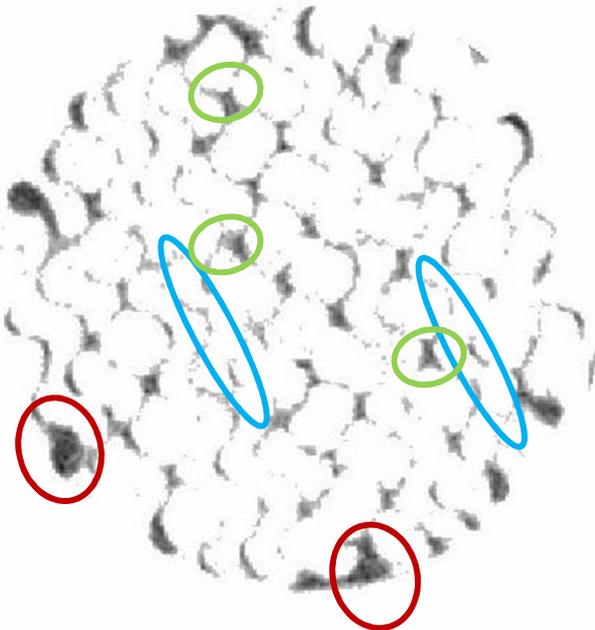
- Analyse de la variation axiale de la rétention de liquide



Comment en extraire une information ?

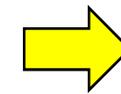
4. Evaluation de **métriques** liés à la morphologie de la rétention liquide

- Comment caractériser la structure d'écoulement du liquide ?



Classification de la rétention de liquide en :

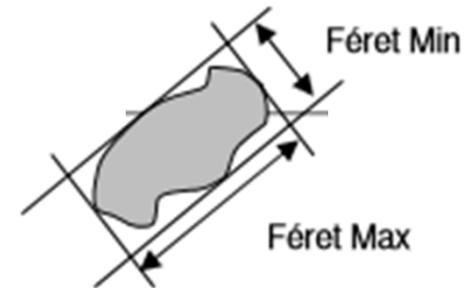
- Films
- Filets
- Canaux noyés



Analyse morphologique

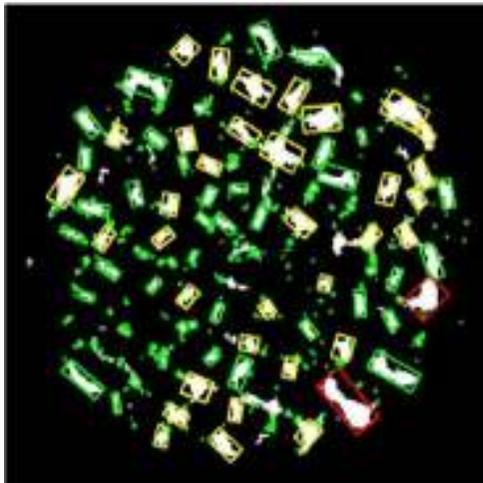
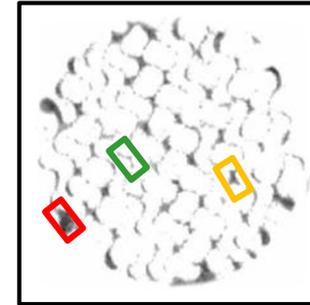
Analyse morphologique

- Détermination des diamètres de Féret min et max de chaque structure d'écoulement.
 - F_{\min} et F_{\max}
- Détermination du rapport d'aspect RA
 - $RA = F_{\min} / F_{\max}$
- Classification
 - $RA < 0,5$ \Rightarrow Structure d'écoulement en film (forme allongée)
 - $RA > 0,5$ et $F_{\min} > 9 \text{ mm}$ \Rightarrow Structure d'écoulement en filet (forme arrondie)
 - $F_{\min} > 9 \text{ mm}$ \Rightarrow Structure d'écoulement en canaux noyés arrondie



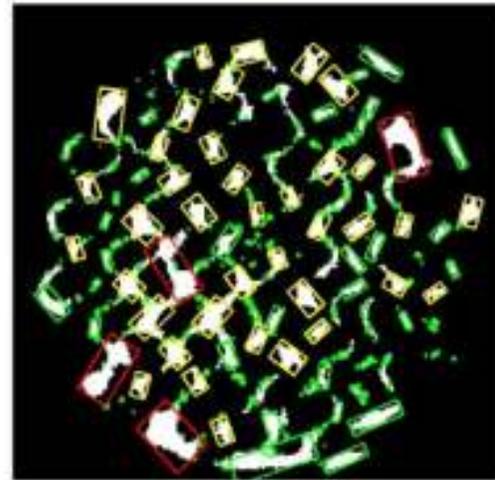
Analyse morphologique

- Repérage et comptage des différentes structures
- Quelques exemples



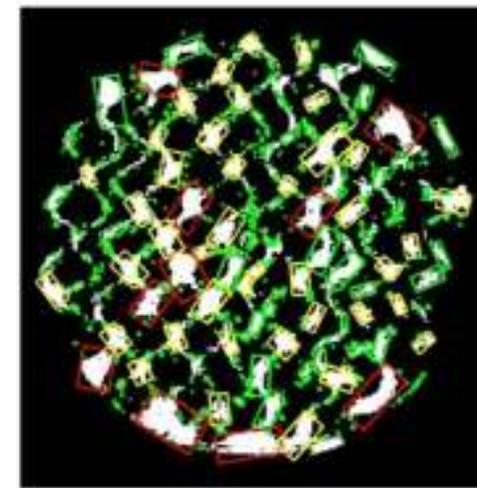
$\mu = 1\text{mPas}$, $u_L = 19\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$

Films



$\mu = 10\text{mPas}$, $u_L = 19\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$

Filets

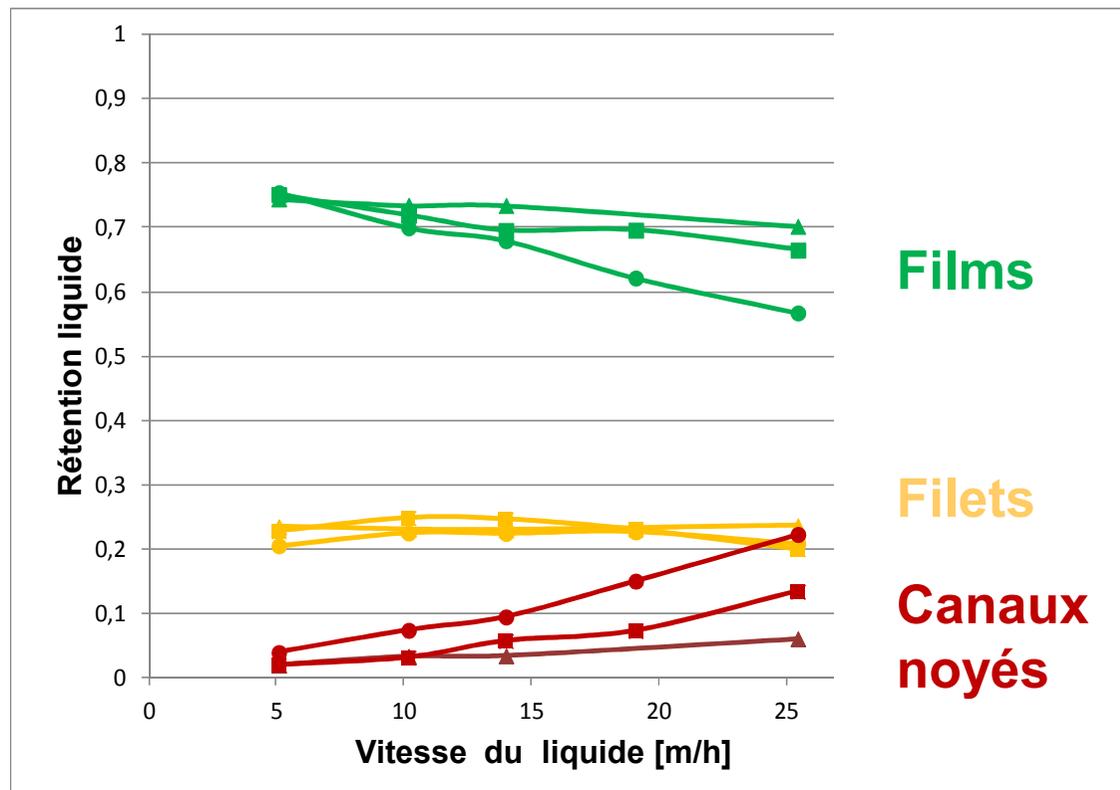


$\mu = 20\text{mPas}$, $u_L = 19\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$

Canaux noyés

Différentes textures d'écoulement

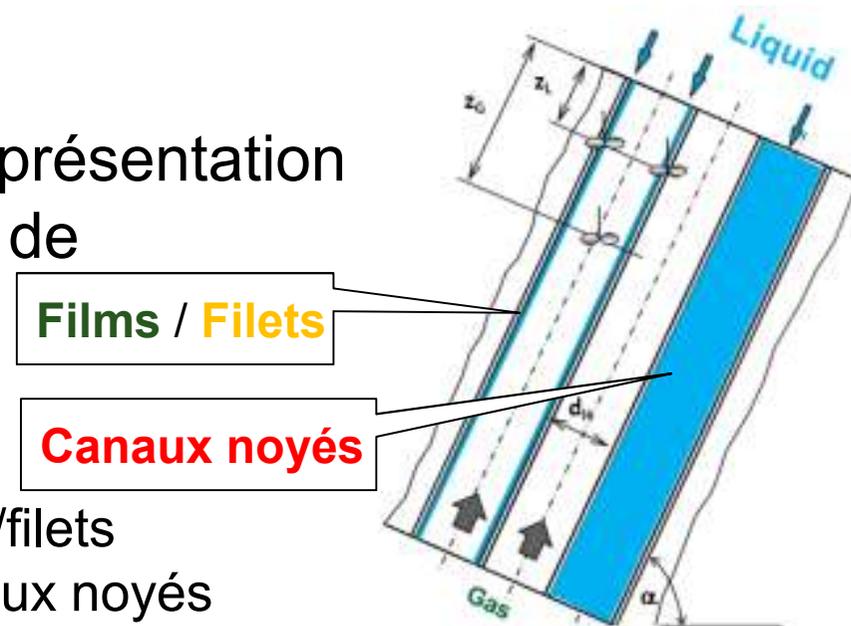
- Evolution avec la vitesse du liquide



S. Aferka et al.
Proc. 6th Int. Symposium on
Process Tomography, Cape
Town, South Africa, 2012

Lien avec l'hydrodynamique

- Prise en compte des contributions spécifiques de la rétention liquide à l'aire interfaciale gaz-liquide, selon la texture d'écoulement
- Incorporation dans une représentation simplifiée de la géométrie de l'empilage :
 - Canaux cylindriques d'inclinaison constante α
 - Deux configurations : - films/filets
- canaux noyés
- Bon accord avec des mesures de $k_L a$



E.Y. Kenig et al.
Chem. Ing. Technik
84, Issue 8, 1260-1283, 2012

Potentialités et limites de cette approche

- Permet de dégager des **métriques** simples permettant de caractériser des propriétés (hydrodynamiques) du système:
 - La rétention de liquide
 - L'aire interfaciale gaz-liquide
 - La répartition entre films, filets et zones noyées
- Nécessite d'introduire une information a priori au niveau du traitement des images.
 - La prise en compte des échelles caractéristiques liées au design de l'empilage : la présence et la configuration des zones catalytiques et de contact.
 - Le rôle joué par les films, filets et canaux noyés.
- Le lien entre les propriétés (hydrodynamiques) et les propriétés textuales du matériau reste fort phénoménologique.

Un second exemple

- Etude de l'écoulement gaz-liquide dans les empilages en utilisant la technique de (macro)tomographie à rayons X
- L'étude de l'écoulement de gaz dans un milieu poreux en utilisant la technique de (micro)tomographie à rayons X

La microtomographie RX

- Visualisation 'haute résolution (quelques microns) d'objets de petites dimensions (quelques centimètres)
- De nombreux équipements commerciaux, par exemple :
 - High resolution tomograph Skyscan 1172 (Skyscan, BE)

- Source RX

Microfocus

Voltage : 20-100 kV

Courant : 0-250 mA

Faisceau conique

- Détecteur

Camera CCD haute résolution (10 Mpixels)

Taille d'un pixel : de 2 à 35 μm



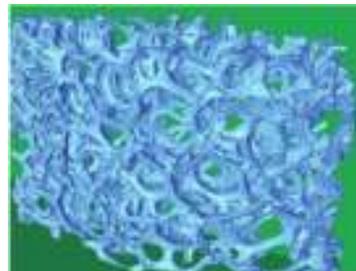
Les applications de la microtomographie

■ Une large gamme d'échelles spatiales et d'énergies RX

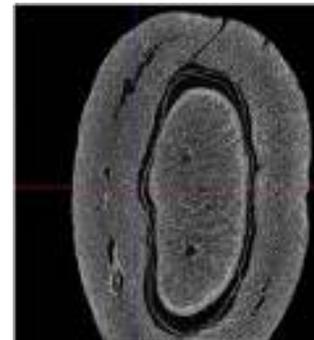
Microtomographe	2 – 40 μm	30 – 200 keV
Microtomographe haute énergie	qq. μm	2 – 10 MeV
Microtomographe synchrotron	$\sim 1 \mu\text{m}$	6 – 200 keV
Nanotomographe	$\cong 100 \text{ nm}$	20-80 keV

■ Une grande diversité d'applications

- Sciences des matériaux
- Electronique
- Biomédical
- Agro-alimentaire
- Géologie
-



Mousse métallique



Baie de café



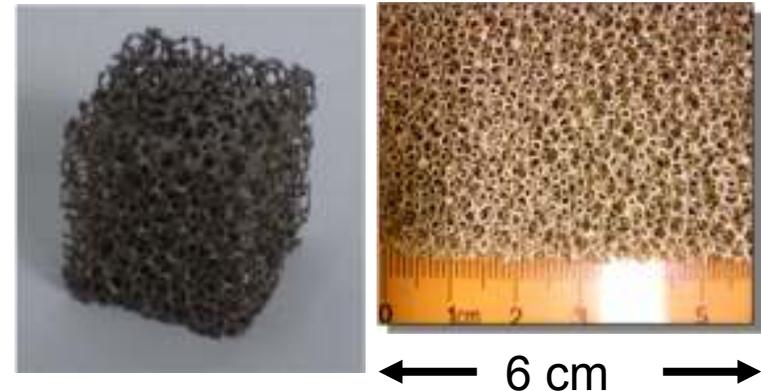
Skyscan, Kontich, BE
<http://www.skyscan.be>

L'écoulement monophasé en milieu poreux

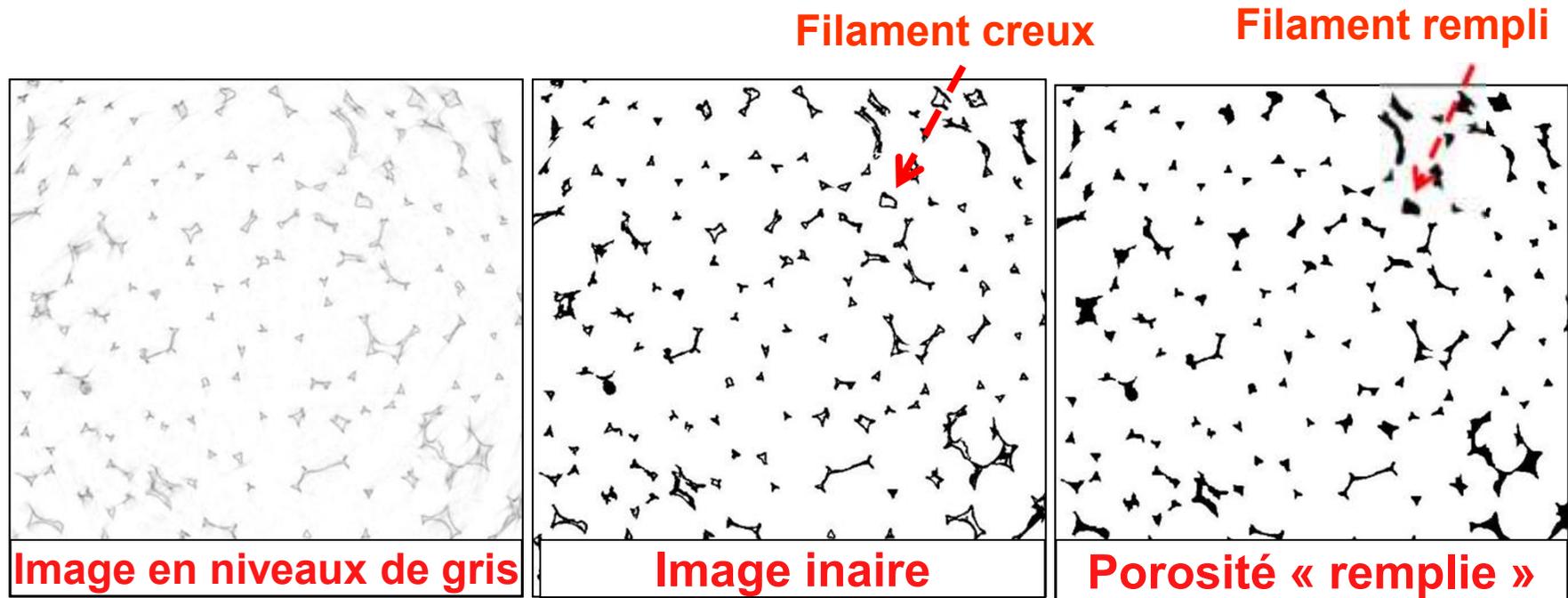
■ Un premier exemple : une mousse métallique cellulaire à structure ouverte

(RCM-NCX-1116 de RECEMAT® International, NL)

- Matériau : Alliage nickel – chrome déposé sur une mousse polyuréthane incinérée
- Diamètre moyen des pores : 1.4 mm
- Densité poreuse: 11 – 16 ppi
- Aire spécifique: 1000 m²/m²
- Porosité: ~ 95 %
- Masse volumique: ~ 0.6 g/cm³



Visualisation 2D de la structure



Visualisation 3D de la structure

- Taille de l'échantillon

- $176 \times 176 \times 352$ voxels $\sim 11 \times 11 \times 22$ mm³
 - 1 voxel $\sim 64 \times 64 \times 64$ μm³
- > 10⁷ voxels**

Image 2D

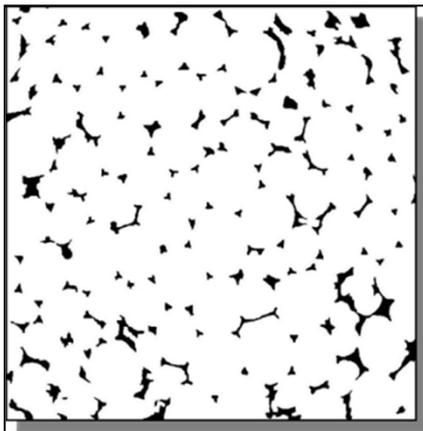
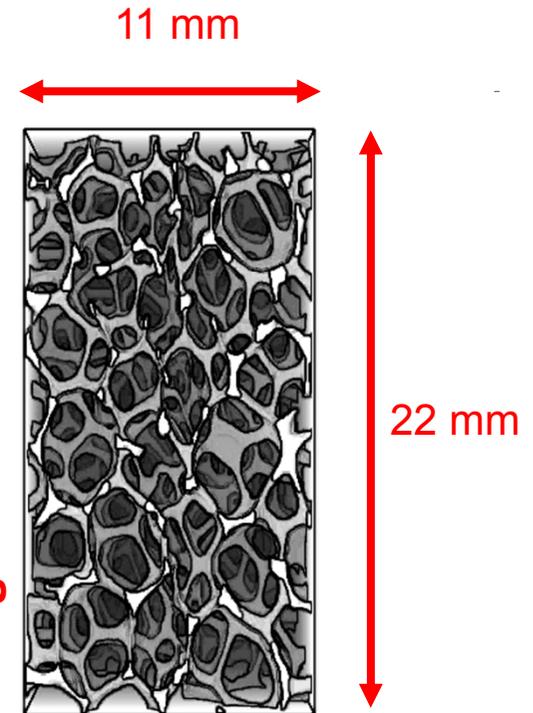


Image 3D

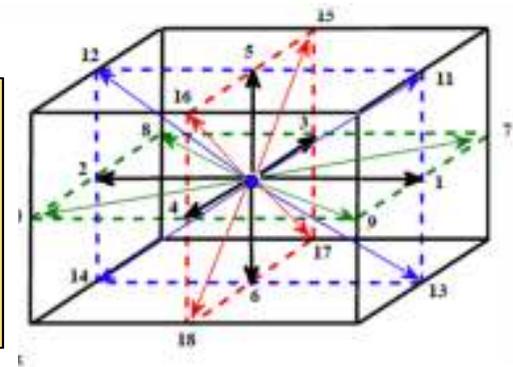


En empilant une série d'images 2D

Comment en extraire une information ?

- Utiliser une méthode de simulation de l'écoulement capable de prendre en compte les détails géométriques de la structure du matériau poreux, fournis par la microtomographie.
- La Méthode de Boltzmann sur Réseau (LBM) est particulièrement bien adaptée à cet objectif:
 - L'écoulement du fluide est représenté par le mouvement de particules fictives supposées se mouvoir et entrer en collision sur un réseau représentatif du milieu poreux
 - Une triple discrétisation:
 - de l'espace,
 - de la vitesse, et
 - du temps

Un exemple :
le réseau **D3Q19**
3 dimensions,
19 vitesses



La méthode LBM

- La répartition des particules dans le réseau est décrite par une série de fonctions de densité de distribution f_k
- L'évolution de ces fonctions est décrite par une forme discrétisée de l'équation de Boltzmann

$$\tilde{f}_k(x, t) = f_k(x, t) + \Omega_k(x, t), \quad k = 0, \dots, q-1,$$

q : nombre de directions

- Ω_k est l'opérateur de collision: il détermine la manière dont les vitesses sont modifiées après chaque collision.
- Le modèle le plus simple : le modèle de relaxation BGK (Bhatnager-Gross-Kook) à une seule constante de relaxation τ

$$\Omega_k^{BGK}(f) = -\frac{1}{\tau}(f_k - f_k^{(eq)}).$$

Visualisation 2D de l'écoulement

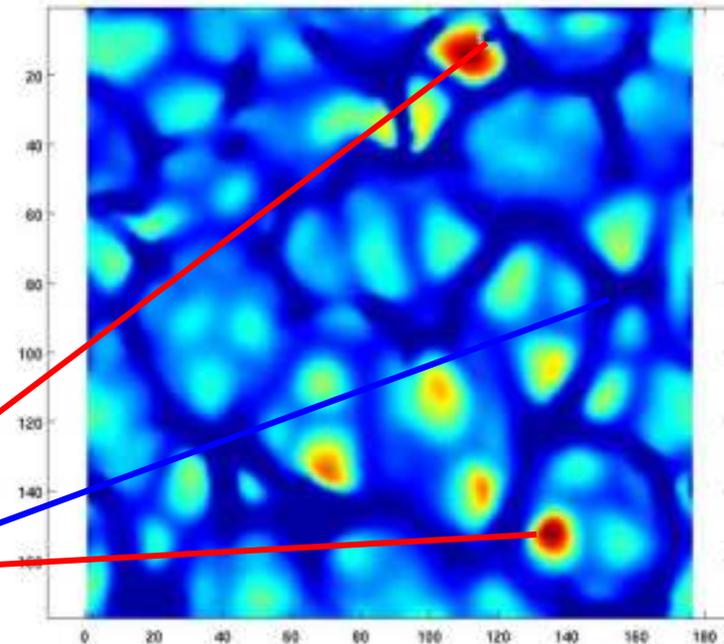
- Distribution de la vitesse du fluide (gaz) dans une ou plusieurs section(s) droite(s) de la mousse.
- Conditions de simulation
 - Echantillon de $11 \times 11 \text{ mm}^2$
 176×176 pixels
 - Réseau D3Q19
 - Modèle de collision BGK

Écoulements préférentiels

« Filaments »

■ : vitesse nulle
■ : vitesse max.

Succession de **54 images**
sur une épaisseur de **3 mm**



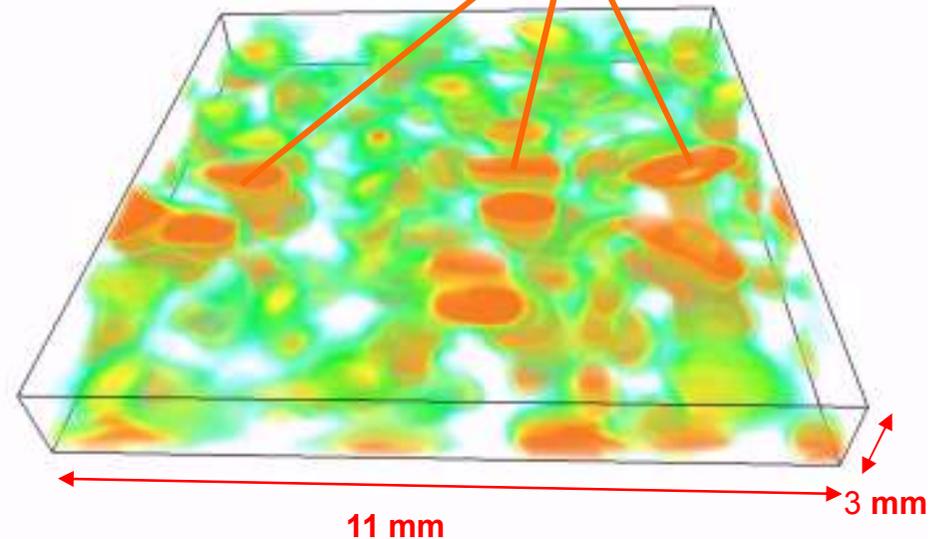
Distribution du champ de vitesses

Visualisation 3D de l'écoulement

- Conditions de simulation
 - Echantillon de $11 \times 11 \times 3 \text{ mm}^3$
 $176 \times 176 \times 48$ voxels
 $1.486.948$ voxels
 - Réseau D3Q19
 - Modèle de collision BGK

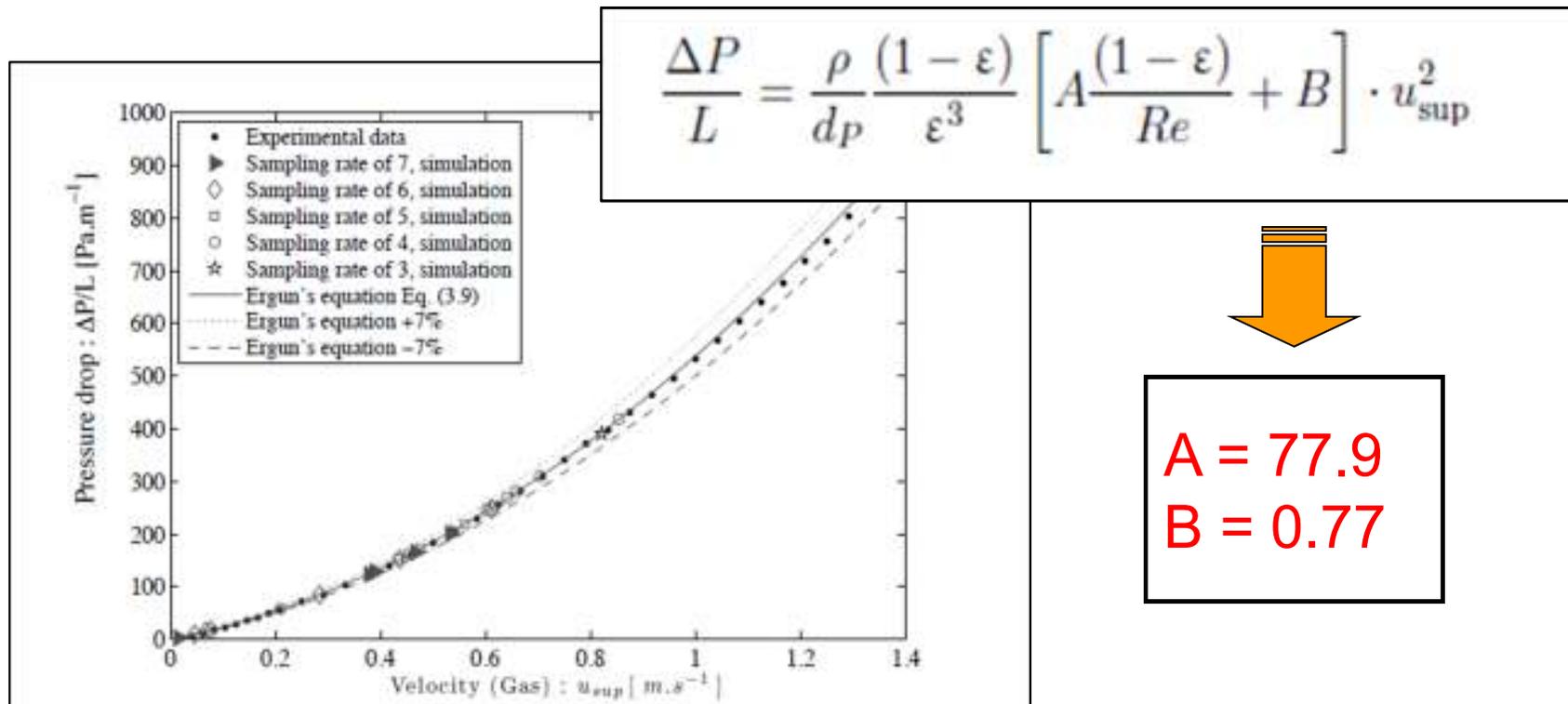
Solide : zones blanches
Gaz : zones vertes → oranges

Écoulements préférentiels



Perte de charge

- Calcul de la perte de charge et comparaison avec des mesures expérimentales:
 - Ajustement de l'équation d'Ergun sur des simulations LBM
 - Comparaison avec des données expérimentales

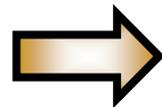
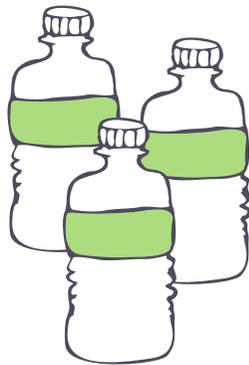


L'écoulement monophasé en milieu poreux

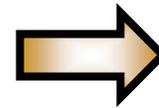
■ Un deuxième exemple : un lit de charbon actif

Granules synthétisés par pyrolyse/activation de bouteilles de PET recyclées

Bouteilles PET



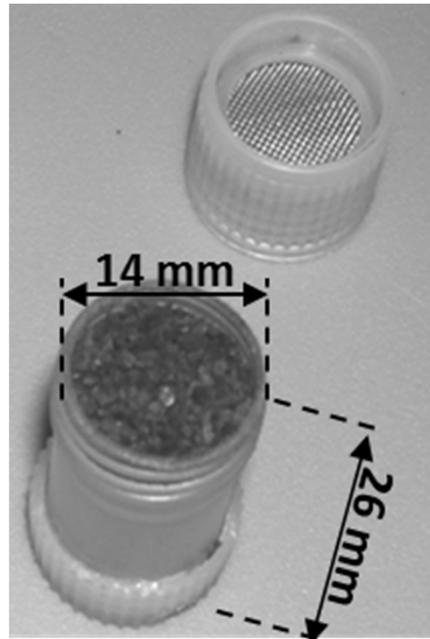
- **Pyrolyse**
 - à 700 °C,
 - sous N₂
- **Broyage**
- **Activation**
 - à 925 °C
 - sous CO₂



**Particules de forme irrégulière
1 – 1,5 mm**

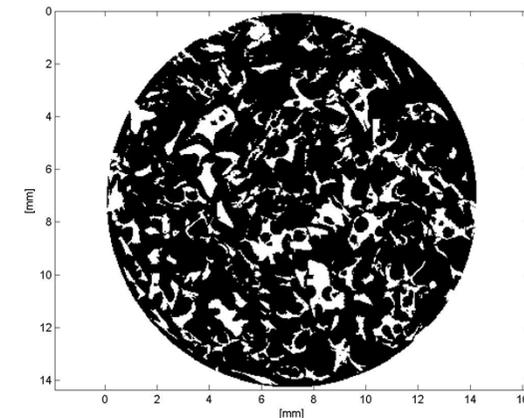
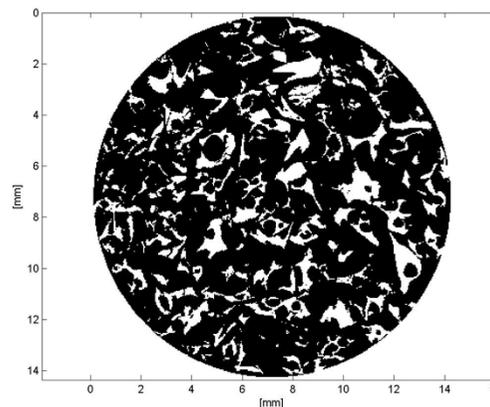
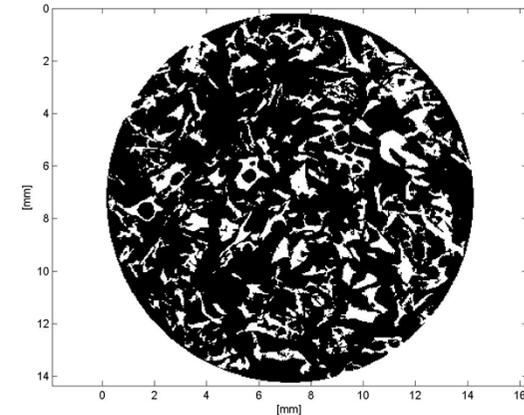


Visualisation 2D de la structure poreuse



Images de sections droites dans le lit à 3 hauteurs séparées de 2 mm.

Porosité : ~ 78 %
(solide : zones blanches)



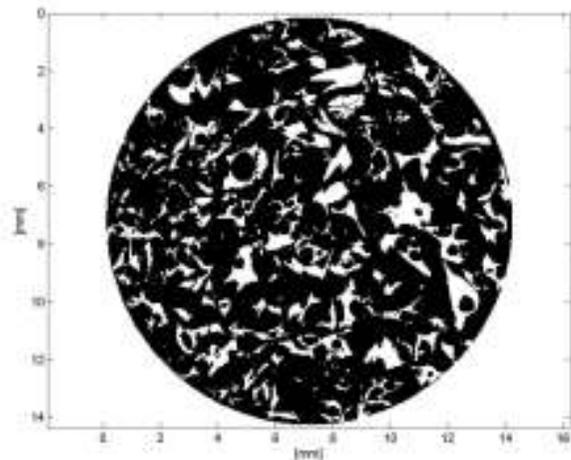
Dimension du lit :

- Diam. : 14 mm
- 1 pixel ~ $40 \times 40 \mu\text{m}^2$

Verdin et al, 2010
FOA10, 10th International Conference on Fundamentals of adsorption

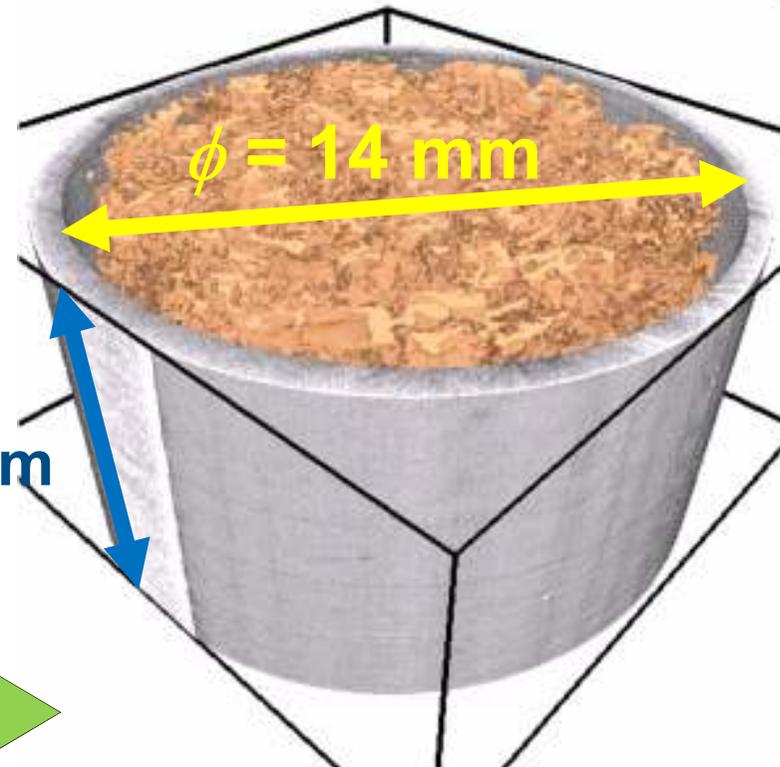
Visualisation 3D de la structure poreuse

Image 2D



1 voxel $\sim 10 \times 10 \times 10 \mu\text{m}^3$

$H = 8 \text{ mm}$



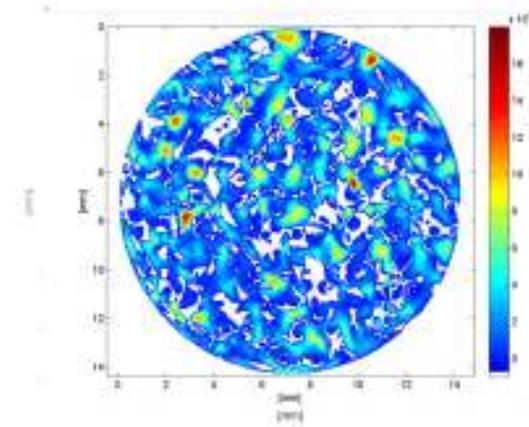
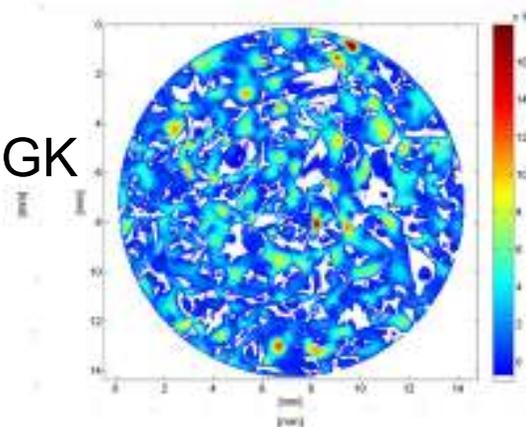
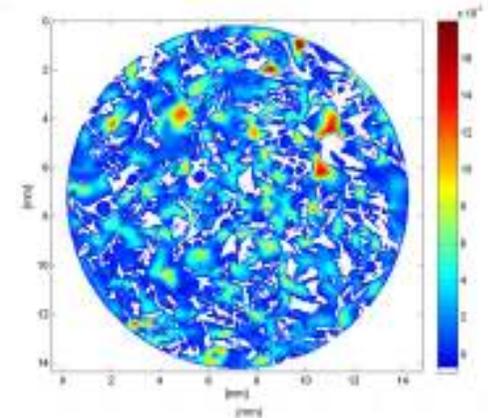
Empilement d'une série d'images 2D

Solide (CA): zones brunes

Visualisation 2D de l'écoulement

- Distribution de la vitesse du fluide (gaz) dans une section droite du lit de charbon actif
- Conditions de simulation
 - Diam. 14 mm
 - 1 pixel $\sim 40 \times 40 \mu\text{m}^2$
 - Réseau D3Q19
 - Modèle de collision BGK

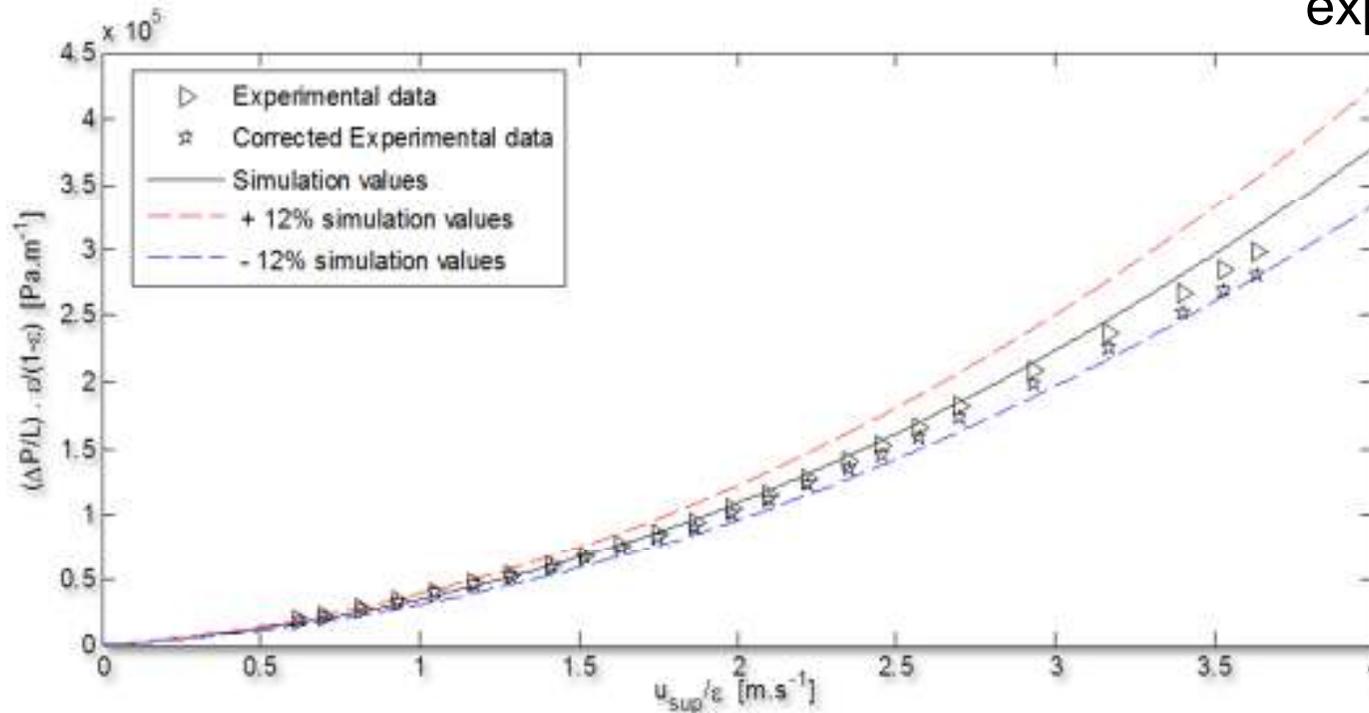
Solide :
zones blanches



Perte de charge

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{\rho}{dp} \frac{(1 - \varepsilon)}{\varepsilon^3} \left[A \frac{(1 - \varepsilon)}{Re} + B \right] \cdot u_{sup}^2$$

- Ajustement de l'équation d'Ergun sur des simulations LBM
- Comparaison avec des données expérimentales



A = 4887
B = 25

L'écoulement monophasé en milieu poreux

■ Un troisième exemple : un filtre fibreux haute perméabilité

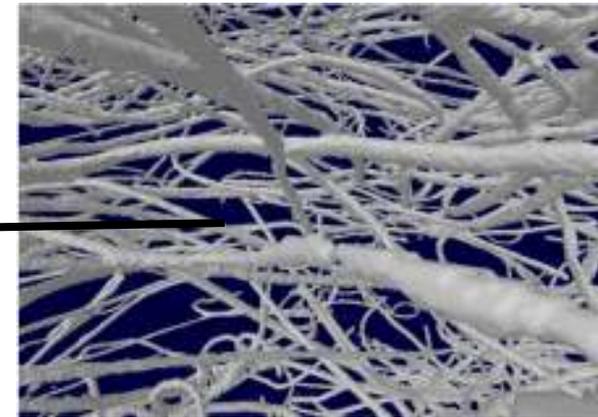
(PST 290 , ACS Filter Mechelen, BE).

- ❑ Matériau: Polyester
- ❑ Grade : G3 (EN 779)
- ❑ Diamètre fibres : $\sim 20 \mu\text{m}$
- ❑ Porosité: $\sim 98 \%$

14 mm



Image 3D tomographique



Visualisation 2D de l'écoulement

- Distribution de l'écoulement du gaz à travers une série de sections droites du matériau fibreux
 - De l'entrée ($Z = 0 \mu\text{m}$) à la sortie ($\rightarrow Z = 3 \text{ mm}$) du filtre

$Re \sim 1$

Vitesse max.

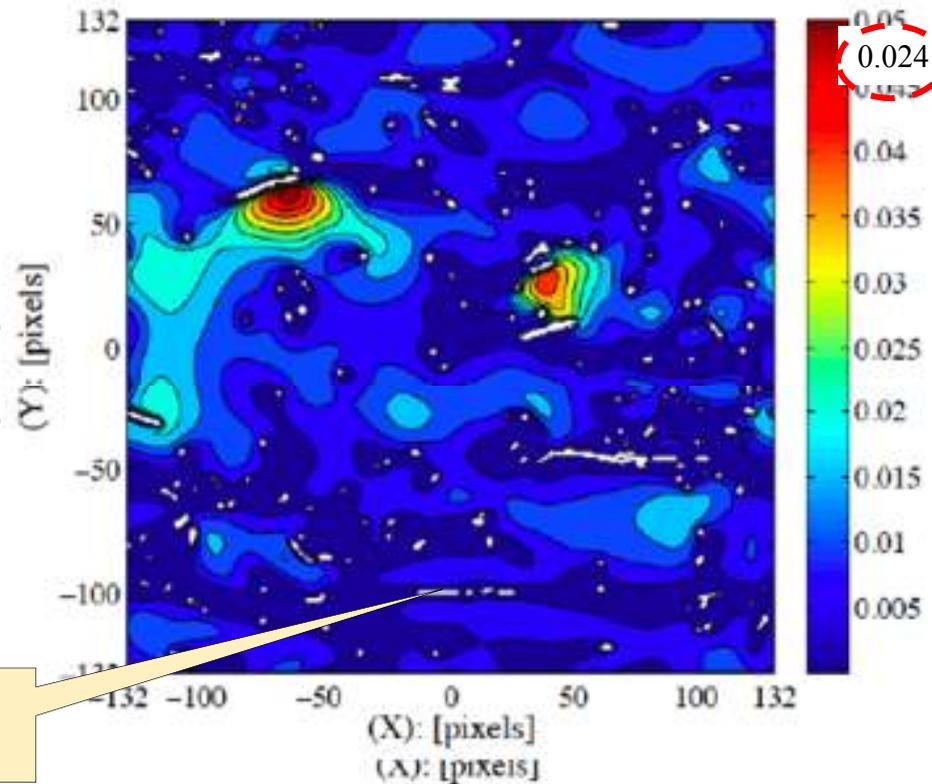


$Z = 0 \mu\text{m}$

$Z = 1 \text{ mm}$

$Z = 2 \text{ mm}$

$Z = 3 \text{ mm}$

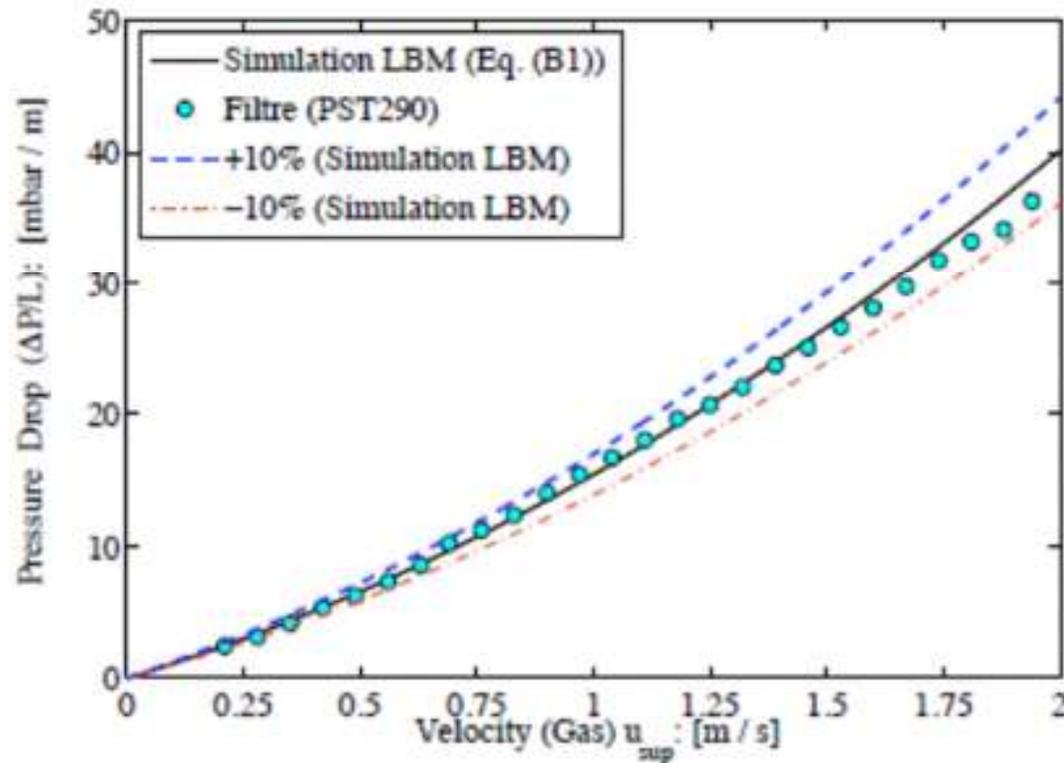


- Dispersion transversale du gaz de l'entrée à la sortie
- Diminution de la vitesse max.

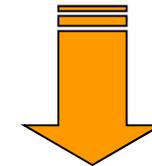
fibre

Perte de charge

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{\rho}{d_p} \frac{(1 - \varepsilon)}{\varepsilon^3} \left[A \frac{(1 - \varepsilon)}{Re} + B \right] \cdot u_{sup}^2$$



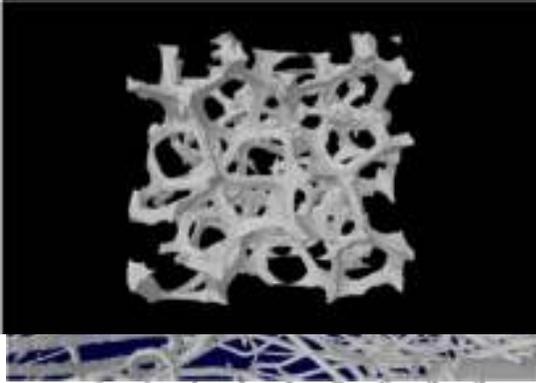
- Ajustement de l'équation d'Ergun sur des simulations LBM
- Comparaison avec des données expérimentales



$$A = 46.2$$
$$B = 0.35$$

Perméabilité

- Calcul de la perméabilité $K = \frac{\varepsilon^3 d_p^2}{A(1-\varepsilon)^2}$

	ε (-)	d_p (m)	A (-)	K (m ²)	
Mousse métal.	←				
Charbon actif	←				
Filtre fibreux	←				

- La simulation LB permet «d'extraire» les informations pertinentes de la texture des matériaux poreux pour calculer une **métrique** caractéristique des milieux poreux : la perméabilité.

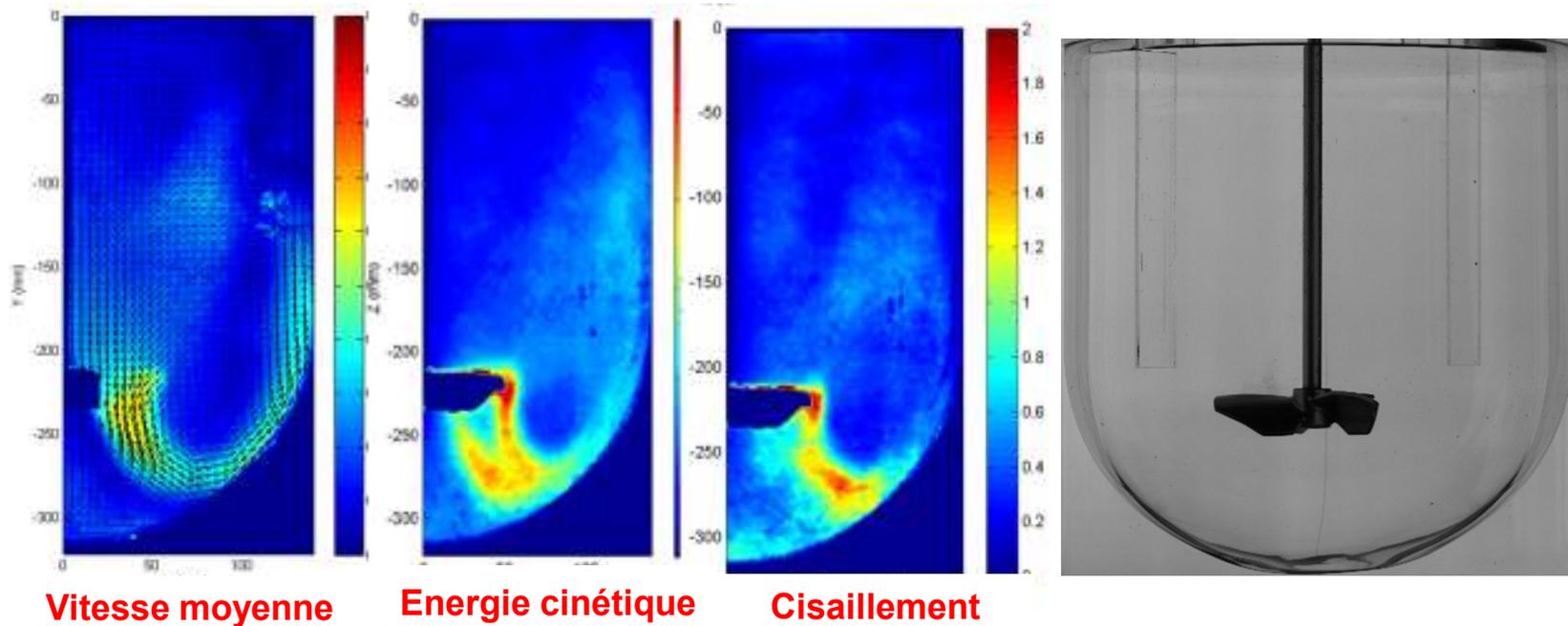
Potentialités et limites de cette approche

- Les méthodes LB sont bien adaptées à la complexité des milieux poreux tels que filtres, support catalytiques, colonnes à empilage,...
- Elles permettent de prédire différentes propriétés de transport dans ces milieux:
 - Perméabilité
 - Coefficients de transfert de masse et de chaleur
 - Conductivité thermique effective
- Elles requièrent des moyens de calcul important (parallélisation).
- Elles sont, pour le moment, limitées aux écoulements monophasés en milieu poreux:
 - Adaptation du terme de relaxation

Perspectives

- Et au delà des milieux poreux ?
- Les opérations de mélange en cuve
 - Approche expérimentale multi-échelle spatio-temporelle

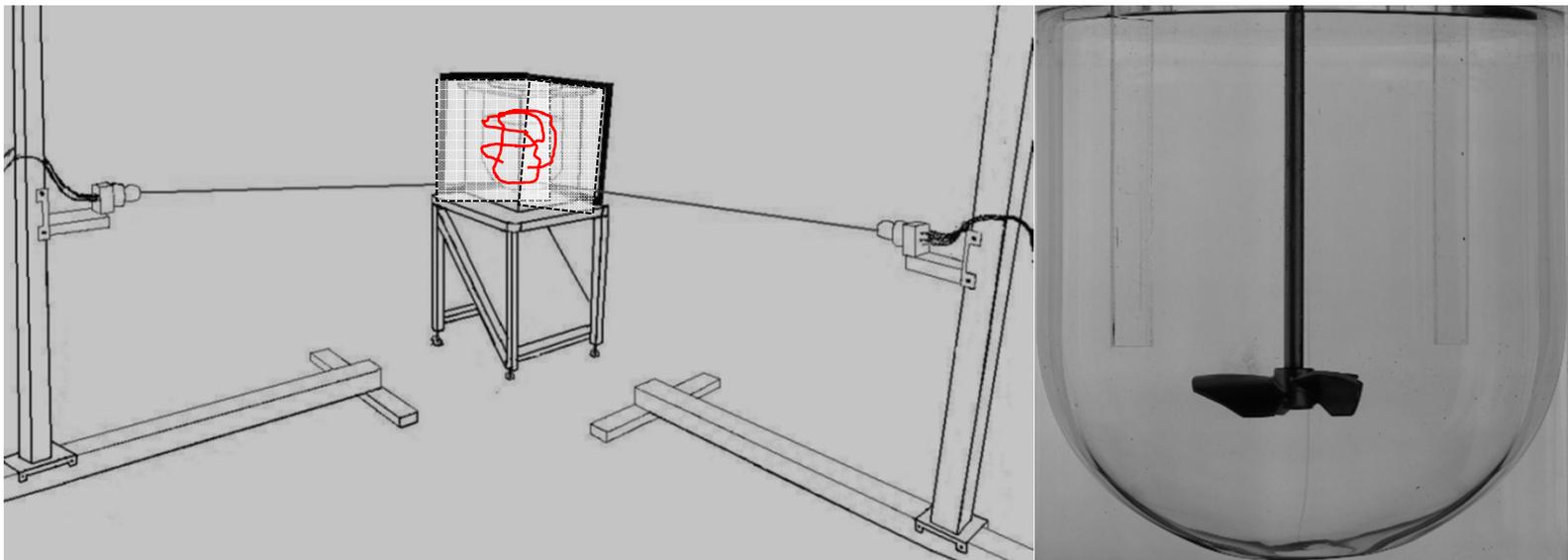
La technique PIV (Particle Image Velocimetry)



Perspectives

- Et au delà des milieux poreux ?
- Les opérations de mélange en cuve
 - Approche expérimentale multi-échelle spatio-temporelle

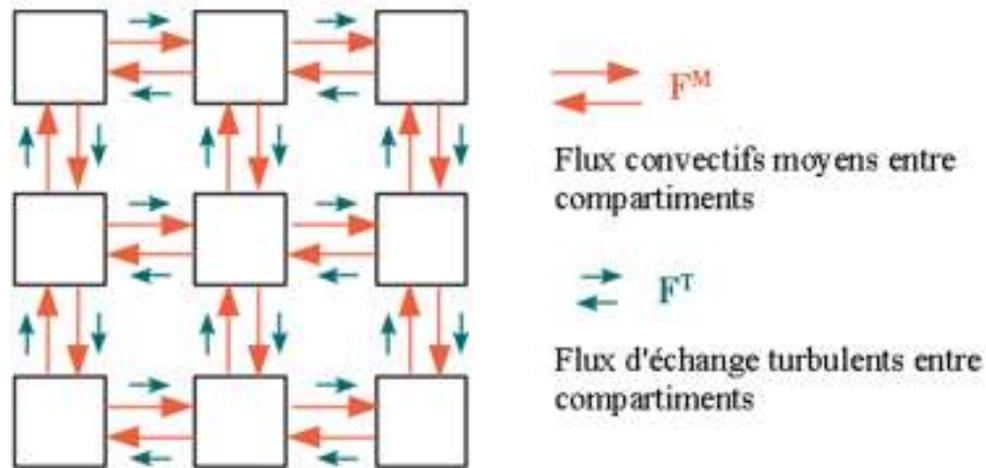
La trajectographie optique



Perspectives

- Et au delà des milieux poreux ?
- Les opérations de mélange en cuve.
 - Développement d'outils de simulation numérique « adaptés » aux données expérimentales disponibles.

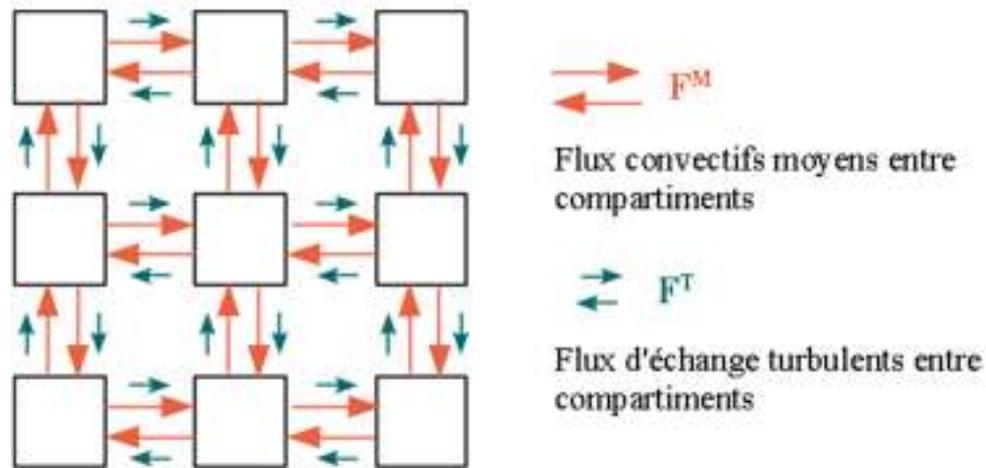
Information eulérienne \Rightarrow modèle compartimenté



Perspectives

- Et au delà des milieux poreux ?
- Les opérations de mélange en cuve.
 - Développement d'outils de simulation numérique « adaptés » aux données expérimentales disponibles.

Information lagrangienne \Rightarrow modèle stochastique





Merci pour votre attention

Halle de Chimie appliquée - ULg