

50376
1997
34

THÈSE

présentée par

Philippe HUS

pour obtenir le grade de Docteur

de l'Université des Sciences et Technologies de Lille

Spécialité: Productique, Automatique et Informatique Industrielle

MODÉLISATION et SIMULATION d'un PROCÉDÉ de SÉPARATION à MEMBRANE en RÉGIME DYNAMIQUE APPLICATION à la PERVAPORATION

Soutenue le 08 janvier 1997

MEMBRES du JURY



Rapporteurs :	Mme. A. Voilley Mme. I. Zambettakis
Examineurs :	Mr. P. Borne Mr. H. Baussart Mr H. Sadok Mr. P. Vidal
Directeurs :	Mr. L. Povy Mr A. Nakrachi

Thèse préparée au Centre d'Automatique de Lille

Remerciements

Ce travail a été réalisé au laboratoire du Centre d'Automatique de Lille à l'Université des Sciences et Technologies de Lille¹. Que Monsieur Pierre Vidal soit remercié pour m'avoir accepté dans ce laboratoire.

Je tiens à remercier Monsieur Lucien Povy pour m'avoir accueilli au sein de son équipe ainsi que pour son encadrement, sa présence et sa disponibilité lors des différentes et nécessaires étapes de réflexion qui ont ponctué cette étude. Je tiens aussi à remercier Monsieur Abdelaziz Nakrachi pour ses conseils et son soutien durant ces trois années.

Je souhaite également remercier Madame Irène Zambetakis du LAAS, Docteur ès Sciences Physiques et Maître de Conférences à l'IUT de Tarbes, ainsi que Madame Andrée Voilley du laboratoire de GPAB, professeur à l'ENSBANA, qui ont accepté d'être rapporteurs de cette thèse.

Pour avoir bien voulu juger ce travail, mes remerciements vont également vers Monsieur Pierre Borne du LAIL, professeur à l'Ecole Centrale de Lille, Monsieur Hervé Baussart, directeur de l'IAAL et Monsieur Hassane Sadok du laboratoire de mathématiques appliquées de Calais, professeur à l'Université du Littoral.

Je tiens aussi à remercier les personnes qui m'ont accueilli à l'ENSBANA lorsqu'il a fallu mettre au point certaines expériences: Isabelle Souchon, Maître de Conférences à l'INA-PG et Denise Nahon.

Toute ma gratitude va également vers Jean-Claude Goubault et Jean-Luc Guermond pour leurs contributions à ce travail.

Je remercie enfin Christian, Fabrice, Catherine, Sarra, Isabelle, Christophe et tous ceux qui m'ont accompagné durant ces trois années.

J'ai une pensée affectueuse pour Anne-Christine, Manon et Oksana qui ont suivi, patiemment . . . , l'évolution de ce travail.

Résumé

Au sein du Centre d'Automatique de Lille, l'équipe du professeur Povy s'intéresse à la modélisation, la simulation et l'identification des procédés agro-alimentaires et biotechnologiques. La pervaporation est un de ces procédés. Avec l'apparition de nouveaux champs d'utilisation pour cette application (couplage à un fermenteur) se pose le problème de la modélisation. L'objectif de ce travail est de décrire le comportement dynamique du dit procédé. Le premier chapitre de cette étude est essentiellement basé sur une synthèse bibliographique des modèles de pervaporation. Il y apparaît que les approches développées jusqu'ici, qu'elles soient comportementales ou phénoménologiques, ne tiennent compte que du cas stationnaire. L'application nouvelle du couplage conditionne donc la modélisation mathématique entreprise dans le deuxième chapitre. Celle-ci est basée sur les lois physiques qui gouvernent le transfert de matière. Le comportement dynamique du procédé est alors décrit par un système d'équations aux dérivées partielles (système à paramètres distribués). De plus, il apparaît que sous certaines conditions, ce système peut être simplifié. Pour clore la mise en équation, les relations liant l'état du système aux grandeurs mesurables, permettent à l'automaticien de retrouver le concept d'entrées/sorties localisées. La non existence de solutions analytiques pour le système d'équations aux dérivées partielles proposé, conduit dans le troisième chapitre à envisager une méthode de résolution approchée. Mais, la structure même du modèle ne rend pas cette résolution immédiate. Néanmoins, un algorithme basé sur les différences finies est proposé et permet l'obtention d'une solution numérique. La dernière partie de ce travail concerne la validation qualitative du modèle. Les résultats montrent que celui-ci correspond bien au comportement attendu du procédé de séparation. Ceux-ci montrent qu'on peut alors accorder un caractère explicatif, voire prédictif, au modèle de connaissance établi. Enfin, ce modèle semble généralisable aux procédés de séparation à membranes denses et devrait permettre d'envisager le couplage au fermenteur.

MOTS-CLÉS: modèle dynamique, simulation, systèmes à paramètres distribués, pervaporation.

Table des matières

Introduction générale	7
1 Description de la pervaporation	10
1.1 Les procédés de séparation par membranes	10
1.2 La pervaporation	12
1.2.1 Définition	12
1.2.2 Principe	12
1.2.3 Mise en œuvre pratique d'une unité de production	13
1.2.4 Géométrie des modules de pervaporation	14
1.2.5 Particularité	15
1.2.6 Domaines d'application	16
1.3 Modélisation du transfert de matière	17
1.3.1 Remarques préliminaires	17
1.3.2 Une approche globale: le modèle de résistances en série	17
1.3.3 L'approche solution-diffusion	18
1.3.4 Cas de plusieurs espèces	23
1.4 Paramètres influençant le transfert	25
1.4.1 En amont	25
1.4.2 Dans la membrane	26
1.4.3 En aval	26
1.5 Conclusions et objectifs de ce travail	27
2 Etablissement d'un modèle interne	29
2.1 Modélisation du transfert de masse dans le compartiment amont	30

2.1.1	Cas général	30
2.1.2	Prise en compte de la géométrie	33
2.2	Modélisation du transfert de masse dans la membrane	37
2.2.1	Cas général	37
2.2.2	Prise en compte de la géométrie	38
2.3	Modélisation du transfert de masse dans le compartiment aval .	41
2.3.1	Cas général	41
2.3.2	Prise en compte de la géométrie	42
2.4	Les conditions initiales et aux limites	46
2.4.1	Les conditions initiales et dans les plans limites	47
2.4.2	Les conditions aux interfaces	48
2.4.3	Remarque sur les conditions aux limites proposées aux interfaces	51
2.5	Les systèmes d'équations aux dérivées partielles	51
2.5.1	dans le cas plan	51
2.5.2	dans le cas cylindrique	52
2.6	Simplification des modèles en aval	53
2.6.1	Etablissement du modèle simplifié dans le cas plan	53
2.6.2	Etablissement du modèle simplifié dans le cas cylindrique	55
2.7	Grandeurs localisées	56
2.7.1	Valeurs moyennes dans le cas plan	57
2.7.2	Valeurs moyennes dans le cas cylindrique	58
2.8	Conclusion sur la modélisation proposée	59
3	Simulation des modèles	64
3.1	Introduction	64
3.2	Principe d'obtention d'une solution numérique	65
3.3	Choix des schémas de discrétisation	66
3.4	Discrétisation du domaine de définition	66
3.4.1	domaine de définition et notations dans le cas plan	66

3.4.2	domaine de définition et notations dans le cas cylindrique	68
3.5	Schémas numériques	69
3.5.1	Remarque préliminaire	69
3.5.2	Méthode retenue	70
3.5.3	Couplages engendrés par le modèle	71
3.6	Algorithme de résolution	72
3.7	Schémas numériques pour les modèles simplifiés	74
3.7.1	Nouveaux domaines de définition	74
3.7.2	Schémas numériques et algorithme de résolution	75
4	Validation qualitative	76
4.1	Remarque sur les paramètres de simulation	76
4.2	Un exemple de simulation	77
4.2.1	Valeurs des paramètres physiques	77
4.2.2	Dimensions géométriques	77
4.2.3	Vitesses d'écoulement amont et aval	78
4.2.4	Remarque sur la présentation des résultats	78
4.2.5	Distribution de matière dans le module	80
4.2.6	Evolutions aux interfaces	82
4.2.7	Evolution des fractions molaires moyennes	84
4.3	Commentaires sur ces premiers résultats	87
4.4	Influence des paramètres	90
4.4.1	Hydrodynamique amont	90
4.4.2	Influence des coefficients de transfert H_d et H_u	93
4.5	Exemple de simulation pour un module tubulaire	97
4.5.1	Valeurs des paramètres physiques et des dimensions géométriques	97
4.5.2	Vitesses d'écoulement amont et aval	98
4.5.3	Distributions de matière dans le module	99

4.5.4	Evolutions aux interfaces	102
4.5.5	Evolution des fractions molaires moyennes	102
4.5.6	Commentaires sur ces résultats	105
4.5.7	Réponse à une séquence temporelle	107
Conclusions générales		111
A Discrétisation pour le plan		116
A.1	Equation de convection-diffusion dans la charge	116
A.1.1	Système linéaire pour le prédicteur	117
A.1.2	Système linéaire pour le correcteur	119
A.1.3	Solution proposée à ce problème de couplage	120
A.1.4	Obtention des matrices $C_1(i, k)$ et $D_1(i, k)$	121
A.2	Equation de diffusion dans la membrane	123
A.2.1	Obtention des matrices $C_2(k)$ et $D_2(k)$	123
A.3	Equation de convection-diffusion en aval	124
A.3.1	Système linéaire pour le prédicteur	125
A.3.2	Système linéaire pour le correcteur	127
A.3.3	Obtention des matrices $C_3(i, k)$ et $D_3(i, k)$	128
B Discrétisation pour le cylindre		130
B.1	Equation de convection-diffusion dans la charge	130
B.1.1	Remarque préalable pour $r = 0$	131
B.1.2	Système linéaire pour le prédicteur	131
B.1.3	Système linéaire pour le correcteur	133
B.1.4	Solution proposée à ce problème de couplage	134
B.1.5	Obtention des matrices $C_1(i, k)$ et $D_1(i, k)$	136
B.2	Equation de diffusion dans la membrane	137
B.2.1	Obtention des matrices $C_2(k)$ et $D_2(k)$	138
B.3	Equation de convection-diffusion en aval	139

B.3.1	Système linéaire pour le prédicteur	139
B.3.2	Système linéaire pour le correcteur	141
B.3.3	Obtention des matrices $C_3(i, k)$ et $D_3(i, k)$	142
C	Discrétisation pour les modèles simplifiés	144
C.1	Discrétisation de l'équation de convection en aval	144
C.1.1	Obtention des matrices $C_3(i, k)$ et $D_3(i, k)$	145
C.2	Discrétisation de la condition à l'interface aval	146
C.2.1	Obtention des matrices $C_2(k)$ et $D_2(k)$	146
D	Algorithme de Thomas	147
E	Exemple de problème bien posé	149
F	Outils informatiques utilisés	153

Introduction générale

On englobe sous le vocable de génie des procédés, l'étude rationnelle des procédés de transformation de la matière et de l'énergie [15]. Son objectif doit être « la maîtrise totale du procédé » . Celle-ci passe entre autres par la mise en place de capteurs spécifiques et l'utilisation des techniques de contrôle commande de procédés [19].

Une des fonctions du génie des procédés est la compréhension détaillée des opérations permettant de séparer plusieurs constituants. Cette fonction est regroupée dans une discipline qui englobe l'ensemble des procédés de séparation. Les techniques membranaires sont un de ces procédés de séparation et suscitent un intérêt croissant depuis une trentaine d'années. Actuellement, ces dernières ouvrent la porte à de nouveaux réacteurs [19]. La pervaporation est une de ces techniques et on peut envisager de coupler celle-ci à un fermenteur pour réaliser un tel réacteur.

Néanmoins, si l'étude des procédés classiques (la distillation par exemple) est rationnellement possible à l'aide d'outils théoriques bien établis, il n'en est pas de même pour les procédés de séparation à membrane. L'objectif ultime du travail ici entamé est de contrôler la production d'espèces chimiques sur un tel réacteur. Mais pour atteindre cet objectif, il apparaît nécessaire de décrire le comportement de l'unité de séparation. La présente étude reflète donc l'étape initiale du travail commencé avec madame Voilley sur ces nouvelles applications. Celle-ci concerne la mise en équation du module de pervaporation. Pour tout problème standard de l'automatique, monsieur de Larminat relève que la phase de modélisation est capitale [13]. Mais comme le note madame Cheruy, la

conception de modèles est problématique en biotechnologie car les systèmes sont mal maîtrisés, difficiles à manipuler et l'élaboration d'un modèle fait appel à des compétences variées [7]. Néanmoins, madame Cheruy rappelle la méthodologie que doit respecter la construction du modèle :

- *la définition des objectifs*
- *l'analyse du système*
- *la formulation mathématique*
- *le test du modèle*
- *l'expérimentation*
- *l'identification*
- *la validation du modèle*

Le premier point est sans doute le plus important. En effet, un modèle ne peut être construit que dans un objectif précis et il serait illusoire de croire qu'il peut répondre à des objectifs multiples (simulation et commande par exemple). Les deux points suivants sont liés. En effet, l'analyse préalable permet de traduire mathématiquement la connaissance des spécialistes et ainsi de délimiter le système et son environnement. La mise en équation étant réalisée, il devient possible de tester les propriétés du modèle et de vérifier si son comportement est cohérent. Parallèlement à la construction du modèle, une expérimentation sur le processus réel doit être menée assurant la cohérence entre le modèle et les données expérimentales. Enfin, avant de valider le modèle, une étape d'identification s'impose. Celle-ci permet d'estimer les paramètres du modèle à partir de données expérimentales.

Par conséquent, ce mémoire est composé de plusieurs parties qui suivent cette méthodologie (au moins jusqu'à l'expérimentation), et qui toutes gravitent autour de la mise en équation d'un procédé à membrane. Au travers de celles-ci, il apparaît clairement le caractère interdisciplinaire propre à tout exercice

de modélisation. La première partie est essentiellement basée sur une synthèse bibliographique. Celle-ci présente les modèles les plus couramment utilisés. En particulier, deux approches sont rappelées, l'une comportementale et l'autre phénoménologique. Au terme de cette première partie, les limites et les objectifs de la modélisation qui va être entreprise peuvent donc être posés.

La deuxième partie concerne la mise en équation du procédé. Le choix d'une approche de type « connaissance » étant fixé, c'est en posant des hypothèses sur les lois physiques que le modèle est construit. La troisième partie est dans la continuité de la précédente puisque la non existence de solutions analytiques aux équations proposées conduit à envisager des méthodes de résolution numérique. Enfin, dans la dernière partie, les résultats de simulation permettent de conclure sur la validité du modèle et sa relative généralisation aux procédés membranaires ainsi que sur les performances de différents modules de séparation.

Chapitre 1

Description de la pervaporation

1.1 Les procédés de séparation par membranes

Les techniques de séparation conventionnelles telles que la distillation ou la filtration par exemple, se sont récemment enrichies d'un groupe de procédés utilisant, comme élément principal, les membranes. Celles-ci disposées entre deux phases (non nécessairement identiques) sont capables de séparer les constituants d'un mélange chimique en fonction de propriétés de transport. On les qualifie alors de films permsélectifs. Les procédés de séparation par membrane, qui suscitent un intérêt croissant depuis une trentaine d'années, sont actuellement utilisés sur une large échelle, tant dans l'industrie chimique que dans le domaine agro-alimentaire et pharmaceutique.

Il faut distinguer différentes techniques de séparation membranaire [15]. D'après la structure et la fonction de la membrane, Favre les classe en trois catégories (fig 1.1).

La première catégorie utilise des membranes microporeuses (fig 1.1a). Le transport a lieu par les vacuoles, les petites molécules passent plus facilement que les grosses. Les membranes microporeuses sont utilisées en microfiltration et en ultrafiltration. Un deuxième type de procédé, séduisant mais encore en cours de prospection, cherche à mimer les propriétés de reconnaissance spécifique et de tri à l'échelle moléculaire développées par les membranes biologiques, la membrane

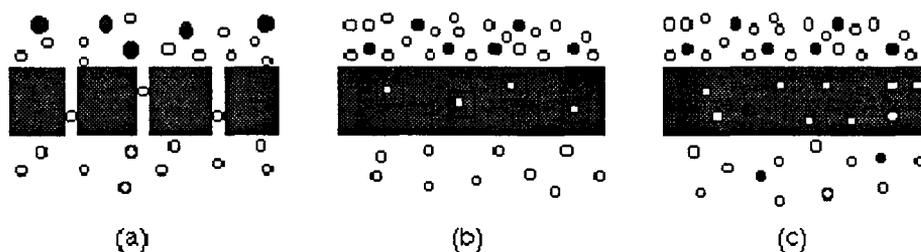


Figure 1.1: Techniques de séparation membranaire: microporeuse (a) transporteur spécifique (b) membrane dense (c)

est un liquide contenant des transporteurs spécifiques des molécules à séparer (fig 1.1b). Enfin, la troisième catégorie, qui nous concerne plus particulièrement, utilise les membranes denses (on qualifie de dense tout film apparemment exempt de porosités). Dans ce cas, le transport des espèces a lieu par diffusion (fig 1.1c). On retrouve les membranes denses en dialyse, en osmose inverse et bien sûr en pervaporation.

D'une manière générale, les procédés de séparation à membranes permettent donc le transport sélectif d'une ou plusieurs substances chimiques entre deux milieux séparés par une membrane.

Toutes techniques confondues, Brun relève que la séparation membranaire est particulièrement séduisante car elle est plus rapide, plus efficace et plus économique que les procédés conventionnels [5]. En effet, la séparation à température ambiante et une sélectivité importante constituent des avantages majeurs des techniques membranaires, ceci étant particulièrement apprécié dans les industries relevant de la biotechnologie (pharmaceutiques ou agro-alimentaires) et dans le domaine médical. De plus, il faut noter que la conception modulaire des étages de séparation les rend plus aptes à l'automatisation et à la décentralisation que les installations habituelles plus lourdes et plus complexes. Quant aux inconvénients principaux, ils tiennent principalement aux faibles flux de matière et à la difficulté de mettre en cascade les différents étages de séparation [24, 36].

1.2 La pervaporation

1.2.1 Définition

La pervaporation, observée pour la première fois au début de ce siècle, peut être considérée comme une des dernières nées des opérations de séparation membranaire. Favre retient la définition suivante [15]: « la pervaporation consiste en un transfert de matière d'une phase liquide à une phase gazeuse à travers une phase solide qu'est la membrane dense ». On retrouve chez Brun [5] et chez Lamer [25, p9] une définition plus précise: « La pervaporation est un procédé de séparation qui consiste à vaporiser partiellement un mélange liquide à travers une membrane dense semi-perméable ».

1.2.2 Principe

On peut représenter schématiquement un module de pervaporation, comme toute opération de séparation, selon la figure 1.2. En amont de la membrane circule un

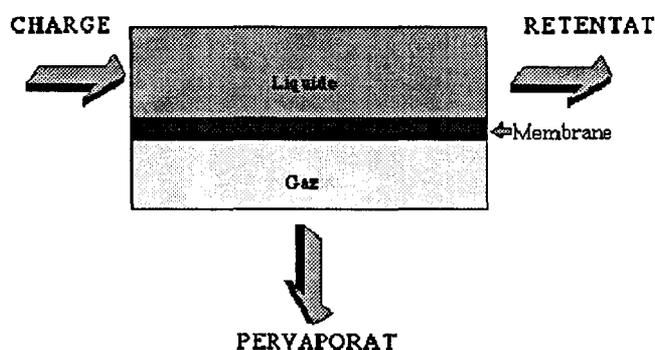


Figure 1.2: Représentation schématique d'un module de pervaporation

mélange liquide (charge ou alimentation). Si, en aval, on maintient une pression inférieure à la pression de vapeur saturante de l'espèce à séparer, une partie du mélange traverse la membrane et se retrouve en aval sous forme de vapeur (pervaporat ou perméat). L'autre partie se retrouve donc appauvrie en espèce à séparer en amont (rétentat).

On peut donc envisager ce procédé pour concentrer un produit fortement dilué dans un mélange ou, au contraire, pour extraire d'un mélange une substance indésirable et ainsi amener le rétentat au degré de pureté désiré. La pervaporation apparaît donc comme une technique d'enrichissement ou d'épuration plutôt que comme une technique de séparation.

1.2.3 Mise en œuvre pratique d'une unité de production

La réduction de pression partielle peut être obtenue de deux manières [34] :

- *pervaporation sous vide* (fig 1.3) : on maintient une pression proche du vide en aval. Il est alors nécessaire de condenser le pervaporat sur une paroi froide.

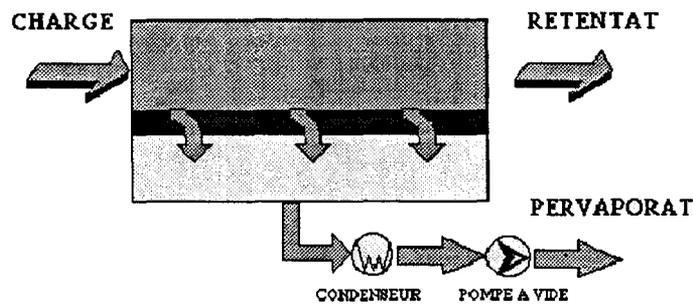


Figure 1.3: Technique de pervaporation sous vide

- *pervaporation avec balayage gazeux* (fig 1.4) : on balaie la face aval de la membrane par un gaz vecteur (air, gaz inerte).

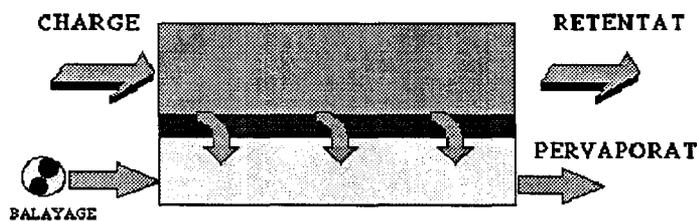


Figure 1.4: Technique de pervaporation sous balayage gazeux

1.2.4 Géométrie des modules de pervaporation

On relève quatre types de géométrie :

- *plane* : les membranes sont planes et disposées parallèlement les unes aux autres. Elles sont séparées par des séparateurs-joints et des supports qui font office de compartiment amont et aval (fig 1.5). Le mélange à traiter

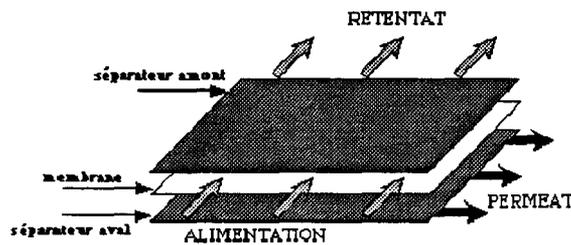


Figure 1.5: Principe de séparation dans un module plan

balaye en série l'ensemble des membranes ; le perméat est collecté par des capillaires placés au niveau de chacun des supports.

- *plan spiralé* : L'ensemble est constitué de deux membranes entre lesquelles on intercale deux séparateurs et un tube perforé servant à collecter le perméat (fig 1.6a). On roule le tout en spirale en intercalant une sorte de

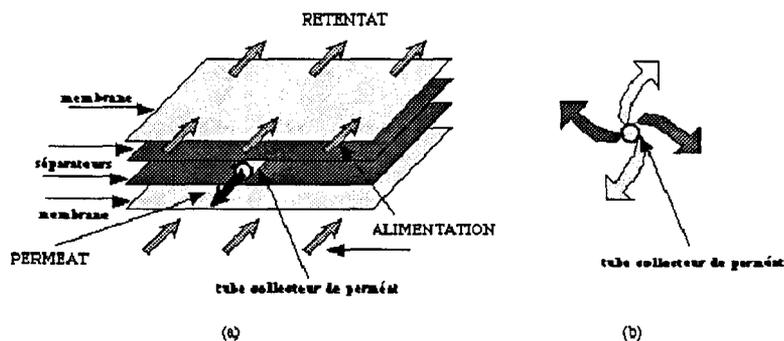


Figure 1.6: Module plan spiralé (a). Enroulement en spirale (b)

treillis permettant de maintenir un espace entre les spires (fig 1.6b). Le liquide à concentrer circule le long de la membrane tandis que le perméat rejoint le tube central.

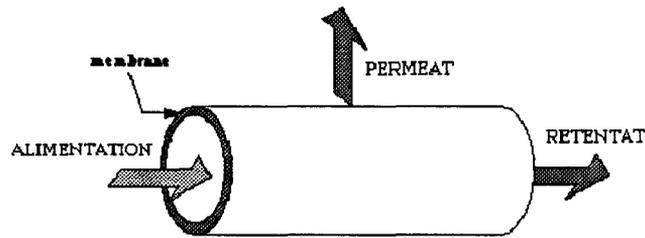


Figure 1.7: Principe de séparation dans un module tubulaire

- *tubulaire* : les membranes sont obtenues par dépôt à la surface de tubes poreux. La charge circule dans la lumière du tube. Le perméat est recueilli à la périphérie et collecté près de l'une des extrémités (fig 1.7).
- *fibres creuses* : ce dernier procédé se présente comme une extrapolation du module tubulaire. Il est constitué d'une très grande quantité de fibres cylindriques creuses de la taille d'un cheveu.

1.2.5 Particularité

Une des particularités de cette technique est de faire subir un changement d'état aux composés à séparer. Dans ce cas, l'analyse du processus est singulièrement compliquée car au transfert de matière vient se superposer un transfert thermique lié au changement d'état des composés à séparer. Selon le cas, il faut donc fournir des calories au mélange liquide pour éviter son refroidissement ou pour condenser le pervaporat, il faut pouvoir fournir un travail de compression. Cet apport thermique au niveau de la membrane doit transiter par la charge, ce qui conduit à un refroidissement de celle-ci et perturbe notablement les performances de la pervaporation [5, 36].

Mais ces difficultés s'amenuisent quand le taux d'extraction diminue. La technique de pervaporation est donc d'autant plus intéressante que le constituant extrait est minoritaire ou qu'il l'est sélectivement. Cette particularité conditionne donc en partie les applications potentielles de la pervaporation.

1.2.6 Domaines d'application

Malgré la particularité présentée précédemment, le champ d'application de la pervaporation reste encore vaste [25, p40].

- *l'industrie chimique*: les principales applications dans ce domaine concernent la séparation des composés organiques et le déplacement des équilibres de réaction.
- *le traitement des eaux*: la pervaporation a été envisagée pour traiter les effluents industriels. Dans ce cas, on récupère les substances économiquement intéressantes des eaux résiduaires. L'utilisation de la pervaporation semble potentiellement intéressante pour traiter les eaux potables. On les débarrasse alors des substances polluantes présentes en très faibles quantités.
- *l'industrie agro-alimentaire*: durant la dernière décennie, certains auteurs ont envisagé d'utiliser la pervaporation dans ce type d'industrie. Dans le domaine des boissons par exemple, la pervaporation est utilisée pour la concentration de jus de fruit, pour la désalcoolisation des vins et des bières ou pour la fabrication d'eau-de-vie. Mais le secteur qui nous intéresse plus particulièrement est celui de la production d'arômes et plus précisément, l'extraction des composés volatils produits par microbiologie.

Les premiers travaux concernant la récupération des substances aromatisantes dans les milieux aqueux sont très récents [48, 50]. La pervaporation semble là encore prometteuse car elle permettrait la valorisation de composés intéressants mais non valorisés pour l'instant car trop dilués. Les travaux entrepris à l'ENSBANA nous intéressent plus directement, ceux-ci portent sur l'extraction et la concentration de substances à très faibles concentrations dans l'eau et ont pour objectif final le couplage d'un pervaporateur à un fermenteur produisant en continu ces substances.

1.3 Modélisation du transfert de matière

1.3.1 Remarques préliminaires

Les unités de séparation fonctionnent généralement en continu, c'est donc en régime stationnaire qu'est décrit le transfert de matière en pervaporation.

Par ailleurs, l'hydrodynamique en amont et en aval n'étant d'aucune particularité en pervaporation, on ne s'intéressera, dans cette partie, qu'aux modèles de transfert de matière dans la membrane et à ses interfaces. L'étude de l'écoulement des fluides en amont et en aval sera complètement développée dans le chapitre suivant.

Enfin, cette partie ne vise pas l'exhaustivité mais tente d'expliquer les principales approches (comportementale ou phénoménologique) qui existent pour décrire le transfert de matière en pervaporation.

1.3.2 Une approche globale : le modèle de résistances en série

Ce modèle, très couramment utilisé en pervaporation, est basé sur une approche empirique : il prend en compte une résistance $1/K_M$ présentée par la membrane et une résistance $1/K_L$ due au transport en amont (couche limite). Si $1/K_T$ est la résistance globale et si C_{AL} est la concentration massique du composé A dans la charge, le flux global de pervaporat J_A s'exprime alors sous la forme :

$$J_A = K_T C_{AL} \quad (1.1)$$

Par analogie avec les lois de l'électricité (loi d'Ohm), l'équation 1.1 exprime bien la résistance au transport (figure 1.8).

Dans cette analogie, le courant i est l'analogue du flux de matière J_A et la différence de potentiel u est l'analogue de la concentration C_{AL} . Si la résistance globale $1/K_T$ inclut l'effet des résistances en amont et par la membrane, on a :

$$1/K_T = 1/K_M + 1/K_L$$

Il est à noter qu'on peut aussi prendre en compte une résistance $1/K_V$ présentée

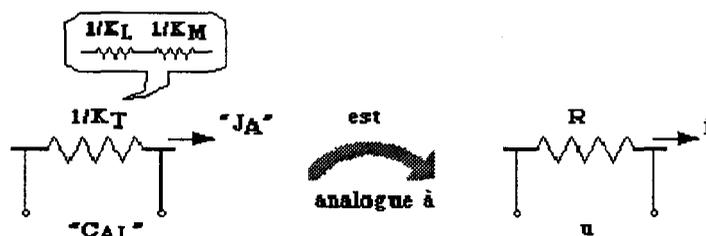


Figure 1.8: Analogie exprimant la résistance au transfert

à l'interface aval. Dans la plupart des cas, ce terme est négligé [9]. Néanmoins, étant donné la nature du modèle, il est difficile de lui accorder un caractère explicatif.

1.3.3 L'approche solution-diffusion

L'approche précédente était basée sur une représentation mathématique plaquée sur les observations expérimentales, il s'agissait donc d'un modèle de représentation. Il en découle les inconvénients liés à ce type de choix : domaine de validité peu étendu du modèle et absence de sens physique des paramètres de celui-ci [43]. C'est donc pour palier l'absence de caractère explicatif du modèle de résistances en série que les praticiens du Génie des Procédés se sont attachés à trouver un modèle de connaissance à partir des lois physiques qui gouvernent le transfert de matière dans la membrane.

Processus de transfert de matière

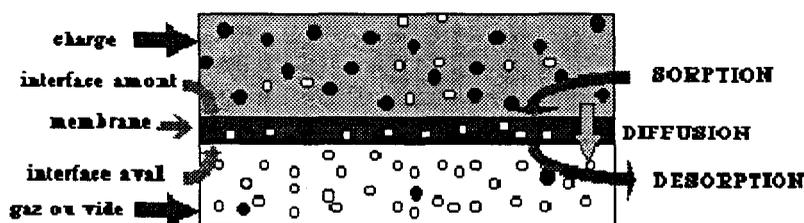


Figure 1.9: Transfert de matière en pervaporation d'une espèce en solution

Pour décrire le transfert de matière, l'approche la plus courante est celle qui considère un processus de solution-diffusion [15, p186]. Le transport à travers une membrane (fig 1.9) implique un système à trois phases (liquide, solide et gaz) et s'accompagne du franchissement de deux discontinuités (interfaces amont et aval).

Cette approche conduit à décomposer le processus en trois étapes successives [37]:

- la sorption à l'interface liquide/membrane
- la diffusion au sein de la membrane
- la désorption à l'interface membrane/gaz ou vide

Dans le compartiment amont, les espèces se solubilisent préférentiellement dans le polymère (membrane), c'est-à-dire que l'espèce pour laquelle la membrane présente une affinité se « fixe » sur celle-ci. La contrainte qui provoque le mouvement des espèces au sein de la membrane est le gradient de potentiel chimique existant de part et d'autre de celle-ci (diffusion). Enfin, dans le compartiment aval, tant que la pression partielle de vapeur d'un composé est inférieure à sa pression de vapeur saturante, il y a désorption, c'est-à-dire que l'espèce pour laquelle la membrane présentait une affinité est « extraite » de cette dernière.

La sorption

La sorption est un phénomène connu en physique des surfaces et il existe de nombreux mécanismes pouvant se rattacher à ce phénomène physique. Il s'agit donc d'être prudent quand on évoque la sorption. Il nous paraît donc important de définir précisément ce que recouvre ce terme.

La sorption est un phénomène de surface. Il faut distinguer l'adsorption de l'absorption. Dans l'adsorption, la molécule attirée par la surface y reste attachée, tandis que l'absorption est une adsorption suivie d'une pénétration de l'espèce adsorbée à l'intérieur du solide par un processus de diffusion [45]. En pervaporation, on se trouve dans ce dernier cas.

Le processus de solution-diffusion suppose que la sorption des composés à l'interface amont est un équilibre thermodynamique [23, 25]. Il existe de nombreux modèles pour décrire cet équilibre mais dans la littérature on considère généralement un cas simplifié [23, 37, 41]. La thermodynamique permet d'écrire, après l'intégration d'une équation différentielle du premier ordre :

$$a_{LM} = a_{AL} e^{-\alpha(p_{LM} - p_{AL})} \quad (1.2)$$

où :

a_{LM} est l'activité¹ de A dans la membrane à l'interface amont

a_{AL} est l'activité de A dans la phase liquide

p_{LM} est la pression dans la membrane

p_{AL} est la pression dans la phase liquide

α est une constante

Si l'on admet la non déformation de la membrane, la pression peut être supposée la même dans la membrane et dans la charge ($p_{LM} = p_{AL}$) et l'équation 1.1 se simplifie en :

$$a_{LM} = a_{AL} \quad (1.3)$$

Enfin, si la sorption est supposée idéale, l'activité est proportionnelle à la concentration (loi de Henry), soit :

$$\gamma_{LM} C_{LM} = \gamma_{AL} C_{AL} \quad (1.4)$$

où :

γ_{LM} est le coefficient d'activité dans la membrane

γ_{AL} est le coefficient d'activité dans la phase liquide

La concentration C_{LM} est donc proportionnelle à la la concentration C_{AL} . Le rapport $\frac{\gamma_{AL}}{\gamma_{LM}}$ est appelé coefficient de partition et c'est celui-ci qui quantifie la sélectivité de la membrane.

¹l'activité est une grandeur thermodynamique fonction du potentiel chimique

La relation 1.4 traduit donc bien la nature sélectivité des procédés de séparation à membrane car γ_{AL} étant supérieur à γ_{LM} , le composé A se retrouve plus concentré dans la membrane que dans la charge. Ceci explique le « saut » (ou discontinuité) de la figure 1.10.

La désorption

Si on procédait par analogie, à la sorption on rattacherait la condensation tandis qu'on verrait la désorption comme une évaporation. La sorption et la désorption sont donc des phénomènes très semblables. La désorption est alors traitée de manière similaire. Là encore, la thermodynamique permet d'écrire :

$$a_{MV} = a_{AV} e^{-\alpha(p_{MV} - p_{AV})} \quad (1.5)$$

Comme α tend vers 0, le terme exponentiel tend vers 1 [6], on a :

$$\gamma_{MV} C_{MV} = \gamma_{AV} C_{AV} \quad (1.6)$$

Comme pour la sorption, on retrouve que la quantité désorbée évolue linéairement avec la concentration dans la membrane (fig 1.10).

Transfert de masse dans la membrane

cas général

En prenant en compte le déséquilibre de potentiel chimique existant de part et d'autre de la membrane, et en supposant d'une part la diffusion unidirectionnelle et d'autre part la différence de pression entre l'amont et l'aval négligeable, on exprime le flux J_A par une loi locale de conservation de la matière, la loi de Fick [37] :

$$J_A = -D_{AM} C_{AM} \frac{d(\ln a_A)}{dz} \quad (1.7)$$

où :

$\ln a_A$ est donné par la thermodynamique des systèmes macromoléculaires et D_{AM} est le coefficient de diffusion de A dans le polymère (la membrane).

En pervaporation, ce dernier est fonction de la concentration locale C_{AM} de l'espèce A . De manière générale, on écrit donc [6] :

$$D_{AM}(C_{AM}) = D_{AM}^{\circ} f(C_{AM}) \quad (1.8)$$

où D_{AM}° est le coefficient de diffusion à dilution infinie, c'est à dire :

$$\lim_{C_{AM} \rightarrow 0} f = 1$$

cas idéal

Si, de plus, on admet que la nature de la membrane ne perturbe pas le transfert des espèces et que son rôle est purement sélectif, les activités a_A sont alors proportionnelles aux concentrations C_{AM} et on exprime alors le flux J_A par la loi dite loi de Fick [37] :

$$J_A = -D_{AM} \frac{dC_{AM}}{dz} \quad (1.9)$$

Lors de l'extraction d'un composé A de concentration volumique C_{AL} en amont (supposée uniforme pour simplifier) et de concentration volumique C_{AV} en aval (supposée aussi uniforme), on observe, en régime stationnaire, le profil de concentration de la figure 1.10. Cette figure met clairement en évidence l'aspect

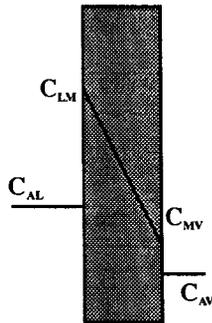


Figure 1.10: Profil de concentration en régime stationnaire

sélectif du procédé. En effet, à l'interface liquide / membrane, les propriétés permettent d'obtenir le « saut » (ou discontinuité) de C_{AL} à C_{LM} . C'est-à-dire le passage d'une espèce très diluée en amont à une espèce très concentrée dans

la membrane. Puis de manière analogue (mais dans le sens opposé) d'obtenir le « saut » de C_{MV} à C_{AV} qui traduit la dilution de l'espèce très concentrée dans le gaz inerte ou le vide. Enfin, le profil, linéaire ou parabolique, qui permet de passer de C_{LM} à C_{MV} traduit la diffusion au sein de la membrane.

1.3.4 Cas de plusieurs espèces

Les approches présentées dans les paragraphes précédents ne tenaient compte que du transport d'une seule espèce A en solution. La sélectivité de la membrane n'agit que sur cette dernière. Lorsque plusieurs espèces sont en solution, la mise en équation est plus délicate. On pourrait envisager une situation simplifiée où le transport de plusieurs espèces s'effectuerait de manière indépendante. Il suffirait alors d'écrire autant de fois l'équation 1.7 ou 1.9 qu'il y a de composés en solution. Mais ce n'est généralement pas le cas car il apparaît une diffusion couplée et/ou un transfert couplé.

Diffusion couplée

On considère dans ce cas que le coefficient de diffusion de chaque espèce est affecté non seulement par sa propre concentration locale mais aussi par la concentration locale des autres espèces transférées [6]. Dans ce cas, on écrit que pour un mélange binaire ($A+B$):

$$D_{AM}(C_{AM}) = D_{AM}^{\circ} f(C_{AM}, C_{BM}) \quad (1.10)$$

$$D_{BM}(C_{BM}) = D_{BM}^{\circ} g(C_{AM}, C_{BM})$$

où, par exemple, si F_{AB} traduit la diffusion couplée², f et g pourront prendre les formes suivantes :

$$f(C_{AM}, C_{BM}) = e^{F_{AA}C_{AM} + F_{AB}C_{BM}} \quad (1.11)$$

$$g(C_{AM}, C_{BM}) = e^{F_{AB}C_{AM} + F_{BB}C_{BM}}$$

²pour la diffusion couplée, l'approche solution-diffusion s'applique encore. Ce ne sera plus le cas lorsqu'on a un transfert couplé

On a alors les équations des flux des espèces A et B :

$$J_A = -D_{AM}(C_{AM}, C_{BM}) \frac{dC_{AM}}{dz} \quad (1.12)$$

$$J_B = -D_{BM}(C_{AM}, C_{BM}) \frac{dC_{BM}}{dz}$$

Transfert couplé

Le transport de plusieurs espèces à travers une membrane est compliqué par le fait que chaque espèce est tributaire, non seulement des interactions avec la membrane (diffusion couplée), mais également des interactions mutuelles avec les autres espèces.

Les flux de chaque espèce sont donc mutuellement dépendants. Ce couplage peut être décrit à l'aide des relations phénoménologiques dérivées de la thermodynamique des processus irréversibles linéaires [3] :

$$\begin{aligned} -J_A &= L_{AA} \frac{d\mu_A}{dz} + L_{AB} \frac{d\mu_B}{dz} \\ -J_B &= L_{BB} \frac{d\mu_B}{dz} + L_{AB} \frac{d\mu_A}{dz} \end{aligned} \quad (1.13)$$

où :

L_{IJ} sont des constantes

μ_A est le potentiel chimique de l'espèce A

μ_B est le potentiel chimique de l'espèce B

Dans ces équations, c'est le second terme du membre de droite qui traduit les interactions entre les espèces A et B .

Le modèle de Stephan-Maxwell

Ce modèle ne se base pas sur l'approche d'un schéma solution-diffusion mais pose comme principe que les forces qui agissent sur un composé diffusant dans un milieu sont contrebalancées par les forces de friction exercées par le milieu [46, 47] :

$$\Sigma \text{ forces de friction} + \Sigma \text{ forces motrices} = 0$$

Si plusieurs composés diffusent, alors il y aura des frictions entre tous ces composés. Dans le modèle de Stefan-Maxwell, l'équation prend la forme suivante :

$$\sum_{K=1}^n \frac{C_K}{C \times D_{IK}} \left(\frac{J_I}{C_I} - \frac{J_K}{C_K} \right) = -\frac{d\mu_I}{dz} \quad (1.14)$$

où :

C_K : molarité de l'espèce κ dans la membrane

D_{IK} : coefficient de diffusion mutuelle

J_I : flux molaire de l'espèce I

J_K : flux molaire de l'espèce κ

C : molarité totale des espèces dans la membrane ($C = \sum_{K=1}^n C_K$)

1.4 Paramètres influençant le transfert

1.4.1 En amont

« Il n'existe que peu de travaux dans la littérature portant sur ces paramètres » [25, p20]. Néanmoins, quelques travaux récents semblent montrer que les conditions hydrodynamiques pourraient avoir la plus grande influence [16, 31, 52].

De part sa sélectivité, la membrane présente toujours une affinité pour le composé à extraire tandis qu'elle ne facilitera pas le passage du solvant. De sorte qu'on observe que le solvant (l'espèce retenue) tend à s'accumuler³ au voisinage de la membrane alors que l'espèce à extraire y est déficitaire (fig 1.11). Cet effet, limitant pour le transfert, est connu sous le nom de couche limite ou polarisation de concentration [8, 29]. La géométrie du module influence l'épaisseur de cette couche. Toutefois, quand cet effet est limitant, il est possible d'améliorer le transfert de masse en augmentant le débit.

³pour les solutions diluées, ce qui est notre cas, le soluté est présent minoritairement et le solvant est l'eau ; l'augmentation de solvant est donc négligeable alors que la diminution du soluté est importante

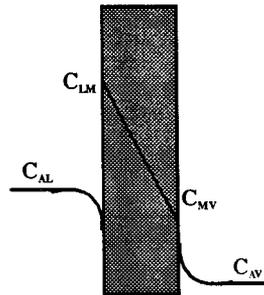


Figure 1.11: Profil de concentration avec couche limite en régime stationnaire

1.4.2 Dans la membrane

La nature de la membrane utilisée est un facteur essentiel gouvernant la séparation. Ce paramètre semble malheureusement très difficile à prendre en compte car il conduit à saisir les mécanismes microscopiques qui conditionnent la séparation. De plus, les opérations s'effectuant pour une membrane donnée, il ne semble pas essentiel de concentrer nos efforts sur ce point.

Implicitement, il a été évoqué⁴ que le coefficient de diffusion pouvait être fonction de la concentration locale dans la membrane. Toutefois, ces coefficients ne sont pas nécessairement modifiés par les concentrations. C'est le cas lorsque les solutions sont extrêmement diluées [39].

1.4.3 En aval

Selon le système employé⁵, on est amené à agir soit sur une pression dans le compartiment aval, soit sur un débit de gaz vecteur. Ces paramètres influencent l'étape de désorption. Sous vide, le flux de pervaporat augmente lorsque la pression aval diminue tandis que par balayage gazeux celui-ci diminue quand le débit croît. Comme en amont, on peut observer une couche limite dans le compartiment aval (fig 1.11).

⁴équation 1.8, page 22

⁵séparation par vide en aval ou par gaz vecteur

1.5 Conclusions et objectifs de ce travail

On a vu que les techniques de séparation par membranes, et particulièrement la pervaporation, couvraient un vaste domaine d'applications. Les recherches menées actuellement sur ces procédés suivent quatre grands axes :

- le développement de membranes plus performantes
- l'amélioration de la configuration des unités de pervaporation
- la recherche de nouveaux champs d'applications industrielles
- la compréhension des mécanismes de transferts et leur modélisation dans le cas de systèmes complexes

Si l'avant dernier point retient plus particulièrement l'attention du laboratoire de GPAB⁶, le dernier point relève de nos compétences. Avec cette remarque néanmoins qu'il n'existe pas, à l'heure actuelle, de modèle universel de transport du mélange de plusieurs espèces en pervaporation [15]. Il reste que pour les solutions diluées, on pourra simplifier la formalisation du transfert de matière dans la membrane : l'absence vraisemblable de couplage conduit à postuler que les flux d'eau et d'arôme sont indépendants [15, p195]. Ceci implique que seul le transfert d'une espèce en solution sera décrit. Sans toutefois s'attacher à décrire les mécanismes physico-chimiques élaborés qui conditionnent le transfert (ceci relève de la compétence du praticien) dans cette étude, la complexité concernera la dynamique du processus (concept propre à l'automaticien) dans un module de géométrie quelconque.

Il est alors possible d'entreprendre la mise en équation sous deux angles différents : l'approche physique ou comportementale. Si la première est à sens concret et à domaine de validité étendu (quand la structure du modèle est correcte), ce n'est pas le cas de la seconde. Il reste qu'en général on simule plus facilement les modèles de comportement que les modèles de connaissance [51].

⁶Laboratoire de Génie des Procédés Alimentaires et Biotechnologiques (ENSBANA, Dijon)

Des exigences différentes vis-à-vis du modèle conduisent donc le « modéliste » à choisir entre ces deux types d'approche. Pour notre étude, il s'avère que la plupart des lois physiques décrivant le transfert de matière sont bien établies (en régime stationnaire en tout cas). A défaut d'une approche comportementale, c'est donc une modélisation de connaissance qui a été choisie.

Chapitre 2

Etablissement d'un modèle interne

Il est utile, avant d'entamer toute modélisation, de rappeler le but de notre étude : il s'agit de décrire la dynamique de transfert d'une espèce organique dans un module de pervaporation. Ayant fixé notre choix sur un modèle physique, c'est donc en décrivant le transport de matière étape par étape que le modèle va être établi.

On rappelle, comme le montre la figure 2.1 que d'un côté de la membrane (face amont) s'écoule le mélange liquide à traiter (étape 1) tandis que de l'autre côté de celle-ci (face aval) on crée le vide (ou on balaye avec un gaz inerte) de telle façon que le liquide qui a diffusé au travers de la membrane (étape 2) se désorbe et se retrouve dans le gaz balayant la membrane (étape 3).

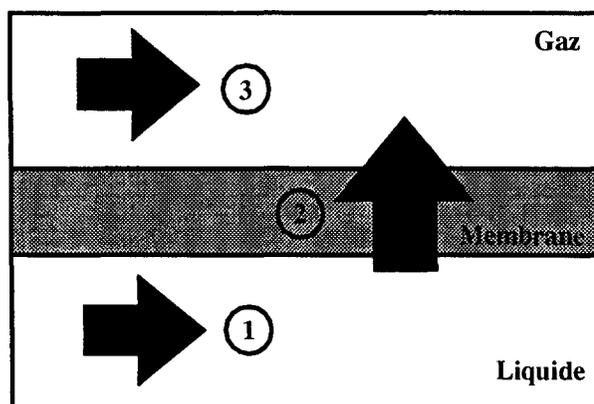


Figure 2.1: Principe d'une extraction par pervaporation

2.1 Modélisation du transfert de masse dans le compartiment amont (étape 1)

La phase liquide est constituée d'un fluide en mouvement et il faut décrire la répartition de matière dans cette phase. D'une manière générale, les lois de la mécanique des fluides permettent la mise en équation d'un tel problème.

Dans un premier temps, cette mise en équations est abordée, dans le cas général, en posant les hypothèses sur les lois physiques qui régissent le transport dans le mélange liquide et l'écoulement de celui-ci. La prise en compte des géométries des modules de pervaporation conduit, dans un deuxième temps, à développer les expressions trouvées pour le cas général.

2.1.1 Cas général

Equation de continuité

Pour un fluide en mouvement de constituants A et L , si on écrit le bilan matière relatif au seul constituant A , sachant qu'il n'est pas produit par réaction, il vient [33] :

$$\nabla \vec{N}_A^L = -\rho_A^L \frac{\partial x_A^L}{\partial t} \quad (2.1)$$

où :

∇ est l'opérateur Hamiltonien ou nabla

\vec{N}_A^L est le flux total de l'espèce A en solution dans la phase liquide L
($mol\ s^{-1}\ m^{-2}$)

ρ_A^L est la densité molaire de l'espèce A dans la phase liquide L ($mol\ m^{-3}$)

x_A^L est la fraction molaire¹ (rapport du nombre de moles de A par le nombre total de moles du mélange de l'espèce A dans la phase amont)

t est le temps (s)

Dans un fluide constitué d'une seule phase (liquide dans notre cas), dès qu'il existe une hétérogénéité de concentrations, on observe une évolution spontanée

¹la fraction molaire x est liée à la concentration molaire C par la relation $C = \rho x$

vers l'uniformité des concentrations. Cela est dû à la diffusion moléculaire. Le flux \vec{N}_A^L intègre donc le transport par le mouvement d'ensemble du fluide (convection) et la diffusion moléculaire.

$$\vec{N}_A^L = \vec{J}_A^L + \rho_A^L x_A^L \vec{u} \quad (2.2)$$

où :

\vec{J}_A^L est le flux dû à la diffusion moléculaire ($mol\ s^{-1}\ m^{-2}$)

\vec{u} est la vitesse moyenne du mélange ($m\ s^{-1}$)

La première loi de Fick permet d'exprimer le flux \vec{J}_A^L du constituant A pour le mélange :

$$\vec{J}_A^L = -\rho_A^L D_{AL} \nabla x_A^L \quad (2.3)$$

où :

D_{AL} représente le coefficient de diffusion, constant, de A dans L ($m^2\ s^{-1}$)

x_A^L étant un scalaire, il est aussi possible d'écrire :

$$\vec{J}_A^L = -\rho_A^L D_{AL} \vec{grad} x_A^L$$

Enfin, comme le fluide est supposé incompressible² (i.e. la masse volumique se conserve au cours du mouvement $\frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$), on écrira [11] :

$$div\ \vec{u} = 0 \quad (2.4)$$

Equation du mouvement du fluide dans le cas d'un écoulement unidirectionnel en régime établi

De manière générale, l'équation d'un fluide visqueux incompressible en mouvement, dite équation de Navier-Stokes, est la suivante [11, 20] :

$$\rho \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \rho (\vec{u}\ \vec{grad})\ \vec{u} = -\vec{grad}\ p_L + \mu_L \Delta \vec{u} \quad (2.5)$$

²et non pas homogène (i.e. fluide dont la masse volumique est constante dans tout le domaine occupé par l'écoulement)

où :

Δ est l'opérateur Laplacien

\vec{u} est le vecteur vitesse moyenne du mélange ($m s^{-1}$)

$\vec{grad} \vec{u}$ est le tenseur gradient du champ de vitesse

μ_L est la viscosité dynamique ($kg m^{-1} s^{-1}$)

$\vec{grad} p_L$ est le gradient de pression motrice

Dans le cas d'un écoulement unidirectionnel en régime établi, cette équation se simplifie notablement. En effet, le régime établi impose $\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} = 0$. Si l'écoulement est unidirectionnel dans la direction Ox par exemple, on écrira :

$$u_y(x, y, z) = u_z(x, y, z) = 0$$

En combinant ces relations avec la condition d'incompressibilité (équation 2.4), on obtient : $\frac{\partial u_x}{\partial x} = 0$

\vec{u} a alors pour composantes $(u_x(y, z), 0, 0)$ et $(\vec{u} \vec{grad}) \vec{u} = 0$

L'équation 2.5 de Navier-Stokes s'écrit alors :

$$\vec{grad} p_L = \mu_L \Delta \vec{u} \quad (2.6)$$

Trouver l'expression de la vitesse d'écoulement \vec{u} revient donc à résoudre l'équation 2.6.

Remarque

On pourrait envisager un traitement plus complexe du mouvement du fluide. Mais la résolution de l'équation de Navier-Stokes est encore actuellement un sujet d'investigation en mécanique des fluides. En effet, cette équation ne peut être, en général, résolue analytiquement (cela est dû en grande partie à la présence du terme non linéaire $\vec{u} \vec{grad} \vec{u}$). Il faut alors mettre en oeuvre des méthodes numériques complexes pour obtenir une solution de cette équation.

Il reste qu'en pervaporation, l'écoulement a lieu dans un canal de faible section, de grande longueur et à des vitesses peu élevées. En première approche, il est donc concevable que l'écoulement soit unidirectionnel en régime établi. Comme de plus, dans tous les mouvements de fluides incompressibles, et dans l'hypothèse où les constantes physiques sont indépendantes de la

concentration, les problèmes massiques sont complètement découplés des problèmes d'écoulement [11]. Rien n'interdit dans ce cas d'imposer des hypothèses moins restrictives dans une phase ultérieure.

2.1.2 Prise en compte de la géométrie

Les modules de pervaporation existent dans différentes géométries³. Les équations 2.1 à 2.4 et 2.6 étant tout à fait générales, nous allons maintenant détailler l'écriture de celles-ci dans le cas des deux géométries principalement rencontrées : la géométrie plane et la géométrie cylindrique.

Cas d'un module plan

Nous étudions le fluide de constituants A et L entre deux plans horizontaux (fig 2.2) fixes et parallèles d'équations : $y = -Y_L$; $y = +Y_L$. Dans ce cas, l'équation

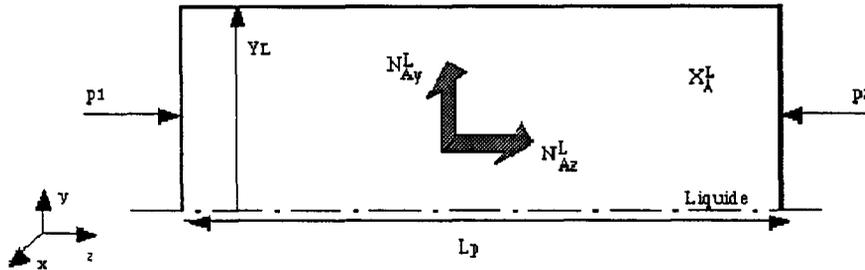


Figure 2.2: Représentation schématique d'un module plan

2.1 s'écrit⁴ :

$$\frac{\partial N_{Ax}^L}{\partial x} + \frac{\partial N_{Ay}^L}{\partial y} + \frac{\partial N_{Az}^L}{\partial z} = -\rho_A^L \frac{\partial x_A^L}{\partial t} \quad (2.7)$$

où N_{Ax}^L (respectivement N_{Ay}^L et N_{Az}^L) représente le flux tenant compte de la convection et de la diffusion suivant Ox (respectivement Oy et Oz), à savoir :

$$N_{Ax}^L = \rho_A^L x_A^L u_x + J_{Ax}^L$$

³cf chapitre 1, section 1.2.4

⁴ \vec{N}_A^L est un vecteur, le produit scalaire $\nabla \cdot \vec{N}_A^L$ est alors dans ce cas $div \vec{N}_A^L$

$$N_{Ay}^L = \rho_A^L x_A^L u_y + J_{Ay}^L$$

$$N_{Az}^L = \rho_A^L x_A^L u_z + J_{Az}^L$$

L'équation 2.7 peut être simplifiée sous certaines hypothèses. Généralement, on considère que le terme de convection ne résulte que du transport axial (suivant Oz) tandis que le terme de diffusion ne résulte que du transport suivant Oy [41]. Les phénomènes suivant Ox sont donc négligés. Comme de plus, le fluide est supposé incompressible, on a :

$$N_{Ay}^L = J_{Ay}^L = -\rho_A^L D_{AL} \nabla x_A^L$$

$$N_{Az}^L = \rho_A^L x_A^L u_z$$

Comme le coefficient de diffusion D_{AL} est constant, l'équation 2.7 devient :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial t} = -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z} + D_{AL} \frac{\partial^2 x_A^L}{\partial y^2} \quad (2.8)$$

u_z est la vitesse moyenne selon l'axe Oz. L'expression de cette vitesse est donnée par la résolution de l'équation 2.6. On s'intéresse ici à l'écoulement d'un fluide visqueux entre deux plans, cet écoulement est induit par un gradient de pression $-\frac{\Delta p}{L_p}$ dans la direction Oz⁵. On écrit donc : $\mu_L \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} = \frac{p_2 - p_1}{L_p}$

En intégrant deux fois et en prenant en compte les conditions aux limites (vitesse nulle sur les parois), on trouve l'expression analytique suivante :

$$u_z = \frac{1}{2 \mu_L} \frac{p_2 - p_1}{L_p} (y^2 - Y_L^2) \quad (2.9)$$

Le profil de vitesse présente donc un aspect parabolique (loi de Poiseuille).

Bien souvent, on connaît ou le débit-volume Q ($m^3 s^{-1}$) ou la vitesse moyenne ($m s^{-1}$). On pourra donc exprimer la vitesse en fonction de ces deux grandeurs. Le débit-volume Q est donné par l'expression suivante [40, p257], si l est la largeur du canal :

$$Q = l \int_{-Y_L}^{+Y_L} u_z dy$$

⁵le gradient de pression est négatif lorsque l'écoulement se fait dans le sens des z positifs

Soit :

$$Q = \frac{2}{3\mu_L} (p_1 - p_2) l Y_L^3$$

Comme la vitesse moyenne (ou vitesse débitante) est donnée par $u_d = \frac{Q}{2lY_L}$, on a alors :

$$u_z = \frac{3}{2} u_d \left(1 - \frac{y^2}{Y_L^2}\right) \quad (2.10)$$

Etant données les hypothèses posées sur le transport en amont, dans le cas d'une géométrie plane, c'est donc l'équation 2.8 qui permet de décrire la répartition de matière dans la phase liquide tandis que l'équation 2.10 donne la vitesse d'écoulement dans cette phase si celui-ci est unidirectionnel établi.

Cas d'un module cylindrique

Nous étudions le fluide de constituants A et L dans un tube cylindrique horizontal de rayon R_L et de longueur L_c (figure 2.3).

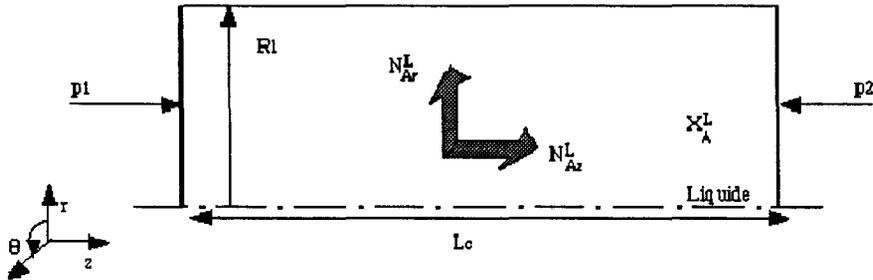


Figure 2.3: Représentation schématique d'un module cylindrique

Un traitement analogue au cas précédent permet d'écrire l'équation 2.1 sous la forme suivante :

$$\frac{\partial N_{Ar}^L}{\partial r} + \frac{\partial N_{A\theta}^L}{\partial \theta} + \frac{\partial N_{Az}^L}{\partial z} = -\rho_A^L \frac{\partial x_A^L}{\partial t} \quad (2.11)$$

où :

$$N_{Ar}^L = \rho_A^L x_A^L u_r + J_{Ar}^L$$

$$N_{A\theta}^L = \rho_A^L x_A^L u_\theta + J_{A\theta}^L$$

$$N_{Az}^L = \rho_A^L x_A^L u_z + J_{Az}^L$$

Toujours de manière semblable au cas du module plan, on simplifie l'équation 2.11 avec les hypothèses suivantes : on néglige le terme suivant θ , le terme de convection ne résulte que du transport axial (suivant Oz) tandis que le terme de diffusion ne résulte que du transport radial (suivant Or) [41]. La condition d'incompressibilité étant inchangée, on a :

$$N_{Ar}^L = J_{Ar}^L = -\rho_A^L D_{AL} \nabla x_A^L$$

$$N_{Az}^L = \rho_A^L x_A^L u_z$$

et l'équation 2.11 devient :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial t} = -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z} + D_{AL} \left(\frac{\partial^2 x_A^L}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^L}{\partial r} \right) \quad (2.12)$$

L'expression de la vitesse est donnée par la résolution de l'équation 2.6. On s'intéresse cette fois à l'écoulement d'un fluide visqueux dans un tube cylindrique horizontal de rayon R_L et le longueur L_c , cet écoulement est induit par un gradient de pression $-\frac{\Delta p}{L_c}$ dans la direction Oz. Par deux intégrations successives et en prenant en compte les conditions aux limites sur les parois du tube ($u_z = 0$ pour $r = R_L$), on trouve [40] :

$$u_z = \frac{p_2 - p_1}{4\mu_L L_c} (R_L^2 - r^2) \quad (2.13)$$

Le profil de vitesse présente le même aspect parabolique que dans le canal plan.

Pour calculer le débit-volume lié à la différence de pression ($p_2 - p_1$), on écrit :

$$Q = \int_0^{R_L} 2\pi r u_z dr$$

Soit :

$$Q = \frac{\pi}{\mu_L} \frac{p_1 - p_2}{L_c} R_L^4$$

Comme la vitesse débitante est donnée par $u_d = \frac{Q}{\pi R_L^2}$, on a :

$$u_z = 2u_d \left(1 - \frac{r^2}{R_L^2} \right) \quad (2.14)$$

Etant données les hypothèses posées sur le transport en amont, dans le cas de la géométrie cylindrique, c'est donc l'équation 2.12 qui permet de décrire la répartition de matière dans la phase liquide tandis que l'équation 2.14 donne la vitesse d'écoulement dans cette phase si celui-ci est unidirectionnel établi.

2.2 Modélisation du transfert de masse dans la membrane (étape 2)

La phase solide est constituée d'une membrane immobile (polymère) et il faut décrire le transport de matière dans celle-ci. C'est à partir des lois de la physico-chimie qu'il est possible d'envisager la mise en équation de ce problème.

La démarche précédemment proposée sera reproduite dans cette partie. En posant les hypothèses sur les lois physico-chimiques qui régissent le transfert, c'est d'abord dans le cas général que la mise en équation est proposée puis la prise en compte de la géométrie amène à développer ces équations.

2.2.1 Cas général

Pour le constituant A dans la membrane M , l'équation de continuité s'écrit (pas de réactions) :

$$\nabla \vec{N}_A^M = -\rho_A^M \frac{\partial x_A^M}{\partial t} \quad (2.15)$$

où :

∇ est l'opérateur Hamiltonien ou nabla

\vec{N}_A^M est le flux total de l'espèce A dans la membrane M

($mol\ s^{-1}\ m^{-2}$)

ρ_A^M est la densité molaire de l'espèce A dans la membrane M ($mol\ m^{-3}$)

x_A^M est la fraction molaire de l'espèce A dans la membrane M (rapport du nombre de moles de A par le nombre total de moles dans la membrane)

t est le temps (s)

Le flux \vec{N}_A^M intègre le transport global de A dans M immobile. Le transfert dans la membrane dense est provoqué par le gradient de potentiel chimique

de l'espèce migrante qui s'établit entre les deux faces du polymère. Celui-ci s'effectue donc par diffusion [5, 37, 41]. L'équation de diffusion dérive directement de la loi de Fick qui est une loi locale de conservation de la matière. Si \vec{J}_A^M (en $\text{mol s}^{-1} \text{m}^{-2}$) est le flux dû à la diffusion moléculaire dans la membrane, cette loi s'écrit :

$$\vec{J}_A^M = -\rho_A^M D_{AM} \nabla x_A^M$$

où D_{AM} est le coefficient de diffusion, supposé constant, de A dans la membrane M . L'équation 2.15 s'écrit alors :

$$\text{div } \vec{J}_A^M = -\rho_A^M \frac{\partial x_A^M}{\partial t} \quad (2.16)$$

avec :

ρ_A^M la densité molaire de l'espèce A dans la membrane M (mol m^{-3})

x_A^M la fraction molaire de l'espèce A dans la membrane M (rapport du nombre de moles de A par le nombre total de moles dans la membrane)

D_{AM} le coefficient de diffusion de A dans la membrane M , supposé constant ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)

2.2.2 Prise en compte de la géométrie

Cas d'une géométrie plane

En coordonnées cartésiennes, si on suppose la diffusion isotrope (soit D_{AM} constant dans toutes les directions de l'espace), on a :

$$J_{Ax}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial x}$$

$$J_{Ay}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y}$$

$$J_{Az}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial z}$$

Or l'expression de la divergence du vecteur \vec{J}_A^M en coordonnées cartésiennes s'exprime par :

$$\text{div } \vec{J}_A^M = \frac{\partial J_{Ax}^M}{\partial x} + \frac{\partial J_{Ay}^M}{\partial y} + \frac{\partial J_{Az}^M}{\partial z}$$

Etant données les caractéristiques des membranes de pervaporation (grande surface et faible épaisseur), on néglige la diffusion suivant Ox et Oz (fig 2.4).

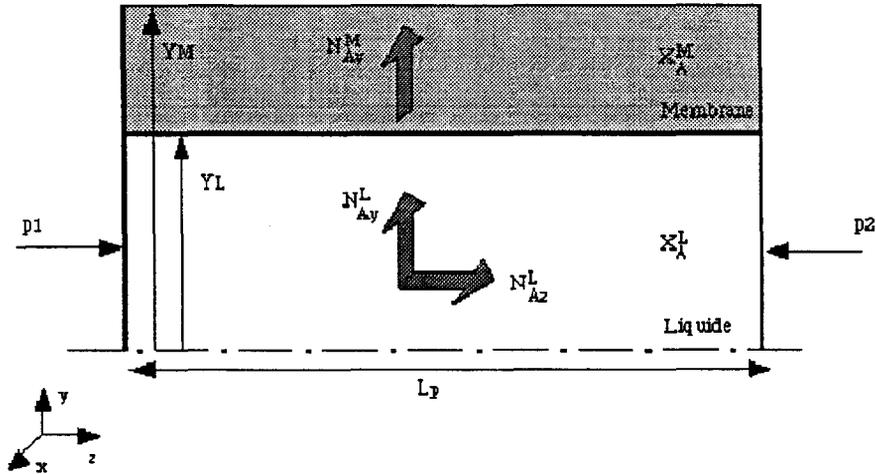


Figure 2.4: Transfert dans la membrane, cas plan

Il reste donc :

$$J_{Ay}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y}$$

$$\text{div } \vec{J}_A^M = \frac{\partial J_{Ay}^M}{\partial y}$$

L'équation 2.15 s'écrit finalement :

$$\frac{\partial x_A^M}{\partial t} = D_{AM} \frac{\partial^2 x_A^M}{\partial y^2} \quad (2.17)$$

Etant données les hypothèses posées sur la diffusion dans la membrane, c'est donc l'équation 2.17 qui décrit le transfert de matière dans le polymère pour la géométrie plane. Celle-ci n'est rien d'autre que l'équation de la chaleur.

Cas d'une géométrie cylindrique

En coordonnées cylindriques, la diffusion étant toujours supposée isotrope, on a :

$$J_{Az}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial z}$$

$$J_{Ar}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r}$$

$$J_{A\theta}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^M}{\partial \theta}$$

Or l'expression de la divergence du vecteur \vec{J}_A^M en coordonnées cylindriques s'exprime par :

$$\text{div } \vec{J}_A^M = \frac{\partial J_{Az}^M}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r J_{Ar}^M) + \frac{1}{r} \frac{\partial J_{A\theta}^M}{\partial \theta}$$

Etant données les caractéristiques des membranes de pervaporation, comme précédemment, on néglige la diffusion suivant Oz et Oθ (fig 2.5).

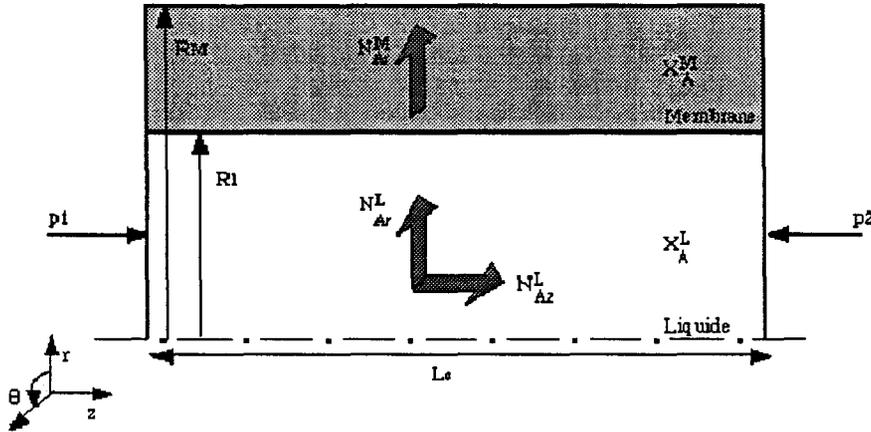


Figure 2.5: Transfert dans la membrane, cas cylindrique

Il reste alors :

$$J_{Ar}^M = -\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r}$$

$$\text{div } \vec{J}_A^M = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r J_{Ar}^M)$$

L'équation 2.15 s'écrit finalement :

$$\frac{\partial x_A^M}{\partial t} = D_{AM} \left(\frac{\partial^2 x_A^M}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} \right) \quad (2.18)$$

Etant données les hypothèses posées sur la diffusion dans la membrane, dans le cas cylindrique, c'est donc l'équation 2.18 qui décrit le transfert de matière dans le polymère.

2.3 Modélisation du transfert de masse dans le compartiment aval (étape 3)

L'étude en aval est assez semblable à la mise en équation en amont. La seule différence est qu'à défaut d'une phase liquide, on a une phase gaz.

2.3.1 Cas général

Equation de continuité

Pour un fluide de constituants A et v en mouvement, on a la même équation que 2.1

$$\nabla \vec{N}_A^v = -\rho_A^v \frac{\partial x_A^v}{\partial t} \quad (2.19)$$

où :

\vec{N}_A^v est le flux total de l'espèce A en solution dans la phase aval v
($\text{mol s}^{-1} \text{m}^{-2}$)

ρ_A^v est la densité molaire de l'espèce A dans la phase gaz v (mol m^{-3})

x_A^v est la fraction molaire de l'espèce A dans la phase aval (rapport du nombre de moles de A par le nombre total de moles du mélange gazeux)

t est le temps (s)

De manière générale, on considère toujours qu'il y a convection-diffusion. Le flux \vec{N}_A^v intégrant ces deux types de transport, on écrit :

$$\vec{N}_A^v = \vec{J}_A^v + \rho_A^v x_A^v \vec{w} \quad (2.20)$$

où :

\vec{J}_A^v est le flux dû à la diffusion moléculaire ($\text{mol s}^{-1} \text{m}^{-2}$)

\vec{w} est la vitesse moyenne du mélange en aval (m s^{-1})

Le flux \vec{J}_A^v est exprimé par la première loi de Fick :

$$\vec{J}_A^v = -\rho_A^v D_{Av} \nabla x_A^v \quad (2.21)$$

où D_{AV} représente le coefficient de diffusion de A dans le gaz v , supposé constant ($\text{mol s}^{-1} \text{m}^2$)

Enfin, on a la condition d'incompressibilité du gaz, soit :

$$\text{div } \vec{w} = 0 \quad (2.22)$$

Equation du mouvement du fluide en aval dans le cas d'un écoulement unidirectionnel en régime établi

On peut toujours écrire l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho \frac{\partial \vec{w}}{\partial t} + \rho (\vec{w} \text{ grad}) \vec{w} = -\text{grad } p_v + \mu_v \Delta \vec{w} \quad (2.23)$$

où :

μ_v est la viscosité dynamique du gaz ($\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$)

$\text{grad } p_v$ est le gradient de pression motrice en aval

La seule différence entre les compartiments amont et aval est la suivante : le fluide est une phase liquide en amont, tandis qu'en aval c'est une phase gaz. Néanmoins, la longueur d'écoulement est toujours grande devant la section, rien n'interdit donc de considérer l'écoulement comme unidirectionnel établi. L'équation 2.23 se simplifie alors de la manière suivante :

$$\text{grad } p_v = \mu_v \Delta \vec{w} \quad (2.24)$$

Trouver l'expression de la vitesse d'écoulement revient donc à résoudre l'équation 2.24. La remarque soulevée⁶ pour le compartiment amont reste vraie pour le compartiment aval.

2.3.2 Prise en compte de la géométrie

Cas d'un module plan

Nous étudions, maintenant, le fluide (en phase gaz) de constituants A et v entre deux plans horizontaux (d'équations $y = +Y_v$ et $y = +Y_M$). On reprend

⁶voir page 32

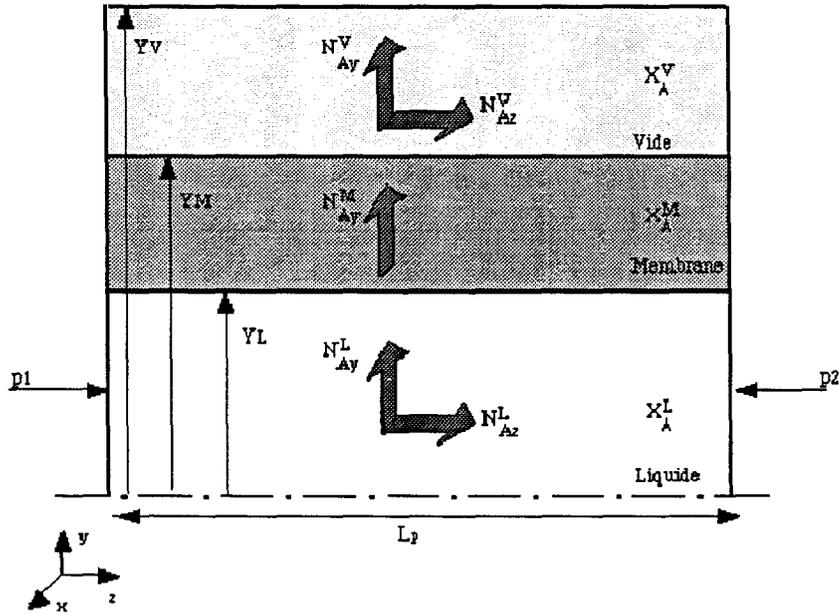


Figure 2.6: Transfert de masse en aval, cas plan

l'équation 2.1 qui devient :

$$\frac{\partial N_{Ax}^V}{\partial x} + \frac{\partial N_{Ay}^V}{\partial y} + \frac{\partial N_{Az}^V}{\partial z} = -\rho_A^V \frac{\partial x_A^V}{\partial t} \quad (2.25)$$

où N_{Ax}^V (respectivement N_{Ay}^V et N_{Az}^V) représente le flux total, dans la phase gaz (convection et diffusion) suivant Ox (respectivement Oy et Oz)

$$N_{Ax}^V = \rho_A^V x_A^V w_x + J_{Ax}^V$$

$$N_{Ay}^V = \rho_A^V x_A^V w_y + J_{Ay}^V$$

$$N_{Az}^V = \rho_A^V x_A^V w_z + J_{Az}^V$$

Reprenant des hypothèses semblables au traitement en amont : la convection ne résulte que du transport axial, tandis que la diffusion ne résulte que du transport suivant Oy (fig 2.6) [2]. Tenant compte de l'incompressibilité du fluide, on écrit :

$$N_{Ay}^V = J_{Ay}^V = -\rho_A^V D_{AV} \nabla x_A^V$$

$$N_{Az}^V = \rho_A^V x_A^V w_z$$

Comme le coefficient de diffusion D_{AV} est constant, l'équation 2.25 s'écrit alors :

$$\frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + D_{AV} \frac{\partial^2 x_A^V}{\partial y^2} \quad (2.26)$$

w_z est la vitesse moyenne selon l'axe Oz. L'expression de cette vitesse est donnée par la résolution de l'équation 2.24. On a :

$$\mu_V \frac{\partial^2 w_z}{\partial z^2} = \frac{p_2 - p_1}{L_p}$$

Après deux intégrations, on trouve un profil de vitesse parabolique :

$$w_z = \frac{1}{2\mu_V} \frac{p_2 - p_1}{L_p} \left(y^2 - \left(\frac{Y_V - Y_M}{2} \right)^2 \right) \quad (2.27)$$

Pour calculer le débit-volume Q lié à la différence de pression ($p_2 - p_1$), on écrit, l étant la largeur du canal :

$$Q = l \int_{-\frac{Y_V - Y_M}{2}}^{+\frac{Y_V - Y_M}{2}} w_z dy$$

Soit :

$$Q = l \frac{p_1 - p_2}{12\mu_V L_p} (Y_V - Y_M)^3$$

Comme la vitesse débitante w_d est donnée par $w_d = \frac{Q}{l(Y_V - Y_M)}$, on a :

$$w_z = \frac{3}{2} w_d \left(1 - \frac{4y^2}{(Y_V - Y_M)^2} \right) \quad (2.28)$$

Etant données les hypothèses posées sur le transport en aval, dans le cas d'une géométrie plane, c'est donc l'équation 2.26 qui permet de décrire la répartition de matière dans la phase gaz tandis que l'équation 2.28 donne la vitesse d'écoulement dans cette phase si celui-ci est unidirectionnel établi.

Cas d'un module cylindrique

A présent, il nous faut étudier le fluide des constituants A et V, toujours en phase gaz, entre deux cylindres coaxiaux de rayon interne R_M , de rayon externe R_V et de longueur L_c (fig 2.7).

CHAPITRE 2. ETABLISSEMENT D'UN MODÈLE INTERNE

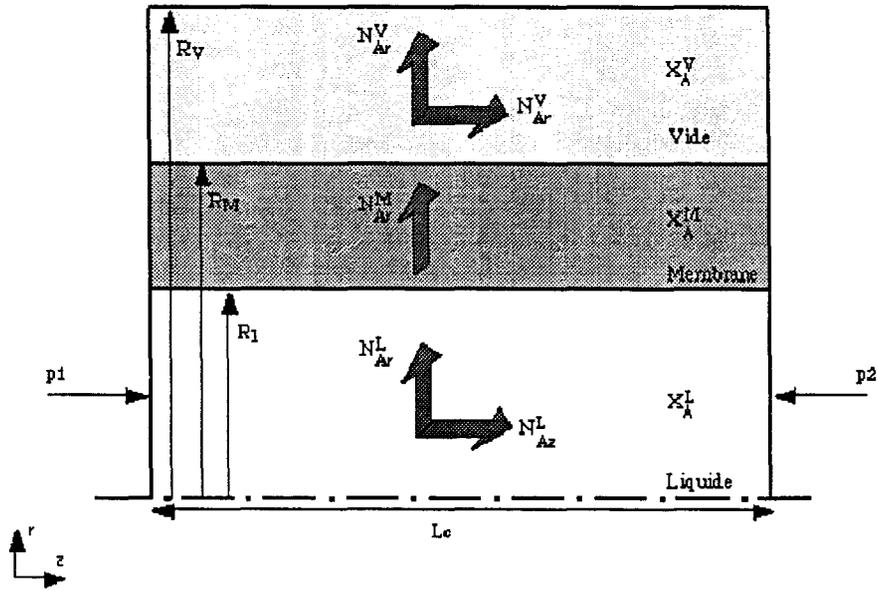


Figure 2.7: Transfert de masse en aval, cas cylindrique

Si on pose les mêmes hypothèses du transport axial par convection et du transport radial par diffusion, il y a peu de différences entre le traitement dans un tube cylindrique⁷ et l'étude dans un espace annulaire (seules les conditions aux limites seront différentes). Dans ce cas, après simplification, l'équation 2.19 s'écrit :

$$\frac{\partial N_{Ar}^V}{\partial r} + \frac{\partial N_{Az}^V}{\partial z} = -\rho_A^V \frac{\partial x_A^V}{\partial t} \quad (2.29)$$

où:

$$N_{Ar}^V = J_{Ar}^V = -\rho_A^V D_{AV} \nabla x_A^V$$

$$N_{Az}^V = \rho_A^V x_A^V w_z$$

L'équation 2.29 devient donc :

$$\frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + D_{AV} \left(\frac{\partial^2 x_A^V}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^V}{\partial r} \right) \quad (2.30)$$

⁷cf section 2.1.2, page 35

Avec w_z la vitesse moyenne d'écoulement en aval. L'expression de celle-ci est donnée par la résolution de 2.24. La méthode de calcul est donc exactement la même que pour les écoulements précédents. Nous donnons donc directement le résultat de la vitesse en un point de rayon r [32] :

$$w_z = \frac{p_1 - p_2}{4\mu_V L_c} (R_V^2 - r^2 - (R_V^2 - R_M^2) \frac{\ln \frac{r}{R_V}}{\ln \frac{R_M}{R_V}}) \quad (2.31)$$

Pour calculer le débit-volume Q lié à la différence de pression ($p_2 - p_1$), on écrit :

$$Q = \int_{R_M}^{R_V} 2\pi r w_z dr$$

Posons $C = R_V^2 + R_M^2 - \frac{R_V^2 - R_M^2}{\ln \frac{R_V}{R_M}}$. On obtient alors :

$$Q = \frac{\pi}{8\mu_V} \frac{p_1 - p_2}{L_c} (R_V^2 - R_M^2) C$$

Comme la vitesse débitante est donnée par $w_d = \frac{Q}{\pi(R_V^2 - R_M^2)}$, on a :

$$w_z = \frac{2w_d}{C} (R_V^2 - r^2 + \frac{R_V^2 - R_M^2}{\ln \frac{R_V}{R_M}} \ln \frac{r}{R_V}) \quad (2.32)$$

Etant données les hypothèses sur le transport en aval, dans le cas de la géométrie cylindrique, c'est donc l'équation 2.30 qui permet de décrire la répartition de matière dans la phase gaz, tandis que l'équation 2.32 donne la vitesse d'écoulement dans cette phase, si celui-ci est unidirectionnel établi.

2.4 Les conditions initiales et aux limites

Les sections précédentes de ce chapitre ont permis d'établir, pour chaque géométrie, les équations aux dérivées partielles qui décrivent le transport ou le transfert de matière dans chaque compartiment d'un module de pervaporation. Dans l'état, chacune de celles-ci admet une infinité de solutions. Pour résoudre ces dernières, il convient donc, pour chaque phase et pour chaque géométrie, de préciser les conditions initiales et aux limites.

2.4.1 Les conditions initiales et dans les plans limites

L'absence d'espèce A dans le module avant l'opération de pervaporation se traduit par :

- dans le cas plan :

$$x_A^L(y, z, t = 0) = 0 \quad (2.33)$$

$$x_A^M(y, t = 0) = 0 \quad (2.34)$$

$$x_A^V(y, z, t = 0) = 0 \quad (2.35)$$

- dans le cas cylindrique :

$$x_A^L(r, z, t = 0) = 0 \quad (2.36)$$

$$x_A^M(r, t = 0) = 0 \quad (2.37)$$

$$x_A^V(r, z, t = 0) = 0 \quad (2.38)$$

L'arrivée du mélange à l'entrée du compartiment amont (plan d'entrée $z = 0$) conduit à écrire :

- dans le cas plan :

$$x_A^L(y, z = 0, t) = E(y, t) = E(t) \quad (2.39)$$

- dans le cas cylindrique :

$$x_A^L(r, z = 0, t) = E(r, t) = E(t) \quad (2.40)$$

où $E(t)$ représente le « signal d'entrée » (ou entrée frontière) pour le module de pervaporation.

A l'entrée du compartiment aval (plan $z = 0$), l'absence de substance entraîne que :

- dans le cas plan :

$$x_A^V(y, z = 0, t) = 0 \quad (2.41)$$

- dans le cas cylindrique :

$$x_A^V(r, z = 0, t) = 0 \quad (2.42)$$

En amont, la symétrie axiale permet d'écrire :

- dans le cas plan :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial y}|_0 = 0 \quad (2.43)$$

- dans le cas cylindrique :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial r}|_0 = 0 \quad (2.44)$$

En aval, la face externe (en Y_V ou R_V) étant « imperméable » au transfert, on peut écrire que le flux est nul sur celle-ci, soit :

- dans le cas plan :

$$\frac{\partial x_A^V}{\partial y}|_{Y_V} = 0 \quad (2.45)$$

- dans le cas cylindrique :

$$\frac{\partial x_A^V}{\partial r}|_{R_V} = 0 \quad (2.46)$$

2.4.2 Les conditions aux interfaces

Pour compléter la mise en équation, il reste à écrire les conditions aux limites, c'est-à-dire les équations aux interfaces amont et aval. Mais si les conditions 2.33 à 2.46 étaient relativement naturelles à écrire, l'étude aux interfaces amont et aval est moins évidente.

Il convient alors, dans cette partie, de poser clairement les hypothèses retenues aux interfaces.

interface amont

La première hypothèse retenue est la continuité du flux à l'interface (c'est-à-dire qu'il n'y a pas d'accumulation pour celui-ci), soit :

- dans le cas plan, en $y = Y_L$:

$$\rho_A^L D_{AL} \frac{\partial x_A^L}{\partial y} |_{Y_L} = \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_L} \quad (2.47)$$

- dans le cas cylindrique, en $r = R_L$:

$$\rho_A^L D_{AL} \frac{\partial x_A^L}{\partial r} |_{R_L} = \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} |_{R_L} \quad (2.48)$$

La seconde hypothèse est plus délicate à poser. En effet, dans la littérature, la sorption est toujours supposée idéale, il y a alors équilibre à l'interface amont, ce qui se traduit par une loi de Henry⁸. C'est-à-dire que la quantité de matière sorbée à l'interface côté membrane est proportionnelle à la quantité de matière présente à l'interface côté liquide [41, p11]. Ce qui se traduit, sous forme mathématique, par l'équation suivante :

$$x_A^M = S x_A^L \quad (2.49)$$

pour $y = Y_L$ ou $r = R_L$ S étant une constante

Or il est clair que l'interface amont présente une résistance et qu'il ne peut y avoir alors d'équilibre. L'équation 2.49 n'est donc pas applicable [4, 30]. De manière tout à fait générale, Crank a proposé une équation traduisant la résistance à un interface [10, p40]. Cet auteur propose d'écrire que le flux à l'interface est proportionnel à la différence de matière à cet interface. Ce qui en pervaporation prend la forme suivante :

- dans le cas plan, en $y = Y_L$:

$$\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_L} = -H_u (\rho_A^L x_A^L - \rho_A^M x_A^M) \quad (2.50)$$

- dans le cas cylindrique, en $r = R_L$:

$$\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} |_{R_L} = -H_u (\rho_A^L x_A^L - \rho_A^M x_A^M) \quad (2.51)$$

H_u est homogène à un coefficient de transfert de matière ($m s^{-1}$)

⁸cf section 1.3.3, page 18

interface aval

Dans le premier chapitre il a été noté que si la sorption était assimilable à une « condensation », la désorption pouvait être vue comme une « évaporation ». Sorption et désorption sont donc complémentaires. Comme il se trouve qu'à l'interface aval il peut aussi exister une résistance au transfert (due au support poreux par exemple), le traitement à la frontière membrane / vide sera donc analogue à celui de la frontière liquide / membrane. On suppose la continuité des flux :

- dans le cas plan :

$$\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_M} = \rho_A^V D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial y} |_{Y_M} \quad (2.52)$$

- dans le cas cylindrique :

$$\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} |_{R_M} = \rho_A^V D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial r} |_{R_M} \quad (2.53)$$

La résistance au transfert conduit à écrire :

- dans le cas plan :

$$\rho_A^V D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial y} |_{Y_M} = -H_d (\rho_A^M x_A^M - \rho_A^V x_A^V) \quad (2.54)$$

- dans le cas cylindrique :

$$\rho_A^V D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial r} |_{R_M} = -H_d (\rho_A^M x_A^M - \rho_A^V x_A^V) \quad (2.55)$$

H_d est homogène à un coefficient de transfert de matière ($m s^{-1}$)

Il faut remarquer, qu'au contraire des vitesses d'écoulement ou des densités molaires (grandeurs physiques mesurables) et des coefficients de diffusion (paramètres physiques constants), les coefficients H_d et H_u ne sont pas des paramètres purement physiques. En effet, leur introduction dans cette étude s'est effectuée par une approche semi-empirique. Il reste qu'on pourra leur accorder un sens car ces paramètres sont homogènes à un flux molaire, c'est-à-dire à une « vitesse » de transfert ou coefficient de transfert.

2.4.3 Remarque sur les conditions aux limites proposées aux interfaces

La question qui nous occupe dans ce qui va suivre, est de savoir si les conditions aux limites (équations 2.50 ou 2.51 en amont et les équations 2.54 ou 2.55 en aval) jointes à l'équation de diffusion 2.17 (ou 2.18) sont propres à déterminer la solution à cette équation. Les équations étant ici linéaires, cela signifie que le système d'équations aux dérivées partielles admet une solution et une seule. Dans ce cas, on dit avoir un problème « bien posé »⁹ [21].

Des méthodes existent pour démontrer que la mise en équation est correcte. Toutefois elles ne sont pas simples à appliquer pour le non-initié. A titre d'exemple, dans l'annexe E, on démontre que le problème est bien posé dans le cas d'une géométrie plane. On conserve la condition à l'interface amont (équation 2.54) mais pour « simplifier », on considère en aval une condition de type Neumann. Il apparaît bien alors, que pour le type de conditions aux limites proposées aux interfaces le système d'équations a un sens.

2.5 Les systèmes d'équations aux dérivées partielles

2.5.1 dans le cas plan

La prise en compte des conditions initiales et aux limites achève donc la mise en équation du procédé de pervaporation. Le modèle décrivant le transfert de matière au sein du module de pervaporation conduit, d'après ce qui précède, au système suivant :

⁹Plus précisément, dans [42], le problème est « bien posé » si il existe une solution, si celle-ci est unique et si la solution dépend continuellement des données.

$$\left(\begin{array}{l}
 \frac{\partial x_A^L}{\partial t} = -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z} + D_{AL} \frac{\partial^2 x_A^L}{\partial y^2} \\
 x_A^L(y, z, t = 0) = x_A^M(y, t = 0) = x_A^V(y, z, t = 0) = 0 \\
 x_A^L(y, z = 0, t) = E(t) \quad ; \quad \frac{\partial x_A^L}{\partial y} \Big|_0 = 0 \\
 \frac{\partial x_A^M}{\partial t} = D_{AM} \frac{\partial^2 x_A^M}{\partial y^2} \\
 \rho_A^L D_{AL} \frac{\partial x_A^L}{\partial y} \Big|_{Y_L} = \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} \Big|_{Y_L} \\
 D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} \Big|_{Y_L} = -H_u \left(\frac{\rho_A^L}{\rho_A^M} x_A^L - x_A^M \right) \\
 \frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + D_{AV} \frac{\partial^2 x_A^V}{\partial y^2} \\
 x_A^V(y, z = 0, t) = 0 \quad ; \quad \frac{\partial x_A^V}{\partial y} \Big|_{Y_V} = 0 \\
 \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} \Big|_{Y_M} = \rho_A^V D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial y} \Big|_{Y_M} \\
 D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial y} \Big|_{Y_M} = -H_d \left(\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} x_A^M - x_A^V \right)
 \end{array} \right.$$

2.5.2 dans le cas cylindrique

Le modèle décrivant le transfert de matière au sein du module cylindrique conduit, d'après ce qui précède, au système suivant :

$$\left(\begin{array}{l}
 \frac{\partial x_A^L}{\partial t} = -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z} + D_{AL} \left(\frac{\partial^2 x_A^L}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^L}{\partial r} \right) \\
 x_A^L(r, z, t = 0) = x_A^M(r, t = 0) = x_A^V(r, z, t = 0) = 0 \\
 x_A^L(r, z = 0, t) = E(t) \quad ; \quad \frac{\partial x_A^L}{\partial r} \Big|_0 = 0 \\
 \frac{\partial x_A^M}{\partial t} = D_{AM} \left(\frac{\partial^2 x_A^M}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} \right) \\
 \rho_A^L D_{AL} \frac{\partial x_A^L}{\partial r} \Big|_{R_L} = \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} \Big|_{R_L} \\
 D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} \Big|_{R_L} = -H_u \left(\frac{\rho_A^L}{\rho_A^M} x_A^L - x_A^M \right) \\
 \frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + D_{AV} \left(\frac{\partial^2 x_A^V}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^V}{\partial r} \right) \\
 x_A^V(r, z = 0, t) = 0 \quad ; \quad \frac{\partial x_A^V}{\partial r} \Big|_{R_V} = 0 \\
 \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} \Big|_{R_M} = \rho_A^V D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial r} \Big|_{R_M} \\
 D_{AV} \frac{\partial x_A^V}{\partial r} \Big|_{R_M} = -H_d \left(\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} x_A^M - x_A^V \right)
 \end{array} \right.$$

2.6 Simplification des modèles en aval

La mise en équation précédente se voulait la plus générale possible, avec des hypothèses les moins éloignées de la réalité. Le transfert dans le compartiment aval a donc été traité de manière analogue au compartiment amont, sans tenir compte de la nature de la phase aval. Or, il s'avère qu'en maintenant un vide suffisamment poussé en aval, la couche limite devient négligeable dans cette phase [9]. Ce constat nous conduit donc à négliger la diffusion dans la phase gaz et à proposer la simplification des deux systèmes précédents.

2.6.1 Etablissement du modèle simplifié dans le cas plan

Nous procéderons par un bilan matière dans une tranche d'épaisseur dz (fig 2.8). Si q est le débit en aval¹⁰, la quantité de matière entrant dans la tranche

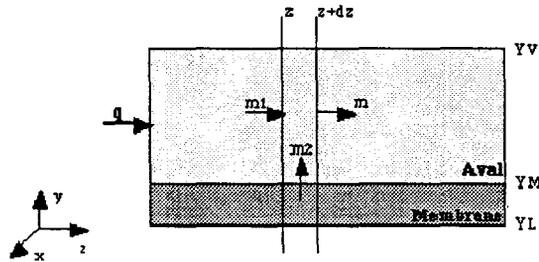


Figure 2.8: Module plan simplifié

($z, z + dz$) entre les temps t et $t + dt$ est :

$$m_1 = q \rho_A^V x_A^V(z, t) dt$$

Si l est la largeur du canal, la quantité de matière entrant dans la tranche en $y = Y_M$ entre les temps t et $t+dt$ est :

$$m_2 = H_d (\rho_A^M x_A^M(Y_M, t) - \rho_A^V x_A^V(z, t)) 2 l dz dt$$

La quantité de matière sortant de la tranche entre les temps t et $t + dt$ est :

$$m = q \rho_A^V x_A^V(z + dz, t) dt$$

¹⁰Le profil de vitesse est alors considéré «plat»

La quantité de matière accumulée dans la tranche $(z, z + dz)$ entre les temps t et $t + dt$ est :

$$m' = (\rho_A^V x_A^V(z, t + dt) - \rho_A^V x_A^V(z, t)) dv$$

où $dv = dSdz$, avec $dS = (Y_V - Y_M)l$

La loi de conservation de la matière impose que: $m_1 + m_2 = m + m'$, avec q ayant pour expression $q = dS w_z$, on obtient en aval l'expression simplifiée suivante :

$$\frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + \frac{2H_d}{(Y_V - Y_M)} \left(\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} x_A^M - x_A^V \right) \quad (2.56)$$

La diffusion suivant y étant négligée, on supprime dans l'équation 2.26 le terme dans la direction y . Les conditions initiale et dans le plan d'entrée ($z = 0$) sont inchangées. On conserve donc les équations 2.35 et 2.41 :

$$x_A^V(y, z, t = 0) = 0$$

$$x_A^V(y, z = 0, t) = 0$$

On considère toujours la résistance à l'interface membrane/vide, mais il n'est plus nécessaire d'écrire 2.52; on écrira alors :

$$D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_M} = -H_d \left(x_A^M - \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} x_A^V \right) \quad (2.57)$$

Le système présenté devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial x_A^L}{\partial t} = -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z} + D_{AL} \frac{\partial^2 x_A^L}{\partial y^2} \\ x_A^L(y, z, t = 0) = x_A^M(y, t = 0) = x_A^V(y, z, t = 0) = 0 \\ x_A^L(y, z = 0, t) = E(t) \quad ; \quad \frac{\partial x_A^L}{\partial y} |_0 = 0 \\ \rho_A^L D_{AL} \frac{\partial x_A^L}{\partial y} |_{Y_L} = \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_L} \\ D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_L} = -H_u \left(\frac{\rho_A^L}{\rho_A^M} x_A^L - x_A^M \right) \\ \frac{\partial x_A^M}{\partial t} = D_{AM} \frac{\partial^2 x_A^M}{\partial y^2} \\ D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_M} = -H_d \left(x_A^M - \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} x_A^V \right) \\ \frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + \frac{2H_d}{(Y_V - Y_M)} \left(\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} x_A^M - x_A^V \right) \\ x_A^V(y, z = 0, t) = 0 \end{array} \right.$$

2.6.2 Etablissement du modèle simplifié dans le cas cylindrique

On effectue un bilan matière dans une couronne d'épaisseur $(z, z + dz)$ (fig 2.9). Si q est le débit en aval, la quantité de matière m_1 entrant dans la couronne

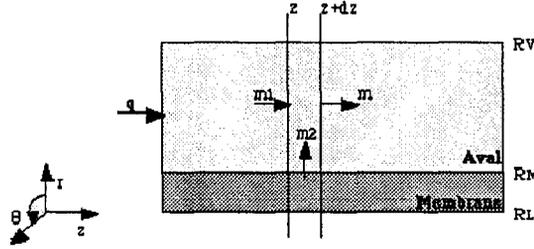


Figure 2.9: Module cylindrique simplifié

$(z, z + dz)$ entre les temps t et $t + dt$ est :

$$m_1 = q \rho_A^V x_A^V(z, t) dt$$

La quantité de matière m_2 entrant dans la couronne en R_M entre les temps t et $t + dt$ est :

$$m_2 = H_d (\rho_A^M x_A^M(R_M, t) - \rho_A^V x_A^V(z, t)) (R_V - R_M) 2 \pi R_M dz dt$$

La quantité de matière m sortant de la couronne entre les temps t et $t + dt$ est :

$$m = q \rho_A^V x_A^V(z + dz, t) dt$$

La quantité de matière m' accumulée dans la couronne $(z, z + dz)$ entre les temps t et $t + dt$ est :

$$m' = (\rho_A^V x_A^V(z, t + dt) - \rho_A^V x_A^V(z, t)) dv$$

où $dv = \pi (R_V - R_M)^2 dz$.

La loi de conservation de la matière impose que $m_1 + m_2 = m + m'$; sachant que le débit a pour expression $q = \pi (R_V - R_M)^2 w_z$, on obtient en aval l'équation simplifiée suivante :

$$\frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + \frac{2 R_M H_d}{(R_V - R_M)^2} (\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} x_A^M - x_A^V) \quad (2.58)$$

On a donc supprimé une dimension d'espace pour le modèle en aval. La condition initiale et la condition dans le plan d'entrée sont bien sûr inchangées. On conserve les équations 2.38 et 2.42 :

$$x_A^V(r, z, t = 0) = 0$$

$$x_A^V(r, z = 0, t) = 0$$

L'équation 2.53 n'a plus de sens maintenant. Mais à l'interface aval on prendra en compte la résistance en écrivant :

$$D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} |_{R_M} = -H_d \left(x_A^M - \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} x_A^V \right) \quad (2.59)$$

Le système présenté devient alors :

$$\left(\begin{array}{l} \frac{\partial x_A^L}{\partial t} = -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z} + D_{AL} \left(\frac{\partial^2 x_A^L}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^L}{\partial r} \right) \\ x_A^L(r, z, t = 0) = x_A^M(r, t = 0) = x_A^V(r, z, t = 0) = 0 \\ x_A^L(r, z = 0, t) = E(t) \quad ; \quad \frac{\partial x_A^L}{\partial r} |_0 = 0 \\ \rho_A^L D_{AL} \frac{\partial x_A^L}{\partial r} |_{R_L} = \rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} |_{R_L} \\ D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} |_{R_L} = -H_u \left(\frac{\rho_A^L}{\rho_A^M} x_A^L - x_A^M \right) \\ \frac{\partial x_A^M}{\partial t} = D_{AM} \left(\frac{\partial^2 x_A^M}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} \right) \\ D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial r} |_{R_M} = -H_d \left(x_A^M - \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} x_A^V \right) \\ \frac{\partial x_A^V}{\partial t} = -w_z \frac{\partial x_A^V}{\partial z} + \frac{2R_M H_d}{(R_V - R_M)^2} \left(\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} x_A^M - x_A^V \right) \\ x_A^V(r, z = 0, t) = 0 \end{array} \right.$$

2.7 Grandeurs localisées

Les sections du chapitre qui précèdent ont permis d'établir les équations donnant la quantité de matière présente à chaque instant en tout point du module. C'est donc un modèle interne qui a été proposé. Or, il est bien évident que les grandeurs distribuées $x_A^L(., z, t)$, $x_A^M(., t)$ et $x_A^V(., z, t)$ ne sont pas des grandeurs accessibles. Il apparaît donc nécessaire de pouvoir relier l'état du système à des grandeurs mesurables. Expérimentalement, seules les valeurs moyennes des quantités de

matière aux sorties du module sont mesurables (rétenant et perméat). Pour chaque géométrie, l'expression de celles-ci est donc établi dans ce qui suit. Ainsi, les grandeurs mesurables permettent d'une part au praticien d'exploiter le modèle¹¹ et d'autre part à l'automaticien de faire le lien entre le modèle interne et les entrées / sorties localisées.

2.7.1 Valeurs moyennes dans le cas plan

Dans le plan ($z = L_p$), pour le rétenant, la valeur moyenne est donnée par l'expression suivante [41]:

$$\overline{x_A^L(t)} = \frac{\int_0^{Y_L} x_A^L(y) u_z(y) dy}{\int_0^{Y_L} u_z(y) dy} \quad (2.60)$$

où l'expression de $u_z(y)$ est donnée par l'équation 2.10, page 35.

L'équation 2.60 prend alors la forme suivante :

$$\overline{x_A^L(t)} = \frac{3}{2Y_L} \int_0^{Y_L} \left(1 - \frac{y^2}{Y_L^2}\right) x_A^L(y) dy \quad (2.61)$$

L'équation 2.61 fournit donc l'évolution dans le temps de la fraction molaire moyenne en rétenant.

Enfin, toujours dans le plan ($z = L_p$), la valeur moyenne en perméat est donnée par la relation suivante (nous avons posé $b = \frac{Y_V - Y_M}{2}$):

$$\overline{x_A^V(t)} = \frac{\int_{-b}^{+b} x_A^V(y) w_z(y) dy}{\int_{-b}^{+b} w_z(y) dy} \quad (2.62)$$

où l'expression de $w_z(y)$ est donnée par l'équation 2.28, page 44.

L'équation 2.62 prend alors la forme suivante :

$$\overline{x_A^V(t)} = \frac{3}{2b} \int_{-b}^{+b} \left(1 - \frac{y^2}{b^2}\right) x_A^V(y) dy \quad (2.63)$$

L'équation 2.63 fournit donc l'évolution dans le temps de la fraction molaire moyenne en perméat.

¹¹en définissant par exemple la sélectivité β comme le rapport des fractions molaires moyennes en pervaporat ($\overline{x_A^V(t)}$) et en rétenant ($\overline{x_A^L(t)}$).

2.7.2 Valeurs moyennes dans le cas cylindrique

On se place maintenant dans le plan ($z = L_c$), pour le rétentat la valeur moyenne est donnée par l'expression suivante :

$$\overline{x_A^L(t)} = \frac{\int_0^{R_L} 2\pi r x_A^L(r) u_z(r) dr}{\int_0^{R_L} 2\pi r u_z(r) dr} \quad (2.64)$$

où l'expression de $u_z(r)$ est donnée par l'équation 2.14, page 36.

L'équation 2.64 prend alors la forme suivante :

$$\overline{x_A^L(t)} = \frac{4}{R_L^2} \int_0^{R_L} r \left(1 - \frac{r^2}{R_L^2}\right) x_A^L(r) dr \quad (2.65)$$

L'équation 2.65 fournit donc l'évolution de la fraction molaire moyenne en rétentat pour le module cylindrique.

Enfin, pour achever le calcul des valeurs moyennes, il reste à donner l'expression du perméat dans le plan ($z = L_c$).

$$\overline{x_A^V(t)} = \frac{\int_{R_M}^{R_V} 2\pi r x_A^V(r) w_z(r) dr}{\int_{R_M}^{R_V} 2\pi r w_z(r) dr} \quad (2.66)$$

où l'expression de $w_z(r)$ est donnée par l'équation 2.32, page 46¹².

Après avoir posé : $f(r) = \frac{C w_z}{2W_d}$, l'équation 2.66 prend alors la forme suivante :

$$\overline{x_A^V(t)} = \frac{\int_{R_M}^{R_V} r f(r) x_A^L(r) dr}{\int_{R_M}^{R_V} r f(r) dr} \quad (2.67)$$

¹²on avait posé $C = R_V^2 + R_M^2 - \frac{R_V^2 - R_M^2}{\ln \frac{R_V}{R_M}}$

2.8 Conclusion sur la modélisation proposée

Les développements mathématiques de ce chapitre ont permis d'atteindre l'objectif fixé: à partir des lois physiques qui conditionnent l'opération de séparation, un modèle interne a été établi pour différentes géométries des modules de pervaporation. Les systèmes d'équations aux dérivées partielles auxquels on aboutit pourraient paraître lourds à exploiter (particulièrement dans le chapitre suivant où l'on cherchera une solution approchée de ces équations). Certes, mais le choix de s'en tenir à un modèle de connaissance, ce qui implique nécessairement la prise en compte de la complexité, ne pouvait conduire qu'à une telle mise en équations. Toutefois, le dernier chapitre de cette étude montrera qu'une fois cette étape délicate franchie, l'exploitation du modèle offre une bonne compréhension de la séparation et présente un domaine de validité étendu. Enfin, la section 2.7 permet de retrouver le concept d'entrée / sortie propre à l'automaticien puisque le lien est réalisé entre les grandeurs localisées et le modèle interne. Pour résumer la mise en équation proposée, le modèle est présenté sous forme d'un schéma récapitulatif dans le cas de la géométrie plane, avec (figure 2.10) ou sans simplification en aval (figure 2.11) et dans le cas d'un module tubulaire également dans le cas général (figure 2.12) ou non (figure 2.13).

Les conditions initiales sont telles que $x_A^L(y, z) = x_A^M(y) = x_A^V(y, z) = 0$

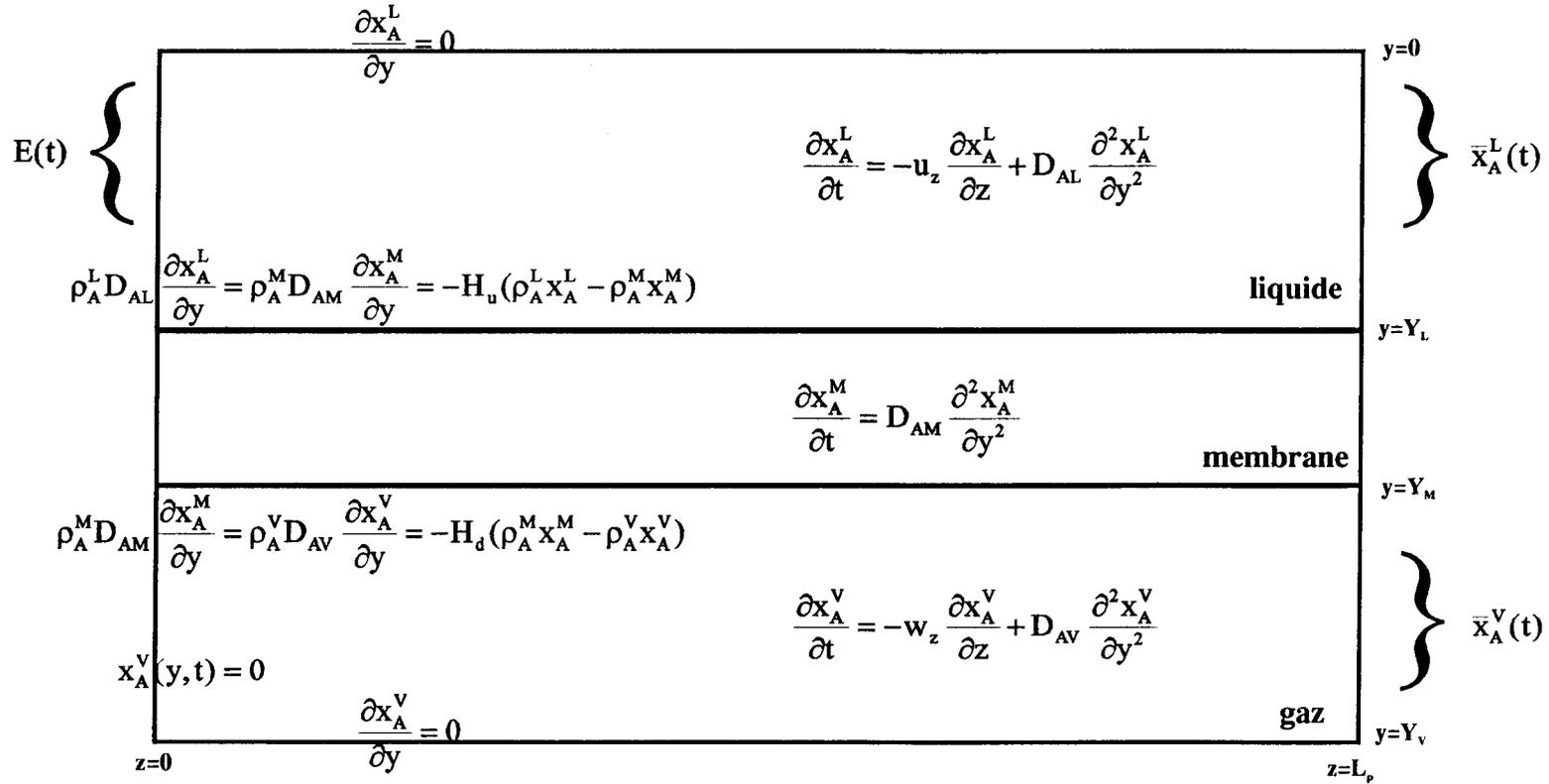


Figure 2.10: modèle dans le cas plan

Les conditions initiales sont telles que $x_A^L(y, z) = x_A^M(y) = x_A^V(y, z) = 0$

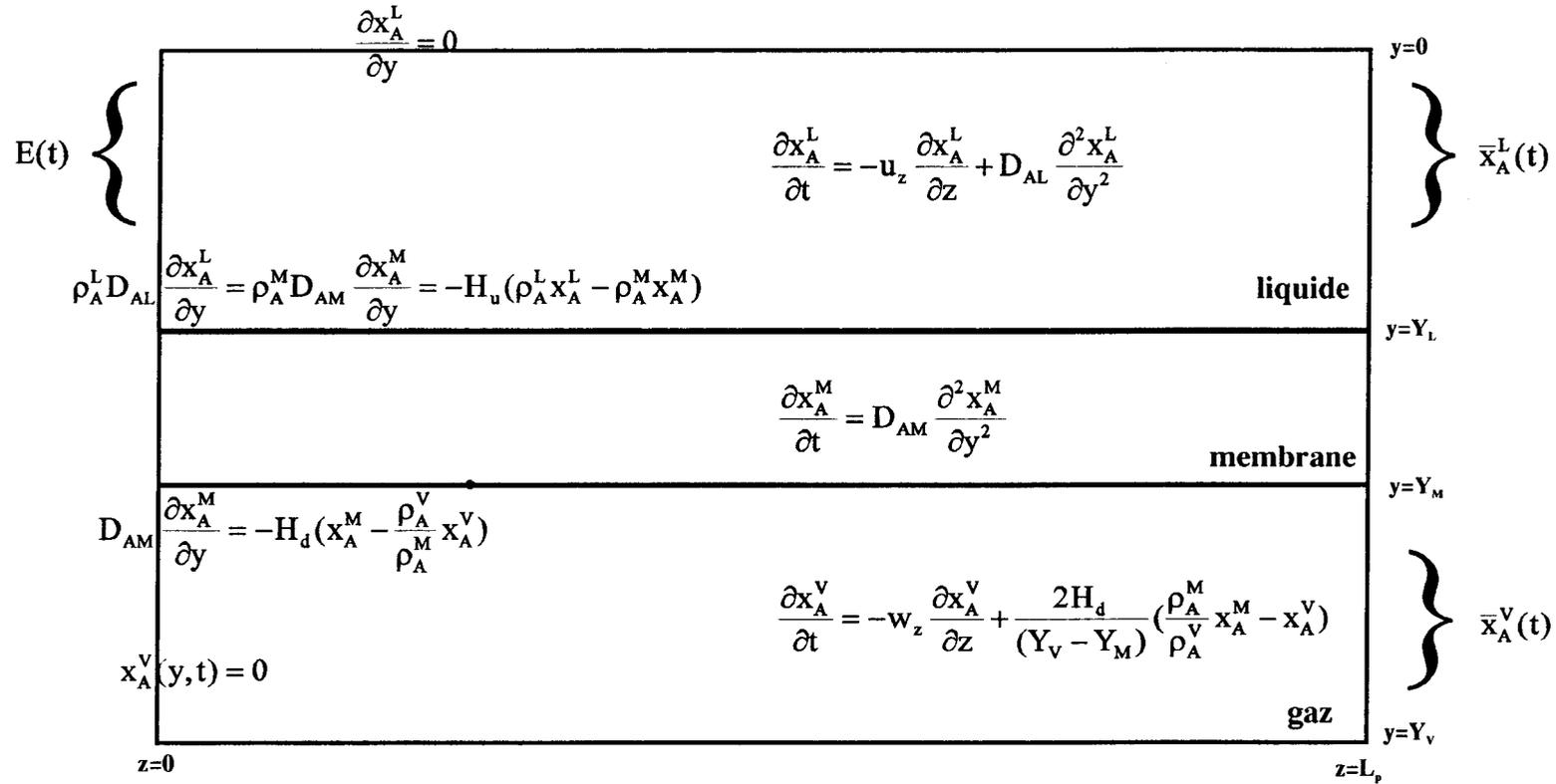


Figure 2.11: modèle dans le cas plan avec simplification

Les conditions initiales sont telles que $x_A^L(r, z) = x_A^M(r) = x_A^V(r, z) = 0$

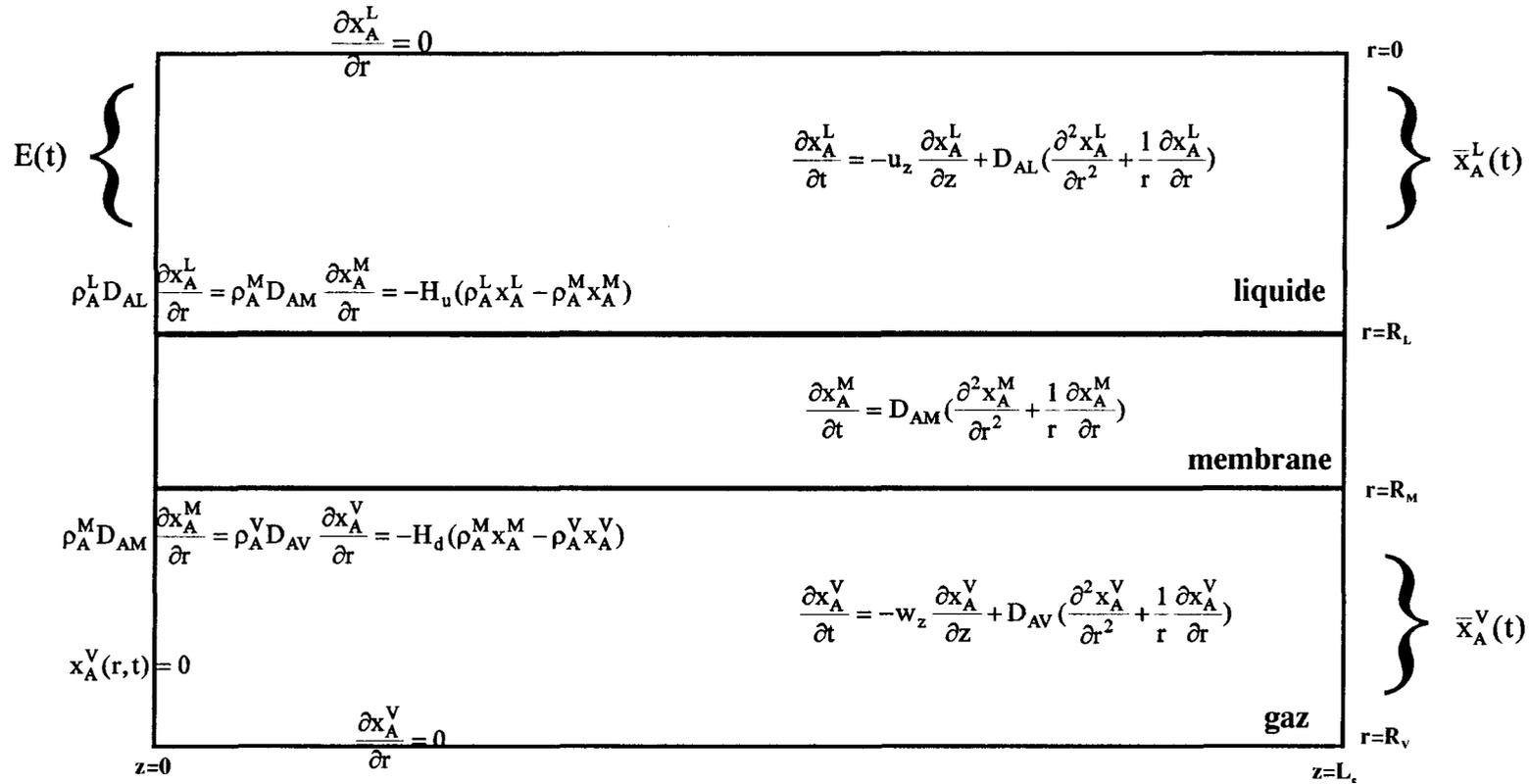


Figure 2.12: modèle dans le cas cylindrique

Les conditions initiales sont telles que $x_A^L(r, z) = x_A^M(r) = x_A^V(r, z) = 0$

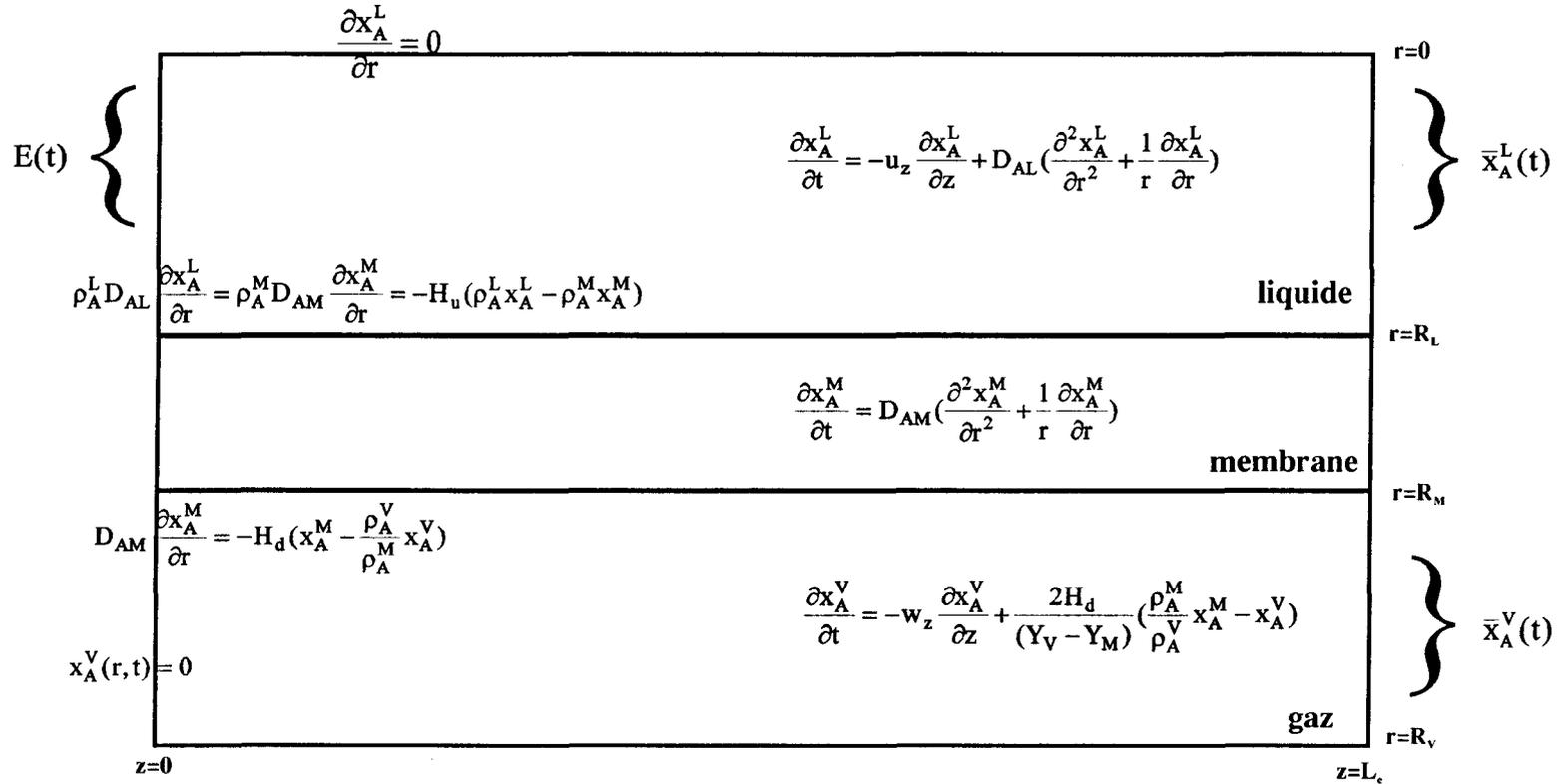


Figure 2.13: modèle dans le cas cylindrique avec simplification

Chapitre 3

Simulation des modèles

Le chapitre qui suit est consacré à la mise en œuvre des méthodes numériques de résolution des quatre systèmes énoncés dans le précédent chapitre. Les algorithmes seront présentés successivement. Les validations qualitatives pourront alors être effectuées en affectant des valeurs réalistes aux paramètres.

3.1 Introduction

La non existence de solutions analytiques pour les quatre systèmes d'équations amène à envisager des méthodes de résolution approchée. Celles-ci conduisent exclusivement à des algorithmes numériques. On classe les méthodes de résolution des équations aux dérivées partielles en deux grandes familles très différentes dans leurs principes [27] (fig 3.1).

La première famille concerne les algorithmes fondés sur les équations discrétisées des équations physiques continues. Ces méthodes sont dites « d'approximation d'équations » ou « aux différences finies ». La seconde famille regroupe les méthodes qui abordent le problème non plus par des équations approchées, mais directement par des modèles de solutions approchées. Ces méthodes (méthode des résidus pondérés, de Ritz, d'éléments finis) sont dites « d'approximation de solution » [27].

C'est une méthode par différences finies que nous avons choisie. D'une part

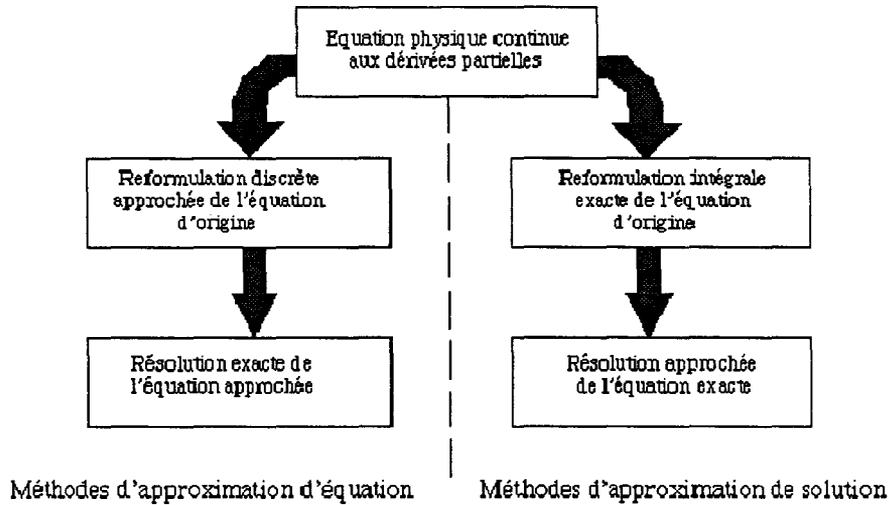


Figure 3.1: Familles des méthodes de résolution numérique

parce que l'implantation sur ordinateur est plus directe par celle-ci que par les éléments finis. D'autre part, la géométrie régulière des modules de pervaporation (plane ou cylindrique) ne nécessite pas l'utilisation des éléments finis.

3.2 Principe d'obtention d'une solution numérique

Il existe une littérature abondante sur ce sujet [12, 14, 17, 44, 49]. L'ouvrage le plus complet étant sans doute celui de Dautray et Lions [12]. Il reste que le principe de résolution sera toujours le même. Les systèmes à résoudre font intervenir des équations d'évolution où le temps est l'une des variables indépendantes. Il s'agit donc de trouver la formulation de remplacement¹ :

$$X_{k+1} = f(X_k)$$

qui permet de calculer le vecteur X_{k+1} des valeurs de x (la fraction molaire par exemple) en un certain nombre de points du domaine spatial à l'instant t_{k+1} en fonction de l'état X_k à l'instant t_k . On cherchera donc à trouver un algorithme aussi précis que possible pour que les X_k soient suffisamment représentatifs de la réalité [27].

¹Où f est linéaire.

3.3 Choix des schémas de discrétisation

Nous avons à résoudre un système d'équations aux dérivées partielles paraboliques en coordonnées cartésiennes ou cylindriques. Pour ces équations, on trouve principalement deux types de schémas de discrétisation : les schémas explicites ou implicites. On doit approcher :

$$\frac{\partial x}{\partial t} = f(x) \quad (3.1)$$

Soit x^k l'approximation de $x(t)$ à l'instant $k\Delta t$.

Le schéma est explicite si on remplace 3.1 par :

$$\frac{x^{k+1} - x^k}{\Delta t} = f(x^k)$$

Le schéma est implicite si l'on écrit :

$$\frac{x^{k+1} - x^k}{\Delta t} = f(x^{k+1})$$

La différence entre ces deux schémas est fondamentale : dans les méthodes implicites, on peut avancer à grands pas de temps (Δt « grand ») mais au prix de la résolution itérative à chaque pas de temps d'un système linéaire, alors que dans les méthodes explicites, on n'a plus de système linéaire à résoudre mais Δt doit être « assez petit » [28]. On peut montrer que les premiers sont inconditionnellement stables dans un certain sens (par exemple par rapport à une norme donnée) mais de mise en œuvre lourde tandis que les seconds sont conditionnellement stables (i.e. il y a stabilité lorsque Δt et Δx satisfont certaines conditions) [12]. C'est la stabilité inconditionnelle qui nous a conduit à préférer les schémas implicites.

3.4 Discrétisation du domaine de définition

3.4.1 domaine de définition et notations dans le cas plan

Il faut commencer, avant tout, par discrétiser le domaine de définition des fonctions. Si l'on considère le premier système, la fonction x_L des trois variables

y, z et t a pour domaine de définition spatial le rectangle du plan (O, y, z) limité par les droites d'équations $z = 0, z = L_p, y = 0$ et $y = Y_L$. La fonction x_M des variables y et t est définie sur le segment de l'axe (O, y) compris entre les points d'ordonnées $y = Y_L, y = Y_M$. La fonction x_V des trois variables y, z et t a pour domaine de définition spatial le rectangle du plan (O, y, z) limité par les droites d'équations $z = 0, z = L_p, y = Y_M$ et $y = Y_V$. (fig 3.2)

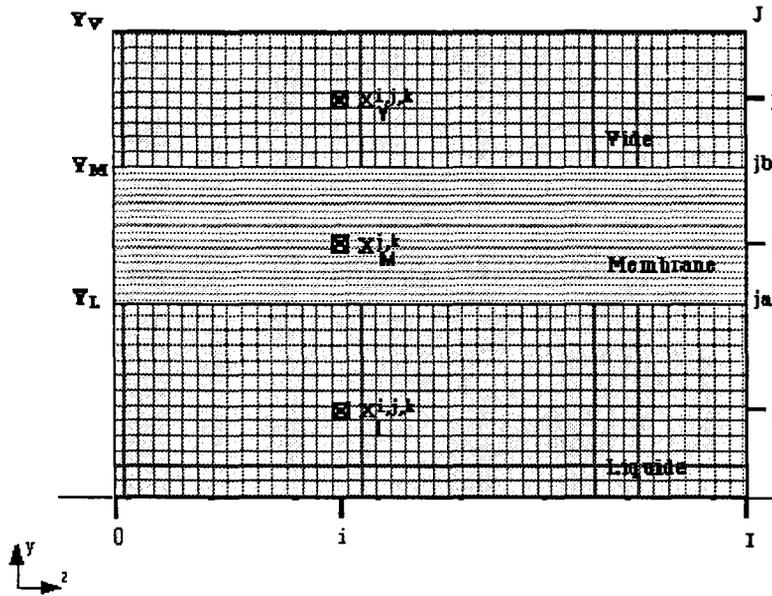


Figure 3.2: Discretisation (plan) des fonctions x_L, x_M, x_V

Si on se donne des entiers naturels I, J, K arbitrairement choisis et que l'on note $\Delta z = \frac{L_p}{I}, \Delta y = \frac{Y_V}{J}, \Delta t = \frac{t_{max}}{K}$ (t_{max} définit l'horizon d'observation), les variables d'espace et de temps peuvent être discrétisées respectivement en : $z_i = i\Delta z, y_j = j\Delta y$ et $t_k = k\Delta t$. De plus, on note $j_a = \frac{Y_L}{Y_V} J$ et $j_b = \frac{Y_M}{Y_V} J$. On a alors : $i \in [0, I], j \in [0, J]$ et $k \in [0, K]$.

On peut maintenant discrétiser la fonction x_L^2 :

$$\forall (i, j, k) \in [0, I] \times [0, j_a] \times [0, K]$$

$$x_L^{i,j,k} = x_L(i \Delta z, j \Delta y, k \Delta t)$$

²la discrétisation de x_L est valable pour k entier, mais on pourra l'étendre à des valeurs rationnelles. Dans la suite, on considérera $x_L^{i,j,k+1/2}$ avec k entier.

ainsi que la fonction x_M :

$$\forall(j, k) \in [j_a, j_b] \times [0, K]$$

$$x_M^{j,k} = x_M(j \Delta y, k \Delta t)$$

et la fonction x_V :

$$\forall(i, j, k) \in [0, I] \times [j_b, J] \times [0, K]$$

$$x_V^{i,j,k} = x_V(i \Delta z, j \Delta y, k \Delta t)$$

3.4.2 domaine de définition et notations dans le cas cylindrique

Pour la géométrie cylindrique, le domaine de définition ne sera pas très différent du cas précédent dans sa forme (rectangulaire). Simplement, il semble bon de préciser les notations dans ce cas. Si l'on considère le deuxième système, la fonction x_L des trois variables r , z et t a pour domaine de définition spatial le rectangle du plan (O, r, z) limité par les droites d'équations $z = 0$, $z = L_c$, $r = 0$, $r = R_L$. La fonction x_M des variables r et t est définie sur le segment de l'axe (O, r) compris entre les points de rayons $r = R_L$, $r = R_M$. La fonction x_V des variables r , z et t a pour domaine de définition spatial le rectangle du plan (O, r, z) limité par les droites d'équations $z = 0$, $z = L_c$, $r = R_M$, $r = R_V$ (fig 3.3).

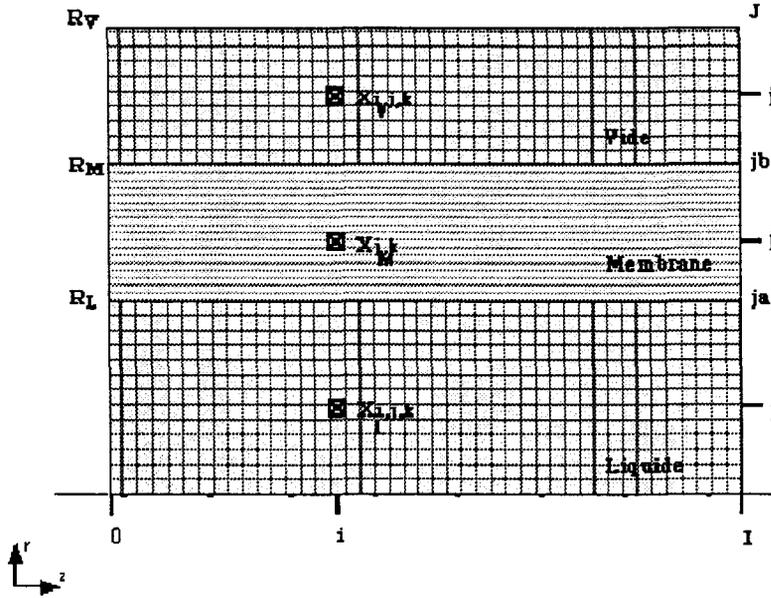
Si on se donne des entiers naturels I, J, K arbitrairement choisis et que l'on note $\Delta z = \frac{L_c}{I}$, $\Delta r = \frac{R_V}{J}$, $\Delta t = \frac{t_{max}}{K}$ (t_{max} définit l'horizon d'observation), les variables d'espace et de temps peuvent être discrétisées respectivement en : $z_i = i \Delta z$, $r_j = j \Delta r$ et $t_k = k \Delta t$. De plus, on note $j_a = \frac{R_L}{R_V} J$ et $j_b = \frac{R_M}{R_V} J$. On a alors: $i \in [0, I]$, $j \in [0, J]$ et $k \in [0, K]$. On peut maintenant discrétiser la fonction x_L :

$$\forall(i, j, k) \in [0, I] \times [0, j_a] \times [0, K]$$

$$x_L^{i,j,k} = x_L(i \Delta z, j \Delta r, k \Delta t)$$

ainsi que la fonction x_M :

$$\forall(j, k) \in [j_a, j_b] \times [0, K]$$


 Figure 3.3: Discretisation (cylindre) des fonctions x_L , x_M , x_V

$$x_M^{j,k} = x_M(j \Delta r, k \Delta t)$$

et la fonction x_V :

$$\forall (i, j, k) \in [0, I] \times [j_b, J] \times [0, K]$$

$$x_V^{i,j,k} = x_V(i \Delta z, j \Delta r, k \Delta t)$$

3.5 Schémas numériques

3.5.1 Remarque préliminaire

Les calculs purement numériques sont complètement développés en annexes : annexe A pour la géométrie plane, annexe B pour la géométrie cylindrique et annexe C pour les modèles simplifiés. Indifféremment de la géométrie, nous proposons de rappeler les méthodes utilisées et de montrer un squelette des systèmes linéaires obtenus pour la résolution des deux premiers systèmes.

3.5.2 Méthode retenue

On procède à la discrétisation des équations de convection-diffusion en amont et en aval par la méthode implicite à directions alternées. Celle-ci présente l'avantage d'être précise et inconditionnellement stable [27]. Son principe est de discrétiser alternativement, sur un demi pas de temps $\Delta t/2$, les dérivées partielles en z et en y (pour les modules plans) ou en r (pour les modules cylindriques) de manière implicite et explicite. On appelle « prédicteur » la première approximation et « correcteur » la seconde.

Cette discrétisation nous conduit à résoudre pour le premier demi pas de temps les systèmes suivants :

$$P(j, k) X_L^{j, k+1/2} = Q(j, k) \quad \text{en amont}^3$$

$$R(j, k) X_V^{j, k+1/2} = S(j, k) \quad \text{en aval}^4$$

où $X_L^{j, k+1/2}$ et $X_V^{j, k+1/2}$ représentent respectivement les fractions molaires dans la charge et dans la phase gaz à la date $t_{k+1/2}$.

La résolution de ces systèmes linéaires, comme pour ceux qui suivent, est réalisée par l'algorithme de Thomas [17] dont le principe est donné en annexe D.

La discrétisation pour le second demi pas de temps ne pose pas de problème particulier mais l'obtention du système linéaire n'est pas immédiate. Cela est dû au couplage, engendré par les conditions aux interfaces, entre l'équation de diffusion dans la membrane et les équations de convection-diffusion de part et d'autre de celle-ci. Cette particularité du modèle conduit donc à une application non standard de l'algorithme usité des directions alternées.

³Le détail du calcul de P et Q est donné en annexe A pour le plan en sous-section A.1.1 et en annexe B pour le cylindre en sous-section B.1.2

⁴Le détail du calcul de R et S est donné en annexe A pour le plan en sous-section A.3.1 et en annexe B pour le cylindre en sous-section B.3.1

3.5.3 Couplages engendrés par le modèle

Le problème serait simple si les trois systèmes linéaires relatifs aux différents domaines (amont, membrane et aval) étaient découplés, car l'on pourrait alors les résoudre séparément.

Les conditions imposées aux interfaces amont (équations 2.47 ou 2.50 pour un module plan, équations 2.48 ou 2.51 pour un module cylindrique) et aval (équations 2.52 ou 2.54 pour un module plan, équations 2.53 ou 2.55 pour un module cylindrique) conduisent à des termes de couplage⁵.

Il s'avère alors qu'on ne peut déterminer les $x_L^{i,j,k+1}$ et les $x_V^{i,j,k+1}$ indépendamment des $x_M^{i,j,k+1}$. Il résulte de tout ceci que l'on est amené à déterminer simultanément les $x_L^{i,j,k+1}$, $x_M^{j,k+1}$ et $x_V^{i,j,k+1}$ dans un système linéaire unique.

Indépendamment de la géométrie, on est donc amené à résoudre le système linéaire global suivant :

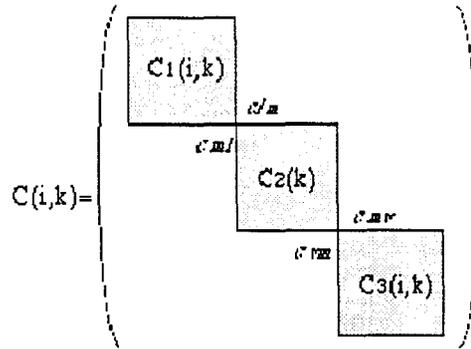
$$C(i, k) X^{i,k+1} = D(i, k)$$

$$X^{i,k+1} = (X_L^{i,k+1}, X_M^{k+1}, X_V^{i,k+1})^T$$

où $X^{i,k+1}$ est le vecteur, de dimension $(J + 2)$, des fractions molaires inconnues dans la charge, la membrane et la phase gaz à la date t_{k+1} .

$C(i, k)$ est une matrice-bloc tridiagonale de la forme suivante :

⁵On remarque dans l'équation A.10 pour un module plan ou dans l'équation B.10 pour un module cylindrique qu'il apparaît pour le correcteur amont le terme $x_M^{j_a,k+1}$ comme une inconnue. De même, on remarque dans l'équation A.22 pour un module plan ou dans l'équation B.22 pour un module cylindrique qu'il apparaît pour le correcteur aval le terme $x_M^{j_b,k+1}$ comme une inconnue. Ce n'était pas le cas pour les prédicteurs correspondants car $x_M^{j_a,k}$ pour le plan ou $x_M^{j_b,k}$ pour le cylindre apparaissaient seulement au second membre du système linéaire. Cela est lié à la nature du schéma de discrétisation qui est explicite en y ou en r pour le prédicteur tandis qu'il est implicite en y ou en r pour le correcteur



Les c_{pq} traduisent les termes de couplage et :

$C_1(i, k)$ (de dimension j_a) est engendré par la discrétisation en amont⁶

$C_2(k)$ (de dimension $j_b - j_a + 1$) est engendré par la discrétisation dans la membrane⁷

$C_3(i, k)$ (de dimension $J - j_b + 1$) est engendré par la discrétisation en aval⁸

3.6 Algorithme de résolution

Un algorithme itératif permet de calculer les champs de fractions molaires recherchées aux dates $t_k = k \Delta t$. Il suffit d'initialiser les vecteurs fraction molaire $x_L^{i,j,0}$, $x_M^{j,0}$ et $x_V^{i,j,0}$, puis de calculer leurs valeurs successives grâce aux relations de récurrence que fournissent les systèmes linéaires. Cet algorithme est donné page suivante. On remarquera que tous les termes de la matrice bloc C sont indépendants de $i, j, et k$, on peut donc les calculer hors de la boucle sur le temps. Enfin, c'est le vecteur $X^{i,k+1}$ qui contient toutes les fractions molaires x_L , x_M et x_V à l'instant t_{k+1} .

⁶Voir annexe A page 121 pour le plan et annexe B page 136 pour le cylindre

⁷Voir annexe A page 123 pour le plan et annexe B page 138 pour le cylindre

⁸Voir annexe A page 128 pour le plan et annexe B page 142 pour le cylindre

- *Initialisations*

$$\forall(i, j) \in [0, I] \times [0, J]$$

$$x_L^{i,j,0} = x_M^{j,0} = x_V^{i,j,0} = 0$$

- *Calcul de la matrice bloc*

Calcul des matrices C_1, C_2, C_3

Calcul des termes de couplage $c_{LM}, c_{ML}, c_{MV}, c_{VM}$

Assemblage de la matrice bloc C

- *Boucle sur le temps*

Pour k variant de 0 à k_{max} , faire :

Prédicteur amont :

Pour j variant de 0 à j_a , faire :

Calcul de la matrice P

Calcul du vecteur Q

Résoudre $P \times X_L^{i,k+1/2} = Q$

Prédicteur aval :

Pour j variant de j_b à J , faire :

Calcul de la matrice R

Calcul du vecteur S

Résoudre $R \times X_V^{i,k+1/2} = S$

Correcteur amont et aval :

Pour i variant de 1 à I , faire :

Calcul des vecteurs D_1, D_2, D_3

Résoudre $C \times X^{i,k+1} = D$

Sauvegarde de $X^{i,k+1}$

3.7 Schémas numériques pour les modèles simplifiés

3.7.1 Nouveaux domaines de définition

Les fonctions x_L et x_M ne voient pas leurs domaines de définition changer. Les équations simplifiées en aval faisant disparaître la dimension y (ou r), la fonction x_V des variables z et t a alors pour domaine de définition spatial la partie du plan comprise entre les droites (O, z) compris entre les droites d'équations $z = 0$ et $z = L_p$ (ou $z = L_c$ pour le cylindre). (fig 3.4) Il faut alors écrire que $\Delta y = \frac{Y_M}{J}$

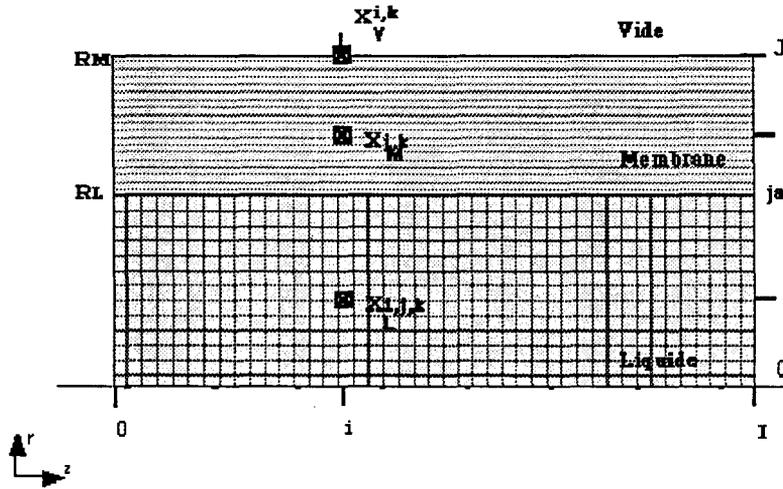


Figure 3.4: Discretisation (modèles simplifiés) des fonctions x_L , x_M , x_V

(ou $\Delta r = \frac{R_M}{J}$) et si on note: $j_a = \frac{Y_L}{Y_M} J$ (ou $j_a = \frac{R_L}{R_M} J$), les fonctions x_L , x_M et x_V peuvent alors être discrétisées comme suit :

Pour x_L :

$$\forall (i, j, k) \in [0, I] \times [0, j_a] \times [0, K]$$

$$x_L^{i,j,k} = x_L(i \Delta z, j \Delta y, k \Delta t)$$

Pour x_M :

$$\forall (j, k) \in [j_a, j_b] \times [0, K]$$

$$x_M^{j,k} = x_M(j \Delta y, k \Delta t)$$

Pour x_v :

$$\forall(i, j, k) \in [0, I] \times [j_b, J] \times [0, K]$$

$$x_v^{i,j,k} = x_v(i \Delta z, j \Delta y, k \Delta t)$$

3.7.2 Schémas numériques et algorithme de résolution

La simplification des modèles ne modifie en rien les couplages, l'algorithme ne voit donc pas son squelette modifié. Simplement les éléments engendrés en aval sont changés⁹. On doit toujours résoudre :

$$C(i, k) X^{i,k+1} = D(i, k)$$

$$X^{i,k+1} = (X_L^{i,k+1}, X_M^{k+1}, X_V^{i,k+1})^T$$

où $X_L^{i,k+1}$ est inchangé, mais X_M^{k+1} et $X_V^{i,k+1}$ sont modifiés.

La matrice-bloc $C(i, k)$ tridiagonale de dimension $(J + 2)$ prend la forme suivante :

$$C(i,k) = \begin{pmatrix} \boxed{C_1(i,k)} & & & \\ & \boxed{C_2(k)} & & \\ & & \boxed{C_3(i,k)} & \\ & & & \end{pmatrix}$$

c_{JM} (couplage entre C_1 et C_2)
 c_{MV} (couplage entre C_2 et C_3)
 c_{VM} (couplage entre C_3 et C_2)

La matrice $C_3(i, k)$ se réduit donc à un vecteur ligne.

Les termes de couplage c_{VM} et c_{MV} ainsi que C_3 sont engendrés par la discrétisation en aval.

Le vecteur second membre $D(i, k) = (D_1(i, k), D_2(k), D_3(i, k))^T$, de dimension $(J + 2)$, est tel que les vecteurs $D_1(i, k)$ et $D_2(k)$ sont inchangés, alors que le vecteur $D_3(i, k)$ est engendré par la discrétisation en aval.

⁹Voir annexe C pour la discrétisation des modèles simplifiés

Chapitre 4

Validation qualitative

Dans le chapitre précédent, nous avons exposé les algorithmes détaillés qui permettent de résoudre les systèmes d'équations aux dérivées partielles proposés. Il faudrait, par une démonstration théorique de la convergence, vérifier que ceux-ci permettent effectivement d'obtenir une approximation satisfaisante des solutions numériques. Cette étude théorique n'a pas été entreprise. Simplement, nous nous sommes arrêtés à retrouver, par simulation, le comportement physique attendu du procédé de pervaporation. Dans ce chapitre, il est donc proposé, après avoir fixé les paramètres de ces algorithmes (Δy ou Δr , Δz et Δt) et affecté des valeurs réalistes aux paramètres du modèle, de montrer la distribution de matière dans le module de pervaporation puis d'observer l'influence de ces paramètres sur l'opération de séparation.

4.1 Remarque sur les paramètres de simulation

Les paramètres spécifiques aux algorithmes ne peuvent pas être fixés à priori, surtout en l'absence de résultats théoriques. On notera que les paramètres de discrétisation doivent être choisis « assez petits » pour assurer la convergence mais « suffisamment grands » pour ne pas ralentir exagérément l'exécution ou pour ne pas gaspiller de place mémoire. Ce point a été vérifié lors de chaque simulation.

4.2 Un exemple de simulation

Au GPAB¹, le couplage entre un fermenteur et un système d'extraction par pervaporation a été réalisé pour extraire le benzaldéhyde produit par un champignon filamenteux appelé *Bjerkandera adusta* [26]. L'objectif ultime des travaux de notre équipe étant d'aboutir à ce couplage, nous choisissons donc le benzaldéhyde comme espèce organique pour éprouver le modèle proposé.

4.2.1 Valeurs des paramètres physiques

Les valeurs des coefficients de diffusion (D_{Ai}) dans les différentes phases ainsi que les densités molaires (ρ_A^i) pour les mêmes phases sont donnés dans le tableau 4.1. Les paramètres H_u et H_d ont pour valeurs: $H_u = 1 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$ et $H_d = 5 \cdot 10^{-5} \text{ m/s}$

Phase i considérée	Coefficient de diffusion (D_{Ai}) ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)	Densité molaire (ρ_A^i) (mol m^{-3})
liquide	$9,6 \cdot 10^{-10}$	$55,56 \cdot 10^3$
Membrane	$0,26 \cdot 10^{-10}$	$0,42 \cdot 10^3$
Gaz	10^{-4} à 10^{-6}	40,3

Tableau 4.1: Coefficients de diffusion et densités molaires

4.2.2 Dimensions géométriques

L'installation fonctionnant au GPAB est un module plan-spiralé dont les dimensions sont données dans le tableau 4.2.

¹GPAB: laboratoire de Génie des Procédés Alimentaires et Biotechnologiques (Université de Dijon), ENSBANA

Caractéristiques	Dimensions (mm)
Longueur L_p	500
Diamètre d'écoulement amont ($2Y_L$)	0,8
Epaisseur de la membrane ($Y_M - Y_L$)	0,1
Diamètre d'écoulement aval ($Y_V - Y_M$)	0,5

Tableau 4.2: Dimensions du module spiralé

4.2.3 Vitesses d'écoulement amont et aval

La plage des débits d'alimentation du mélange liquide en amont est fixée entre $3 \cdot 10^{-4}$ et $3 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. Dans ce cas, on observe l'évolution du profil de vitesse de la figure 4.1.

Bien sûr, on retrouve le profil parabolique attendu (équation 2.9, page 34), mais surtout on remarque que l'aspect parabolique s'accroît quand le débit croît : la viscosité du fluide a un effet d'autant plus important que le fluide circule plus vite.

Enfin, on s'intéresse à la technique de pervaporation sous vide. La vitesse d'écoulement du mélange gazeux en aval est alors fixée par la différence de pression entre l'amont et l'aval (soit pour notre exemple un débit de $10^{-3} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$). Sur le profil de vitesse montré par la figure 4.2, on retrouve bien l'aspect parabolique (équation 2.27, page 44).

4.2.4 Remarque sur la présentation des résultats

Les paramètres physiques étant fixés, il est maintenant possible d'observer la distribution de matière dans le module plan spiralé. Néanmoins, la présentation des résultats n'est pas simple. En effet, la nature des équations fait apparaître deux variables géométriques (y ou r) et une variable temporelle (t) puis la fraction molaire fonction de ces variables dans les différentes phases (x_A^L ou x_A^M ou x_A^V). Comme une représentation en quatre dimensions n'est pas souhaitable,

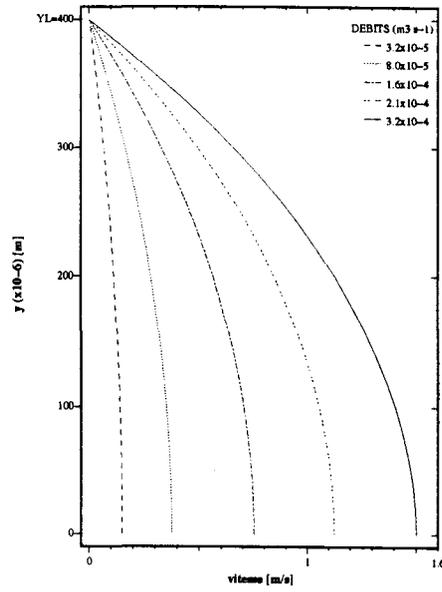


Figure 4.1: profils des vitesses en amont

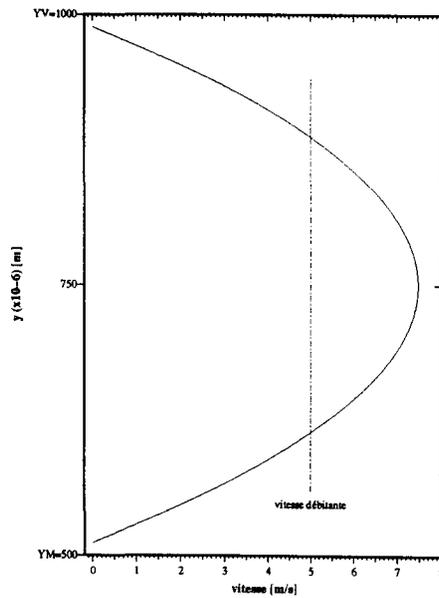


Figure 4.2: profil de vitesse en aval

il a été choisi de représenter la distribution de matière en trois dimensions pour chaque compartiment (amont, membrane et aval). Comme, de plus, les phénomènes physiques remarquables se déroulent selon la dimension radiale (y ou r), c'est pour un plan z fixé (le plan de sortie $z = L_p$) que les courbes tridimensionnelles sont données. L'évolution dans le temps de la fraction molaire, dans la phase considérée, est alors observée pour tout point d'ordonnée y (ou de rayon r).

4.2.5 Distribution de matière dans le module

En réponse à un échelon unitaire de fraction molaire, la figure 4.3 donne la distribution de matière en amont et la figure 4.4 la distribution de matière dans la membrane (pour $z = L_p$). Ces résultats appellent quelques remarques. En amont (figure 4.3), on observe bien les transports par convection et diffusion. Le transport est purement convectif au centre du module ($y = 0$) tandis que la diffusion est d'autant plus marquée qu'on est proche de l'interface liquide/membrane (effet de couche limite). Ceci se justifie par l'aspect parabolique du profil de vitesse. En effet, la vitesse décroît depuis le centre du module jusqu'à être nulle à l'interface. Le mélange s'effectue donc d'autant moins bien qu'on est proche de la membrane, dans ce cas c'est la diffusion qui tend à homogénéiser le liquide. Cette représentation reflète donc correctement le comportement du modèle.

Sur la figure 4.4, on a représenté la fraction molaire x_A^M dans la membrane. Plus précisément, c'est le centième de celle-ci qui apparaît sur la courbe (ceci pour plus de lisibilité).

On remarque que le profil dans la membrane présente une allure parabolique en régime transitoire pour devenir linéaire en régime stationnaire. Cette observation recoupe les résultats de la littérature [23, 34, 41]. En effet, étant donnée la faible épaisseur de la membrane (100 microns dans notre cas), on retrouve bien en régime stationnaire un profil linéaire. La nouveauté est que cette fois, on observe l'établissement de ce profil.

Enfin, un résultat important apparaît sur la figure 4.5 : le transport en aval

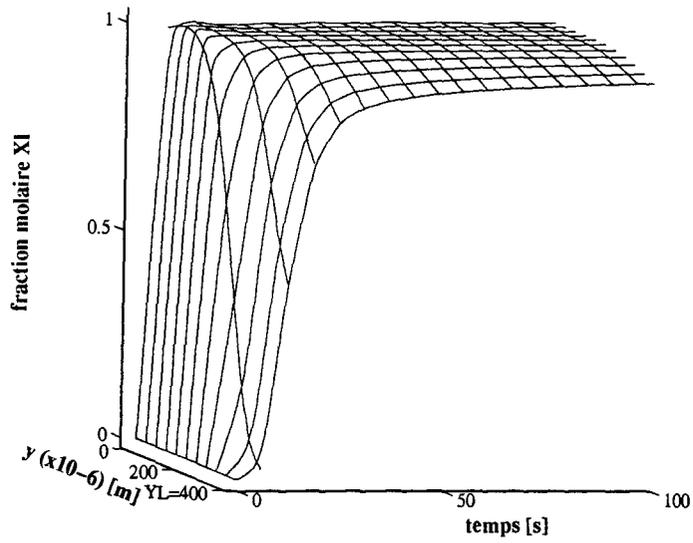


Figure 4.3: distribution de matière en amont

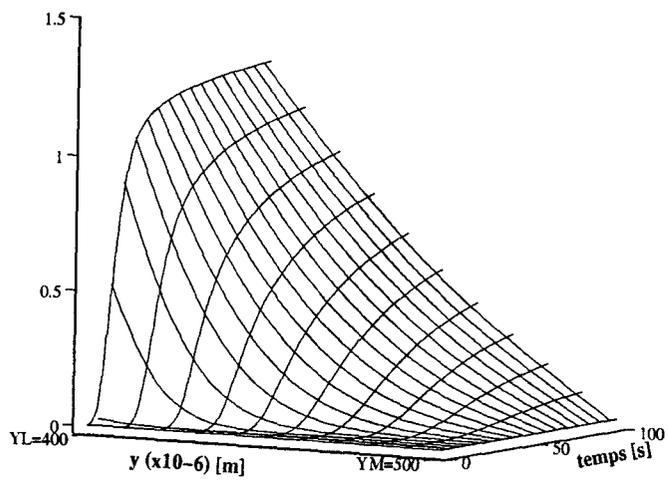


Figure 4.4: distribution de matière dans la membrane

est purement convectif. On pouvait s'attendre à ce résultat car il est connu qu'en pervaporation, la couche limite en aval est négligeable [23]. Au contraire de ce qui se passe en amont, la diffusion est donc négligeable en aval. Il se trouve alors que la simplification en aval proposée en sous-section 2.6.1 est justifiée et devient applicable.

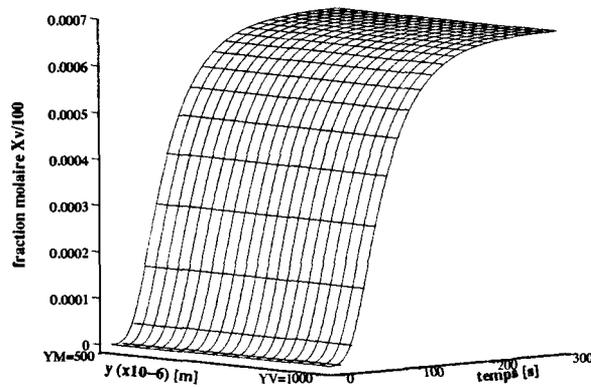


Figure 4.5: distribution de matière en aval

4.2.6 Evolutions aux interfaces

La distribution de matière dans les différentes phases ayant été observée, il est maintenant possible de montrer plus précisément ce qui se passe aux interfaces liquide / membrane et membrane / vide.

Dans cette partie, et toutes celles où l'évolution des fractions molaires aux interfaces est observée, une représentation en deux dimensions a été choisie. Toujours pour un plan z fixé (les plans de sortie $z = L_p$ ou $z = L_c$), l'évolution dans le temps des fractions molaires x_A^L et x_A^M ou x_A^M et x_A^V est donnée pour l'interface liquide / membrane à l'ordonnée Y_M (ou R_L) et pour l'interface membrane / vide à l'ordonnée Y_M (ou R_M). Ces représentations permettent donc de visualiser les «sauts» (ou discontinuités) aux frontières des différents domaines et par conséquent d'observer le comportement des modèles sur celles-ci. La figure

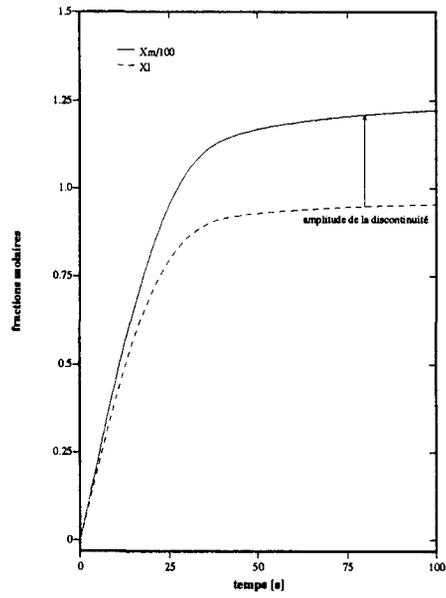


Figure 4.6: évolution de x_A^M et x_A^L en $y = Y_L$

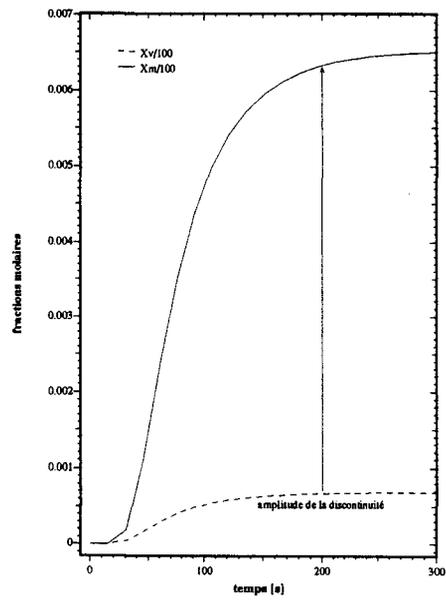


Figure 4.7: évolution de x_A^M et x_A^V en $y = Y_M$

4.6 représente l'évolution de la discontinuité à l'interface amont. A cet interface, x_A^M apparaît donc cent fois supérieure à x_A^L . Ce rapport très important reflète la nature même du procédé de séparation. En effet, le benzaldéhyde est présent en très faibles quantités dans le liquide (solution très diluée), tandis que dans la membrane (très sélective) il n'y a que du benzaldéhyde (ou presque). L'amplitude de la discontinuité traduit donc bien l'aspect très sélectif du procédé: d'un composé à l'état de trace en amont, on aboutit à un composé très concentré (mais présent en très faibles quantités) dans la membrane. Enfin on remarque que l'amplitude de la discontinuité croît jusqu'à devenir constante en régime stationnaire.

La figure 4.7 représente l'évolution des fractions molaires x_A^M et x_A^V à l'interface membrane/vide. A cet interface, x_A^M et x_A^V sont du même ordre de grandeur. Il semble surtout intéressant d'observer la dynamique de la séparation. En effet, quand à l'interface amont environ une minute est nécessaire pour atteindre le régime stationnaire, il faut environ cinq minutes pour atteindre ce même régime en aval. Cela signifie que le transfert dans la membrane a retardé l'établissement du régime stationnaire en aval. On retrouve ici un résultat connu en pervaporation: le transfert dans la membrane est l'étape limitante lors de la séparation.

4.2.7 Evolution des fractions molaires moyennes

Tandis que les résultats précédents rendaient compte des grandeurs internes, il reste maintenant, pour compléter notre étude, à donner l'évolution des grandeurs moyennes $\overline{x_A^L(t)}$ et $\overline{x_A^V(t)}$. La figure 4.8 montre l'évolution de $\overline{x_A^L(t)}$ dans le plan $z = L_c$, alors que la figure 4.9 donne l'évolution de $\overline{x_A^V(t)}$ dans ce même plan.

On retrouve sur ces figures les résultats déjà observés sur la dynamique du système: moins d'une minute est nécessaire pour atteindre le régime stationnaire en amont quand environ cinq minutes sont demandées pour atteindre ce même résultat en aval.

La figure 4.8 met aussi en évidence que le transport en amont est

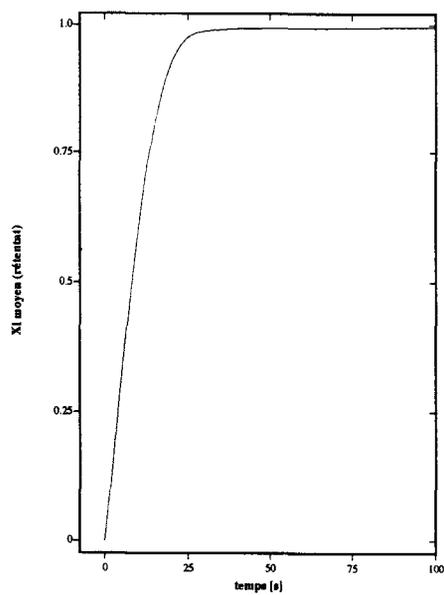


Figure 4.8: valeur moyenne $\overline{x_A^L(t)}$ (rétentat)

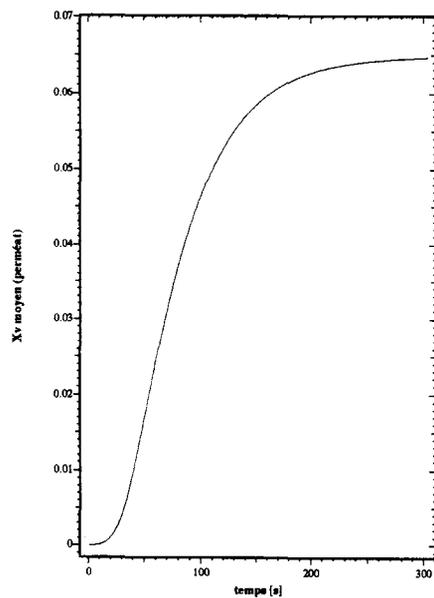


Figure 4.9: valeur moyenne $\overline{x_A^V(t)}$ (perméat)

essentiellement convectif en régime stationnaire². En aval, puisque la répartition est uniforme à chaque instant, la valeur moyenne est la même que pour la représentation en trois dimensions de la figure 4.5. Enfin, il faut remarquer que si on s'en était tenu à la seule observation des entrées / sorties, on perdait le caractère explicatif du modèle. Car c'est bien parce qu'on d'abord montré les distributions de matière pour chaque phase que les conclusions ci-dessus ont pu être tirées.

²puisque x_A^L tend vers 1, la valeur de l'amplitude de l'échelon

4.3 Commentaires sur ces premiers résultats

Au vu des résultats précédents, il semble intéressant de relever les trois points suivants.

Le premier point concerne la validité du modèle. Celui-ci paraît répondre au cahier des charges qui était fixé : les hypothèses sur le transfert de matière (par convection ou par diffusion) dans les différents compartiments apparaissent clairement sur les résultats de simulation. En particulier, la couche limite en amont (et en aval quand elle existe) est observée. A ce titre, nous avons reproduit sur la figure 4.10 l'évolution du profil des fractions molaires dans le module. Celui-ci correspond précisément au profil donné en introduction de ce rapport sur la figure 1.11. A cette différence près qu'il est maintenant possible de décrire l'évolution dans le temps de ce dernier. Les points soulevés précédemment se trouvent résumés sur cette figure : l'effet de couche limite diminue d'autant plus qu'on est proche du régime stationnaire, la couche limite en aval n'apparaît pas et le profil de fraction molaire devient linéaire dans la membrane en régime stationnaire.

Le second point concerne la simplification du modèle. Pour l'exemple choisi, il se trouve que celle-ci est applicable. Il semble donc intéressant de comparer la distribution des fractions molaires avec ou sans simplification. En fait, la simulation du modèle simplifié n'a rien changé aux distributions de matière en amont et dans la membrane. Le seul écart «notable» concerne le compartiment aval (figure 4.11).

Cette courbe montre qu'à l'interface aval, la fraction molaire x_A^M est inchangée quelque soit le modèle. Pour la fraction molaire x_A^V par contre, on relève un écart d'une dizaine de pour-cent entre les modèles. Celui-ci peut avoir deux origines. Une première liée à l'approximation elle-même : il n'y a pas convergence vers la même solution numérique ou même il existe une erreur de troncature plus importante sur l'une des deux approximations. La seconde origine peut relever de la simplification elle-même. En effet, lors du bilan matière³, on a supposé le

³voir sous-section 2.6.1, page 53

profil de vitesse plat, ce qui n'est pas le cas pour le modèle non simplifié. Cette hypothèse simplificatrice pourrait donc expliquer cet écart. Il reste que cet écart n'est pas intolérable et qu'une étude plus approfondie de l'algorithme numérique pourrait éclaircir ce point.

Enfin, le troisième et dernier point concerne une relative généralisation du modèle aux procédés de séparation par membrane denses. En effet, la simplification proposée est liée au procédé lui-même, la pervaporation en l'occurrence et c'est la nature de la phase aval (gaz) qui conditionne cette simplification. Or des procédés tels que la dialyse et la perstraction [25, p7] utilisent des membranes denses, la seule différence est que le compartiment aval est une phase liquide. Il nous a donc semblé intéressant de soumettre le modèle (non simplifié) à ce cas de figure. Prenant $D_{AV} = D_{AL} = 9,6 \cdot 10^{-10} m^2 s^{-1}$, nous avons donc obtenu la distribution de matière dans le compartiment aval de la figure 4.12. On observe bien dans ce cas les transports par convection et par diffusion. La couche limite en aval apparaît alors clairement. Ce résultat confère donc au modèle complet une portée relativement générale pour les procédés de séparation par membrane dense.

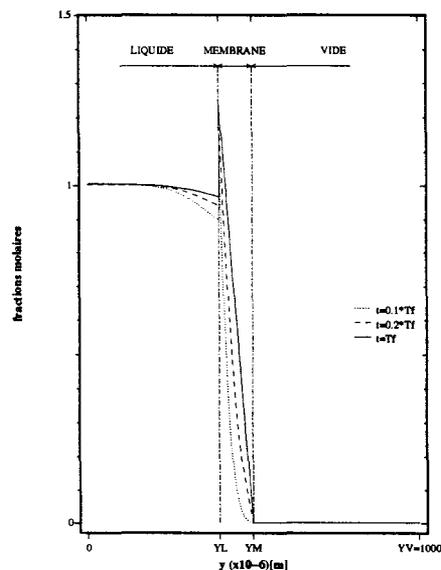


Figure 4.10: évolution du profil dans le module

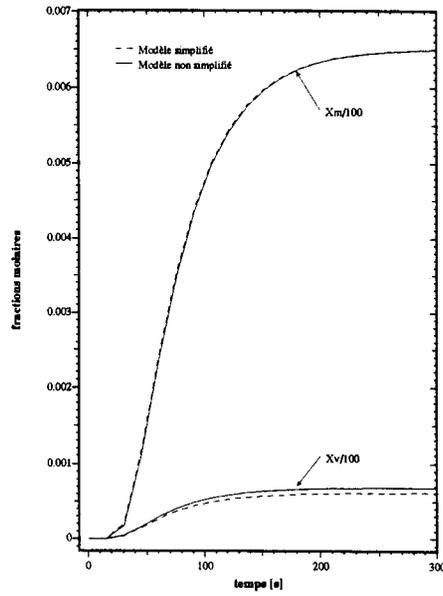


Figure 4.11: comparaison des modèles à l'interface aval

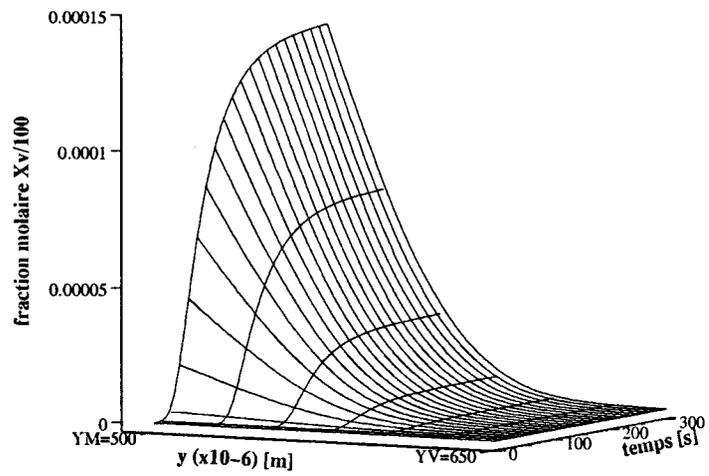


Figure 4.12: cas d'une couche limite en aval

4.4 Influence des paramètres

Précédemment, dans des conditions opératoires fixées, il a été possible de décrire une opération de pervaporation. Comme il est apparu que, dans ce cas, la simplification en aval était justifiée, seul le modèle simplifié sera utilisé dans cette section.

Il est alors possible d'observer le comportement physique du modèle sous l'influence de certains de ses paramètres. On étudiera successivement l'effet d'une variation de la vitesse d'écoulement en amont⁴ puis, comme les paramètres H_d et H_u ont été introduits dans cette étude, il paraît recommandé de vérifier l'influence de ceux-ci sur la séparation⁵.

4.4.1 Hydrodynamique amont

Il a été relevé⁶ que les conditions hydrodynamiques pouvaient avoir la plus grande influence sur la séparation. En effet, la couche limite est pénalisante en pervaporation : le transport se trouvera amélioré si l'on peut réduire les conséquences de cette couche limite. Ceci devrait donc permettre d'envisager une variable adéquate pour la commande.

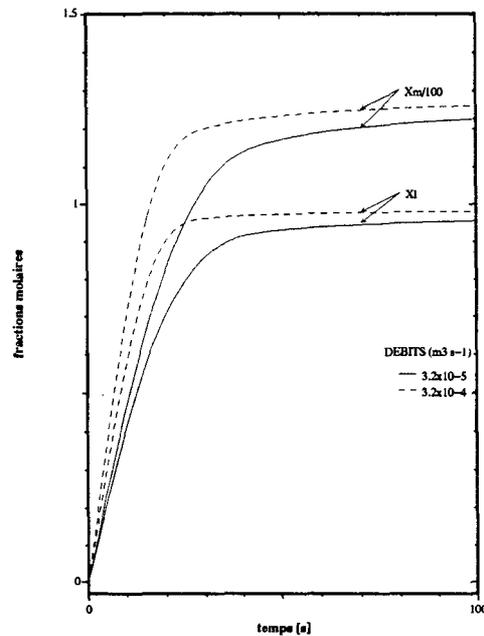
On modifie u_z de manière à se trouver au maximum de la plage des débits de la figure 4.1 (soit un débit de $3,2 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, ou une vitesse débitante de 1 m/s). Il est alors possible de comparer l'effet de cet accroissement de u_z par rapport au cas précédent (débit et vitesse dix fois plus faibles). La figure 4.13 montre les évolutions comparées à l'interface amont. On observe d'une part que le régime stationnaire est atteint plus rapidement⁷ et d'autre part on remarque que la couche limite est un peu moins importante. L'hydrodynamique étant

⁴L'hydrodynamique en aval n'est pas étudiée car, en général, on ne peut agir sur w_z , celle-ci étant imposée par l'installation. De plus, quand il y a simplification en aval, ce paramètre n'a aucun rôle significatif (plus de couche limite)

⁵Il est à noter que, pour ne pas alourdir le manuscrit par trop de courbes en trois dimensions, les résultats sont donnés aux interfaces où des courbes en deux dimensions suffisent

⁶voir en sous-section 1.4.1, page 25

⁷ceci se justifie par le fait que le fluide circulant plus vite, le mélange s'effectue plus rapidement

Figure 4.13: effet d'un accroissement de u_z en amont

améliorée en amont, il est alors intéressant d'observer son effet sur la distribution de matière en aval (figure 4.14).

Cette figure montre que le transfert est un peu amélioré dans la membrane, alors que ce n'est pas le cas en aval. Ceci signifie donc qu'en augmentant la vitesse u_z , d'un facteur 10 sur notre exemple, le transfert en aval n'est pas amélioré, même si l'hydrodynamique amont est meilleure. La figure 4.15 résume bien ces observations : lorsque u_z croît, en régime stationnaire, seule une variation de la couche limite est observée. Ce point appelle une explication. En effet, on retrouve bien l'amélioration attendue du rendement dans la phase liquide lorsque u_z croît, mais il est curieux de constater que cela est sans effet sur le rendement dans la phase gaz. Deux explications peuvent être données à ceci. D'une part, il a déjà été relevé qu'en pervaporation, la membrane est elle-même limitante pour le transfert, améliorer le transport en amont peut donc n'avoir que peu d'incidence sur la séparation. D'autre part, sur l'exemple choisi, la couche limite existe mais est peu importante : réduire celle-ci (en multipliant quand même le débit par dix)

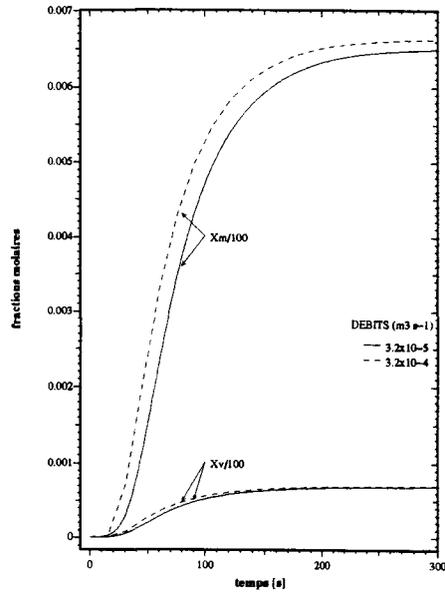


Figure 4.14: effet d'un accroissement de u_z en aval

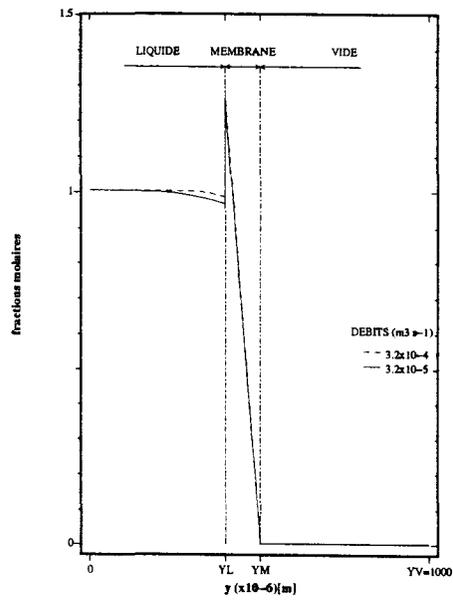


Figure 4.15: effet d'un accroissement de u_z sur la couche limite

peut s'avérer peu significatif. Des conditions opératoires réelles ayant conditionné le choix de l'exemple traité, il faudrait donc pouvoir confronter, par d'autres simulations, le modèle au cas d'une couche limite plus importante. Toutefois, les données sont, pour l'instant, manquantes et ne permettent pas de vérifier ce point. Il reste que le modèle évolue bien dans le sens attendu lorsque u_z croît.

4.4.2 Influence des coefficients de transfert H_d et H_u

On rappelle que ces paramètres semi-empiriques, introduits dans ce travail, traduisent les résistances au transfert présentées par les interfaces. Il semble donc important de mettre en évidence leur influence sur le comportement du modèle.

H_u a été divisé par dix, soit $H_u = 1 \cdot 10^{-6} m/s$ au lieu de $1 \cdot 10^{-5} m/s$. Les figures 4.16 et 4.17 montrent l'effet de cette variation pour chaque interface. Un raisonnement par analogie devrait permettre d'expliquer ce point. En effet, la condition limite 2.50 :

$$\rho_A^M D_{AM} \frac{\partial x_A^M}{\partial y} |_{Y_L} = -H_u (\rho_A^L x_A^L - \rho_A^M x_A^M)$$

exprime que le flux à l'interface (membre de gauche) est proportionnel à la différence des fractions molaires à cet interface. Par analogie avec les lois de l'électricité, ceci pourrait se formuler : « la densité de courant i est proportionnelle à la différence de potentiel Δu » (Loi d'Ohm), soit $i = 1/R \Delta u$. i et Δu sont donc respectivement analogues au flux à l'interface et à la différence de fraction molaire. H_u est alors inversement proportionnel à la résistance. Pour l'interface, comme H est « homogène » à une admittance, si H décroît cela revient à accroître la résistance au transfert et donc à diminuer le flux à l'interface.

Ce raisonnement analogique justifie bien les résultats observés. En effet, sur la figure 4.16 l'amplitude de la discontinuité a diminué, c'est donc bien que le flux à l'interface amont est moins important ou encore que la résistance au transfert s'est accrue. Par suite, puisque le transfert sur la face supérieure de la membrane est moins important, le flux sur la face inférieure de la membrane a lui aussi diminué. La figure 4.17 montre bien ceci puisque l'amplitude de

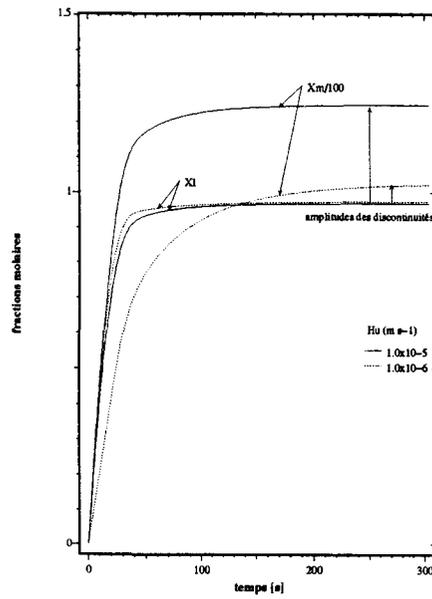


Figure 4.16: effet d'une diminution de H_u à l'interface amont

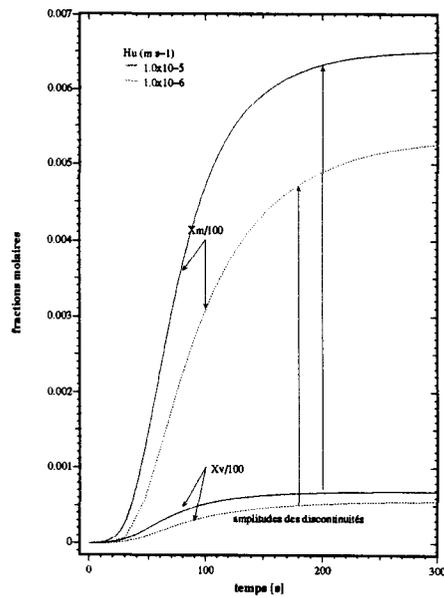


Figure 4.17: effet d'une diminution de H_u à l'interface aval

la discontinuité a diminué. H_u traduit donc bien le comportement attendu de résistance à l'interface amont.

Enfin, H_d a été modifié de telle manière à observer les mêmes discontinuités en aval que sur la figure 4.17. La valeur de H_d dans ce cas est de $6,3 \cdot 10^{-6} m/s$ au lieu de $5 \cdot 10^{-5} m/s$. Les figures 4.18 et 4.19 montrent l'effet de la variation de H_d à chaque interface. Ces figures font apparaître que si H_d décroît, l'amplitude de la discontinuité à l'interface aval décroît. Un raisonnement par analogie, à partir de la condition limite 2.54 amènerait à la conclusion que si H_d décroît, la résistance au transfert est accrue et donc le flux à l'interface aval est moins important. Ceci est bien observé sur la figure 4.19.

La figure 4.18 montre néanmoins que l'augmentation de résistance au transfert en aval n'a pas d'effet à l'interface amont. Ceci conduit à un constat semblable à celui de la sous-section 4.4.1 où il a été observé qu'une modification du transport amont n'avait pas d'incidence en aval. Ici, c'est une modification du transport aval qui n'a pas d'effet en amont. Il est tout aussi délicat d'avancer une explication. Simplement, il est vraisemblable que la membrane étant elle-même le facteur limitant pour le transport rende l'évolution en amont et en aval « indépendante ».

Il reste que les résultats montrent bien que les coefficients de transport H_d et H_u traduisent bien intrinsèquement le comportement aux interfaces.

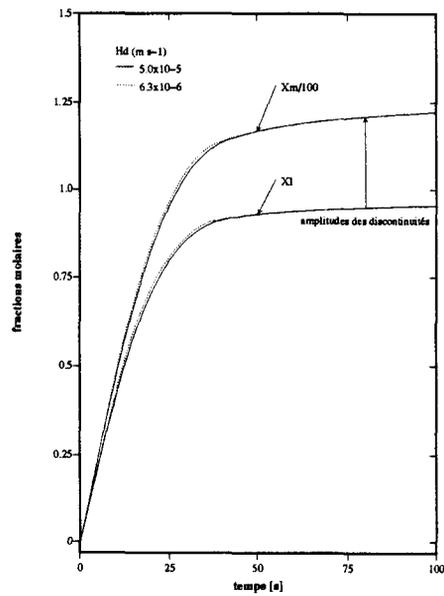


Figure 4.18: effet d'une diminution de H_d à l'interface amont

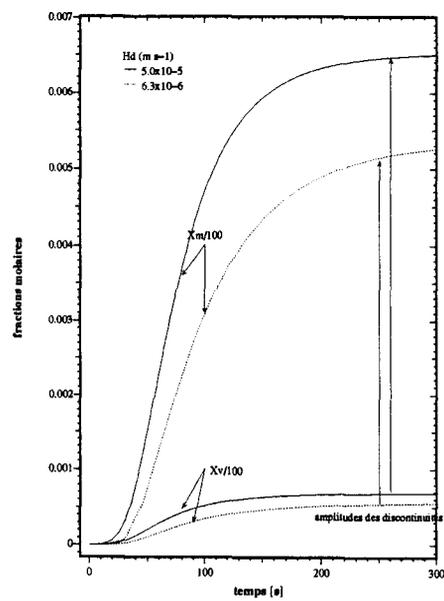


Figure 4.19: effet d'une diminution de H_d à l'interface aval

4.5 Exemple de simulation pour un module tubulaire

L'exemple précédent visait à confronter le modèle proposé et sa simplification en aval à l'installation expérimentale du GPAB (module plan-spiralé). Pour compléter la validité des systèmes d'équations proposés, il reste donc à éprouver la mise en équation et sa simplification en aval dans le cas d'un module tubulaire.

Il faut préciser que l'étude précédemment réalisée en géométrie plane ne sera pas intégralement reprise (généralisation du modèle, influence des paramètres). Simplement, il apparaît nécessaire, d'une part de vérifier le comportement du modèle et de sa simplification, d'autre part, en se plaçant dans des conditions comparables de fonctionnement, de montrer les différences de performances d'une géométrie à l'autre. Enfin, puisque dans l'optique d'un couplage à un fermenteur, il faut pouvoir prendre en compte les variations temporelles de la production d'arômes, on observera, pour le module tubulaire, la distribution de matière en réponse à une séquence temporelle.

4.5.1 Valeurs des paramètres physiques et des dimensions géométriques

Les dimensions géométriques du module tubulaire sont données dans le tableau 4.3 [41]. Puisque l'objectif est de pouvoir comparer les performances d'une

Caractéristiques	Dimensions (mm)
Longueur L_c	370
Diamètre d'écoulement amont ($2R_L$)	0,6
Epaisseur de la membrane ($R_M - R_L$)	0,1
Diamètre d'écoulement aval ($R_V - R_M$)	0,5

Tableau 4.3: Dimensions du module tubulaire

géométrie à l'autre, c'est le benzaldéhyde qui a été retenu. Les coefficients de

diffusion D_{A_i} ainsi que les densités molaires ρ_A^i sont donc les mêmes que ceux du tableau 4.1. H_u et H_d conservent leurs valeurs.

4.5.2 Vitesses d'écoulement amont et aval

Pour que la comparaison soit possible avec le cas précédent, la gamme des débits est choisie identique à celle de la géométrie plane (figure 4.20). On remarque qu'étant donnée la géométrie, les vitesses d'écoulement sont moins importantes.

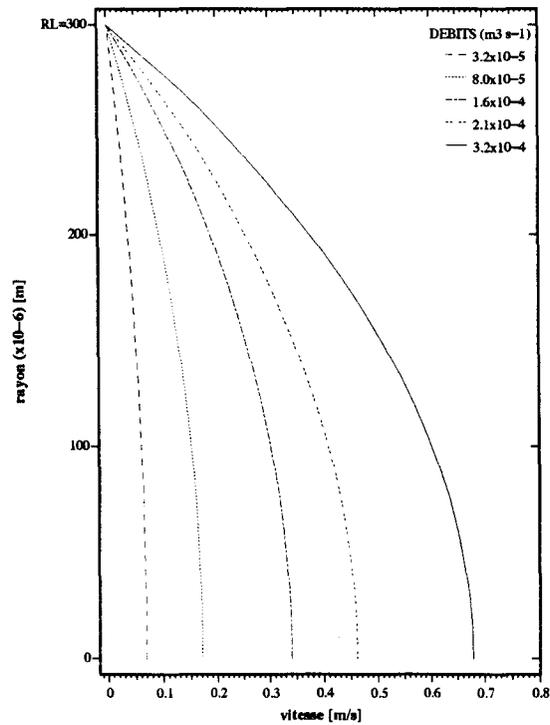


Figure 4.20: profils de vitesse en amont (cas tubulaire)

Comme précédemment, la pervaporation s'effectue sous vide et, pour un même débit d'extraction, on a le profil de vitesse en aval de la figure 4.21

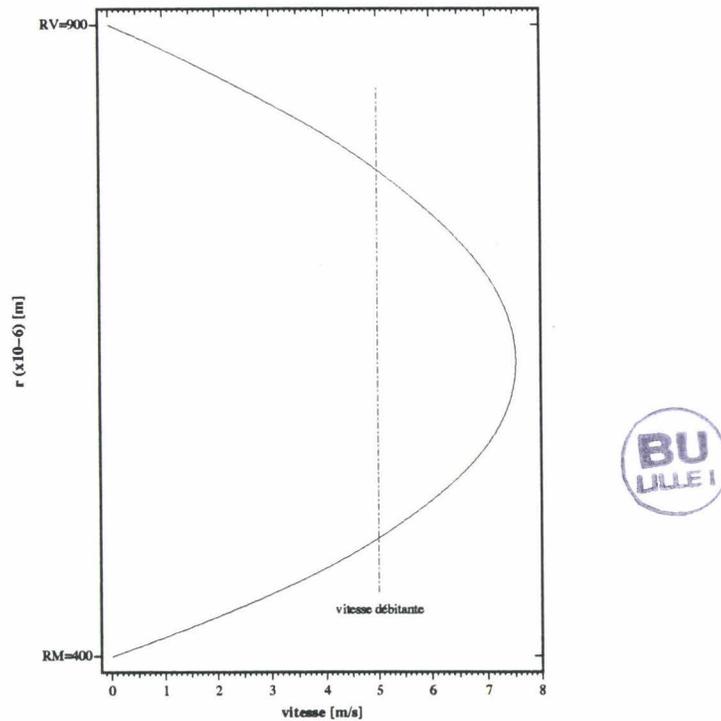


Figure 4.21: profil de vitesse en aval (cas tubulaire)

4.5.3 Distributions de matière dans le module

Les paramètres géométriques et physiques étant fixés, il est possible d'observer les distributions de matière dans les différentes phases. Pour le plan de sortie ($z = L_c$), la figure 4.22 montre la distribution de matière dans la phase liquide.

Ayant choisi les mêmes débits que dans le cas plan, la comparaison, en termes de performances, est donc possible (figure 4.3). Il apparaît sur la figure 4.22 que le régime stationnaire est atteint plus rapidement que sur la figure 4.3 et que la couche limite est moins importante. Dans la phase liquide, le transfert de matière s'effectue donc plus facilement que dans le module plan-spiralé.

La distribution de matière dans la membrane est donnée sur la figure 4.23. Comme dans la charge, on observe une dynamique plus rapide: dans la membrane, le régime stationnaire est atteint plus rapidement que sur la figure 4.4.

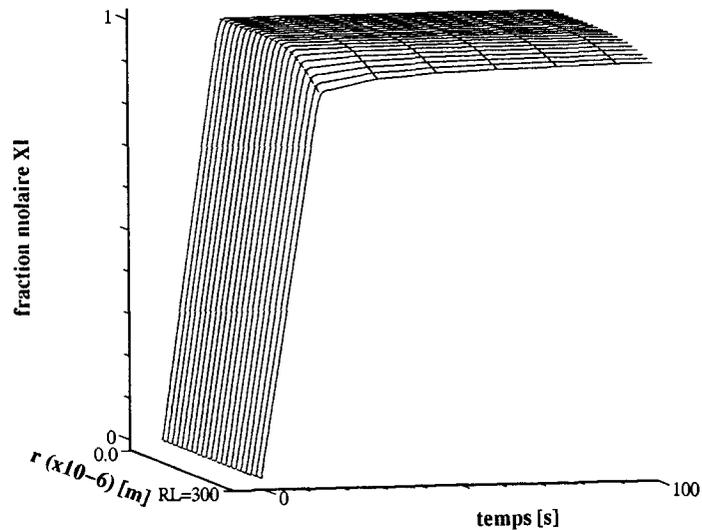


Figure 4.22: distribution de matière en amont (cas tubulaire)

Enfin, il reste à observer la distribution de matière en aval. Celle-ci est donnée sur la figure 4.24. On remarque, pour les mêmes raisons que précédemment, que le transport s'effectue toujours par convection. Mais le point important qui apparaît sur cette figure est que la fraction molaire x_v est supérieure à celle montrée par la figure 4.5. En effet, d'une valeur d'environ $7 \cdot 10^{-4}$ en régime stationnaire, on passe à une valeur de $9 \cdot 10^{-4}$ pour le module tubulaire. Ce qui signifie que plus de matière a été extrait dans ce dernier cas. Ces résultats montrent donc que, pour des conditions de fonctionnement comparables, le module tubulaire est plus performant que le module plan. Ou encore que la géométrie du module influe sur les performances de la séparation.

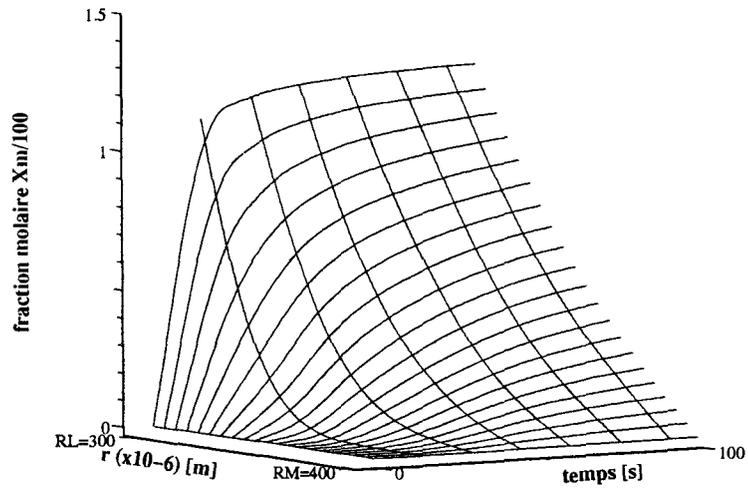


Figure 4.23: distribution de matière dans la membrane (cas tubulaire)

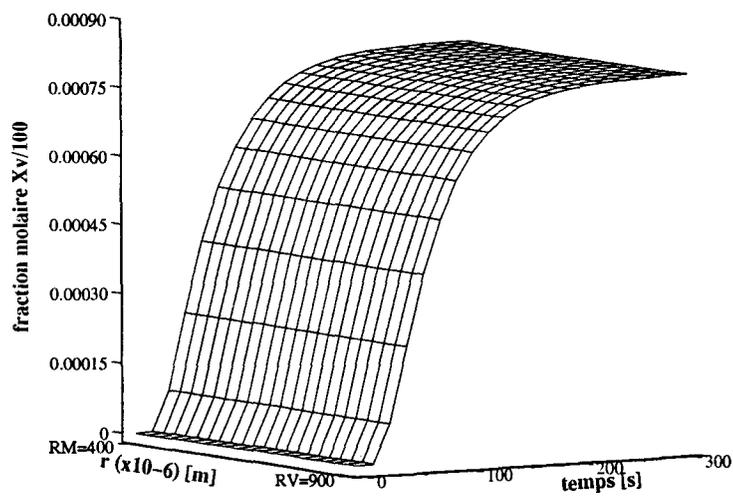


Figure 4.24: distribution de matière en aval (cas tubulaire)

4.5.4 Evolutions aux interfaces

Pour achever la simulation du modèle interne, il reste à donner l'évolution des fractions molaires de part et d'autre de la membrane (figures 4.25 et 4.26).

Les remarques soulevées pour la géométrie précédente se retrouvent ici. Le rapport des fractions molaires x_A^M et x_A^L en $r = R_L$ traduit bien l'aspect sélectif du procédé et la dynamique en aval est plus lente qu'en amont. Simplement, il est à noter qu'on pouvait s'attendre pour le module tubulaire à une dynamique plus rapide en aval (puisque le mélange amont s'effectue plus vite). Or, ce n'est pas le cas car la comparaison des figures 4.26 et 4.7 ne fait pas apparaître de différence sensible pour l'établissement du régime stationnaire en aval.

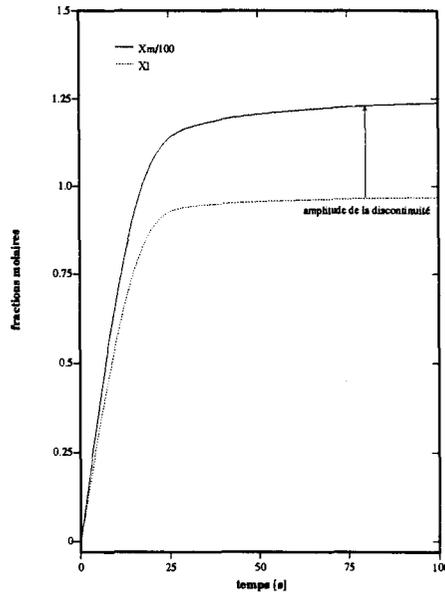


Figure 4.25: évolution de x_A^M et x_A^L en $r = R_L$ (cas tubulaire)

4.5.5 Evolution des fractions molaires moyennes

Enfin, pour terminer la validation qualitative du modèle en géométrie cylindrique, les figures 4.27 et 4.28 montrent l'évolution des fractions molaires moyennes en rétentat et en perméat.

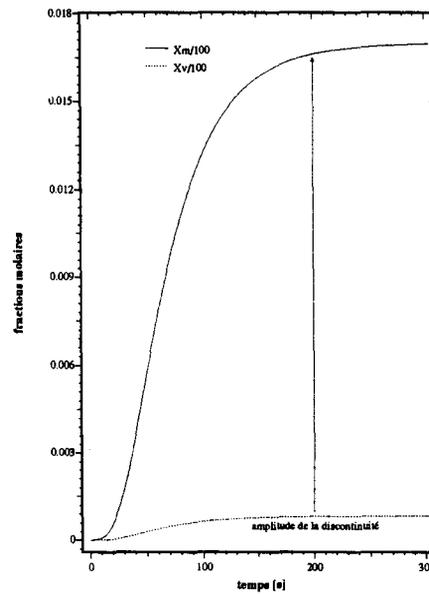


Figure 4.26: évolution de x_A^M et x_A^V en $r = R_M$ (cas tubulaire)

Les informations apportées par ces courbes sont identiques à celles du cas plan. Le transport en amont apparaît essentiellement convectif en régime stationnaire (car x_A^L tend vers 1, l'amplitude de l'échelon). En aval, comme la répartition est uniforme dans la phase gaz (à chaque instant), la valeur moyenne est la même que celle de la représentation en trois dimensions de la figure 4.24.

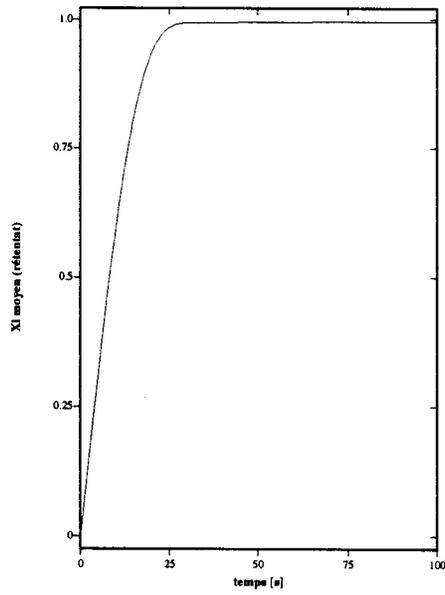


Figure 4.27: évolution de $\overline{x_A^L(t)}$ (cas tubulaire)

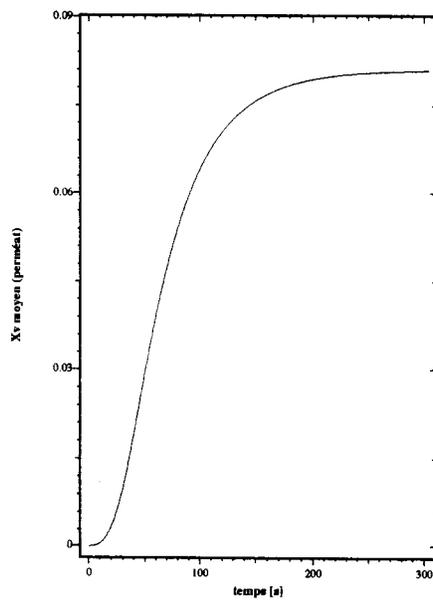


Figure 4.28: évolution de $\overline{x_A^V(t)}$ (cas tubulaire)

4.5.6 Commentaires sur ces résultats

Au vu des résultats obtenus pour le module tubulaire, deux points sont intéressants à souligner.

Le premier point concerne la validation qualitative du modèle. Comme pour la géométrie précédente, les systèmes d'équations proposés (avec ou sans simplification) décrivent bien le comportement attendu pour le module tubulaire. Sur la figure 4.29 on trouve un profil semblable à celui de la figure 1.10. La couche limite amont apparaît bien tandis qu'en aval elle n'existe pas et le profil dans la membrane devient linéaire en régime stationnaire.

La seule différence apparue dans cette partie concerne l'amélioration des performances. La couche limite est moins importante mais surtout la quantité de matière extraite à partir du module tubulaire est plus importante. Ce qui, pour le praticien, amène à se poser la question du choix de l'installation pour une opération de pervaporation. Le modèle de simulation se présente alors comme un bon outil pour conforter ce choix.

Enfin, le second point concerne la simplification du modèle. Comme il se trouve que sur l'exemple choisi celle-ci est applicable, la figure 4.30 montre la comparaison des fractions molaires à la frontière membrane / vide⁸.

Sur cette figure apparaît une différence avec le cas plan-spiralé (figure 4.11). En effet, alors que précédemment le seul écart observé concernait x_A^V , on remarque ici que celui-ci existe toujours pour x_A^V mais aussi pour x_A^M . L'hypothèse du profil de vitesse plat en aval et l'absence de résultats théoriques sur la convergence peuvent être à l'origine de cette divergence. L'écart n'est certes pas intolérable mais les observations des figures 4.11 et 4.30 conduisent à préconiser la prudence quant à la validité de la simplification aval puisqu'aucune conclusion ne peut être tirée sur l'origine de l'écart entre les modèles. Il reste que cet écart n'est pas insupportable et simplement, hors de toute utilisation des modèles, il faudra au préalable simuler le modèle complet puis le modèle simplifié pour enfin vérifier que la divergence entre ces simulations est acceptable.

⁸Comme pour le module plan-spiralé, aucune variation sur la distribution amont et dans la membrane n'a été relevée

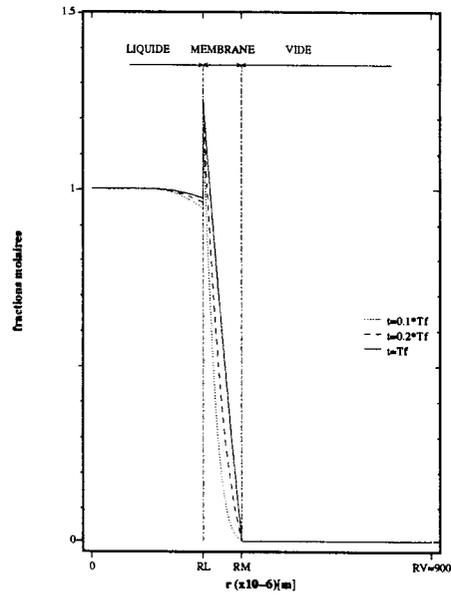


Figure 4.29: évolution du profil dans le module (cas tubulaire)

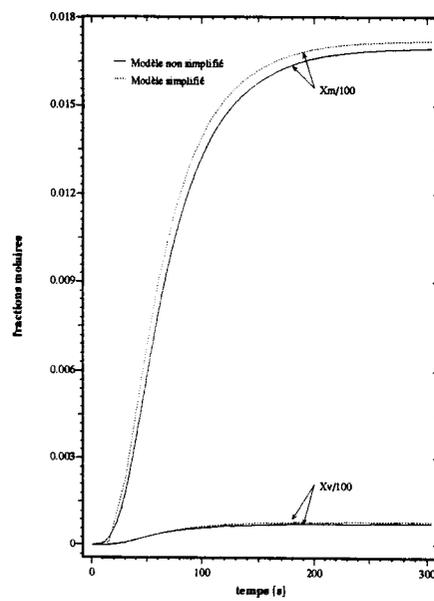


Figure 4.30: comparaison des modèles à l'interface aval (cas tubulaire)

4.5.7 Réponse à une séquence temporelle

Pour conclure ce dernier chapitre, il reste à vérifier la capacité des modèles à répondre à une séquence temporelle. En effet, on rappelle que lors du couplage à un fermenteur, les arômes sont produits irrégulièrement dans le temps. Et si le signal test choisi précédemment semblait suffisant pour la validation qualitative, il est maintenant nécessaire de s'assurer que la mise en équation permet effectivement la prise en compte des variations temporelles de l'entrée.

La séquence temporelle appliquée est une variation instantanée de 0 à 1 durant 5 minutes puis de 1 à 0.5 toujours pendant 5 minutes et enfin de 0.5 à 1. Les figures 4.31 à 4.33 donnent les réponses à une telle séquence dans chaque phase. Ces courbes mettent en évidence le comportement linéaire du modèle puisqu'après la « perturbation » appliquée entre les instants 5 minutes et 10 minutes on atteint l'état stationnaire avec la même dynamique qu'entre l'instant initial et 5 minutes. Ceci se retrouve sur les figures 4.34 et 4.35 où les variations de quantité de matière apparaissent clairement. Ces résultats montrent bien l'aptitude du modèle à répondre à une séquence temporelle. Dès lors, il devient envisageable de décrire le couplage du module de pervaporation à un fermenteur.

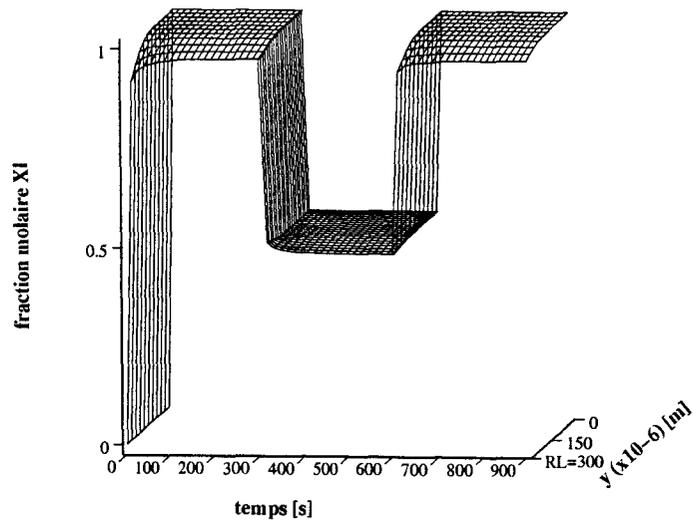


Figure 4.31: distribution amont en réponse à une séquence temporelle

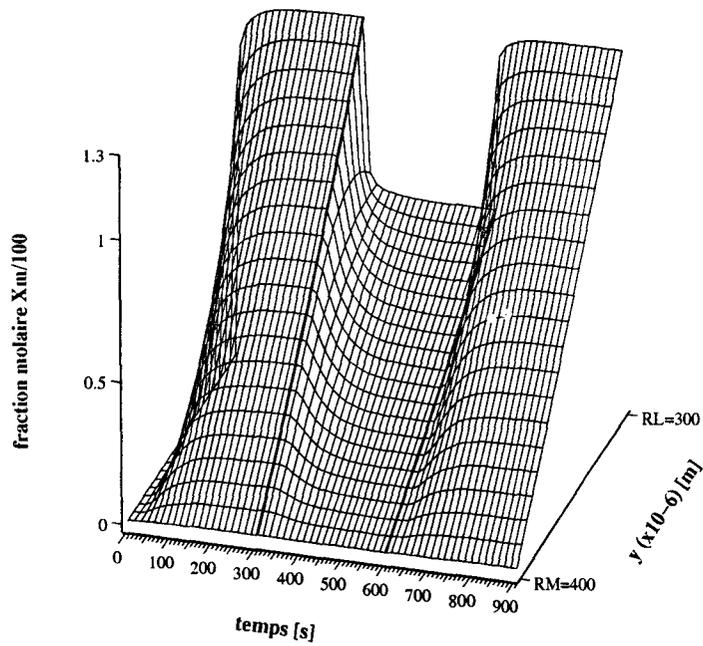


Figure 4.32: distribution dans la membrane en réponse à une séquence temporelle

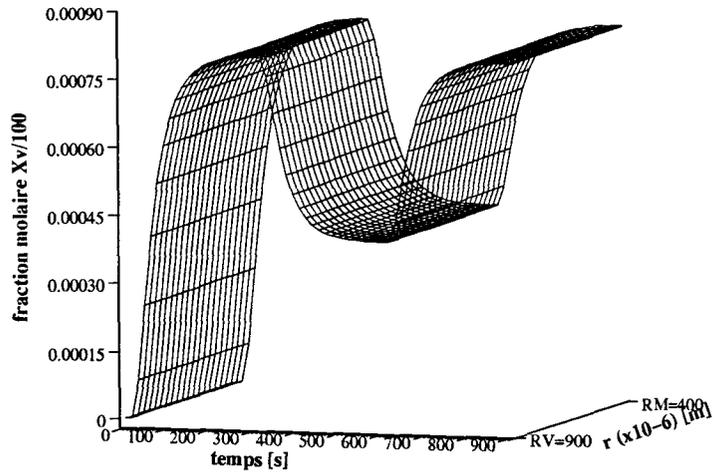


Figure 4.33: distribution aval en réponse à une séquence temporelle

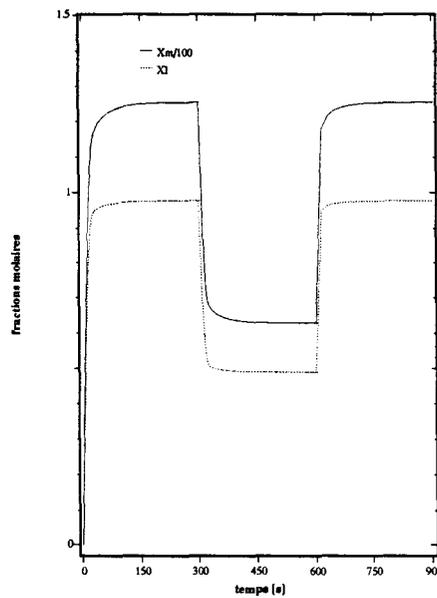


Figure 4.34: réponse à une séquence temporelle à l'interface amont

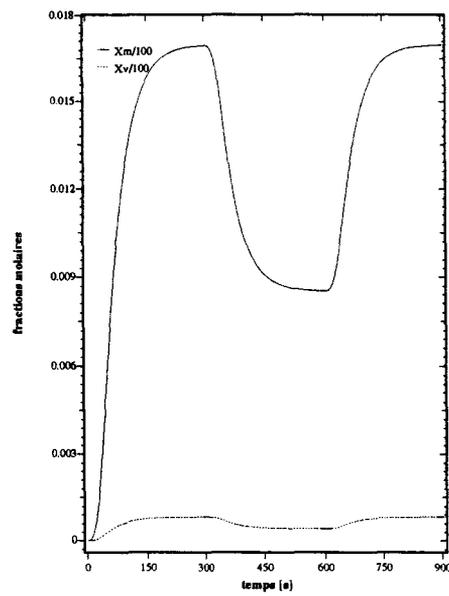


Figure 4.35: réponse à une séquence temporelle à l'interface aval

Conclusions générales

L'objectif général de ce travail était d'établir un modèle dynamique d'un procédé de séparation à membrane en vue du couplage à un fermenteur. Une synthèse bibliographique a fait ressortir dans un premier temps les limites des modèles actuellement utilisés (régime stationnaire) et l'intérêt d'entamer la modélisation pour des applications nouvelles du procédé de pervaporation. Toutefois, à l'issue de cette première partie il a fallu poser le cadre de ce que serait le modèle. En particulier, seul le cas d'une espèce en solution a été pris en compte. L'éventualité du transfert de plusieurs espèces n'a donc pas été retenue.

La deuxième partie de ce rapport était le centre même de ce travail. Le choix d'une approche de type « connaissance » étant arrêté, c'est en posant clairement les hypothèses sur les lois physiques qui régissent le transfert qu'un modèle interne a été établi. Celui-ci est un système d'équations aux dérivées partielles (système à paramètres distribués) qui, indifféremment de la géométrie du module, rend compte de la dynamique du procédé.

En particulier, il est apparu le problème délicat de l'écriture des conditions aux limites. Notre objectif n'étant pas d'analyser les mécanismes physico-chimiques complexes et mal connus qui existent aux interfaces, c'est par une approche semi-empirique que ce problème a été résolu. Grâce à l'introduction de nouveaux paramètres (coefficients de transfert), l'écriture du système d'équations a donc été complétée. Les conditions aux limites assurant l'unicité de la solution d'un système d'équations aux dérivées partielles, il fallait donc s'assurer que le problème était, au moins mathématiquement, bien posé. Ce point a été vérifié par une méthode de majoration d'énergie. Enfin, pour clore

cette deuxième partie, d'une part la nature même du procédé de pervaporation a permis de simplifier la mise en équation et d'autre part, les relations liant l'état du système aux grandeurs mesurables ont conduit à retrouver le concept d'entrée/sortie propre à l'automaticien.

Les équations étant écrites, dans la troisième partie de cette étude, il était alors nécessaire de les résoudre. L'absence d'une solution analytique a conduit à l'utilisation des techniques numériques permettant l'obtention d'une solution approchée. Ces outils sont d'un usage courant dans les sciences de l'ingénieur, néanmoins la structure du modèle (conditions aux interfaces impliquant un couplage des équations) ne rendait pas immédiate l'obtention de la solution. Ce problème a été résolu et a permis d'aboutir à un algorithme assurant la simulation du modèle.

Enfin, puisque le troisième chapitre a permis de résoudre le système d'équations proposé, il semblait légitime pour conclure cette étude de simuler le modèle dans des conditions proches de la réalité. En effet, si au terme du deuxième chapitre le modèle est apparu mathématiquement bien posé, le quatrième chapitre devait permettre de s'assurer de la validité physique de celui-ci. Les résultats ont montré un comportement cohérent avec la connaissance qu'on possède sur le procédé. Pour le praticien du génie des procédés le modèle se trouve donc compréhensible et devrait offrir certaines possibilités de simulation. De plus, il a été mis en évidence que le modèle devrait être applicable à d'autres procédés de séparation par membranes denses (dialyse, perstraction). La mise en équation proposée se présente donc relativement généralisable. Par simulation, il a aussi été possible de comparer les performances de différents modules. Le modèle proposé peut alors aider l'utilisateur dans le choix du type d'installation et dans l'aide à l'expérimentation [22]. Pour terminer, la simplification du modèle en aval s'est avérée applicable mais en émettant une certaine réserve sur la convergence de la solution (une étude théorique plus approfondie pourrait permettre d'éclaircir ce point). Le modèle présente donc toutes les qualités liées aux approches phénoménologiques rappelées par E. Walter [51]: ses paramètres sont à sens concret et lui confèrent un caractère

explicatif voire prédictif, de plus le domaine de validité est étendu (quand la structure est correcte). L'élaboration du modèle a suivi la méthodologie de la modélisation rappelée en introduction de ce rapport. Avec cette remarque cependant, que l'étape d'identification n'apparaît pas ici.

En contrepartie, la simulation s'avère lourde et délicate. Cet inconvénient amène à s'interroger sur l'utilisation future de ce modèle, en particulier on peut se demander la place qu'occupera le modèle quand se posera le problème de la commande. Il est difficile, pour l'instant de répondre à cette question et il serait utopique d'espérer pouvoir utiliser le modèle tel quel pour la commande. Essentiellement parce que le calcul de la commande doit être envisagé sur une installation complète (fermenteur+module de pervaporation).

Néanmoins, il est d'ores et déjà possible de noter les deux points suivants. Le premier concerne la manière dont on peut améliorer les performances sur un tel procédé. En effet, la seule variable opératoire sur laquelle il est possible d'agir est le débit amont, or les résultats du chapitre quatre ont montré (sur l'exemple choisi) que le procédé à membrane était peu sensible à une variation de celle-ci tant en terme d'amélioration de la quantité de matière extraite qu'en terme d'accélération de la dynamique du processus. La prise en compte de cette variable dans une loi commande, établie ou non à partir du modèle, pourrait alors s'avérer infructueuse. La simulation du modèle semble donc permettre de dessiner une stratégie pour la commande. En effet, le module de séparation semble peu docile lorsqu'on désire améliorer ses performances. Ce qui n'est pas surprenant car l'expérience a montré que c'est la membrane elle-même qui guide le transfert et que pratiquement il est toujours difficile d'améliorer les performances. Il apparaît donc peu vraisemblable d'espérer commander de manière optimale le procédé.

Enfin, le deuxième point relève de l'utilisation ultérieure du modèle. En effet, il reste que celui-ci peut se trouver lourd à exploiter. Pour alléger son utilisation, il est possible d'avancer que la simplification effectuée en aval soit également appliquée en amont. L'insensibilité constatée précédemment vis-à-vis de l'écoulement amont, peut justifier une telle simplification (même si celle-ci n'a pas a priori de sens physique). Cette perte d'information sur le

modèle pouvant être compensée par les coefficients de transfert. Le modèle consisterait alors en une équation de diffusion avec de part et d'autre de celle-ci un écoulement « piston ». La simulation n'en sera alors que plus rapide et devrait permettre une utilisation plus souple.

Enfin, le dernier point à soulever concerne les coefficients de transfert H_u et H_d introduits dans ce travail. En effet, le sens physique attribué à ces derniers s'est trouvé vérifié. Toutefois, lors des simulations du dernier chapitre, c'est arbitrairement que leurs valeurs ont été fixées. Comme une détermination expérimentale de ces paramètres est techniquement difficile à envisager, il reste à mettre en place l'algorithme d'estimation de ces paramètres. Cette étude a été entreprise et devrait conduire à un travail équivalent à celui-ci. En effet, l'identification n'est pas chose simple sur les systèmes à paramètres distribués. D'une part à cause de la nature du problème : le système est de dimension infinie, et d'autre part parce que l'identification s'effectue nécessairement à partir des grandeurs mesurables qui sont ici localisées (valeurs moyennes de quantité de matière). Les travaux de H.T Banks traitent du problème de l'estimation de paramètres sur de tels systèmes [1]. Cet auteur pose le problème de l'identification comme un problème d'optimisation en dimension infinie et développe les théorèmes permettant de le ramener à une dimension finie. Néanmoins, si le même type d'équations (paraboliques) que dans ce travail est traité, les résultats ne sont pas directement applicables. Essentiellement parce que l'utilisation de ces puissants outils suppose de connaître (et donc de mesurer) l'état en tout point et à tout instant du système, ou au moins sur ses frontières. Pour notre problème, cela revient donc à mesurer dans les plans d'entrée et de sortie la fraction molaire pour tout ordonnée et à chaque instant, ce qui n'est pas réalisable expérimentalement. Réaliser l'estimation des paramètres du modèle ici proposé revient donc à poser un problème d'une portée relativement générale en automatique puisqu'il s'agit à partir d'observations entrée/sortie localisées d'estimer les paramètres d'un modèle interne. Ce travail s'inscrit donc comme la suite logique de la modélisation effectuée dans ce rapport.

Il reste qu'au terme de cette étude, il est important de rappeler l'objectif qui était fixé: il s'agissait d'établir un modèle, c'est-à-dire une description mathématique d'un processus réel, construit dans un but précis. Ce but était l'analyse de phénomènes afin d'approfondir leur compréhension pour ainsi permettre la réalisation d'applications nouvelles. La construction de ce modèle s'est révélée être une démarche interdisciplinaire et par les questions qu'elle a induit, elle a permis de résoudre des problèmes initialement non formulés. On pourra juger le modèle obtenu sur la façon dont il a permis d'atteindre le but fixé, tout en saisissant les limites et la valeur relative de la modélisation proposée.

Annexe A

Discrétisation pour le plan

A.1 Equation de convection-diffusion dans la charge

Si $u_j = u_z(j \Delta y)$, l'équation 2.8 se discrétise ainsi, pour le premier demi-pas de temps $\Delta t / 2$:

$$\begin{aligned} \frac{x_L^{i,j,k+1/2} - x_L^{i,j,k}}{\Delta t / 2} = -u_j \frac{x_L^{i+1,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{2 \Delta z} \\ + D_{AL} \left(\frac{x_L^{i,j-1,k} - 2 x_L^{i,j,k} + x_L^{i,j+1,k}}{\Delta y^2} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

et pour le second demi-pas de temps $\Delta t / 2$:

$$\begin{aligned} \frac{x_L^{i,j,k+1} - x_L^{i,j,k+1/2}}{\Delta t / 2} = -u_j \frac{x_L^{i+1,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{2 \Delta z} \\ + D_{AL} \left(\frac{x_L^{i,j-1,k+1} - 2 x_L^{i,j,k+1} + x_L^{i,j+1,k+1}}{\Delta y^2} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Le prédicteur A.1 est donc implicite en z et explicite en y , tandis que le correcteur A.2 est explicite en z et implicite en y .

Posons: $l_1 = \frac{\Delta t}{4 \Delta z} u_j$ et $l_2 = \frac{D_{AL} \Delta t}{2 \Delta y^2}$

A.1 et A.2 s'écrivent sous forme condensée:

$$\begin{aligned} -l_1 x_L^{i-1,j,k+1/2} + x_L^{i,j,k+1/2} + l_1 x_L^{i+1,j,k+1/2} = \\ l_2 x_L^{i,j-1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{i,j,k} + l_2 x_L^{i,j+1,k} \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

et

$$\begin{aligned} -l_2 x_L^{i,j-1,k+1} + (1 + 2l_2) x_L^{i,j,k+1} - l_2 x_L^{i,j+1,k+1} = \\ l_1 x_L^{i-1,j,k+1/2} + x_L^{i,j,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,j,k+1/2} \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

A chaque pas de temps, pour le prédicteur A.3, il faut donc résoudre $(j_a \times I)$ équations et pour le correcteur A.4, il faut résoudre $(I \times j_a)$ équations. La bonne précision et la stabilité inconditionnelle s'obtiennent donc au détriment de la rapidité de l'algorithme.

A.1.1 Système linéaire pour le prédicteur

L'équation A.3 fournit le terme général du système linéaire. Il reste maintenant à considérer les conditions aux limites du domaine géométrique en :

$(y = 0)$, $(y = Y_L)$, $(z = 0)$ et $(z = L_p)$

Pour le plan $(z = 0)$, on remplace dans l'équation A.1 le terme :

$$-u_j \frac{x_L^{i+1,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{2\Delta z} \text{ par le terme suivant : } -u_j \frac{x_L^{i,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{\Delta z}.$$

On obtient donc pour $(i = 1)$, le prédicteur :

$$\begin{aligned} (1 + 2l_1) x_L^{1,j,k+1/2} = l_2 x_L^{1,j-1,k} \\ + (1 - 2l_2) x_L^{1,j,k} + l_2 x_L^{1,j+1,k} + 2l_1 E_k \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

Où $E_k = x_L^{0,j,k}$ est le signal d'entrée, fonction du temps.

Pour le plan $(z = L_p)$, on remplace dans l'équation A.2 le terme :

$$-u_j \frac{x_L^{i+1,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{2\Delta z} \text{ par le terme suivant : } -u_j \frac{x_L^{i,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{\Delta z}.$$

On obtient donc pour $(i = I)$, le prédicteur :

$$\begin{aligned} -2l_1 x_L^{I-1,j,k+1/2} + (1 + 2l_1) x_L^{I,j,k+1/2} = \\ l_2 x_L^{I,j-1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{I,j,k} + l_2 x_L^{I,j+1,k} \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

Si on reprend les équations A.3, A.5 et A.6, on peut les combiner de manière à obtenir, à j et k fixés, un système linéaire d'ordre I dont la matrice carrée est tridiagonale :

$$P(j, k) X_L^{j,k+1/2} = Q(j, k)$$

La résolution de ce système nous donne les $x_L^{i,j,k+1/2}$.

La matrice carrée s'écrit sous la forme :

$$P(j, k) = \begin{pmatrix} 1 + 2l_1 & 0 & \cdots & & & \\ -l_1 & 1 & l_1 & \cdots & & \\ \vdots & \vdots & \vdots & & & \\ & & & -l_1 & 1 & l_1 \\ & & & -2l_1 & 1 + 2l_1 & \end{pmatrix}$$

Le vecteur second membre prenant la forme suivante :

$$Q(j, k) = \begin{pmatrix} l_2 x_L^{1,j-1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{1,j,k} + l_2 x_L^{1,j+1,k} \\ \vdots \\ l_2 x_L^{I,j-1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{I,j,k} + l_2 x_L^{I,j+1,k} \end{pmatrix}$$

Il reste à prendre en compte les conditions en ($y = 0$) et en ($y = Y_L$).

En ($y = 0$), l'équation 2.43 :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial y} \Big|_0 = 0$$

qui traduit la symétrie axiale, permet de simplifier l'équation 2.8. En effet, l'équation 2.43 conduit à :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial t} \Big|_0 \approx -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z}$$

La discrétisation pour ($j = 0$) prend alors pour le prédicteur la forme suivante :

$$\frac{x_L^{i,0,k+1/2} - x_L^{i,0,k}}{\Delta t / 2} = -u_0 \frac{x_L^{i+1,0,k+1/2} - x_L^{i-1,0,k+1/2}}{2 \Delta z}$$

Soit sous forme condensée :

$$-l_1 x_L^{i-1,0,k+1/2} + x_L^{i,0,k+1/2} + l_1 x_L^{i+1,0,k+1/2} = x_L^{i,0,k} \quad (\text{A.7})$$

Enfin, à l'interface amont, soit entre ($y = Y_L$) ou pour ($j = j_a$), les équations 2.47 et 2.50 permettent d'écrire l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^L D_{AL} \frac{x_L^{i,j_a+1,k} - x_L^{i,j_a-1,k}}{2 \Delta y} = -H_u (\rho_A^L x_L^{i,j_a,k} - \rho_A^M x_M^{j_a,k})$$

Cette relation nous permet d'exprimer $x_L^{i,j_a+1,k}$ dans l'équation A.3 et en posant :

$$l_3 = \frac{H_y \Delta t}{\Delta y}.$$

$$\begin{aligned} -l_1 x_L^{i,j_a,k+1/2} + x_L^{i,j_a,k+1/2} + l_1 x_L^{i+1,j_a,k+1/2} = \\ 2l_2 x_L^{i,j_a-1,k} + (1 - 2l_2 - l_3) x_L^{i,j_a,k} + \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} l_3 x_M^{j_a,k} \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Si on reprend l'équation A.7, en ($j = 0$), le second membre $Q(j, k)$ est modifié en :

$$Q(0, k) = \begin{pmatrix} x_L^{1,0,k} \\ \vdots \\ x_L^{I,0,k} \end{pmatrix}$$

Et si on reprend l'équation A.8, en ($j = j_a$), le second membre $Q(j, k)$ est modifié en :

$$Q(j_a, k) = \begin{pmatrix} 2l_2 x_L^{1,j_a-1,k} + (1 - 2l_2 - l_3) x_L^{1,j_a,k} + \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} l_3 x_M^{j_a,k} \\ \vdots \\ 2l_2 x_L^{I,j_a-1,k} + (1 - 2l_2 - l_3) x_L^{I,j_a,k} + \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} l_3 x_M^{j_a,k} \end{pmatrix}$$

Trouver les $x_L^{i,j,k+1/2}$ revient donc à résoudre le système linéaire précédent.

A.1.2 Système linéaire pour le correcteur

L'équation A.4 fournit le terme général du système linéaire. Comme pour le prédicteur, il faut considérer les conditions aux limites.

En ($y = 0$), la remarque faite pour le prédicteur est toujours valable. L'équation 2.8 se simplifie en :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial t} \Big|_0 \approx -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z}$$

Et pour le correcteur, en ($j = 0$), on a donc la forme suivante :

$$\frac{x_L^{i,0,k+1} - x_L^{i,0,k+1/2}}{\Delta t / 2} = -u_0 \frac{x_L^{i+1,0,k+1/2} - x_L^{i-1,0,k+1/2}}{2 \Delta z}$$

Soit sous forme condensée :

$$x_L^{i,0,k+1} = l_1 x_L^{i-1,0,k+1/2} + x_L^{i,0,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,0,k+1/2} \quad (\text{A.9})$$

En ($y = Y_L$), à partir des équations 2.47 et 2.50, on écrit l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^L D_{AL} \frac{x_L^{i,j_a+1,k+1} - x_L^{i,j_a-1,k+1}}{2 \Delta y} = -H_u (\rho_A^L x_L^{i,j_a,k+1} - \rho_A^M x_M^{j_a,k+1})$$

Cette équation, combinée avec l'équation A.4 donne sous forme condensée :

$$\begin{aligned} -2l_2 x_L^{i,j_a-1,k+1} + (1 + 2l_2 + l_3) x_L^{i,j_a,k+1} - \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} l_3 x_M^{j_a,k+1} = \\ l_1 x_L^{i-1,j_a,k+1/2} + x_L^{i,j_a,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,j_a,k+1/2} \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

On remarque dans l'équation A.10 qu'il apparaît le terme $x_M^{j_a,k+1}$ comme une inconnue. Ceci se justifie par le couplage entre les équations 2.8 et 2.17 qu'engendrent les conditions à l'interface amont 2.47 et 2.50. L'obtention du système linéaire pour le correcteur n'est donc pas immédiate et il se trouve qu'on est amené à déterminer simultanément les $x_L^{i,j,k+1}$, $x_M^{j,k+1}$ et $x_V^{i,j,k+1}$.

A.1.3 Solution proposée à ce problème de couplage

Puisqu'il faut déterminer simultanément $x_L^{i,j,k+1}$, $x_M^{j,k+1}$ et $x_V^{i,j,k+1}$, on est amené à résoudre le système linéaire :

$$C(i, k) X^{i,k+1} = D(i, k)$$

où $X^{i,k+1}$ est le vecteur des inconnues à la date t_{k+1} de dimension $(J + 2)$. Ce vecteur est défini comme suit :

$$X^{i,k+1} = (X_L^{i,k+1}, X_M^{k+1}, X_V^{i,k+1})^T$$

Avec :

$$X_L^{i,k+1} = (x_L^{i,0,k+1}, \dots, x_L^{i,j_a,k+1})^T$$

$$X_M^{k+1} = (x_M^{j_a,k+1}, \dots, x_M^{j_b,k+1})^T$$

$$X_V^{i,k+1} = (x_V^{i,j_b,k+1}, \dots, x_V^{i,J,k+1})^T$$

$D(i, k)$ est le vecteur second membre et $C(i, k)$ de dimension $(J + 2)$, tel que :

$$D(i, k) = (D_1(i, k), D_2(k), D_3(i, k))^T$$

Avec :

$D_1(i, k)$ est engendré par la discrétisation en amont

$D_2(k)$ est engendré par la discrétisation dans la membrane

$D_3(i, k)$ est engendré par la discrétisation en aval.

Enfin, la matrice bloc $C(i, k)$ carrée, tridiagonale, de dimension $(J+2)$, prend la forme suivante :

$$C(i, k) = \begin{pmatrix} \boxed{C_1(i, k)} & & & & \\ & \boxed{C_2(k)} & & & \\ & & \boxed{C_3(i, k)} & & \\ & & & & \\ & & & & \end{pmatrix}$$

(Note: The diagram shows three shaded boxes on a diagonal. The top box is labeled $C_1(i, k)$, the middle $C_2(k)$, and the bottom $C_3(i, k)$. Coupling terms c_{12} , c_{21} , c_{23} , and c_{32} are indicated between the boxes.)

Les c_{pq} traduisent les termes de couplage et :

$C_1(i, k)$ est engendré par la discrétisation en amont

$C_2(k)$ est engendré par la discrétisation dans la membrane

$C_3(i, k)$ est engendré par la discrétisation en aval

A.1.4 Obtention des matrices $C_1(i, k)$ et $D_1(i, k)$

A partir des équations A.4, A.9 et A.10, on forme la matrice $C_1(i, k)$ d'ordre j_a .

$$C_1(i, k) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & \dots & & & \\ -l_2 & 1 + 2l_2 & -l_2 & \dots & & \\ \vdots & \vdots & \vdots & & & \\ & & & & -l_2 & 1 + 2l_2 & l_2 \\ & & & & -2l_2 & 1 + 2l_2 + l_3 & \end{pmatrix}$$

Et dans l'équation A.10, le coefficient de $x_M^{j_a, k+1}$ apparaît comme le terme de couplage c_{LM} .

Soit $c_{LM} = -\frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} l_3$

Toujours à partir des équations A.4, A.9 et A.10, on forme le second membre $D_1(i, k)$, de dimension j_a tel que :

$$D_1(i, k) = \begin{pmatrix} l_1 x_L^{i-1,0,k+1/2} + x_L^{i,0,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,0,k+1/2} \\ \vdots \\ l_1 x_L^{i-1,j_a,k+1/2} + x_L^{i,j_a,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,j_a,k+1/2} \end{pmatrix}$$

Il reste à prendre en compte les conditions en ($z = 0$) et en ($z = L_p$). Comme pour le prédicteur, en ($z = 0$), plutôt qu'un schéma aux différences finies centrées pour le terme de convection, on choisit un schéma aux différences à gauche. En ($i = 1$), le correcteur s'écrit donc :

$$\begin{aligned} -l_2 x_L^{1,j-1,k+1} + (1 + 2l_2) x_L^{1,j,k+1} - l_2 x_L^{1,j+1,k+1} = \\ (1 - 2l_1) x_L^{1,j,k+1/2} + 2l_1 E_k \end{aligned}$$

En ($i = 1$), $D_1(i, k)$ prend donc la forme suivante :

$$D_1(1, k) = \begin{pmatrix} (1 - 2l_1) x_L^{1,0,k+1/2} + 2l_1 E_k \\ \vdots \\ (1 - 2l_1) x_L^{1,j_a,k+1/2} + 2l_1 E_k \end{pmatrix}$$

En ($z = L_p$), plutôt qu'un schéma aux différences centrées pour le terme de convection, on choisit un schéma aux différences à droite. En ($i = I$), le correcteur s'écrit alors :

$$\begin{aligned} -l_2 x_L^{I,j-1,k+1} + (1 + 2l_2) x_L^{I,j,k+1} - l_2 x_L^{I,j+1,k+1} = \\ 2l_1 x_L^{I-1,j,k+1/2} + (1 - 2l_1) x_L^{I,j,k+1/2} \end{aligned}$$

Et en ($i = I$), $D_1(i, k)$ prend donc la forme suivante :

$$D_1(I, k) = \begin{pmatrix} 2l_1 x_L^{I-1,0,k+1/2} + (1 - 2l_1) x_L^{I,0,k+1/2} \\ \vdots \\ 2l_1 x_L^{I-1,j_a,k+1/2} + (1 - 2l_1) x_L^{I,j_a,k+1/2} \end{pmatrix}$$

Et les termes de couplage c_{ML} et c_{MV} sont obtenus à partir des équations A.12 et A.13 :

$$c_{ML} = -2 \frac{\rho_A^L}{\rho_A^M} l_3$$

$$c_{MV} = -2 \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} l_5$$

Toujours à partir des équations A.11, A.12 et A.13, on trouve le vecteur $D_2(k)$ de dimension $(j_b - j_a + 1)$:

$$D_2(k) = \begin{pmatrix} x_M^{j_a, k} \\ \vdots \\ x_M^{j_b, k} \end{pmatrix}$$

A.3 Equation de convection-diffusion en aval

Les équations 2.8 et 2.26 étant de même nature, la discrétisation en aval est identique à celle effectuée en amont (méthode des directions alternées). Si on pose $w_j = w_z(j \Delta y)$, l'équation 2.26 se discrétise pour le prédicteur et pour le correcteur comme suit :

Pour le prédicteur

$$\frac{x_V^{i,j,k+1/2} - x_V^{i,j,k}}{\Delta t/2} = -w_j \frac{x_V^{i+1,j,k+1/2} - x_V^{i-1,j,k+1/2}}{2\Delta y} + D_{AV} \frac{x_V^{i,j-1,k} - 2x_V^{i,j,k} + x_V^{i,j+1,k}}{\Delta y^2} \quad (\text{A.14})$$

Pour le correcteur

$$\frac{x_V^{i,j,k+1} - x_V^{i,j,k+1/2}}{\Delta t/2} = -w_j \frac{x_V^{i+1,j,k+1/2} - x_V^{i-1,j,k+1/2}}{2\Delta z} + D_{AV} \frac{x_V^{i,j-1,k+1} - 2x_V^{i,j,k+1} + x_V^{i,j+1,k+1}}{\Delta y^2} \quad (\text{A.15})$$

Posant $l_6 = \frac{w_j \Delta t}{4 \Delta z}$ et $l_7 = \frac{D_{AV} \Delta t}{2 \Delta y^2}$, les équations A.14 et A.15 s'écrivent pour le prédicteur et pour le correcteur sous la forme condensée suivante :

Pour le prédicteur

$$\begin{aligned} -l_6 x_V^{i-1,j,k+1/2} + x_V^{i,j,k+1/2} + l_6 x_V^{i+1,j,k+1/2} = \\ l_7 x_V^{i,j-1,k} + (1 - 2l_7) x_V^{i,j,k} + l_7 x_V^{i,j+1,k} \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

Pour le correcteur

$$\begin{aligned} -l_7 x_V^{i,j-1,k+1} + (1 + 2l_7) x_V^{i,j,k+1} - l_7 x_V^{i,j+1,k+1} = \\ l_6 x_V^{i-1,j,k+1/2} + x_V^{i,j,k+1/2} - l_6 x_V^{i+1,j,k+1/2} \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

A.3.1 Système linéaire pour le prédicteur

Il reste à compléter le système linéaire par les conditions aux limites en :

$(y = Y_M)$, $(y = Y_V)$, $(z = 0)$ et $(z = L_p)$

Pour le plan, en $(z = 0)$, on procède comme en amont. Plutôt qu'un schéma aux différences centrées, on choisit pour le terme de convection les différences à gauche; on obtient alors, à partir de l'équation A.14, en $(i = 1)$, le prédicteur sous la forme condensée suivante :

$$(1 + 2l_6) x_V^{1,j,k+1/2} = l_7 x_V^{1,j-1,k} + (1 - 2l_7) x_V^{1,j,k} + l_7 x_V^{1,j+1,k} \quad (\text{A.18})$$

Pour le plan, en $(z = L_p)$, on choisit les différences à droite de telle manière qu'en $(i = I)$, le prédicteur s'écrive sous forme condensée :

$$\begin{aligned} -2l_6 x_V^{I-1,j,k+1/2} + (1 + 2l_6) x_V^{I,j,k+1/2} = \\ l_7 x_V^{I,j-1,k} + (1 - 2l_7) x_V^{I,j,k} + l_7 x_V^{I,j+1,k} \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

Reprenant les équations A.16, A.18 et A.19, on peut les combiner de manière à obtenir, à j et k fixés, un système linéaire d'ordre I dont la matrice carrée est tridiagonale.

$$R(j, k) X_V^{j,k+1/2} = S(j, k)$$

La résolution de ce système donne donc les $X_V^{j,k+1/2}$.

Enfin, l'équation A.21 permet d'obtenir le vecteur second membre en $j = J$:

$$S(J, k) = \begin{pmatrix} 2l_7 x_V^{1, J-1, k} + (1 - 2l_7) x_V^{1, J, k} \\ \vdots \\ 2l_7 x_V^{I, J-1, k} + (1 - 2l_7) x_V^{I, J, k} \end{pmatrix}$$

A.3.2 Système linéaire pour le correcteur

Toujours en considérant les conditions aux limites, on complète le système linéaire fourni par l'équation A.17. En ($y = Y_M$), à partir des équations 2.52 et 2.54, on écrit l'équation discrète suivante:

$$\rho_A^V D_{AV} \frac{x_V^{i, j_b+1, k+1} - x_V^{i, j_b-1, k+1}}{2 \Delta y} = -H_d (\rho_A^M x_M^{j_b, k+1} - \rho_A^V x_V^{i, j_b, k+1})$$

Cette équation combinée avec l'équation A.16 conduit à:

$$-\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_8 x_M^{j_b, k+1} + (1 + 2l_7 + l_8) x_V^{i, j_b, k+1} - 2l_7 x_V^{i, j_b+1, k+1} = \quad (A.22)$$

$$l_6 x_V^{i-1, j_b, k+1/2} + x_V^{i, j_b, k+1/2} - l_6 x_V^{i+1, j_b, k+1/2}$$

En ($y = Y_V$), la symétrie axiale permet d'écrire que pour $j = J$:

$$-2l_7 x_V^{i, J-1, k+1} + (1 + 2l_7) x_V^{i, J, k+1} = \quad (A.23)$$

$$l_6 x_V^{i-1, J, k+1/2} + x_V^{i, J, k+1/2} - l_6 x_V^{i+1, J, k+1/2}$$

L'équation A.22 fait intervenir le terme $x_M^{j_b, k+1}$: la remarque faite précédemment sur le couplage se retrouve donc pour le correcteur aval.

A.3.3 Obtention des matrices $C_3(i, k)$ et $D_3(i, k)$

A partir des équations A.17, A.22 et A.23, on peut donc former la matrice $C_3(i, k)$ d'ordre $(J - j_b + 1)$:

$$C_3(i, k) = \begin{pmatrix} 1 + 2l_7 + l_8 & -2l_7 & \cdots & & & \\ -l_7 & 1 + 2l_7 & -l_7 & \cdots & & \\ \vdots & \vdots & \vdots & & & \\ & & & & -l_7 & 1 + 2l_7 & -l_7 \\ & & & & -2l_7 & 1 + 2l_7 & \end{pmatrix}$$

Et dans l'équation A.22, le coefficient de $x_M^{j_b, k+1}$ apparaît comme le terme de couplage c_{VM} . Soit :

$$c_{VM} = -\frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_8$$

On construit, toujours à partir des équations A.17, A.22 et A.23, le vecteur second membre $D_3(i, k)$ de dimension $(J - j_b + 1)$:

$$D_3(i, k) = \begin{pmatrix} l_6 x_V^{i-1, j_b, k+1/2} + x_V^{i, j_b, k+1/2} - l_6 x_V^{i+1, j_b, k+1/2} \\ \vdots \\ l_6 x_V^{i-1, J, k+1/2} + x_V^{i, J, k+1/2} - l_6 x_V^{i+1, J, k+1/2} \end{pmatrix}$$

Pour terminer, il reste à prendre en compte les conditions en $(z = 0)$ et en $(z = L_p)$. Comme pour le prédicteur, en $(z = 0)$, on choisit un schéma aux différences à gauche. En $(i = 1)$, le correcteur s'écrit donc :

$$-l_7 x_V^{1, j-1, k+1} + (1 + 2l_7) x_V^{1, j, k+1} - l_7 x_V^{1, j+1, k+1} = (1 - 2l_7) x_V^{1, j, k+1/2}$$

En $(i = 1)$, le vecteur second membre prend donc la forme suivante :

$$D_3(1, k) = \begin{pmatrix} (1 - 2l_7) x_V^{1, j_b, k+1/2} \\ \vdots \\ (1 - 2l_7) x_V^{1, J, k+1/2} \end{pmatrix}$$

En ($z = L_p$), on choisit un schéma aux différences à droite. En ($i = I$), le correcteur s'écrit donc :

$$-l_7 x_v^{I,j-1,k+1} + (1 + 2l_7) x_v^{I,j,k+1} - l_7 x_v^{I,j+1,k+1} = \\ (1 - 2l_7) x_v^{I,j,k+1/2} + 2l_7 x_v^{I,j-1,k+1/2}$$

En ($i = I$), $D_3(i, k)$ s'écrit donc:

$$D_3(I, k) = \begin{pmatrix} 2l_7 x_v^{I,j_b,k+1/2} + (1 - 2l_7) x_v^{I,j_b,k+1/2} \\ \vdots \\ 2l_7 x_v^{I,J,k+1/2} + (1 - 2l_7) x_v^{I,J,k+1/2} \end{pmatrix}$$

Annexe B

Discrétisation pour le cylindre

B.1 Equation de convection-diffusion dans la charge

Si $u_j = u_z(j \Delta r)$, l'équation 2.12 se discrétise ainsi, pour le prédicteur :

$$\begin{aligned} \frac{x_L^{i,j,k+1/2} - x_L^{i,j,k}}{\Delta t / 2} = -u_j \frac{x_L^{i+1,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{2 \Delta z} \\ + D_{AL} \left(\frac{x_L^{i,j-1,k} - 2 x_L^{i,j,k} + x_L^{i,j+1,k}}{\Delta r^2} + \frac{1}{r_j} \frac{x_L^{i,j+1,k} - x_L^{i,j-1,k}}{2 \Delta r} \right) \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

et pour le correcteur :

$$\begin{aligned} \frac{x_L^{i,j,k+1} - x_L^{i,j,k+1/2}}{\Delta t / 2} = -u_j \frac{x_L^{i+1,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{2 \Delta z} \\ + D_{AL} \left(\frac{x_L^{i,j-1,k+1} - 2 x_L^{i,j,k+1} + x_L^{i,j+1,k+1}}{\Delta r^2} + \frac{1}{r_j} \frac{x_L^{i,j+1,k+1} - x_L^{i,j-1,k+1}}{2 \Delta r} \right) \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

Le prédicteur B.1 est donc implicite en z et explicite en r , tandis que le correcteur B.2 est explicite en z et implicite en r .

Posons : $l_1 = \frac{\Delta t}{4 \Delta z} u_j$ et $l_2 = \frac{D_{AL} \Delta t}{2 \Delta r^2}$

B.1 et B.2 s'écrivent sous forme condensée :

$$\begin{aligned} -l_1 x_L^{i-1,j,k+1/2} + x_L^{i,j,k+1/2} + l_1 x_L^{i+1,j,k+1/2} = \\ \left(1 - \frac{1}{2j}\right) l_2 x_L^{i,j-1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{i,j,k} + \left(1 + \frac{1}{2j}\right) l_2 x_L^{i,j+1,k} \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

et :

$$\begin{aligned} & \left(\frac{1}{2j} - 1\right) l_2 x_L^{i,j-1,k+1} + (1 + 2l_2) x_L^{i,j,k+1} - \left(1 + \frac{1}{2j}\right) l_2 x_L^{i,j+1,k+1} = \\ & l_1 x_L^{i-1,j,k+1/2} + x_L^{i,j,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,j,k+1/2} \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

A chaque pas de temps, pour le prédicteur B.3, il faut donc résoudre $(j_a \times I)$ équations et pour le correcteur B.4, il faut résoudre $(I \times j_a)$ équations.

B.1.1 Remarque préalable pour $r = 0$

Nous allons déterminer les systèmes linéaires pour le prédicteur et pour le correcteur. Mais on peut observer dès à présent qu'en amont, pour $r = 0$, et en raison d'une condition de symétrie axiale (équation 2.44: $\frac{\partial x_A^L}{\partial r}|_0 = 0$), le terme: $\frac{1}{r} \frac{\partial x_A^L}{\partial r}$ est une forme indéterminée qu'il est possible de lever par un développement en série limitée de Mac Laurin [49], lequel montre que :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial x_A^L}{\partial r} \approx \frac{\partial^2 x_A^L}{\partial r^2}$$

L'équation 2.12 s'écrit alors :

$$\frac{\partial x_A^L}{\partial t} \approx -u_z \frac{\partial x_A^L}{\partial z} + D_{AL} \frac{\partial^2 x_A^L}{\partial r^2}$$

B.1.2 Système linéaire pour le prédicteur

L'équation B.3 fournit le terme général du système linéaire. Il reste maintenant à considérer les conditions aux limites du domaine géométrique en :

$(r = 0)$, $(r = R_L)$, $(z = 0)$ et $(z = L_p)$

Pour le plan $(z = 0)$, on remplace dans l'équation B.1 le terme :

$-u_j \frac{x_L^{i+1,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{2\Delta z}$ par le terme suivant: $-u_j \frac{x_L^{i,j,k+1/2} - x_L^{i-1,j,k+1/2}}{\Delta z}$ On obtient donc pour $(i = 1)$, le prédicteur :

$$\begin{aligned} (1 + 2l_1) x_L^{1,j,k+1/2} &= \left(1 - \frac{1}{2j}\right) l_2 x_L^{1,j-1,k} \\ &+ (1 - 2l_2) x_L^{1,j,k} + \left(1 + \frac{1}{2j}\right) l_2 x_L^{1,j+1,k} + 2l_1 E_k \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Comme la symétrie implique que $x_L^{i-1,k} = x_L^{i,1,k}$, on a sous forme condensée :

$$-l_1 x_L^{i-1,0,k+1/2} + x_L^{i,0,k+1/2} + l_1 x_L^{i+1,0,k+1/2} = 2l_2 x_L^{i,1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{i,0,k} \quad (\text{B.7})$$

Enfin, à l'interface amont (soit entre $r = R_L$ ou pour $j = j_a$), les équations 2.48 et 2.51 permettent d'écrire l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^L D_{AL} \frac{x_L^{i,j_a+1,k} - x_L^{i,j_a-1,k}}{2 \Delta r} = -H_u (\rho_A^L x_L^{i,j_a,k} - \rho_A^M x_M^{j_a,k})$$

Cette relation nous permet d'exprimer $x_L^{i,j_a+1,k}$ dans l'équation B.3 et en posant : $l_3 = \frac{H_u \Delta t}{\Delta r}$:

$$-l_1 x_L^{i,j_a,k+1/2} + x_L^{i,j_a,k+1/2} + l_1 x_L^{i+1,j_a,k+1/2} = \quad (\text{B.8})$$

$$2l_2 x_L^{i,j_a-1,k} + (1 - 2l_2 - (1 + \frac{1}{2j})l_3) x_L^{i,j_a,k} + \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} (1 + \frac{1}{2j})l_3 x_M^{j_a,k}$$

Si on reprend l'équation B.7, en ($j = 0$), le second membre $Q(j, k)$ est modifié en :

$$Q(0, k) = \begin{pmatrix} 2l_2 x_L^{1,1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{1,0,k} \\ \vdots \\ 2l_2 x_L^{I,1,k} + (1 - 2l_2) x_L^{I,0,k} \end{pmatrix}$$

Et si on reprend l'équation B.8, en ($j = j_a$), le second membre $Q(j, k)$ est modifié en :

$$Q(j_a, k) = \begin{pmatrix} 2l_2 x_L^{1,j_a-1,k} + (1 - 2l_2 - (1 + \frac{1}{2j_a})l_3) x_L^{1,j_a,k} + \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} (1 + \frac{1}{2j_a})l_3 x_M^{j_a,k} \\ \vdots \\ 2l_2 x_L^{I,j_a-1,k} + (1 - 2l_2 - (1 + \frac{1}{2j_a})l_3) x_L^{I,j_a,k} + \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} (1 + \frac{1}{2j_a})l_3 x_M^{j_a,k} \end{pmatrix}$$

Trouver les $x_L^{i,j,k+1/2}$ revient donc à résoudre le système linéaire précédent.

B.1.3 Système linéaire pour le correcteur

L'équation B.4 fournit le terme général du système linéaire. Comme pour le prédicteur, il faut considérer les conditions aux limites.

En ($r = 0$), la discrétisation pour ($j = 0$) prend alors pour le correcteur la forme suivante :

$$\frac{x_L^{i,0,k+1} - x_L^{i,0,k+1/2}}{\Delta t / 2} = -u_0 \frac{x_L^{i+1,0,k+1} - x_L^{i-1,0,k+1}}{2 \Delta z} + D_{AL} \frac{x_L^{i,-1,k+1/2} - 2x_L^{i,0,k+1/2} + x_L^{i,1,k+1/2}}{\Delta r^2}$$

Soit sous forme condensée :

$$(1 + 2l_2) x_L^{i,0,k+1} - 2l_2 x_L^{i,1,k+1} = l_1 x_L^{i-1,0,k+1/2} + x_L^{i,0,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,0,k+1/2} \quad (\text{B.9})$$

En ($r = R_L$), à partir des équations 2.48 et 2.51, on écrit l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^L D_{AL} \frac{x_L^{i,j_a+1,k+1} - x_L^{i,j_a-1,k+1}}{2 \Delta r} = -H_u (\rho_A^L x_L^{i,j_a,k+1} - \rho_A^M x_M^{j_a,k+1})$$

En ($j = j_a$), on peut donc donner le correcteur sous forme condensée :

$$\begin{aligned} -2l_2 x_L^{i,j_a-1,k+1} + (1 + 2l_2 + (1 + \frac{1}{2j_a})l_3) x_L^{i,j_a,k+1} \\ - (1 + \frac{1}{2j_a}) \frac{\rho_A^M}{\rho_A^L} l_3 l_1 x_M^{j_a,k+1} = l_1 x_L^{i-1,j_a,k+1/2} + x_L^{i,j_a,k+1/2} - l_1 x_L^{i+1,j_a,k+1/2} \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

On remarque dans l'équation B.10 qu'il apparaît le terme $x_M^{j_a,k+1}$ comme une inconnue. Il apparaîtra de même un terme $x_M^{j_b,k+1}$ dans le correcteur aval (équation B.22). Ceci se justifie par le couplage entre les équations 2.12 et 2.18 qu'engendrent les conditions à l'interface amont 2.48 et 2.51. L'obtention du système linéaire pour le correcteur n'est donc pas immédiate et il se trouve qu'on est amené à déterminer simultanément les $x_L^{i,j,k+1}$, $x_M^{j,k+1}$ et $x_V^{i,j,k+1}$.

B.1.4 Solution proposée à ce problème de couplage

Puisqu'il faut déterminer simultanément $x_L^{i,j,k+1}$, $x_M^{j,k+1}$ et $x_V^{i,j,k+1}$, on sera amené à résoudre le système linéaire :

$$C(i, k) X^{i,k+1} = D(i, k)$$

où $X^{i,k+1}$ est le vecteur des inconnues à la date t_{k+1} de dimension $(J + 2)$. Ce vecteur est défini comme suit :

$$X^{i,k+1} = (X_L^{i,k+1}, X_M^{k+1}, X_V^{i,k+1})^T$$

Avec:

$$X_L^{i,k+1} = (x_L^{i,0,k+1}, \dots, x_L^{i,j_a,k+1})^T$$

$$X_M^{k+1} = (x_M^{j_a,k+1}, \dots, x_M^{j_b,k+1})^T$$

$$X_V^{i,k+1} = (x_V^{i,j_b,k+1}, \dots, x_V^{i,J,k+1})^T$$

$D(i, k)$ est le vecteur second membre et $C(i, k)$ de dimension $(J + 2)$, tel que :

$$D(i, k) = (D_1(i, k), D_2(k), D_3(i, k))^T$$

Avec :

$D_1(i, k)$ est engendré par la discrétisation en amont

$D_2(k)$ par la discrétisation dans la membrane

$D_3(i, k)$ par la discrétisation en aval

Enfin, la matrice bloc $C(i, k)$ carrée, tridiagonale, de dimension $(J + 2)$ prend la forme suivante :

$$C(i, k) = \begin{pmatrix} C_1(i, k) & & \\ & c_{mf} & \\ & C_2(k) & \\ & & c_{mv} \\ & & & C_3(i, k) \end{pmatrix}$$

Les c_{pq} traduisent les termes de couplage et :

$C_1(i, k)$ est engendré par la discrétisation en amont

$C_2(k)$ est engendré par la discrétisation dans la membrane

$C_3(i, k)$ est engendré par la discrétisation en aval

B.1.5 Obtention des matrices $C_1(i, k)$ et $D_1(i, k)$

A partir des équations B.4, B.9 et B.10, on forme la matrice $C_1(i, k)$ d'ordre j_a .

$$C_1(i, k) = \begin{pmatrix} 1 + 2l_2 & -2l_2 & \cdots & & \\ -l_2/2 & 1 + 2l_2 & -3l_2/2 & \cdots & \\ \vdots & \vdots & \vdots & & \\ & & & (\frac{1}{2(j_a-1)} - 1)l_2 & 1 + 2l_2 & -(\frac{1}{2(j_a-1)} + 1)l_2 \\ & & & -2l_2 & 1 + 2l_2 + (\frac{1}{2j_a} + 1)l_3 & \end{pmatrix}$$

Et dans l'équation B.10, le coefficient de $x_M^{j_a, k+1}$ apparaît comme le terme de couplage c_{LM} .

$$\text{Soit } c_{LM} = (\frac{1}{2j_a} + 1) \frac{\rho_A^M}{\rho_A} l_3$$

Toujours à partir des équations B.4, B.9 et B.10, on forme le second membre $D_1(i, k)$, de dimension j_a tel que :

$$D_1(i, k) = \begin{pmatrix} l_1 x_L^{i-1, 0, k+1/2} + x_L^{i, 0, k+1/2} - l_1 x_L^{i+1, 0, k+1/2} \\ \vdots \\ l_1 x_L^{i-1, j_a, k+1/2} + x_L^{i, j_a, k+1/2} - l_1 x_L^{i+1, j_a, k+1/2} \end{pmatrix}$$

Il reste à prendre en compte les conditions en $(z = 0)$ et en $(z = L_p)$. Comme pour le prédicteur, en $(z = 0)$, plutôt qu'un schéma aux différences finies centrées pour le terme de convection, on choisit un schéma aux différences à gauche. En $(i = 1)$, le correcteur s'écrit donc :

$$\begin{aligned} & (\frac{1}{2j} - 1)l_2 x_L^{1, j-1, k+1} + (1 + 2l_2) x_L^{1, j, k+1} \\ & - (\frac{1}{2j} + 1)l_2 x_L^{1, j+1, k+1} = (1 - 2l_1) x_L^{1, j, k+1/2} + 2l_1 E_k \end{aligned}$$

En $(i = 1)$, $D_1(i, k)$ prend donc la forme suivante :

$$D_1(1, k) = \begin{pmatrix} (1 - 2l_1) x_L^{1, 0, k+1/2} + 2l_1 E_k \\ \vdots \\ (1 - 2l_1) x_L^{1, j_a, k+1/2} + 2l_1 E_k \end{pmatrix}$$

En $(z = L_p)$, plutôt qu'un schéma aux différences centrées pour le terme

de convection, on choisit un schéma aux différences à droite. En ($i = I$), le correcteur s'écrit alors :

$$\begin{aligned} & \left(\frac{1}{2j} - 1\right)l_2 x_L^{I,j-1,k+1} + (1 + 2l_2) x_L^{I,j,k+1} \\ - & \left(\frac{1}{2j} + 1\right)l_2 x_L^{I,j+1,k+1} = 2l_1 x_L^{I-1,j,k+1/2} + (1 - 2l_1) x_L^{I,j,k+1/2} \end{aligned}$$

Et en ($i = I$), $D_1(i, k)$ prend donc la forme suivante :

$$D_1(I, k) = \begin{pmatrix} 2l_1 x_L^{I-1,0,k+1/2} + (1 - 2l_1) x_L^{I,0,k+1/2} \\ \vdots \\ 2l_1 x_L^{I-1,j_a,k+1/2} + (1 - 2l_1) x_L^{I,j_a,k+1/2} \end{pmatrix}$$

B.2 Equation de diffusion dans la membrane

Dans la membrane, on effectue la discrétisation par un schéma implicite complet [17]. L'équation 2.18 prend alors la forme discrète suivante :

$$\frac{x_M^{j,k+1} - x_M^{j,k}}{\Delta t} = D_{AM} \left(\frac{x_M^{j-1,k+1} - 2x_M^{j,k+1} + x_M^{j+1,k+1}}{\Delta r^2} + \frac{1}{r_j} \frac{x_M^{j+1,k+1} - x_M^{j-1,k+1}}{2\Delta r} \right)$$

En posant $l_4 = \frac{D_{AM}\Delta t}{\Delta r^2}$, cette équation s'écrit sous forme condensée :

$$\left(\frac{1}{2j} - 1\right)l_4 x_M^{j-1,k+1} + (1 + 2l_4) x_M^{j,k+1} + \left(\frac{1}{2j} + 1\right)l_4 x_M^{j+1,k+1} = x_M^{j,k} \quad (\text{B.11})$$

Pour pouvoir écrire le système linéaire, il reste à considérer les conditions aux limites 2.48 et 2.51. Ces équations conduisent à l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^M D_{AM} \frac{x_M^{j_a+1,k+1} - x_M^{j_a-1,k+1}}{2\Delta r} = -H_u (\rho_A^L x_M^{j_a,k+1} - \rho_A^M x_M^{j_a,k+1})$$

Soit sous forme condensée :

$$\begin{aligned} 2\left(\frac{1}{2j_a} - 1\right) \frac{\rho_A^L}{\rho_A^M} l_3 x_L^{i,j_a,k+1} + (1 + 2l_4 - 2\left(\frac{1}{2j_a} - 1\right)l_3) x_M^{j_a,k+1} \\ - 2l_4 x_M^{j_a+1,k+1} = x_M^{j_a,k} \end{aligned} \quad (\text{B.12})$$

Enfin, à l'interface aval, les équations 2.53 et 2.55 permettent d'écrire l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^M D_{AM} \frac{x_M^{j_b+1,k+1} - x_M^{j_b-1,k+1}}{2\Delta r} = -H_d (\rho_A^M x_M^{j_b,k+1} - \rho_A^V x_V^{i,j_b,k+1})$$

En posant $l_5 = \frac{H_d \Delta t}{\Delta r}$, on peut écrire sous forme condensée :

$$\begin{aligned} -2l_4 x_M^{j_b-1,k+1} + (1 + 2l_4 + 2(\frac{1}{2j_b} + 1)l_5) x_M^{j_b,k+1} \\ - 2(\frac{1}{2j_b} + 1) \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} l_5 x_V^{i,j_b,k+1} = x_M^{j_b,k} \end{aligned} \quad (\text{B.13})$$

Les équations B.12 et B.13 font apparaître un couplage tantôt avec x_L tantôt avec x_V .

B.2.1 Obtention des matrices $C_2(k)$ et $D_2(k)$

A partir des équations B.11 à B.13 on forme $C_2(k)$, d'ordre $(j_b - j_a + 1)$:

$$C_2(k) = \begin{pmatrix} 1 + 2l_4 - 2(\frac{1}{2j_a} - 1)l_3 & -2l_4 & \dots & \\ (\frac{1}{2(j_a+1)} - 1)l_4 & 1 + 2l_4 & (\frac{1}{2(j_a+1)} + 1)l_4 & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \\ & (\frac{1}{2(j_b-1)} - 1)l_4 & 1 + 2l_4 & (\frac{1}{2(j_b-1)} + 1)l_4 \\ & & -2l_4 & 1 + 2l_4 + 2(\frac{1}{2j_b} + 1)l_5 \end{pmatrix}$$

Et les termes de couplage c_{ML} et c_{MV} sont obtenus à partir des équations B.12 et B.13 :

$$c_{ML} = +2(\frac{1}{2j_a} - 1) \frac{\rho_A^L}{\rho_A^M} l_3$$

$$c_{MV} = -2(\frac{1}{2j_b} + 1) \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} l_5$$

Toujours à partir des équations B.11, B.12 et B.13, on trouve le vecteur $D_2(k)$ de dimension $(j_b - j_a + 1)$:

$$D_2(k) = \begin{pmatrix} x_M^{j_a,k} \\ \vdots \\ x_M^{j_b,k} \end{pmatrix}$$

B.3 Equation de convection-diffusion en aval

Les équations 2.12 et 2.30 étant semblables, la discrétisation en aval est identique à celle effectuée en amont (méthode des directions alternées). Si on pose $w_j = w_z(j \Delta r)$, l'équation 2.30 se discrétise pour le prédicteur et pour le correcteur comme suit :

Pour le prédicteur

$$\frac{x_V^{i,j,k+1/2} - x_V^{i,j,k}}{\Delta t/2} = -w_j \frac{x_V^{i+1,j,k+1/2} - x_V^{i-1,j,k+1/2}}{2\Delta z} \quad (\text{B.14})$$

$$D_{AV} \left(\frac{x_V^{i,j-1,k} - 2x_V^{i,j,k} + x_V^{i,j+1,k}}{\Delta r^2} + \frac{1}{r_j} \frac{x_V^{i,j+1,k} - x_V^{i,j-1,k}}{2\Delta r} \right)$$

Pour le correcteur

$$\frac{x_V^{i,j,k+1} - x_V^{i,j,k+1/2}}{\Delta t/2} = -w_j \frac{x_V^{i+1,j,k+1/2} - x_V^{i-1,j,k+1/2}}{2\Delta z} \quad (\text{B.15})$$

$$D_{AV} \left(\frac{x_V^{i,j-1,k+1} - 2x_V^{i,j,k+1} + x_V^{i,j+1,k+1}}{\Delta r^2} + \frac{1}{r_j} \frac{x_V^{i,j+1,k+1} - x_V^{i,j-1,k+1}}{2\Delta r} \right)$$

Posant $l_6 = \frac{w_j \Delta t}{4\Delta z}$ et $l_7 = \frac{D_{AV} \Delta t}{2\Delta r^2}$, les équations B.14 et B.15 s'écrivent pour le prédicteur et pour le correcteur sous la forme condensée suivante :

Pour le prédicteur

$$-l_6 x_V^{i-1,j,k+1/2} + x_V^{i,j,k+1/2} + l_6 x_V^{i+1,j,k+1/2} = \quad (\text{B.16})$$

$$\left(1 - \frac{1}{2j}\right) l_7 x_V^{i,j-1,k} + (1 - 2l_7) x_V^{i,j,k} + \left(1 + \frac{1}{2j}\right) l_7 x_V^{i,j+1,k}$$

Pour le correcteur

$$\left(\frac{1}{2j} - 1\right) l_7 x_V^{i,j-1,k+1} + (1 + 2l_7) x_V^{i,j,k+1} - \left(\frac{1}{2j} + 1\right) l_7 x_V^{i,j+1,k+1} \quad (\text{B.17})$$

$$= l_6 x_V^{i-1,j,k+1/2} + x_V^{i,j,k+1/2} - l_6 x_V^{i+1,j,k+1/2}$$

B.3.1 Système linéaire pour le prédicteur

Il reste à compléter le système linéaire par les conditions aux limites en :

$(r = R_M)$, $(r = R_V)$, $(z = 0)$ et $(z = L_p)$

Pour le plan, en $(z = 0)$, on procède comme en amont. Plutôt qu'un schéma aux différences centrées, on choisit pour le terme de convection les différences à

A l'interface aval (soit en $r = R_M$ ou $j = j_a$), les équations 2.53 et 2.55 permettent d'écrire l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^V D_{AV} \frac{x_V^{i,j_b+1,k} - x_V^{i,j_b-1,k}}{2\Delta r} = -H_d (\rho_A^M x_M^{j_b,k} - \rho_A^V x_V^{i,j_b,k})$$

Posant $l_8 = \frac{H_d \Delta t}{\Delta r}$ et combinant l'équation ci-dessus avec l'équation B.16, on a :

$$\begin{aligned} & -l_6 x_V^{i,j_b,k+1/2} + x_V^{i,j_b,k+1/2} + l_6 x_V^{i+1,j_b,k+1/2} = \quad (\text{B.20}) \\ & (1 - \frac{1}{2j_b}) \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_8 x_M^{j_b,k} + (1 - 2l_7 - (1 - \frac{1}{2j_b})l_8) x_V^{i,j_b,k} + 2l_7 x_V^{i,j_b+1,k} \end{aligned}$$

En ($r = R_V$), la symétrie axiale permet d'écrire le prédicteur en ($j = J$) :

$$\begin{aligned} & -l_6 x_V^{i-1,J,k+1/2} + x_V^{i,J,k+1/2} + l_6 x_V^{i+1,J,k+1/2} = \quad (\text{B.21}) \\ & 2l_7 x_V^{i,J-1,k} + (1 - 2l_7) x_V^{i,J,k} \end{aligned}$$

A partir de l'équation B.20, on a le vecteur second membre $S(j, k)$ en ($j = j_b$) :

$$S(j_b, k) = \begin{pmatrix} \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} (1 - \frac{1}{2j_b}) l_8 x_M^{j_b,k} + (1 - 2l_7 - (1 - \frac{1}{2j_b})l_8) x_V^{1,j_b,k} + 2l_7 x_V^{1,j_b+1,k} \\ \vdots \\ \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} (1 - \frac{1}{2j_b}) l_8 x_M^{j_b,k} + (1 - 2l_7 - (1 - \frac{1}{2j_b})l_8) x_V^{I,j_b,k} + 2l_7 x_V^{I,j_b+1,k} \end{pmatrix}$$

Enfin, l'équation B.21 permet d'obtenir le vecteur second membre en ($j = J$) :

$$S(J, k) = \begin{pmatrix} 2l_7 x_V^{1,J-1,k} + (1 - 2l_7) x_V^{1,J,k} \\ \vdots \\ 2l_7 x_V^{I,J-1,k} + (1 - 2l_7) x_V^{I,J,k} \end{pmatrix}$$

B.3.2 Système linéaire pour le correcteur

Toujours en considérant les conditions aux limites, on complète le système linéaire fourni par l'équation B.17. En ($r = R_M$), à partir des équations 2.53 et 2.55, on écrit l'équation discrète suivante :

$$\rho_A^V D_{AV} \frac{x_V^{i,j_b+1,k+1} - x_V^{i,j_b-1,k+1}}{2\Delta r} = -H_d (\rho_A^M x_M^{j_b,k+1} - \rho_A^V x_V^{i,j_b,k+1})$$

Pour terminer, il reste à prendre en compte les conditions en $(z = 0)$ et en $(z = L_p)$. Comme pour le prédicteur, en $(z = 0)$, on choisit un schéma aux différences à gauche. En $(i = 1)$, le correcteur s'écrit donc :

$$\left(\frac{1}{2j} - 1\right)l_7 x_v^{1,j-1,k+1} + (1 + 2l_7) x_v^{1,j,k+1} - \left(\frac{1}{2j} + 1\right)l_7 x_v^{1,j+1,k+1} = (1 - 2l_6) x_v^{1,j,k+1/2}$$

En $(i = 1)$, le vecteur second membre prend donc la forme suivante :

$$D_3(1, k) = \begin{pmatrix} (1 - 2l_6) x_v^{1,j_b,k+1/2} \\ \vdots \\ (1 - 2l_6) x_v^{1,j,k+1/2} \end{pmatrix}$$

En $(z = L_p)$, on choisit un schéma aux différences à droite. En $(i = I)$, le correcteur s'écrit donc :

$$\begin{aligned} \left(\frac{1}{2j} - 1\right)l_7 x_v^{I,j-1,k+1} + (1 + 2l_7) x_v^{I,j,k+1} - \left(\frac{1}{2j} + 1\right)l_7 x_v^{I,j+1,k+1} = \\ 2l_6 x_v^{I-1,j,k+1/2} + (1 - 2l_6) x_v^{I,j,k+1/2} \end{aligned}$$

En $(i = I)$, $D_3(i, k)$ s'écrit donc :

$$D_3(I, k) = \begin{pmatrix} 2l_6 x_v^{I-1,j_a,k+1/2} + (1 - 2l_6) x_v^{I,j_a,k+1/2} \\ \vdots \\ 2l_6 x_v^{I-1,j_b,k+1/2} + (1 - 2l_6) x_v^{I,j_b,k+1/2} \end{pmatrix}$$

Annexe C

Discrétisation pour les modèles simplifiés

Les équations 2.56 et 2.58 étant identiques à un coefficient près, on ne distinguera pas, pour les modèles simplifiés, les discrétisations dans les deux géométries possibles.

C.1 Discrétisation de l'équation de convection en aval

Les équations 2.56 ou 2.58 sont discrétisées par un schéma de Wendroff [17]. On a :

$$\frac{x_V^{i-1/2,k+1} - x_V^{i-1/2,k} + x_V^{i+1/2,k+1} - x_V^{i+1/2,k}}{\Delta t} = -w_z \left(\frac{x_V^{i+1/2,k+1} - x_V^{i-1/2,k+1} + x_V^{i+1/2,k} - x_V^{i-1/2,k}}{\Delta z} \right) + l_{10} \left(2 \frac{\rho_M}{\rho_A} (x_M^{J,k} + x_M^{J,k+1}) - x_V^{i-1/2,k} - x_V^{i+1/2,k} - x_V^{i-1/2,k+1} - x_V^{i+1/2,k+1} \right)$$

En posant :

$$l_9 = \frac{\Delta t}{\Delta z} w_z$$

$$l_{10} = \frac{H_d \Delta t}{Y_V - Y_M} \quad \text{pour la géométrie plane}$$

$$l'_{10} = \frac{R_M H_d \Delta t}{(R_V - R_M)^2} \quad \text{pour la géométrie cylindrique}$$

On peut écrire sous forme condensée :

$$(1 + l_9 + l_{10}) x_V^{i+1/2, k+1} - 2 \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_{10} x_M^{j_a, k+1} = (1 + l_9 - l_{10}) x_V^{i-1/2, k} \quad (C.1)$$

$$+ (1 - l_9 - l_{10}) x_V^{i+1/2, k} - (1 - l_9 + l_{10}) x_V^{i-1/2, k+1} + 2 \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_{10} x_M^{j_b, k}$$

Dans le plan de sortie ($z = L_p$) (ou ($z = L_c$) pour le cylindre), on préfère un schéma aux différences à gauche et dans ce cas, on a :

$$-2 \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_{10} x_M^{j, k+1} + (1 + 2l_9 + l_{10}) x_V^{I, k+1} - (1 + 2l_9 - l_{10}) x_V^{I-1/2, k} = \quad (C.2)$$

$$(1 - 2l_9 - l_{10}) x_V^{I, k} - (1 - 2l_9 + l_{10}) x_V^{I-1/2, k+1} + 2 \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_{10} x_M^{j, k}$$

Enfin pour le plan d'entrée ($z = 0$), la condition $x_A^V(z = 0, t) = 0$ permet d'écrire :

$$x_V^{1/2, k+1} = \frac{1 - l_9 + l_{10}}{1 + l_9 + l_{10}} x_V^{1/2, k} \quad (C.3)$$

C.1.1 Obtention des matrices $C_3(i, k)$ et $D_3(i, k)$

A partir de l'équation C.1, on forme le vecteur ligne $C_3(i, k)$:

$$C_3(i, k) = (0 \cdots 0 \quad 1 + l_9 + l_{10})$$

Le terme de couplage est obtenu à partir de l'équation C.1, $c_{VM} = -2 \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_{10}$

Toujours à partir de l'équation C.1, on a :

$$D_3(i, k) = ((1 + l_9 + l_{10}) x_V^{i-1/2, k} + (1 - l_9 - l_{10}) x_V^{i+1/2, k}$$

$$- (1 - l_9 - l_{10}) x_V^{i-1/2, k+1} + 2 \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_{10} x_M^{I, k})$$

A partir des équations C.2 et C.3, on a :

$$D_3(1, k) = \left(\frac{1 - l_9 + l_{10}}{1 + l_9 + l_{10}} x_V^{1/2, k} \right)$$

et :

$$D_3(I, k) = ((1 + 2l_9 - l_{10}) x_V^{I-1/2, k} + (1 - 2l_9 - l_{10}) x_V^{I, k}$$

$$- (1 - 2l_9 + l_{10}) x_V^{I-1/2, k+1/2} + 2 \frac{\rho_A^M}{\rho_A^V} l_{10} x_M^{I, k})$$

C.2 Discrétisation de la condition à l'interface aval

Il reste maintenant à considérer la condition limite de l'équation 2.57 (ou l'équation 2.59 dans le cas cylindrique). Celle-ci est inchangée en regard du modèle non simplifié. Simplement, le choix d'un schéma aux différences centrées dans la direction (Oz) nous fait préciser ici cette discrétisation. On écrit :

$$\frac{x_M^{J+1,k+1} - x_M^{J-1,k+1}}{2\Delta y} = -\frac{H_d}{D_{AM}} \left(x_M^{J,k+1} - \frac{\rho_A^V}{2\rho_A^M} (x_V^{i+1/2,k+1} - x_V^{i-1/2,k+1}) \right)$$

Soit sous forme condensée :

$$\begin{aligned} -2l_4 x_M^{J-1,k+1} + (1 + 2l_4 + 2l_5) x_M^{J,k+1} - \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} l_5 x_V^{i+1/2,k+1} \\ = x_M^{J,k} + \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} l_5 x_V^{i-1/2,k+1} \end{aligned} \quad (C.4)$$

On a posé :

$$\text{Pour une géométrie plane : } l_4 = \frac{D_{AM}\Delta t}{\Delta y^2} \quad \text{et} \quad l_5 = \frac{H_d \Delta t}{\Delta y}$$

$$\text{Pour une géométrie cylindrique : } l'_4 = \frac{D_{AM}\Delta t}{\Delta r^2} \quad \text{et} \quad l'_5 = \left(1 + \frac{1}{2j_b}\right) \frac{H_d \Delta t}{\Delta r}$$

C.2.1 Obtention des matrices $C_2(k)$ et $D_2(k)$

La matrice $C_2(k)$ est inchangée, simplement le terme de couplage s'écrit :

$$c_{MV} = -\frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} l_5$$

et le second membre $D_2(k)$ est modifié et s'écrit comme suit :

$$D_2(I, k) = \begin{pmatrix} x_M^{j_a, k} \\ \vdots \\ x_M^{J, k} + \frac{\rho_A^V}{\rho_A^M} l_5 x_V^{i-1/2, k+1} \end{pmatrix}$$

où :

$$A' = \begin{pmatrix} 1 & c'_1 & & & \\ & 1 & c'_2 & & \\ & \vdots & \vdots & \vdots & \\ & & & 1 & c'_{I-2} \\ & & & & 1 & c'_{I-1} \\ & & & & & & 1 \end{pmatrix}$$

et :

$$D' = (d'_1, \dots, d'_I)^T$$

où les c'_i et les d'_i sont donnés par les relations de récurrence suivantes :

$$c'_i = \frac{c_i}{b_i - a_{i-1} c'_{i-1}}$$

$$d'_i = \frac{d_i - a_{i-1} d'_{i-1}}{b_i - a_{i-1} c'_{i-1}}$$

avec $c'_1 = \frac{c_1}{b_1}$ et $d'_1 = \frac{d_1}{b_1}$

Comme $x_I = d'_I$, on obtient par substitution :

$$x_i = d'_i - x_{i+1} c'_i$$

Cet algorithme est particulièrement économique [17] mais, pour prévenir un mauvais conditionnement de A' , il est nécessaire de vérifier que $|b_i| > |a_i| + |c_i|$.

Annexe E

Exemple de problème bien posé

Il est possible de démontrer rigoureusement qu'un système d'équations aux dérivées partielles admet une solution. Les méthodes énergétiques permettent une telle démonstration [18]. On traite le cas d'une géométrie plane où on conserve la forme de la condition limite à l'interface amont (équation 2.50) mais, sans perte de généralité, la condition aval (équation 2.54) est ramené à une condition de type Neumann (figure E.1). Démontrer par majoration d'énergie

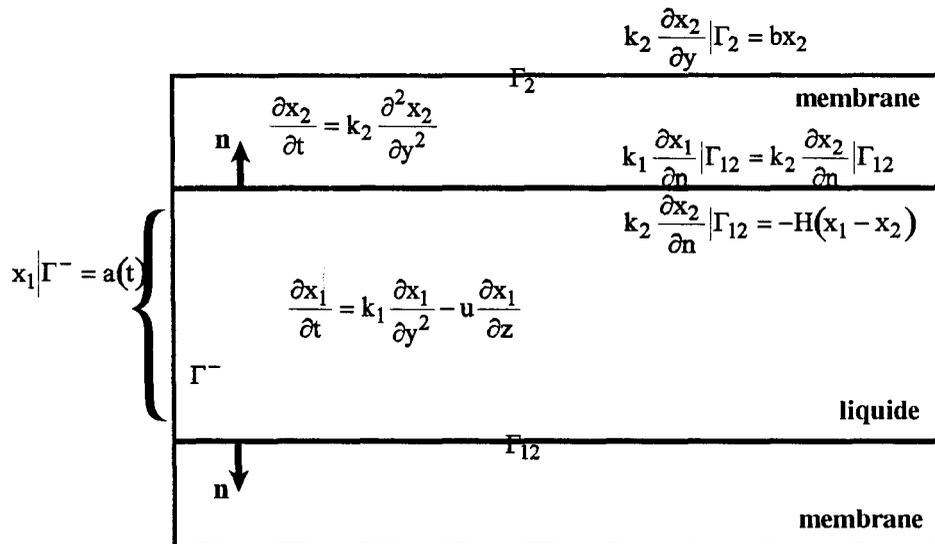


Figure E.1: Exemple traité pour le problème bien posé.

que le problème est bien posé, revient à introduire les fonctions test ϕ_1 et ϕ_2

qui, quand elles sont égales aux inconnues x_1 et x_2 doivent conduire à une forme définie positive.

Si par convention, on écrit que: $(f, g) = \int_{\Omega_i} f \times g$.

A partir de l'équation de convection, on écrit pour x_1

$$\left(\frac{\partial x_1}{\partial t}, \phi_1\right) - k_1 \left(\frac{\partial^2 x_1}{\partial y^2}, \phi_1\right) + \left(u \frac{\partial x_1}{\partial z}, \phi_1\right) = 0 \quad (\text{E.1})$$

soit en intégrant par parties:

$$\left(\frac{\partial x_1}{\partial t}, \phi_1\right) + \left(k_1 \frac{\partial x_1}{\partial y}, \frac{\partial \phi_1}{\partial y}\right) - k_1 \int_{\Gamma_{12}} \frac{\partial x_1}{\partial n} \phi_1 + \left(u \frac{\partial x_1}{\partial z}, \phi_1\right) = 0 \quad (\text{E.2})$$

et pour x_2 ,

$$\left(\frac{\partial x_2}{\partial t}, \phi_2\right) + k_2 \left(\frac{\partial x_2}{\partial y}, \frac{\partial \phi_2}{\partial y}\right) - k_2 \int_{\Gamma_2} \frac{\partial x_2}{\partial n} \phi_2 + k_2 \int_{\Gamma_{12}} \frac{\partial x_2}{\partial n} \phi_2 = 0 \quad (\text{E.3})$$

Effectuant la somme des équations E.2 et E.3, on obtient:

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\partial x_1}{\partial t}, \phi_1\right) + \left(\frac{\partial x_2}{\partial t}, \phi_2\right) + \left(k_1 \frac{\partial x_1}{\partial y}, \frac{\partial \phi_1}{\partial y}\right) + \left(k_2 \frac{\partial x_2}{\partial y}, \frac{\partial \phi_2}{\partial y}\right) \\ & + \int_{\Gamma_{12}} \left(k_2 \frac{\partial x_2}{\partial n} \phi_2 - k_1 \frac{\partial x_1}{\partial n} \phi_1\right) + \int_{\Gamma_2} k_2 \frac{\partial x_2}{\partial n} \phi_2 + \left(u \frac{\partial x_1}{\partial z}, \phi_1\right) = 0 \end{aligned} \quad (\text{E.4})$$

Posant dans l'équation E.4,

$$I_1 = \int_{\Gamma_{12}} \left(k_2 \frac{\partial x_2}{\partial n} \phi_2 - k_1 \frac{\partial x_1}{\partial n} \phi_1\right)$$

comme sur Γ_{12} , on a $k_1 \frac{\partial x_1}{\partial n} = k_2 \frac{\partial x_2}{\partial n}$ et $k_2 \frac{\partial x_2}{\partial n} = -H(x_1 - x_2)$, I_1 devient:

$$I_1 = \int_{\Gamma_{12}} H(x_2 - x_1)(\phi_2 - \phi_1)$$

Pour que la forme soit définie positive, il faut donc que H soit positif.

Ensuite, posant dans l'équation E.4,

$$I_2 = \int_{\Gamma_2} \frac{\partial x_2}{\partial n} \phi_2 = \int_{\Gamma_2} b x_2 \phi_2$$

Pour que la forme soit définie positive, il faut que b soit positif. Enfin, posant dans l'équation E.4,

$$I_3 = \left(u \frac{\partial x_1}{\partial z}, \phi_1\right)$$

Soit aussi,

$$\begin{aligned} I_3 &= - \int \frac{\partial}{\partial z}(u, \phi_1)x_1 + \int_{\Gamma_+} ux_1\phi_1 - \int_{\Gamma_-} ux_1\phi_1 \\ &= - \int ux_1 \frac{\partial \phi_1}{\partial z} + \int_{\Gamma_+} ux_1\phi_1 - \int_{\Gamma_-} ua(t)\phi_1 \end{aligned} \quad (\text{E.5})$$

Si $\phi_1 = x_1$, on a: $I_3 = -I_3 + \int_{\Gamma_+} ux_1 - \int_{\Gamma_-} ua(t)^2$

Il faut se ramener alors à un problème homogène sur la condition limite sur Γ_- .

Ceci est réalisé en posant:

$$x_1^0 = a(t), \quad x_1 = x_1' + c_1^0 \text{ et } x_1' = 0.$$

L'équation de convection-diffusion s'écrit alors:

$$\frac{\partial x_1'}{\partial t} = k_1 \frac{\partial^2 x_1'}{\partial y^2} - u \frac{\partial x_1'}{\partial z} - \frac{\partial a(t)}{\partial t} \quad (\text{E.6})$$

Finalement, on écrit la forme suivante:

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\partial x_1'}{\partial t}, \phi_1 \right) + \left(\frac{\partial x_2}{\partial t}, \phi_2 \right) + \left(k_1 \frac{\partial x_1'}{\partial y}, \frac{\partial \phi_1}{\partial y} \right) + \left(k_2 \frac{\partial x_2}{\partial y}, \frac{\partial \phi_2}{\partial y} \right) \\ & + \int_{\Gamma_{12}} H(x_2 - x_1)(\phi_2 - \phi_1) + \int_{\Gamma_2} bx_2\phi_2 + \left(u \frac{\partial x_1'}{\partial z}, \phi_1 \right) = - \int \frac{\partial x_1^0}{\partial t} \phi_1 \end{aligned} \quad (\text{E.7})$$

Soit maintenant,

$$H_1 = \{ \phi_1 \in L^2(\Omega_1), u \frac{\partial \phi_1}{\partial z} \in L^2(\Omega_1), \frac{\partial \phi_1}{\partial y} \in L^2(\Omega_1), \phi_1|_{\Gamma_-} = 0 \}$$

$$(\phi_1, \psi_1)_{H_1} = \int_{\Omega_1} \phi_1 \psi_1 + \int_{\Omega_1} u^2 \frac{\partial \phi_1}{\partial z} \frac{\partial \psi_1}{\partial z} + \int_{\Omega_1} \frac{\partial \phi_1}{\partial y} \frac{\partial \psi_1}{\partial y}$$

Théorème 1 H_1 muni du produit interne $(\cdot, \cdot)_{H_1}$ est un espace de Hilbert et $\phi_1|_{\Gamma_-} = 0$ a un sens dans $L^2(\Gamma_-)$, $\phi_1|_{\Gamma_{12}} = 0$ a un sens dans $L^2(\Gamma_{12})$.

Soit maintenant,

$$H_2 = \{ \phi_2 \in L^2(\Omega_2), \frac{\partial \phi_2}{\partial y} \in L^2(\Omega_2) \}$$

$$(\phi_2, \psi_2)_{H_2} = \int_{\Omega_2} \phi_2 \psi_2 + \int_{\Omega_2} \frac{\partial \phi_2}{\partial y} \frac{\partial \psi_2}{\partial y}$$

Théorème 2 H_2 muni du produit interne $(\cdot, \cdot)_{H_2}$ est un espace de Hilbert et $\phi_2|_{\Gamma_2}$ a un sens dans $L^2(\Gamma_2)$, $\phi_2|_{\Gamma_{12}}$ a un sens dans $L^2(\Gamma_{12})$.

Definition 1

$$a : (H_1 \times H_2) \times (H_1 \times H_2) \longrightarrow \mathbb{R}$$

$$((\phi_1, \phi_2), (\psi_1, \psi_2)) \longmapsto a((\phi_1, \phi_2), (\psi_1, \psi_2))$$

et

$$a((\phi_1, \phi_2), (\psi_1, \psi_2)) = \int_{\Omega_1} K_1 \frac{\partial \phi_1}{\partial y} \frac{\partial \psi_1}{\partial y} + \int_{\Omega_2} K_2 \frac{\partial \phi_2}{\partial y} \frac{\partial \psi_2}{\partial y}$$

$$+ \int_{\Gamma_{12}} H(\phi_2 - \phi_1)(\psi_2 - \psi_1) + \int_{\Gamma_2} b \phi_2 \psi_2 + \int_{\Omega_2} u \psi_1 \frac{\partial \phi_1}{\partial z}$$

Proposition 1 *a est bilinéaire, a est continue sur $(H_1 \times H_2) \times (H_1 \times H_2)$ et si C est une constante, on peut montrer que:*

$$a((\phi_1, \phi_2), (\psi_1, \psi_2)) \leq C |\psi_1, \psi_2|_{H_1 \times H_2} |\phi_1, \phi_2|_{H_1 \times H_2}$$

Proposition 2 $a((\phi_1, \phi_2), (\psi_1, \psi_2)) \geq C |\phi_1, \phi_2|_{H_1 \times H_2}^2$

Problème 1 *Trouver $x'_1, x_2 \in H_1 \times H_2$ tel que*

$$(P) \quad \left(\frac{\partial x'_1}{\partial t}, \psi_1 \right) + \left(\frac{\partial x_2}{\partial t}, \psi_2 \right) + a((x'_1, x_2), (\psi_1, \psi_2)) = - \int_{\Omega} \frac{\partial x_1^0}{\partial t} \psi_1$$

$$\forall \psi_1 \in H^1, \forall \psi_2 \in H^2$$

Théorème 3 (Lions) *(P) a une solution unique stable pour les normes $H_1 \times H_2$ grâce aux propositions (1) et (2).*

Annexe F

Outils informatiques utilisés

	Désignation	Version	Commentaires
Hardware	Apple Macintosh	Performa 5300	Micro-ordinateur
	Station Sun SPARC	20	Station de travail
Software	CC	1B	Compilateur C (SunOS/BSD compatible)
	LaTeX	2 _e	Formateur de texte pour Unix
	Euro-OzTeX	2.3	Formateur de texte pour MAC
	BibTeX	1.06 f	Bibliographie
	Alpha	6.12	Editeur (MAC)
	Emacs		Editeur (Unix)
	Excalibur	2.2.2	Correcteur orthographique
	ClarisWorks	4.0F v4	Dessins et graphiques
	PlotMTV	1.4.0	Courbes 2D et 3D

Tableau F.1: Outils informatiques utilisés

Bibliographie

- [1] HT. Banks et K. Kunisch. *Estimation techniques for distributed parameter systems*. Systems and control: foundations and applications. Birkhäuser, 1991.
- [2] D. Beaumelle et M. Marin. Effect of transfer in the vapour phase on the extraction by pervaporation through organophilic membranes: experimental analysis on model solutions and theoretical extrapolation. In *Chemical Engineering and Processing*, volume 33, pages 449–458, 1994.
- [3] JGA. Bitter. *Transport mechanisms in membrane separation processes*. Plenum Press. New-York, 1991.
- [4] E. Bode, M. Busse, et K. Ruthenderg. Considerations on interface resistances in the process of permeation of sence membranes. In *Journal of Membrane Science*, volume 77, pages 69–84, 1993.
- [5] JP. Brun. *Procédés de séparation par membranes*. Masson, 1989.
- [6] JP. Brun, C. Larchet, R. Melet, et G. Bulvestre. Modelling of the pervaporation of binary mixtures through moderately swelling, non-reacting membranes. In *Journal of Membrane Science*, volume 23, pages 257–283, 1985.
- [7] A. Cheruy. Méthodologie de la modélisation illustrée par une analyse critique de plusieurs modèles relatifs à un procédé de production d'antibiotique. In *Bio-Sciences*, volume 4, pages 93–97, 1985.

- [8] M. Clifton. *Polarisation de concentration dans divers procédés à membrane*. Thèse, (d'état), Toulouse, 1982.
- [9] P. Côté et C. Lipski. Mass transfer limitations in pervaporation for water and wastewater treatment. In *Proc. of 3th International Conference on Pervaporation Processes in the Chemical Industry*, pages 449–462, Bakish Material Corp., Englewood, 1988.
- [10] J. Crank. *The mathematics of diffusion*. Clarendon press Oxford, second edition, 1975.
- [11] JS. Darrozes et C. Francois. *Mécanique des fluides incompressibles*. ENSTA, 1994.
- [12] R. Dautray et JL. Lions. *Analyse mathématique et calcul numérique pour les sciences et les techniques*. Masson, 1988.
- [13] P. de Larminat. *Automatique, commande des systèmes linéaires*. Hermès, collection automatique, 1993.
- [14] D. Euvrard. *Résolution numérique des équations aux dérivées partielles*. Masson, 1987.
- [15] E. Favre. *Modélisation de l'équilibre de sorption et du transfert de matière dans des membranes à base de PDMS*. Thèse, INPL, Nancy, 1994.
- [16] X. Feng et YM. Huang. Concentration polarization in pervaporation separation processes. In *Journal of Membrane Science*, volume 92, pages 201–208, 1994.
- [17] CAJ. Fletcher. *Computational techniques for fluid dynamics 1*. Springer-Verlag, second edition, 1988.
- [18] JL. Guermond. personnellement.
- [19] C. Guyard. génie des procédés: un bilan globalement positif. In *La Recherche*, volume 25, pages 88–89, janvier 1994.

- [20] E. Guyon, JP. Hulin, et L. Petit. *Hydrodynamique physique*. Savoirs Actuels, Inter Editions/Editions du CNRS, 1991.
- [21] J. Hadamard. *La théorie des équations aux dérivées partielles*. Editions Scientifiques, 1964.
- [22] P. Hus, A. Nakrachi, et L. Belkoura. A simulation model for a separation process in a biotechnological production system. In *8th European Simulation Symposium conference*, page (preprint), Genoa, Italy, oct. 1996.
- [23] HOE. Karlsson et G. Tragardh. Pervaporation of dilute organic-water mixtures, a literature review on modelling studies and applications to aroma compound recovery. In *Journal of Membrane Science*, volume 76, pages 121–146, 1993.
- [24] JTG. Keurentes, LJM. Linders, WA. Beverloo, et K. Van'Riet. Membrane cascades for the separation of binary mixtures. In *Chemical Engineering Science*, volume 47 de 7, pages 1561–1568, 1992.
- [25] T. Lamer. *Extraction de composé d'arômes par pervaporation*. Thèse, ENSBANA, Dijon, 1993.
- [26] T. Lamer, I. Souchon, et A. Voilley. *Extraction de substances aromatisantes par pervaporation*. Thèse, 4ème Congrès Français de Génie des Procédés, Grenoble, 1993.
- [27] A. Le Pourhiet. *Résolution numérique des équations aux dérivées partielles: une première approche*. CEPADUES-Editions, 1988.
- [28] JL. Lions. *Mathematics applied to physics*. Springer Verlag, roubine edition, 1970.
- [29] A. Maurel. Techniques séparatives à membranes. considérations théoriques. In *Techniques de l'Ingénieur*, volume J2790, pages 2–24, 1995.

- [30] P. Meares. The sorption and diffusion of vapours in polymers. In *Proc. of 3rd International Conference on Pervaporation Processes in the Chemical Industry*, pages 12–20, Bakish Material Corp., Englewood, 1988.
- [31] AS. Michaels. Effectsof feed-side solute polarization on pervaporative stripping of volatile organic solutes from dilute aqueous solution: a generalized analytical treatment. In *Journal of Membrane Science*, volume 101, pages 117–126, 1995.
- [32] A. Mojtabi et JP. Caltagirone. Convection entre deux cylindres coaxiaux en régime laminaire permanent. In *International Journal of Heat and Mass Transfer*, volume 21, pages 261–268, 1987.
- [33] JP. Moulin, D. Pareau, H. Rakib, et M. Stambouli. Cinétique du transport de matière entre deux phases. In *Techniques de l'Ingénieur*, volume J1075, pages 1–20, 1995.
- [34] J. Néel. Une nouvelle technique de fractionnement par membrane: la pervaporation. In *L'actualité chimique*, pages 135–144, 1988.
- [35] J. Néel et P. Aptel. La pervaporation, première partie: principe de la technique. In *Entropie*, volume 104, pages 15–26, 1982.
- [36] J. Néel, R. Clément, et QT. Nguyen. La pervaporation, troisième partie: déshydratation d'azéotropes hydro-organiques au contact d'une membrane de cuprophane. In *Entropie*, volume 115, pages 32–44, 1984.
- [37] J. Néel et R. Francois. La pervaporation: une nouvelle technique de fractionnement des mélanges physiques, aspects physico-chimiques du procédé. In *Journal de chimie physique*, volume 85, pages 293–308, 1988.
- [38] J. Néel, QT. Nguyen, L.E. Le Blanc, et R. Clément. La pervaporation, deuxième partie: fractionnement en continu d'un mélange liquide binaire. In *Entropie*, volume 104, pages 27–40, 1982.

- [39] QT. Nguyen et K. Nobe. Extraction of organic contaminants in aqueous solutions by pervaporation. In *Journal of Membrane Science*, volume 30, pages 11–22, 1987.
- [40] JP. Padet. *Fluides en écoulement, méthodes et modèles*. Masson, 1991.
- [41] B. Raghunath et ST. Hwang. General treatment of liquid-phase boundary layer resistance in the pervaporation of dilute aqueous organics through tubular membrane. In *Journal of Membrane Science*, volume 75, pages 29–46, 1992.
- [42] M. Renardy et R.C Rogers. *An introduction to partial differential equations*. Texts in Applied Mathematics 13, Springer Verlag, 1993.
- [43] J. Richalet. *Pratique de l'identification*. Hermès, Traité des nouvelles technologies, 1991.
- [44] RD. Richtmyer et KW. Morton. *Difference methods for initial value problems*. Interscience Publishers, 1967.
- [45] G. Rommel. Gaz à très basse pression. technique du vide. In *Techniques de l'Ingénieur*, volume B4020, pages 1–11, 1995.
- [46] P. Schaetzel, E. Favre, L. Perrin, R. Gref, et QT. Nguyen. Simple mass transfer model based on stefan-maxwell equation for pervaporation. In *Proc. of International Congress on Membranes and Membranes Processes*, volume 5, page 34, Heidelberg, 1993.
- [47] P. Schaetzel, R. Gref, et QT. Nguyen. Modèle simple de transfert de matière à travers les membranes denses. In *In Récents Progrès en Génie des Procédés: Procédés de Séparation*, volume 5, pages 49–54. Lavoisier Technique et Documentation, 1991.
- [48] Y. Shabtaï et S. Mandel. Control of ethanol production and monitoring of membrane performance by mass-spectrometric gas analysis in the coupled

- fermentation-pervaporation of whey permeate. In *Applied Microbiology and Biotechnology*, volume 40, pages 470–476, 1993.
- [49] GD. Smith. *Numerical Solution of partial differential equations: finite difference methods*. Oxford applied mathematics and computing science series, 1987.
- [50] A. Voilley, B. Schmidt, D. Simatos, et S. Baudron. Extraction of aroma compounds by the pervaporation technique. In *Proc. of 4th International Conference on Pervaporation Processes in the Chemical Industry*, pages 429–438, Englewood, Bakish R. Ed., 1988.
- [51] E. Walter et L. Pronzato. *Identification de modèles paramétriques à partir de données expérimentales*. Masson, collection MASC, 1994.
- [52] JG. Wijmans, AL. Athayde, R. Daniels, JH. Ly, HD. Kamaruddin, et I. Pinnau. The role of boundary layers in the removal of volatile organic compounds from water by pervaporation. In *Journal of Membrane Science*, volume 109, pages 135–146, 1996.

Liste des figures

1.1	Techniques de séparation membranaire: microporeuse (a) transporteur spécifique (b) membrane dense (c)	11
1.2	Représentation schématique d'un module de pervaporation . . .	12
1.3	Technique de pervaporation sous vide	13
1.4	Technique de pervaporation sous balayage gazeux	13
1.5	Principe de séparation dans un module plan	14
1.6	Module plan spiralé (a). Enroulement en spirale (b)	14
1.7	Principe de séparation dans un module tubulaire	15
1.8	Analogie exprimant la résistance au transfert	18
1.9	Transfert de matière en pervaporation d'une espèce en solution .	18
1.10	Profil de concentration en régime stationnaire	22
1.11	Profil de concentration avec couche limite en régime stationnaire	26
2.1	Principe d'une extraction par pervaporation	29
2.2	Représentation schématique d'un module plan	33
2.3	Représentation schématique d'un module cylindrique	35
2.4	Transfert dans la membrane, cas plan	39
2.5	Transfert dans la membrane, cas cylindrique	40
2.6	Transfert de masse en aval, cas plan	43
2.7	Transfert de masse en aval, cas cylindrique	45
2.8	Module plan simplifié	53
2.9	Module cylindrique simplifié	55
2.10	modèle dans le cas plan	60
2.11	modèle dans le cas plan avec simplification	61

2.12	modèle dans le cas cylindrique	62
2.13	modèle dans le cas cylindrique avec simplification	63
3.1	Familles des méthodes de résolution numérique	65
3.2	Discrétisation (plan) des fonctions x_L, x_M, x_V	67
3.3	Discrétisation (cylindre) des fonctions x_L, x_M, x_V	69
3.4	Discrétisation (modèles simplifiés) des fonctions x_L, x_M, x_V	74
4.1	profils des vitesses en amont	79
4.2	profil de vitesse en aval	79
4.3	distribution de matière en amont	81
4.4	distribution de matière dans la membrane	81
4.5	distribution de matière en aval	82
4.6	évolution de x_A^M et x_A^L en $y = Y_L$	83
4.7	évolution de x_A^M et x_A^V en $y = Y_M$	83
4.8	valeur moyenne $\overline{x_A^L(t)}$ (rétentat)	85
4.9	valeur moyenne $\overline{x_A^V(t)}$ (perméat)	85
4.10	évolution du profil dans le module	88
4.11	comparaison des modèles à l'interface aval	89
4.12	cas d'une couche limite en aval	89
4.13	effet d'un accroissement de u_z en amont	91
4.14	effet d'un accroissement de u_z en aval	92
4.15	effet d'un accroissement de u_z sur la couche limite	92
4.16	effet d'une diminution de H_u à l'interface amont	94
4.17	effet d'une diminution de H_u à l'interface aval	94
4.18	effet d'une diminution de H_d à l'interface amont	96
4.19	effet d'une diminution de H_d à l'interface aval	96
4.20	profils de vitesse en amont (cas tubulaire)	98
4.21	profil de vitesse en aval (cas tubulaire)	99
4.22	distribution de matière en amont (cas tubulaire)	100
4.23	distribution de matière dans la membrane (cas tubulaire)	101
4.24	distribution de matière en aval (cas tubulaire)	101

4.25	évolution de x_A^M et x_A^L en $r = R_L$ (cas tubulaire)	102
4.26	évolution de x_A^M et x_A^V en $r = R_M$ (cas tubulaire)	103
4.27	évolution de $\overline{x_A^L(t)}$ (cas tubulaire)	104
4.28	évolution de $\overline{x_A^V(t)}$ (cas tubulaire)	104
4.29	évolution du profil dans le module (cas tubulaire)	106
4.30	comparaison des modèles à l'interface aval (cas tubulaire)	106
4.31	distribution amont en réponse à une séquence temporelle	108
4.32	distribution dans la membrane en réponse à une séquence temporelle	108
4.33	distribution aval en réponse à une séquence temporelle	109
4.34	réponse à une séquence temporelle à l'interface amont	109
4.35	réponse à une séquence temporelle à l'interface aval	110
E.1	Exemple traité pour le problème bien posé.	149

Liste des tableaux

4.1	Coefficients de diffusion et densités molaires	77
4.2	Dimensions du module spiralé	78
4.3	Dimensions du module tubulaire	97
F.1	Outils informatiques utilisés	153

