

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

Thèse N° 8682

Présentée le 12 avril 2019

à la Faculté des sciences de base

Groupe Picasso

Programme doctoral en mathématiques

pour l'obtention du grade de Docteur ès Sciences

par

**Thomas Frédéric HILKE**

Acceptée sur proposition du jury

Prof. S. Morgenthaler, président du jury

Prof. M. Picasso, Prof. J. Rappaz, directeurs de thèse

Dr Y. Caratini, rapporteur

Prof. A. Lozinski, rapporteur

Prof. F. Gallaire, rapporteur

2019



# Résumé

L'aluminium métallique joue un rôle crucial dans l'économie moderne. L'aluminium métallique primaire est obtenu par transformation de l'oxyde d'aluminium par le procédé industriel de Hall-Héroult. Ce procédé, qui consomme d'énormes quantités d'énergie, consiste à réaliser l'électrolyse d'une solution d'oxyde d'aluminium dans une cuve de grande dimension à l'aide de courant de plusieurs centaines de milliers d'ampères.

Le sujet de cette thèse est l'étude de certains aspects de la modélisation de l'électrolyse de l'oxyde d'aluminium du point de vue de la simulation numérique. Cette thèse est divisée en deux parties.

La première partie est consacrée à la modélisation numérique du phénomène de dissolution et transport de la poudre d'alumine dans le bain électrolytique d'une cuve en fonction de la température du bain. Nous proposons un modèle mathématique du transport et de la dissolution de la poudre d'alumine, puis sa discrétisation en temps et en espace par une méthode d'éléments finis. Finalement, nous étudions le comportement de ce modèle dans le contexte d'une cuve d'électrolyse industrielle.

La deuxième partie est consacrée au développement d'une méthode numérique pour le calcul de l'écoulement des fluides d'une cuve d'électrolyse. Le calcul de la vitesse de l'électrolyte et du métal liquide est basé sur une décomposition en modes de Fourier. L'amplitude de chaque mode satisfait une équation aux dérivées partielles que l'on explicite, dont la solution est approchée par une méthode d'éléments finis. Enfin, l'écoulement des fluides obtenu avec cette méthode est comparé aux solutions obtenues avec le modèle de référence dans le contexte d'une cuve d'électrolyse industrielle.

**Mots clés** Simulations numériques, Méthode des éléments finis, Équations aux dérivées partielles, Équation d'advection-diffusion, Électrolyse, Alumine, Dissolution, Température.

# Abstract

Metallic aluminium plays a key role in our modern economy. Primary metallic aluminium is produced by the transformation of aluminium oxide using the Hall-Héroult industrial process. This process, which requires enormous quantities of energy, consists in performing the electrolysis of an aluminium oxide solute in large pots and with hundreds of thousands of amperes of electrical current.

The topic of this thesis is the study of some selected aspects of the modelisation of the electrolysis process from the point of view of numerical simulation. This thesis is divided in two parts.

The first part is focused on the numerical modelisation of the alumina powder dissolution and transport in the electrolytic bath as a function of the bath temperature. We provide a mathematical model for the transport and dissolution of the alumina powder, followed by its time and space discretisation by means of a finite element method. Finally, we study the behavior of this numerical model in the case of an industrial electrolysis pot.

The second part is devoted to the development of a numerical scheme for the approximation of the fluid flows in an electrolysis pot. The scheme relies on a Fourier basis decomposition of the unknowns. The amplitude of each Fourier component satisfies a partial differential equation which is explicitly derived. The solution of this equation is approximated by means of a finite element method. Finally, the approximate fluid flow obtained with this new method is compared with the solution provided by the reference model in an industrial electrolysis pot.

**Keywords** Numerical simulations, Finite element methods, Partial differential equations, Advection-diffusion equation, Electrolysis, Alumina, Dissolution, Temperature.

À Felix

# Remerciements

En premier lieu j'aimerais remercier mes directeur et co-directeur de thèse les professeurs Marco Picasso et Jacques Rappaz qui m'ont accueilli dans leur groupe et m'ont donné l'opportunité de réaliser ce travail de doctorat.

Je remercie également les membres de mon jury, le docteur Yves Caratini et les professeurs Alexei Losinki et François Gallaire pour l'effort investi à la lecture et la compréhension de mon travail. Merci également au professeur Stephan Morgenthaler, président du jury.

Je tiens également à remercier l'entreprise Rio Tinto d'avoir financé ce projet de recherche, ainsi que l'équipe du LRF à Saint-Jean de Maurienne pour leur intérêt, les échanges et leurs conseils éclairés tout au long de mon travail. Merci également à l'équipe d'Ycoor Systems à Sierre, Alexandre et Julien, pour leur soutien et les nombreuses discussions autour d'Alucell. Merci aussi à Michel Flück, père d'Alucell, pour son aide et sa disponibilité exemplaire, sans qui bien des mystères le seraient restés.

Un grand merci à Nick, Marion, Nawal, Sébastien, Laurent, Jana pour leur amitié et les nombreuses rencontres et sorties si essentielles. Merci à Julien d'avoir partagé ma passion pour le vélo et de m'avoir entraîné dans toutes ces sorties et courses. Un merci tout particulier à Valérie pour avoir été présente à de nombreuses occasions, les bonnes, mais aussi les moins bonnes. Merci d'avoir écouté mes doutes et incertitudes, et d'avoir aussi partagé les tiens. Merci pour ton soutien infailible dont j'ai beaucoup profité.

Un grand merci à l'équipe de doctorant du fond du couloir, Jonathan, Viljami, Sylvain, Diane, Samuel. Merci pour tous ces moments partagés en votre compagnie, les computationnal beer&sandwiches, les soirées folles et inoubliables. Merci à Diane pour la relecture de mon manuscrit de thèse et ses conseils avisés. Merci à Samuel pour ses conseils, les passionnantes discussions scientifiques, ses cours de mythologie tolkienienne, et pour m'avoir sauvé encore, et encore !

Je remercie aussi l'équipe administrative de la section de mathématiques, Annick, Corinne, Arianne pour leur sympathie, leur disponibilité et leur travail dévoué. Merci à Virginie pour son amitié et son soutien.

Merci à ma famille, Christophe et Michèle, Emmanuelle et Alexandra, qui m'ont toujours soutenu et encouragé dans mes choix et mes entreprises, et sans qui je ne serai jamais parvenu là où je suis aujourd'hui.

Finalement, Corinna, je ne pourrai jamais te remercier assez pour ton amour, pour ta patience, pour avoir cru en mes choix et m'avoir soutenu jusqu'au bout. Merci du fond du coeur !

# Table des matières

<b>Résumé</b>	<b>iii</b>
<b>Abstract</b>	<b>iv</b>
<b>Notations</b>	<b>x</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>1</b>
1.1 Procédé de Hall-Héroult . . . . .	1
1.2 But du travail . . . . .	5
1.3 Organisation du document . . . . .	6
<b>I Transport et dissolution de particules d'alumine</b>	<b>7</b>
<b>2 Particules d'alumine dans un bain électrolytique</b>	<b>9</b>
2.1 Introduction . . . . .	9
2.2 Formation de bain gelé . . . . .	10
2.3 Dissolution d'une particule dans le bain . . . . .	22
2.4 Dissolution d'une population de particules . . . . .	25
2.5 Chute de particules dans le bain . . . . .	28
<b>3 Populations de particules</b>	<b>35</b>
3.1 Introduction . . . . .	35
3.2 Modèle de transport et dissolution d'alumine . . . . .	37
3.3 Discrétisation en temps . . . . .	41
3.4 Dissolution d'alumine dans une cuve industrielle . . . . .	46
3.5 Discussion et conclusion . . . . .	62

<b>II</b>	<b>Approximation d'écoulement dans le bain électrolytique</b>	<b>65</b>
<b>4</b>	<b>Calcul de l'écoulement de Stokes</b>	<b>67</b>
4.1	Introduction . . . . .	67
4.2	Formulation du modèle de Stokes Fourier . . . . .	68
4.3	Discrétisation par une méthode d'éléments finis . . . . .	75
4.4	Validation numérique . . . . .	77
4.4.1	Une solution exacte polynomiale non triviale . . . . .	77
4.4.2	Convergence de l'erreur en $K$ et en $h$ . . . . .	81
4.5	Modèle de transport d'alumine stationnaire . . . . .	83
4.6	Application à l'écoulement d'une cuve d'électrolyse . . . . .	84
4.7	Conclusion . . . . .	97
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>99</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>101</b>
	<b>Curriculum Vitae</b>	<b>103</b>





# Notations

Symbol	Description
$t$	Temps
$\Delta t$	Pas de temps
$t^n$	$n$ -ième pas de temps
$T$	Temps final
$N$	Nombre de pas de temps
$r$	Rayon d'une particule ou d'une collection de particules d'alumine
$r_0$	Rayon initial d'une particule
$M$	Nombre de discrétisations du rayon des particules
$[g]_\Gamma$	Saut d'une fonction $g$ sur une interface $\Gamma$
$\Omega$	Domaine ouvert de $\mathbb{R}^3$
$\partial\Omega$	Bord d'un domaine ouvert $\Omega$
$\mathcal{B}(x, r)$	Boule de rayon $r$ et de centre $x$
$\Gamma$	Surface dans $\mathbb{R}^3$
$\Gamma_N$	Partie du bord d'un ouvert sur laquelle sont imposées des conditions aux limites de Neumann
$\Gamma_D$	Partie du bord d'un ouvert sur laquelle sont imposées des conditions aux limites de Dirichlet
$\nu$	Vecteur normal au bord d'un ouvert
$\Theta$	Température des fluides dans une cuve
$H$	Enthalpie dans l'alumine ou l'électrolyte environnant
$\beta$	Relation entre la densité d'enthalpie et la température locale de l'électrolyte
$L_\beta$	Constante de Lipschitz de la fonction $\beta$
$\mu$	Paramètre de relaxation
$f_s$	Fraction solide
$\Theta_{\text{Inj}}$	Température des particules au moment de l'injection
$\Theta_{\text{Liq}}$	Température du liquidus du bain électrolytique
$\Theta_{\text{Init}}$	Température initiale des fluides
$\Theta_{\text{Crit}}$	Température critique de dissolution de l'alumine
$\Theta_{\text{Sur}}$	Température de surchauffe de l'électrolyte
$\Theta_e$	Température de l'électrolyte
$D_\Theta$	Diffusivité thermique
$D_c$	Diffusivité moléculaire de l'électrolyte
$\rho_e$	Densité de l'électrolyte
$\rho_{\text{Al}}$	Densité de l'alumine

Symbol	Description
$C_{p,Al}$	Chaleur spécifique de l'alumine
$C_{p,e}$	Chaleur spécifique de l'électrolyte
$\Delta H_{sl}$	Enthalpie de transition de phase solide-liquide
$\Theta_{Lat}$	Temps de latence avant dissolution des particules d'alumine
$\eta_F$	Rendement de Faraday
$I$	Courant électrique total traversant une cuve
$F$	Constante de Faraday
$c$	Concentration molaire d'alumine dissoute dans l'électrolyte
$c_{Sat}$	Concentration molaire de saturation de l'alumine dissoute dans l'électrolyte
$c_{Init}$	Concentration molaire initial d'alumine dissoute dans l'électrolyte
$f(r, c, \Theta)$	Vitesse de dissolution d'une particule d'alumine dans le bain
$\kappa(c, \Theta)$	Taux de dissolution d'une particule d'alumine dans le bain
$K$	Taux limite de dissolution l'une particule d'alumine dans le bain
$n_p$	Densité de particule d'alumine dans l'électrolyte en fonction de leur rayon
$F_D$	Force de traînée exercée par un fluide visqueux sur un objet en mouvement relatif
$F_g$	Force de gravité
$F_A$	Force d'Archimède
$\mu_T$	Viscosité turbulente
$\mu_L$	Viscosité dynamique
$g$	Accélération de la gravité
$v_0$	Vitesse verticale initiale d'une particule d'alumine
$w(r)$	Vitesse limite de chute d'une sphère de rayon $r$
$Re$	Nombre de Reynolds
$j$	Densité de courant électrique
$u$	Vitesse d'écoulement du bain électrolytique
$K$	Nombre total d'injections
$\tau^k$	Temps d'injection
$S^k$	Densité initiale de particules pour l'injection $k$
$n_p^k(t, x, r)$	Densité de particules dans l'électrolyte issue de l'injection $k$
$\bar{k}(t)$	Indice de la dernière population à se dissoudre au temps $t$
$p^k$	Indice du dernier pas de temps qui précède l'injection $k$
$q^k$	Indice du dernier pas de temps qui précède le début de la dissolution de l'injection $k$
$\delta(t)$	Masse de Dirac
$\delta_{i,j}$	Symbol de Kronecker
$\sigma$	conductivité électrique du bain
$q_1$	Alumine dissoute consommée par l'électrolyse
$q_2$	Source d'alumine provenant de la dissolution des particules
$p_1$	Chaleur absorbée pour réchauffer les particules après leur injection
$p_2$	Chaleur absorbée par la réaction de dissolution de l'alumine
$p_3$	Source de chaleur liée à l'effet Joule

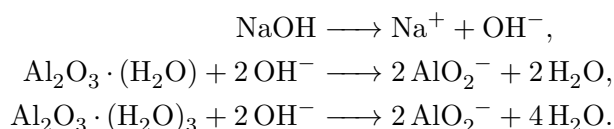
Symbol	Description
$D_c^M$	Constante de diffusivité moléculaire de l'alumine dissoute dans l'électrolyte
$D_c^T$	Constante de diffusivité turbulente de l'alumine dissoute dans l'électrolyte
$D_\Theta^M$	Constante de diffusivité thermique de l'électrolyte
$D_\Theta^T$	Constante de diffusivité thermique de l'électrolyte issue des turbulences
$\Lambda$	Domaine ouvert de $\mathbb{R}^2$
$\mathcal{T}_{i,j}$	Tenseur des contraintes visqueuses
$\mathcal{E}_{i,j}$	Tenseur des déformations du fluide
$\bar{\mathcal{E}}$	Tenseur des déformations restreint aux composantes 1 et 2
$f$	Force exercée sur le fluide
$p$	Pression hydrostatique
$\mathcal{M}_h$	Maillage conforme en simplexes de diamètre maximal $h$ d'un domaine ouvert de $\mathbb{R}^2$ ou $\mathbb{R}^3$
$\mathcal{K}$	Cellule triangulaire ou tétraédrique d'un maillage
$\delta$	Coefficient de stabilisation
$h$	Taille de maille
$\varepsilon$	Épaisseur de la couche de fluide
$H^1(\Omega)$	L'ensemble $W^{1,2}(\Omega)$
$L^2(\Omega)$	L'ensemble $W^{0,2}(\Omega)$
$L_0^2(\Omega)$	L'ensemble $\left\{ f \in L^2(\Omega) \mid \int_{\Omega} f \, dx = 0 \right\}$
$H_0^1(\Omega)$	L'ensemble $\left\{ f \in H^1(\Omega) \mid f = 0 \text{ sur } \Gamma_D \right\}$
$H_{0,0}^1(\Omega)$	L'ensemble $\left\{ f \in H_0^1(\Omega) \mid \int_{\Omega} f \, dx = 0 \right\}$
$V_h$	Approximation de l'espace $H^1(\Omega)$ par des fonctions linéaires par morceaux sur $\mathcal{M}_h$
$B_h$	Espace $V_h$ enrichi par une fonction bulle sur chaque simplexe

# Chapitre 1

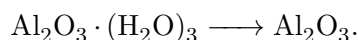
## Introduction

L'aluminium est un métal léger qui figure parmi les éléments métalliques les plus abondant sur Terre, avec une proportion d'environ 8% de la masse totale de la croûte terrestre. Malgré tout il n'apparaît jamais sous forme métallique en raison de sa forte affinité avec l'oxygène, et se trouve sous forme d'oxyde d'aluminium  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (appelé également alumine). L'alumine est un constituant de différents minerais, mais seul la bauxite est utilisée pour la production de l'aluminium [Nor18].

La bauxite est constituée principalement par de l'oxyde d'aluminium hydraté, de silicate, d'oxyde de fer et d'impuretés en plus faibles proportions. Elle provient essentiellement d'Australie, de Chine et du Brésil. Par exemple, ces trois pays combinés ont extrait plus de 182.9 millions de tonnes de bauxite au cours de l'année 2015 [Bra17]. Le procédé de Bayer permet ensuite d'isoler et purifier l'alumine de la bauxite. Après concassage et broyage du minerai, la soude caustique chaude dissout l'alumine :



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

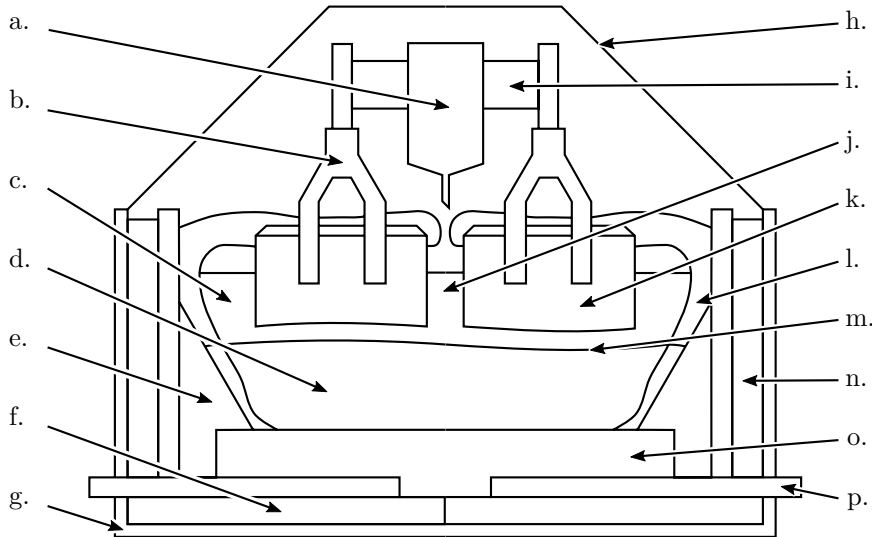


La deuxième partie du processus consiste à inverser la réaction d'oxydation pour finalement obtenir de l'aluminium sous forme métallique.

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

### 1.1 Procédé de Hall-Héroult

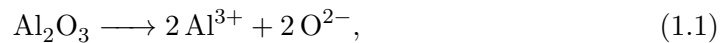
On donne dans cette section un bref aperçu du procédé de Hall-Héroult. Le lecteur intéressé peut trouver de plus amples informations dans le travail de [Grj77].



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

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

Le procédé consiste à dissoudre l'oxyde d'aluminium dans un bain composé de cryolite, puis à réduire les ions d'aluminium en effectuant l'électrolyse de la solution :



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

Le bain électrolytique est maintenu sous forme liquide dans un contenant constitué par une épaisseur de briques réfractaires au niveau des parois verticales et une cathode en carbone au fond (fig. 1.1.o). Le tout est soutenu par une structure appelée cuve. Les briques réfractaires (fig. 1.1.f, fig. 1.1.n) jouent le rôle d'isolant thermique d'une part, et protègent le reste de la structure des attaques corrosives de l'électrolyte d'autre part.

La réaction d'électrolyse (1.2) produit de l'aluminium métallique au niveau de la cathode (fig. 1.1.o). La température de fusion de l'aluminium étant de  $660.3 \text{ }^\circ\text{C}$ , le métal

produit est maintenu sous forme liquide. L'aluminium métallique est immiscible dans l'électrolyte. En raison de sa densité supérieure d'environ 10% à celle de l'électrolyte, le métal forme une nappe au fond de la cuve et recouvre la cathode. C'est le métal liquide qui joue effectivement le rôle de cathode. Le bain électrolytique et le métal forment un système à deux phases séparées par une interface libre (fig. 1.1.m).

Dans une cuve industrielle, l'anode est subdivisée en une série de blocs anodiques (fig. 1.1.k) d'environ  $1\text{ m}^3$  chacun. Les blocs anodiques sont typiquement arrangés selon deux rangées parallèles. L'espace qui sépare les deux rangées est appelé canal central (fig. 1.1.j). Cette subdivision en blocs anodiques permet d'adapter individuellement la position verticale de chaque bloc, ainsi que de les remplacer individuellement sans perturber l'opération de la cuve.

L'électrolyte est alimenté en courant électrique à travers les blocs anodiques plongés dans le bain. Les blocs anodiques sont fixés à l'aide de broches (fig. 1.1.b) à un pont (fig. 1.1.i) qui sert à la fois de support mécanique et de conducteur électrique. Le courant électrique traverse l'électrolyte, le métal liquide et atteint la cathode en carbone placée au fond de la cuve. Finalement, le courant est conduit en dehors de la cuve à travers des conducteurs horizontaux appelés *barres bus* (fig. 1.1.p) placés sous la cathode. L'intensité du courant électrique qui traverse une cuve d'électrolyse industrielle peut atteindre 500 kA, et jusqu'à 600 kA dans les cuves les plus modernes.

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

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

Le mouvement des fluides dans les cuves d'électrolyse est un aspect important pour plusieurs raisons, et qui a déjà fait l'objet de nombreuses études numériques. On peut consulter par exemple les articles de J.-F. Gerbeau, T. Lelièvre et C. Le Bris [GLL03], D. Munger [Mun04], V. Bojarevics et S. Sira [BE15] par exemple, ou encore les thèses publiées par l'EPFL de S. Pain [Pai06], Y. Safa [SFR09], G. Steiner [Ste09] et S. Flotron [Flo13] à ce sujet. Le bain électrolytique est l'élément du circuit électrique qui est responsable, en raison de sa faible conductivité électrique, de l'essentiel de la production d'énergie thermique par effet Joule. Pour minimiser ces pertes d'énergie thermique, on cherche à minimiser la distance parcourue par le courant électrique entre les anodes et l'interface entre le bain et le métal. Cependant, les mouvements dans les fluides perturbent la forme de l'interface (fig. 1.1.m). En particulier, on cherche à tout prix à éviter que le métal entre en contact avec les anodes, et crée un court circuit. Une telle situation, qui risque de déstabiliser le système et perturber les cuves voisines, est à éviter à tout prix. Dans une cuve industrielle moderne, l'écart entre le plan anodique et l'interface, abrégée ACD<sup>1</sup>, est

---

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

de l'ordre de 20 mm à 40 mm.

A intervalles réguliers, de l'oxyde d'aluminium sous forme de poudre solide est injecté dans le bain afin de compenser la concentration consommée par la réaction d'électrolyse (1.2). La surface supérieure du bain est protégée par une croûte de bain solidifié et de poudre d'alumine. Pour pouvoir injecter de l'alumine dans le bain, un piqueur (fig. 1.1.a) perce cette croûte mécaniquement. Pour cette raison, l'injection d'alumine ne peut avoir lieu que de façon discontinue. La poudre est ensuite libérée par l'injecteur par doses d'environ 1 kg au niveau de la surface du bain électrolytique, dans le canal central (fig. 1.1.j) entre les deux rangées d'anodes. Le transport de cette poudre dans l'ensemble du bain et sa dissolution dépendent fortement du mouvement du fluide. On cherche un équilibre entre des écoulements qui déforment peu l'interface bain-métal, mais suffisant pour assurer le transport et la dissolution de la poudre d'alumine dans toutes les parties du bain électrolytique.

Le bain électrolytique, maintenu au-dessus de sa température de fusion, est un milieu extrêmement corrosif, y compris pour les structures qui servent à le contenir. Pour allonger la durée de vie des cuves, on cherche à minimiser les surfaces de contact avec le bain liquide. En particulier, on essaye de maintenir une couche de bain solide le long des parois, appelée talus (fig. 1.1.1), pour les protéger des attaques corrosives du bain liquide. On y arrive en cherchant un équilibre thermique qui dépend du flux d'énergie au niveau des parois et de la convection de la chaleur produite dans le bain par les mouvements des fluides. Pour ces différentes raisons, une bonne compréhension et maîtrise des écoulements dans une cuve d'électrolyse est essentielle à la bonne opération de celle-ci.

Au moment de l'injection, l'alumine se trouve dans un état cristallin, à une température d'environ 150 °C. Lorsque les particules d'alumine entrent en contact avec le bain, une couche de bain solidifié se forme immédiatement à la surface de celles-ci. Ces particules sont convectées par l'écoulement dans le fluide et chutent dans le bain sous l'action de la gravité.

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

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

L'ensemble de la cuve est placée dans un caisson, dont le matériau est choisi pour ses propriétés ferromagnétiques. La présence du caisson permet d'écranter une partie du champ d'induction magnétique et réduire l'intensité de celui-ci dans les fluides. Les forces



de Lorentz peuvent ainsi être contrôlées, et diminuer l'intensité des vitesses dans les fluides de la cuve [DFR98], [DFR91]. Le caisson permet également de contrôler plus finement la dissipation thermique sur les bords de la cuve et la formation des talus.

L'ensemble de la partie supérieure de la cuve est recouverte par un couvercle (fig. 1.1.h) qui limite les dissipations thermiques, permet la collecte des émanations gazeuses potentiellement toxiques résultant de la réaction d'électrolyse, et protège les opérateurs travaillant à proximité.

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

## 1.2 But du travail

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

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

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

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

L'état d'une cuve d'électrolyse n'est pas figé : il évolue sans cesse au fil des changements d'anodes, des variations de cadence des injecteurs, ou encore des perturbations des cuves voisines de la série. Le modèle numérique existant, introduit par G. Steiner dans son travail de thèse [Ste09] et implémenté dans le logiciel `Aluce11`<sup>2</sup>, permet d'obtenir une

---

2. Le logiciel `Aluce11`, copropriété de l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) et de Rio Tinto, est développé conjointement par le Groupe Picasso à l'EPFL et YcoorSystems SA basée à Sierre en Suisse. Le logiciel `Aluce11` est composé d'une suite de routines bas niveau écrites en `Fortran` et `C++` et d'un langage de script propriétaire permettant d'implémenter des algorithmes liés à la modélisation numérique de l'électrolyse de l'aluminium.

approximation numérique de l'état des écoulements des fluides et de la concentration d'alumine dans une cuve d'électrolyse avec un temps de calcul de l'ordre de 24 à 48 heures. Il est donc impossible d'utiliser ce modèle pour obtenir des informations sur l'état d'une cuve à chaque instant de sa vie, en fonction de paramètres extérieurs. Dans cette thèse nous proposerons un modèle d'écoulement de fluide et de concentration d'alumine dissoute stationnaire simplifié, qui permet d'obtenir des informations sur l'état d'une cuve dans un laps de temps bien plus court, de l'ordre de la minute.

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

### 1.3 Organisation du document

La partie I de ce travail concerne plusieurs phénomènes physiques liés à la dissolution de particules d'alumine et de populations de particules d'alumine dans un bain électrolytique. Le chapitre 2 traite de l'interaction entre le bain électrolytique dans une cuve et une unique particule ou d'un ensemble de particules indépendantes. Nous commençons dans la section 2.2 par étudier la solidification et liquéfaction du bain électrolytique autour d'une particule d'alumine de température 150 °C injectée dans un bain à 950 °C. Puis nous considérons la modélisation de la dissolution, c'est-à-dire de l'évolution de la taille au cours du temps d'une particule d'alumine placée dans un bain électrolytique dans la section 2.3. Dans la section 2.4 nous utilisons le modèle de dissolution d'une unique particule pour décrire l'évolution d'une population de particules qui se dissout dans le bain. Enfin, dans la section 2.5 nous discutons du mouvement d'une particule dans le bain soumise à l'action de la gravité, et dans quelle mesure cet effet peut être négligé. Dans le chapitre 3, nous utilisons les résultats établis dans le chapitre 2 pour proposer un modèle de transport et dissolution de poudre d'alumine dans le bain d'une cuve d'électrolyse de Hall-Héroult en fonction de la température dudit bain. Dans la section 3.2 nous décrivons en détail les équations et les données qui interviennent dans le modèle de transport et dissolution d'alumine, que nous discrétisons dans la section 3.3. Dans la section 3.4 nous appliquons le modèle proposé dans les sections 3.2 et 3.3 au cas de la cuve d'électrolyse industrielle AP32, et nous discutons des résultats dans la section 3.5.

La partie II de ce travail concerne la problématique du calcul de l'écoulement des fluides dans une cuve d'électrolyse et de la répartition d'alumine dissoute. Dans la section 4.2 nous proposons de calculer un écoulement de Stokes dans les fluides d'une cuve d'électrolyse en décomposant les données et les inconnues du problème en séries de Fourier selon la direction verticale. Les équations qui résultent de cette décomposition sont discrétisées dans la section 4.3. Dans la section 4.4 nous étudions les propriétés du schéma obtenu à la section 4.3 et soulignons ses avantages par rapport à une discrétisation basée sur une méthode d'éléments finis classiques en trois dimensions d'espace. Finalement, le schéma obtenu à la section 4.3 est appliqué au problème du calcul de l'écoulement des fluides et du transport de l'alumine dissoute dans la cuve d'électrolyse AP32, et nous discutons des résultats dans la section 4.7.

Première partie

Transport et dissolution de  
particules d'alumine



## Chapitre 2

# Particules d'alumine dans un bain électrolytique

### 2.1 Introduction

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

En raison de la faible surchauffe<sup>1</sup> du bain, la surface de celui-ci est recouverte, en tout temps, par une croûte solide. Cette croûte est principalement constituée par de l'électrolyte solidifié. Sa présence est désirable, elle joue le rôle d'isolant thermique, protège la structure supérieure de la cuve des éclaboussures et facilite la canalisation des émanations gazeuses.

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

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

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

---

1. La surchauffe du bain électrolytique est définie comme la différence entre la température du bain et la température du liquidus  $\Theta_{\text{Liq}}$ .

d'alumine est déposée à la surface du bain, les particules ont tendance à s'agglomérer et former de petit radeau qui flottent et se maintiennent à la surface du bain ([Das15], [Kas+17]). Par rapport à l'alumine qui se disperse immédiatement dans le volume du bain, les particules qui constituent ces radeaux sont beaucoup plus difficiles à dissoudre. De plus, lorsque ces radeaux coulent ils peuvent, selon leur masse et leur taille, pénétrer dans la couche de métal et se retrouver au fond de la cuve au niveau de la cathode. Il forment alors des boues qui isolent électriquement la cathode, et provoque une usure mécanique prématurée.

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

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

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

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

## 2.2 Formation de bain gelé

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

La température de l'électrolyte  $\Theta$  satisfait une équation de la chaleur dans chaque phase :

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

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

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

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

A l'interface  $\Gamma(t)$  entre les phases liquide et solide, on suppose que la température est continue,  $[\Theta] = 0$ , et que la condition de Stefan est vérifiée. On note  $v_\Gamma(t, x)$  la vitesse de l'interface  $\Gamma(t)$ . La condition de Stefan s'écrit alors :

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

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

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

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

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

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

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

ainsi que par une condition initiale  $\Theta_{\text{init}}$  appropriée à  $t = 0$  pour  $\Theta$ .

Le problème de Stefan classique consiste à chercher une fonction  $\Theta : [0, \infty) \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  et deux sous-domaines  $\Omega_1, \Omega_2$  qui satisfassent les équations (2.1) à (2.11).

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

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

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

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

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

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

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

où  $\rho_e$  est la densité du bain,  $\Delta H_{sl}$  est l'enthalpie de transition de phase par unité de volume, et  $f_s$  la fraction solide du bain en fonction de la température.



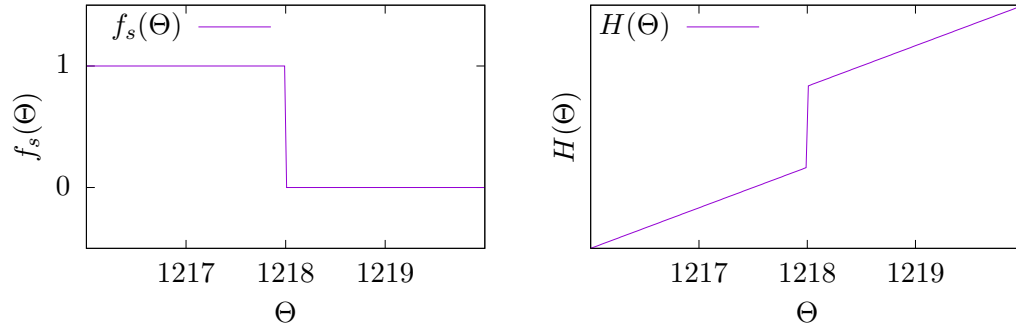


FIGURE 2.1 – Gauche : fraction solide du bain  $f_s$  en fonction de la température. Droite : Enthalpie du bain électrolytique en fonction de la température.

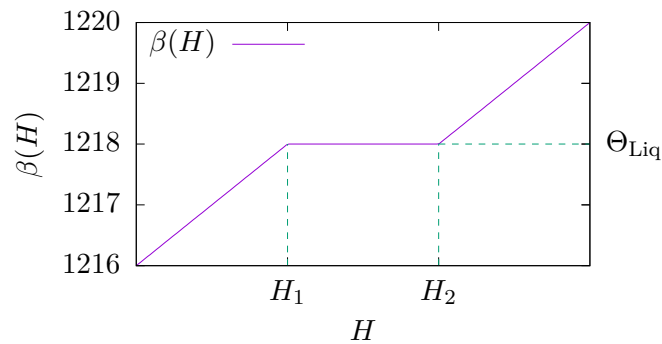


FIGURE 2.2 – Fonction  $\beta(H)$ . On a noté  $H_1 = \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e,1} \rho_e$  et  $H_2 = \Theta_{\text{Liq}} C_{p,e,1} \rho_e + \Delta H_{\text{sl}}$ , et  $\Theta_{\text{Liq}} = 1218$  K.

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

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

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

La fonction  $\beta$  est représentée sur la figure 2.2. Pour les besoins de la représentation, on a choisi ici  $\Theta_{\text{Liq}} = 1218$  K et  $\Delta H_{\text{sl}} = 5.508 \times 10^5$  J kg<sup>-1</sup>.

La formulation enthalpique du problème de Stefan consiste à chercher une paire de

fonctions  $\Theta, H : [0, \infty) \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  telles que :

$$\frac{\partial H}{\partial t} - \operatorname{div}(D_\Theta \nabla \Theta) = 0, \quad \text{dans } [0, \infty) \times \Omega, \quad (2.15)$$

$$\Theta = \beta(H), \quad \text{dans } [0, \infty) \times \Omega, \quad (2.16)$$

$$\Theta = \Theta_D, \quad \text{dans } [0, \infty) \times \Gamma_D, \quad (2.17)$$

$$D_\Theta \frac{\partial \Theta}{\partial \nu} = \Theta_N, \quad \text{dans } [0, \infty) \times \Gamma_N, \quad (2.18)$$

$$\Theta(0, x) = \Theta_{\text{Init}}(x), \quad \forall x \in \Gamma, \quad (2.19)$$

Les fonctions  $\Theta_{\text{Init}}$ ,  $\Theta_D$  et  $\Theta_N$  ont été définies au paragraphe précédent, et  $\beta$  est définie par la relation (2.14). L'équation (2.15) est à comprendre au sens faible. Plus précisément, on peut montrer que si  $H$  et  $\Theta$  satisfont (2.15)-(2.16) au sens faible et si  $H$  et  $\Theta$  sont suffisamment régulières dans  $\Omega_1(t)$  et  $\Omega_2(t)$  définis par (2.1) avec  $[\Theta] = 0$  sur  $\Gamma$ , alors  $\Theta$  satisfait (2.5), (2.6) et (2.8).

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

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

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

$$(2.22)$$

et soit  $\Gamma_{tx}$  dans l'espace-temps :

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

Soit  $\nu_{tx}$  la normale unité à  $\Gamma_{tx}$  dirigée vers  $\Lambda_2$ , on note  $\nu_t, \nu_x$  les composantes temporelles et spatiales de  $\nu_{tx}$ , i.e.,  $\nu_{tx} = (\nu_t, \nu_x)^t$ . Soient  $H, \Theta$  qui satisfont au sens faible les équations (2.15) à (2.16). On note le  $v = (H, -D_\Theta \nabla \Theta)^t$ . L'équation (2.15) s'écrit donc :

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

où  $\operatorname{Div} = (\frac{\partial}{\partial t}, \nabla)$ . Alors si  $\Theta$  est suffisamment régulière dans  $\Lambda_1 \cup \Lambda_2$  et  $[\Theta] = 0$  sur  $\Gamma$ ,  $\Theta$  est solution forte de (2.5), (2.6). De plus, on doit avoir :

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

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

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

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

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

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

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

On note  $\Theta^n(x)$  et  $H^n(x)$  les approximations de  $\Theta(t^n, x)$  et  $H(t^n, x) \forall x \in \Omega$ , et on note  $D_\Theta^n(x) = D_\Theta(\Theta^n(x))$  pour tout  $x \in \Omega$ . On suppose donnée la densité d'enthalpie initiale

$h^0$ , et on pose  $\Theta^0 = \Theta_{\text{Init}}$ ,  $H^0 = H(\Theta_{\text{Init}})$ , avec  $H$  donnée par (2.13). Pour  $0 \leq n \leq N$ , on cherche la pseudo-température  $\hat{\Theta}^n : \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  qui satisfait les équations :

$$\hat{\Theta}^{n+1} - \frac{\Delta t}{\mu} \operatorname{div} \left( D_{\Theta}^n \nabla \hat{\Theta}^{n+1} \right) = \beta(H^n), \quad \text{dans } \Omega, \quad (2.27)$$

$$\hat{\Theta}^{n+1}(x) = \Theta_{\text{D}}(t^{n+1}, x), \quad \forall x \in \Gamma_{\text{D}}, \quad (2.28)$$

$$D_{\Theta}^n \frac{\partial \hat{\Theta}^{n+1}}{\partial \nu}(x) = \Theta_{\text{N}}(t^{n+1}, x), \quad \forall x \in \Gamma_{\text{N}}. \quad (2.29)$$

On obtient ensuite la densité d'enthalpie et la température à chaque pas de temps en calculant :

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

$$\Theta^{n+1} = \beta(H^{n+1}), \quad \text{dans } \Omega. \quad (2.31)$$

Ce schéma numérique basé sur la formule de Chernoff (2.30) a été proposé par M. Paolini [PSV88].

**Remarque 1.** Le schéma formé par les équations (2.27) à (2.31) peut être interprété comme un schéma d'Euler implicite en temps associée à un développement limité au premier ordre de (2.16). En effet, (2.27) se réécrit

$$\mu \frac{\hat{\Theta}^{n+1} - \beta(H^n)}{\Delta t} - \operatorname{div} \left( D_{\Theta}^n \nabla \hat{\Theta}^{n+1} \right) = 0, \quad (2.32)$$

ce qui correspond à

$$\frac{H^{n+1} - H^n}{\Delta t} - \operatorname{div} \left( D_{\Theta}^n \nabla \hat{\Theta}^{n+1} \right) = 0 \quad (2.33)$$

en utilisant (2.30).

**Remarque 2.** Si on considère le milieu solide par exemple, on a  $\beta(H) = \frac{H}{\rho_e C_{p,e}}$ . Ainsi (2.31) implique  $\rho_e C_{p,e} \Theta^{n+1} = H^{n+1}$  et en éliminant la pseudo-température  $\hat{\Theta}^{n+1}$  dans (2.27) on obtient en utilisant (2.30) :

$$\hat{\Theta}^{n+1} = \frac{H^{n+1} - H^n}{\mu} + \beta H^n = \frac{\rho_e C_{p,e}}{\mu} \left( \Theta^{n+1} - \Theta^n \right) + \Theta^n, \quad (2.34)$$

puis dans (2.27) :

$$\rho_e C_{p,e} \frac{\Theta^{n+1} - \Theta^n}{\Delta t} - \operatorname{div} \left( D_{\Theta}^n \nabla \left( \gamma \Theta^{n+1} - (1 - \gamma) \Theta^n \right) \right) = 0 \quad (2.35)$$

avec  $\gamma = \frac{\rho_e C_{p,e}}{\mu}$ , et si  $\mu < \frac{1}{L_{\beta}}$  alors  $\gamma < 1$ . L'équation (2.35) est le schéma implicite si  $\gamma = 1$ , explicite si  $\gamma = 0$  et de Crank-Nicholson si  $\gamma = \frac{1}{2}$ .

On décrit maintenant la discrétisation en espace des équations (2.27)-(2.29).

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

$$\int_{\Omega} \hat{\Theta}^{n+1} v \, dx + \frac{\Delta t}{\mu} \int_{\Omega} D_{\Theta}^n \nabla \hat{\Theta}^{n+1} \nabla v \, dx - \int_{\Gamma_{\text{N}}} \Theta_{\text{N}}^{n+1} v \, d\sigma = \int_{\Omega} \beta(H^n) v \, dx \quad (2.36)$$

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

On tire parti de la symétrie sphérique du système formé par la particule et le bain environnant en reformulant maintenant le problème (2.36) en coordonnées sphériques.

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

$$\tilde{f}(r) \equiv \tilde{f}\left(\sqrt{x_1^2 + x_2^2 + x_3^2}\right) = f(x_1, x_2, x_3) \quad \forall (x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3. \quad (2.37)$$

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

$$\tilde{\nabla} \tilde{f} = \frac{d\tilde{f}}{dr} \hat{e}_r, \quad (2.38)$$

où  $\hat{e}_r$  est le vecteur unitaire radial du système de coordonnées sphérique.

On se donne un réel  $R_{\text{Max}} > 0$  et le domaine  $\Omega = \mathcal{B}(0, R_{\text{Max}}) \subset \mathbb{R}^3$  la boule ouverte de centre 0 de rayon  $R_{\text{Max}}$ . On suppose maintenant que les données du problème de Stefan (2.15)-(2.18), i.e., les fonctions  $\Theta_D$ ,  $\Theta_N$  ainsi que la condition initiale  $\Theta_{\text{Init}}$  pour la température, sont à symétrie sphérique, i.e., elle ne dépendent que de  $r$  et éventuellement  $t$ .

Sous ces hypothèses, on cherche une solution du problème de Stefan (2.15)-(2.18) en utilisant le schéma de Chernoff (2.27)-(2.31) qui soit également à symétrie sphérique.

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

Dans le premier cas, la formulation faible de l'équation (2.36) en coordonnées sphériques consiste à chercher une fonction  $\tilde{\Theta}^{n+1} : [0, R_{\text{Max}}] \rightarrow \mathbb{R}$ ,  $\tilde{\Theta}^{n+1}(R_{\text{Max}}) = \tilde{\Theta}_D^{n+1}$  telle que :

$$4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \tilde{\Theta}^{n+1} \tilde{v} r^2 dr + \frac{4\pi \Delta t}{\mu} \int_0^{R_{\text{Max}}} D_{\tilde{\Theta}}^n \frac{d\tilde{\Theta}^{n+1}}{dr} \frac{d\tilde{v}}{dr} r^2 dr = 4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \beta(\tilde{H}^n) \tilde{v} r^2 dr \quad (2.39)$$

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

Dans le deuxième cas, la formulation faible de l'équation (2.36) en coordonnées sphériques consiste à chercher une fonction  $\tilde{\Theta}^{n+1} : [0, R_{\text{Max}}] \rightarrow \mathbb{R}$ , telle que :

$$4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \tilde{\Theta}^{n+1} \tilde{v} r^2 dr + \frac{4\pi \Delta t}{\mu} \int_0^{R_{\text{Max}}} D_{\tilde{\Theta}}^n \frac{d\tilde{\Theta}^{n+1}}{dr} \frac{d\tilde{v}}{dr} r^2 dr - 4\pi \tilde{\Theta}_N^{n+1}(R_{\text{Max}}) \tilde{v}(\text{max}) R_{\text{Max}}^2 = 4\pi \int_0^{R_{\text{Max}}} \beta(\tilde{H}^n) \tilde{v} r^2 dr, \quad (2.40)$$

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

**Discrétisation en espace** Soit un entier  $M$ . On considère une subdivision uniforme de l'intervalle  $[0, R_{\text{Max}}]$ , et on note  $\delta = R_{\text{Max}}/M$  la taille des éléments de la subdivision. On pose  $r_0 = 0$  et  $r_{i+1} = r_i + \delta$ ,  $i = 0, 2, \dots, M-1$ . Pour discrétiser les problèmes faibles (2.39),

(2.40) on utilise une méthode d'éléments finis Lagrange, continue et linéaire par morceaux sur chaque intervalle  $[r_i, r_{i+1}]$ . Les intégrales qui interviennent dans les expressions (2.39), (2.40) sont approchées numériquement par une formule de quadrature de Gauss à 3 points. A chaque pas de temps  $n$ , la fonction  $H^{n+1}$  est approximée par l'interpolant de Lagrange du membre de droite de (2.30) aux noeuds du maillage  $r_i$ ,  $i = 0, 1, \dots, N$ .

**Un test exact du problème de Stefan à symétrie plane** On propose de valider l'implémentation du schéma numérique de discrétisation des formes faibles (2.39), (2.40) et du schéma de discrétisation en temps (2.27)-(2.31) en étudiant la convergence de l'erreur entre une solution exacte du problème de Stefan classique et de son approximation numérique.

Un certain nombre de solutions exactes du problème de Stefan classique sont connues. On décrit à présent l'une d'elles, découverte par F. Neumann<sup>2</sup>. Cette solution a l'avantage de correspondre à une situation physique suivante que l'on peut facilement interpréter. Un matériau, qui présente une transition entre les phases solide et liquide à  $\Theta_{\text{Liq}} = 0$ , occupe le demi espace  $\{(x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3 \mid x_1 > 0\}$ . Ce matériau est initialement dans l'état liquide à la température  $\Theta = \Theta_{\text{Liq}}$ . Au temps initial, on le met en contact sur le bord  $\{(x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3 \mid x_1 = 0\}$  avec un réservoir thermique à température constante  $\Theta = -1$ . Au cours de l'évolution temporelle, un front de transition de phase, de liquide à solide, se propage dans le matériau. Pour des raisons de symétrie, le front de transition plan reste en tout temps parallèle au bord  $\{(x_1, x_2, x_3) \in \mathbb{R}^3 \mid x_1 = 0\}$ .

Nous utiliserons cette solution exacte au paragraphe suivant pour valider le schéma de discrétisation des équations (2.15)-(2.18)

Si, au lieu de définir une symétrie sphérique nous prenons une symétrie planaire, i.e.,  $\tilde{f}$  de (2.37) est remplacée par  $\tilde{f}(x_1, x_2, x_3) = \tilde{f}(x_1)$ , alors il suffit de changer  $dr$  en  $dx$  et de supprimer  $r^2$  dans les intégrales figurant dans (2.39), (2.40). Ainsi, on considère le problème de Stefan classique formé par les équations (2.5)-(2.6), et on fixe les données de la manière suivante.

On fixe  $C_{p,e}(\Theta) = 1$  et  $D_\Theta(\Theta) = 1 \forall \Theta \in \mathbb{R}$ ,  $\rho_e = 1$ ,  $\Delta H_{\text{sl}} = 1$  et  $\Theta_{\text{Liq}} = 0$ . On s'intéresse à la température dans un matériau qui occupe la demi-droite positive, c'est-à-dire que  $\Omega = \mathbb{R}_+$ . On choisit la condition initiale suivante pour la température  $\Theta$  :

$$\Theta(0, x) = 0, \quad \forall x \in \mathbb{R}_+, \quad (2.41)$$

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

$$\Theta(t, 0) = -1 \quad \text{et} \quad \lim_{x \rightarrow \infty} \Theta(t, x) = 0, \quad \forall t > 0. \quad (2.42)$$

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

$$X(t) = \sqrt{2\gamma t}, \quad \forall t > 0, \quad (2.43)$$

$$\Theta(t, x) = -\gamma \int_{x/\sqrt{2\gamma t}}^1 \exp\left(\frac{\gamma(1-\xi^2)}{2}\right) d\xi, \quad \forall x \in [0, X(t)], \forall t \in [0, \infty), \quad (2.44)$$

$$\Theta(t, x) = 0, \quad \forall x \in [0, X(t)], \forall t \in [0, \infty), \quad (2.45)$$

2. Franz Neumann est un mathématicien allemand. Sa solution au problème de Stefan figure dans des notes de cours donnés au début des années 1860 [Hil87].

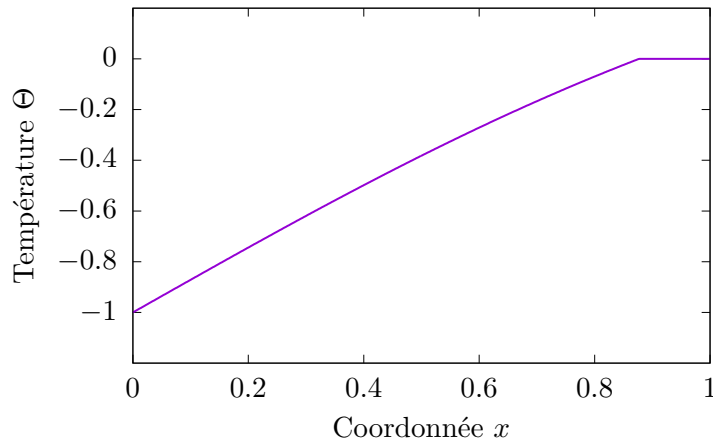


FIGURE 2.3 – Solution exacte obtenue par F. Neumann du problème de Stefan classique (2.5)-(2.8), évaluée à  $t = 0.5$  sur l'intervalle  $[0, 1] \subset \mathbb{R}_+$ .

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

$$\gamma \int_0^1 \exp\left(\frac{\gamma(1-\xi)^2}{2}\right) d\xi = 1. \quad (2.46)$$

On trouvera les détails de la dérivation de cette solution, entre autres, dans l'ouvrage de J. Hill [Hil87]. On calcul une approximation numérique de  $\gamma$  à l'aide d'une itération de Newton, implémentée avec le logiciel MatLAB®. On obtient

$$\gamma = 0.768\,955. \quad (2.47)$$

La solution (2.44)-(2.45) pour la température  $\Theta$  s'écrit de manière explicite en vue de son évaluation numérique sous la forme suivante :

$$\Theta(t, x) = \begin{cases} -\exp\left(\frac{\gamma}{2}\right) \sqrt{\frac{\pi\gamma}{2}} \left(\operatorname{erf}\frac{\gamma}{2} - \operatorname{erf}\frac{x}{2\sqrt{t}}\right), & \text{si } x \leq \sqrt{2\gamma t}, \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (2.48)$$

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

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-s^2) ds. \quad (2.49)$$

La solution exacte (2.48) est représentée sur la figure 2.3 à l'instant  $t = 0.5$ , avec  $\gamma$  donné par la relation (2.47).

Dans le paragraphe suivant, nous utilisons la solution de F. Neumann pour valider l'implémentation du schéma numérique correspondant aux équations (2.27) à (2.31).

**Validation numérique** Pour valider l'implémentation du schéma numérique (2.27)-(2.31), on évalue la convergence de l'erreur entre la solution exacte définie par la relation (2.48) et  $\beta(H_\delta^N)$ , l'approximation de la température à l'instant  $T$  avec  $\delta = R_{\text{Max}}/M$  la taille de maille :

$$\left\| \beta(H_\delta^N) - \Theta(T, \cdot) \right\|_{L^2(\mathbb{R}^+)} \quad (2.50)$$

On fixe  $\mu = L_\beta = 1$ . On choisit  $\Omega = [0, 1] \subset \mathbb{R}_+$  et  $T = 0.5$ . On impose des conditions aux limites de Dirichlet sur le bord de  $\Omega$ , i.e.,  $\Gamma_D = \{0, 1\}$ . On se donne  $\Theta_D(0) = -1$  et  $\Theta_D(1) = 0$ . On choisit le pas de temps  $\Delta t$  dans l'intervalle  $[3.9 \times 10^{-5}, 5 \times 10^{-3}]$ , et  $\delta = O(\Delta t)$ .

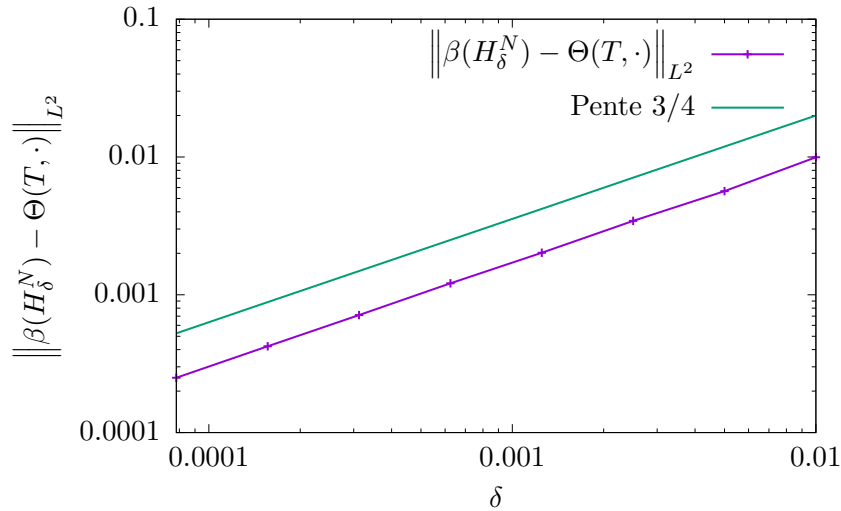


FIGURE 2.4 – Erreur  $L^2$  entre la solution exacte de Neumann et l'approximation numérique  $\beta(H_\delta^N)$ . Pour ce calcul on a fixé  $\mu = 1$ .

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

**Formation de gel autour d'une particule** Dans cette partie, on applique la méthode numérique (2.27)-(2.29) au calcul de la formation de gel autour d'une particule de bain gelé. On donne dans la table 2.1 la valeur des différents paramètres physiques liés aux propriétés thermiques du bain électrolytique.

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

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

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

$$\tilde{\Theta}_{\text{Init}}(r) = \begin{cases} \Theta_{\text{Inj}} & \text{si } r < R_p, \\ \Theta_e & \text{si } r \geq R_p, \end{cases} \quad \forall r \in \mathbb{R}_+. \quad (2.51)$$

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

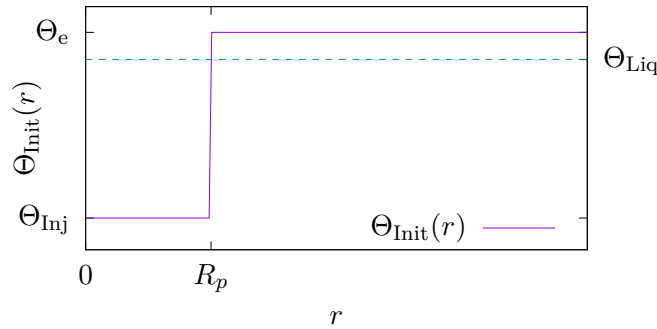


FIGURE 2.5 – Température initiale du système formé par la particule de bain gelé placée à l'origine du système de coordonnées, et du bain électrolytique environnant.

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

$$\beta(\tilde{H}(t, R_f(t))) = \Theta_{\text{Liq}}. \quad (2.52)$$

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

$$R_g(t) = R_f(t) - R_p. \quad (2.53)$$

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

$$R_g(\Theta_{\text{Lat}}) = 0. \quad (2.54)$$

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

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

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

Dans les calculs présentés ici, on a fait plusieurs hypothèses simplificatrices. On a supposé que le fluide environnant est au repos, ce qui n'est certainement pas le cas dans



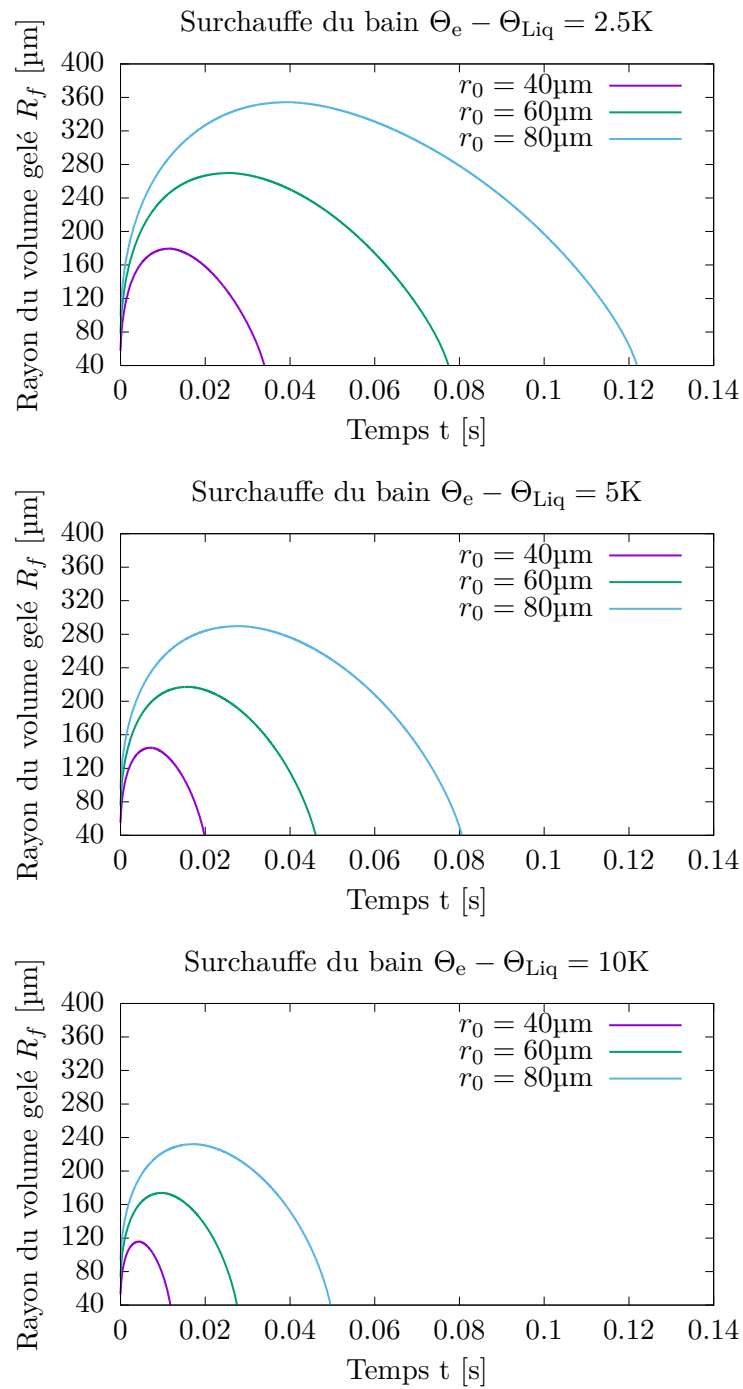


FIGURE 2.6 – Évolution du rayon de la sphère de bain gelé pour des températures de surchauffe de 2.5 K, 5 K et 10 K et des particules de rayons initiaux  $r_0 = 40\mu\text{m}$ ,  $60\mu\text{m}$  et  $80\mu\text{m}$ .

une cuve d'électrolyse industrielle. Les forces de Lorentz et la formation de bulles de gaz agitent les fluides et créent des turbulences qui sont, entre autres, de l'échelle des particules [Roc16]. Une agitation de l'électrolyte au voisinage d'une particule accélère le transport de l'énergie thermique, et tend à accélérer la refonte du bain gelé.

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

Pour ces raisons, dans la suite de ce travail on négligera la formation de gel à la surface des particules d'alumine. Cependant, selon les simulations de V. Dassylva-Raymond [Das15], nous choisirons un temps de latence pour chaque dose de particules injectées dans le bain uniforme  $\Theta_{\text{Lat}} = 1$  s, indépendante du rayon. Ce temps de latence se justifie par l'effet collectif de toutes les particules d'une dose sur la température du bain environnant.

## 2.3 Dissolution d'une particule dans le bain

Dans cette section, nous nous intéressons à la modélisation de la dissolution d'une unique particule d'alumine dans un bain électrolytique. On suppose que cette particule, après avoir été injectée à température  $\Theta_{\text{Inj}}$ , s'est réchauffée et se trouve à la même température  $\Theta$  que le bain environnant.

La problématique de la dissolution de l'alumine dans le bain d'une cuve d'électrolyse d'aluminium est un phénomène complexe. Ce sujet a déjà fait l'objet de nombreux travaux de recherche, voir par exemple [Das15], [Kva86], [GHK75], [Sol+95].

La taille initiale des particules qui forme une dose est comprise pour la plupart entre 20 $\mu\text{m}$  et 100 $\mu\text{m}$  [Fin+17]. Si les particules sont trop fines celles-ci deviennent suffisamment volatiles pour être soufflées loin du trou d'injection par les gaz s'en échappant. Si elles atteignent malgré tout l'électrolyte, celui-ci a du mal à les mouiller et à permettre leur dissolution. A l'inverse, des particules trop grandes sont trop longues à dissoudre et risquent de sédimenter au fond de la cuve.

Les particules d'alumine sont le résultat de l'agglomération de microcristaux et peuvent présenter une porosité importante, jusqu'à 75%. Cette porosité joue un rôle sur la capacité du bain à mouiller la surface de la particule et à permettre sa dissolution.

L'oxyde d'aluminium a une forte affinité avec l'eau [Pat01]. Lorsque les particules entrent en contact avec l'électrolyte en fusion, le gaz qui résulte de la désorption des molécules d'eau crée une forte agitation qui favorise la dispersion et la dissolution des particules. Par exemple, Haverkamp et al. [HWM94] ont montré que le temps de dissolution des particules d'alumine hydratées peut être jusqu'à 40% plus faible par rapport à des particules sèches. La formation d'agrégats et de radeaux est également réduite.

La dissolution de l'oxyde d'aluminium dans l'électrolyte est une réaction endothermique. La vitesse de cette réaction dépend de la chimie du bain, i.e., des concentrations respectives des différentes espèces qui le constituent et de la surchauffe du bain à proximité de la particule. Au niveau microscopique, deux mécanismes entrent en compétition au voisinage de la surface de la particule d'alumine. Il y a d'une part la réaction de dissolution elle-même qui consiste à détacher une molécule d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  et à former différents

complexes avec les ions  $\text{AlF}_6^{3-}$  [Hau95], [Kva86], et d'autre part le mécanisme de diffusion moléculaire qui transporte l'alumine dissoute loin de la particule. La diffusion moléculaire est essentielle pour maintenir la concentration à la surface de la particule inférieure à la concentration de saturation  $c_{\text{Sat}}$  et permettre la réaction de dissolution. Clairement, si la concentration est saturée dans l'ensemble du bain, la dissolution ne peut pas avoir lieu. La réaction de dissolution étant elle-même endothermique, elle est contrôlée par la disponibilité d'énergie sous forme thermique à proximité de la particule, i.e., de la surchauffe du bain.

Dans cette section, on propose un modèle qui décrit la vitesse de dissolution d'une unique particule d'alumine dans le bain d'une cuve d'électrolyse d'aluminium, basé sur le travail de thèse de T. Hofer [Hof11].

On fait l'hypothèse que les conditions d'exploitation de la cuve d'électrolyse varient peu au cours du temps, c'est-à-dire que la concentration des différentes espèces chimiques sont constantes au cours du temps, à l'exception de la concentration d'alumine dissoute. On suppose que la concentration d'alumine reste dans un intervalle qui permette de négliger les variations de la température du liquidus  $\Theta_{\text{Liq}}$  [SSS97]. De même, on suppose des variations de températures suffisamment faibles pour se permettre de négliger son influence sur la concentration de saturation de l'alumine  $c_{\text{Sat}}$ .

Enfin, on négligera la possible hydratation de l'alumine qui constitue la particule et son influence sur sa dissolution puisqu'en pratique celle-ci est généralement maintenue inférieure à 1% et que son effet est principalement d'aider à la dispersion des particules [Fin+17].

On suppose que cette particule est une sphère parfaite, non poreuse, et qu'elle est complètement mouillée par le bain, i.e., que la totalité de sa surface est en contact avec le bain électrolytique. Dans le travail [Hof11], la vitesse de dissolution d'une particule est une fonction  $f$  qui décrit la vitesse de variation de son rayon  $r$ , et qui dépend d'une part de  $r$  et d'autre part de la concentration locale d'alumine dissoute  $c$ . Dans le présent travail, nous considérerons en plus l'influence de la température locale de l'électrolyte  $\Theta$  sur sa vitesse de dissolution, c'est-à-dire que

$$\frac{dr}{dt} = f(r, c, \Theta). \quad (2.55)$$

On propose d'écrire la fonction  $f$  comme

$$f(r, c, \Theta) = -\frac{\kappa(c, \Theta)}{r}, \quad (2.56)$$

où  $\kappa$  est le taux de dissolution qui modélise les aspects liés à la réaction de dissolution uniquement. Le facteur  $1/r$  est lié à la géométrie sphérique de la particule et à l'hypothèse que la diffusion de la concentration contrôle la dissolution, comme l'ont montré Wang et Flanagan [WF99].

On suppose que la concentration de saturation  $c_{\text{Sat}}$  est donnée, de même que la température du liquidus  $\Theta_{\text{Liq}}$ . Clairement, le taux de dissolution  $\kappa$  doit être maximal lorsque  $c = 0$ , et s'annuler lorsque l'électrolyte est saturé en alumine dissoute, i.e., lorsque  $c = c_{\text{Sat}}$ . De même, lorsque le bain se trouve à la température du liquidus  $\Theta_{\text{Liq}}$ , il n'y a pas d'énergie thermique à disposition pour la réaction de dissolution, et donc  $\kappa$  doit s'annuler si  $\Theta = \Theta_{\text{Liq}}$ . A l'inverse,  $\kappa$  doit être maximal lorsque  $\Theta \gg \Theta_{\text{Liq}}$ .

Motivé par ces dernières considérations, on propose la forme suivante pour l'expression

du taux de dissolution :

$$\kappa(c, \Theta) = \begin{cases} K \frac{c_{\text{Sat}} - c}{c_{\text{Sat}}} \left( 1 - \exp \left( -\frac{\Theta - \Theta_{\text{Liq}}}{\Theta_{\text{Crit}} - \Theta_{\text{Liq}}} \right) \right) & \text{si } \Theta \geq \Theta_{\text{Liq}} \text{ et } 0 \leq c \leq c_{\text{Sat}}, \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (2.57)$$

où  $K > 0$  et  $\Theta_{\text{Crit}} > \Theta_{\text{Liq}}$  sont deux paramètres du modèle. Le taux de dissolution limite  $K$  est tel que

$$\lim_{\Theta \rightarrow \infty} \kappa(0, \Theta) = K. \quad (2.58)$$

Le paramètre  $\Theta_{\text{Crit}}$  caractérise l'intervalle dans lequel la température a une influence sur la vitesse de dissolution. La figure 2.7 illustre la relation entre le taux de dissolution et la température dans le cas où la concentration locale  $c = 0$  et le taux de dissolution limite  $K = 1$ .

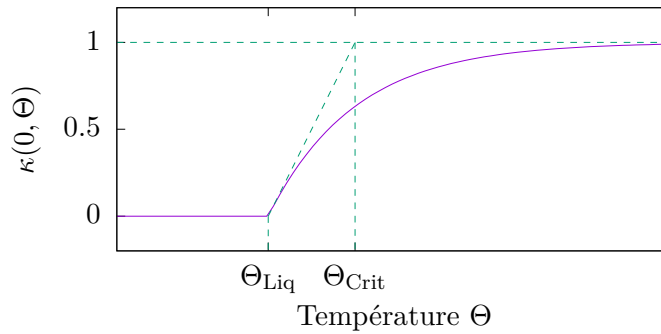


FIGURE 2.7 – Relation entre la température  $\Theta$  et le taux de dissolution  $\kappa$  lorsque  $c = 0$  et que le taux de dissolution limite  $K = 1$ . En vert sont les traits de construction, et donnent une interprétation du paramètre  $\Theta_{\text{Crit}}$ .

Supposons maintenant que  $c$  et  $\Theta$  sont des constantes données. Alors  $\kappa(c, \Theta)$  est un réel fixé, et on omettra d'indiquer ses arguments jusqu'à la fin du paragraphe, puisqu'il n'y a pas de risque d'ambiguïté.

En tenant compte de (2.56), l'équation d'évolution du rayon d'une particule (2.55) de rayon initial  $r_0 > 0$  devient

$$\begin{aligned} \frac{dr}{dt}(t) &= -\frac{\kappa}{r(t)} \quad \text{si } t > 0, \\ r(0) &= r_0. \end{aligned} \quad (2.59)$$

Ainsi, en notant  $\dot{r} = \frac{dr}{dt}$  on obtient une expression exacte pour le rayon de la particule au cours du temps :

$$\begin{aligned} r\dot{r} &= -\kappa, \\ \frac{1}{2} \frac{d}{dt} r^2 &= -\kappa, \\ r^2 &= -2\kappa t + r_0^2, \\ r(t) &= \sqrt{r_0^2 - 2\kappa t}. \end{aligned} \quad (2.60)$$

Si  $\bar{t} = \frac{r_0^2}{2\kappa}$  on obtient  $r(\bar{t}) = 0$ . La particule de rayon  $r_0$  sera dissoute après un temps  $\bar{t} = \frac{r_0^2}{2\kappa}$ .

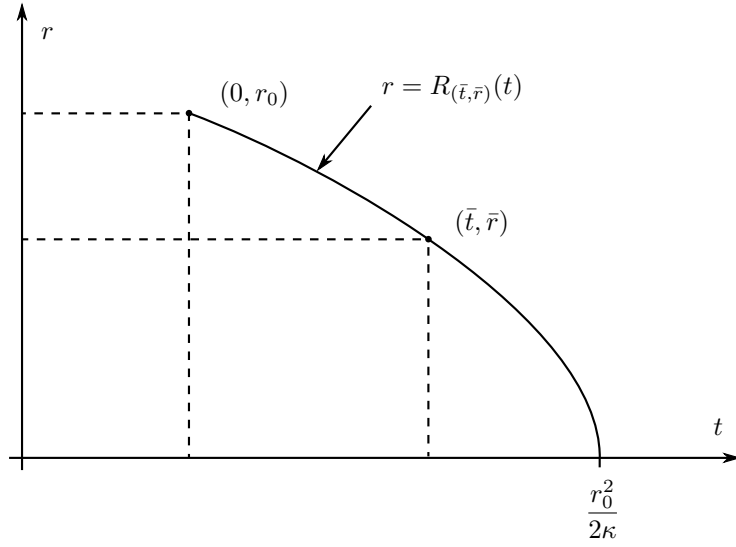


FIGURE 2.8 – Ligne caractéristique d'une particule de rayon initial  $r_0$  qui se dissout avec une vitesse  $\kappa$  selon l'expression (2.60).

La vitesse de dissolution  $f$  décrite ci-dessus et le rayon d'une particule qui se dissout au cours du temps (2.60) forment la base qui permet la description de l'évolution d'une population constituée de particules de tailles hétérogènes dans un bain électrolytique, et qui fait l'objet de la section suivante.

## 2.4 Dissolution d'une population de particules

Selon la distribution de tailles des particules d'alumine, une dose de 1 kg contient typiquement entre  $10^9$  et  $10^{12}$  particules. Il n'est donc pas envisageable de suivre individuellement l'évolution de chacune d'elles dans le bain. On adopte une approche statistique [Hof11] et on décrit l'ensemble des particules présentes dans le bain par l'intermédiaire d'une distribution continue. On note  $n_p(t, r) dr$  le nombre de particules dont le rayon est compris dans l'intervalle  $[r, r + dr]$  à l'instant  $t$ . On suppose que cette population  $n_p$  se dissout selon l'équation

$$\frac{\partial n_p}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial r} (f(r, c, \Theta) n_p) = 0 \quad \text{si } r > 0, t > 0, \quad (2.61)$$

$$n_p(0, r) = n_{p,0}(r) \quad \text{si } r > 0, \quad (2.62)$$

où la vitesse de dissolution  $f$  est donnée par l'expression (2.56) et  $n_{p,0}$  est une distribution de particules initiale donnée.

En tenant compte de (2.56), l'équation (2.61) pour la population de particule  $n_p$  se réécrit

$$\frac{\partial n_p}{\partial t} - \frac{\kappa}{r} \frac{\partial n_p}{\partial r} + \frac{\kappa}{r^2} n_p = 0. \quad (2.63)$$

Dans le plan  $(t, r)$  on fixe un point  $(\bar{t}, \bar{r})$  avec  $\bar{t} > 0$ ,  $\bar{r} > 0$ , et on veut déterminer  $n_p(\bar{t}, \bar{r})$  à partir de  $n_{p,0}(r)$  par la méthode des caractéristiques rétrograde. L'équation de la ligne caractéristique  $R_{(\bar{t}, \bar{r})}$  qui passe par  $(\bar{t}, \bar{r})$  est donnée par

$$\frac{d}{dt} R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t) = -\frac{\kappa}{R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t)}.$$

Cette situation est illustrée par la figure 2.8. Ainsi  $R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t) = \sqrt{\bar{r}^2 - 2\kappa(t - \bar{t})}$ , en vertu de (2.60). Notons  $N_p(t) = n_p(t, R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t))$  la valeur de  $n_p$  sur cette caractéristique. En dérivant par rapport à  $t$  et en utilisant (2.63) on a

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N_p(t) &= \frac{\partial n_p}{\partial t}(t, R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t)) + \frac{\partial}{\partial r} n_p(t, R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t)) \frac{d}{dt} R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t) \\ &= \frac{\partial n_p}{\partial t}(t, R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t)) - \frac{\kappa}{R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t)} \frac{\partial}{\partial r} n_p(t, R_{(\bar{t}, \bar{r})}(t)) \\ &= -\frac{\kappa}{R_{(\bar{t}, \bar{r})}^2(t)} N_p(t). \end{aligned}$$

Ainsi

$$\frac{1}{N_p(t)} \frac{d}{dt} N_p(t) = -\frac{\kappa}{R_{(\bar{t}, \bar{r})}^2(t)}$$

qui implique que

$$\frac{d}{dt} \ln(N_p(t)) = -\frac{\kappa}{(\bar{r}^2 - 2\kappa(t - \bar{t}))}.$$

En intégrant on obtient

$$\ln(N_p(t)) = \frac{1}{2} \ln(\bar{r}^2 - 2\kappa(t - \bar{t})) + D$$

et donc  $N_p(t) = (\bar{r}^2 - 2\kappa(t - \bar{t}))^{1/2} \exp(D)$ . Si  $t = 0$ , on a :

$$N_p(0) = \exp(D) \sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}} = n_{p,0}(R_{(\bar{t}, \bar{r})}(0)) = n_{p,0}(\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}}).$$

Ainsi  $\exp(D) = \frac{n_{p,0}(\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}})}{\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}}}$  et

$$N_p(t) = \frac{n_{p,0}(\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}})}{\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}}} (\bar{r}^2 - 2\kappa(t - \bar{t}))^{1/2}.$$

Puisque  $N_p(\bar{t}) = n_p(\bar{t}, \bar{r})$ , on a

$$n_p(\bar{t}, \bar{r}) = \bar{r} \frac{n_{p,0}(\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}})}{\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\bar{t}}}. \quad (2.64)$$

**Remarque 3.** La solution (2.64) est exacte pour autant que le taux de dissolution  $\kappa$  soit constant sur l'intervalle de temps  $[0, T]$ . Cependant, si  $\kappa$  est constant sur le sous-intervalle  $[\bar{t} - \Delta t, \bar{t}]$  et que la distribution de particules  $n_p$  est connue au temps  $\bar{t} - \Delta t$ , alors on exprime facilement  $n_p$  au temps  $\bar{t}$  en fonction de  $n_p$  au temps  $\bar{t} - \Delta t$  en fonction de  $n_p$  au temps  $\bar{t} - dt$ .

En effet, supposons connu  $n_p(\bar{t} - \Delta t, r)$ ,  $\forall r \in (0, \infty)$ . Nous avons ainsi

$$R_{(\bar{t}, \bar{r})}(\bar{t} - \Delta t) = \sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t}.$$

Puisque  $N_p(t) = C (\bar{r}^2 - 2\kappa(t - \bar{t}))^{1/2}$ , alors

$$N_p(\bar{t} - \Delta t) = C (\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t)^{1/2} = n_p(t - \Delta t, \sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t}).$$

Ainsi

$$C = \frac{n_p(t - \Delta t, \sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t})}{(\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t)^{1/2}}$$

et donc

$$N(t) = \frac{n_p(t - \Delta t, \sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t})}{(\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t)^{1/2}} (\bar{r}^2 - 2\kappa(t - \bar{t}))^{1/2}.$$

Puisque  $N(\bar{t}) = n_p(\bar{t}, \bar{r})$ , on obtient

$$n_p(\bar{t}, \bar{r}) = \bar{r} \frac{n_p(\bar{t} - \Delta t, \sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t})}{\sqrt{\bar{r}^2 + 2\kappa\Delta t}}.$$

**Approximation numérique** Pour discrétiser l'équation (2.61) on procède comme dans Hofer [Hof11] et on utilise une méthode des caractéristiques [Pir89].

Soit  $T > 0$  le temps final et soit  $N \in \mathbb{N}^*$  le nombre de pas de temps. Soient  $\Delta t = T/N$  et  $t_n = n\tau$ ,  $n = 0, 1, \dots, N$  une subdivision uniforme de  $[0, T]$ . De plus on suppose donnée une suite de nombres  $\kappa^n \geq 0$ ,  $n = 0, 1, \dots, N - 1$ . Le nombre  $\kappa^n$  est la valeur du taux de dissolution sur l'intervalle de temps  $[t^n, t^{n+1}]$ .

Soit  $R_{\text{Max}} > 0$  et  $M \in \mathbb{N}^*$  le nombre de subdivisions de l'intervalle  $[0, R_{\text{Max}}]$ . Soient  $\Delta r = R_{\text{Max}}/M$  et  $r_j = j\Delta r$  une subdivision de  $[0, R_{\text{Max}}]$ .

Pour que le problème soit bien posé sur le domaine  $(0, R_{\text{Max}})$  et puisque la vitesse de dissolution  $f$  est négative, on considère en plus la condition limite sur le bord entrant  $r = R_{\text{Max}}$  :

$$n_p(t, R_{\text{Max}}) = 0, \quad \forall t \in [0, T].$$

Notons  $n_{p,j}^n$  l'approximation de  $n_p(t_n, r_j)$  que l'on suppose connue pour  $j = 1, 2, \dots, M$ . Les valeurs  $n_{p,j}^{n+1}$  sont calculées de la manière suivante. On utilise  $\kappa^n$  comme taux de dissolution sur l'intervalle de temps  $[t^n, t^{n+1}]$ . Soit  $R_j^n = \sqrt{r_j^2 + 2\kappa^n \Delta t}$  la position à l'instant  $t_n$  de la caractéristique passant par le point  $(t_{n+1}, r_j)$ . Soit  $s_j^n \in \mathbb{N}$  l'indice tel que  $r_{s_j^n} < R_j^n \leq r_{s_j^n+1}$ . Pour obtenir une approximation de  $n_p(t_n, R_j^n)$  on interpole linéairement les valeurs de  $n_{p,s_j^n}^n$  et  $n_{p,s_j^n+1}^n$ . Ainsi en utilisant le résultat de la remarque 3 on pose pour  $j = 1, \dots, M - 1$

$$n_{p,j}^{n+1} = \begin{cases} \left( \frac{r_{s_j^n+1} - R_j^n}{\Delta r} n_{p,s_j^n}^n + \frac{R_j^n - r_{s_j^n}}{\Delta r} n_{p,s_j^n+1}^n \right) \frac{r_j}{\sqrt{r_j^2 + 2\kappa^n \Delta t}}, & \text{si } s_j < M, \\ 0, & \text{sinon.} \end{cases} \quad (2.65)$$

**Validation numérique** On propose maintenant de valider l'implémentation du schéma numérique (2.65) en étudiant la convergence de l'erreur entre une solution exacte et son approximation numérique.

On fixe  $R_{\text{Max}} = 100 \text{ }\mu\text{m}$ ,  $T = 5 \text{ s}$  et le taux de dissolution  $\kappa^n = 0.5 \times 10^{-9}$  pour tout  $n$  tel que  $0 \leq n \leq N - 1$ . On choisit la distribution de particules initiale

$$n_{p,0}(r) = \exp \left( 1 - \frac{1}{1 - \frac{16}{R_{\text{Max}}^2} \left( r - \frac{R_{\text{Max}}^2}{2} \right)} \right). \quad (2.66)$$

Alors la solution exacte  $n_p(t, r)$  est donnée par l'expression (2.64). On note  $n_{p,\Delta r}^N$  la reconstruction continue linéaire par morceau des valeurs  $n_{p,j}^N$  sur la subdivision  $\{r_j\}_{j=0}^M$ , c'est-à-dire que

$$n_{p,\Delta r}^N(r) = n_{p,j}^N + \frac{r - r_j}{\Delta r} (n_{p,j+1}^N - n_{p,j}^N) \quad \text{si } r \in [r_j, r_{j+1}]. \quad (2.67)$$

On considère l'erreur  $L^2(0, R_{\text{Max}})$  entre la solution exacte  $n_p(T, \cdot)$  et  $n_{p,\Delta r}$ . La figure 2.9 illustre la solution et l'approximation numérique à différents instants. La figure 2.10 présente l'erreur  $\|n_p(T, \cdot) - n_{p,\Delta r}^N\|_{L^2(0, R_{\text{Max}})}$  pour  $\Delta r = 1/32, 1/64, 1/128, 1/256, 1/512, 1/1024, 1/2048$  et  $1/4096$ . On a choisi  $\Delta t = \alpha \Delta r$  avec  $\alpha = 0.934$ . L'erreur est comparée à une droite de pente 1. On constate que l'erreur de l'approximation numérique est un  $O(\Delta r)$ .

La section suivante tient lieu de conclusion de ce chapitre, et discute de la sédimentation des particules d'alumine dans le bain sous l'action de la force de gravité.

## 2.5 Chute de particules dans le bain

La densité de l'alumine  $\rho_{\text{Al}}$  qui constitue les particules est de  $3960 \text{ kg m}^{-3}$  soit environ deux fois supérieure à celle du bain électrolytique  $\rho_e$ , qui est de  $2130 \text{ kg m}^{-3}$ . Une particule d'alumine placée dans un bain électrolytique animé par un écoulement stationnaire subit ainsi l'effet de trois forces distinctes. D'une part, cette particule est freinée dans le fluide par l'intermédiaire d'une force de traînée  $F_D$ . Cette force est opposée à la vitesse relative de la particule par rapport au fluide. D'autre part, cette particule est entraînée vers le fond de la cuve par la force de gravité  $F_g$ , à laquelle s'oppose la force d'Archimède  $F_A$ .

Dans cette section, nous nous proposons d'évaluer l'importance des forces de gravité et d'Archimède devant la force de traînée. Dans ce but, on considère une particule d'alumine sphérique de rayon initial  $r_0$  placée dans un bain électrolytique au repos. On suppose que la température du bain  $\Theta$  et la concentration d'alumine  $c$  sont maintenue constantes au cours du temps. On suppose de plus que le mouvement du fluide autour de la particule n'influence pas sa dissolution. Alors, la variation du rayon  $r$  de la particule au cours du temps est décrite par l'équation (2.59). Comme on l'a vu dans la section 2.4, le rayon à l'instant  $t$  est donné par

$$r(t) = \sqrt{r_0^2 - 2\kappa t}, \quad (2.68)$$

où  $\kappa$  est le taux de dissolution, constant au cours du temps. Clairement pour

$$T = \frac{r_0^2}{2\kappa} \quad (2.69)$$

on obtient  $r(T) = 0$ , i.e., la particule est complètement dissoute au temps  $T$ .

On modélise la particule d'alumine, supposée non poreuse, par un point matériel de volume  $V(t) = \frac{4}{3}\pi r^3(t)$ . On travaille dans le référentiel de la Terre, et on suppose qu'elle



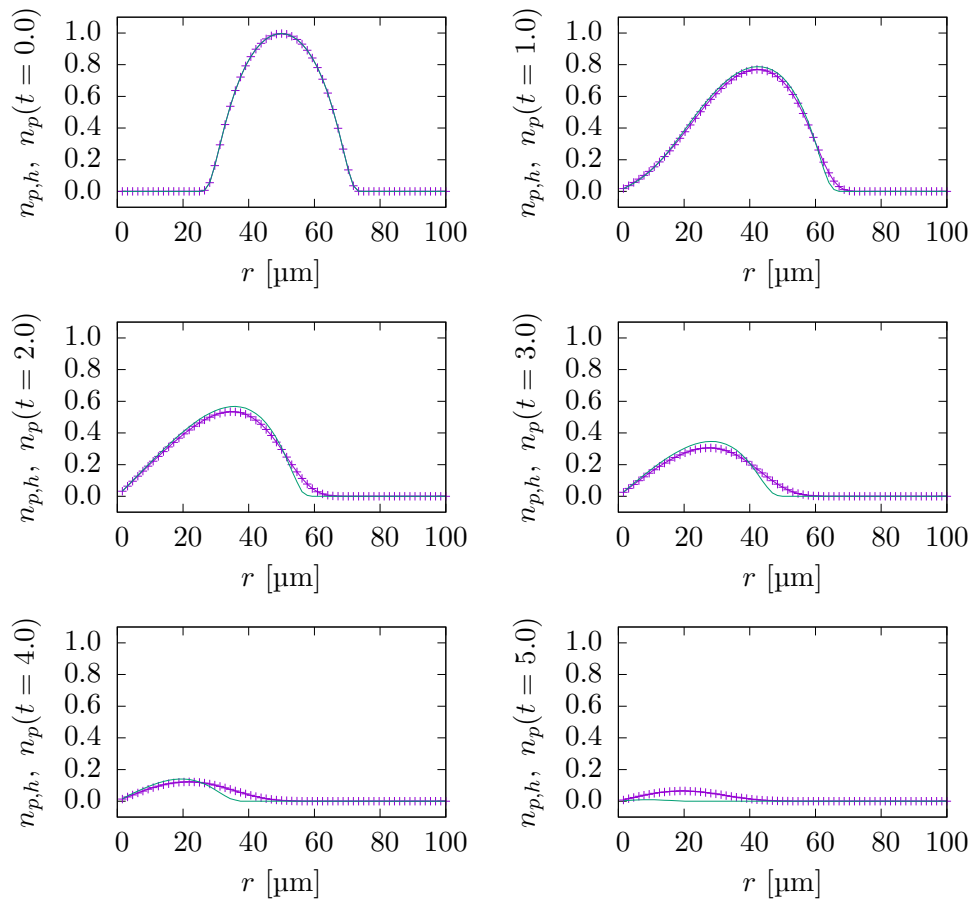


FIGURE 2.9 – Solution exacte  $n_p$  et approximation numérique avec  $\Delta r = 1/64$ ,  $\Delta t = 1.46 \times 10^{-2}$  et  $\kappa^n = 0.5 \times 10^{-9}$  à différents temps. La condition initiale est donnée par (2.66). En vert : solution exacte. En violet : approximation numérique.

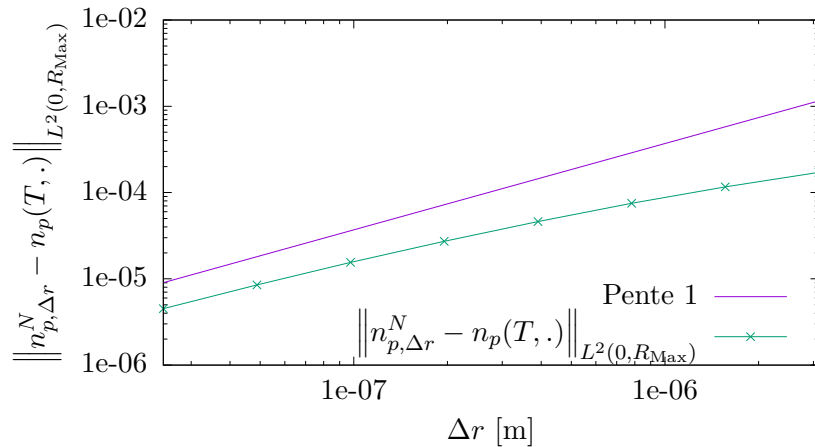


FIGURE 2.10 – Convergence de l'erreur  $L^2(0, R_{\text{Max}})$  entre  $n_p(T, \cdot)$  et la reconstruction linéaire par morceau des approximations  $n_{p,j}^N$  sur la subdivision  $\{r_j\}_{j=0}^M$ . Le pas de temps est choisi tel que  $\Delta t \propto \Delta r$ .

se déplace verticalement dans ce référentiel. On note  $x(t) \in \mathbb{R}$  sa position selon un système de coordonnées vertical et dirigé vers le bas à l'instant  $t \in [0, T]$  et  $\dot{x}(t) = \frac{dx}{dt}(t)$  sa vitesse. La particule étant sphérique, on propose d'approximer la force de traînée par la loi de Stokes. Si  $v$  est la vitesse de la particule par rapport au fluide, lui-même au repos dans le référentiel, on a

$$F_D(r, v) = -6\pi\mu r v.$$

Ici on a noté  $\mu$  la viscosité dynamique de l'électrolyte. Il est connu que cette approximation est valide pour autant que le nombre de Reynolds de l'écoulement  $R_e$  soit suffisamment faible, i.e.,  $R_e \lesssim 1$ . On montrera a posteriori que cette condition est en général satisfaite pour des particules d'alumine qui sont typiquement injectées dans le bain électrolytique.

Les forces de gravité  $F_g$  et d'Archimède  $F_A$  en fonction du rayon  $r$  de la particule sont données respectivement par

$$F_g(r) = \frac{4}{3}\pi r^3 \rho_{Al} g \quad \text{et} \quad F_A(r) = -\frac{4}{3}\pi r^3 \rho_e g$$

où  $g = 9.81 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  est l'accélération de la gravité.

L'équation du mouvement de la particule s'obtient à l'aide de la deuxième loi de Newton qui lie la somme des forces à l'impulsion  $p = m\dot{x}$  :

$$\dot{p}(t) = F_D(r(t), \dot{x}(t)) + F_g(r(t)) + F_A(r(t)),$$

soit

$$\frac{d}{dt} (\rho_{Al} V(t) \dot{x}(t)) = \frac{4}{3}\pi r^3(t) (\rho_{Al} - \rho_e) g - 6\pi\mu r(t) \dot{x}(t). \quad (2.70)$$

On suppose que la particule se trouve initialement en  $x(0) = 0$  avec une vitesse  $\dot{x}(0) = v_0$ .

En utilisant la relation (2.56), nous avons

$$\dot{V}(t) = -4\pi\kappa r(t). \quad (2.71)$$

En remplaçant (2.71) dans l'égalité (2.70), en tenant compte du fait que  $V(t) = \frac{4}{3}\pi r^3(t)$ , puis en divisant par  $\pi r(t)$  nous obtenons

$$\rho_{Al} \frac{4}{3} r^2(t) \ddot{x}(t) = g (\rho_{Al} - \rho_e) \frac{4}{3} r^2(t) - (6\mu - 4\rho_{Al}\kappa) \dot{x}(t). \quad (2.72)$$

En utilisant (2.68), (2.69) et en intégrant l'équation (2.72) sur l'intervalle de temps  $[0, T]$ , nous obtenons

$$(6\mu - 4\rho_{Al}\kappa) x(T) = g (\rho_{Al} - \rho_e) \frac{r_0^4}{3\kappa} - \rho_{Al} \frac{4}{3} \int_0^T (r_0^2 - 2\kappa t) \dot{x}(t) dt. \quad (2.73)$$

Le dernier terme de l'équation (2.73) s'intègre par partie,

$$\int_0^T (r_0^2 - 2\kappa t) \dot{x}(t) dt = (r_0^2 - 2\kappa T) x(T) + 2\kappa x(T) = 2\kappa x(T), \quad (2.74)$$

et nous obtenons finalement la profondeur terminale de la particule au moment de sa dissolution complète

$$x(T) = \frac{g (\rho_{Al} - \rho_e)}{\kappa (18\mu - 4\rho_{Al}\kappa)} r_0^4 + \frac{2\rho_{Al}v_0}{9\mu - 2\rho_{Al}\kappa} r_0^2. \quad (2.75)$$

Les valeurs des paramètres physiques qui correspondent à une particule d'alumine dans un bain et qui interviennent dans l'équation (2.75) sont synthétisées dans la table 2.2.

TABLE 2.2 – Paramètres physiques qui interviennent dans la chute d’une particule d’alumine dans un bain électrolytique.

Quantité	Valeur	Unités	Description
$\rho_e$	2130	$\text{kg m}^{-3}$	Masse volumique du bain électrolytique
$\rho_{\text{Al}}$	3960	$\text{kg m}^{-3}$	Masse volumique de l’oxyde d’aluminium
$g$	9.81	$\text{m s}^{-2}$	Accélération de la gravité terrestre
$\kappa$	$0.5 \times 10^{-9}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	Taux de dissolution de l’alumine
$\mu$	$2 \times 10^{-3}$	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	Viscosité dynamique du bain électrolytique

Contrairement à l’hypothèse admise ici, le bain d’une cuve d’électrolyse est animé par une forte agitation. Ces turbulences correspondent à une viscosité équivalente  $\mu$  qui caractérise l’écoulement moyenné au cours du temps. Dans le bain d’une installation industrielle, cette viscosité turbulente est typiquement de l’ordre de  $1 \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  ou plus, et domine donc largement la viscosité physique du fluide. Pour cette raison nous considérons des viscosités dans l’intervalle  $[2 \times 10^{-3}, 1]$ .

Les doses de particules d’alumine ne sont en général pas délicatement déposées à la surface du bain ; les particules sont lâchées depuis une hauteur qui varie entre 20 cm et 40 cm par rapport à la surface du bain. On modélise cette condition à l’aide de la vitesse initiale  $v_0$ . La vitesse verticale atteinte par une masse en chute libre dans le champ de pesanteur terrestre sur une hauteur  $L$  et initialement au repos est donnée par l’expression  $\sqrt{2gL}$ . Par conséquent nous considérerons des vitesses initiales  $v_0$  entre 0 et  $3 \text{ m s}^{-1}$ .

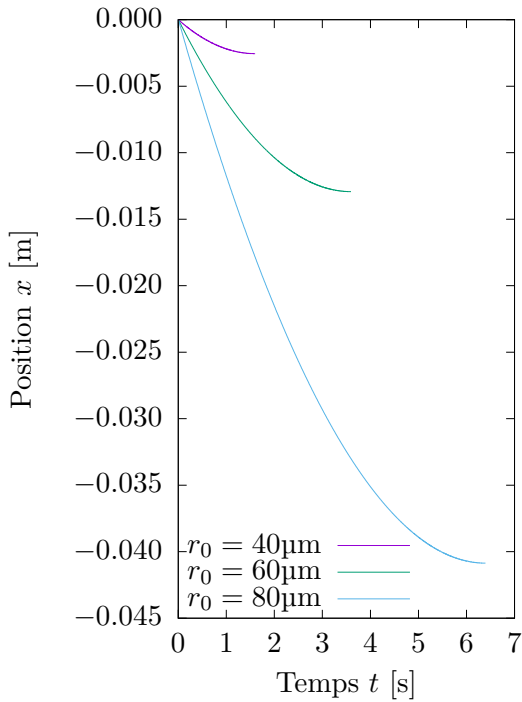
La table 2.3 présente la profondeur terminale de la particule d’alumine donnée par la relation (2.75) en fonction des conditions initiales  $r_0, v_0$  et la viscosité dynamique du fluide  $\mu$ . Lorsque  $\mu = 2 \times 10^{-3}$ , c’est-à-dire que la particule est placée dans un fluide immobile, une profondeur maximale de 4 cm environ est atteinte lorsque  $r_0 = 80 \text{ }\mu\text{m}$  et avec une vitesse initiale  $v_0 = 3 \text{ m s}^{-1}$ . La profondeur maximale lorsque le rayon initial est inférieur à  $80 \text{ }\mu\text{m}$  est systématiquement inférieure à 1 cm.

Dans cette section on a donné une expression exacte pour la position de la particule lorsque celle-ci est complètement dissoute, c’est-à-dire lorsque  $t = T$  (voir (2.69)). La position de la particule  $x(t)$  pour tout  $t \in (0, T)$  nécessite l’intégration de l’équation différentielle linéaire non homogène et à coefficients variables (2.72). Nous ne chercherons pas ici à expliciter la solution exacte pour  $x(t)$ . Cependant, il est facile d’obtenir une approximation numérique de  $x$  à l’aide des intégrateurs offerts par MatLAB®, ode45 par exemple. La figure 2.11 présente les trajectoires adoptées par trois particules de rayon initiaux différents. La figure 2.11a montre la trajectoire en entier jusqu’à dissolution complète de chaque particule, tandis que la figure 2.11b illustre la phase d’accélération initiale de chaque particule qui succède immédiatement à la condition initiale.

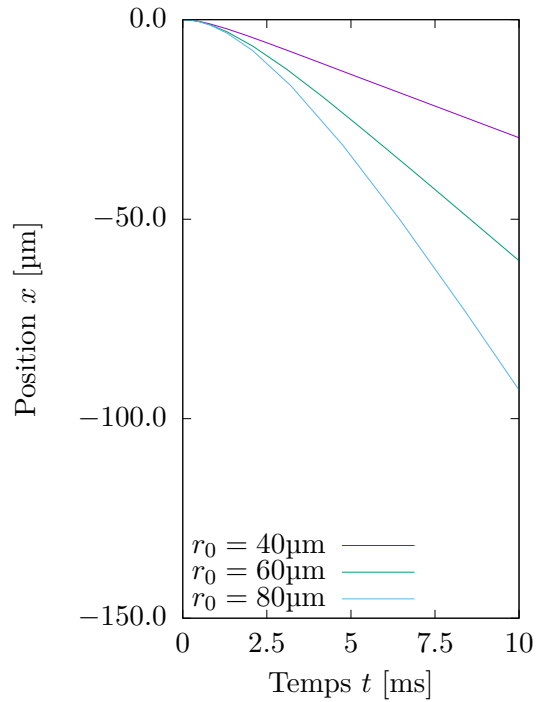
Nous concluons cette section par quatre remarques qui traitent premièrement de la validité de la loi de Stokes pour la force de traînée, deuxièmement de l’importance de la vitesse initiale de la particule sur la profondeur terminale de la particule, troisièmement du temps caractéristique pour qu’une particule soit emportée par un fluide en mouvement laminaire et quatrièmement de la validité de l’hypothèse qui suppose un fluide au repos dans le bain d’une cuve d’électrolyse.

TABLE 2.3 – Profondeur terminale de la particule dans le bain électrolytique en fonction des conditions initiales  $r_0$  [ $\mu\text{m}$ ],  $v_0$  [ $\text{m s}^{-1}$ ] et de la viscosité dynamique  $\mu$  [ $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ ].

	$\mu = 2 \times 10^{-3}$	$\mu = 1 \times 10^{-2}$	$\mu = 1 \times 10^{-1}$	$\mu = 1$
$v_0 = 0$				
$r_0 = 40$	2.553778e-03	5.106657e-04	5.106454e-05	5.106434e-06
$r_0 = 60$	1.292850e-02	2.585245e-03	2.585143e-04	2.585132e-05
$r_0 = 80$	4.086045e-02	8.170651e-03	8.170327e-04	8.170295e-05
$v_0 = 2$				
$r_0 = 40$	3.962088e-03	7.922781e-04	7.922467e-05	7.922435e-06
$r_0 = 60$	1.609720e-02	3.218873e-03	3.218745e-04	3.218733e-05
$r_0 = 80$	4.649368e-02	9.297100e-03	9.296732e-04	9.296695e-05
$v_0 = 3$				
$r_0 = 40$	4.666243e-03	9.330843e-04	9.330473e-05	9.330436e-06
$r_0 = 60$	1.768155e-02	3.535687e-03	3.535547e-04	3.535533e-05
$r_0 = 80$	4.931030e-02	9.860325e-03	9.859935e-04	9.859896e-05



(a) Trajectoire des particules.



(b) Zoom sur la phase d'accélération initiale.

FIGURE 2.11 – Trajectoires de trois particules de rayons initiaux  $r_0 = 40, 60$  et  $80 \mu\text{m}$  et une vitesse initiale  $v_0 = 0$ . Les trajectoires sont intégrées pour  $t < T = \frac{r_0^2}{2\kappa}$ . Notez les échelles différentes sur chaque graphique.

**Remarque 4.** En considérant la relation (2.75), on peut évaluer l'effet de la vitesse initiale de la particule sur sa position terminale. Les contributions des deux termes à droite de l'égalité (2.75) sont identiques lorsque la vitesse initiale est telle que

$$v_0 = \frac{g}{4\kappa} \frac{\rho_{Al} - \rho_e}{\rho_{Al}} r_0^2.$$

Pour une particule de rayon initial  $r_0 = 80 \mu\text{m}$ , cette vitesse initiale est de  $v_0 = 14.5 \text{ m s}^{-1}$ , ce qui correspond à une hauteur de chute libre d'environ 10 m. On conclut à contrario que, dans une cuve d'électrolyse industrielle typique, la vitesse initiales des particules suffisamment dispersées qui pénètrent dans le bain est négligeable sur leur profondeur de pénétration.

**Remarque 5.** Le nombre de Reynolds d'une sphère de rayon  $r$  en mouvement rectiligne uniforme dans un fluide au repos est donné par

$$R_e = \frac{2\rho_e v r}{\mu}$$

où  $v$  est sa vitesse relative au fluide. En supposant  $r$  fixé, l'équation du mouvement d'une particule dans le fluide s'écrit

$$\rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 \ddot{x}(t) = \frac{4}{3} \pi r^3 (\rho_{Al} - \rho_e) g - 6\pi\mu r \dot{x}(t). \quad (2.76)$$

On obtient la vitesse limite de chute de la particule  $w$  en remplaçant  $\dot{x}$  par  $w$  dans (2.76) et en posant  $\ddot{x} = 0$  (accélération nulle). En résolvant pour la vitesse limite de chute on obtient  $w$  qui s'exprime comme une fonction du rayon  $r$  de la sphère :

$$w(r) = \frac{2}{9} \frac{g(\rho_{Al} - \rho_e)}{\mu} r^2. \quad (2.77)$$

Le nombre de Reynolds associé à cet écoulement s'écrit comme

$$R_e = \frac{4}{9} \frac{g\rho_e(\rho_{Al} - \rho_e)}{\mu^2} r^3.$$

En reprenant les conditions considérées dans la table 2.3 et les paramètres de la table 2.2, on obtient un nombre de Reynolds maximal pour  $\mu = 2 \times 10^{-3} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  et  $r_0 = 80 \mu\text{m}$ , soit  $R_e \simeq 2.2$ . Ce résultat justifie l'utilisation de la loi de Stokes pour modéliser la force de traînée de la particule.

**Remarque 6.** En négligeant la force de gravité ( $g = 0$ ), l'équation du mouvement d'une particule d'alumine de rayon  $r_0$  supposé constant au cours du temps s'écrit

$$\rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r_0^3 \ddot{x}(t) = -6\pi\mu r_0 \dot{x}(t),$$

et on considère les conditions initiales  $x(0) = 0$  et  $\dot{x}(0) = v_0$ . On peut intégrer cette équation exactement, et on obtient la vitesse de la particule au cours du temps

$$\dot{x}(t) = v_0 \exp\left(-\frac{9\mu}{2\rho_{Al} r_0^2} t\right).$$

La vitesse approche zéro sur une échelle de temps données par  $\frac{2\rho_{Al} r_0^2}{9\mu}$ , c'est-à-dire environ  $2.8 \times 10^{-3} \text{ s}$  pour une particule de rayon  $r_0 = 80 \mu\text{m}$  et dans un fluide au repos de même densité, i.e., avec  $\mu = 2 \times 10^{-3}$ . Autrement dit, le temps nécessaire à une particule pour être entraînée et transportée par un fluide à la même vitesse que celui-ci est négligeable devant les temps caractéristiques des autres phénomènes qui prennent place dans la cuve et que l'on s'intéresse à modéliser. Cette observation permet de justifier l'approximation qui sera faite dans le chapitre 3, où on supposera que les particules suivent exactement les lignes de courant de l'écoulement.

**Remarque 7.** Le bain électrolytique d'une cuve n'est jamais au repos, en particulier dans les canaux où le fluide est agité par les bulles de gaz qui résultent de l'électrolyse et qui remontent à la surface du bain. Les turbulences se manifestent par une viscosité apparente de l'écoulement moyen supérieure à la viscosité laminaire du bain. Dans le bain d'une cuve d'électrolyse industrielle, cette viscosité turbulente est typiquement de l'ordre de  $1 \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Cette situation correspond aux trois dernières colonnes à droite de la table 2.3. Dans ce cas, on constate que la profondeur maximale est systématiquement de l'ordre de 1 mm, ou inférieure.

On conclut que la gravité a un effet négligeable sur le transport de particules individuelles dans une cuve d'électrolyse. Dans la suite de ce travail, nous ferons l'hypothèse que l'injection des doses de particules d'alumine ne perturbe pas l'écoulement du bain. Dans ce cadre, nous négligerons l'effet de la force de gravité sur la trajectoire des particules dans les chapitres 3 et 4 qui suivent.

## Chapitre 3

# Populations de particules

### 3.1 Introduction

Une cuve d'électrolyse d'aluminium industrielle est caractérisée par le fait que plusieurs phénomènes physiques entrent en jeu et interagissent à des échelles similaires. Tout d'abord, le courant électrique continu qui traverse une cuve d'électrolyse industrielle moderne est de l'ordre de 500 kA à 1 MA. Une telle intensité de courant génère d'une part un champ d'induction magnétique qui affecte l'opération de la cuve, mais également les cuves voisines. D'autre part, la chute de potentiel d'environ 4 V à travers les électrodes et les fluides [Hau95] provoque la dissipation de grandes quantités d'énergie sous forme thermique. Cette production de chaleur est nécessaire car elle permet de maintenir le bain électrolytique sous forme liquide. Cependant, une surchauffe trop importante est néfaste pour une cuve, qui risque alors de subir une usure et une fin de vie prématurée en plus d'occasionner des pertes d'énergie.

Au niveau de la cathode en carbone qui forme le fond de la cuve, la réaction d'électrolyse



produit de l'aluminium sous forme métallique. L'aluminium métallique, qui est peu soluble dans l'électrolyte, est liquide à la température d'opération d'une cuve et de densité légèrement supérieure à celle de l'électrolyte. Il forme une couche de métal en fusion au fond de la cuve. C'est alors la surface du métal en fusion qui joue véritablement le rôle de cathode sur laquelle a lieu la réaction d'électrolyse.

Le bain électrolytique et le métal liquide sont traversés par l'ensemble du courant électrique et, en présence du champ d'induction magnétique, subissent une force de Lorentz qui les met en mouvement. L'écoulement dans les fluides est bénéfique. Il permet de transporter la chaleur à l'extérieur du système plus rapidement que par conduction pure, homogénéise la distribution de la température et la composition chimique dans l'ensemble du bain et facilite le transport et la dispersion des particules d'alumine injectées à intervalles réguliers dans le bain.

Cependant, il est crucial que l'interface bain-métal soit aussi stable que possible. Pour des raisons d'économie d'énergie, la distance moyenne entre le fond des anodes<sup>1</sup> et l'interface est réduite autant que possible. Dans une cuve moderne, cette distance est de l'ordre de 2 à 4 cm. Si les écoulements dans les fluides deviennent trop rapides, des turbulences se

---

1. Le fond des anodes est défini comme la surface des anodes orientée vers le bas, face à la cathode.

forment et viennent perturber la forme de l'interface. De plus, le système magnétohydrodynamique formé par le circuit électrique, le champ d'induction magnétique et les deux fluides peut devenir, sous certaines conditions, physiquement instable, c'est-à-dire que de petites perturbations du système sont amplifiées par elles-mêmes. De telles instabilités affectent la forme de l'interface bain-métal, et leur occurrence présente un défi qui a déjà fait l'objet de nombreux travaux de recherche. Le lecteur intéressé se référera par exemple à [DFR98], [Sne85] ou encore [MR96].

Le métal liquide ayant une conductivité électrique bien supérieure à celle du bain électrolytique [WPT92, Apf03], le contact entre les anodes et la nappe de métal pourrait créer un court-circuit. Les court-circuits diminuent le rendement du procédé et peuvent créer des défauts à la surface des anodes qui affectent l'opération de la cuve à long terme.

De l'alumine doit être injectée régulièrement dans le bain électrolytique, sous forme de poudre, pour compléter l'alumine dissoute consommée par la réaction d'électrolyse. Puisque la majeure partie du bain est recouverte par les blocs anodiques et en raison de la présence de la croûte qui protège sa surface libre, l'injection de poudre d'alumine ne peut avoir lieu que en quelques points d'injection distribués le long du canal central. Dans une cuve industrielle, le nombre de points d'injection est typiquement compris entre 4 et 6. La dispersion et le transport des particules d'alumine et de la concentration d'alumine qui résulte de leur dissolution dépend crucialement de la présence et de la force de l'écoulement dans le bain électrolytique. De nombreux travaux de recherche ont pour objectif la modélisation et l'approximation numérique des écoulement dans le bain et le métal d'une cuve d'électrolyse industrielle. Dans ce travail, nous utiliserons les résultats de S. Pain [Pai06], G. Steiner [Ste09] et J. Rochat [Roc16] à cette fin. Le modèle d'écoulement proposé dans [Ste09] consiste à considérer un système couplé formé par les équations du potentiel électrique dans les conducteurs, par les équations de Maxwell dans le vide, dans le caisson ferromagnétique, dans le bain électrolytique et dans le métal, et finalement par des équations de Navier-Stokes dans chaque fluide. Dans ce problème, l'interface bain-métal est une inconnue. Les écoulements dans les fluides sont turbulents. Les structures des écoulements dont la taille est inférieure à la résolution de la grille de discrétisation sont modélisés par un modèle de longueur de mélange de Smagorinsky [Roc16]. Dans ce chapitre nous utiliserons ce modèle, implémenté dans le logiciel `Aluce11`[Ste09], pour obtenir le domaine  $\Omega$  occupé par le bain d'une cuve d'électrolyse industrielle, une approximation de la vitesse d'écoulement stationnaire  $u_h$  et une approximation de la densité de courant électrique stationnaire  $j_h$  dans  $\Omega$ .

Le logiciel `Aluce11`, actuellement développé conjointement par l'EPFL et la société YcoorSystems SA à Sierre, est le fruit de nombreux travaux de recherche. Cette thèse se base sur les méthodes numériques de calculs d'écoulement dans les cuves d'électrolyse d'aluminium développées à l'EPFL, en particulier par S. Pain [Pai06], G. Steiner [Ste09], J. Rochat [Roc16] et T. Hofer [Hof11], et qui sont toutes implémentées avec `Aluce11`. Un historique détaillé du logiciel se trouve dans la thèse de G. Steiner [Ste09]. Par conséquent, utiliserons également `Aluce11` pour l'implémentation des méthodes numériques dans ce chapitre.

Ce travail porte sur la modélisation des particules d'alumine injectées dans le bain et leur dissolution. On suivra l'approche adoptée par T. Hofer [Hof11] et on représentera l'évolution d'une famille de particules sous la forme d'une distribution en taille et en espace  $n_p$ . Cette population évolue d'une part dans le bain par le biais de la vitesse d'écoulement  $u$  de celui-ci, et d'autre part par la dissolution des particules au cours du temps, en fonction de la concentration d'alumine locale dans le bain et de sa température telle que décrite par la vitesse de dissolution  $f$  introduite dans la section 2.3. En plus de la densité de



particule  $n_p$ , nous modéliserons l'évolution de la concentration d'alumine dissoute  $c$  et la température  $\Theta$  dans le bain, puisque la dissolution des particules en dépend.

Dans la section 3.2, nous introduisons les équations qui décrivent l'évolution de la densité de particules  $n_p$ , la concentration d'alumine dissoute  $c$  et la température du bain  $\Theta$ . Dans la section 3.3 nous traitons la discrétisation en temps du système formé par les équations pour  $n_p$ ,  $c$  et  $\Theta$  introduites dans la section 3.2. Finalement, dans la section 3.4 nous considérons et discutons l'application du modèle de transport et dissolution de particules d'alumine au cas d'une cuve d'électrolyse industrielle AP32.

## 3.2 Modèle de transport et dissolution d'alumine

Soit  $\Omega \subset \mathbb{R}^3$  le domaine ouvert donné, occupé par le bain électrolytique. Ce bain est animé par une vitesse d'écoulement  $u : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^3$  stationnaire donnée et telle que  $\operatorname{div} u = 0$  dans  $\Omega$  et  $u \cdot \nu = 0$  sur le bord  $\partial\Omega$  de  $\Omega$ , où ici  $\nu$  est la normale unité. On note  $T$  le temps auquel nous souhaitons connaître la solution. Dans ce chapitre on note  $c(t, x)$  la concentration d'alumine dissoute en  $\text{mol m}^{-3}$  et  $\Theta(t, x)$  la température dans le bain en Kelvin à l'instant  $t \in [0, T]$  et à l'endroit  $x \in \Omega$ .

**Vitesse de transport** La force de gravité a pour effet d'entraîner les particules d'alumine vers le fond de la cuve. Nous avons vu dans la section 2.5 que le temps caractéristique nécessaire pour qu'une particule typique atteigne d'une part sa vitesse stationnaire de chute et d'autre part la vitesse de l'écoulement du bain est de l'ordre de quelques millisecondes. La vitesse maximale de l'écoulement stationnaire dans une cuve d'électrolyse d'aluminium étant de l'ordre de  $0.1 \text{ m s}^{-1}$ , cette période transitoire s'étend sur des distances d'environ  $1 \times 10^{-4} \text{ m}$ , ce qui est largement inférieure à la résolution spatiale des grilles que l'on utilise dans des calculs industriels. Par conséquent, nous ferons deux hypothèses simplificatrices dans le cadre du modèle de transport et dissolution de particules d'alumine. Premièrement, nous supposons que le champ de gravité a pour effet de transporter les particules vers le fond de la cuve. On prendra comme vitesse de transport la vitesse stationnaire de chute (2.77) d'une particule soumise à la force de traînée de Stokes. Cette force dépend du rayon des particules. Ce transport gravitationnel des particules, qui a lieu dans l'ensemble du bain, est modélisé par un champ  $w(r) : \Omega \times [0, \infty) \rightarrow \mathbb{R}^3$  défini par

$$w(r) = -\frac{2g(\rho_{\text{Al}} - \rho_e)}{9\mu} r^2 \hat{e}_3 \quad (3.2)$$

en vertu de (2.77). On a noté  $\hat{e}_3$  le vecteur unitaire vertical dirigé vers le haut. Clairement, le champ  $w$  est tel que  $\operatorname{div} w = 0$  dans  $\Omega$ . Deuxièmement, nous supposons que les particules suivent exactement les lignes de courant du champ de transport  $u + w$  dans le domaine  $\Omega$ . Par ailleurs, la concentration d'alumine dissoute  $c$  et la température du bain électrolytique  $\Theta$  seront transportés par la vitesse d'écoulement  $u$ , et diffusés.

**Populations de particules** Dans une cuve industrielle, de l'alumine en poudre doit être injectée à intervalles réguliers dans le bain. Nous modélisons ces injections sous la forme d'une série d'évènements instantanés, successifs dans le temps. Soit  $K$  le nombre total d'injections, et soit un ensemble de nombres réels  $\tau^k$ ,  $k = 1, 2, \dots, K$  tels que  $0 \leq \tau^k < T \forall k$ , où les  $\tau^k$  représentent les instants auxquels surviennent chaque injection. Pour toute injection  $k = 1, 2, \dots, K$ , la distribution initiale de particule est notée  $S^k : (x, r) \in \Omega \times$

$\mathbb{R}_+ \rightarrow S^k(x, r) \in \mathbb{R}_+$  et est supposée donnée. Les distributions initiales de particules  $S^k$  s'expriment en  $\text{kg m}^{-3} \text{m}^{-1}$ .

On note  $n_p^k(t, x, r)$ ,  $k = 1, 2, \dots, K$  la densité en espace et en taille de particules issues de l'injection  $k$  dans le bain électrolytique à l'instant  $t \in [0, T]$ . Autrement dit, la quantité  $n_p^k(t, x, r) dx dr$  représente le nombre de particules, à l'instant  $t$ , dans le volume infinitésimal  $dx$  autour du point  $x \in \Omega$  (entre  $x$  et  $x + dx$ ) et dont la taille est comprise dans l'intervalle  $[r, r + dr]$ . Soit  $\Theta_{\text{Lat}} \geq 0$  le temps de latence avant que les particules ne commencent à se dissoudre suite à leur injection dans le bain. Ce temps de latence a fait l'objet d'une discussion dans la section 2.2. Chaque population de particules  $n_p^k$ ,  $k = 1, 2, \dots, K$  satisfait les équations lorsque  $x \in \Omega$ ,  $r \in \mathbb{R}_+$  :

$$n_p^k(t, x, r) = 0, \quad 0 \leq t < \tau^k, \quad (3.3)$$

$$n_p^k(\tau^k, x, r) = S^k(x, r), \quad (3.4)$$

$$\frac{\partial n_p^k}{\partial t} + (u(x) + w(r)) \cdot \nabla n_p^k = 0, \quad \tau^k < t \leq \tau^k + \Theta_{\text{Lat}}, \quad (3.5)$$

$$\frac{\partial n_p^k}{\partial t} + (u(x) + w(r)) \cdot \nabla n_p^k + \frac{\partial}{\partial r} (f(r, c, \Theta) n_p^k) = 0, \quad \tau^k + \Theta_{\text{Lat}} < t \leq T, \quad (3.6)$$

où l'opérateur  $\nabla = (\partial_{x_1}, \partial_{x_2}, \partial_{x_3})^t$ . La vitesse de dissolution  $f$  qui intervient dans l'équation (3.6) a déjà été définie dans la section 2.3 par l'expression (2.56). Les équations (3.5) et (3.6) sont complétées par une condition aux limites sur le bord entrant. Plus précisément, soit  $\Gamma^-$  la partie du bord  $\partial\Omega$  de  $\Omega$  définie par

$$\Gamma^- = \{x \in \partial\Omega \mid \nu \cdot (w + u) < 0\}. \quad (3.7)$$

Ici,  $\nu$  est le vecteur normal unitaire extérieur à la surface  $\partial\Omega$ . La condition aux limites sur le bord entrant s'écrit alors pour tout  $k = 1, 2, \dots, K$  et  $t > \tau^k$

$$n_p^k(t, x) = 0, \quad x \in \Gamma^-. \quad (3.8)$$

La densité totale de particules au temps  $t \in [0, T]$ , à l'endroit  $x \in \Omega$  et fonction de  $r$  est donnée par

$$n_p(t, x, r) = \sum_{k=1}^K n_p^k(t, x, r). \quad (3.9)$$

**Remarque 8.** Les quantités  $n_p^k$  introduites ici sont similaires au champ  $n_p$  décrit dans la section 2.4, à ceci près que les champs  $n_p^k$  sont des fonctions du temps  $t$  et du rayon  $r$  des particules, mais aussi du lieu  $x$  dans le domaine  $\Omega$  occupé par le bain électrolytique.

**Consommation de l'alumine dissoute** La concentration d'alumine dissoute est consommée<sup>2</sup> par la réaction d'électrolyse. Si  $I$  est le courant électrique total imposé traversant la cuve, le débit total d'alumine dissoute consommée en  $\text{mols}^{-1}$  est proportionnel à  $I$  et s'écrit

$$\frac{I}{6F} \quad (3.10)$$

où  $F = 96485.33 \text{ C mol}^{-1}$  est la constante de Faraday. Le facteur 6 provient du fait qu'il faut 6 électrons pour réduire une molécule d' $\text{Al}_2\text{O}_3$ , et produire deux molécules d'aluminium métallique Al.

2. On parle de consommation de l'alumine dissoute lorsqu'une paire de ions  $\text{Al}^{3+}$  issus de la dissociation d'une molécule d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  est réduite au niveau de la cathode.

On suppose que la consommation d'alumine dissoute qui a lieu dans le bain électrolytique est proportionnelle à la densité de courant électrique locale  $j : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^3$ . On définit alors le terme de disparition de la concentration d'alumine  $q_1$  associé à la consommation par la réaction d'électrolyse

$$q_1(x) = -\frac{I}{6F} \frac{|j(x)|}{\int_{\Omega} |j(x)| \, dx} \quad (3.11)$$

de sorte à avoir la consommation totale sur  $\Omega$

$$\int_{\Omega} q_1(x) \, dx = -\frac{I}{6F}. \quad (3.12)$$

**Dissolution des particules d'alumine** La masse perdue par la population de particules d'alumine  $n_p$  vient contribuer à la concentration d'alumine dissoute. On définit  $q_2$  le terme source de la concentration qui représente l'apport dû à la dissolution des particules de la manière suivante. Si  $t \in [0, T]$ , on note  $\bar{k}(t)$  l'entier tel que  $\bar{k}(t) = \max_{1 \leq k \leq K} \{k \mid \tau^k + \Theta_{\text{Lat}} < t\}$ . Alors on définit

$$q_2(t, x) = -\sum_{k=1}^{\bar{k}(t)} \frac{4\pi\rho_{\text{Al}}}{[\text{Al}_2\text{O}_3]} \int_{\mathbb{R}_+} n_p^k(t, x, r) f(r, c(t, x), \Theta(t, x)) r^2 \, dr. \quad (3.13)$$

où  $[\text{Al}_2\text{O}_3] = 0.102 \text{ kg mol}^{-1}$  est la masse molaire de l'alumine. L'ensemble des indices  $k$  tels que  $1 \leq k \leq \bar{k}(t)$  représente l'ensemble des populations de particules  $n_p^k$  qui se dissolvent dans le bain à l'instant  $t \in [0, T]$ .

**Concentration d'alumine dissoute** La concentration d'alumine dissoute  $c$  est transportée dans le bain par la vitesse d'écoulement  $u$ , mais est de plus sujette à une diffusion liée d'une part à l'agitation moléculaire, et d'autre part aux turbulences de l'écoulement. Soit  $D_c > 0$  la diffusivité de la concentration d'alumine dissoute dans le bain, que l'on suppose étant fonction du champ de vitesse  $u$ . Alors la concentration  $c$  doit satisfaire l'équation

$$\frac{\partial c}{\partial t}(t, x) + u(x) \cdot \nabla c(t, x) - \text{div}(D_c(u(x)) \nabla c(t, x)) = q_1(x) + q_2(t, x), \quad \forall x \in \Omega, t \in (0, T). \quad (3.14)$$

Puisque qu'il ne peut y avoir de flux de masse d'alumine à travers le bord du domaine  $\Omega$ , la concentration doit satisfaire la condition aux limites de Neumann homogène

$$D_c(u(x)) \frac{\partial c}{\partial \nu}(t, x) = 0 \quad \forall x \in \partial\Omega, t \in [0, T]. \quad (3.15)$$

**Termes sources de la température du bain** Pour simplifier le modèle, on fait l'hypothèse que le bain électrolytique est isolé thermiquement, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de flux d'énergie thermique à travers le bord du domaine occupé par le bain.

L'énergie thermique du bain provient de trois sources distinctes.

Premièrement, les particules d'alumine sont injectées avec une température  $\Theta_{\text{Inj}} < \Theta$ , la température locale du bain. De l'énergie thermique est prélevée dans le bain pour rétablir

l'équilibre thermique entre celui-ci et les particules. On note  $p_1(t, x)$  la densité de puissance thermique extraite du bain pour réchauffer les particules, que l'on définit par

$$p_1(t, x) = -(\Theta_{\text{Init}} - \Theta_{\text{Inj}}) \sum_{k=1}^K \delta(t - \tau^k) \int_{\mathbb{R}_+} \rho_{\text{Al}} C_{\text{p,Al}} \frac{4}{3} \pi r^3 S^k(x, r) dr \quad (3.16)$$

où  $\delta$  est une masse de Dirac et  $\Theta_{\text{Init}}$  est la température initiale du bain. Dans (3.16) et pour rappel,  $\Theta_{\text{Init}}$  est la température initiale du bain électrolytique,  $C_{\text{p,Al}}$  et  $\rho_{\text{Al}}$  sont la chaleur spécifique et la densité de l'alumine, tandis que les  $S^k$  sont les distributions en espace et en rayon des doses de poudre d'alumine qui interviennent dans le membre de droite de (3.4).

**Remarque 9.** En réalité, la puissance nécessaire à réchauffer les particules  $p_1(t, x)$  est proportionnelle à  $\Theta(t, x) - \Theta_{\text{Inj}}$ . Cependant, dans (3.16) on utilise la température initiale du bain  $\Theta_{\text{Init}}$  à la place de  $\Theta(t, x)$ , ce qui revient à négliger l'écart entre  $\Theta(t, x)$  et  $\Theta_{\text{Init}}$ , qui est faible devant  $\Theta_{\text{Init}} - \Theta_{\text{Inj}}$ .

Deuxièmement, la réaction de dissolution de la poudre d'alumine est endothermique. On note  $p_2(t, x)$  la densité de puissance thermique utilisée par la réaction, que l'on définit pour tout  $x \in \Omega$  et  $t \in [0, T]$  par

$$p_2(t, x) = -\Delta H_{\text{Diss}} q_2(t, x), \quad (3.17)$$

où  $\Delta H_{\text{Diss}}$  est l'enthalpie molaire nécessaire à la dissolution de l'alumine. On rappelle que  $q_2(t, \cdot)$  est le débit molaire par unité de volume d'alumine dissoute à l'instant  $t$ .

Et troisièmement, la résistivité électrique de l'électrolyte engendre la conversion d'une partie de l'énergie électrique en énergie thermique par effet Joule. Cette source d'énergie thermique  $p_3$  par effet Joule dépend de la densité de courant stationnaire  $j$  et s'écrit

$$p_3(x) = \frac{j \cdot j}{\sigma}. \quad (3.18)$$

où le nombre réel  $\sigma > 0$  est la conductivité électrique du bain que l'on suppose constante dans tout  $\Omega$ .

**Température du bain** Tout comme la concentration d'alumine, la température du bain électrolytique  $\Theta$  est transportée par la vitesse d'écoulement  $u$ , et diffusée dans le bain. Cette diffusion est due à la l'agitation moléculaire d'une part, et à aux turbulences de l'écoulement d'autre part. Soit  $D_\Theta > 0$  la diffusivité de la température dans le bain, que l'on suppose étant une fonction du champ de vitesse  $u$ . Comme précédemment on a noté  $\rho_e, C_{\text{p,e}}$  la densité et la chaleur spécifique du bain électrolytique. Alors la température  $\Theta$  doit satisfaire l'équation

$$\frac{\partial \Theta}{\partial t}(t, x) + u(x) \cdot \nabla \Theta - \text{div}(D_\Theta(u(x)) \nabla \Theta(t, x)) = \frac{1}{\rho_e C_{\text{p,e}}} \sum_{i=1}^3 p_i(t, x), \quad \forall x \in \Omega, t \in (0, T). \quad (3.19)$$

De plus, et conformément à l'hypothèse d'isolation thermique, la température  $\Theta$  doit satisfaire une condition de Neumann homogène

$$C_{\text{p,e}}(u(x)) \frac{\partial \Theta}{\partial \nu}(t, x) = 0, \quad \forall x \in \partial \Omega, t \in [0, T]. \quad (3.20)$$

**Formulation du problème** Le problème de transport et dissolution d'alumine en fonction de la température consiste à chercher des fonctions  $n_p^k : (0, T) \times \Omega \times \mathbb{R}_+ \rightarrow \mathbb{R}$ ,  $c : (0, T) \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  et  $\Theta : (0, T) \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  qui satisfont les équations couplées (3.3) à (3.6), (3.14) et (3.19) ainsi que les conditions aux limites (3.7), (3.15) et (3.20), auxquelles on ajoutera des conditions initiales appropriées.

La section suivante traite de la discrétisation en temps de ce système d'équations.

### 3.3 Discrétisation en temps

On répète ici, par soucis de clarté, le système d'équations aux dérivées partielles qui correspondent au modèle de transport et dissolution d'alumine en fonction de la température, soit les équations (3.3) à (3.6), (3.14) et (3.19). On a  $\forall k = 1, 2, \dots, K$

$$n_p^k(t, x, r) = 0, \quad 0 \leq t < \tau^k, \quad (3.21)$$

$$\frac{\partial n_p^k}{\partial t} + (u(x) + w(r)) \cdot \nabla n_p^k = 0, \quad \tau^k < t \leq \tau^k + \Theta_{\text{Lat}}, \quad (3.22)$$

$$\frac{\partial n_p^k}{\partial t} + (u(x) + w(r)) \cdot \nabla n_p^k + \frac{\partial}{\partial r} (f(r, c, \Theta) n_p^k) = 0, \quad \tau^k + \Theta_{\text{Lat}} < t \leq T, \quad (3.23)$$

et

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u(x) \cdot \nabla c - \text{div} (D_c(u(x)) \nabla c) = q_1 + q_2, \quad \forall t \in (0, T), \quad (3.24)$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial t} + u(x) \cdot \nabla \Theta - \text{div} (D_\Theta(u(x)) \nabla \Theta) = \frac{1}{\rho_e C_{p,e}} \sum_{i=1}^3 p_i, \quad \forall t \in (0, T) \quad (3.25)$$

dans  $\Omega$ . Les termes source de la concentration  $c$  sont

$$q_1(x) = -\frac{I}{6F} \frac{|j(x)|}{\int_{\Omega} |j(x)| \, dx} \quad (3.26)$$

et

$$q_2(t, x) = -\sum_{k=1}^{\bar{k}(t)} \frac{4\pi\rho_{\text{Al}}}{[\text{Al}_2\text{O}_3]} \int_{\mathbb{R}_+} n_p^k(t, x, r) f(r, c(t, x), \Theta(t, x)) r^2 \, dr. \quad (3.27)$$

Les termes source de la température  $\Theta$  sont

$$p_1(t, x) = -(\Theta_{\text{Init}} - \Theta_{\text{Inj}}) \sum_{k=1}^K \delta(t - \tau^k) \int_{\mathbb{R}_+} \rho_{\text{Al}} C_{p,\text{Al}} \frac{4}{3} \pi r^3 S^k(x, r) \, dr, \quad (3.28)$$

$$p_2(t, x) = -\Delta H_{\text{Diss}} q_2(t, x), \quad (3.29)$$

et

$$p_3(x) = \frac{j \cdot j}{\sigma}. \quad (3.30)$$

Ces équations munies de conditions limites et initiales forment un système couplé pour les inconnues  $n_p^k$ ,  $c$  et  $\Theta$ . En effet, la densité de particules  $n_p$  (voir (3.9)) dépend de la concentration  $c$  et de la température  $\Theta$  par l'intermédiaire de la vitesse de dissolution  $f$ , tandis que la concentration et la température dépendent de la densité de particule  $n_p$  à travers leurs termes sources respectifs  $q_2$ ,  $p_1$  et  $p_2$ .

En suivant l'approche adoptée dans [Hof11], on propose de discrétiser les équations (3.21) à (3.25) par une méthode de splitting en temps de la façon suivante. Soit un nombre de pas de temps  $N$  et soit  $\Delta t = T/N$  un pas de temps uniforme. Soient  $t_n = n\Delta t$ ,  $n = 0, 1, \dots, N$ , une subdivision de l'intervalle de temps  $[0, T]$ . On note  $n_{p,n}^k$  une approximation de  $n_p^k(t_n, \cdot, \cdot)$ ,  $n_{p,n}$  une approximation de  $n_p(t_n, \cdot, \cdot)$ ,  $c_n$  une approximation de  $c(t_n, \cdot)$  et  $\Theta_n$  une approximation de  $\Theta(t_n, \cdot)$ . Puisque  $k$  est l'indice de l'injection d'une population de particules, on définit  $i^k$  et  $j^k$  tels que

$$i^k = \max \left\{ j \in \mathbb{N} \mid j\Delta t < \tau^k \right\}, \quad j^k = \max \left\{ j \in \mathbb{N} \mid j\Delta t < \tau^k + \Theta_{\text{Lat}} \right\}. \quad (3.31)$$

En d'autres termes,  $i^k$  est l'indice du dernier pas de temps qui précède l'injection de la population  $k$ , et  $j^k$  est l'indice du dernier pas de temps qui précède le début de la dissolution de la population  $k$ . Bien entendu, si  $\Theta_{\text{Lat}} = 0$  alors  $i_k = j_k$ .

Étant donnés  $n_{p,n}^k \forall k = 1, 2, \dots, K$ ,  $c_n$  et  $\Theta_n$ , on pose

$$n_{p,n+1}^k = 0, \quad \text{si } n+1 < i^k + 1, \quad (3.32)$$

$$n_{p,n+1}^k = S^k, \quad \text{si } n+1 = i^k + 1, \quad (3.33)$$

$$\frac{\bar{n}_{p,n+1}^k - n_{p,n}^k}{\Delta t} + u \cdot \nabla \bar{n}_{p,n+1}^k = 0, \quad (3.34)$$

$$\frac{n_{p,n+1}^k - \bar{n}_{p,n}^k}{\Delta t} + w \cdot \nabla n_{p,n+1}^k = 0, \quad \text{si } i^k + 1 < n+1 \leq j^k, \quad (3.35)$$

dans  $\Omega$  et pour tout  $r > 0$ . Puis, si  $n$  est tel que  $j^k < n+1 \leq N$ , on pose

$$\frac{\bar{n}_{p,n+1}^k - n_{p,n}^k}{\Delta t} + u \cdot \nabla \bar{n}_{p,n+1}^k = 0, \quad (3.36)$$

$$\frac{\bar{n}_{p,n+1}^k - \bar{n}_{p,n+1}^k}{\Delta t} + w(r) \cdot \nabla \bar{n}_{p,n+1}^k = 0, \quad (3.37)$$

$$\frac{n_{p,n+1}^k - \bar{n}_{p,n+1}^k}{\Delta t} + \frac{\partial}{\partial r} \left( f(r, c_n, \Theta_n) n_{p,n+1}^k \right) = 0 \quad (3.38)$$

dans  $\Omega$  et pour tout  $r > 0$ . Et finalement

$$\frac{c_{n+1} - c_n}{\Delta t} + u \cdot \nabla c_{n+1} - \text{div} (D_c \nabla c_{n+1}) = q_1 + q_{2,n+1}, \quad (3.39)$$

$$\frac{\Theta_{n+1} - \Theta_n}{\Delta t} + u \cdot \nabla \Theta_{n+1} - \text{div} (D_\Theta \nabla \Theta_{n+1}) = \frac{1}{\rho_e C_{p,e}} \left( \sum_{i=1}^2 p_{i,n+1} + p_3 \right) \quad (3.40)$$

dans  $\Omega$ . On précise maintenant la forme des termes sources discrétisés  $q_{2,n+1}$ ,  $p_{i,n+1}$ ,  $i = 1, 2$ .

**Remarque 10.** Les équations (3.36)-(3.38) forment un "splitting" en temps de (3.23).

**Discrétisation de la source d'alumine  $q_2$ .** Le terme source  $q_2$  qui apparaît dans l'équation (3.24) correspond à la masse d'alumine qui est transférée entre les particules qui se dissolvent et l'alumine dissoute par unité de temps. Afin de permettre une conservation exacte de la masse d'alumine par le schéma numérique entre les champs  $n_p$  et  $c$ , nous tirons parti du splitting en temps des équations (3.23) et (3.24) [Hof11]. Plus précisément, grâce au splitting en temps, les quantités  $n_{p,n+1}^k$  et  $\bar{n}_{p,n+1}^k$ ,  $k = 1, 2, \dots, K$  sont indépendantes de  $c_{n+1}$ . On pose alors

$$q_{2,n+1}(x) = -\frac{1}{\Delta t} \sum_{\substack{1 \leq k \leq K \\ j^k < n+1}} \int_{\mathbb{R}_+} \frac{\rho_{Al}}{[\text{Al}_2\text{O}_3]} \frac{4}{3} \pi r^3 \left( n_{p,n+1}^k(x) - \bar{n}_{p,n+1}^k(x) \right) dr, \quad x \in \Omega. \quad (3.41)$$

Ici, la somme porte sur toutes les populations de particules qui se dissolvent à l'instant  $t_n$ , c'est-à-dire les populations  $k$  telles que  $t_{jk} < t_n$ .

**Discrétisation des sources de puissance thermique  $p_1$  et  $p_2$ .** Le terme source de puissance thermique  $p_1$  (voir (3.16)) est discrétisé en régularisant la masse de Dirac sur les intervalles  $[t_{ik}, t_{ik} + \Delta t]$ ,  $k = 1, 2, \dots, K$ . On pose

$$p_{1,n+1}(x) = -(\Theta_{\text{Init}} - \Theta_{\text{Inj}}) \sum_{k=1}^K \frac{1}{\Delta t} \delta_{n+1, i^k} \int_{\mathbb{R}_+} \rho_{\text{Al}} C_{p, \text{Al}} \frac{4}{3} \pi r^3 S^k(x, r) dr \quad (3.42)$$

où  $\delta_{i,j}$  est le symbole de Kronecker défini par

$$\delta_{i,j} = \begin{cases} 1 & \text{si } i = j, \\ 0 & \text{si } i \neq j. \end{cases} \quad (3.43)$$

Le terme source  $p_2$ , qui correspond à la puissance thermique nécessaire à la dissolution des particules (voir (3.17)), est discrétisé en utilisant  $q_{2,n+1}$  :

$$p_{2,n+1} = -[\text{Al}_2\text{O}_3] \Delta H_{\text{Diss}} q_{2,n+1}. \quad (3.44)$$

L'équation (3.38) est discrétisée selon  $r$  à l'aide du schéma des caractéristiques présenté dans la section 2.4. Les équations (3.35), (3.36), (3.37), (3.39) et (3.40) sont des équations d'advection ou d'advection-diffusion et sont discrétisées en espace selon la méthode adoptée dans [Hof11]. La discrétisation est basée sur une méthode d'éléments finis continus linéaires par morceaux et stabilisée par une méthode de type SUPG [QV08].

**Propriétés de conservation du schéma de discrétisation** Nous établissons maintenant le bilan de masse d'alumine dans les champs  $n_{p,n+1}^k$ ,  $k = 1, \dots, K$  et  $c_{n+1}$  à l'instant  $t_{n+1}$  dans le cas particulier où la vitesse de sédimentation des particules est nulle, i.e., lorsque  $w(r) = 0$ . On note la masse de particules d'alumine dans la population  $k$  à l'instant  $t_{n+1}$  par

$$N_{p,n+1}^k = \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{\text{Al}} n_{p,n+1}^k \frac{4}{3} \pi r^3. \quad (3.45)$$

On notera encore la masse totale de particules d'alumine à l'instant  $t_{n+1}$  par  $N_{p,n+1} = \sum_{k=1}^K N_{p,n+1}^k$  et la masse d'alumine dissoute à l'instant  $t_{n+1}$  par

$$C_{n+1} = [\text{Al}_2\text{O}_3] \int_{\Omega} c_n dx. \quad (3.46)$$

Pour rappel, on a noté ici  $[\text{Al}_2\text{O}_3]$  la masse molaire de l'alumine.

En vertu des équations (3.32) à (3.38), l'accroissement de la masse d'alumine de la population  $k$  entre les instants  $t_n$  et  $t_{n+1}$  s'écrit

$$N_{p,n+1}^k - N_{p,n}^k = \begin{cases} 0, & \text{si } n+1 \leq i^k, \\ \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{\text{Al}} S^k \frac{4}{3} \pi r^3, & \text{si } n+1 = i^k + 1, \\ 0, & \text{si } i^k + 1 < n+1 \leq j^k, \\ \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{\text{Al}} \frac{4}{3} \pi r^3 (n_{p,n+1}^k - \bar{n}_{p,n+1}), & \text{si } j^k < n+1 \leq N. \end{cases} \quad (3.47)$$

On obtient l'accroissement de la masse totale de particules entre les instants  $t_n$  et  $t_{n+1}$  en sommant sur  $k = 1$  à  $K$  :

$$\begin{aligned} N_{p,n+1} - N_{p,n} &= \sum_{\substack{k \\ n+1 \leq i^k}} \left( N_{p,n+1}^k - N_{p,n}^k \right) + \sum_{\substack{k \\ n+1 = i^k + 1}} \left( N_{p,n+1}^k - N_{p,n}^k \right) \\ &\quad + \sum_{\substack{k \\ i^k + 1 < n+1 \leq j^k}} \left( N_{p,n+1}^k - N_{p,n}^k \right) + \sum_{\substack{k \\ j^k < n+1}} \left( N_{p,n+1}^k - N_{p,n}^k \right). \end{aligned}$$

Puisque

$$\sum_{\substack{k \\ n+1 \leq i^k}} \left( N_{p,n+1}^k - N_{p,n}^k \right) = 0 \quad \text{et} \quad \sum_{\substack{k \\ i^k + 1 < n+1 \leq j^k}} \left( N_{p,n+1}^k - N_{p,n}^k \right) = 0$$

en vertu de (3.47), on obtient

$$\begin{aligned} N_{p,n+1} - N_{p,n} &= \sum_{\substack{k \\ n+1 = i^k + 1}} \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} S^k \frac{4}{3} \pi r^3 \\ &\quad + \sum_{\substack{k \\ j^k < n+1}} \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 \left( n_{p,n+1}^k - \bar{n}_{p,n+1}^k \right), \end{aligned} \quad (3.48)$$

En intégrant l'expression (3.36), (3.37) sur  $\Omega$ , en utilisant le théorème de la divergence et en se rappelant que  $\operatorname{div} u = 0$  dans  $\Omega$ , que  $u \cdot \nu = 0$  sur  $\partial\Omega$  et que  $\frac{\partial n_{p,n+1}}{\partial \nu} = 0$  sur  $\partial\Omega$ , on obtient que

$$\int_{\Omega} \bar{n}_{p,n+1}^k dx = \int_{\Omega} n_{p,n}^k dx. \quad (3.49)$$

En remplaçant (3.49) dans (3.48), l'accroissement de masse totale de particules s'écrit

$$\begin{aligned} N_{p,n+1} - N_{p,n} &= \sum_{\substack{k \\ n+1 = i^k + 1}} \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} S^k \frac{4}{3} \pi r^3 \\ &\quad + \sum_{\substack{k \\ j^k < n+1}} \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 \left( n_{p,n+1}^k - n_{p,n}^k \right). \end{aligned} \quad (3.50)$$

On dérive maintenant une expression pour l'accroissement de la masse d'alumine dissoute. En intégrant l'équation (3.39) où le terme source  $q_{2,n+1}$  est donné par l'expression (3.41), en utilisant le théorème de la divergence et en utilisant à nouveau le fait que  $\operatorname{div} u = 0$  dans  $\Omega$ , que  $u \cdot \nu = 0$  et  $\frac{\partial c_n}{\partial \nu} = 0$  sur  $\partial\Omega$ , et que  $w = 0$  par hypothèse on obtient

$$\begin{aligned} [\text{Al}_2\text{O}_3] \int_{\Omega} c_{n+1} dx - [\text{Al}_2\text{O}_3] \int_{\Omega} c_n dx &= -\frac{\Delta t I[\text{Al}_2\text{O}_3]}{6F} \\ &\quad - \sum_{\substack{k \\ j^k < n+1}} \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 (n_{p,n+1} - n_{p,n}), \end{aligned}$$

et ainsi par (3.46),

$$C_{n+1} - C_n = -\frac{\Delta t I[\text{Al}_2\text{O}_3]}{6F} - \sum_{\substack{k \\ j^k < n+1}} \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 (n_{p,n+1} - n_{p,n}) \quad (3.51)$$





c'est-à-dire que l'énergie thermique du bain  $\rho_e C_{p,e} \int_{\Omega} \Theta_n dx$  dépend uniquement de l'énergie thermique initiale, de l'intensité de l'effet Joule, de la masse des doses d'alumine injectées antérieurement à l'instant  $t_n$  et de la masse de particules d'alumine dissoutes durant l'intervalle de temps  $[0, t_n]$ . Nous utiliserons la relation de bilan d'énergie thermique (3.56) pour fixer la conductivité électrique  $\sigma$  dans la section 3.4. La conductivité sera choisie de sorte à ce que la variation de l'énergie thermique  $\rho_e C_{p,e} \int_{\Omega} (\Theta_{n+1} - \Theta_0) dx$  soit bornée dans la limite où  $n \rightarrow \infty$ .

**Remarque 11.** En général, les bilans de masse (3.53) et (3.56) sont valables pour autant que la totalité des particules se dissolvent à l'intérieur du bain. Cette condition est satisfaite si la vitesse de sédimentation  $w = 0$  comme on l'a supposé dans ce dernier paragraphe. Cette condition est aussi satisfaite si  $n_p^k = 0$  sur  $\partial\Omega$ , puisque le terme

$$\int_{\partial\Omega} n_p^k w \cdot \nu ds = 0 \quad (3.57)$$

également, i.e., le flux de particules à travers la frontière de  $\Omega$  est nul.

**Remarque 12.** Les bilans de masse et d'énergie ci-dessus ont été dérivés à partir du modèle de transport et dissolution semi-discrétisé. Pour que ces bilans restent valables pour le problème discrétisé en temps et en espace, il est essentiel que la discrétisation en espace des équations d'advection-diffusion (3.35), (3.36), (3.37), (3.39) (3.40) conservent exactement les intégrales de  $n_{p,n}$ ,  $c_n$  et  $\Theta_n$  sur  $\Omega$ . Dans les approximations numériques des équations de convection-diffusion d'une grandeur physique, où le transport par une vitesse  $u_h$  donnée ne satisfait pas exactement  $\operatorname{div} u_h = 0$  et  $u_h \cdot \nu = 0$  sur  $\partial\Omega$ , on obtient un défaut de conservation numérique de la grandeur physique. Pour y remédier, on utilise une technique donnée dans l'article [FR13] qui a pour but de conserver numériquement l'intégrale de la grandeur physique répondant à l'équation de convection-diffusion discrétisée.

La section suivant traite de l'application de ce modèle numérique à une cuve d'électrolyse d'aluminium industrielle.

### 3.4 Dissolution de poudre d'alumine dans une cuve industrielle

Dans cette section nous appliquons le modèle de transport et dissolution d'alumine en fonction de la température proposé dans la section 3.2 dans le cadre d'une cuve d'électrolyse industrielle pour déterminer la répartition de l'alumine dissoute dans le bain de celle-ci. Nous utilisons la cuve AP32, qui exploite la technologie de cuve d'électrolyse AP Technology<sup>TM</sup> développée par Rio Tinto. Les premières cuves basées sur la technologie AP ont été mises en production au début des années 1990, et plus de 4000 d'entre elles fonctionnent encore actuellement dans les halles de productions à travers le monde [Rio18].

Nous commençons par présenter le design et le mode d'opération de la cuve AP32. Nous détaillerons ensuite le choix des différentes données qui interviennent dans le modèle numérique proposé dans la section 3.3 et dans le cadre de la cuve AP32. Finalement, nous présenterons une sélection de résultats numériques obtenus.

**Géométrie de la cuve AP32** La structure de la cuve AP32 occupe au sol une longueur d'environ 17 m et une largeur d'environ 4 m. L'ensemble de la structure s'élève sur environ 5 m. La figure 3.1 montre la disposition des différents éléments à l'intérieur de la cuve. Les

fluides s'étendent horizontalement sur environ 14 m par 3.5 m. L'épaisseur de la couche d'aluminium liquide (en jaune sur la figure 3.1a) en contact avec la cathode est d'environ 17 cm, tandis que l'épaisseur maximale du bain électrolytique, au niveau des canaux entre les blocs anodiques, est d'environ 20 cm. La figure 3.1b illustre le volume occupé par le bain dans lequel nous nous intéressons à déterminer la concentration d'alumine (en orange). Les indentations rectangulaires à la surface de celui-ci correspondent au volume occupé par les anodes partiellement immergées. L'ACD est typiquement de l'ordre de 3 cm. Ces différentes épaisseurs des fluides varient d'un point à l'autre de la cuve à cause des écoulements dans les fluides, de la déformation de l'interface bain-métal et des irrégularités à la surface des anodes. De plus, le volume de métal liquide varie constamment, d'une part à cause du produit de la réaction d'électrolyse, et d'autre part à cause des opérations de siphonnage du métal, qui interviennent environ une fois par jour.

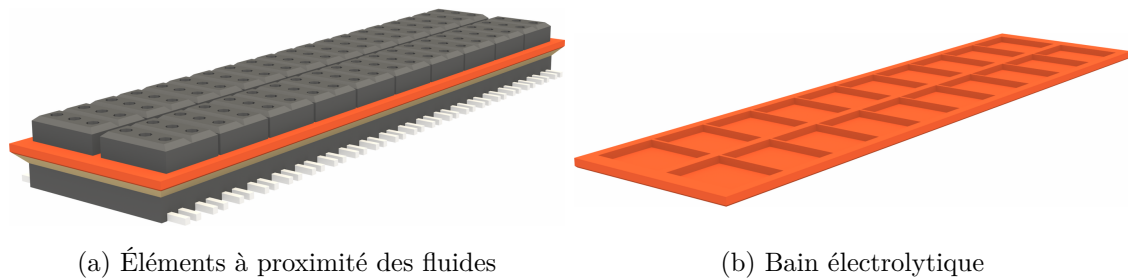


FIGURE 3.1 – Géométrie des éléments importants à proximité du bain électrolytique dans une cuve AP32 (fig. 3.1a), et détail du volume occupé par le bain électrolytique dans cette même cuve (fig. 3.1b). On distingue les anodes en haut et la cathode en bas (**noir**), le bain électrolytique (**orange**), le métal liquide (**jaune**) et les bus bar (**gris clair**).

Le plan anodique est composée de deux rangées de 10 anodes chacune, représentées en noir sur la figure 3.1a. La surface du plan anodique est d'environ  $40.3 \text{ m}^2$  et seulement 25% de la surface du bain est libre, le reste étant recouvert par les anodes. La cuve est conçue pour que l'électrolyte soit traversé par un courant électrique total de  $I = 320\,000 \text{ A}$ , ce qui correspond à une densité de courant d'environ  $0.8 \text{ A cm}^{-2}$  à la surface des anodes. En supposant un rendement de réaction de 100%, ce courant électrique permet de réduire par électrolyse  $29.8 \text{ g s}^{-1}$  ou  $2577 \text{ kg}$  par jour d'aluminium métallique, i.e., un peu plus qu' $1 \text{ m}^3$  de métal par jour. Cet accroissement de volume de métal correspond à une variation de l'épaisseur du métal liquide d'environ 2 cm.

Du côté des anodes, la réaction d'électrolyse produit environ  $0.8 \text{ mols}^{-1}$  d'oxygène  $\text{O}_2$ . Cet oxygène réagit immédiatement avec le carbone de l'anode pour former du  $\text{CO}_2$ . Dans l'ensemble de la cuve, l'électrolyse produit au total environ 80 L par seconde de gaz, qui remonte vers la surface du bain par le canal central et les canaux latéraux. La réaction de l'oxygène avec le carbone des anodes<sup>3</sup> provoque l'érosion de celles-ci à une vitesse d'environ 1100 kg par jour. Étant donné le nombre total d'anodes et leurs tailles respectives, chaque anode d'une cuve AP32 a une durée de vie d'environ 30 jours, après quoi elle doit être remplacée par une anode neuve.

Pour compenser l'alumine dissoute qui est consommée par la réaction d'électrolyse, il faut injecter en moyenne au cours du temps  $56.3 \text{ g s}^{-1}$  de poudre d'alumine. Comme déjà mentionné dans la section 1.1, la poudre d'alumine est déposée à la surface du bain dans le canal central par une série d'injecteurs dont la position est fixe. Un piqueur vient percer mécaniquement un trou dans la croûte et créer un accès à la surface libre du bain avant

3. L'oxydation du carbone qui constitue les anodes par l'oxygène qui résulte de la réaction d'électrolyse forme du  $\text{CO}_2$  sous forme gazeux.

chaque injection. Ce trou se rebouche rapidement, et pour cette raison l'injection de la poudre d'alumine ne peut pas avoir lieu continûment.

Pour maintenir un rendement énergétique maximum, éviter l'émission de gaz fluorés et éviter l'occurrence des effets d'anodes, il est crucial que la concentration d'oxyde d'aluminium dissoute dans le bain soit maintenue dans un intervalle très précis. Malheureusement, pour de nombreuses raisons il est impossible de maintenir un bilan précis de la quantité d'alumine dans le bain en fonction de ce qui est injecté et de ce qui est consommé. En effet, l'environnement rend difficile la mesure précise des quantités déposées, une partie des particules volatiles ne parviennent jamais dans le bain, des agrégats se forment, dont une partie s'accumule au fond de la cuve sur la cathode, et des réactions chimiques parasites viennent, entre autres, grever ce bilan.

Pour contourner cette difficulté, les opérateurs exploitent le fait que la résistivité du bain électrolytique dépend de la concentration d'alumine dissoute, et atteint un minimum à la concentration optimale  $c \approx 3\%$  masse. En mesurant la chute de potentiel électrique à travers le bain électrolytique, on maintient la concentration d'alumine dissoute au voisinage de la concentration optimale en alternant une phase de suralimentation en alumine et une phase de sous-alimentation. Durant la phase de suralimentation, la concentration d'alumine va passer au-delà de la concentration optimale et par conséquent accroître la résistivité du bain. Passé un certain seuil, on débute une phase de sous-alimentation, durant laquelle la résistivité commence par chuter, puis croît à nouveau. Passé un certain seuil, on amorce une phase de suralimentation, et ainsi de suite.

Dans chacune des phases de suralimentation ou sous-alimentation, les injecteurs déposent les doses d'alumine selon une cadence préétablie et périodique. La période et la taille des doses peuvent être spécifiées indépendamment pour chaque injecteur.

**Calcul de l'écoulement dans le bain** Une approximation de vitesse d'écoulement du bain  $u$  et de la densité de courant  $j$  dans la cuve AP32 est obtenue par l'intermédiaire du modèle multi-physiques stationnaire proposé par G. Steiner [Ste09], J. Rochat [Roc16] déjà introduit dans la section 3.1. La figure 3.2 représente la vitesse d'écoulement ainsi calculée par le logiciel `Aluce11`[Ste09] dans le bain électrolytique de la cuve AP32, dans l'ACD. Lorsque la densité de courant électrique est répartie uniformément sur toutes les anodes, l'écoulement dans les fluides forme deux tourbillons principaux qui tournent en sens opposés. Deux petits tourbillons se forment dans les coins avals. Les vitesses maximales de l'écoulement ( $5 \text{ cm s}^{-1}$  environ) sont atteintes dans le canal central au niveau des extrémités de la cuve, ainsi que le long de la paroi amont, de part et d'autre de la cuve. Dans le reste du bain, et en particulier sous les anodes, la vitesse d'écoulement dépasse rarement  $2 \text{ cm s}^{-1}$ . La figure 3.3 illustre les lignes de courant de l'écoulement dans le bain. On remarque les lignes de courant s'engagent dans les canaux latéraux et dans le bain en pourtour des rangées d'anodes.

**Conditions sur l'injection et l'effet Joule** Le schéma numérique proposé dans la section 3.3 est conçu de manière à conserver exactement d'une part la masse d'alumine dans les populations de particules  $n_p$  et concentration d'alumine dissoute  $c$ , et d'autre part la quantité d'énergie thermique liée à la température du bain  $\Theta$ . Pour des raisons déjà évoquées, ces bilans ne sont pas exactement respectés dans une cuve industrielle réelle, et il faut en général injecter un peu plus d'alumine que ce qui est consommé par la réaction d'électrolyse. Quand à l'énergie thermique, nous avons supposé que le bain est isolé thermiquement, alors que dans une cuve réelle une quantité non négligeable d'énergie

s'échappe par le métal, les parois latérales de la cuve, les anodes, la surface du bain et par le  $\text{CO}_2$  qui s'échappe dans l'atmosphère.

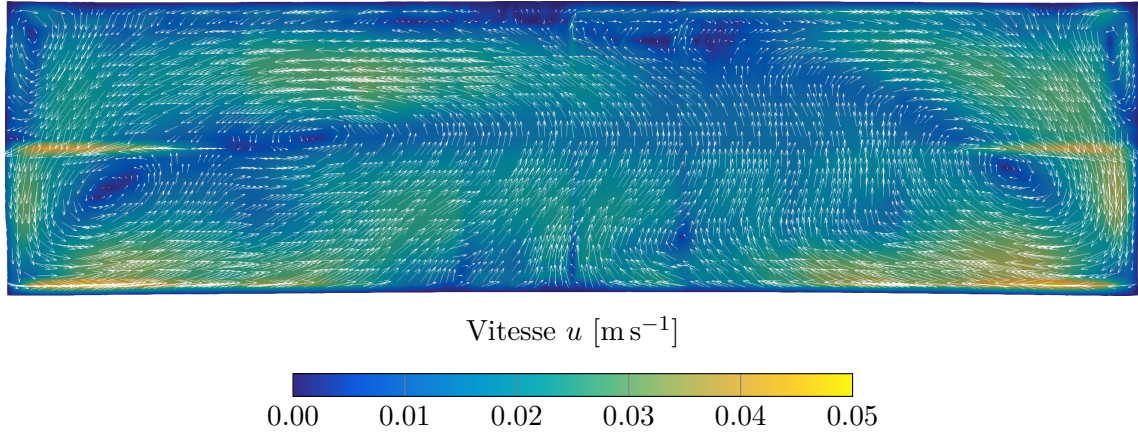


FIGURE 3.2 – Champ de vitesse  $u$  dans le bain électrolytique d'une cuve AP32 restreint sur une surface placée à mi-hauteur de l'ACD, vue depuis dessus. Cette situation correspond à un état d'opération standard.

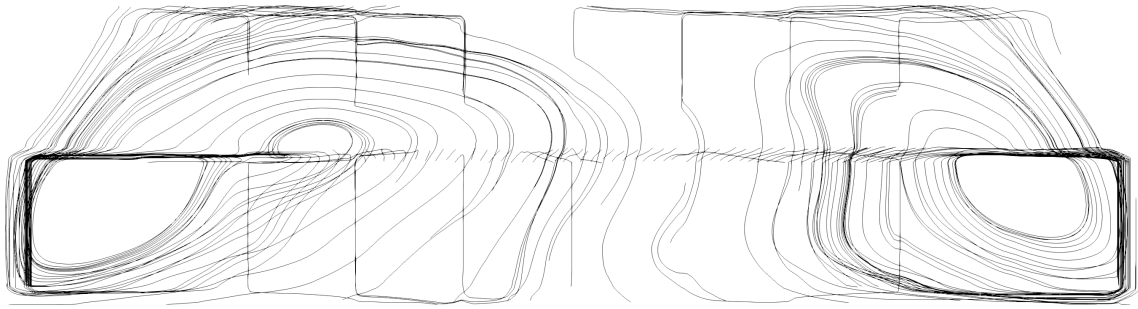


FIGURE 3.3 – Lignes de courant correspondant au champ de vitesse représenté sur la figure 3.2. Les lignes de courant prennent leur origine le long du canal central.

Pour éviter que la masse totale d'alumine dans la cuve croisse sans limite au cours du temps, il faut s'assurer que dans un état pseudo stationnaire, la masse d'alumine reste proche de la masse d'alumine initialement présente dans le bain. En d'autres termes, si  $M_n$  est la masse totale d'alumine dans le bain à l'instant  $t_n$  telle que définie dans la section (3.3), alors on demande à ce que

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \frac{M_{n+1} - M_0}{t_n} = 0,$$

c'est-à-dire que

$$\frac{I[\text{Al}_2\text{O}_3]}{6F} = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{t_{n+1}} \sum_{\substack{k \\ i^{k+1} \leq n+1}} \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{\text{Al}} S^k \frac{4}{3} \pi r^3. \quad (3.58)$$

Il faut donc choisir la masse des doses d'alumine injectées  $S^k$ ,  $k = 1, 2, \dots$  et les temps d'injection  $\tau^k$ ,  $k = 1, 2, \dots$  de sorte à ce que le débit de masse de poudre d'alumine moyen au cours du temps soit égal à  $\frac{I[\text{Al}_2\text{O}_3]}{6F}$ , c'est-à-dire  $56.382 \times 10^{-3} \text{ kg s}^{-1}$ .

La cuve AP32 possède 4 injecteurs placés au-dessus du canal central, numérotés de 1 à 4, dans le sens de la coordonnée  $x$  croissante (voir la figure 3.4). Les paramètres qui définissent chaque injecteur sont regroupés dans la table 3.1.

La masse des doses dans la table 3.1 est choisie de telle sorte à ce que l'ensemble des 4 injecteurs injecte 25% de la masse d'alumine en moyenne. La région de répartition des densités des particules initiales  $S^k$  est décrite dans [Hof11]. Plus précisément, chaque quantité  $S^k$  est une fonction lisse à support compact centrée autour du point d'injection de l'injecteur correspondant. La distribution initiale en rayon est approximée par une loi log-normale basée sur des mesures expérimentales. Puisque les rapport des périodes d'injection des 4 injecteurs sont des nombres rationnels, on peut définir une période globale  $P$  liée à l'ensemble des 4 injecteurs. Étant données les périodes d'injections reportées dans la table 3.1, le cycle d'injection global est périodique après une transition initiale de 64s, avec une période de  $P = 192$  s. La figure 3.5 représente les injections qui ont lieu durant les 192 premières secondes de la simulation.

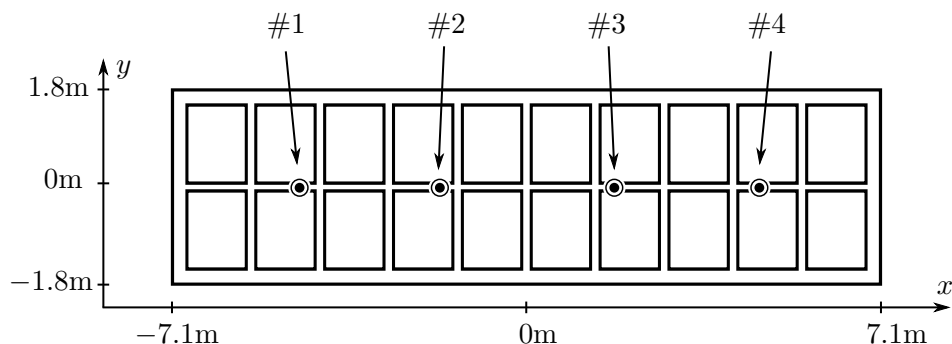


FIGURE 3.4 – Vue schématique de la partie supérieure du bain électrolytique. Les blocs rectangulaires représentent l'emplacement des anodes, tandis que les cercles indiqués par les flèches et numérotés marquent l'emplacement des injecteurs disposés le long du canal central.

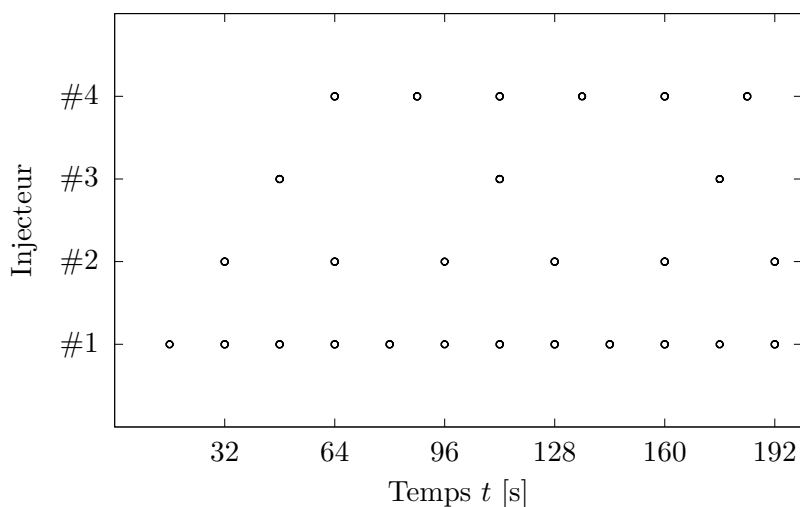


FIGURE 3.5 – Temps d'injections des différents injecteurs de la cuve AP32. Chaque cercle représente une injection. Chaque ligne correspond à l'un des 4 injecteurs.

TABLE 3.1 – Paramètres caractérisant les 4 injecteurs de la cuve AP32.

Injecteur	Position	Première injection	Intervalle d'injection	Masse de dose
#1	-4.4m	16s	16s	0.225 kg
#2	-1.6m	32s	32s	0.451 kg
#3	1.6m	48s	48s	0.676 kg
#4	4.4m	64s	24s	0.338 kg

On détermine maintenant une condition sur la conductivité électrique  $\sigma$ , issue d'un argument similaire à celui fait sur l'énergie thermique du bain. Pour que l'énergie thermique du bain reste proche de l'énergie thermique initiale, on demande à ce que

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \frac{\rho_e C_{p,e} \int_{\Omega} (\Theta_{n+1} - \Theta_0) dx}{t_{n+1}} = 0, \quad (3.59)$$

ce qui correspond à la condition, en considérant (3.56) :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\sigma} \int_{\Omega} j \cdot j dx &= C_{p,Al} (\Theta_{Init} - \Theta_{Inj}) \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{t_{n+1}} \sum_k \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 S^k \\ &\quad - \Delta H_{Diss} \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{t_{n+1}} \sum_{m=0}^n \sum_k \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 (n_{p,m+1}^k - n_{p,m}^k). \end{aligned} \quad (3.60)$$

Le premier terme du membre de droite de (3.60) est égal à

$$C_{p,Al} (\Theta_{Init} - \Theta_{Inj}) \frac{I[Al_2O_3]}{6F}$$

en vertu de (3.58). Pour que le deuxième terme du membre de droite de (3.60) converge, il est suffisant que chaque population  $k \geq 1$  se dissolve en un temps fini quelque soit  $k$ . Plus précisément, les populations  $n_p^k$  se dissolvent en un temps fini s'il existe un entier positif  $q'$  tel que  $n_{p,n}^k = 0$  pour tout  $n > j^k + q'$ .

Le cas échéant on peut télescoper la somme sur  $k$  et en remarquant que

$$\int_{\Omega} n_{p,j^k}^k dx = \int_{\Omega} S^k dx$$

pour tout  $k \leq 1$  et pour tout  $r > 0$  lorsque la vitesse de chute est nulle, le deuxième terme du membre de droite de (3.60) se réduit à

$$\Delta H_{Diss} \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{t_{n+1}} \sum_k \int_{\Omega} dx \int_{\mathbb{R}_+} dr \rho_{Al} \frac{4}{3} \pi r^3 S^k.$$

Ainsi finalement,

$$\frac{1}{\sigma} \int_{\Omega} j \cdot j dx = C_{p,Al} (\Theta_{Init} - \Theta_{Inj}) \frac{I[Al_2O_3]}{6F} + \Delta H_{Diss} \frac{I[Al_2O_3]}{6F}$$

et on fixe  $\sigma$  de sorte à satisfaire cette dernière relation, c'est-à-dire que

$$\sigma = \frac{\int_{\Omega} j \cdot j dx}{(C_{p,Al} (\Theta_{Init} - \Theta_{Inj}) + \Delta H_{Diss}) \frac{I[Al_2O_3]}{6F}}. \quad (3.61)$$

**Diffusivité du bain électrolytique** La vitesse d'écoulement stationnaire du bain  $u$  obtenue par la méthode introduite dans [Ste09], [Roc16] est la vitesse moyenne d'un écoulement turbulent. Les structures turbulentes du fluide sont décrites par un modèle de longueur de mélange de Smagorinsky [Roc16]. Dans le modèle de Smagorinsky, les structures turbulentes de l'écoulement se traduisent par une viscosité de l'écoulement moyen  $u$  proportionnelle au tenseur des déformation de  $u$ . Dans le présent travail, nous caractérisons la diffusivité  $D_c$  de la concentration  $c$  et la diffusivité  $D_\Theta$  de la température  $\Theta$  par quatre réels positifs  $D_\Theta^M$ ,  $D_\Theta^T$ ,  $D_c^M$  et  $D_c^T$  pour tout  $x \in \Omega$  de la manière suivante :

$$D_\Theta(x) = D_\Theta^M + D_\Theta^T \left( 2 \sum_{i,j} \mathcal{E}_{ij}(u(x)) \mathcal{E}_{ij}(u(x)) \right)^{1/2}, \quad (3.62)$$

$$D_c(x) = D_c^M + D_c^T \left( 2 \sum_{i,j} \mathcal{E}_{ij}(u(x)) \mathcal{E}_{ij}(u(x)) \right)^{1/2}, \quad (3.63)$$

où  $\mathcal{E}_{ij}$ ,  $i, j = 1, 2, 3$  est le tenseur des déformation de l'écoulement défini par

$$\mathcal{E}_{ij}(u) = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right). \quad (3.64)$$

Les valeurs du paramètre  $D^M$  associé à la diffusion moléculaire et de  $D^T$  associé à la diffusion induite par les turbulences de l'écoulement, sont rapportées dans la table 3.2.

**Remarque 13.** Le nombre de Péclet  $Pe$  de l'écoulement dans la cuve est défini par  $Pe = \frac{Lu}{D}$ , où  $L$  est l'épaisseur de la couche de bain,  $u$  la vitesse d'écoulement et  $D$  la diffusivité de l'alumine dissoute. Avec l'écoulement représenté à la figure 3.2, on obtient  $Pe \approx 3$ . On calcul le nombre de Péclet numérique en substituant à  $L$  la taille de maille verticale, soit  $L \approx 0.25$ . On obtient  $Pe_{\text{Num}} \approx 25$ , ce qui montre la nécessité de stabiliser le schéma numérique, par une méthode de type SUPG dans notre cas.

**Conditions initiales de la concentration et de la température** Les conditions initiales des populations de particules  $n_p^k$  sont données par la relation (3.32). En d'autres termes, aucune particule n'est présente dans le bain électrolytique à  $t = 0$ .

On observe expérimentalement sur des cuves d'électrolyse industrielles que celles-ci atteignent un état stationnaire périodique lié à la période du cycle d'injection après un temps caractéristique de transition. On observe typiquement l'établissement de cet état périodique indirectement par des mesures de la résistivité électrique de la cuve. Par analogie, dans le cadre du modèle de transport et dissolution d'alumine nous nous attendons à ce que la densité de particules  $n_p$ , la concentration  $c$  et la température  $\Theta$  atteignent asymptotiquement lorsque  $t \rightarrow \infty$ , un état périodique de période  $P$  identique à la période du cycle d'injection global, soit 192 s dans notre cas.

Il est clair que plus les conditions initiales pour  $c$  et  $\Theta$  sont éloignées de l'état périodique asymptotique, plus le temps nécessaire pour atteindre un tel état est long. Par conséquent, nous choisissons des conditions initiales uniformes en espace pour la concentration et la température, et qui soient égales aux conditions optimales d'opération de la cuve AP32 :

$$\begin{aligned} c(0, x) &= c_{\text{Init}}, \quad \forall x \in \Omega, \\ \Theta(0, x) &= \Theta_{\text{Init}}, \quad \forall x \in \Omega. \end{aligned}$$



TABLE 3.2 – Paramètres physiques et paramètres liés à la cuve AP32 qui interviennent dans le transport et la dissolution de poudre d'alumine.

Quantité	Valeur	Unités	Description
$\rho_e$	2130	$\text{kg m}^{-3}$	Masse volumique du bain électrolytique
$\rho_{\text{Al}}$	3960	$\text{kg m}^{-3}$	Masse volumique de l'oxyde d'aluminium
$C_{p,e}$	2945	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	Chaleur spécifique du bain électrolytique liquide
$C_{p,\text{Al}}$	1200	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$	Chaleur spécifique de l'oxyde d'aluminium
$g$	9.81	$\text{m s}^{-2}$	Accélération de la gravité terrestre
$I$	320 000	A	Courant électrique total
$F$	96 485.33	$\text{C mol}^{-1}$	Constante de Faraday
$\eta_{\text{F}}$	0.945	[]	Rendement de Faraday de l'électrolyse
$[\text{Al}_2\text{O}_3]$	0.102	$\text{kg mol}^{-1}$	Masse molaire de l'oxyde d'aluminium
$\Theta_{\text{Init}}$	1223	K	Température initiale du bain électrolytique
$\Theta_{\text{Inj}}$	423	K	Température d'injection des particules d'alumine
$\Theta_{\text{Liq}}$	1218	K	Température du liquidus du bain électrolytique
$\Theta_{\text{Crit}}$	1218.86	K	Température critique de dissolution dans le bain électrolytique
$K$	$0.5 \times 10^{-9}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	Taux de dissolution des particules d'alumine
$\Delta H_{\text{Diss}}$	$5.3 \times 10^5$	$\text{J kg}^{-1}$	Enthalpie de dissolution de l'oxyde d'aluminium
$\sigma$	$\approx 900$	$\text{S m}^{-1}$	Conductivité électrique du bain électrolytique
$D_{\Theta}^{\text{M}}$	$5 \times 10^{-4}$	$\text{W K}^{-1} \text{m}^{-1}$	Diffusivité thermique dans le bain
$D_{\Theta}^{\text{T}}$	$5 \times 10^{-4}$	$\text{J K}^{-1} \text{m}^{-1}$	Diffusivité thermique turbulente dans le bain
$D_c^{\text{M}}$	$5 \times 10^{-4}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	Diffusivité moléculaire dans le bain
$D_c^{\text{T}}$	$5 \times 10^{-4}$	$\text{m}^2$	Diffusivité turbulente dans le bain
$\mu$	$2 \times 10^{-3}$	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	Viscosité laminaire du bain électrolytique
$c_{\text{Sat}}$	1689.7	$\text{mol m}^{-3}$	Concentration de saturation de l'alumine dissoute
$c_{\text{Sat},\%w}$	7.8	w%	Concentration de saturation de l'alumine dissoute
$c_{\text{Init}}$	635.3	$\text{mol m}^{-3}$	Concentration initiale de l'alumine dissoute
$c_{\text{Init},\%w}$	3.0	w%	Concentration initiale de l'alumine dissoute

où  $c_{\text{Init}}$ ,  $\Theta_{\text{Init}}$  sont donnés dans la table 3.2. Remarquons que la concentration initiale  $c_{\text{Init}}$  en  $\text{mol m}^{-3}$  s'exprime en fonction de la concentration initiale  $c_{\text{init},\%w}$  en % masse à l'aide de la formule :

$$c_{\text{Init}} = \frac{c_{\text{init},\%w} \cdot 100^{-1}}{\rho_e[\text{Al}_2\text{O}_3] \left( 1 - c_{\text{init},\%w} \cdot 100^{-1} \left( 1 - \frac{\rho_e}{\rho_{\text{Al}}} \right) \right)}.$$

Nous exploiterons également cette dernière formule pour convertir les valeurs du champ de concentration en % masse lors de la visualisation des résultats. Les deux valeurs de la concentration initiale selon les unités physique sont rapportées dans la table 3.2.

**Paramètres de discrétisation** Le maillage du domaine  $\Omega$  est obtenu en même temps que les champs  $u$  et  $j$  par la méthode déjà évoquée plus haut proposée par [Ste09], [Roc16]. On peut voir sur la figure 3.6 un aperçu du maillage de  $\Omega$  qui correspond à l'une des extrémités de la cuve. Le maillage est fortement anisotrope, avec des rapports d'aspect d'environ 25 dans l'ACD. Le diamètre des mailles est compris entre 38 cm (aux extrémités de la cuve) et 9 cm (dans l'ACD et les canaux). Le maillage comporte 282 240 éléments tétraédrique. On choisit le nombre de discrétisation des rayons des particules  $M = 5$  et  $\Delta r = 40 \mu\text{m}$ . Enfin on fixe  $\Delta t = 1 \text{ s}$  et  $T = 10\,000 \text{ s}$ , le temps auquel on veut évaluer la concentration.

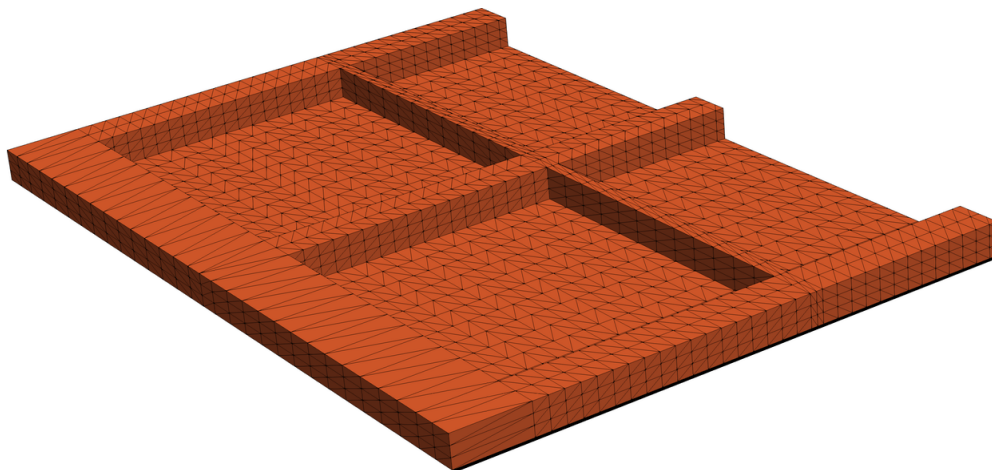


FIGURE 3.6 – Aperçu du maillage du domaine occupé par le bain électrolytique dans la cuve AP32.

**Solution de référence** Afin d'évaluer l'effet de la température de l'électrolyte sur la dissolution de la poudre d'alumine, nous commençons par présenter un calcul qui tient compte des hypothèses suivantes :

- les particules d'alumine ne chutent pas dans le bain ( $w = 0$ ),
- les particules commencent à se dissoudre instantanément, c'est-à-dire que  $\Theta_{\text{Lat}} = 0$ ,
- la vitesse de dissolution ne dépend pas de la température du bain  $\Theta$ . Plus précisément, la vitesse de dissolution définie par (2.57) est remplacée par

$$\kappa(c, \Theta) = \begin{cases} K \frac{c_{\text{Sat}} - c}{c_{\text{Sat}}} & \text{si } 0 \leq c \leq c_{\text{Sat}}, \\ 0 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (3.65)$$

Cette situation est équivalente à supposer que la température du bain  $\Theta$  reste largement supérieure à la température critique  $\Theta_{\text{crit}}$  au cours du calcul, de sorte à ce que le terme exponentiel dans (2.57) soit proche de zéro.

Un des objectifs recherchés par les opérateurs de cuves industrielles est de minimiser les écarts de concentration autour de la concentration optimale d'alumine dissoute. Pour évaluer le champ de concentration par rapport à cet objectif, nous proposons de représenter la variance du champ de concentration  $c$  dans  $\Omega$  au cours du temps par :

$$\text{Var}_c(t) = \sqrt{\int_{\Omega} (c(t, x) - \bar{c}(t))^2 dx}, \quad (3.66)$$

où  $\bar{c}$  est la moyenne de  $c$  sur  $\Omega$ , c'est-à-dire

$$\bar{c}(t) = \frac{1}{|\Omega|} \int_{\Omega} c(t, x) dx. \quad (3.67)$$

Ici  $|\Omega|$  est le volume de  $\Omega$ . Clairement, la situation idéale pour laquelle la concentration d'alumine est uniforme dans tout l'électrolyte correspond à une variance de  $c$  nulle. A l'inverse, plus  $c$  s'écarte de sa valeur moyenne, plus sa variance est importante.

La valeur de  $\text{Var}_c$  au cours du temps offre un moyen d'évaluer si le système a atteint l'état périodique recherché. En pratique on prend soin de vérifier que la différence en norme  $L^2$  à deux instants successifs séparés par la période du cycle d'injection global  $P$  est inférieure à 1%. Pour tous les calculs présentés dans cette partie, la solution satisfait ce critère pour  $T = 10\,000$  s.

La figure 3.7 représente l'évolution de la variance de la concentration au cours du temps. On remarque une phase initiale lorsque  $t \in [0, 500]$ , au cours de laquelle la variance croît rapidement. Cette croissance ralentit quand la concentration approche de l'état périodique, et à partir de  $t \approx 4500$  s nous pouvons considérer que la concentration est dans un état périodique. Les fluctuations de  $\text{Var}_c$  que l'on peut observer sur la figure 3.7 sont dues aux injections de poudre d'alumine dans le bain. Immédiatement après l'injection, la dissolution des particules provoque un accroissement rapide de la concentration d'alumine dissoute localement autour du point d'injection. Lorsque la dose est totalement dissoute, ce pic de concentration est atténué par la diffusion de la concentration dans l'électrolyte. Cet effet se traduit par un accroissement de la variance de la concentration immédiatement après l'injection d'une dose, puis par une décroissance de la variance.

Cependant, ces variations de la concentration dans l'état périodique sont très localisées autour des points d'injection. Dans le reste du bain électrolytique, les variations de la concentration restent de l'ordre de 1%.

Puisque, lorsque l'état périodique est atteint, la concentration varie peu au cours du cycle d'injection global, nous pouvons nous permettre de visualiser la distribution de la concentration dans le bain électrolytique à un instant arbitraire du cycle d'injection global. Le temps  $T = 10\,000$  s auquel la solution est évaluée correspond donc à environ 51 périodes du cycle d'injection global, sans compter la phase transitoire initiale de 64 s.

On s'intéresse à la distribution de la concentration d'alumine là où a lieu la réaction d'électrolyse, c'est-à-dire essentiellement dans l'ACD. On se contente donc de visualiser la distribution de la concentration d'alumine dans cette zone. Dans le domaine  $\Omega$  occupé par l'électrolyte, l'ACD est maintenue constante avec 3.2 cm d'épaisseur sur l'ensemble de l'interface. Pour visualiser la concentration d'alumine dissoute dans l'ACD, on évalue  $c$  sur une surface fictive placée dans l'électrolyte, parallèle à l'interface et à une distance égale

à la moitié de l'ACD. La figure 3.8 présente la distribution de la concentration d'alumine dans le bain électrolytique.

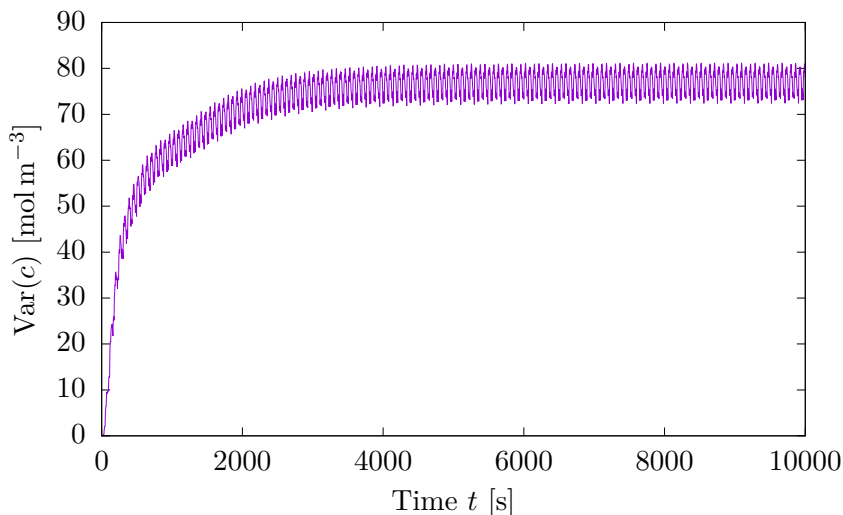


FIGURE 3.7 – Évolution de  $\text{Var}_c$  au cours du temps sur l'intervalle  $[0, T]$  dans le bain électrolytique de la cuve AP32 lorsque la température n'est pas prise en compte dans la vitesse de dissolution des particules.

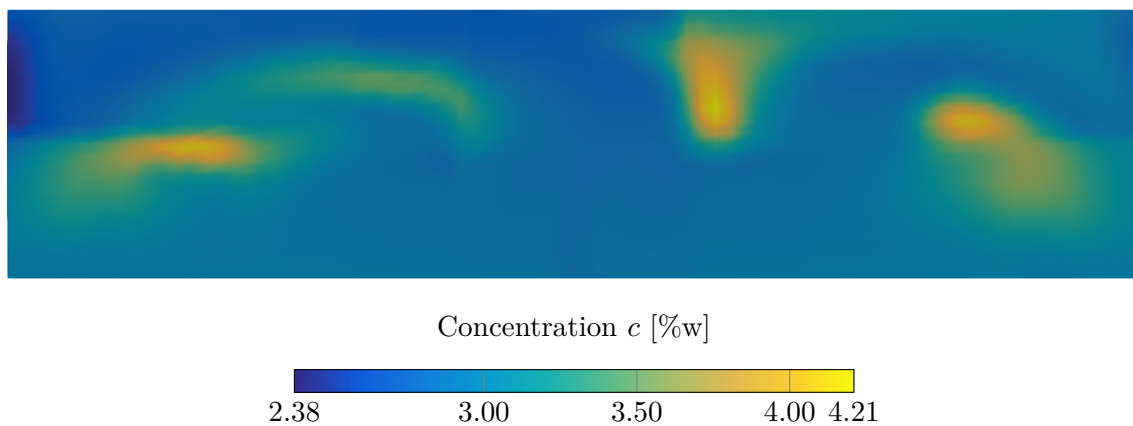


FIGURE 3.8 – Concentration d'alumine dissoute dans l'ACD de la cuve AP32 à  $t = 10\,000$  s et à température constante.

On remarque sur la figure 3.8 que la concentration atteint des maxima locaux aux voisinages des points d'injection, ce qui montre que l'essentiel de la poudre d'alumine se dissout dans ces régions. Cette alumine dissoute est ensuite transportée par l'écoulement. Les deux injecteurs de gauche alimentent le tourbillon de gauche (voir figure 3.2), tandis que les deux injecteurs de droite alimentent essentiellement le tourbillon de droite. Les régions du bain sous-alimentées sont les coins en aval, où la concentration descend en dessous de 3 %w et où l'écoulement est caractérisé par la présence de petits tourbillons isolés. La région centrale en amont des points d'injections est remarquablement uniforme avec une concentration proche de 3 %w.

Nous consacrons maintenant le reste de cette partie au modèle de transport et dissolution d'alumine qui dépend de la température du bain dans le bain de la cuve AP32, et l'on étudie l'influence des nouveaux paramètres que ce modèle introduit, en particulier le temps de latence  $\Theta_{\text{Lat}}$ , la température initial du bain  $\Theta_{\text{Init}}$ , la température critique  $\Theta_{\text{Crit}}$  et la vitesse de chute des particules dans le bain  $w$ .

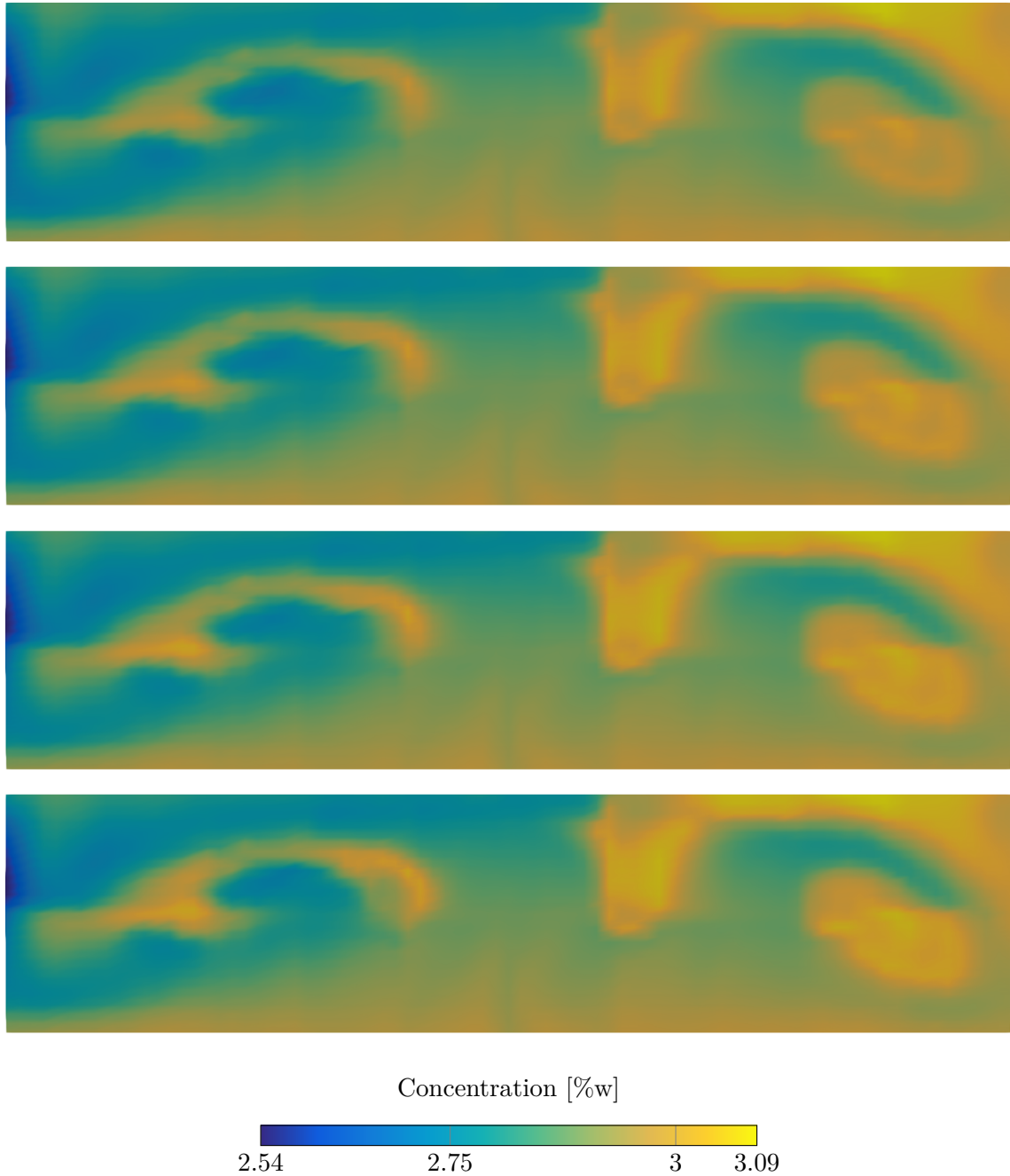


FIGURE 3.9 – Champ de concentration  $c$  dans l'ACD de la cuve AP32 à  $t = 10\,000$  s. De haut en bas, le temps de latence de dissolution  $T_{\text{Lat}} = 1\text{s}, 2\text{s}, 5\text{s}$  et  $10\text{s}$ .

**Sensibilité par rapport au temps de latence** Nous avons introduit dans le paragraphe 2.2 un temps de latence qui précède le début de la dissolution d'une particule lâchée dans le bain d'une cuve d'électrolyse. Ce temps était de l'ordre de  $0.1$  s, ce qui est

négligeable devant le temps de dissolution qui est au minimum de 10 s pour le choix de paramètres reportés dans la table 3.2.

Cependant, lors de l'injection d'une dose d'alumine typique, les particules ne peuvent plus être suffisamment dispersées pour que les hypothèses du modèle introduit dans la section 2.2 soient satisfaites, et c'est l'effet collectif de l'ensemble des particules qui prédomine. Selon [Das15], toutes les particules d'une dose subissent un temps de latence de l'ordre de 1 s quel que soit leur taille.

Nous proposons maintenant de déterminer si la distribution de concentration dans le bain électrolytique est sensible au temps de latence de dissolution des particules lors de leur injection. Dans ce but, nous présentons les résultats de 4 calculs du champ de concentration d'alumine dissoute  $c$  dans le bain électrolytique de la cuve AP32 avec le modèle décrit dans la section 3.2 et dont les paramètres sont reportés dans la table 3.2 à l'exception du temps de latence  $\Theta_{\text{Lat}}$  pour lequel nous fixons successivement  $\Theta_{\text{Lat}} = 1, 2, 5$  et 10 secondes.

La figure 3.9 présente la distribution de concentration d'alumine dissoute dans l'ACD de la cuve AP32 à  $T = 10\,000$  s pour les différentes valeurs de  $\Theta_{\text{Lat}}$  croissantes de haut en bas.

Les quatre champs de concentration présentés sur la figure 3.9 sont très similaires. Les maxima et les minima de la concentration d'alumine sont les mêmes et apparaissent aux mêmes endroits. On remarque malgré tout de petites modifications de la distribution d'alumine dissoute au voisinage des points d'injection. On observe par exemple autour du point d'injection #2 que la concentration est plus diffuse lorsque  $\Theta_{\text{Lat}}$  croît.

Nous nous intéressons maintenant à l'effet de la température initiale du bain sur la distribution de la concentration d'alumine dissoute.

**Sensibilité par rapport à la surchauffe initiale du bain** La vitesse de dissolution des particules dans l'électrolyte (2.56) dépend de la température locale de celui-ci. Comme rendu explicite par l'expression (3.61), sous l'hypothèse que chaque dose de particules se dissout entièrement en un temps fini, le terme source d'énergie par effet Joule est construit de sorte à maintenir une quantité d'énergie thermique constante en moyenne dans le temps. En l'absence de transition de phase dans l'électrolyte, cela signifie que la température moyenne au cours du temps de celui-ci est maintenue constante. Par conséquent, une température initiale du bain  $\Theta_{\text{Init}}$  plus élevée conduit à une température  $\Theta$  dans l'état périodique plus élevée en moyenne au cours d'une période du cycle d'injection global.

Nous proposons d'évaluer la sensibilité de la dissolution d'alumine dans le bain électrolytique en fonction de la température de celui-ci en faisant varier la température initiale du bain. On note  $\Theta_{\text{Sur}}$  la température de surchauffe initiale du bain au-dessus de sa température de liquidus :

$$\Theta_{\text{Sur}} = \Theta_{\text{Init}} - \Theta_{\text{Liq}}. \quad (3.68)$$

La figure 3.10 présente la distribution de la concentration d'alumine dissoute  $c$  dans l'ACD de la cuve AP32 issue de quatre calculs, pour lesquels les paramètres sont reportés dans la table 3.2, à l'exception de la température initiale du bain  $\Theta_{\text{Init}}$ . La température initiale du bain est fixée à  $\Theta_{\text{Init}} = \Theta_{\text{Liq}} + \Theta_{\text{Sur}}$  avec  $\Theta_{\text{Sur}} = 1, 2, 5$  et 10 degrés Kelvin.

Les champs de concentration sur la figure 3.10 correspondent de haut en bas à des températures de surchauffe  $\Theta_{\text{Sur}}$  croissante. On remarque en particulier sur le dernier champ de concentration de cette figure, qui correspond à  $\Theta_{\text{Sur}} = 10$  K, la similarité avec la solution de référence illustrée sur la figure 3.8 pour laquelle la température ne joue pas de

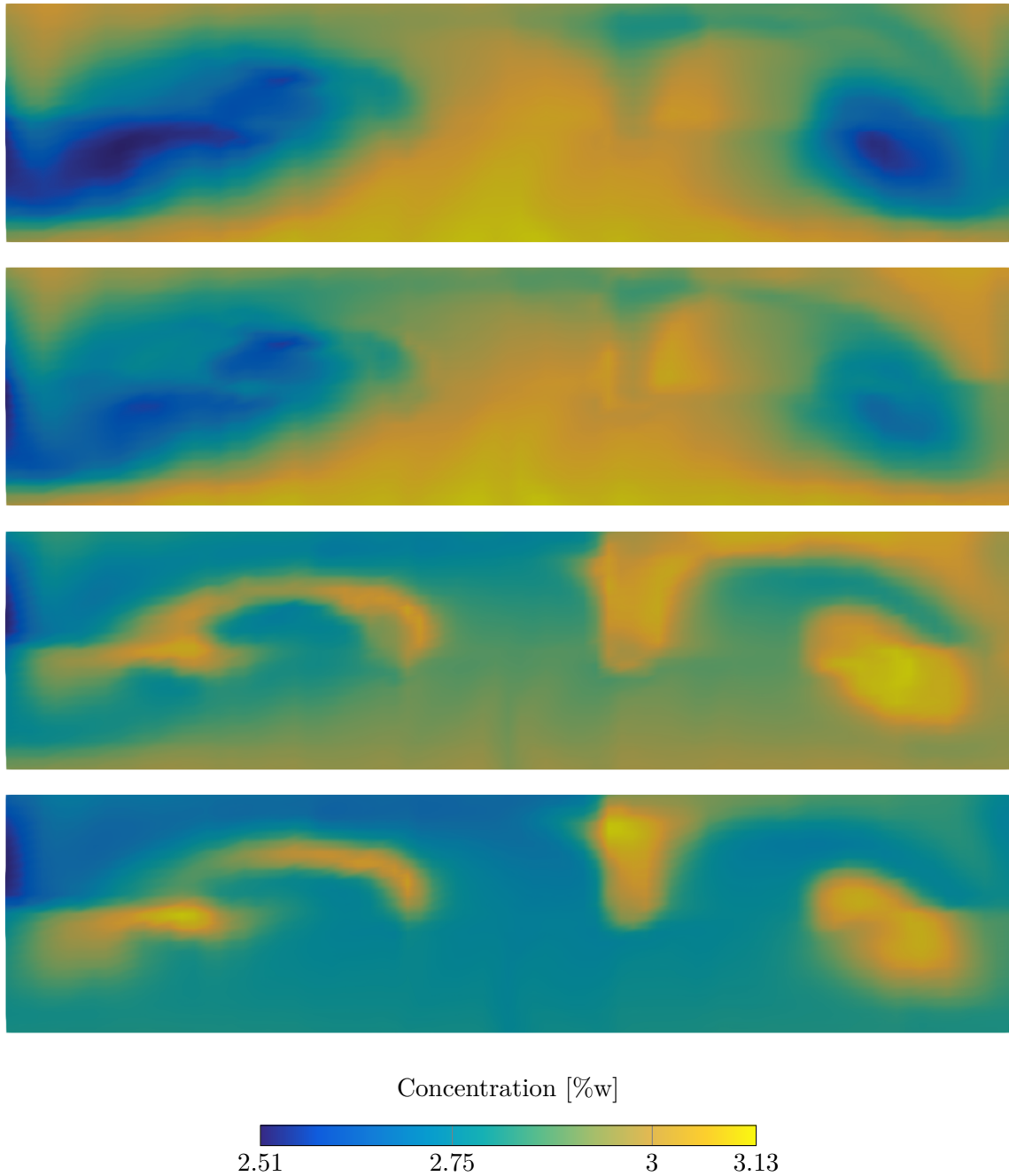


FIGURE 3.10 – Champ de concentration  $c$  dans l'ACD de la cuve AP32 à  $t = 10\,000$  s. De haut en bas, la température de surchauffe initiale est  $\Theta_{\text{Sur}} = 1, 2, 5$  et  $10$ .

rôle dans la dissolution des particules. Les valeurs maximales atteintes par la concentration d'alumine dissoute sont cependant plus faibles.

Le premier champ de concentration de la figure 3.10 correspond à une température de surchauffe  $\Theta_{\text{Sur}} = 1$  K et s'écarte significativement de la solution de référence de la figure 3.8. La concentration d'alumine dissoute est homogène au point de ne plus pouvoir distinguer la position des injecteurs.

La dissolution des particules d'alumine dépend d'une part du fait que la température de l'électrolyte dans leur voisinage doit être supérieure à la température du liquidus  $\Theta_{\text{Liq}}$ , et d'autre part de la taille de la région de transition entre le régime de dissolution contrôlé par la diffusion de l'énergie thermique et le régime de dissolution contrôlé par la diffusion de l'alumine dissoute à proximité de la surface des particules. La transition entre ces deux régimes est contrôlée par le paramètre  $\Theta_{\text{Crit}}$ . Dans le paragraphe suivant nous proposons d'évaluer la distribution de concentration dans le bain électrolytique en fonction du paramètre  $\Theta_{\text{Crit}}$ .

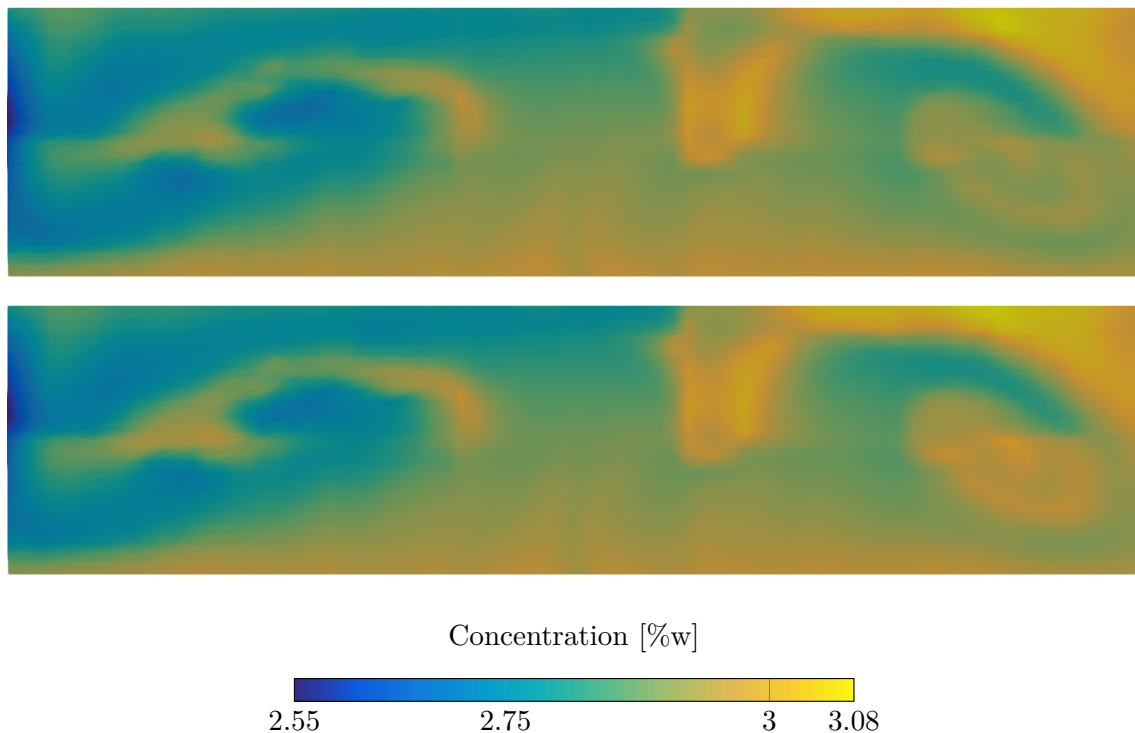


FIGURE 3.11 – Champ de concentration  $c$  dans l'ACD de la cuve AP32 à  $t = 10\,000$  s. En haut,  $T_{\text{Crit}} = T_{\text{Liq}}$ . En bas,  $T_{\text{Crit}} = T_{\text{Liq}} + 0.86$  K.

**Sensibilité par rapport à la température critique de transition** Dans la limite où  $\Theta_{\text{Crit}} - \Theta_{\text{Liq}}$  devient grand, on voit facilement dans l'expression (2.57) que le taux de dissolution des particules, et donc leur vitesse de dissolution, devient nulle dans l'intervalle de température que le bain électrolytique peut raisonnablement admettre. Par conséquent, si la valeur de  $\Theta_{\text{Crit}} - \Theta_{\text{Liq}}$  est trop élevée, le temps dissolution des particules peut devenir arbitrairement long, ce qui n'est pas réaliste dans le cas d'une cuve d'électrolyse d'aluminium industrielle.



A l'inverse, en prenant la limite  $\Theta_{\text{Crit}} \rightarrow \Theta_{\text{Liq}}$ , le taux de dissolution (2.57) s'écrit :

$$\kappa(c, \Theta) = \begin{cases} K \frac{c_{\text{Sat}} - c}{c_{\text{Sat}}} & \text{si } \Theta \geq \Theta_{\text{Liq}} \text{ et } 0 \leq c \leq c_{\text{Sat}}, \\ 0 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (3.69)$$

En d'autres termes, la dissolution des particules est contrôlée uniquement par la concentration locale  $c$  si  $\Theta \geq \Theta_{\text{Liq}}$ , et les particules ne se dissolvent pas sinon.

Nous présentons maintenant la distribution de concentration d'alumine dissoute dans le bain de la cuve AP32 dans l'état périodique résultant de deux calculs. Comme précédemment, l'ensemble des paramètres du modèle de transport et dissolution est reporté dans la table 3.2. Pour le premier calcul on fixe  $\Theta_{\text{Crit}} = \Theta_{\text{Liq}}$ , et le taux de dissolution est donné par (3.69). Pour le deuxième calcul on fixe  $\Theta_{\text{Crit}} = \Theta_{\text{Liq}} + 0.86 \text{ K}$ .

La figure 3.11 présente la concentration d'alumine dans l'ACD de la cuve AP32 à  $t = 10\,000 \text{ s}$ , lorsque l'état périodique est atteint. Le premier champ de concentration correspond au cas où  $\Theta_{\text{Crit}} = \Theta_{\text{Liq}}$ , tandis que le deuxième champ de concentration correspond au cas où  $\Theta_{\text{Crit}} = \Theta_{\text{Liq}} + 0.86 \text{ K}$ . Même si l'on parvient à observer de petites variations entre ces deux solutions, en particulier dans le coin aval droite et autour du point d'injection #4, ces deux champs de concentration sont indistinguables l'un de l'autre.

Finalement, nous nous penchons sur l'effet de la chute gravitationnelle des particules d'alumine sur le champ de concentration d'alumine dissoute.

**Effet de la vitesse de chute des particules sur leur dissolution** Nous avons déterminé, dans la section 2.5, la vitesse de chute et la profondeur maximale atteinte dans le fluide des particules soumises à la gravité et à une force de traînée de Stokes. Dans le cas le plus favorable, les particules de plus grande taille peuvent chuter de plusieurs centimètres dans le bain électrolytique avant de se dissoudre complètement.

Dans ce dernier paragraphe, nous proposons de comparer deux calculs qui illustrent l'effet de la chute des particules dans le bain sur la concentration d'alumine dissoute dans celui-ci.

Pour le premier calcul, qui joue le rôle de point de référence, les paramètres sont reportés dans la table 3.2 et nous annulons l'accélération de la gravité  $g = 0$ , ce qui donne lieu à une vitesse de chute strictement nulle, soit  $w(r) = 0$  pour tout  $r > 0$ . De plus, l'injection des doses d'alumine a lieu dans le canal central comme indiqué sur la figure 3.5, au niveau de l'ACD.

Pour le deuxième calcul la valeur de  $g$  est restaurée, telle que donnée dans la table 3.2 et la vitesse de chute des particules est donnée par l'expression 3.2. Cependant, les points d'injections sont déplacés verticalement vers le haut du canal.

Nous avons montré dans la section 2.5 que les profondeurs maximales atteintes par les particules lorsque la viscosité du fluide est supérieure ou égale à  $1 \times 10^{-2} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  sont de l'ordre du millimètre. Or, la taille verticale des mailles dans les canaux ne permet pas de capturer des effets de cette amplitude. Pour cette raison, nous choisissons pour le paramètre de viscosité  $\mu$ , qui intervient dans la définition (3.2), la viscosité laminaire du fluide, soit  $\mu = 2 \times 10^{-3} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Cette valeur de la viscosité donne lieu à des profondeurs de chute maximale de particule dans le bain de l'ordre de quelques centimètres.

La figure 3.12 représente les champs de concentration dans l'ACD de la cuve AP32 obtenus par ces deux calculs, évalués à  $t = 10\,000 \text{ s}$ , lorsque l'état périodique est atteint.

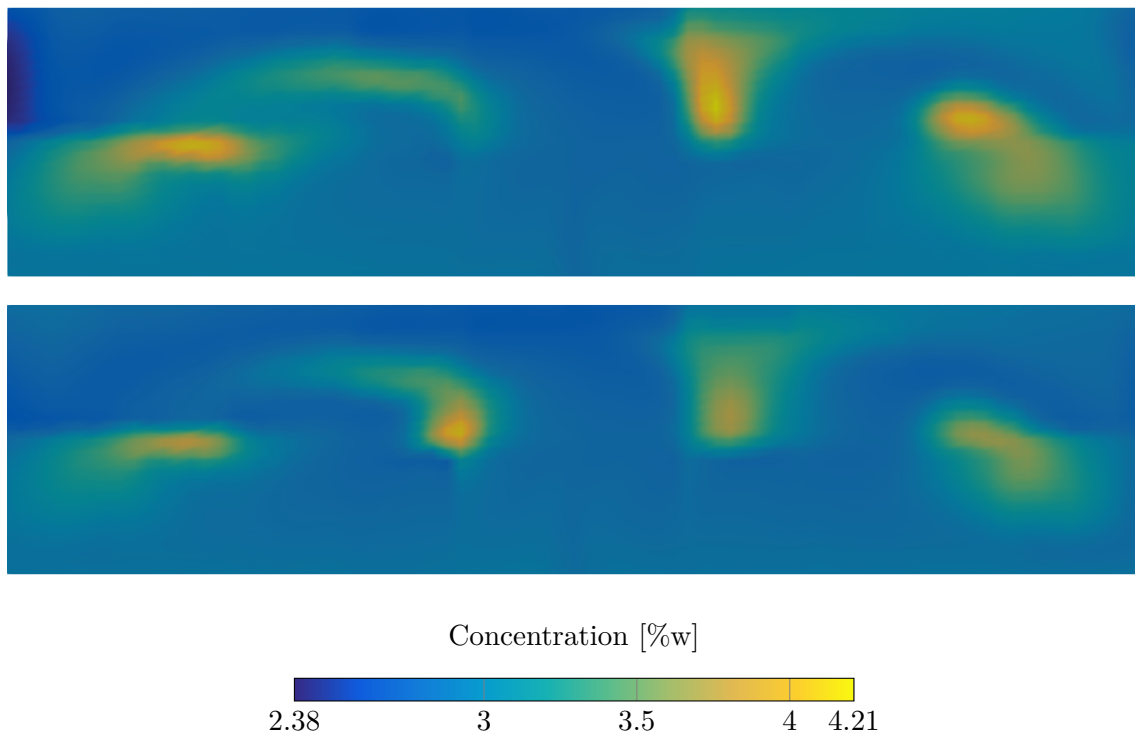


FIGURE 3.12 – Champ de concentration d’alumine dissoute dans l’ACD de la cuve AP32 à  $t = 10\,000$ s. En haut, dissolution des particules sans chute gravitationnelle dans le bain. En bas, dissolution des particules avec chute gravitationnelle dans le bain.

On remarque quelques différences entre les deux solutions, essentiellement au niveau des points d’injection. Les valeurs maximales de la concentration d’alumine dissoute à proximité des points d’injection #1, #3 et #4 sont plus grandes lorsque la chute des particules est négligée. On constate l’effet inverse pour l’injecteur #2 : la concentration d’alumine dissoute sous cet injecteur atteint un maximum local plus marqué lorsque la chute des particules est prise en compte. Dans le reste du bain, la distribution de concentration est similaire entre les deux calculs.

Nous concluons cette partie par une discussion de ces résultats.

### 3.5 Discussion et conclusion

Dans ce chapitre 3, nous avons proposé un modèle de transport et dissolution des particules d’alumine dans le bain électrolytique d’une cuve d’électrolyse d’aluminium. La dissolution des particules dépend de leur taille, de la concentration d’alumine dissoute dans leur voisinage, et de la température du bain électrolytique. Nous avons proposé un schéma numérique pour approcher la densité de particules  $n_p$ , concentration d’alumine dissoute  $c$  et la température de l’électrolyte  $\Theta$  dans le bain électrolytique basé sur un *splitting* en temps des différentes équations, et une méthode d’éléments finis. Nous avons ensuite appliqué ce modèle au cas de la cuve industrielle AP32 et calculé la distribution du champ de concentration  $c$  dans le bain électrolytique jusqu’à ce que le système atteigne un état stationnaire périodique. Nous avons évalué le comportement de cette distribution de concentration stationnaire en fonction des nouveaux paramètres introduits par ce modèle par rapport au travail de T. Hofer [Hof11].

Tout d'abord, nous avons montré que le temps de latence de dissolution des particules a un impact négligeable sur la distribution de concentration. La vitesse de l'écoulement dans le bain aux points d'injection est de l'ordre de 2 à 3  $\text{cm s}^{-1}$ . Dans le cas le plus extrême, c'est-à-dire lorsque  $\Theta_{\text{Lat}} = 10$  s, les particules sont transportées sur une distance maximale de 20 à 30 cm avant de commencer à se dissoudre, ce qui correspond à environ 2% de la longueur de la cuve. Dans la mesure où un tel temps de latence surestime certainement celui des particules dispersées dans le bain d'une cuve d'électrolyse, on peut raisonnablement négliger l'effet d'un tel phénomène dans le cadre du modèle proposé dans cette section et poser  $\Theta_{\text{Lat}} = 0$ , ce qui réduit la complexité de l'implémentation du modèle et le temps de calcul nécessaire.

Remarquons enfin qu'ici nous avons supposé que l'ensemble des particules qui constituent une dose d'alumine pénètrent et se dispersent dans le bain électrolytique. Dans une cuve industrielle, il peut arriver qu'une partie des particules s'agglomèrent après être entrées en contact avec le bain, et forment ce qu'on appelle des agrégats [Das15]. Ces agrégats mettent un temps, assimilé à un temps de latence, nettement plus long à se dissoudre et par conséquent peuvent être transportés par l'écoulement du bain sur des distances bien plus grandes. La description de la formation de ces agrégats et leur déplacement dans le bain, la modélisation des phénomènes thermochimiques qui ont lieu en leur sein et la dissolution des particules qui les constituent est un sujet complexe qui sort du cadre de ce travail.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la dissolution des particules dans le bain électrolytique en fonction de sa température de surchauffe  $\Theta_{\text{Sur}}$ . C'est très certainement le paramètre le plus important du modèle de transport et dissolution d'alumine, qu'il faut choisir avec soin. Il est clair que si la température du bain  $\Theta$  est proche de la température de liquidus  $\Theta_{\text{Liq}}$ , une petite perturbation est suffisante pour que  $\Theta$  soit inférieure à  $\Theta_{\text{Liq}}$ . Une telle perturbation intervient lorsque des particules d'alumine extraient l'énergie thermique du bain pour se réchauffer et se dissoudre. Dans une telle situation, la dissolution est fortement ralentie, et les particules sont transportées sur de longues distances, typiquement plusieurs mètres avant de se dissoudre complètement. Les particules peuvent alors déposer de la masse sous forme d'alumine dissoute dans une plus grande région, ce qui contribue à influencer et modifier significativement la distribution de l'alumine dissoute dans le bain électrolytique. A l'inverse, plus la température de surchauffe du bain est élevée, i.e., plus la température du bain s'écarte de la température du liquidus, plus la perturbation nécessaire à ce que la température du bain passe en-dessous de  $\Theta_{\text{Liq}}$  doit être importante. A partir d'une certaine limite, l'énergie nécessaire à réchauffer et dissoudre une dose d'alumine ne constitue plus une perturbation suffisante. Dans ce cas, la température ne joue essentiellement plus de rôle dans la dissolution des particules d'alumine. Cette constatation rejoint les observations faites sur des cuves industrielles. En effet, lorsque la température de surchauffe est grande, les doses d'alumine se dissolvent plus facilement que lorsque la surchauffe est faible. La difficulté est de trouver un équilibre pour que l'alumine se dissolve suffisamment vite pour que la concentration dans le bain soit contrôlable, tout en maintenant une surchauffe aussi faible que possible pour minimiser les pertes énergétiques.

Au niveau microscopique, la réaction de dissolution des particules est contrôlée par deux mécanismes. Pour que la dissolution puisse avoir lieu, il suffit d'une part que la concentration d'alumine dissoute à proximité de la particule soit inférieure à la concentration de saturation. Il faut d'autre part fournir de l'énergie à la réaction qui est endothermique. Le paramètre  $\Theta_{\text{Crit}}$  contrôle la taille de la région de transition entre ces deux régimes : lorsque la température est largement supérieure à  $\Theta_{\text{Crit}}$ , la vitesse de dissolution est essentiellement contrôlée par la valeur de la concentration  $c$  à proximité de la particule. Nous

avons évalué la sensibilité de la distribution de concentration d'alumine dissoute dans le bain par rapport au paramètre  $\Theta_{\text{Crit}}$ . Clairement, une valeur arbitrairement grande pour  $\Theta_{\text{Crit}}$  bloque complètement la dissolution des particules. En revanche, lorsque  $\Theta_{\text{Crit}}$  est compris dans l'intervalle  $[\Theta_{\text{Liq}}, \Theta_{\text{Liq}} + 0.86]$ , la distribution de concentration est insensible à la valeur précise de  $\Theta_{\text{Crit}}$ . Le rôle essentiel de la température dans ce cas-là est de bloquer la dissolution des particules lorsque la température  $\Theta$  est inférieure à  $\Theta_{\text{Liq}}$ . La valeur du paramètre  $\Theta_{\text{Crit}}$  devra être déterminée par des mesures expérimentales.

Finalement, nous avons étudié l'effet de la chute gravitationnelle des particules dans le bain sur la distribution de la concentration d'alumine dissoute. La chute des particules apporte des variations notables de la concentration uniquement autour des points d'injection. Ces régions sont soumises à de fortes perturbations qui sont dues principalement aux injections qui interviennent à intervalles réguliers. Par exemple, le transfert de quantité de mouvement entre les doses de particules et le bain, lorsque celles-ci atteignent sa surface, est négligé. On s'attend donc à ce que le modèle de transport des particules d'alumine perde en précision à proximité des points d'injection. De plus, les vitesses de chute des particules sont très certainement surestimées dans notre modèle. L'écoulement dans le canal central, dans lequel ont lieu les injections de particules, est turbulent. Cet écoulement turbulent se traduit par une viscosité effective ressentie par les particules qui est certainement supérieure à la viscosité laminaire de l'électrolyte. Les profondeurs maximales atteintes par les particules dans ce cas sont alors de l'ordre du millimètre ou inférieure. En suivant les mêmes arguments qui nous ont conduits à ne pas considérer de temps de latence, nous pouvons raisonnablement négliger la chute des particules dans le bain électrolytique et son effet sur la distribution de la concentration de l'alumine.

Remarquons finalement que dans ce chapitre 3, nous avons supposé que la température de liquidus de l'électrolyte  $\Theta_{\text{Liq}}$  ne dépend pas de la chimie du bain, et en particulier de la concentration d'alumine dissoute, que la concentration de saturation de l'alumine dissoute ne dépend ni de la chimie du bain ni de la température de celui-ci, et finalement que l'enthalpie de dissolution  $\Delta H_{\text{Diss}}$  ainsi que la vitesse de dissolution  $\kappa$  ne dépendent pas de la chimie du bain. Ces hypothèses sont valides pour autant que le système s'écarte peu des conditions d'exploitations idéales. Ce n'est bien entendu pas le cas lorsqu'on considère une cuve d'électrolyse industrielle qui subit de nombreuses perturbations et peut traverser des phases d'instabilité.

## Deuxième partie

# Approximation d'écoulement dans le bain électrolytique



## Chapitre 4

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

### 4.1 Introduction

Comme annoncé dans le chapitre 1, une cuve d'électrolyse typique dans une halle de production n'est jamais dans un état stationnaire [Ste09, Flo13]. La cause majeure pour laquelle ces cuves se trouvent dans un état de déséquilibre constant est liée aux changements d'anodes en fin de vie, qui interviennent toutes les 24 heures environ.

Cet état de déséquilibre entraîne d'importantes variations des écoulements des fluides dans la cuve, et ces variations ont un impact non négligeable sur la répartition de l'alumine dissoute dans le bain électrolytique. Pour pallier ces variations de répartition de concentration d'alumine, les opérateurs peuvent modifier les cadences d'injection de chaque injecteur. Malheureusement, il disposent de peu d'outils qui leur permettent de déterminer comment adapter ces cadences en fonction de l'état de la cuve.

Le modèle de dissolution et transport d'alumine proposé dans [Hof11] et dont nous avons étudié certaines extensions dans la première partie de ce travail, peut apporter un début de réponse : la conductivité des différentes anodes dépend de leur âge, ce qui modifie le champ de vitesse dans le bain électrolytique et dans l'aluminium liquide par l'intermédiaire de la densité de courant électrique et des forces de Lorentz, ainsi que la distribution d'alumine dissoute. Malheureusement, ce calcul ne peut pas être fait en temps réel, et donc la cadence des injecteurs qui optimise la répartition de l'alumine dissoute dans le bain ne peut pas non plus être obtenu en temps réel.

Dans ce chapitre nous proposons une méthode pour calculer le champ de vitesse dans une cuve d'électrolyse bien plus rapidement qu'avec les modèles de [Ste09] et [Hof11], au prix de certaines hypothèses supplémentaires que l'on discutera.

La géométrie d'une cuve d'aluminium est particulière : l'essentiel de l'écoulement des fluides prend place dans un domaine approximativement parallélépipédique qui présente une forte anisotropie. Les dimensions horizontales ( $\approx 14 \times 4$  m) sont bien plus grandes que la dimension verticales ( $\approx 0.2$  m). Par conséquent, l'écoulement est essentiellement contraint dans le plan horizontal, si l'on néglige ce qui se passe dans les canaux.

Le modèle de référence implémenté avec le logiciel `Aluce11` [Ste09, Flo13, Hof11, Roc16] calcule une approximation des écoulements dans les fluides en utilisant une méthode d'éléments finis Lagrange continu linéaire par morceau sur un maillage en tétraèdres du domaine

fluide.

Or, la géométrie anisotrope du domaine fluide d'une cuve d'électrolyse pose de sérieuses difficultés au niveau numérique. En effet, l'utilisation de mailles isotropes n'est pas possible puisque la taille de maille dans la direction verticale est de l'ordre de 0.01 m. La seule alternative est de considérer des mailles anisotropes de l'ordre de 0.01 m dans la direction verticale et 0.1 m dans les directions horizontales. Cependant, l'utilisation de mailles anisotropes augmente le conditionnement des matrices et donc le nombre d'itérations nécessaires à la résolution du système linéaire et dégrade la précision du calcul.

Le but de ce chapitre est de proposer une méthode pour calculer des écoulements de Stokes dans des domaines parallélépipédiques présentant une forte anisotropie. Dans la section 4.2 nous proposons une décomposition de Fourier de la vitesse selon la direction verticale, puis nous proposons dans la section 4.3 une méthode numérique de type éléments finis pour approcher chaque harmonique de la décomposition de Fourier. Dans la section 4.4 nous validons l'implémentation du schéma ainsi obtenu et étudions la convergence de l'erreur par rapport à une solution non triviale. Finalement, dans la section 4.6 nous appliquons cette méthode au cas industriel d'une cuve d'électrolyse et évaluons les propriétés de cette méthode.

## 4.2 Formulation du modèle de Stokes Fourier

Soit  $\Lambda$  un ouvert borné de  $\mathbb{R}^2$  de bord Lipschitzien  $\partial\Lambda$ . Soit  $\varepsilon > 0$  un nombre réel donné correspondant à la dimension verticale d'une cuve. On définit le domaine de  $\mathbb{R}^3$  correspondant à une simplification géométrique de la cuve d'électrolyse

$$\Omega = \Lambda \times (0, \varepsilon). \quad (4.1)$$

On suppose que le domaine  $\Omega$  est occupé par l'électrolyte, un fluide newtonien incompressible de viscosité tensorielle  $\mu$ . On suppose de plus que le tenseur de viscosité est tel que :

- $\mu$  est symétrique, i.e.,  $\mu_{ij} = \mu_{ji}$ ,  $1 \leq i, j \leq 3$ ,
- $\exists \chi_0 > 0$  tel que  $\mu_{ij} > \chi_0$ ,  $1 \leq i, j \leq 3$ ,
- $\mu$  est indépendant de  $x_3$ .

Si  $u$  est la vitesse de l'écoulement, le tenseur des contraintes visqueuses dans le fluide [LL87] est donné par

$$\mathcal{T}_{i,j}(u) = 2\mu_{i,j}\mathcal{E}_{i,j}(u), \quad i, j = 1, 2, 3. \quad (4.2)$$

Ici on a noté  $\mathcal{E}$  le tenseur du taux de déformation du fluide qui s'écrit en fonction de la vitesse d'écoulement  $u$  :

$$\mathcal{E}_{i,j}(u) = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right), \quad i, j = 1, 2, 3. \quad (4.3)$$

Étant donné un champ de forces  $f : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^3$ , on suppose que la vitesse d'écoulement  $u : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^3$  et la pression  $p : \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  du fluide satisfont le système de Stokes stationnaire

$$-\operatorname{div}(\mathcal{T}(u)) + \nabla p = f, \quad (4.4)$$

$$\operatorname{div}(u) = 0 \quad (4.5)$$



dans  $\Omega$ . Dans la suite nous noterons  $u = (u_1, u_2, u_3)$  et  $f = (f_1, f_2, f_3)$ . De plus, on demande à ce que l'écoulement  $u$  satisfasse les conditions aux limites suivantes. Sur les faces latérales, la vitesse satisfait la condition d'adhérence

$$u = 0 \quad \text{sur} \quad \partial\Lambda \times (0, \varepsilon). \quad (4.6)$$

Sur les faces horizontales supérieures et inférieures, la vitesse d'écoulement satisfait une condition de glissement total. On a

$$u_3(x_1, x_2, x_3) = 0, \quad (4.7)$$

$$(\mathcal{T}(u) \cdot \nu) \cdot t_i = 0, \quad i = 1, 2 \quad (4.8)$$

sur  $\Lambda \times \{0, \varepsilon\}$ , avec  $t_1, t_2$  les deux vecteurs tangents unités. Les conditions (4.7), (4.8) correspondent à demander à ce que le fluide ne pénètre pas les faces horizontales de  $\partial\Omega$  et à ce que les contraintes tangentielles sur ces faces soient nulles. En utilisant (4.7), la condition (4.8) se réécrit

$$\frac{\partial u_1}{\partial x_3} + \frac{\partial u_3}{\partial x_1} = 0 \quad \text{et} \quad \frac{\partial u_2}{\partial x_3} + \frac{\partial u_3}{\partial x_2} = 0 \quad \text{sur} \quad \partial\Lambda \times \{0, \varepsilon\}. \quad (4.9)$$

**Décomposition en séries de Fourier** Pour résoudre le système d'équations (4.4), (4.5) avec les conditions aux limites (4.6) à (4.8), on exprime les inconnues sous forme de séries de Fourier dans la direction  $x_3$ . Soit le domaine  $\Omega^+ = \Lambda \times (-\varepsilon, \varepsilon)$ , on définit les fonctions suivantes  $\forall (x_1, x_2, x_3) \in \Omega^+$  :

$$U_i(x_1, x_2, x_3) = \begin{cases} u_i(x_1, x_2, x_3) & \text{si } x_3 \geq 0, \\ u_i(x_1, x_2, -x_3) & \text{si } x_3 < 0, \end{cases} \quad i = 1, 2, \quad (4.10)$$

$$U_3(x_1, x_2, x_3) = \begin{cases} u_3(x_1, x_2, x_3) & \text{si } x_3 \geq 0, \\ -u_3(x_1, x_2, -x_3) & \text{si } x_3 < 0, \end{cases} \quad (4.11)$$

$$P(x_1, x_2, x_3) = \begin{cases} p(x_1, x_2, x_3) & \text{si } x_3 \geq 0, \\ p(x_1, x_2, -x_3) & \text{si } x_3 < 0, \end{cases} \quad (4.12)$$

$$F_i(x_1, x_2, x_3) = \begin{cases} f_i(x_1, x_2, x_3) & \text{si } x_3 \geq 0, \\ f_i(x_1, x_2, -x_3) & \text{si } x_3 < 0, \end{cases} \quad i = 1, 2, \quad (4.13)$$

$$F_3(x_1, x_2, x_3) = \begin{cases} f_3(x_1, x_2, x_3) & \text{si } x_3 \geq 0 \\ -f_3(x_1, x_2, -x_3) & \text{si } x_3 < 0. \end{cases} \quad (4.14)$$

En vertu de (4.7) et (4.8), les dérivées selon  $x_3$  des fonctions  $U_1, U_2$  et  $U_3$  ainsi définies ne présentent pas de masse de Dirac en  $x_3 = 0$ . La figure 4.1 représente schématiquement le comportement et la régularité de ces fonctions de part et d'autre de l'origine de l'axe  $x_3$ .

Avec les définitions ci-dessus on vérifie que  $U = (U_1, U_2, U_3)$  et  $P$  satisfont les équations

$$-\operatorname{div}(\mathcal{T}(U)) + \nabla P = F, \quad (4.15)$$

$$\operatorname{div}(U) = 0 \quad (4.16)$$

dans  $\Omega^+$ . De plus on a

$$U_3 = 0 \quad \text{sur} \quad \Lambda \times \{-\varepsilon\} \quad \text{et} \quad \Lambda \times \{\varepsilon\} \quad (4.17)$$

et

$$\frac{\partial U_i}{\partial x_3} = 0 \quad \text{sur} \quad \Lambda \times \{-\varepsilon\} \quad \text{et} \quad \Lambda \times \{\varepsilon\} \quad (4.18)$$

pour  $i = 1, 2$ , c'est-à-dire que

$$(\mathcal{T}(U) \cdot \nu) \cdot t_i = 0 \quad i = 1, 2, \text{ sur } \Lambda \times \{-\varepsilon, \varepsilon\}. \quad (4.19)$$

On prolonge toutes les fonctions dans la variable  $x_3$  sur tout  $\mathbb{R}$  en des fonctions périodiques de période  $2\varepsilon$  en  $x_3$ . On note encore par  $U_1, U_2, U_3, P, F_1, F_2, F_3$  ces prolongements, c'est-à-dire que ces fonctions sont considérées comme fonctions de  $(x_1, x_2, x_3) \in \Lambda \times \mathbb{R}$  et  $2\varepsilon$ -périodiques selon  $x_3$ . Les fonctions  $U_1, U_2, U_3$  sont  $C^2$  par morceaux,  $P$  est  $C^1$  par morceaux et  $F_1, F_2, F_3$  sont  $C^0$  par morceaux.

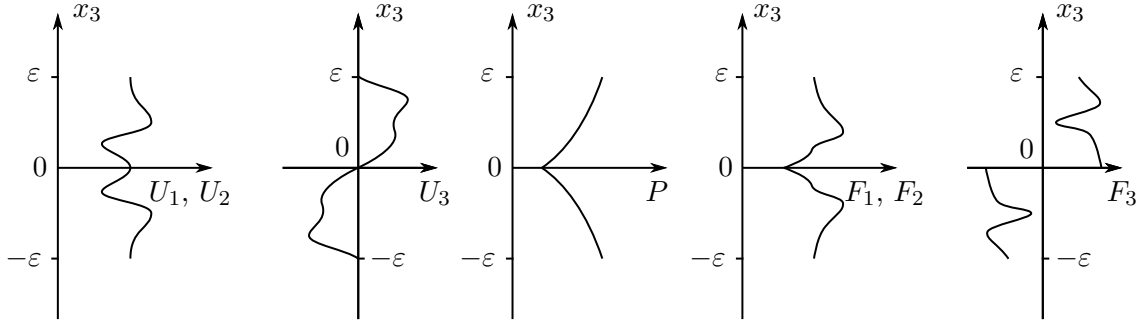


FIGURE 4.1 – Représentation schématique de la réplcation des fonction  $u_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ , et  $f_i$ ,  $i = 1, 2, 3$  sur l'intervalle  $(0, -\varepsilon)$ . En  $x_3 = 0$ , les fonctions  $U_i$ ,  $i = 1, 2, 3$  sont  $C^1$ ,  $P$ ,  $F_1, F_2$  sont  $C^0$ , et  $F_3$  est discontinue.

On pose pour alléger l'écriture  $\beta^k = \frac{\pi k}{\varepsilon}$ . Les décompositions en séries de Fourier selon la variable  $x_3$  des fonctions  $U_i, F_i$ ,  $i = 1, 2, 3$  et  $P$  s'écrivent

$$U_i(x_1, x_2, x_3) = u_i^0(x_1, x_2) + \sum_{k>0} u_i^k(x_1, x_2) \cos(\beta^k x_3), \quad i = 1, 2, \quad (4.20)$$

$$U_3(x_1, x_2, x_3) = \sum_{k>0} u_3^k(x_1, x_2) \sin(\beta^k x_3), \quad (4.21)$$

$$P(x_1, x_2, x_3) = p^0(x_1, x_2) + \sum_{k>0} p^k(x_1, x_2) \cos(\beta^k x_3), \quad (4.22)$$

$$F_i(x_1, x_2, x_3) = f_i^0(x_1, x_2) + \sum_{k>0} f_i^k(x_1, x_2) \cos(\beta^k x_3), \quad i = 1, 2, \quad (4.23)$$

$$F_3(x_1, x_2, x_3) = \sum_{k>0} f_3^k(x_1, x_2) \sin(\beta^k x_3). \quad (4.24)$$

On note  $u^0 = (u_1^0, u_2^0)$ ,  $f^0 = (f_1^0, f_2^0)$ ,  $u^k = (u_1^k, u_2^k, u_3^k)$  et  $f^k = (f_1^k, f_2^k, f_3^k)$ ,  $k \geq 1$ . On obtient les équations que les coefficients de Fourier  $u^k, p^k$ ,  $k > 0$  doivent satisfaire en substituant les définitions (4.20) à (4.24) dans le système d'équation de Stokes (4.15), (4.16). Les bases de Fourier  $\{\cos(\beta^k x_3)\}_{k>0}$  et  $\{\sin(\beta^k x_3)\}_{k>0}$  sur  $\mathbb{R}$  étant respectivement orthogonales, on peut identifier les équations pour chaque mode indépendamment des autres. On obtient pour  $k = 0$  :

$$-\sum_{j=1}^2 \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \mu_{ji} \left( \frac{\partial u_i^0}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j^0}{\partial x_i} \right) \right) + \frac{\partial p^0}{\partial x_i} = f_i^0, \quad i = 1, 2, \quad (4.25)$$

$$\sum_{j=1}^2 \frac{\partial u_j^0}{\partial x_j} = 0 \quad (4.26)$$

sur  $\Lambda$  et  $u^0 = 0$  sur  $\partial\Lambda$ .

On obtient pour  $k \geq 1$  :

$$-\sum_{j=1}^2 \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \mu^{ji} \left( \frac{\partial u_i^k}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j^k}{\partial x_i} \right) \right) - \mu_{3i} \left( \beta^k \frac{\partial u_3^k}{\partial x_i} - (\beta^k)^2 u_i^k \right) + \frac{\partial p^k}{\partial x_i} = f_i^k, \quad i = 1, 2, \quad (4.27)$$

$$-\sum_{j=1}^2 \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \mu_{j3} \left( \frac{\partial u_3^k}{\partial x_j} - \beta^k u_j^k \right) \right) + 2\mu_{33} (\beta^k)^2 u_3^k - \beta^k p^k = f_3^k, \quad (4.28)$$

$$\sum_{j=1}^2 \frac{\partial u_j^k}{\partial x_j} + \beta^k u_3^k = 0 \quad (4.29)$$

sur  $\Lambda$  et  $u^k = 0$  sur  $\partial\Lambda$ .

Étant données les forces  $F_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ , les coefficients  $f^k$ ,  $k \geq 0$  qui apparaissent dans les membres de droite des équations (4.25), (4.27) et (4.28) s'obtiennent par une projection  $L^2$  sur la base de Fourier correspondante. Pour  $k = 0$  on a

$$\begin{aligned} f_i^0(x_1, x_2) &= \frac{1}{2\varepsilon} \int_{-\varepsilon}^{\varepsilon} F_i(x_1, x_2, x_3) dx_3, \quad i = 1, 2, \\ &= \frac{1}{\varepsilon} \int_0^{\varepsilon} f_i(x_1, x_2, x_3) dx_3, \quad i = 1, 2, \end{aligned} \quad (4.30)$$

et pour  $k > 0$  on a

$$f_i^k(x_1, x_2) = \frac{1}{\varepsilon} \int_{-\varepsilon}^{\varepsilon} F_i(x_1, x_2, x_3) \cos(\beta^k x_3) dx_3, \quad i = 1, 2, \quad (4.31)$$

$$= \frac{2}{\varepsilon} \int_0^{\varepsilon} f_i(x_1, x_2, x_3) \cos(\beta^k x_3) dx_3, \quad i = 1, 2, \quad (4.32)$$

$$f_3^k(x_1, x_2) = \frac{1}{\varepsilon} \int_{-\varepsilon}^{\varepsilon} F_3(x_1, x_2, x_3) \sin(\beta^k x_3) dx_3, \quad (4.33)$$

$$= \frac{2}{\varepsilon} \int_0^{\varepsilon} f_3(x_1, x_2, x_3) \sin(\beta^k x_3) dx_3. \quad (4.34)$$

**Formulation faible** Nous énonçons maintenant les formulations variationnelles du problème formé par les équations (4.25) et (4.26) qui correspondent au mode fondamental de l'écoulement  $u$ , et des problèmes formés par les équations (4.27) à (4.29) qui correspondent à chacune des harmoniques de l'écoulement  $u$ . Pour ce faire, nous aurons besoin des espaces fonctionnels suivants. L'espace  $L^2(\Lambda)$  est l'ensemble

$$L^2(\Lambda) = \left\{ f : \Lambda \rightarrow \mathbb{R} \mid \int_{\Lambda} |f|^2 dx < \infty \right\}. \quad (4.35)$$

Il est muni du produit scalaire

$$(f, g)_{L^2(\Lambda)} = \int_{\Lambda} f(x)g(x)dx \quad (4.36)$$

pour tout  $f, g \in L^2(\Lambda)$ , et de la norme

$$\|f\|_{L^2(\Lambda)} = \sqrt{(f, f)_{L^2(\Lambda)}} \quad \forall f \in L^2(\Lambda). \quad (4.37)$$

On notera encore  $H^1(\Lambda)$  l'espace de Sobolev  $W^{1,2}(\Lambda)$ , c'est-à-dire que

$$H^1(\Lambda) = \left\{ f \in L^2(\Lambda) \mid \int_{\Lambda} |\nabla f|^2 dx < \infty \right\} \quad (4.38)$$

et

$$H_0^1(\Lambda) = \left\{ f \in H^1(\Lambda) \mid f|_{\partial\Lambda} = 0 \right\}. \quad (4.39)$$

Nous aurons finalement besoin des espaces de fonctions à moyenne nulle

$$L_0^2(\Lambda) = \left\{ f \in L^2(\Lambda) \mid \int_{\Lambda} f \, dx = 0 \right\}, \quad (4.40)$$

$$\text{et } H_{0,0}^1(\Lambda) = \left\{ f \in H_0^1(\Lambda) \mid \int_{\Lambda} f \, dx = 0 \right\}. \quad (4.41)$$

Remarquons que  $L_0^2(\Lambda)$  est un sous-espace fermé de  $L^2(\Lambda)$  et  $H_{0,0}^1(\Lambda)$  est un sous-espace fermé de  $H_0^1(\Lambda)$  ce qui sera important pour répondre aux questions d'existence et d'unicité par la suite.

Commençons tout d'abord par traiter le mode fondamental. Pour simplifier l'écriture, on note  $\bar{\mu}$  et  $\bar{\mathcal{E}}$  la viscosité et le tenseur du taux de déformation réduits aux composantes 1 et 2 :

$$\bar{\mu} = \begin{bmatrix} \mu_{1,1} & \mu_{1,2} \\ \mu_{2,1} & \mu_{2,2} \end{bmatrix}, \quad \text{et } \bar{\mathcal{E}}_{ij}(u) = \mathcal{E}_{ij}(u), \quad i, j = 1, 2. \quad (4.42)$$

Le problème faible correspondant aux équations (4.25) et (4.26) consiste à chercher les fonctions  $u_1^0, u_2^0 \in H_0^1(\Lambda)$ ,  $p^0 \in L_0^2(\Lambda)$ , telles que

$$\int_{\Lambda} \mu \otimes \bar{\mathcal{E}}(u^0) : \bar{\mathcal{E}}(v) \, dx_1 \, dx_2 - \int_{\Lambda} p^0 \operatorname{div} v \, dx_1 \, dx_2 = \int_{\Lambda} f^0 \cdot v \, dx_1 \, dx_2, \quad (4.43)$$

$$\int_{\Lambda} q \operatorname{div} u^0 \, dx_1 \, dx_2 = 0, \quad (4.44)$$

pour toutes fonctions  $v \in (H_0^1(\Lambda))^2$ ,  $q \in L_0^2(\Lambda)$ . Ici  $\otimes$  est le produit tensoriel, i.e.,  $(\mu \otimes \bar{\mathcal{E}})_{i,j} = \mu_{ij} \bar{\mathcal{E}}_{ij}$  et  $\mu \otimes \bar{\mathcal{E}}(u) : \bar{\mathcal{E}}(v) = \sum_{i,j=1}^2 \mu_{ij} \bar{\mathcal{E}}_{ij}(u) \bar{\mathcal{E}}_{ij}(v)$ . En admettant que  $\partial\Lambda$  est Lipschitzien et en supposant que  $f^0 \in L^2(\Lambda)$ , il est connu que la formulation faible (4.43),(4.44) admet une unique solution [Tem77].

Traisons à présent les problèmes pour les coefficients  $u^k$  et  $p^k$ . Soit  $k > 0$  et soit  $\tilde{\mathcal{E}}^k$  le tenseur  $3 \times 3$  défini par

$$\tilde{\mathcal{E}}^k(u) = \begin{bmatrix} 2 \frac{\partial u_1}{\partial x_1} & \frac{\partial u_1}{\partial x_2} + \frac{\partial u_2}{\partial x_1} & \frac{\partial u_3}{\partial x_1} - \beta_k u_1 \\ \frac{\partial u_2}{\partial x_1} + \frac{\partial u_1}{\partial x_2} & 2 \frac{\partial u_2}{\partial x_2} & \frac{\partial u_3}{\partial x_2} - \beta_k u_2 \\ \frac{\partial u_3}{\partial x_1} - \beta_k u_1 & \frac{\partial u_3}{\partial x_2} - \beta_k u_2 & 2 \beta_k u_3 \end{bmatrix} \quad (4.45)$$

On obtient la formulation faible pour chaque harmonique en multipliant les équations (4.27) à (4.29) par des fonctions test  $v_1, v_2, v_3$  et  $q$  et en intégrant par parties les termes qui comportent des dérivées secondes. Le problème faible pour chaque harmonique  $k$  consiste à chercher les fonctions  $u^k = (u_1^k, u_2^k, u_3^k) \in (H_0^1(\Lambda))^3$  et  $p^k \in L^2(\Lambda)$  telles que

$$\int_{\Lambda} 2\mu \otimes \tilde{\mathcal{E}}^k(u^k) : \tilde{\mathcal{E}}^k(v) - \int_{\Lambda} p^k \left( \frac{\partial v_1}{\partial x_1} + \frac{\partial v_2}{\partial x_2} + \beta^k v_3 \right) = \int_{\Lambda} f^k \cdot v, \quad (4.46)$$

$$\int_{\Lambda} \left( \frac{\partial u_1^k}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2^k}{\partial x_2} + \beta^k u_3^k \right) q = 0 \quad (4.47)$$

pour toutes fonctions  $v = (v_1, v_2, v_3) \in (H_0^1(\Lambda))^3$  et  $q \in L^2(\Lambda)$ . Ici on adopte les mêmes notations que précédemment pour le produit tensorielle avec  $i, j = 1, 2, 3$ . Remarquons que

l'on omet  $dx_1 dx_2$  dans les intégrales pour simplifier l'écriture. Nous reformulons maintenant ce problème sous une forme plus adéquate pour l'analyse qui suit. On montre en utilisant le théorème de la divergence et en posant  $\tilde{p}^k = p^k - C^k$  avec  $C^k = |\Lambda|^{-1} \int_{\Lambda} p^k dx_1 dx_2$  que le problème (4.46),(4.47) est équivalent au problème suivant : trouver  $u^k \in H_0^1(\Lambda)^3$ ,  $\tilde{p}^k \in L_0^2(\Lambda)$  et  $C^k \in \mathbb{R}$  tels que pour tout  $v \in H_0^1(\Lambda)^3$  et  $q \in L_0^2(\Lambda)$  :

$$\int_{\Lambda} 2\mu \otimes \tilde{\mathcal{E}}^k(u^k) : \tilde{\mathcal{E}}^k(v) - \int_{\Lambda} \tilde{p}^k \left( \frac{\partial v_1}{\partial x_1} + \frac{\partial v_2}{\partial x_2} \right) - \int_{\Lambda} (\tilde{p}^k + C^k) \beta^k v_3 = \int_{\Lambda} f^k \cdot v, \quad (4.48)$$

$$\int_{\Lambda} \left( \frac{\partial u_1^k}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2^k}{\partial x_2} + \beta^k u_3^k \right) q = 0, \quad (4.49)$$

$$\int_{\Lambda} u_3^k = 0. \quad (4.50)$$

Soit maintenant  $\psi \in H_0^1(\Lambda)$  tel que  $\int_{\Lambda} \psi dx \neq 0$ . Alors on peut écrire  $H_0^1(\Lambda) = H_{0,0}^1(\Lambda) \oplus W$ , où  $W = \text{span}(\psi)$ . En cherchant  $u_3^k \in H_{0,0}^1(\Lambda)$  (voir éq. (4.50)), on obtient le problème que l'on montrera bien posé suivant : trouver  $u^k \in H_0^1(\Lambda)^2 \times H_{0,0}^1(\Lambda)$ ,  $\tilde{p}^k \in L_0^2(\Lambda)$  tels que pour tout  $v \in H_0^1(\Lambda)^2 \times H_{0,0}^1(\Lambda)$ ,  $q \in L_0^2(\Lambda)$  on ait

$$\int_{\Lambda} 2\mu \otimes \tilde{\mathcal{E}}^k(u^k) : \tilde{\mathcal{E}}^k(v) - \int_{\Lambda} \tilde{p}^k \left( \frac{\partial v_1}{\partial x_1} + \frac{\partial v_2}{\partial x_2} + \beta^k v_3 \right) = \int_{\Lambda} f^k \cdot v, \quad (4.51)$$

$$\int_{\Lambda} \left( \frac{\partial u_1^k}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2^k}{\partial x_2} + \beta^k u_3^k \right) q = 0 \quad (4.52)$$

La constante  $C^k$  est unique et peut être calculée a posteriori en connaissant les fonctions  $u^k$  et  $\tilde{p}^k$ . Nous reportons la discussion de ce point à la fin de cette section.

Afin de rendre plus explicite la structure sous-jacente de cette formulation, on peut l'exprimer en des termes plus abstraits. Notons  $V = H_0^1(\Lambda)^2 \times H_{0,0}^1(\Lambda)$ . Soit  $a^k : V \times V \rightarrow \mathbb{R}$  les formes bilinéaires continues définies pour tout  $k > 0$  par

$$a^k(u, v) = \int_{\Lambda} 2\mu \otimes \tilde{\mathcal{E}}^k(u) : \tilde{\mathcal{E}}^k(v) \quad (4.53)$$

et les formes bilinéaires continues  $b^k : V \times L_0^2(\Lambda) \rightarrow \mathbb{R}$  définies pour tout  $k > 0$  par

$$b^k(u, q) = \int_{\Lambda} \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \beta^k u_3 \right) q. \quad (4.54)$$

Ainsi pour  $k$  fixé, le problème (4.51), (4.52) est équivalent au problème de chercher  $(u^k, \tilde{p}^k) \in V \times L_0^2(\Lambda)$  tel que

$$a^k(u^k, v) - b^k(v, p^k) = \int_{\Lambda} f^k \cdot v, \quad (4.55)$$

$$b^k(u^k, q) = 0 \quad (4.56)$$

pour tout  $(v, q) \in V \times L_0^2(\Lambda)$ .

**Existence d'une solution faible pour les harmoniques** On donne maintenant une preuve de l'existence et de l'unicité du problème faible (4.55), (4.56) pour chaque coefficient  $(u^k, p^k)$ . Dans ce but, nous introduisons au préalable les deux lemmes suivants.

**Lemme 1.** Soit un entier  $k > 0$  fixé et une fonction  $u \in H_0^1(\Lambda)^3$  telle que  $\frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \beta^k u_3 = 0$ . On a la relation

$$\int_{\Lambda} |\tilde{\mathcal{E}}^k(u)|^2 = \int_{\Lambda} \left( |\bar{\mathcal{E}}(u)|^2 + \frac{1}{2} \left( \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_1} \right)^2 + \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_2} \right)^2 + (\beta^k u_1)^2 + (\beta^k u_2)^2 \right) \right) \quad (4.57)$$

*Démonstration.* Le calcul de  $|\tilde{\mathcal{E}}^k(u)|^2$  une fois intégré sur  $\Lambda$  donne :

$$\begin{aligned} \int_{\Lambda} |\tilde{\mathcal{E}}^k(u)|^2 &= \int_{\Lambda} \left( |\bar{\mathcal{E}}(u)|^2 + \frac{1}{2} \left( \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_1} \right)^2 + \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_2} \right)^2 + (\beta^k u_1)^2 + (\beta^k u_2)^2 \right) \right) \\ &\quad + \int_{\Lambda} \beta^k \left( -u_1 \frac{\partial u_3}{\partial x_1} - u_2 \frac{\partial u_3}{\partial x_2} + \beta^k (u_3)^2 \right). \end{aligned} \quad (4.58)$$

Pour obtenir le résultat souhaité, il reste à voir que le dernier terme de (4.58) est nul. En utilisant le théorème de la divergence et les conditions limites de  $u_3$  sur  $\partial\Lambda$  ( $u_3 = 0$  sur  $\partial\Lambda$ ) on obtient

$$\int_{\Lambda} \beta^k \left( -u_1 \frac{\partial u_3}{\partial x_1} - u_2 \frac{\partial u_3}{\partial x_2} + \beta^k (u_3)^2 \right) = \int_{\Lambda} \beta^k \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} u_3 + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} u_3 + \beta^k u_3^2 \right) \quad (4.59)$$

En utilisant l'hypothèse que  $\frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \beta^k u_3 = 0$  on obtient le résultat annoncé.  $\square$

**Lemme 2.** Soit un entier  $k > 0$  fixé. Il existe une constante positive  $\chi > 0$  telle que

$$\chi \|\nabla u\|_{L^2(\Lambda)} \leq \|\tilde{\mathcal{E}}^k(u)\|_{L^2(\Lambda)}, \quad (4.60)$$

pour tout  $u \in H_0^1(\Lambda)^3$  qui satisfait  $\frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \beta^k u_3 = 0$ . Ici on a noté

$$\|\nabla u\|_{L^2(\Lambda)}^2 = \sum_{i,j=1}^3 \left\| \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right\|_{L^2(\Lambda)}^2 \quad (4.61)$$

et

$$\|\tilde{\mathcal{E}}(u)\|_{L^2(\Lambda)}^2 = \int_{\Lambda} |\tilde{\mathcal{E}}(u)|^2. \quad (4.62)$$

*Démonstration.* Il est connu que l'inégalité de Korn en dimension 2 est vraie, i.e., il existe une constante  $\chi > 0$  qui satisfait

$$\chi \sum_{i,j=1}^2 \left\| \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right\|_{L^2(\Lambda)}^2 \leq \int_{\Lambda} |\bar{\mathcal{E}}(u)|^2. \quad (4.63)$$

Le lemme 1 permet de conclure.  $\square$

**Proposition 1.** Si le tenseur de viscosité  $\mu$  satisfait

$$\mu_{i,j}(x_1, x_2) \geq \chi_0 \quad \forall (x_1, x_2) \in \Lambda, \quad 1 \leq i, j \leq 3, \quad (4.64)$$

où  $\chi_0 > 0$  est une constante positive indépendante de  $(x_1, x_2) \in \Lambda$ , alors le problème (4.55), (4.56) admet une unique solution.

*Démonstration.* Pour montrer la proposition 1, il suffit de vérifier que la forme  $a^k(\cdot, \cdot)$  est coercive sur  $V_0$  où  $V_0 = \{v \in V \mid b^k(v, q) = 0 \quad \forall q \in L_0^2(\Lambda)\}$ , et que la condition classique inf-sup sur la forme bilinéaire  $b^k$  est satisfaite.

Montrons tout d'abord que  $\frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + (\beta^k)^2 u_3 = 0$ , c'est-à-dire que

$$\int_{\Omega} \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + (\beta^k)^2 u_3 \right) q = 0, \quad \forall q \in L^2(\Lambda). \quad (4.65)$$

Remarquons que

$$\int_{\Omega} \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + (\beta^k)^2 u_3 \right) q = b^k(u, q), \quad (4.66)$$

et on sait déjà que  $b^k(u, q) = 0 \forall q \in L_0^2(\Lambda)$ . De plus, on a que  $b^k(u, q) = 0$  lorsque  $q = 1$ , puisque

$$\int_{\Lambda} u_3 = 0 \quad \text{et} \quad \int_{\Lambda} \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} = 0. \quad (4.67)$$

Ainsi le lemme 1 s'applique, et les lemmes 1 et 2 avec l'hypothèse (4.64) montre bien que  $a^k$  est coercive sur  $V_0$ . D'autre part en utilisant l'inégalité concernant la condition inf-sup dans  $\mathbb{R}^2$  et si  $q \in L_0^2(\Lambda)$ , on a que

$$\begin{aligned} \sup_{\|v\|_{H_0^1(\Lambda)^3}=1} b^k(v, q) &= \sup_{\|v\|_{H_0^1(\Lambda)^3}=1} \int_{\Lambda} \left( \frac{\partial v_1}{\partial x_1} + \frac{\partial v_2}{\partial x_2} + \beta^k v_3 \right) q \\ &\geq \sup_{\|(v_1, v_2, 0)\|_{H_0^1(\Lambda)^3}=1} \int_{\Lambda} \left( \frac{\partial v_1}{\partial x_1} + \frac{\partial v_2}{\partial x_2} \right) q \\ &= \sup_{\|(v_1, v_2)\|_{H_0^1(\Lambda)^2}=1} \int_{\Lambda} \left( \frac{\partial v_1}{\partial x_1} + \frac{\partial v_2}{\partial x_2} \right) q \\ &\geq \gamma \|q\|_{L_0^2(\Lambda)}, \end{aligned}$$

où  $\gamma > 0$ . Ainsi on a bien

$$\inf_{q \in L_0^2(\Lambda)} \sup_{v \in V} \frac{b(v, q)}{\|q\|_{L_0^2(\Lambda)} \|v\|_V} \geq \gamma > 0,$$

et la proposition est prouvée.  $\square$

Afin d'obtenir le coefficient de Fourier de la pression  $p^k$ , il reste à calculer la constante  $C^k$  et à montrer son unicité. En prenant la fonction test  $v = (0, 0, \psi)$  dans (4.48) on obtient

$$\int_{\Lambda} 2\mu \otimes \tilde{\mathcal{E}}^k(u^k) : \tilde{\mathcal{E}}^k(v) - \beta^k \int_{\Lambda} (\tilde{p}^k + C^k) = \int_{\Lambda} f_3 \psi, \quad (4.68)$$

ce qui permet de calculer  $C^k$ .

On montre enfin que le calcul de la constante  $C^k$  ne dépend pas du choix de la fonction de base  $\psi$  de  $W$ . En effet, en considérant une autre fonction  $\phi \in H_0^1(\Lambda)$  telle que  $\int_{\Lambda} \phi \neq 0$  alors  $\phi = \bar{\phi} + \tilde{\phi}$  où  $\tilde{\phi} \in H_{0,0}^1(\Lambda)$  et  $\bar{\phi} \in W$  puisque  $H_0^1(\Lambda) = H_{0,0}^1 \oplus W$ . Cette décomposition implique qu'il existe une unique constante  $\gamma \in \mathbb{R}$  telle que  $\tilde{\phi} = \gamma\psi$ . Si, au lieu de  $v = (0, 0, \psi)$  on prend  $v = (0, 0, \phi) = (0, 0, \tilde{\phi}) + (0, 0, \gamma\psi)$  dans (4.48), alors  $(0, 0, \tilde{\phi}) \in H_0^1(\Lambda)^2 \times H_{0,0}^1(\Lambda)$ . Cette fonction test est comprise dans (4.51). D'autre part  $(0, 0, \gamma\psi)$  donne la même constante  $C^k$  que la relation (4.68).

### 4.3 Discrétisation par une méthode d'éléments finis

Dans cette section nous décrivons les méthodes de discrétisations proposées pour approximer le coefficient du mode fondamental de l'écoulement  $(u^0, p^0)$  et les coefficients des harmoniques  $(u^k, p^k)$ .

Soit un nombre réel  $h > 0$  et soit  $\mathcal{M}_h$  une triangulation du domaine  $\Lambda$  de  $\mathbb{R}^2$  telle que  $\text{diam}(\mathcal{K}) \leq h, \forall \mathcal{K} \in \mathcal{M}_h$ . On introduit maintenant l'espace éléments finis  $V_h$  défini par

$$V_h = \left\{ v \in C^0(\Lambda) \mid v|_{\mathcal{K}} \in \mathbb{P}_1(\mathcal{K}) \quad \forall \mathcal{K} \in \mathcal{M}_h \right\}, \quad (4.69)$$

avec  $\mathbb{P}_1(\mathcal{K})$  l'espace des polynômes de degré 1 sur le triangle  $\mathcal{K}$ . On définit aussi l'espace enrichi par une fonction bulle

$$B_h = \left\{ v \in C^0(\Lambda)^2 \mid v|_{\mathcal{K}} \in \mathbb{P}_1(\mathcal{K})^2 \oplus B_{\mathcal{K}} \quad \forall \mathcal{K} \in \mathcal{M}_h \right\} \cap H_0^1(\Lambda)^2 \quad (4.70)$$

où  $B_{\mathcal{K}}$  est engendré par la fonction  $27\lambda_1^{\mathcal{K}}\lambda_2^{\mathcal{K}}\lambda_3^{\mathcal{K}}$ , les  $\lambda_i^{\mathcal{K}}, i = 1, 2, 3$ , étant les trois fonctions barycentriques du triangle  $\mathcal{K}$ .

**Mode fondamental** La méthode d'éléments finis correspondant à la discrétisation des équations (4.43), (4.44) consiste à chercher  $(u_h^0, p_h^0) \in B_h \times (V_h \cap L_0^2(\Lambda))$  tels que, pour tout  $(v_h, q_h) \in B_h \times (V_h \cap L_0^2(\Lambda))$  on ait

$$\int_{\Lambda} 2\mu \otimes \bar{\mathcal{E}}(u_h^0) : \bar{\mathcal{E}}(v) - \int_{\Lambda} p_h^0 \text{div}(v_h) = \int_{\Lambda} f^0 \cdot v_h, \quad (4.71)$$

$$\int_{\Lambda} q_h \text{div} u_h^0 = 0. \quad (4.72)$$

Il est connu que le couple d'espaces éléments finis  $(B_h, V_h \cap L_0^2(\Lambda))$  est stable, ainsi (4.71), (4.72) admet une unique solution [Tem77].

Le schéma (4.71), (4.72) fait intervenir l'espace éléments finis à moyenne nulle  $V_h \cap L_0^2(\Lambda)$  pour le mode fondamental de la pression  $p^0$ . En pratique, on exprime explicitement la contrainte sur la pression dans le problème faible en ajoutant l'équation

$$\int_{\Lambda} p_h^0 = 0 \quad (4.73)$$

et en ajoutant un multiplicateur de Lagrange pour la fonction test  $q_h$ . Il est alors équivalent de chercher  $(u_h^0, p_h^0) \in B_h \times V_h$  et  $\lambda \in \mathbb{R}$  tels que, pour tout  $(v_h, q_h) \in B_h \times V_h$  on ait

$$\int_{\Lambda} 2\mu \otimes \bar{\mathcal{E}}(u_h^0) : \bar{\mathcal{E}}(v) - \int_{\Lambda} p_h^0 \text{div}(v_h) = \int_{\Lambda} f^0 \cdot v_h, \quad (4.74)$$

$$\int_{\Lambda} q_h \text{div} u_h^0 + \lambda \int_{\Lambda} q_h = 0, \quad (4.75)$$

$$\int_{\Lambda} p_h^0 = 0. \quad (4.76)$$

**Harmoniques** On considère à présent la discrétisation de la formulation faible (4.46), (4.47). Pour  $k > 0$  donné, le problème discrétisé consiste à chercher les fonctions  $(u_h^k, p_h^k) \in (V_h \cap H_0^1(\Lambda))^3 \times V_h$  telles que

$$\int_{\Lambda} 2\mu \otimes \tilde{\mathcal{E}}(u_h^k) : \tilde{\mathcal{E}}(v) - \int_{\Lambda} p_h^k \left( \frac{\partial v_{1,h}}{\partial x_1} \frac{\partial v_{2,h}}{\partial x_2} + \beta^k p_h^k v_{3,h} \right) = \int_{\Lambda} f \cdot v_h, \quad (4.77)$$

$$\int_{\Lambda} \left( \frac{\partial u_{1,h}^k}{\partial x_1} + \frac{\partial u_{2,h}^k}{\partial x_2} + \beta^k u_{3,h}^k \right) q_h + \frac{\delta}{\max_{1 \leq i, j \leq 3} \mu_{i,j}} \sum_{\mathcal{K} \in \mathcal{M}_h} h_{\mathcal{K}}^2 \int_{\mathcal{K}} \left( (\beta^k)^2 p_h^k q_h + \nabla p_h^k \nabla q_h \right) = 0 \quad (4.78)$$

pour tout  $(v_{1,h}, v_{2,h}, v_{3,h}, q_h) \in (V_h \cap H_0^1(\Lambda))^3 \times V_h$ . Ici  $\delta > 0$  et le terme de stabilisation dans (4.78) qui est justifié par le fait que, d'après (4.22),

$$\Delta P = \Delta p^0 + \sum_{k>0} \left( \Delta p^k - (\beta^k)^2 p^k \right) \cos(\beta^k x_3). \quad (4.79)$$



**Quadrature pour les coefficients de Fourier de la force** En pratique, les forces  $f_i$ ,  $i = 1, 2, 3$  sont données aux sommets du maillage  $\mathcal{M}_h$ . Les intégrales qui interviennent dans les définitions (4.30), (4.32) et (4.34) sont approchées par une formule de Simpson sur une subdivision uniforme de l'intervalle  $[0, \varepsilon]$ . Le nombre de subdivision sera choisi de sorte à ce que cette erreur de quadrature soit négligeable par rapport aux erreurs introduites par les discrétisations éléments finis et la troncature de la série de Fourier.

**Résolution des systèmes linéaires** Les systèmes linéaires issus des formulations (4.74)-(4.76) et (4.77),(4.78) sont résolus avec la méthode GMRES préconditionnée par ILU(2). Le critère d'arrêt de l'itération de GMRES est :

$$\frac{\|P^{-1}(Ax^n - b)\|_{l^2}}{\|P^{-1}(Ax^0 - b)\|_{l^2}} \leq 1 \times 10^{-10}, \quad (4.80)$$

où  $A$  est la matrice associée à la forme bilinéaire d'une formulation variationnelle,  $P$  le préconditionneur ILU(2) associé à la matrice  $A$ ,  $b$  le vecteur du membre de droite associé à la forme linéaire et  $x^n$  les valeurs de l'approximation de la solution  $x$  aux itérations successives de l'algorithme GMRES.

**Reconstruction de la solution** On se fixe un entier  $K > 0$ , on suppose avoir calculé  $u^k, p^k$ ,  $k = 1, 2, \dots, K$  solutions de (4.74)-(4.76) et (4.77), (4.78). En vertu de (4.20)-(4.22), on note pour tout  $(x_1, x_2, x_3) \in \Omega$

$$u_{i,h,K}(x_1, x_2, x_3) = u_{i,h}^0(x_1, x_2) + \sum_{k=1}^K u_{i,h}^k \cos(\beta^k x_3), \quad i = 1, 2 \quad (4.81)$$

$$u_{3,h,K}(x_1, x_2, x_3) = \sum_{k=1}^K u_{3,h}^k \sin(\beta^k x_3) \quad (4.82)$$

et

$$p_{h,K}(x_1, x_2, x_3) = p_h^0(x_1, x_2) + \sum_{k=1}^K p_h^k(x_1, x_2) \cos(\beta^k x_3). \quad (4.83)$$

Enfin on notera  $u_{h,K} = (u_{1,h,K}, u_{2,h,K}, u_{3,h,K})$ .

## 4.4 Validation numérique

Dans cette section on propose de valider l'implémentation des schémas numériques décrits dans la section (4.3). Dans un premier temps, on introduit une solution exacte du problème (4.4),(4.5) qui satisfait les conditions aux limites (4.6)-(4.8). Dans un deuxième temps, on analysera la convergence de l'erreur entre la solution exacte et l'approximation  $u_{h,K}$  telle que définie par (4.81), (4.82).

### 4.4.1 Une solution exacte polynomiale non triviale

On pose  $\Lambda = (-1, 1)^2$ , on rappelle que  $\Omega = \Lambda \times (0, \varepsilon)$ . On choisit dans cette partie 4.4 une viscosité scalaire unité, c'est-à-dire que  $\mu_{i,j} = 1$ ,  $\forall i, j$ . On vérifie alors que les

fonctions  $u_1, u_2, u_3 : \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  et  $p : \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  définies par :

$$u_1(x_1, x_2, x_3) = u_2(x_1, x_2, x_3) = (x_1^2 - 1)^2 (x_2^2 - 1)^2 \left( x_3^3 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^2 + \frac{1}{4}\varepsilon^3 \right), \quad (4.84)$$

$$u_3(x_1, x_2, x_3) = \left( -4x_1 (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1)^2 - 4x_2 (x_2^2 - 1) (x_1^2 - 1)^2 \right) \cdot \left( \frac{1}{4}x_3^4 - \frac{1}{2}\varepsilon x_3^3 + \frac{1}{4}\varepsilon^3 x_3 \right), \quad (4.85)$$

$$p(x_1, x_2, x_3) = x_1^3 x_2^4 x_3^5 \quad (4.86)$$

satisfont (4.4), (4.5) avec les conditions aux limites (4.6)-(4.8), pour autant que  $f$  dans (4.4) soit définie par

$$\begin{aligned} f_1(x_1, x_2, x_3) = & - \left( 8x_1^2 (x_2^2 - 1)^2 \left( \frac{1}{4}\varepsilon^4 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^2 + x_3^3 \right) - (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1)^2 (3\varepsilon - 6x_3) \right. \\ & + 8x_2^2 (x_1^2 - 1)^2 \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^3 + x_3^3 \right) + 4 (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1)^2 \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^2 + x_3^3 \right) \\ & \left. + 4 (x_1^2 - 1)^2 (x_2^2 - 1) \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^2 + x_3^3 \right) \right) \\ & + 3x_1^2 x_2^3 x_3^5, \quad (4.87) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} f_2(x_1, x_2, x_3) = & - \left( 8x_1^2 (x_2^2 - 1)^2 \left( \frac{1}{4}\varepsilon^4 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^2 + x_3^3 \right) - (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1)^2 (3\varepsilon - 6x_3) \right. \\ & + 8x_2^2 (x_1^2 - 1)^2 \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^3 + x_3^3 \right) \\ & + 4 (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1)^2 \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^2 + x_3^3 \right) \\ & \left. + 4 (x_1^2 - 1)^2 (x_2^2 - 1) \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 - \frac{3}{2}\varepsilon x_3^2 + x_3^3 \right) \right) \\ & + 4x_1^3 x_2^3 x_3^5, \quad (4.88) \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} f_3(x_1, x_2, x_3) = & \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 x_3 - \frac{1}{2}\varepsilon x_3^3 + \frac{1}{4}x_3^4 \right) \left( 24x_2 (x_1^2 - 1)^2 \right. \\ & + 32x_1 x_2^2 (x_1^2 - 1) + 16x_1 (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1) \left. \right) + \left( \frac{1}{4}\varepsilon^3 x_3 - \frac{1}{2}\varepsilon x_3^3 + \frac{1}{4}x_3^4 \right) \left( 24x_1 (x_2^2 - 1)^2 \right. \\ & + 32x_1^2 x_2 (x_2^2 - 1) + 16x_2 (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1) \left. \right) \\ & + \left( 3x_3^2 - 3\varepsilon x_3 \right) \left( 4x_1 (x_1^2 - 1) (x_2^2 - 1)^2 + 4x_2 (x_1^2 - 1)^2 (x_2^2 - 1) \right) \\ & + 5x_1^3 x_2^4 x_3^4. \quad (4.89) \end{aligned}$$

Les figures 4.2, 4.3 représentent la solution (4.84)-(4.86) pour le choix  $\varepsilon = 2$ , i. e. dans le domaine  $\Omega = [-1, 1]^2 \times [0, \varepsilon]$ .

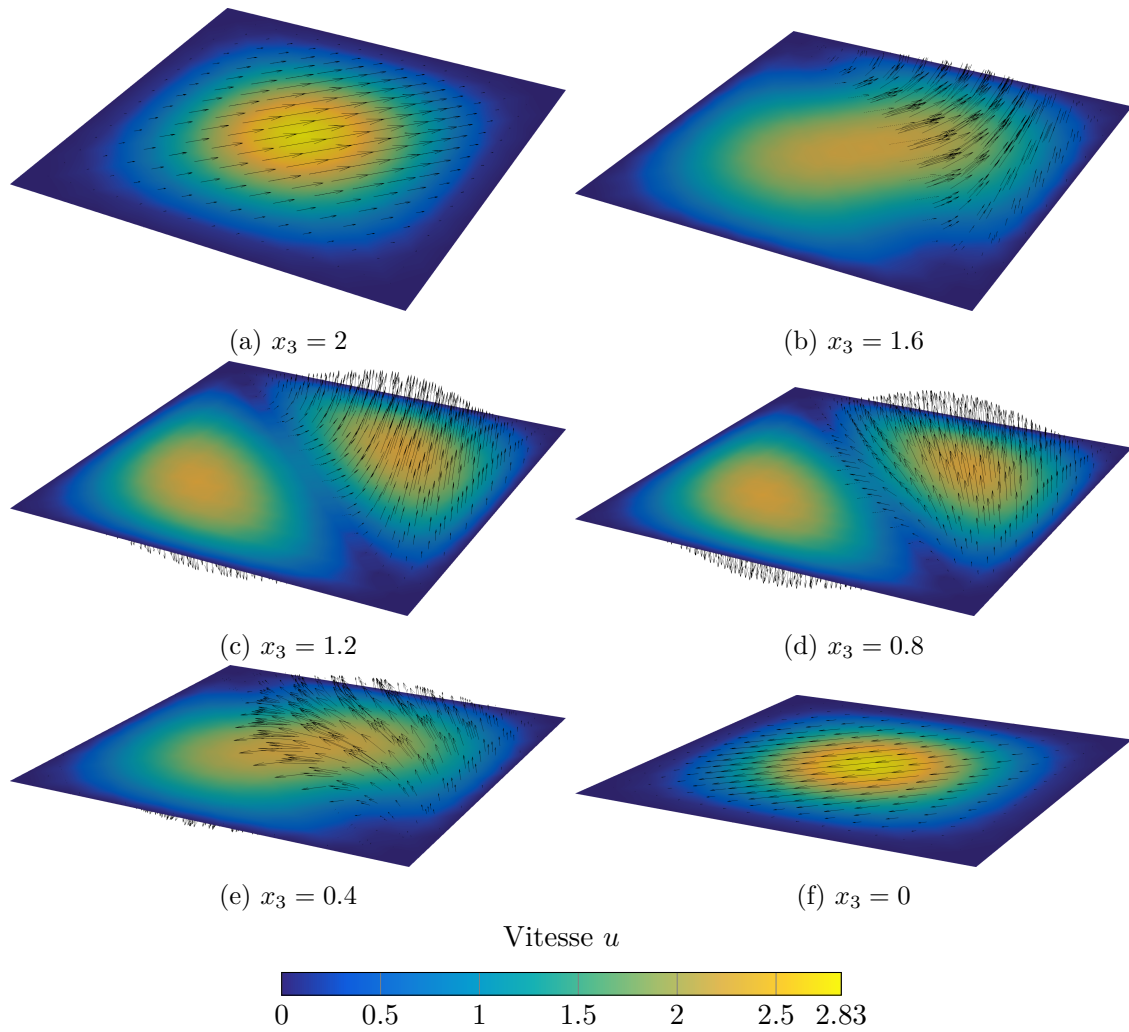


FIGURE 4.2 – Représentation de la solution exacte (4.84)-(4.86) du problème de Stokes (4.4), (4.5), avec  $\varepsilon = 2$ . La solution est représentée sur 6 plans horizontaux espacés régulièrement entre  $x_3 = 0$  et  $x_3 = 2$ . L'échelle de couleur correspond à l'amplitude de  $u$ , tandis que les flèches indique la direction de  $u$ .

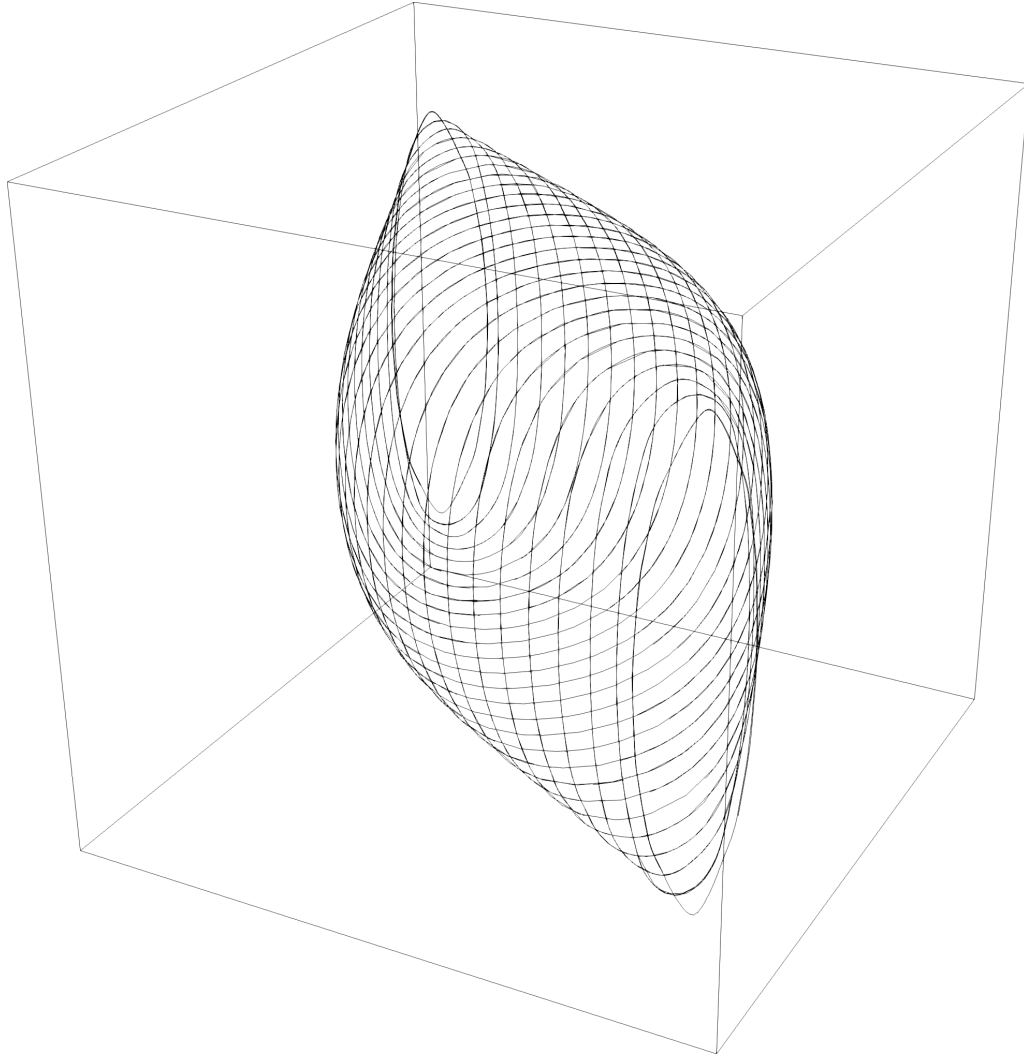


FIGURE 4.3 – Lignes de courant de la vitesse  $u$  définie par (4.84)-(4.85) dans le domaine cubique  $\Omega$ , c'est-à-dire que  $\varepsilon = 2$ .

### 4.4.2 Convergence de l'erreur en $K$ et en $h$

On s'intéresse d'une part à la convergence de l'erreur d'approximation de  $u_{h,K}$  donnée par (4.81)-(4.82) vers la solution exacte (4.84)-(4.85), définie par :

$$e_{h,K}^{\text{SF}} = \frac{\|u - u_{h,K}\|_{L^2(\Omega)}}{\|u\|_{L^2(\Omega)}}, \quad (4.90)$$

où le champ de vecteur  $u$  est donné par (4.84)-(4.85).

On cherchera d'autre part à comparer  $u_{h,K}$  (notée  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  dans la suite, avec SF l'abréviation de Stokes-Fourier) avec la solution de (4.4)-(4.5) obtenue à l'aide d'une méthode d'éléments finis  $\mathbb{P}_1$  bulle- $\mathbb{P}_1$  sur un maillage tétraédrique classique (notée  $u_h^{\text{S3D}}$  dans la suite). On note aussi l'erreur

$$e_h^{\text{S3D}} = \frac{\|u - u_h^{\text{S3D}}\|_{L^2(\Omega)}}{\|u\|_{L^2(\Omega)}}. \quad (4.91)$$

### Convergence de la somme partielle de Fourier

On s'intéresse à la convergence de l'erreur  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  en fonction du nombre d'harmoniques  $K$  dans la somme partielle de  $u_{h,K}$ . On prend pour le maillage  $\mathcal{M}_h$  du domaine  $\Lambda$  une triangulation structurée de taille de maille  $h = 2/64$ . La table 4.1 donne les valeurs de l'erreur  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  pour différents nombres d'harmoniques  $K$  et différentes épaisseurs  $\varepsilon$  du domaine  $\Omega$ . On remarque que le nombre de terme dans de la somme partielle de la série de Fourier nécessaire pour saturer l'erreur augmente lorsque le rapport d'aspect du domaine  $\Omega$  augmente, c'est-à-dire lorsque  $\varepsilon$  tend vers zéro. En effet, lorsque  $\varepsilon = 2$ , l'erreur  $e_h^{\text{SF}}$  cesse de décroître significativement lorsque  $K \geq 5$ , tandis que lorsque  $\varepsilon = 0.02$  il faut que  $K \geq 7$  pour que l'erreur  $e_h^{\text{SF}}$  cesse de décroître significativement.

TABLE 4.1 – Erreur  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  entre la solution exacte et la série de Fourier discrète tronquée à l'ordre  $K$ .

$\varepsilon$	$K = 1$	$K = 3$	$K = 5$	$K = 7$	$K = 9$
2	$0.8918 \times 10^{-2}$	$0.1216 \times 10^{-2}$	$0.5207 \times 10^{-3}$	$0.4378 \times 10^{-3}$	$0.4259 \times 10^{-3}$
0.2	$0.1238 \times 10^{-1}$	$0.1654 \times 10^{-2}$	$0.4547 \times 10^{-3}$	$0.1882 \times 10^{-3}$	$0.1117 \times 10^{-3}$
0.02	$0.1245 \times 10^{-1}$	$0.1662 \times 10^{-2}$	$0.4508 \times 10^{-3}$	$0.1727 \times 10^{-3}$	$0.8142 \times 10^{-4}$

### Convergence en fonction du maillage

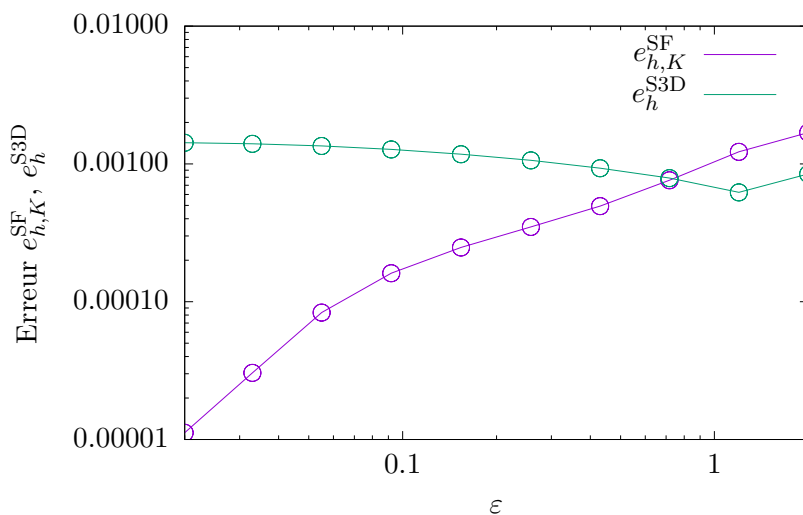
On s'intéresse à la convergence de l'erreur  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  en fonction de la taille de maille  $h$  de la subdivision  $\mathcal{M}_h$  du domaine  $\Lambda$ . La table 4.2 donne les valeurs de l'erreur pour différentes tailles de maille  $h$  et différentes épaisseurs  $\varepsilon$  du domaine  $\Omega$ . Lorsque le domaine est isotrope, raffiner le maillage de  $\Lambda$  tend à diminuer l'erreur  $e_{h,K}^{\text{SF}}$ . Cependant, plus le domaine est anisotrope, plus l'erreur devient insensible au raffinement du maillage de  $\Lambda$  : lorsque  $\varepsilon = 0.02$ ,  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  est de l'ordre de  $1 \times 10^{-4}$  quel que soit la valeur de  $h$ .

TABLE 4.2 – Erreur  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  en fonction de la taille de maille  $h$  et de l'épaisseur  $\varepsilon$  lorsque  $K = 20$ .

$\varepsilon$	$h = 0.25$	$h = 0.125$	$h = 0.0625$	$h = 0.03125$	$h = 0.015625$
2	$0.9765 \times 10^{-1}$	$0.2611 \times 10^{-1}$	$0.6698 \times 10^{-2}$	$0.1688 \times 10^{-2}$	$0.4232 \times 10^{-3}$
0.2	$0.4184 \times 10^{-2}$	$0.2342 \times 10^{-2}$	$0.9966 \times 10^{-3}$	$0.2962 \times 10^{-3}$	$0.7794 \times 10^{-4}$
0.02	$0.3977 \times 10^{-4}$	$0.1166 \times 10^{-4}$	$0.9187 \times 10^{-5}$	$0.1121 \times 10^{-4}$	$0.1210 \times 10^{-4}$

### Comparaison des erreurs $e_{h,K}^{\text{SF}}$ et $e_h^{\text{S3D}}$

On s'intéresse maintenant à comparer la précision des calculs  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  et  $u_h^{\text{S3D}}$ . Ici on a choisi  $K = 20$  et  $h = 2/64$ . La table 4.3 donne la valeur des erreurs pour différentes épaisseurs  $\varepsilon$  du domaine  $\Omega$ . La figure 4.4 représente les mêmes données sous forme graphique. On remarque que l'erreur  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  dépend fortement du rapport d'aspect du domaine  $\Omega$ , et décroît lorsque celui-ci augmente. À l'inverse,  $e_h^{\text{S3D}}$  est relativement indépendant de  $\varepsilon$ , et tend même à croître lorsque  $\varepsilon$  tend vers zéro. Ce résultat indique qu'il est avantageux de considérer le modèle SF lorsque le domaine de calcul  $\Omega$  présente une forte anisotropie.

FIGURE 4.4 – Erreurs  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  et  $e_h^{\text{S3D}}$  en fonction de l'épaisseur  $\varepsilon$  lorsque  $K = 20$  et  $h = 2/64$ . Dans le cas des calculs de  $e_h^{\text{S3D}}$ , la taille de maille verticale est de  $\varepsilon/64$ .TABLE 4.3 – Erreurs  $e_{h,K}^{\text{SF}}$  et  $e_h^{\text{S3D}}$  en fonction de l'épaisseur  $\varepsilon$  lorsque  $K = 20$  et  $h = 2/64$ . Dans le cas du calcul de  $e_h^{\text{S3D}}$ , la taille de maille verticale est de  $\varepsilon/64$ .

	$\varepsilon = 0.020$	$\varepsilon = 0.055$	$\varepsilon = 0.154$	$\varepsilon = 0.430$	$\varepsilon = 1.198$
$e_{h,K}^{\text{SF}}$	$0.1121 \times 10^{-4}$	$0.8356 \times 10^{-4}$	$0.2478 \times 10^{-3}$	$0.4944 \times 10^{-3}$	$0.1225 \times 10^{-2}$
$e_h^{\text{S3D}}$	$0.1426 \times 10^{-2}$	$0.1351 \times 10^{-2}$	$0.1175 \times 10^{-2}$	$0.9317 \times 10^{-3}$	$0.6221 \times 10^{-3}$

Finalement, on compare les temps CPU pour chaque schéma, ainsi que le nombre d'ité-

rations de l'algorithme GMRES pour résoudre le système linéaire dans le cas du schéma S3D, dont les résultats sont synthétisés par la table 4.4. Ici on a comparé les performances entre le temps de calculs du modèle S3D et SF en variant l'épaisseur  $\varepsilon$  du domaine entre  $2 \times 10^{-2}$  et 1.19. On note que le coût en temps de calcul de la solution  $u_h^{\text{S3D}}$  augmente catastrophiquement lorsque  $\varepsilon$  diminue. Ceci est principalement dû au conditionnement de la matrice qui se péjore et au nombre d'itérations de l'algorithme GMRES nécessaire pour atteindre la tolérance souhaitée. En comparaison, le coût en temps de calcul de la solution  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  est indépendant de l'épaisseur  $\varepsilon$ , et est environ 17 fois plus faible que le coût de calcul de  $u_h^{\text{S3D}}$  dans le pire des cas. A nouveau, ce résultat indique un clair avantage du modèle SF par rapport au modèle S3D.

TABLE 4.4 – Comparaison des performances entre les schémas permettant de calculer  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  et  $u_h^{\text{S3D}}$  en fonction de l'épaisseur  $\varepsilon$  lorsque  $K = 20$  et  $h = 2/64$ . Les calculs sont effectués sur un machine équipée d'un processeur Intel<sup>®</sup> Xeon<sup>®</sup> E5-2620 v2 @ 2.1 GHz et 32 Go de RAM.

	$\varepsilon = 1.198$	$\varepsilon = 0.430$	$\varepsilon = 0.154$	$\varepsilon = 0.055$	$\varepsilon = 0.020$
S3D					
$T_{\text{CPU}}$ [s]	753	753	1343	2694	4587
itérations GMRES	133	184	327	609	901
SF					
$T_{\text{CPU}}$ [s]	45	44	43	45	43

## 4.5 Modèle de transport d'alumine stationnaire

L'objectif ultime étant d'obtenir une approximation de la concentration d'alumine dans une cuve d'électrolyse d'aluminium, on propose un modèle de convection et diffusion stationnaire d'alumine dissoute dans le domaine  $\Omega$ . On suppose donné un champ de convection stationnaire  $u : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^3$ , qui correspond à l'écoulement des fluides dans le domaine  $\Omega$ . Le champ  $u$  sera typiquement calculé à l'aide du schéma numérique introduit dans la section 4.3. Soit  $S$  le terme source de la concentration d'alumine dissoute correspondant à l'injection de particules,  $q$  le terme source correspondant à la consommation d'alumine dissoute par la réaction d'électrolyse, et la diffusivité moléculaire de la concentration d'alumine dans le bain  $D_C^M > 0$ . On cherche le champ de concentration d'alumine stationnaire  $c : \Omega \rightarrow \mathbb{R}$  solution de l'équation d'advection-diffusion stationnaire :

$$u \cdot \nabla c - D_C^M \Delta c = S + q \quad \text{dans } \Omega, \quad (4.92)$$

avec des conditions de Neumann homogènes sur le bord  $\partial\Omega$  :

$$\frac{\partial c}{\partial n} = 0, \quad \text{sur } \partial\Omega. \quad (4.93)$$

La solution  $c$  de l'équation (4.92) étant définie à une constante près, on considère la contrainte supplémentaire :

$$\frac{1}{|\Omega|} \int_{\Omega} c \, dx = \bar{c}, \quad (4.94)$$

où  $\bar{c}$  est la concentration moyenne dans le domaine  $\Omega$ , supposée donnée. Le terme source  $S$  est construit à partir des conditions initiales  $S_k$  des populations de particules d'alumine introduite dans la section 3.2. On définit  $S$  comme la moyenne temporelle du débit de masse de particules d'alumine défini par les fonctions  $S_k$  :

$$S(x_1, x_2, x_3) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T \sum_{k>0} S_k(x_1, x_2, x_3) \delta(t - \tau^k) dt, \quad (x_1, x_2, x_3) \in \Omega. \quad (4.95)$$

Le terme source  $q$  correspond à la consommation d'alumine dissoute par la réaction d'électrolyse. Le débit total d'alumine consommée dans la cuve étant donné par la relation (3.10), on pose :

$$q(x_1, x_2, x_3) = -\frac{I}{6F|\Omega|}, \quad (4.96)$$

où  $I$  est le courant électrique total qui traverse la cuve, et  $F$  est la constante de Faraday.

Remarquons que par construction des fonctions  $\{S_k\}_{k>0}$ , la moyenne de  $S$  sur  $\Omega$  est exactement égale à la moyenne de  $q$  sur  $\Omega$ , i. e. :

$$\int_{\Omega} (S + q) dx = 0. \quad (4.97)$$

C'est une condition nécessaire pour que le problème (4.92) admette une solution.

On utilisera pour approcher la solution du problème (4.92) une méthode d'éléments finis continus linéaires par morceaux, stabilisée par une méthode de type SUPG, sur un maillage tétraédrique de  $\Omega$ .

## 4.6 Application à l'écoulement d'une cuve d'électrolyse

L'un des objectifs premiers du développement du schéma numérique SF est d'une part de fournir une approximation de l'écoulement des fluides dans une cuve d'électrolyse d'aluminium, et d'autre part de fournir une approximation de la distribution d'alumine dans le bain électrolytique, le tout à moindre coût par rapport au modèle 3D standard déjà implémenté dans le logiciel `Aluce11`[Ste09] tel que décrit dans le chapitre 3. Le but de ce programme est, à terme, de permettre de traiter l'opération d'une cuve d'électrolyse industrielle comme un problème de contrôle optimal.

Dans cette partie, nous comparons les champs de vitesse et de concentration issus de la méthode Stokes Fourier décrite dans les section 4.2 et 4.3 et ceux obtenus avec la méthode 3D standard du chapitre 3. La méthode 3D standard fournit une concentration  $c$  dépendante du temps. Dans la suite, cette concentration est calculée à  $T = 1 \times 10^4$  s.

Le parallélépipède rectangle  $\Omega$  défini par (4.1) est contenu dans la partie fluide de la cuve, dans notre cas  $\Omega = (0, 13.8) \times (0, 3.26) \times (0, 0.18)$ . Le plan  $x_3 = 0$  coïncide avec la face supérieure de la cathode qui est en contact avec l'aluminium liquide. On considère finalement la restriction à  $\Omega$  du champ de force  $f = j \times B$  correspondant aux forces de Lorentz calculées à l'aide du modèle 3D standard.

La figure 4.5 représente l'intensité et la direction du champ de force  $f$  dans le plan  $x_3 = \varepsilon/2$ , à mi-hauteur entre les anodes et la cathode. Nous utiliserons ce champ de force pour calculer  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  définie par (4.81), (4.82).

On choisit une triangulation de  $\Lambda$  de sorte à ce que la taille des mailles des deux calculs (Stokes 3D et Stokes-Fourier) soient comparables avec la méthode 3D standard,



soit  $h = 0.69$  m dans le plan  $(x, y)$ , et une taille verticale de 0.015 m pour le calcul de Stokes 3D. On somme  $K = 20$  termes de la série de Fourier pour le calcul SF. La moyenne  $\bar{c}$  dans (4.94) est fixée à 3% masse, identique à la concentration d'alumine dissoute initialement dans le modèle de transport et de dissolution décrit dans le chapitre 2. Dans (4.96), le courant électrique total est  $I = 320\,000$  A. Les différentes grandeurs physiques qui interviennent dans ce modèle ont déjà été introduites dans la table 3.2. Les figures 4.6 et 4.7 représente les champs  $u^{\text{SF}}$ ,  $c^{\text{SF}}$ ,  $u^{\text{S3D}}$  et  $c^{\text{S3D}}$  dans le plan  $x_3 = \varepsilon/2$ .

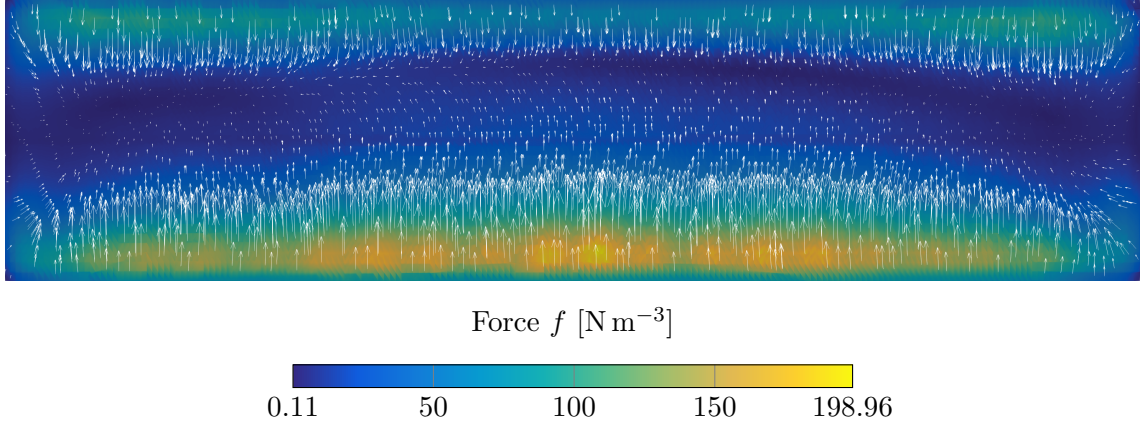


FIGURE 4.5 – Champ de force  $f$  dans le fluide issu du modèle 3D standard.

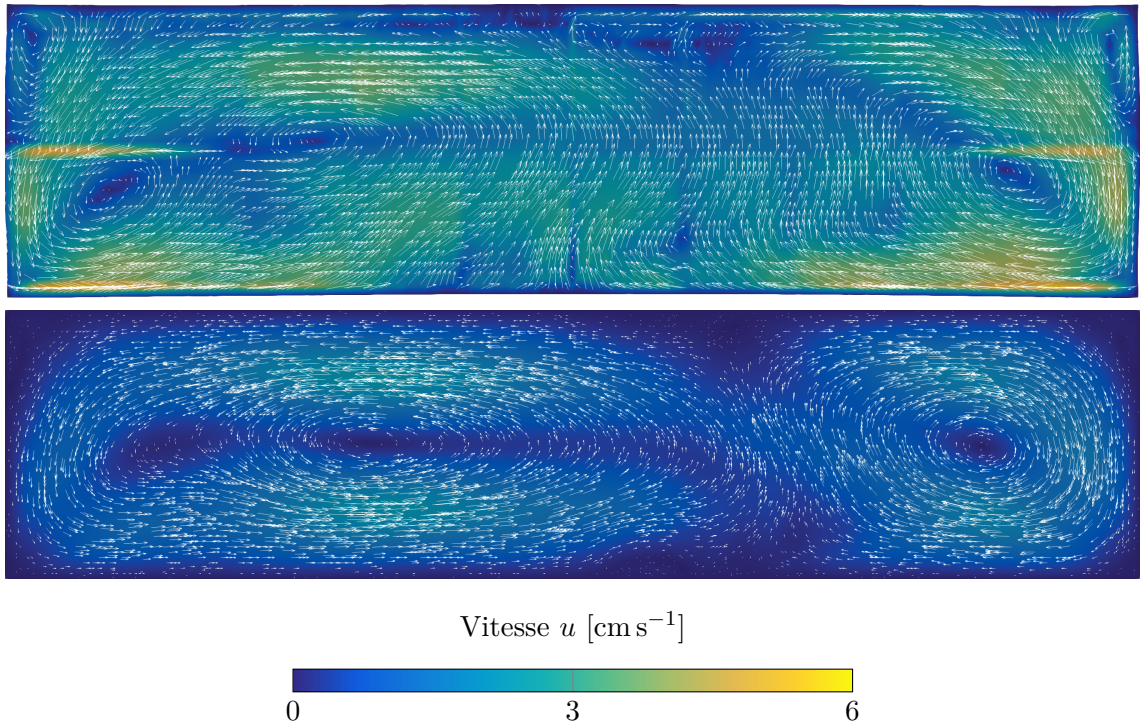


FIGURE 4.6 – Champ de vitesse stationnaire  $u_h^{\text{S3D}}$  dans le métal (haut) et  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  reconstruit selon les équations (4.81), (4.82) à mi-hauteur de  $\Omega$  (bas).

Le modèle de Smagorinsky (voir éq. (4.49) de [Roc16]) est utilisé pour modéliser une viscosité non-linéaire, et le coefficient à disposition est réglé de sorte que la valeur maximum du champ vitesse  $u_h^{\text{S3D}}$  soit de l'ordre de  $3 \text{ cm s}^{-1}$  dans l'ACD. Il faut remarquer que dans

le métal, la vitesse est plus grande que dans l'ACD. De même, la viscosité nécessaire au calcul du champ  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  est réglée de sorte que la vitesse maximale soit de l'ordre de  $3 \text{ cm s}^{-1}$ . Le champ de vitesse  $u_h^{\text{S3D}}$  au milieu du métal et le champ  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  au milieu du domaine  $\Omega$  sont représentés dans la figure 4.6.

On constate sur la figure 4.6 que le champ de courant  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  reproduit les grandes structures de l'écoulement  $u_h^{\text{S3D}}$  : deux tourbillons principaux divisent la cuve, et la position de leur frontière correspond. Cependant, le champ  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  ne parvient pas à capturer les plus petites structures qui apparaissent dans  $u_h^{\text{S3D}}$ , soient les petits tourbillons secondaires dans les coins en aval, ainsi qu'une certaine asymétrie général par rapport à l'axe  $x$ .

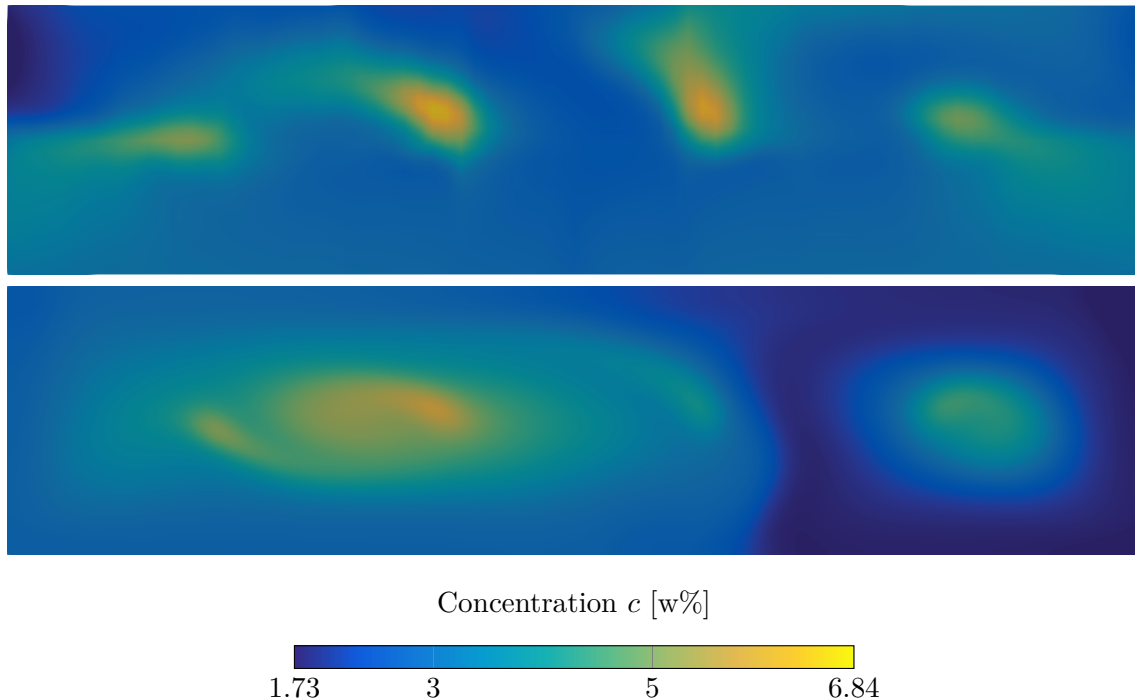


FIGURE 4.7 – Champ de concentration stationnaire  $c_h^{\text{S3D}}$  (haut) et  $c_h^{\text{SF}}$  solution de l'équation (4.92) (bas).

En comparaison avec le champ  $c_h^{\text{S3D}}$  (en haut sur la figure 4.7), le champ de concentration stationnaire  $c_h^{\text{SF}}$  (en bas sur la figure 4.7) reproduit certains aspects caractéristiques. En particulier, les amplitudes de variation de la concentration sont très similaires. De plus, la position des points d'injections apparaît clairement dans sur les deux calculs. En revanche, le champ  $c_h^{\text{SF}}$  présente une zone appauvrie en périphérie du tourbillon de droite, qui n'est pas présente dans le champ  $c_h^{\text{S3D}}$ .

On s'intéresse maintenant au cas du calcul de l'écoulement des fluides et de la concentration d'alumine dissoute dans le bain électrolytique lorsqu'on désactive une anode, c'est-à-dire que l'une des anodes du plan anodique n'est pas conductrice électriquement. Cette situation a lieu en pratique lorsqu'une anode en fin de vie est remplacée par une anode neuve, mais froide. Sa conductivité électrique qui est quasi nulle initialement, augmente au fur et à mesure que l'anode atteint sa température d'opération. Dans cette partie, on dénotera conjointement la vitesse du fluide stationnaire et la concentration d'alumine dissoute obtenue qui résultent du modèle décrit dans le chapitre 3 par l'abréviation S3D. Dans cette partie, on considérera uniquement une dissolution des particules d'alumine indépendante de la température, c'est-à-dire que le champ  $c^{\text{S3D}}$  est calculé avec le modèle

standard 3D (S3D) en désactivant la dépendance de la vitesse de dissolution en fonction de la température du bain.

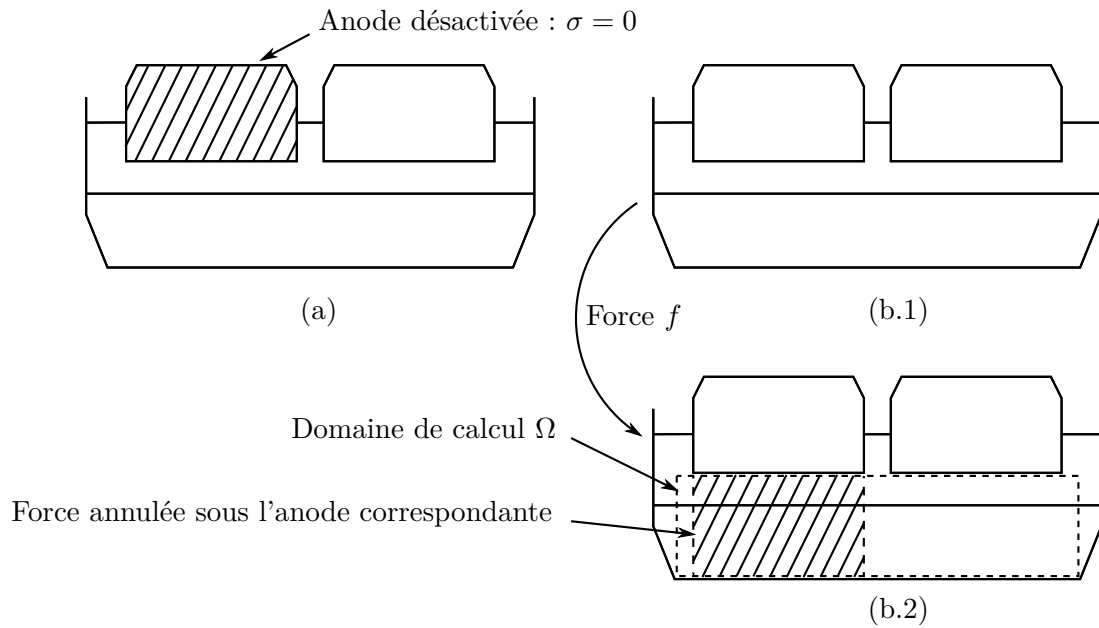


FIGURE 4.8 – Désactivation d’une anode dans le modèle standard S3D et le modèle SF. (a) Dans le modèle S3D, la désactivation d’une anode est modélisée par l’annulation de sa conductivité électrique  $\sigma$ . (b.1) Calcul du terme de force avec le modèle S3D et toutes les anodes activées. (b.2) Calcul de l’écoulement dans le domaine  $\Omega$  avec le modèle SF et la force obtenue en (b.1), mais annulée sous l’anode désactivée.

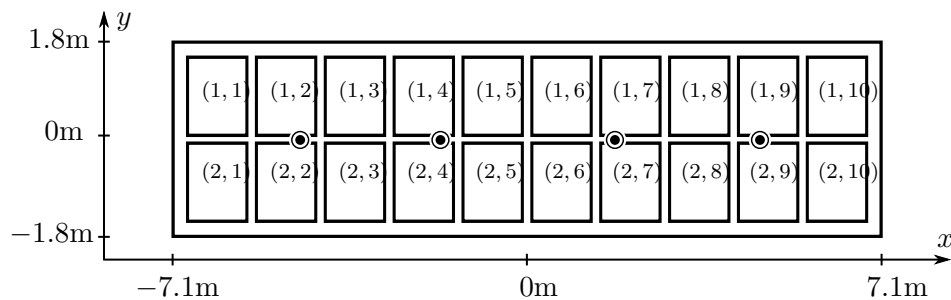
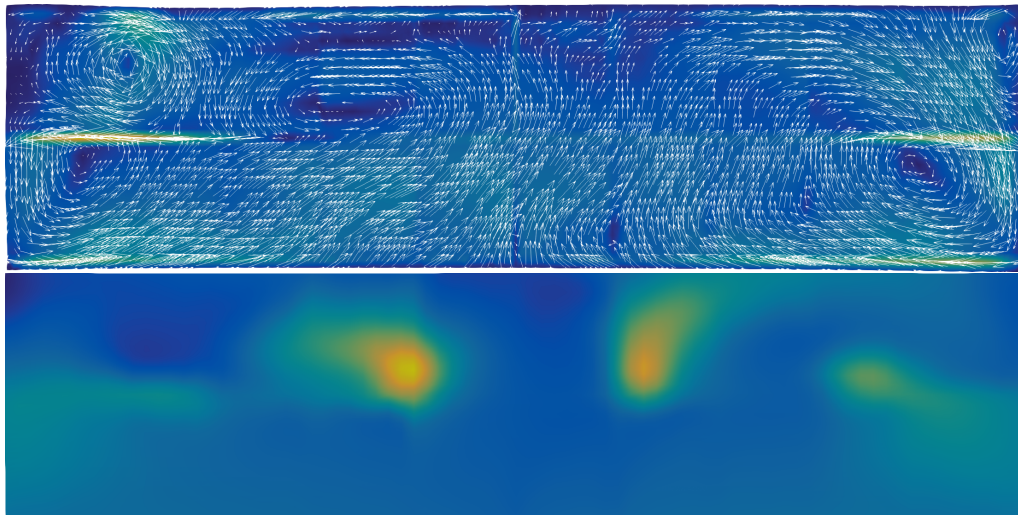


FIGURE 4.9 – Numérotation des anodes de la cuve AP32.

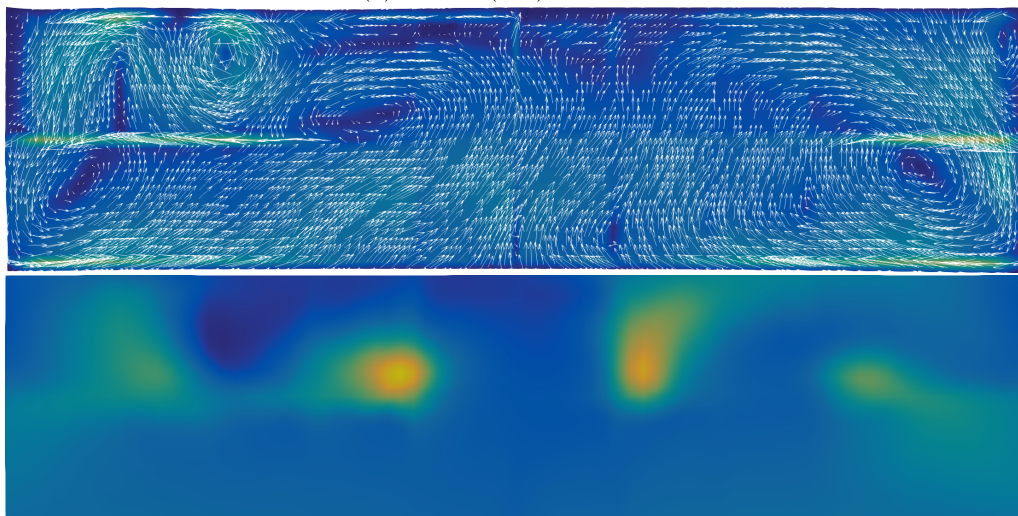
Dans le modèle S3D, on peut simuler la désactivation d’une anode en annulant la conductivité électrique  $\sigma$  dans le volume occupé par ladite anode. On a donc la densité de courant  $j = \sigma (\nabla\phi + u^{\text{S3D}})$ ,  $\text{div}j = 0$ , où  $\phi$  est le potentiel électrique,  $u^{\text{S3D}}$  l’écoulement des fluides solution des équations de Navier-Stokes,  $B$  le champ d’induction magnétique solution des équations de Maxwell et la force  $f = j \times B$ . Dans le modèle SF, on utilise le champ de force  $f$  issu d’un calcul S3D avec toutes les anodes activées, restreint à  $\Omega$ . On simule la désactivation d’une anode en supposant que la densité de courant électrique est quasiment nulle sous celle-ci, ce qui revient à imposer  $f = 0$  sous l’anode désactivée (voir figure 4.8). L’emplacement des anodes vues depuis dessus et leur numérotation dans

la cuve AP32 est schématisé sur la figure 4.9.

Les figures 4.10, 4.11 présentent le champ de vitesse stationnaire  $u^{S3D}$  du bain électrolytique dans l'ACD de la cuve AP32 et la distribution de concentration  $c^{S3D}$ , pour quatre configurations différentes du plan anodique, soit les anodes (1,1), (1,2), (2,1) et (2,2) successivement désactivées. On se réfère à la figure 4.9 pour le placement de chacune de ces anodes. Les anodes désactivées se trouvent au niveau de l'extrémité gauche de la cuve. On note que l'influence sur le champ de vitesse et la distribution de concentration s'étend à proximité de l'anode désactivée, mais ne s'étend pas à l'ensemble de la cuve.



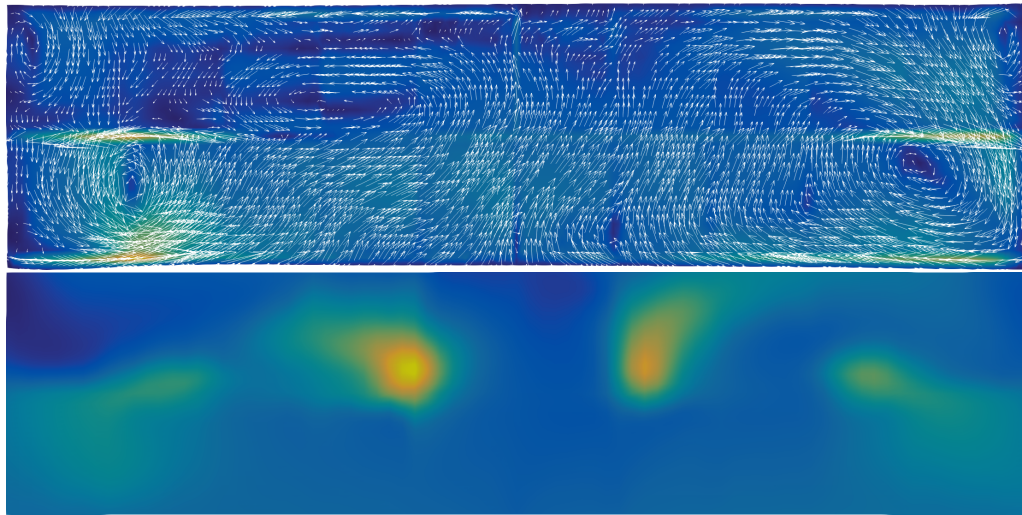
(a) Anode (1,1) désactivée



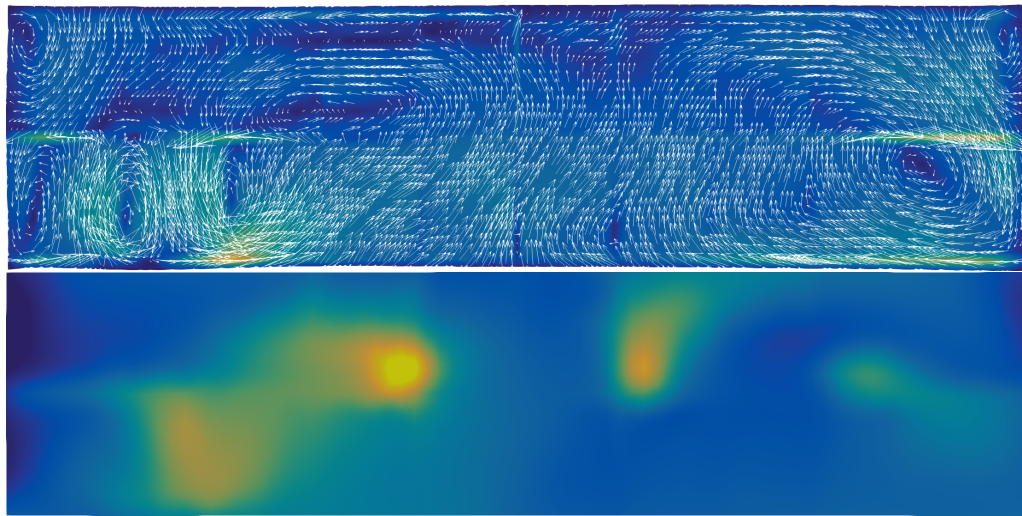
(b) Anode (1,2) désactivée



FIGURE 4.10 – Champs de vitesse stationnaire  $u^{S3D}$  (haut) et de concentration  $c^{S3D}$  (bas) dans l'ACD de la cuve AP32 pour différentes configurations du plan anodique.



(a) Anode (2, 1) désactivée



(b) Anode (2, 2) désactivée



FIGURE 4.11 – Champs de vitesse stationnaire  $u^{S3D}$  (haut) et de concentration  $c^{S3D}$  (bas) dans l'ACD de la cuve AP32 pour différentes configurations du plan anodique.

Dans les figures 4.12 à 4.17 les champs de vitesse  $u_{h,K}^{SF}$ ,  $u_h^{S3D}$  et de concentration  $c_h^{SF}$ ,  $c_h^{S3D}$  sont comparés pour deux calculs différents de la force  $f = j \times B$ . On réalise les deux expériences suivantes. Expérience 1 : la force est calculée comme dans la figure 4.8a. Les champs de vitesse et de concentration sont comparés dans les figures 4.12 à 4.15. Expérience 2 : Le champ de force de  $u_h^{S3D}$  est calculé comme dans la figure 4.8a, mais le champ de force de  $u_{h,K}^{SF}$  est calculé selon la figure 4.8b2. Ainsi le temps de calcul de la force pour  $u_{h,K}^{SF}$  est fortement réduit. Les figures 4.16 et 4.17 contiennent le champ de concentration ainsi obtenu, et sont à comparer avec les figures 4.14 et 4.15.

Dans les résultats présentés par les figures 4.12 et 4.13, l'écoulement  $u_h^{S3D}$  joue le rôle

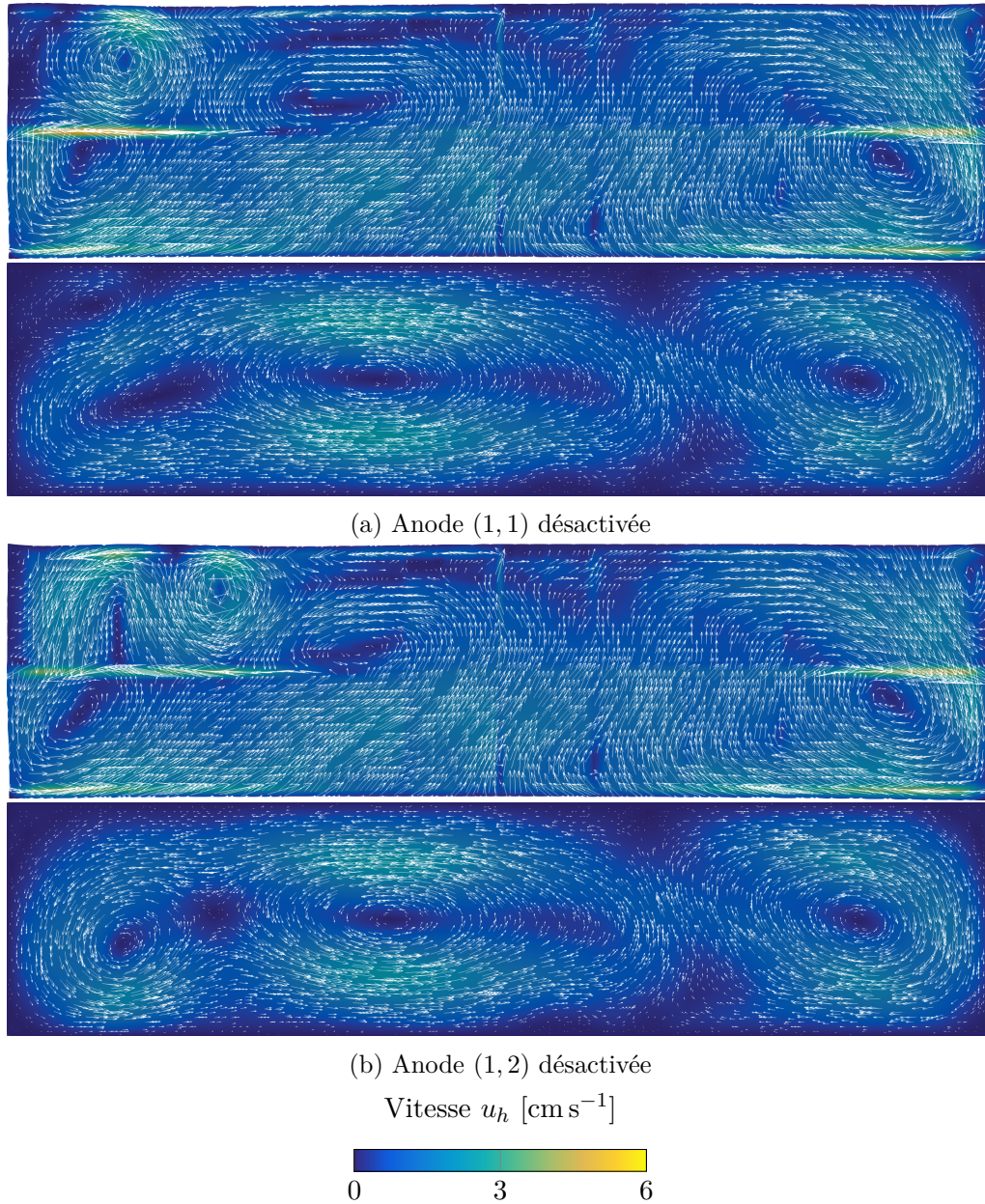


FIGURE 4.12 – Expérience 1 : Vitesse d'écoulement  $u_h^{\text{S3D}}$  (haut) et  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  (bas) pour différentes configurations du plan anodique, lorsque la force est calculée selon la figure 4.8a.

de référence, et l'on aimerait que l'écoulement  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  le reproduise au mieux. De même, dans les figures 4.14 à 4.17, la concentration  $c_h^{\text{S3D}}$  joue le rôle de référence, et l'on aimerait que le champ de concentration  $c_h^{\text{SF}}$  le reproduise au mieux. Les champs de vitesse  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  et de concentration  $c_h^{\text{SF}}$  sont représentés à mi-hauteur dans le domaine  $\Omega$ , tandis que les champs  $u_h^{\text{S3D}}$  et  $c_h^{\text{S3D}}$  sont représentés au milieu de l'ACD.

Dans ces calculs, les perturbations du plan anodique, i.e., les anodes désactivées, sont toutes situées à l'extrémité gauche de la cuve. De manière générale, on constate dans chacun des cas que l'écoulement du côté opposé à la perturbation, à droite, reste très peu influencé, et les modifications de l'écoulement restent localisées à proximité de l'anode désactivée.

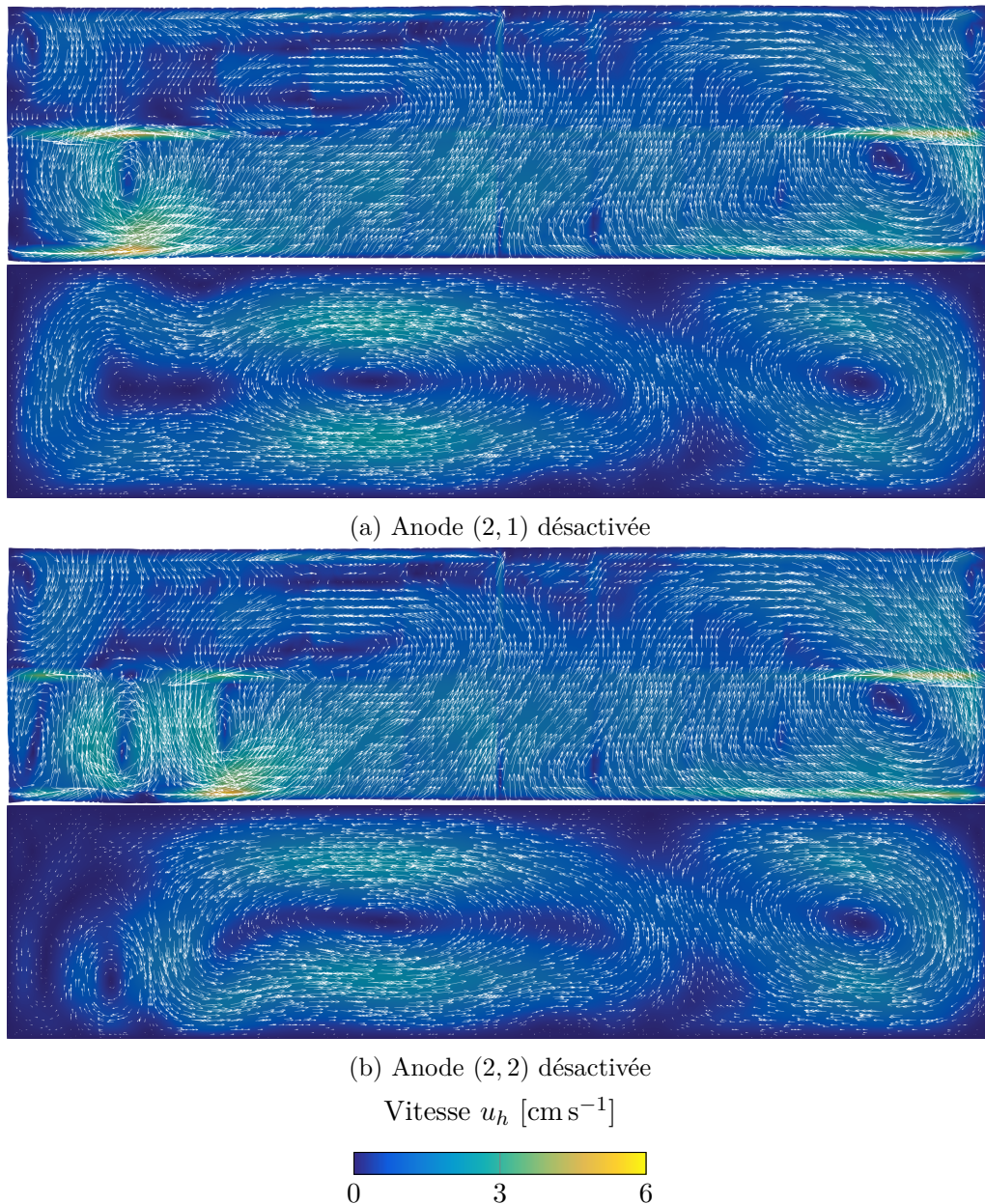


FIGURE 4.13 – Expérience 1 : Vitesse d'écoulement  $u_h^{\text{S3D}}$  (haut) et  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  (bas) pour différentes configurations du plan anodique, lorsque la force est calculée selon la figure 4.8a.

Nous décrivons maintenant les résultats obtenus pour l'expérience 1, présentés par les figures 4.12 à 4.15.

Dans le champ de vitesse  $u_h^{\text{S3D}}$ , la désactivation de l'anode (1,1) perturbe fortement le tourbillon principal à gauche, qui se divise en trois structures. En particulier, on observe la formation de deux petits tourbillons, bien séparés, à l'extrême gauche de la cuve, sous chaque rangée d'anodes. De manière similaire, lorsque l'anode (1,2) est désactivée, la structure est très semblable, l'un des nouveaux tourbillons s'étant déplacé sur la droite pour rester sous l'anode désactivée.

Dans ces deux cas, l'écoulement  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  présente également une modification du tourbillon principal de gauche. Cependant, les petites structures, en particulier les deux tourbillons à l'extrême gauche de la cuve ne sont pas aussi clairement formés. Lorsque l'anode (1,1)

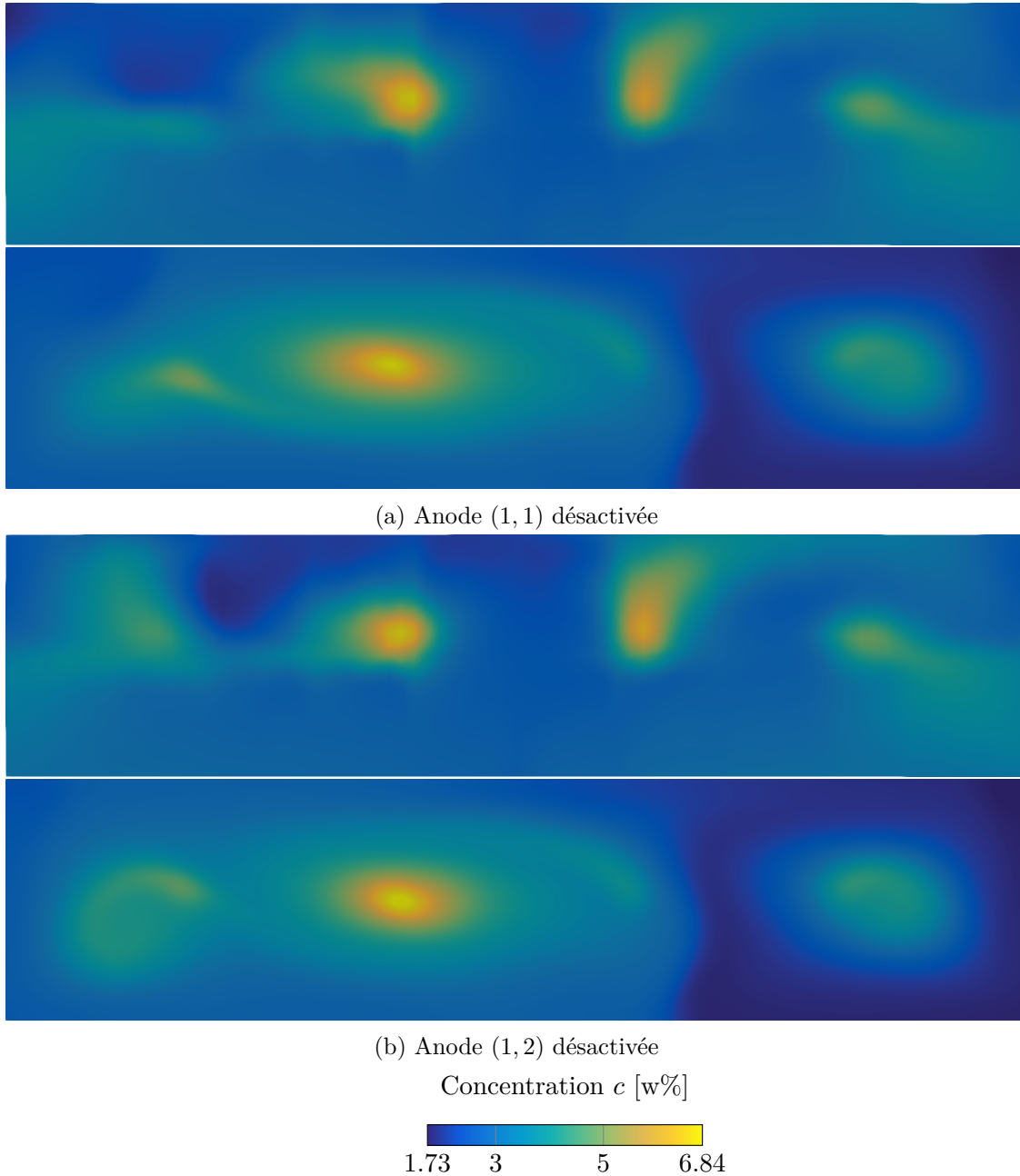


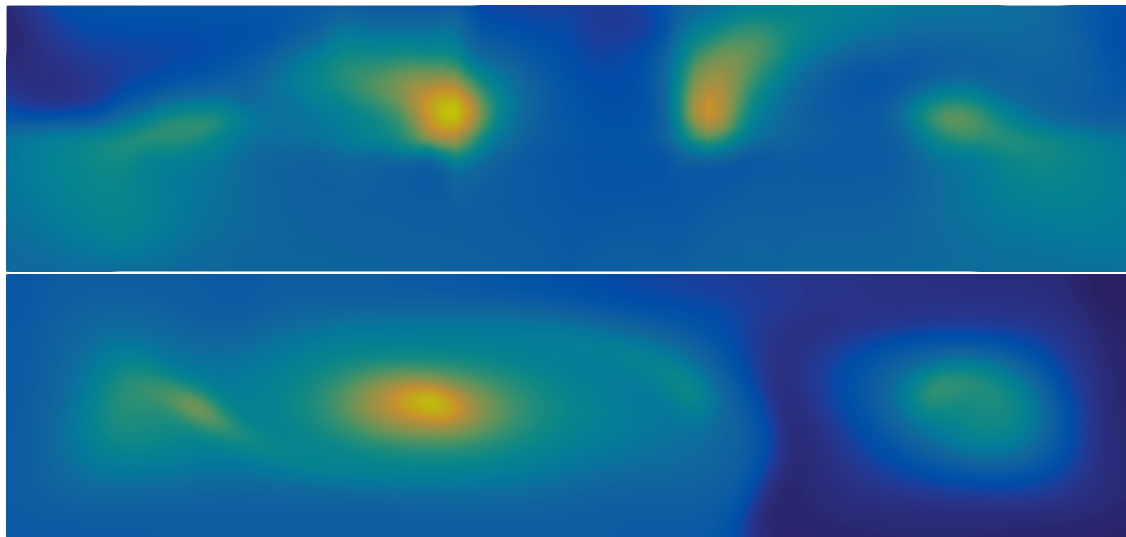
FIGURE 4.14 – Expérience 1 : Comparaison entre  $c_h^{S3D}$  (haut) et  $c_h^{SF}$  (bas) pour différentes configurations du plan anodique, lorsque la force est calculée selon la figure 4.8a.

est désactivée, on voit malgré tout un petit tourbillon apparaître dans le coin aval gauche, et le tourbillon principal de gauche développe un nouveau lobe, avec un oeil au centre duquel la vitesse s'annule.

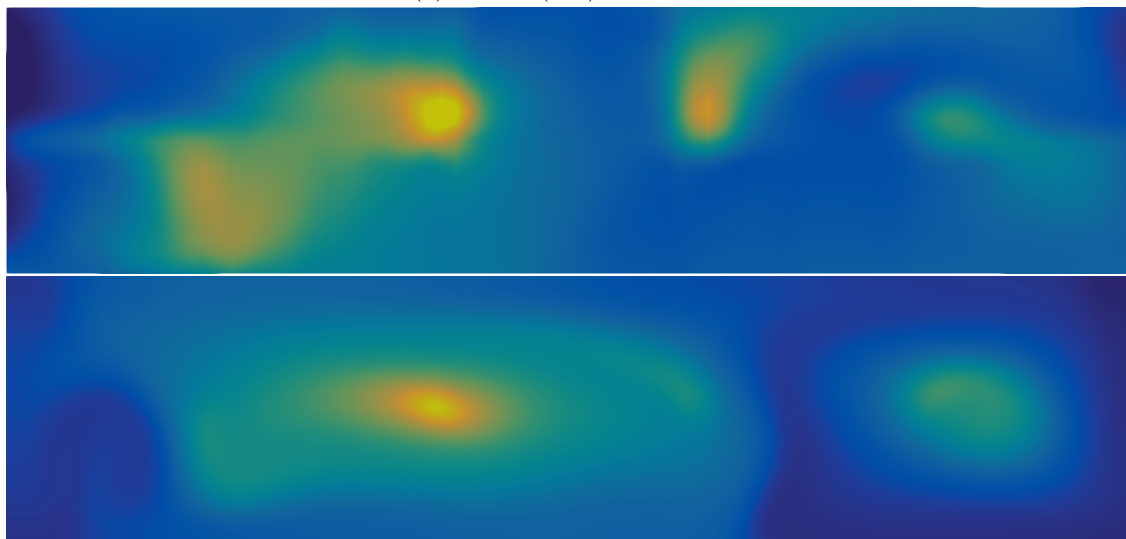
Lorsque l'anode (1, 2) est désactivée, le tourbillon principal de gauche se scinde en deux tourbillons plus petits, mais l'écoulement résultant correspond mal à celui de  $u_h^{S3D}$ .

Nous décrivons maintenant les écoulements lorsque les anodes de la rangée du bas sont désactivées, présentés sur la figure 4.13. A nouveau, la désactivation d'une anode perturbe essentiellement l'écoulement à proximité de celle-ci. En particulier, le grand tourbillon de droite reste quasiment inchangé. L'absence d'une anode engendre la formation d'un





(a) Anode (2, 1) désactivée



(b) Anode (2, 2) désactivée

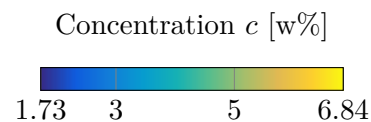


FIGURE 4.15 – Expérience 1 : Comparaison entre  $c_h^{\text{S3D}}$  (haut) et  $c_h^{\text{SF}}$  (bas) pour différentes configurations du plan anodique, lorsque la force est calculée selon la figure 4.8a.

ou plusieurs petits tourbillons de part et d'autre de l'anode désactivée, et on observe la présence plus systématique d'un petit tourbillon isolé dans le coin aval gauche.

Comme sur la figure 4.12, la partie droite des écoulements  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  reste peu sensible à la désactivation d'une anode à l'extrême gauche. Ce comportement correspond à celui des écoulements  $u_h^{\text{S3D}}$ . En revanche, lorsque les anodes (2,1) et (2,2) sont désactivées, l'écoulement  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  à proximité de celles-ci correspond peu à celui observé sur  $u_h^{\text{S3D}}$ . L'amplitude des vitesses est trop faible dans l'extrémité gauche, et certains tourbillons sont simplement absents.

Nous décrivons à présent les champs de concentration d'alumine dissoute dans le bain

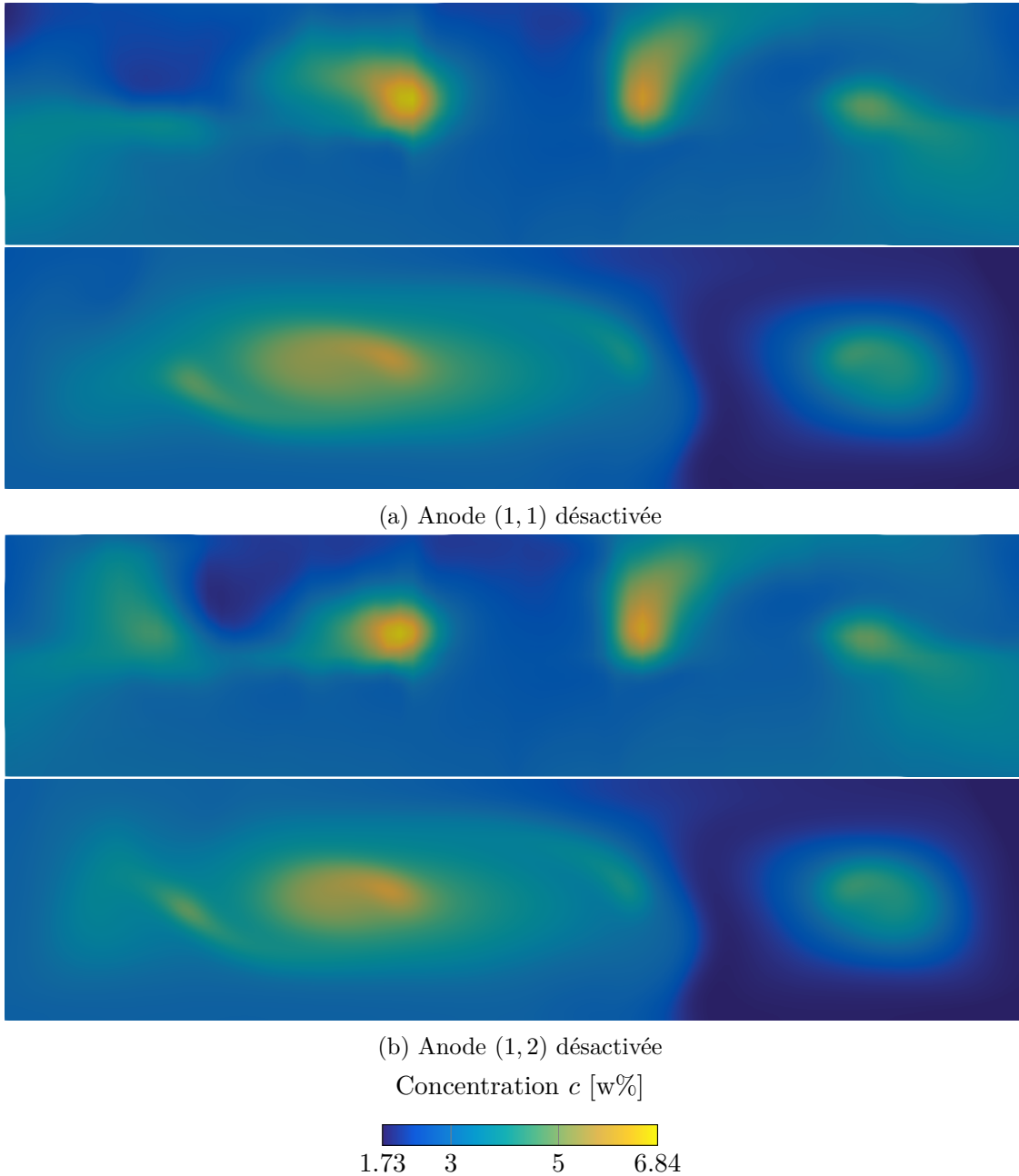
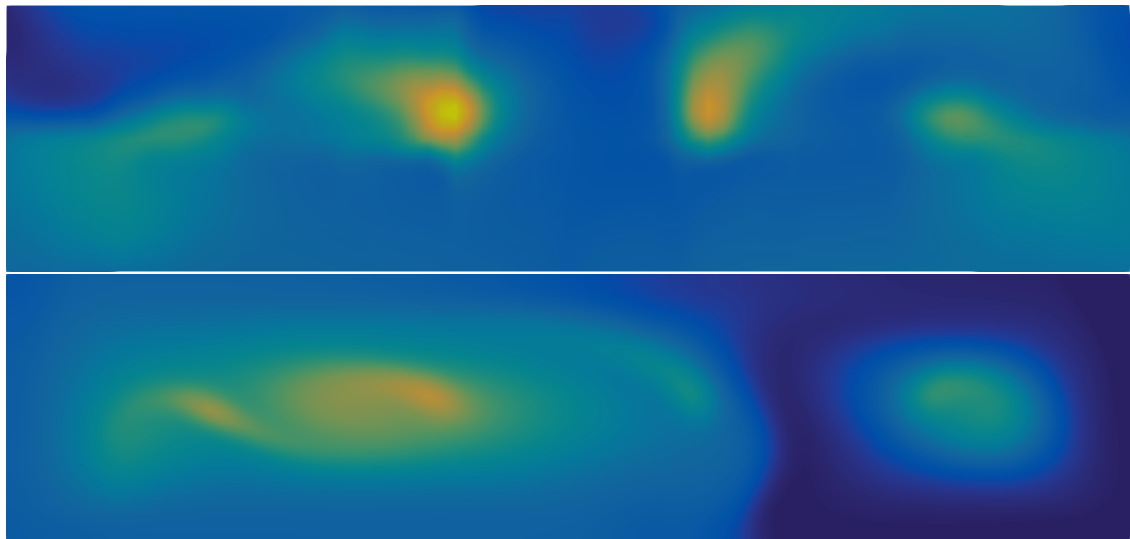


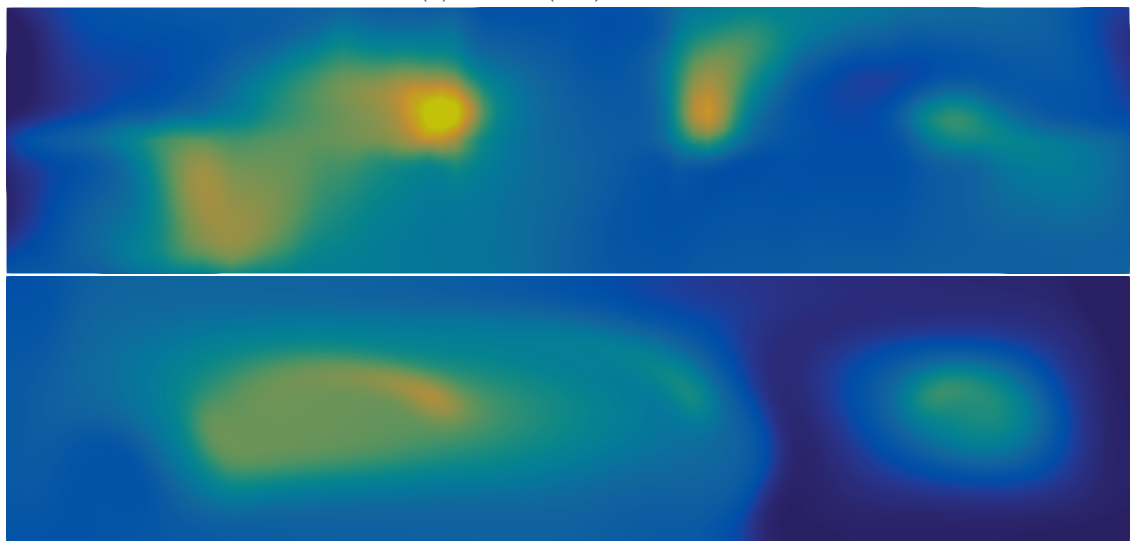
FIGURE 4.16 – Expérience 2 : Comparaison entre  $c_h^{\text{S3D}}$  (haut) et  $c_h^{\text{SF}}$  (bas) pour différentes configurations du plan anodique, lorsque la force est calculée selon la figure 4.8b.2.

de la cuve AP32 obtenus dans le cadre de l'expérience 1, présentés sur les figures 4.14 et 4.15. Pour rappel, dans ce cas le champ de force  $f$  qui sert au calcul de l'écoulement  $u_{h,K}^{\text{SF}}$  est issu d'un calcul de  $u_h^{\text{S3D}}$  où l'anode correspondante est désactivée, comme décrit sur la figure 4.8a.

Dans les quatre configurations du plan anodique, les champs de concentration  $c_h^{\text{SF}}$  présentent des caractéristiques similaires. En particulier, dans tous les cas l'injecteur numéro 3 alimente le tourbillon de gauche, alors que ce même injecteur alimente le tourbillon de droite dans le calcul S3D. Par conséquent, le calcul SF prédit une sous-alimentation de la périphérie du tourbillon à droite de la cuve. Cette région sous-alimentée n'apparaît pas sur les champs de concentration  $c_h^{\text{S3D}}$ . On note encore que la suralimentation du bain autour



(a) Anode (2, 1) désactivée



(b) Anode (2, 2) désactivée

Concentration  $c$  [w%]

FIGURE 4.17 – Expérience 2 : Comparaison entre  $c_h^{S3D}$  (haut) et  $c_h^{SF}$  (bas) pour différentes configurations du plan anodique, lorsque la force est calculée selon la figure 4.8b.2.

des points d'injection est reproduite.

Nous passons enfin à la description des résultats de l'expérience 2, présentés par les figures 4.16 et 4.17. Pour rappel, ici le champ de force est calculé comme indiqué par la figure 4.8b.2, ce qui réduit fortement le temps de calcul. Les figures 4.16 et 4.17 sont à comparer avec les figures 4.14 et 4.15 respectivement.

Les champs de concentration  $c_h^{SF}$  pour les différentes configurations du plan anodiques sont très similaires aux résultats obtenus dans l'expérience 1. On retrouve la même sous-alimentation de la périphérie du tourbillon de droite, et la concentration autour des points d'injection est toujours reproduite. Malgré l'approximation réalisée pour le calcul de la

force d'entraînement  $f$ , le champ de concentration  $c_h^{\text{SF}}$  adopte un comportement très similaire à celui obtenu dans l'expérience 1.

## 4.7 Conclusion

Dans ce dernier chapitre, nous avons proposé une méthode numérique pour calculer l'écoulement de fluides dans un domaine  $\Omega = \Lambda \times (0, \varepsilon)$  de  $\mathbb{R}^3$ , basée sur une décomposition en harmoniques de Fourier des inconnues et des méthodes d'éléments finis pour chaque coefficients des séries de Fourier. Cette formulation nécessite d'imposer des conditions d'adhérence sur les bords verticaux du domaine et des conditions de glissement total sur les bords horizontaux.

Une caractéristique essentielle de cette méthode est de calculer une approximation de l'écoulement tridimensionnel en résolvant une série de problèmes bidimensionnels découplés les uns des autres. Cette approche devient de plus en plus intéressante lorsque l'épaisseur du domaine  $\varepsilon$  s'approche de 0. En effet, on observe d'une part que le temps CPU est essentiellement indépendant de  $\varepsilon$ , mais en plus l'erreur d'approximation diminue lorsque  $\varepsilon$  diminue. C'est un clair avantage par rapport à une méthode d'éléments finis classiques basée sur un maillage tétraédrique. En raison de la péjoration du conditionnement des matrice éléments finis lorsque  $\varepsilon$  tend vers 0, i.e., lorsque le rapport d'aspect du maillage devient de plus en plus grand, la convergence des méthodes itératives devient de plus en plus lente. De plus, l'erreur d'approximation tend à croître lorsque  $\varepsilon$  diminue. Cette méthode est donc bien adaptée au calcul d'écoulement de fluides en couches minces, pour autant que les conditions aux limites soient adaptées.

La formulation du modèle de Stokes-Fourier impose des contraintes particulières au niveau de la géométrie du domaine, des conditions aux limites sur certaines parties du bord du domaine. Dans le cas d'une cuve d'électrolyse d'aluminium, on est contraint de négliger la présence des canaux et de l'inclinaison des parois latérales de la cuve. Au niveau des conditions aux limites, on est forcé d'imposer des conditions de glissement parfait sur les parties du bord en contact avec les anodes ou la cathode, et des conditions d'adhérence parfaite sur les parois verticales. Dans une cuve d'électrolyse, alors que le choix des conditions aux limites sur les parois est cohérent avec le modèle S3D, les conditions aux limites sur la cathode ne correspondent pas. Le choix des conditions aux limites sur les anodes est sujet à discussion en raison de la présence de film gazeux à leur surface et à la présence de bulles de  $\text{CO}_2$  qui provoquent une forte agitation.

La structure des champs de vitesse  $u_h^{\text{SF}}$  est similaire au modèle de référence  $u_h^{\text{S3D}}$  lorsque toutes les anodes sont activées. Cependant, lorsque des anodes sont désactivées, l'écoulement de référence  $u_h^{\text{S3D}}$  développe des petites structures et des tourbillons additionnels à proximité des anodes désactivées que la solution  $u_h^{\text{SF}}$  peine à reproduire.

Le calcul de la distribution stationnaire  $c_h^{\text{SF}}$  dépend directement de la vitesse d'écoulement  $u_h^{\text{SF}}$ . La distribution  $c_h^{\text{SF}}$  reproduit certaines caractéristiques significatives de la distribution de référence  $c_h^{\text{S3D}}$ , tels que les excès de concentration à proximité des points d'injection. Cependant, la distribution d'alumine dans la cuve dépend de manière sensible de la position des tourbillons principaux de l'écoulement  $u_h^{\text{SF}}$ . Il suffit que ces tourbillons soient légèrement décalés par rapport à l'emplacement des injecteurs pour que la distribution d'alumine dissoute change drastiquement.

Les champs de vitesse et de concentration stationnaires obtenus avec la méthode de Stokes-Fourier s'écartent considérablement des champs obtenus avec le modèle 3D standard. Donc il semble difficile d'utiliser ce modèle simplifié pour déterminer la distribution d'alumine dans le bain d'une cuve d'électrolyse.

Néanmoins, il faut souligner que le calcul avec la méthode Stokes-Fourier prend moins

d'une minute, alors que le calcul avec la méthode 3D standard le calcul prend plus de 20 heures. Ainsi le modèle de Stokes-Fourier pourrait être utilisé pour une étude préliminaire sur une nouvelle usine, le calcul 3D standard serait ensuite utilisé pour finaliser la solution retenue.

## Chapitre 5

# Conclusion

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à la modélisation des écoulements fluides et au transport et dissolution de l'alumine dans une cuve d'électrolyse d'aluminium industrielle.

Ce travail de thèse est divisé en deux parties. Dans la première partie, nous nous sommes penchés sur la modélisation physique, mathématique et numérique de phénomènes liés au transport et à la dissolution de la poudre d'alumine dans une cuve d'électrolyse industrielle. En particulier, nous avons discuté en détails de l'importance de la chute des particules d'alumine dans le bain sous l'effet de la gravité, de la formation d'une couche de gel en périphérie des particules suite à leur injection dans le bain, et à l'importance de la température locale du bain sur la dissolution des particules d'alumine. Les modèles numériques de ces phénomènes ont été implémentés dans le logiciel `Aluce11` [Ste09], et leurs effets sur la distribution d'alumine dissoute dans le bain électrolytique ont été évalués dans le cadre de la technologie de cuve AP32 développée par Rio Tinto. Les différentes expériences numériques ont montré que la distribution d'alumine dissoute dans le bain est peu sensible à la chute des particules. De même, on a vu que les temps de formation et de refonte caractéristiques de la couche de gel en périphérie des particules sont de l'ordre de 1 ms, ce qui correspond à un décalage spatial du début de la dissolution de l'ordre du millimètre. Étant donné la précision du modèle, il convient donc de ne pas tenir compte de ces deux effets. En revanche, nous avons montré que la température locale du bain joue un rôle décisif sur la distribution d'alumine dissoute. L'impact est d'autant plus important que la température du bain est proche de la température du liquidus, ce qui est le cas en pratique. Dans ce cadre, le modèle de transport et dissolution d'alumine présenté au chapitre 3 aidera à la compréhension des cuves existantes et au design des cuves futures.

Dans la deuxième partie de ce travail, nous avons proposé un modèle simplifié de l'écoulement des fluides dans une cuve d'électrolyse d'aluminium, dans le but de réduire fortement le temps de calcul. Ce modèle est basé sur une décomposition en séries de Fourier pour la variable verticale et une méthode d'éléments finis pour les deux variables horizontales. Le coût en temps de calcul est réduit de manière drastique, mais l'erreur due aux hypothèses simplificatrices est importante. La structure principale de l'écoulement est bien reproduite par ce modèle dit de Stokes-Fourier, en revanche, les petites structures sont mal reproduites. Par conséquent, les distributions stationnaires d'alumine dissoute qui découlent de cet écoulement simplifié s'écartent significativement des distributions de références obtenue avec le modèle multi-physiques standard. Puisque ce modèle de Stokes-Fourier est très peu coûteux en temps de calcul, il pourra être exploité pour des études préliminaires. La cuve retenue serait ensuite étudiée et validée à l'aide du modèle multi-physiques complet.





# Bibliographie

- [Apf03] E. M. APFEL'BAUM. "Calculation of the Electrical Conductivity of Liquid Aluminum, Copper, and Molybdenum". In : *High Temperature* 41.4 (2003), p. 466-471. ISSN : 0018151X. DOI : 10.1023/A:1025155614716.
- [BE15] V. BOJAREVICS et J. W. EVANS. "Mathematical modelling of Hall-Héroult pot instability and verification by measurements of anode current distribution". In : *Light Metals 2015*. Springer, 2015, p. 783-788.
- [Bra17] E. L. BRAY. *2015 Minerals Yearbook*. Rapport d'activité. U.S. Geological Survey, 2017.
- [Das15] V. DASSYLVA-RAYMOND. "Analyse et Modélisation du Comportement des agrégats d'alumine dans le procédé Hall-Héroult". Thèse de doct. 2015.
- [DFR91] J. DESCLOUX, M. FLUECK et M. V. ROMERIO. "Modelling for instabilities in Hall-Heroult cells : Mathematical and numerical aspects". In : *Magnetohydrodynamics in Process Metallurgy* (jan. 1991), p. 107-110.
- [DFR98] J. DESCLOUX, M. FLUECK et M. V. ROMERIO. "A modelling of the stability of aluminium electrolysis cells". In : *Pitman research notes in mathematics series* (1998), p. 117-133.
- [Dio+17] Ls DION et al. "Preventive Treatment of Anode Effects Using on-Line Individual Anode Current Monitoring". In : *Light Metals* (2017). DOI : 10.1007/978-3-319-51541-0.
- [Fin+17] M. F. FINI et al. "Sludge Formation in Hall Héroult Process : An Existing Problem". In : *35th International ICSOBA Conference* (2017), p. 987-996.
- [Flo13] S. FLOTRON. "Simulations numériques de phénomènes MHD-thermiques avec interface libre dans l'électrolyse de l'aluminium". Thèse de doct. 2013.
- [FR13] S. FLOTRON et J. RAPPAZ. "Conservation schemes for convection-diffusion equations with Robin boundary conditions". In : *ESAIM : Mathematical Modelling and Numerical Analysis* 47.6 (2013), p. 1765-1781.
- [GHK75] J. GERLACH, U. HENNIG et K. KERN. "The dissolution of aluminum oxide in cryolite melts". In : *Metallurgical and Materials Transactions B* 6.March (1975), p. 6-9.
- [GLL03] J.-F. GERBEAU, T. LELIÈVRE et C. LE BRIS. "Simulations of MHD flows with moving interfaces". In : *Journal of Computational Physics* 184.1 (2003), p. 163-191.
- [GR91] P.-A. GREMAUD et J. RAPPAZ. "Analyse Numérique de Problèmes de Changements de Phase liés à des Phénomènes de Solidification". Thèse de doct. 1991.
- [Grj77] K. GRJOTHEIM. *Aluminium Electrolysis : The Chemistry of the Hall-Héroult Process*. Aluminium-Verlag, 1977. ISBN : 9783870171292.

- [GWH16] P.-Y. GEAY, B. J. WELCH et P. HOMSI. “Sludge in Operating Aluminium Smelting Cells”. In : *Essential Readings in Light Metals : Volume 2 Aluminum Reduction Technology*. Sous la dir. de Geoff BEARNE, Marc DUPUIS et Gary TARCY. Cham : Springer International Publishing, 2016, p. 222-228. ISBN : 978-3-319-48156-2. DOI : 10.1007/978-3-319-48156-2\_32.
- [Hau95] W. E. HAUPIN. “Principles of aluminium electrolysis”. In : *Light Metals* (1995), p. 3-11. DOI : 10.1002/9781118359259.
- [Hil87] J. M. HILL. *One-dimensional Stefan problems : an introduction*. English. Includes index. Harlow, Essex, England : Longman Scientific & Technical ; New York, NY : Wiley, 1987. ISBN : 0470203889.
- [Hof11] T. HOFER. “Numerical Simulation and Optimization of the Alumina Distribution in an Aluminium Electrolysis Pot”. Thèse de doct. 2011.
- [HWM94] R.G. HAVERKAMP, B.J. WELCH et J.B. METSON. “The Influence of Fluorination on the Dissolution Rate of Alumina in Smelter Electrolyte”. In : *Light Metals* (1994), p. 365-370.
- [Kas+17] C. KASZÁS et al. “Spreading of Alumina and Raft Formation on the Surface of Cryolitic Bath”. In : (2017), p. 473-478. DOI : 10.1007/978-3-319-51541-0.
- [Kva86] H. KVANDE. “The structure of alumina dissolved in cryolite melts”. In : *Light Metals* (1986), p. 96-104.
- [LL87] L. D. LANDAU et E. M. LIFSHITZ. *Fluid Mechanics*. Second English Edition, revised. Course of Theoretical Physics 6. Pergamon Press, 1987.
- [MR96] P. MAILLARD et M. V. ROMERIO. “A stability criterion for an infinitely long Hall-Héroult cell”. In : *Journal of Computational and Applied Mathematics* 71.1 (1996), p. 47-65. ISSN : 03770427. DOI : 10.1016/0377-0427(95)00217-0.
- [Mun04] D. MUNGER. “Simulation numérique des instabilités magnétohydrodynamiques dans les cuves de production de l’aluminium”. In : (2004).
- [Nor18] NORSK HYDRO ASA. *Bauxite mining*. 2018. URL : <https://www.hydro.com/en/about-aluminium/Aluminium-life-cycle/Bauxite-mining/>.
- [Pai06] S. PAIN. “Simulation numerique du mouvement des fluides dans une cellule de Hall-Heroult”. Thèse de doct. 2006.
- [Pat01] E. C. PATTERSON. “Fluoride Emissions from Aluminium Electrolysis Cells”. Thèse de doct. 2001.
- [Pir89] O. PIRONNEAU. *Finite element methods for fluids*. Wiley Chichester, 1989.
- [PSV88] M. PAOLINI, G. SACCHI et C. VERDI. “Finite element approximations of singular parabolic problems”. In : *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 26.9 (1988), p. 1989-2007.
- [QV08] A. M. QUARTERONI et A. VALLI. *Numerical Approximation of Partial Differential Equations*. 1st ed. 1994. 2nd printing. Springer Publishing Company, Incorporated, 2008. ISBN : 3540852670, 9783540852674.
- [Rio18] RIO TINTO. *AP Technology<sup>TM</sup>- AP30/AP40 The world’s benchmark reduction technologies*. Jan. 2018. URL : [https://www.ap-technology.com/SiteCollectionDocuments/AP\\_Factsheet\\_AP30-AP40.pdf](https://www.ap-technology.com/SiteCollectionDocuments/AP_Factsheet_AP30-AP40.pdf).
- [Roc16] J. ROCHAT. “Approximation numérique des écoulements turbulents dans des cuves d’électrolyse de l’aluminium”. Thèse de doct. 2016.

- [Rub71] L. I. RUBENSTEIN. *The Stefan Problem*. Providence, R. I. : American Mathematical Society, 1971.
- [SFR09] Yasser SAFA, Michel FLUECK et Jacques RAPPAZ. “Numerical simulation of thermal problems coupled with magnetohydrodynamic effects in aluminium cell”. In : *Applied Mathematical Modelling* 33.3 (2009), p. 1479-1492. ISSN : 0307904X. DOI : 10.1016/j.apm.2008.02.011.
- [Sne85] A. D. SNEYD. “Stability of fluid layers carrying a normal electric current”. In : *Journal of Fluid Mechanics* 156 (1985), p. 223-236. ISSN : 00221120. DOI : 10.1017/S0022112085002063.
- [Sol+95] A. SOLHEIM et al. “Liquidus temperature and alumina solubility in the system  $\text{Na}_3\text{AlF}_6$ - $\text{AlF}_3$ - $\text{LiF}$ - $\text{CaF}_2$ - $\text{MgF}_2$ ”. In : *Light Metals* (1995), p. 73-82.
- [SSS97] E. SKYBAKMOEN, A. SOLHEIM et Å. STERTEN. “Alumina solubility in molten salt systems of interest for aluminum electrolysis and related phase diagram data”. In : *Metallurgical and Materials Transactions B* 28.1 (1997), p. 81-86. ISSN : 1073-5615. DOI : 10.1007/s11663-997-0129-9.
- [Ste09] G. STEINER. “Simulation numérique de phénomènes MHD : Application à l'électrolyse de l'aluminium”. Thèse de doct. 2009.
- [Tem77] R. TEMAM. *Navier-Stokes Equations : Theory and Numerical Analysis*. North-Holland, 1977.
- [WF99] J. WANG et D.R. FLANAGAN. “General solution for diffusion-controlled dissolution of spherical particles. 1. Theory”. In : *Journal of pharmaceutical sciences* 88.7 (1999), p. 731-738.
- [WPT92] X. WANG, R. D. PETERSON et A. T. TABEREAUX. “Electrical conductivity of cryolite melts”. In : *Light Metals* (1992), p. 57-64.



# Hilke, Thomas Frédéric

Né le 04.04.1988, marié, nationalité SUISSE

CONTACT Place du Temple 3 Tél. +41 (0) 77 457 56 68  
1304 Cossonay-Ville E-mail: thomas.hilke.ch@gmail.com  
Suisse Github: <https://github.com/thomashilke>

FORMATION **Préparation d'une thèse de Doctorat en Mathématiques** 2013 – Actuellement  
École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Lausanne, Suisse  
*Obtention du diplôme prévue le 6 novembre 2018. Titre de la thèse: "Méthodes numériques liées à la distribution d'alumine dans une cuve d'électrolyse d'aluminium"*

**Bachelor et Master en Physique** 2006 – 2012  
École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Lausanne, Suisse  
*Titre du projet de Master: "On the analytical continuation of field configurations in classical field theories"*

EXPÉRIENCES **Assistant d'enseignement** 2010 – 2018

PROFESSIONNELLES

- « Programmation 1 & 2 », 1ère année BSc Physique
- « Physique Avancée 1 », 1ère année BSc Physique
- « Analyse 1 & 3 », 1ère année BSc Physique et Mathématique
- « Introduction à l'analyse numérique », 2ème année BSc Systèmes de communications

**Assistant de recherche médicale** 2013  
CHUV, Lausanne  
*Développement de protocoles d'analyse d'images médicales pour l'assurance qualité, collecte et analyse de données d'études cliniques*

**Soutien scolaire hebdomadaire** 2007–2013  
*Suivi du programme de mathématiques, physique et chimie, niveau secondaire et gymnase et C++ niveau 1ère année bachelor, notions de base et avancées*

**Projets mandatés par Junior Entreprise EPFL** 2010 – 2012

- Développement de logiciels de visualisation 3D temps réel de données EEG pour Mindmaze
- Développement d'algorithmes de correction d'aberrations optiques pour Lemoptix

**Agent d'accueil au Rolex Learning Center** 2010 – 2011  
*Tâches d'accueil et d'information aux usagers du Rolex Learning Center, EPFL*

SOFT SKILLS **Artiphys festival, membre du staff** 2008  
Soutien à l'organisation de la logistique pre- et post-événement

**Artiphys festival, membre du comité** 2009  
En charge du site web

**Balelec, membre du staff** 2010–2011  
Soutien pour le montage et le démontage des scènes du festival

LANGUES

- Français: langue maternelle
- Anglais: niveau C1
- Allemand: niveau A2

TECHNOLOGIES DE L'INFORMATION

**Systèmes d'exploitation**  
Bonnes connaissances: Linux (Ubuntu, Debian, Archlinux), macOS  
Notions: Windows

**Langages**  
Très bonnes connaissances: C++, C, Fortran77, GNUPlot, L<sup>A</sup>T<sub>E</sub>X, MATLAB/GNU Octave, Bash  
Notions: Elisp, C#, Objective-C, HTML5, PHP, Python, (Node)JS, Ruby, SQL(light), x86ASM

**Frameworks**  
Bonnes connaissances: BLAS, LAPACK, Petsc, OpenGL, Boost

