

Méthodologie d'étude par traceur des transferts de masses

PAR

J. Guizerix

ET

R. Margrita

Chef du Groupe

des Applications de la Radioactivité et des Traceurs en Hydrologie et dans l'Industrie

Ingénieur au Groupe

Commissariat à l'Energie Atomique

La notion de traceur appartient au sens commun et, à ce titre, est très ancienne. Le Petit Poucet, le héros des Contes de Perrault eut recours à un marquage à l'aide de petits cailloux pour identifier une trajectoire. Identification, représentation, sont des concepts associés à cette notion de traceur qui sera précisée au cours de cet exposé.

Les techniques de traceur se sont développées depuis la fin de la dernière guerre mondiale, en même temps qu'apparaissaient sur le marché les radioéléments qui allaient se montrer de plus en plus de précieux auxiliaires de la recherche. Alors qu'avec le temps se sont affinées ces techniques une véritable méthodologie a vu le jour. Si les spécialistes sont encore en train d'en écrire ou d'en compléter certains chapitres, le chercheur, l'ingénieur disposent néanmoins aujourd'hui d'un large éventail d'informations auxquelles ils n'avaient souvent pas accès dans le passé.

Deux parties principales dans cet exposé seront distinguées en fonction de la nature de ces informations.

La première, sous le titre méthode "tout ou rien", concerne les informations les plus simples, mais non nécessairement les plus faciles à acquérir — les informations du type "oui — non" — Elle correspond aussi aux applications de traceur les plus connues et qui sont le plus souvent le fait de spécialistes occasionnels.

La seconde partie, intitulée méthode des fonctions de transfert a trait à des informations spatio-temporelles. Cette méthode qui donne lieu aux applications les plus variées, sinon les plus importantes, est une traduction fructueuse dans le domaine des transferts de matière d'une tactique d'analyse qui a vu le jour dans le monde des télécommunications.

1. Méthode "tout ou rien"

La méthode "tout ou rien" intéresse des problèmes d'identification qui dans le domaine des transferts de matière se

posent en ces termes : la matière d'un certain milieu 2 provient-elle d'un milieu 1 ? La réponse à cette question est oui ou non. La solution à ce problème consiste à mélanger à l'ensemble des éléments du milieu 1, un ensemble de molécules de "traceur", choisies pour leur facilité d'identification et à tenter de les mettre en évidence dans le milieu 2.

Dans ce type de problème le traceur doit obéir à la condition :

$$\left(\frac{dn}{\Delta m} \right)_{1 \rightarrow 2} = \lambda \neq 0$$

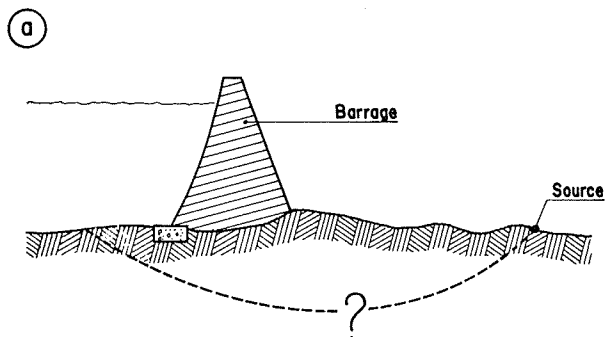
où $dn/\Delta m$ représente le rapport du nombre de molécules du traceur au nombre de molécules du milieu marqué dans tous les volumes intéressant le transfert du traceur entre les deux milieux. Cette condition exprime que l'on obtient une solution même si le traceur n'est pas un très bon traceur de la phase marquée ; il peut, par exemple, disparaître de cette phase en partie par adsorption au cours de son transfert. L'apparition à la limite, de quelques molécules de traceur en 2 permet de répondre oui à la question posée. Si au contraire le traceur ne peut être mis en évidence dans ce milieu on est en présence de l'une des trois situations suivantes :

- il n'y a pas de relation entre 1 et 2
- le traceur a disparu entre 1 et 2.
- le traceur a en 2 des concentrations trop faibles pour être mesurables.

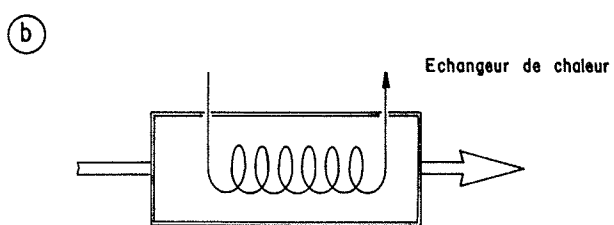
Il appartient alors au spécialiste d'apprécier l'existence de la première de ces situations en fonction des possibilités d'occurrence des deux autres. Il n'est pas toujours possible de conclure.

La figure 1 illustre deux applications de cette méthode.

L'une a trait à la première des démarches dans une recherche de fuites sur la cuvette d'un barrage qui con-



$$\frac{\text{nombre de molécules de traceur}}{\text{nombre de molécules du milieu marqué}} = \lambda \neq 0$$



1/ Illustration de la méthode "Tout ou rien"

siste à établir l'inventaire des résurgences. Les questions posées sont : l'eau de telle source provient-elle en partie de la retenue ? Il est possible de répondre aujourd'hui à de telles questions en marquant des dizaines de millions de mètre cubes d'eau.

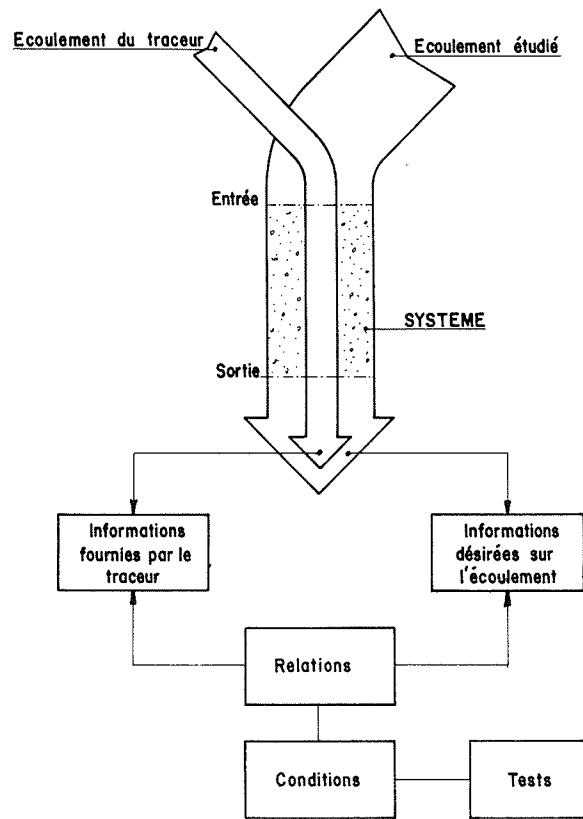
Un autre exemple concerne un échangeur de chaleur.

Le marquage continu ou discontinu de l'un des deux fluides par un traceur que l'on tente de mettre en évidence à la sortie de l'appareil dans le second fluide permet d'établir l'existence d'une éventuelle communication entre les deux circuits.

2. La méthode de fonctions de transfert

On peut définir d'une manière générale la méthode des traceurs pour l'étude des transferts de masses de la manière suivante : l'objectif étant d'obtenir des informations sur un écoulement donné, on superpose à ce dernier un écoulement (figure 2) de traceur à partir duquel certaines informations sont atteintes. Le problème est alors d'établir les relations qui existent entre ces deux types d'informations afin de déterminer les premières en fonction des secondes. L'écoulement du traceur est provoqué, dans le cas de traceurs artificiels, ou naturellement associé à l'écoulement étudié dans le cas des traceurs naturels. L'établissement des relations implique le respect de certaines conditions qu'il convient d'asseoir si cela est nécessaire par des tests.

Nous nous attacherons en premier lieu à décrire le transfert du traceur avant d'aborder un examen systématique des informations que l'on peut en déduire sur le transfert du fluide en étude.



2/ Illustration de la méthode des traceurs pour l'étude des écoulements de matière dans les systèmes

2.1. INFORMATIONS SUR LE TRANSFERT DU TRACEUR

2.1.1. Rappel sur les systèmes linéaires multivariables

Définitions

La méthode des fonctions de transfert, (références 1 et 2), pour l'analyse et la synthèse des systèmes est aujourd'hui largement utilisée. Ne considérant que les grandeurs d'entrée et de sortie des systèmes elle en constitue une théorie extérieure. Un système ne possédant qu'une seule grandeur d'entrée $u(t)$ et une seule grandeur de sortie $y(t)$ est dit univariante ou scalaire. S'il possède plusieurs entrées $u_i(t)$ et plusieurs sorties $y_i(t)$, il est dit multivariable ou vectoriel (figure 3).

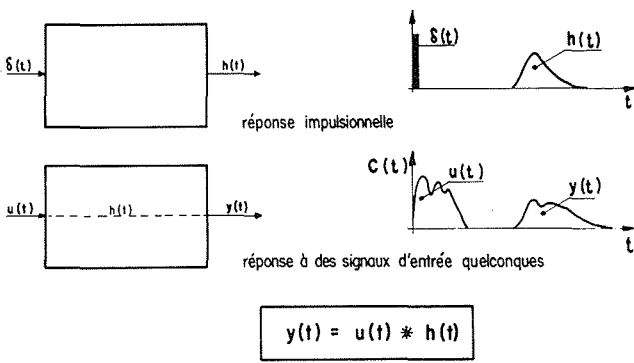
Sur la figure 4 sont définis différents systèmes relatifs au transfert de molécules d'eau ou de traceur.

Pour le traceur les fonctions $u(t)$ et $y(t)$ sont des flux massiques :

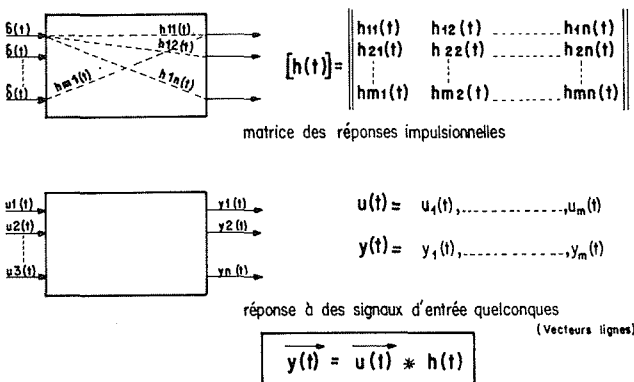
$$u(t) = q \cdot C(t)$$

où q représente le débit de l'eau, et $C(t)$ la fonction concentration-temps que l'on peut relever à l'entrée du système en mesurant d'une manière continue la concentration du traceur. Un système univariante correspond par exemple à un écoulement monodimensionnel (tout au moins à l'entrée et à la sortie). Un écoulement tridimensionnel constitue un système multivariable pour lequel $u_i(t) = q_i \cdot C_i(t)$ où q_i et $C_i(t)$ sont respectivement les débits et fonction concentration-temps en chaque "point" d'indice i de la surface d'entrée.

SYSTEMES SCALAIRES



SYSTEMES VECTORIELS



3/ Réponse des systèmes linéaires invariants

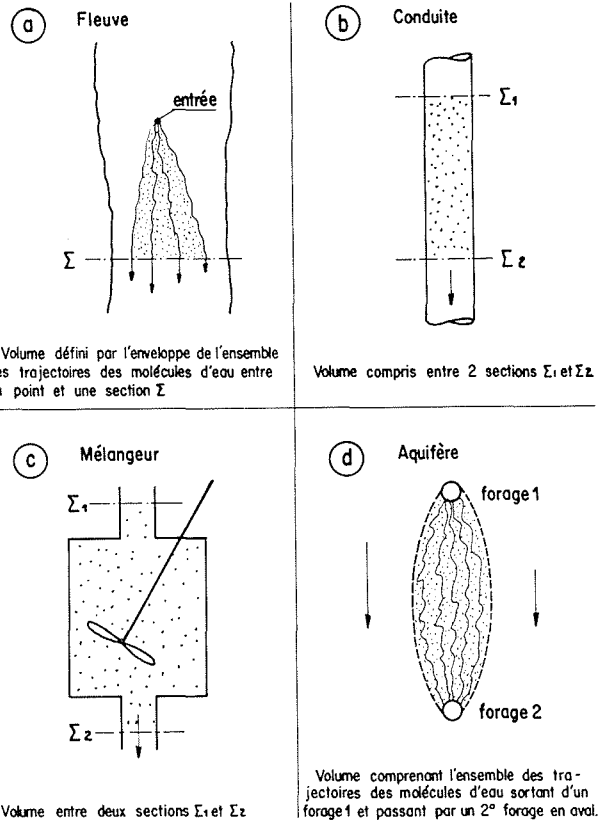
Principe de superposition et principe de permanence

Si $y_1(t), y_2(t), \dots, y_n(t)$ sont les réponses d'un système à des signaux d'entrée $u_1(t), u_2(t), \dots, u_n(t)$ agissant séparément, la réponse du système à un signal constitué d'une combinaison linéaire des signaux d'entrée $\sum_i a_i u_i(t)$ est la même combinaison des signaux de sortie $\sum_i a_i y_i(t)$. Lorsque ce principe est satisfait le système est dit linéaire. Le principe de permanence qui permet de définir les systèmes invariants lorsqu'il est satisfait s'énonce ainsi : si $y(t)$ est la réponse d'un système à un signal d'entrée $u(t)$ agissant à l'instant t , l'action de ce même signal à $t - \tau$ entraînera une réponse $y(t - \tau)$ (une translation sur l'axe de temps n'affecte pas la réponse) (stationarité dans le temps). Les masses de traceur mises en jeu dans une expérience de traceur étant très faibles devant les masses en mouvement du milieu marqué les systèmes sont en général toujours linéaires vis à vis du traceur. Des problèmes de non linéarité commencent à se poser lorsque le débit de la solution contenant le traceur au niveau de l'injection devient non négligeable devant celui du milieu marqué.

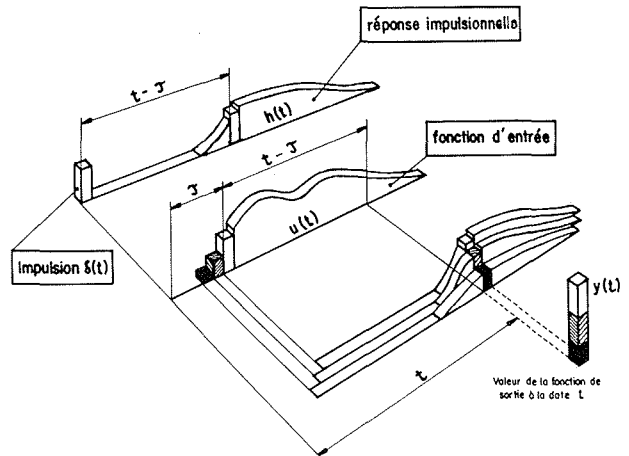
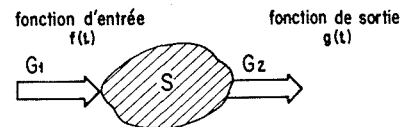
Réponse des systèmes linéaires scalaires invariants

La réponse impulsionnelle d'un système linéaire scalaire est sa réponse au signal de Dirac $\delta(t)$, le système étant initialement au repos. Soit $h(t)$ cette réponse impulsionnelle. Elle permet de déterminer la réponse $y(t)$ à un signal d'entrée quelconque (figure 5) :

$$y(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} u(\tau) \cdot h(t - \tau) d\tau \quad (1)$$



4/ Exemples de systèmes



$$Y(t) = \int_0^t u(\tau) \cdot h(t - \tau) dt$$

5/ Utilisation de la réponse impulsionnelle pour définir la fonction de sortie connaissant la fonction d'entrée.

Cette intégrale de superposition ou intégrale de convolution sera ultérieurement notée

$$y(t) = u(t) * h(t)$$

Son écriture signifie que tout signal peut être considéré comme la superposition d'une infinité d'impulsions de Dirac.

$$u(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} u(\tau) \cdot \delta(t - \tau) d\tau$$

L'opération qui consiste à trouver l'un des termes du second membre de la relation (1) connaissant les deux autres termes est dite déconvolution. Il est intéressant de noter par ailleurs que la réponse impulsionnelle a la dimension de l'inverse d'un temps.

Sur un plan pratique on obtient par exemple la réponse impulsionnelle entre deux points A et B d'une rivière de la manière suivante : on injecte en A une certaine masse m de traceur et l'on mesure en permanence sa concentration en B , $C(t)$

$$h(t) = \frac{C(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} C(t) dt}$$

ou encore :

$$h(t) = \frac{q_B \cdot C(t)}{m}$$

q_B représente le débit au "point" B .

Réponse des systèmes linéaires vectoriels invariants

Soit dS un élément de la surface d'entrée d'un système que nous repérons par l'indice i et $d\sigma$ un élément de la surface de sortie repéré par l'indice j . Nous pouvons définir pour chaque couple d'élément de surface une réponse impulsionnelle $h_{ij}(t)$.

Nous représentons l'ensemble de ces réponses impulsionnelles par une matrice dite matrice des réponses impulsionnelles.

$$|h(t)| = \begin{vmatrix} h_{11}(t) & h_{12}(t) & \dots & h_{1m}(t) \\ h_{21}(t) & h_{22}(t) & \dots & h_{2m}(t) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ h_{m1}(t) & h_{m2}(t) & \dots & h_{mn}(t) \end{vmatrix}$$

L'ensemble des fonctions d'entrée associées à chaque élément de surface dS est représenté par une matrice $|u(t)|$ comportant une ligne et dont nous considérons que les éléments sont les composantes d'un vecteur $\vec{u}(t)$. De même pour les fonctions de sortie on définit $|y(t)|$ et $\vec{y}(t)$. La réponse d'un système linéaire vectoriel invariant est donnée par :

$$\vec{y}(t) = \vec{u}(t) * |h(t)| \quad (2)$$

En pratique il serait possible de déterminer les réponses impulsionnelles de point à point $h_{ij}(t)$, mais cette procédure serait trop fastidieuse. On tente alors de se ramener à un système scalaire par l'une des trois tactiques expérimentales suivantes :

1/ Approximation d'une injection idéale. Cette procédure sera développée plus loin dans le paragraphe "distribution des temps de séjour".

2/ Cas général. Le traceur est injecté en un point A de l'écoulement. En aval, deux points B et C définissent les sections d'entrée Σ_1 et de sortie Σ_2 d'un système. Dans chacune de ces sections on détermine en un certain nombre

de points, d'une part les fonctions $C_i(t)$ et $C_j(t)$, d'autre part on détermine, par exemple, à l'aide d'un moulinet q_i et q_j .

On a :

$$u_i(t) = q_i C_i(t)$$

$$y_j(t) = q_j C_j(t)$$

Définissons :

$$u(t) = u_1(t) + u_2(t) + \dots + u_n(t)$$

$$y(t) = y_1(t) + y_2(t) + \dots + y_n(t)$$

On peut trouver $h(t)$ tel que :

$$y(t) = u(t) * h(t)$$

si les deux conditions suivantes sont remplies :

a) La distance AB est suffisante pour que l'on ait bon mélange Σ_1 , c'est-à-dire :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} C_i(t) dt = \text{constante quelque soit } i ;$$

b) Les réponses impulsionnelles entre A et chaque point i de Σ_1 sont identiques ; les réponses impulsionnelles entre A et chaque point j de Σ_2 sont identiques.

De telles sections Σ_1 et Σ_2 peuvent être trouvées. On donne dans le mémoire de la référence 3 une analyse détaillée de cette question.

3/ Si les sections Σ_1 et Σ_2 sont suffisamment éloignées la propriété d'identité des réponses impulsionnelles est réalisée entre chaque point de Σ_1 et tous les points de Σ_2 . Il suffit donc d'injecter d'une manière instantanée le traceur en un point de Σ_1 et de relever en un point de Σ_2 la fonction $C(t)$. On a :

$$h(t) = \frac{C(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} C(t) dt}$$

Réponse des systèmes linéaires vectoriels variants

Les réponses impulsionnelles sont fonction du temps ; la réponse du système est donnée par :

$$\vec{y}(t) = \vec{u}(t) * |h(t, \tau)|$$

Ce cas est bien représenté par le problème des mesures de débit en régime variable par la méthode de traceur qui procède par injection à débit constant (réf. 4).

2.1.2. Réponses impulsionnelles - relais

Soient dans un écoulement des points A, B, C, D, E définissant les sections d'entrée et de sortie de systèmes en série. La réponse impulsionnelle entre A et E peut être obtenue directement en injectant le traceur en A et en relevant la fonction $C_{AE}(t)$ en E . Si la dilution est grande, afin d'éviter l'utilisation d'une activité trop grande d'un traceur radioactif ou encore pour minimiser la durée totale de l'expérimentation, il est possible de procéder comme suit : de faibles quantités de traceur sont injectées en A, B, C, D , on relève les fonctions $C_{AB}(t), C_{BC}(t), C_{CD}(t), C_{DE}(t)$ en B, C, D, E et l'on en déduit :

$$h_{AB}(t), h_{BC}(t), h_{CD}(t), h_{DE}(t).$$

On calcule alors :

$$h_{AE}(t) = h_{AB}(t) * h_{BC}(t) * h_{CD}(t) * h_{DE}(t)$$

Il est par exemple possible de déterminer par cette méthode la réponse impulsionnelle d'un traceur sur l'Isère et le Rhône entre Grenoble et Arles en 24 heures. La méthode directe nécessiterait 96 heures durant lesquelles pourraient se produire d'appréciables variations de débit.

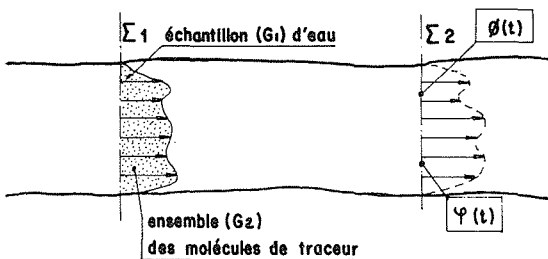
2.2. INFORMATIONS SUR LE TRANSFERT DU FLUIDE

Nous avons précédemment montré que les fonctions $C(t)$ et $h(t)$ définissaient le transfert d'un traceur. Nous examinons dans ce chapitre les informations que l'on peut en déduire sur le transfert du fluide marqué. Nous pourrions nous intéresser au fluide lui-même ou encore aux substances qu'il transporte en solution ou en suspension.

2.2.1. Distribution des temps de séjour

Définition :

Soit (figure 6) un système défini entre une surface d'entrée Σ_1 et une surface de sortie Σ_2 , l'écoulement étant constitué par de l'eau. Définissons un échantillon de cet écoulement. Cet échantillon est constitué par l'ensemble (G_1) des molécules d'eau traversant la section Σ_1 pendant un



$$h(t) = \frac{\phi(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t) dt} \neq \frac{\psi(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} \psi(t) dt}$$

Si : $\frac{\text{nombre de molécules de } (G_1)}{\text{nombre de molécules de } (G_2)} = \text{constante} = \lambda$

6/ Distribution des temps de séjour ; marquage et détection idéale

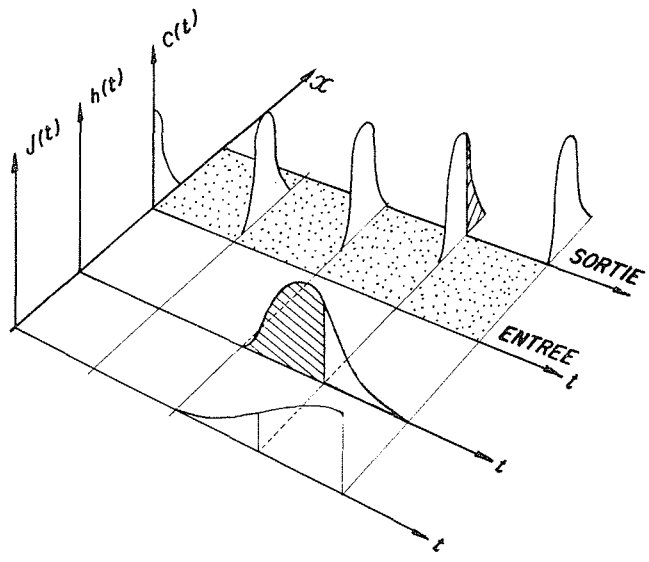
intervalle de temps court dt . Supposons que nous puissions discerner dans la section Σ_2 les molécules d'eau appartenant à (G_1) ; on pourrait alors déterminer leur fréquence de passage à travers cette section. Soit $\phi(t)$ la fonction ainsi relevée. La distribution des temps de séjour de l'eau dans le système est :

$$h(t) = \frac{\phi(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t) dt}$$

C'est une fonction densité de probabilité qui donne par exemple la probabilité qu'a une molécule d'eau de séjourner dans le système un temps compris entre t et $t + dt$:

$$\text{probabilité} = h(t) dt.$$

Cette fonction joue un rôle capital dans l'analyse des systèmes qui sont le siège de phénomènes pour lesquels le temps est un paramètre essentiel. La figure 7 montre la relation entre cette fonction et la fonction concentration-espace.



7/ Correspondance entre fonction concentration espace (coordonnées lagrangiennes) et réponse impulsionnelle.

Injection idéale de traceur

Les molécules de (G_1) n'étant pas discernables on va utiliser un traceur pour les représenter. Si l'on mélange d'une manière homogène à l'ensemble (G_1) un second ensemble constitué par les molécules du traceur on a réalisé une injection idéale (ensemble G_2).

Le traceur sera un bon traceur si la condition ci-dessous est réalisée :

$$\left(\frac{dn}{\Delta m}\right)_{\Sigma_1 \rightarrow \Sigma_2} = \lambda = \text{constante} \quad (3)$$

où $dn/\Delta m$ représente le rapport du nombre de molécules du traceur au nombre de molécules de l'ensemble (G_1) dans tous les volumes intéressant le transfert du traceur.

Le passage du traceur au travers de Σ_2 peut être défini par une fonction $\psi(t)$

Compte tenu de la relation (3) on peut écrire :

$$h(t) = \frac{\phi(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t) dt} = \frac{\psi(t)}{\int_{-\infty}^{+\infty} \psi(t) dt}$$

La réponse impulsionnelle en traceur, définie entre la section Σ_1 et la section Σ_2 représente la distribution des temps de séjour de l'eau dans le système.

Pour réaliser une injection idéale de traceur dans Σ_1 il faudrait injecter en chaque point une quantité de traceur proportionnelle à la vitesse de l'eau. En pratique on choisit un

nombre discret de points et l'on pondère les masses de traceur injecté par les débits des tubes de courant entourant ces points. Ces débits sont définis à l'aide d'un moulinet par exemple.

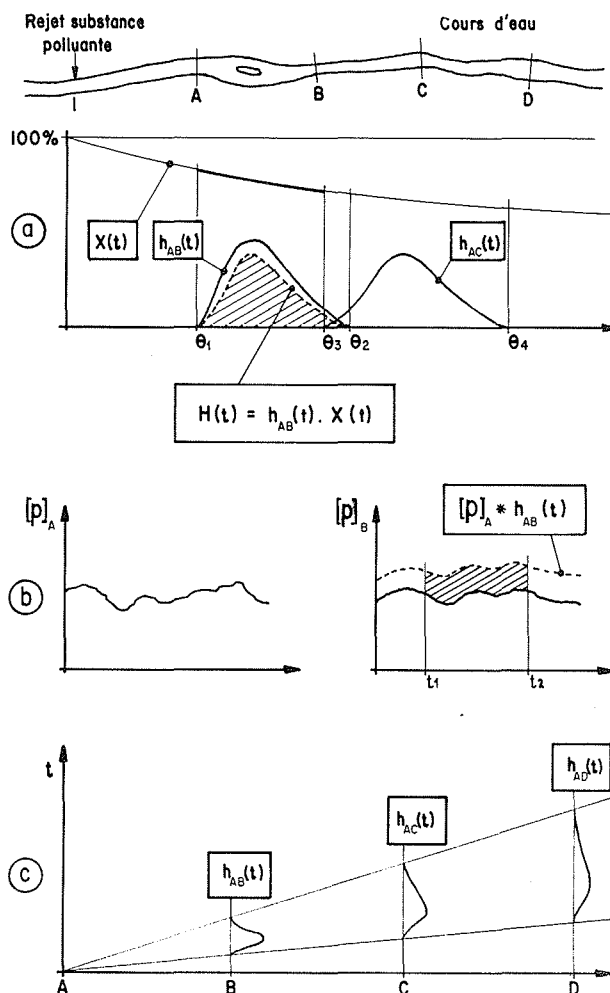
$$\text{Relation : } Q = \frac{V}{\bar{t}}$$

Cette relation importante entre le débit, le volume du système et le premier moment de la distribution des temps de séjour est applicable pour les systèmes fermés à la diffusion. Fermé à la diffusion signifie qu'une molécule ne traverse qu'une fois la surface d'entrée et la surface de sortie. (Rappelons que $\bar{t} = \int_{-\infty}^{+\infty} t \cdot h(t) dt$. On trouvera une démonstration de cette relation à la référence 3.

Exemples d'application des distributions des temps de séjour

1/ Cinétique d'autoépuration

Nous supposons un écoulement monodimensionnel pour simplifier l'exposé. Des substances polluantes sont rejetées (figure 8) à débit variable dans un cours d'eau. Notre objectif est de déterminer la cinétique $X(t)$ (figure 8a) de dégradation de l'une des substances polluantes. Nous faisons l'hypothèse que cette cinétique est du premier ordre, c'est-à-dire que la dégradation ne dépend que du temps.



8/ Cinétique d'Auto-Epuration

A l'aide d'un traceur on détermine la distribution des temps de séjour de l'eau dans un tronçon AB situé en aval de I. On déterminera par ailleurs les fonctions concentration temps de la substance étudiée en A et en B ; soient $[P]_A$ et $[P]_B$ ces fonctions (figure 8b).

La fonction $[P]_A * h_{AB}(t)$ (figure 8b) représente les variations de concentration que l'on observerait en B s'il n'y avait pas de dégradation. L'aire hachurée, parfaitement définie entre deux dates t_1 et t_2 permet en premier lieu d'établir un bilan.

Une opération de déconvolution entre $[P]_A$ et $[P]_B$ fournit la fonction $H(t)$ (figure 8a) qui permet de calculer dans l'intervalle de temps $\theta_1 \theta_2$ une partie de la fonction recherchée $X(t)$ à l'aide de la relation :

$$H(t) = h_{AB}(t) \cdot X(t)$$

La même procédure conduit à définir $X(t)$ entre θ_3 et θ_4 , en considérant un tronçon AC. La figure 8c montre comment varient les distributions de temps de séjour de l'eau dans des tronçons AB, AC, AD, ...

Dans l'exemple choisi on devrait vérifier que $X(t)$ est une fonction exponentielle dont la tactique exposée fournirait l'argument.

Certains expérimentateurs proposent pour résoudre ce problème de "marquer une tranche d'eau" avec un traceur et de prélever des échantillons au milieu du nuage de traceur. On se rend compte que cette méthode est tout à fait inadéquate, chaque échantillon contenant des eaux d'âge très différents.

2) Détermination de la porosité efficace d'un aquifère souterrain (réf. 5)

La porosité efficace m_e d'un aquifère souterrain qui détermine le volume d'eau effectivement en mouvement V_e est un paramètre difficile à obtenir :

$$m_e = \frac{V_e}{V_{\text{total}}}$$

Si la technique d'acquisition de ce paramètre à l'aide de traceur est ancienne (référence 6) soulignons qu'elle n'était pas assise sur une analyse rigoureuse. On a tenté (référence 7) à cette fin de mettre en jeu un complexe modèle diffusionnel, ce qui impliquait que la solution (sur le plan théorique) ne pouvait être qu'approximative.

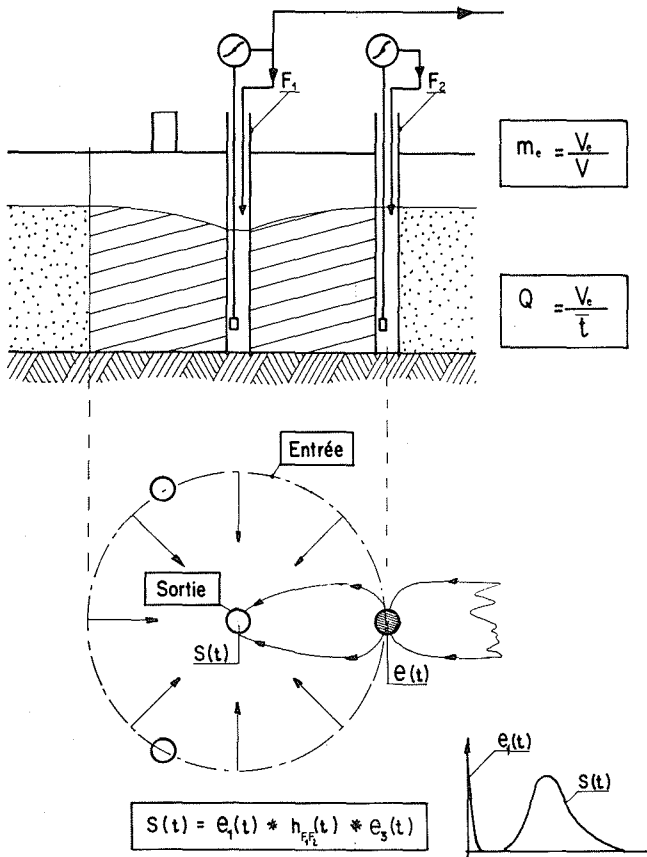
La relation $Q = \frac{V_e}{\bar{t}}$, qui est rigoureuse, justifie la tactique expérimentale suivante.

On réalise dans un forage F_1 un pompage à débit constant (figure 9). Un traceur est injecté dans un forage F_2 voisin. La face de sortie de ce forage représente un échantillon de la surface d'entrée cylindrique d'un système dont le forage constitue la surface de sortie.

Afin de réaliser une injection approximativement idéale (quantité de traceur entrant dans le système à différents niveaux proportionnelle aux vitesses) on rend la solution dans F_1 homogène à tout instant en apportant de l'énergie à l'aide d'une pompe extérieure comme le représente la figure. On apportera de même de l'énergie dans le forage F_2 pour réaliser l'opération $\sum q_i C_i(t)$, q_i et $C_i(t)$ représentant les débits et fonctions concentration-temps relatives à chaque couche.

On a affaire à trois systèmes en série :

— l'eau contenue dans le forage F_1 et la boucle comprenant la pompe correspondante



9/ Détermination de la porosité efficace d'une nappe phréatique

- le système défini par l'enveloppe des trajectoires du traqueur entre les deux forages
- le système constitué par l'eau du forage F_2 et la boucle de retour dans ce forage.

On peut aisément montrer que les réponses $e_1(t)$ et $e_3(t)$ du premier et du troisième système sont des fonctions exponentielles dont des expériences annexes de traceur fournissent les arguments. Si $S(t)$ est la fonction relevée en aval de la pompe du forage F_1 on a :

$$S(t) = e_1(t) * h_{F_1 F_2}(t) * e_3(t)$$

On est maître de $e_3(t)$ et on peut lui donner une valeur telle que :

$$h_{F_1 F_2}(t) \# h_{F_1 F_2}(t) * e_3(t)$$

Si $e_1(t)$ qui est défini par le taux de renouvellement de l'eau dans F_1 lors de l'expérience a une durée trop longue devant la réponse impulsionnelle, on est conduit à une opération de déconvolution pour obtenir $h_{F_1 F_2}(t)$.

2.2.2. Distribution des temps de séjour et fonctions de transfert

Nous avons vu dans quelle condition (marquage idéal) la réponse impulsionnelle d'un traceur représentait la distribution des temps de séjour du fluide marqué. Il a été montré par ailleurs qu'une opération de convolution permet de prévoir la réponse d'un système et, de même, qu'une série de convolution donne la réponse globale de systèmes en série.

Cette technique est utilisée nécessairement lorsque les fonctions sont données sous une forme paramétrique. Si

l'on dispose des formes analytiques de ces fonctions les problèmes peuvent être traités par voie analytique de la manière suivante. En premier lieu, la fonction de transfert (d'un système scalaire) initialement au repos est la transformée de sa réponse impulsionnelle.

Dans le cas où la transformation est celle de Laplace

$$H(p) = \mathcal{L}\{h(t)\}$$

D'autre part, la transformée de Laplace de la convolution de deux fonctions est égale au produit des transformées de ces fonctions :

$$Y(p) = H(p) \cdot U(p)$$

où $Y(p) = \mathcal{L}\{y(t)\}$ et $U(p) = \mathcal{L}\{u(t)\}$

Il est donc possible de traiter par le calcul des problèmes de régulation, d'asservissement, pour le transfert de substances en solution ou en suspension dans un fluide vecteur.

Exemple : Etude de réacteurs chimiques pour la fabrication de l'aluminat de soude.

A l'entrée d'une série de neuf autoclaves est réalisée un débit continu de soude et de Bauxite. Une telle série d'appareils doit avoir les qualités requises pour permettre un rendement de réaction optimum. Pour cela le rapport des poids de soude et de Bauxite doit être constant et égal à une valeur bien déterminée au niveau du début de la réaction chimique, soit à partir du 4^e autoclave, les premiers servant au réchauffage. Une solution serait d'avoir un rapport soude sur bauxite constant dès l'entrée mais cela est difficile à obtenir étant donné la nature des procédés qui fixent les concentrations des deux phases.

Le problème qui nous fut posé sur une telle installation était de déterminer les caractéristiques de nouveaux procédés d'ajustement des concentrations pour ne pas dépasser au niveau du 4^e autoclave certaines fluctuations sur le rapport soude sur Bauxite. Nous avons déterminé les réponses impulsionnelles de chaque appareil à l'aide de traceurs radioactifs pour chacune des phases et après les avoir identifiés aux réponses de mélangeurs parfaits, les différents modes d'amortissement dans les 4 premiers appareils des fluctuations du rapport soude sur Bauxite à l'entrée ont pu être calculés.

2.2.3. Distribution des temps de séjour et réponse impulsionnelle : problèmes d'extrapolation (Réf. 5)

Le type de problème qui nous intéresse ici est celui pour lequel une méthode de traceur a fourni des informations sur un "échantillon" d'écoulement, l'objectif étant d'obtenir des informations sur une plus grande partie de cet écoulement. Il s'agit d'un problème d'extrapolation que nous illustrerons par une étude de transfert de substance polluante dans un aquifère souterrain.

Supposons que nous désirions connaître le temps minimum de transfert de substances polluantes entre un point A (figure 10a) et différents points P de l'espace situés sur une même ligne de courant.

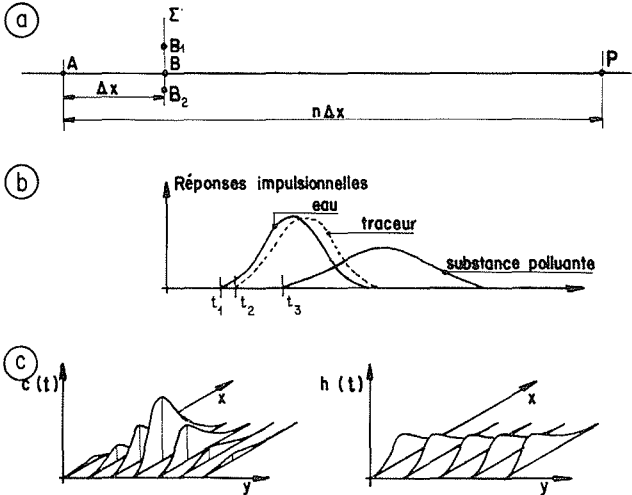
Nous ferons l'hypothèse que la substance polluante n'ira pas plus vite que l'eau (figure 10b) que l'on va représenter par un traceur. On pourra admettre que celui-ci présente un léger retard dans son transfert par rapport à l'eau.

Deux méthodes nous donneront la solution :

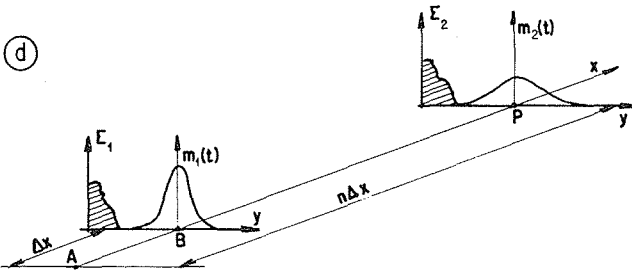
1) Méthode des réponses impulsionnelles ou des "boîtes noires"

L'"échantillon" de transfert est relatif au système compris entre deux points (forages) A et B (figure 10a). A l'aide

EXTRAPOLATION DANS LE TEMPS ET DANS L'ESPACE



EXTRAPOLATION DANS L'ESPACE



10/ Extrapolation par la méthode des fonctions de transfert.

d'un traceur on détermine la réponse impulsionnelle $h_{AB}(t)$, et si $AB = \Delta x$, $AP = n\Delta x$, on considère que l'espace entre A et P est constitué par n échantillons identiques à AB.

La réponse impulsionnelle en P est égale à :

$$h_{AB}(t) = [h_{AB}(t)]^{n*}$$

l'exposant n^* signifie qu'il faut convoluer la fonction n fois par elle-même.

Cette procédure suppose que les caractéristiques de transfert sont identiques dans tout l'espace entre A et P (stationnarité de la réponse impulsionnelle dans l'espace). On trouvera à la référence 8 une analyse de cette question.

Sur le plan pratique, le problème du "tir" entre A et B étant le plus souvent imparfaitement résolu (B ne se trouve pas sur la ligne de courant passant par A), on peut se demander si la réponse impulsionnelle obtenue est valable. La réponse est affirmative à condition seulement que le traceur soit mesurable en B. En effet on peut montrer (référence 3) que les réponses impulsionnelles entre A (figure 10a) et différents points B, B₁, B₂, ... situés dans un plan Σ perpendiculaire en B à la ligne de courant passant par A sont identiques comme le représente la figure 10c. Sur cette même figure sont représentées des fonctions concentration-temps telles que $C_{AB}(t)$, $C_{AB_1}(t)$, $C_{AB_2}(t)$; ces fonctions sont isochrones et affines. On montre (référence 7) que les coefficients d'affinité sont donnés par une distribution binomiale.

Supposons que nous nous intéressions maintenant à la dispersion transversale et que par une expérience de traceur, l'injection étant réalisée en A et les mesures en B, B₁, B₂,

l'on ait déterminé la fonction $m_1(y)$ (figure 10d) caractérisant le passage de la totalité du traceur à travers le plan Σ₁ :

$$m_1(y_i) = q_i \int_{-\infty}^{+\infty} C_i(t) dt$$

La dispersion dans un plan Σ₂ situé à une distance $n\Delta x$ de A, Δx représentant à nouveau la distance A, Σ₁ sera caractérisée par une fonction $m_2(y)$ telle que

$$m_2(y) = [m_1(y)]^{n*}$$

L'opération de convolution est faite cette fois-ci dans l'espace.

Ces méthodes d'extrapolation sont simples mais ne sont pas souples. La perméabilité restant constante elles ne permettent pas de tenir facilement compte des variations de gradient hydraulique provoquées par exemple par des pompes. On leur préférera alors une méthode de modèle diffusionnel.

2) Méthode des modèles diffusionnels

La distribution des temps de séjour est utilisée pour caler le modèle diffusionnel adopté. La tactique générale est la suivante :

Un premier modèle, dit hydrodynamique, est établi pour décrire le mouvement convectif de l'eau. A ce niveau une méthode de traceur permet de déterminer la porosité efficace comme nous l'avons montré plus haut.

Par ailleurs l'exploitation de la distribution des temps de séjour obtenue entre deux forages tels que A et B (figure 10a) fournit une valeur de la perméabilité, valeur qui est en général plus précise que celle que permet d'acquies une méthode conventionnelle procédant par pompage.

La loi de Darcy peut en effet s'écrire :

$$v_D = K \Delta_i$$

v_D = vitesse de Darcy

K = perméabilité

Δ_i = gradient hydraulique

L'essai de traceur donne la vitesse moyenne effective :

$$\bar{v}_e = \Delta x \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{t} h_{AB}(t) dt$$

et l'on a $\frac{v_D}{v_e} = m_e$, m_e = porosité efficace.

Le modèle diffusionnel est ensuite calé en optimisant le ou les paramètres qui le caractérisent afin que sa réponse impulsionnelle entre A et B s'ajuste au mieux à la réponse expérimentale.

Si le modèle adopté est un modèle filiaire (un seul coefficient de dispersion, le coefficient de dispersion longitudinal), le traitement complet du problème nécessite que l'on fasse l'hypothèse que ce coefficient varie linéairement avec la vitesse. Cette hypothèse paraît tout à fait justifiée par les nombreuses études qui ont porté sur ce sujet.

Ce dernier exemple nous a montré le rôle fondamental joué par les traceurs dans le calage de modèles diffusionnels dont la qualité dépend, cela irait sans le souligner, du nombre d'"échantillons" adopté.

2.2.4. Distribution des temps de séjour et bilan : mesure de débits par dilution de traceur

Nous rappelons le principe des deux méthodes de mesure de débit par dilution de traceur. Dans la méthode d'intégration (figure 1) le traceur est injecté en un point de l'écou-

ment et l'on relève en aval la fonction concentration-temps. L'équation qui dans le bilan du traceur sur le tronçon de mesure exprime la conservation de la masse est :

$$Q = \frac{m}{\int_{-\infty}^{+\infty} C_i(t) dt}$$

Dans la seconde méthode le traceur est injecté pendant un certain temps à débit constant q , à une concentration C . Lorsqu'un régime constant de concentration est atteint dans une section de mesure en aval on détermine la concentration qui caractérise ce plateau de concentration, C_i . La conservation du traceur est exprimée par :

$$Q = \frac{C}{C_i} q$$

Pour simplifier l'exposé nous supposons que dans la méthode d'intégration le traceur est injecté instantanément, ce qui correspond à une pratique courante mais qui n'est pas une condition nécessaire.

Ces équations de bilan ne peuvent être écrites que si le traceur est bien mélangé dans la section de mesure. Les conditions de bon mélange sont :

- pour la méthode d'intégration : $\int_{-\infty}^{+\infty} C_i(t) dt = \text{constante}$, c'est-à-dire indépendante du point de mesure.
- pour la méthode d'injection à débit constant : $C_i = \text{constante}$.

On a longtemps pensé que ces deux méthodes étaient différentes (cf. colloque AIEA, Tokyo 1960) et l'on ne savait pas si l'une de ces conditions était plus "dure" que l'autre, en d'autres termes si la "longueur de bon mélange", définie en la section d'injection et de mesure, était plus importante dans l'une des méthodes par rapport à celle de l'autre méthode.

Or ces deux méthodes sont de même essence car l'on peut (le système étant linéaire) considérer qu'une injection instantanée est une partie d'une injection continue.

On a en effet, $h(t)$ étant la distribution des temps de séjour :

$$h(t) = \frac{C_i}{\int_{-\infty}^{+\infty} C_i(t) dt} \dots \dots \dots \text{(première méthode)}$$

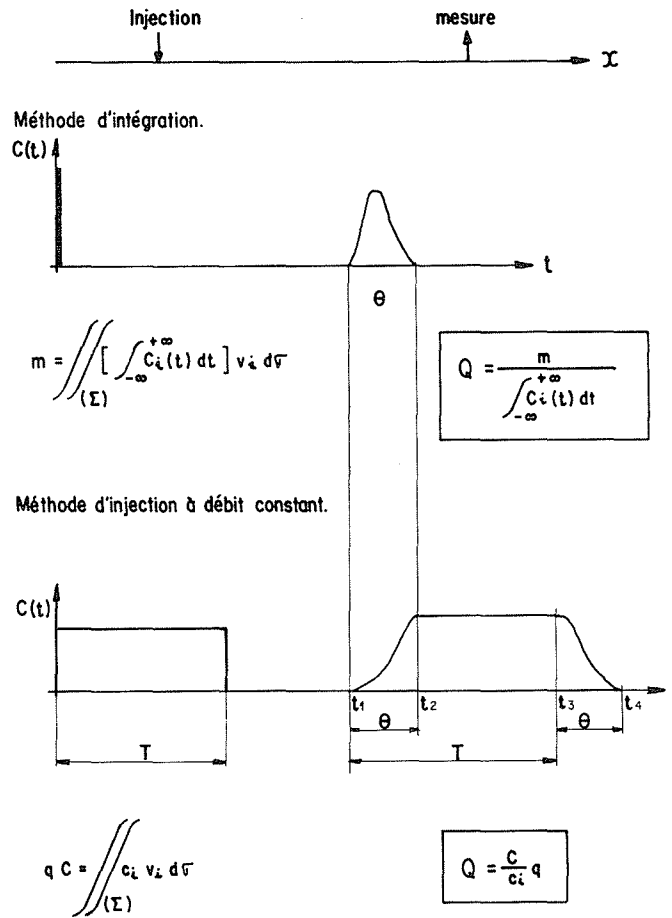
et $Q C_i(t) = Cq * h(t) \dots \dots \dots$ deuxième méthode).

Les longueurs de bon mélange sont donc identiques. Ce mode d'analyse a permis par ailleurs d'établir les relations temporelles qui sont représentées à la figure 11 ; notamment, les régimes transitoires de concentration dans la seconde méthode ont une durée θ , égale à celle de la distribution des temps de séjour, et le régime variable de concentration entre t_1 et t_2 est défini par l'intégrale de la distribution des temps de séjour.

3. Méthode statistique et méthode des fonctions de transfert ; généralisation de la notion de traceur

Nous avons vu comment en exploitant les informations fournies par un traceur artificiel ou naturel on pouvait obtenir des informations sur un écoulement de matière.

Le traceur est dans ce cas un élément matériel. On peut considérer, par exemple, que le rayonnement infrarouge



11/ Mesures de débit par dilution de traceurs

émis par un char de combat, qui permet d'en suivre le mouvement est un traceur. On a pu marquer des fluides à l'aide de résistances chauffantes et mettre en évidence l'évolution de "l'onde" de chaleur à l'aide de thermistance. Admettre comme traceur une propriété physique associée à un écoulement paraît être un point de vue plein de promesses. Nous citerons, comme exemple, une étude réalisée en collaboration avec l'Institut de Mécanique de Fluides de Toulouse et qui fait l'objet d'une thèse de M. Santos-Cottin de notre laboratoire.

Dans une étude de transfert hydraulique de matières solides en conduite (figure 12) on désire obtenir la réponse impulsionnelle de la phase solide.

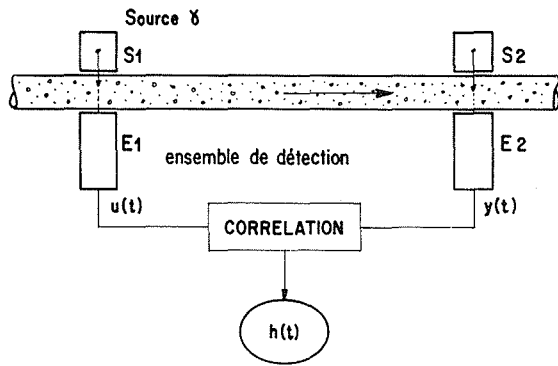
A cette fin on utilise deux jauges de densité à rayonnement γ , sur deux sections de l'écoulement. Chaque jauge exploite les variations d'absorption du rayonnement γ émis par une source radioactive qui sont induites par les variations naturelles de densité du milieu.

Si l'écoulement a "gardé en mémoire" dans la section aval de mesure les hétérogénéités de densité mises en évidence dans la section de mesure amont, une méthode statistique impliquant des fonctions de corrélation fournit la réponse impulsionnelle cherchée.

Soit en effet $u(t)$ et $y(t)$ les fonctions relevées dans les deux sections de mesures à l'aide des jauges de densité.

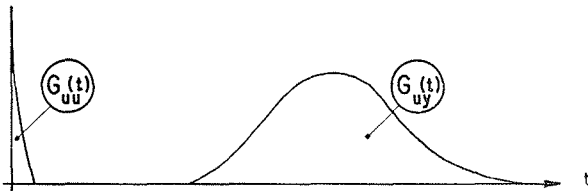
La fonction d'intercorrélation, $G_{uy}(t, \tau)$, entre ces deux fonctions est définie par :

$$G_{uy}(t, \tau) = \frac{1}{T} \int_0^T u(t) \cdot y(t - \tau) dt$$



$$G_{uy}(\tau, T) = \frac{1}{T} \int_0^T u(t) \cdot y(t - \tau) dt$$

$$G_{uy}(\tau) = G_{uu}(\tau) * h(t)$$



12/ Identification d'un processus de transfert de matière par corrélation.

Si l'on remplace $y(t)$ par $u(t)$, on définit de même la fonction d'autocorrélation $G_{uu}(t, \tau)$

Entre ces fonctions de corrélation et la réponse impulsionnelle existe la relation suivante :

$$G_{uy}(\tau) = G_{uu}(\tau) * h(t)$$

Dans le cas de l'étude citée, la fonction d'autocorrélation avait une durée assez brève (figure 12) pour que l'on puisse admettre que la fonction d'intercorrélation entrée-sortie donne directement la réponse impulsionnelle.

On a pu vérifier l'identité entre la réponse impulsionnelle ainsi obtenue et celle qui donnait une méthode de marquage de la phase solide par traceur radioactif.

Références

- [1] LEVENSPEL (O.) – *Chemical reaction engineering*, John Wiley and Sons, London 1962.
- [2] LIFERMANN (J.) – *Systèmes linéaires, variables d'état*, Masson et Cie, Paris 1972.
- [3] GUIZERIX (J.) et al. – "Analyse des informations fournies par les traceurs naturels et artificiels dans l'étude des aquifères en hydrogéologie". *Isotope technique in ground water hydrology 1974*. (C.R. Coll. Vienne 1974), AIEA, Vienne 1974, Vol II, 377, 403.
- [4] GUIZERIX (J.) et al. – "Contribution à la mesure de débits en régime variable par une méthode de dilution de traceur radioactif" *Isotope hydrology 1970*. (C.R. Coll. Vienne 1970), AIEA, Vienne 1970, 441, 459.
- [5] GAILLARD (B.) – Thèse Université scientifique et médicale de Grenoble (25 Juin 1976) "Méthode de traceur pour la détermination des paramètres de transfert de substances polluantes en solution dans l'eau des aquifères – Contribution à la délimitation des périmètres de protection des captages d'eau d'alimentation publique"
- [6] MERCADO (A.) – "Determining the average porosity and permeability of a stratified aquifer with the aid of radioactive tracers, *Water Resour. Res.* 2 (1966) 525.
- [7] ZUBER (A.) – "Theoretical possibilities of the two well pulse method" *Isotope techniques in ground water hydrology 1974* (C.R. Coll. Vienne 1974), AIEA, Vienne 1974, vol II, 277, 294.
- [8] COROMPT (P.) – "Méthode pour la détermination de caractéristiques de transfert de substances polluantes dans les nappes aquifères" *Isotope techniques in ground water hydrology 1974* (C.R. Coll. Vienne 1974), AIEA, Vienne 1974, Vol II, 405, 421.

Discussion

Président : M. Pierre LEVEQUE

"Je vous remercie, dit M. Le Président, de cet exposé en quelque sorte magistral puisque vous avez rappelé avec clarté le principe des différentes méthodes qui seront traitées plus en détail au cours de cette Session. A propos des questions de débit, vous avez dit que la réponse impulsionnelle est la même en tous les points ; comment se fait-il que cette réponse ne soit pas influencée par les réactions de paroi ?"

M. GUIZERIX répond en ces termes :

"La propriété d'identité des réponses impulsionnelles ne manque pas, en effet, d'étonner au premier abord. La première fois que nous avons pu la mettre en évidence était en 1965 lors d'expériences que nous avons réalisées sur l'Isère en amont de Grenoble. A 4 kilomètres du point d'injection d'un traceur, nous relevions dans un coude les fonctions concentration-temps avec des points proches de la rive concave et convexe où les vitesses étaient respectivement voisines de 0,2 m/s et de 2,5 m/s. Nous avons obtenu des fonctions identiques. Depuis, nous avons

renouvelé cette expérience de nombreuses fois et avons pu, en 1974, asseoir cette propriété par une démonstration impliquant un processus de MARKOV. Je développerai cette question demain au cours de l'exposé sur la méthode d'ALLEN.

"A la réflexion, cette propriété n'est pas tellement étonnante. En effet, la molécule d'eau qui se trouve dans une section, dans un filet à grand vitesse, se trouvait peut-être 100 mètres en amont dans un filet à très faible vitesse, puis en amont dans une zone à vitesse moyenne, etc. Si dans une section il y a identité des réponses impulsionnelles, cela montre qu'à la distance correspondante le traceur a, depuis son injection, bien "échantillonné" l'écoulement, qu'il a "oublié" en quel point de la section d'entrée il a été introduit.

En l'absence d'autre intervention, M. Le Président clôt la discussion et donne la parole à M. MOLINARI pour l'exposé de sa Communication.