



Département : Génie Chimique
Centre de Recherche Nucléaire d'Alger
Mémoire de Projet de Fin d'Etudes
Pour l'obtention du diplôme d'Ingénieur d'Etat en Génie Chimique

Effet du débit d'alimentation sur l'hydrodynamique d'une colonne

Naila Bouchra BOUCHELIT, Amina AMHIS

Sous la direction de : Mme Louiza BOUNEMIA

Chercheur principal au CRNA

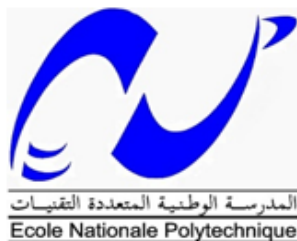
Mr Ammar SELATNIA

Professeur

Présenté et soutenu publiquement le (07/07/2021)

Composition du Jury :

Président	Mr El-Hadi BENYOUSSEF	Pr	ENP
Promotrice	Mme Louiza BOUNEMIA	Chercheur principal	CRNA
Promoteur	Mr Ammar SELATNIA	Pr	ENP
Examinatrice	Mme Yamina TCHOULAK	MAA	ENP
Examinatrice	Mme Souad TOUAZI	MCB	ENP
Invité	Mr Azzedine ARABI	Ingénieur	CRNA



Département : Génie Chimique
Centre de Recherches Nucléaire d'Alger
Mémoire de Projet de Fin d'Etudes
Pour l'obtention du diplôme d'Ingénieur d'Etat en Génie Chimique

Effet du débit d'alimentation sur l'hydrodynamique d'une colonne

Naila Bouchra BOUCHELIT, Amina AMHIS

Sous la direction de : Mme Louiza BOUNEMIA

Maitre de conférences B

Mr Ammar SELATNIA

Professeur

Présenté et soutenu publiquement le (07/07/2021)

Composition du Jury :

Président	Mr El-Hadi BENYOUSSEF	Pr	ENP
Promotrice	Mme Louiza BOUNEMIA	MCB	CRNA
Promoteur	Mr Ammar SELATNIA	Pr	ENP
Examinatrices	Mme Yamina TCHOULAK	MAA	ENP
	Mme Souad TOUAZI	MCB	ENP

Dédicaces

*A la mémoire de ma chère tante **SALIHA***

*A la plus belle créature de dieu, à la source de tendresse et de générosité.... A ma chère mère
ZINEB*

Quoi que je fasse ou que je dise, je ne saurais point te remercier. Ton affection me couvre, ta bienveillance me guide et ta présence à mes côtés a toujours été ma source de force. Je te dédie ce travail en témoignage de mon profond amour. Puisse Dieu, le tout puissant, te préserver et t'accorder santé, bonheur et longue vie.

*A mon très cher père **DAHMANE***

Tu as toujours été à mes côtés pour me soutenir et m'encourager, ton amour a fait de moi ce que je suis aujourd'hui. Les mots ne suffisent guère pour exprimer l'attachement, l'amour et l'affection que je porte pour toi.

*A mon adorable sœur **AMIRA***

Tu représentes pour moi le symbole de la bonté par excellence, l'exemple du dévouement. Toi ma grande sœur qui m'a toujours encouragée et veillée sur moi. Que ce travail soit le meilleur cadeau que je puisse t'offrir.

*A mes deux adorables petites nièces **SALSABIL & RACHA***

Que dieu vous protègent je vous aime énormément...

*A mon cher frère **OTHMANE** et mon cher beau-frère **KARIM***

Je vous souhaite une vie pleine de joie, de bonheur, de réussite et de sérénité. Je vous exprime, à travers ce travail, mes sentiments de fraternité et d'amour.

*A ma très chère tante **FATIMA ZOHRA***

Je voudrais t'adresser toute ma gratitude pour ton soutien, ton aide et tes précieux conseils durant toute cette période.

*Sans oublier mon binôme **AMINA** qui a accompli avec moi ce travail dans une ambiance très agréable et mémorable.*

Naila

Dédicaces

Je dédie ce modeste travail accompagné d'un profond amour à :

*Ma très chère **Maman**,*

Mon bras droit, tu as œuvré pour ma réussite, par ton amour, ton soutien, tous les sacrifices consentis et tes précieux conseils, pour toute ton assistance et ta présence dans ma vie, reçois à travers ce travail, l'expression de mes sentiments et de mon éternelle gratitude.

*La mémoire de mon très cher **Papa**,*

Tu as disparu trop tôt, puisse dieu, le tout puissant, t'avoir en sa sainte miséricorde. Espérant que tu apprécies cet humble geste comme preuve de reconnaissance de la part de ta fille qui a toujours prié pour le salut de ton âme.

*La mémoire de ma grand-mère **Setti Adidi**,*

Tu restes toujours et à jamais dans mon cœur. Que dieux t'accueille dans son vaste paradis.

*Mon petit **Nounou**, ma sœur que j'aime énormément.*

Tu es la source de mon bonheur et mon soutien moral, merci d'être dans ma vie.

*Mon cher frère **Khalef** qui n'a jamais cessé de m'aider, et à son épouse **Foufa**.*

Mes grands frères que je respecte beaucoup :

Kamel, Rendiya, Ferroudja, Farida.

Mes très chers neveux :

Smail, Ghani, Tiziri, Tanina, Hasna, Rabia.

*Toute la famille **AMHIS** et la famille **BENBRAHIM**.*

*Ma chère binôme **Naila** avec laquelle j'ai passé des moments agréables au long de ce travail.*

Mes camarades de promotion 2021.

Amina

Remerciements

Nous remercions tout d'abord le bon dieu, de nous avoir donné la force et la puissance d'accomplir ce modeste travail.

Nous tenons à remercier sincèrement le professeur *SELATNIA Ammar*. Il s'est toujours montré à l'écoute et très disponible tout au long de la réalisation de ce projet, ainsi pour l'inspiration, l'aide et le temps qu'il nous a consacré.

Nous adressons nos sincères remerciements à notre promotrice Mme *BOUNEMIA Louiza*, pour sa grande disponibilité, ses compétences technique et scientifique, sa patience et son soutien permanent qui nous ont permis de mener à bien notre étude.

Nos remerciements s'adressent au professeur *BENYOUSSEF El-Hadi* qui nous a fait l'honneur d'accepter la présidence de ce jury.

Que Mme *TCHOULAK Yamina* et Mme *TOUAZI Souad* reçoivent ici l'expression de tous nos remerciements pour s'être intéressées à ce travail et pour avoir accepté la tâche d'examinatrices.

Ce travail a été réalisé au niveau du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, nous tenons à faire part de notre profonde reconnaissance à tout le personnel de la division « Application des techniques nucléaires » pour avoir mis à notre disposition un environnement dynamique et agréable. Nous tenons à remercier particulièrement quatre personnes très importantes pour nous : Mr *DAMASHE Smail*, Mme *BELARBI Fadèla*, Mr *SAAD Madjid* et Mr *ARABI Azeddine*.

Nous ne saurions oublier l'ensemble des enseignants du département de génie chimique, qui ont contribué à notre formation avec compétence et dévouement.

Pour finir, nous aimerions remercier tous ceux qui nous ont aidés et soutenus de près ou de loin, et nous nous excusons auprès des personnes que nous avons pu oublier.

Naila & Amina

تمثل المفاعلات قلب العمليات الصناعية، وبالتالي فإن المعرفة الدقيقة لديناميكية تدفق المواد في هذه المفاعلات الصناعية ضرورية من أجل تقييم أداءهم. العديد من الاعدادات تستخدم لوصف هيدروديناميكية المفاعلات مباشرة عن طريق قياسات توزيع أوقات الإقامة: متوسط زمن الإقامة، التباين، عدد البيكليت، معمل التشتت المحوري، وبما أن التدفق مرتبط بهذه الاعدادات فيمكن أن تكون له تأثيرات كبيرة على قياسات توزيع أوقات الإقامة وبالتالي على هيدروديناميكية المفاعلات الصناعية. وفي هذه الدراسة، تم تقييم قياسات توزيع أوقات الإقامة، بمختلف معدلات التدفق، في عمود مشابه لمفاعل صناعي على السلم المخبري، باستخدام التكنيشيوم-99م كمادة مشعة. حيث تم حقن التكنيشيوم 99م بطريقة فورية في مدخل النظام، وتم وضع أربع كواشف مشعة في مواضع مختلفة لمتابعة تطور المادة المشعة، وكذلك للتحقق من التدفق المتداول بواسطة طريقة العبور، ثم تحليل الأطياف التي تم الحصول عليها لاستنتاج أقصى قدر من المعلومات حول تشغيل النظام بقيم التدفق المختلفة. وبالتالي تقييم أثره على المركب المدروس، والذي يعتبر الهدف الرئيسي لهذا العمل، وتمت النمذجة باستخدام برنامج DTS Pro V4.2

الكلمات الدالة: توزيع وقت الإقامة، الديناميكا المائية، المقنفي الإشعاعي، التكنيتيوم-99م، النمذجة، المفاعلات المثالية، برنامج DTSPRO V4.2

Abstract

Reactors represent the heart of industrial installations; therefore, the precise knowledge of the flow dynamics of the material flows in industrial reactors remains necessary to evaluate their performance. Several parameters used for the hydrodynamic characterization of reactors can be obtained directly by measurements of the residence time distribution (RTD): mean residence time, variance, Peclet number, axial dispersion coefficient. The flow rate, being related to these parameters can have significant effects on these RTD measurements and consequently on the hydrodynamics of industrial reactors. In the present study, evaluations of the RTD, at different feed flow rates, were performed in a laboratory scale flow rig column -assimilated to an industrial reactor-, using Technetium-99m as radiotracer. Technetium-99m was injected instantaneously at the inlet of the system, Four NaI scintillation detectors were placed at different positions to follow the evolution of the radioactive material and to verify by the transit time method the flow rate. The spectra obtained have been analyzed to get the maximum information about what happens in the system at different values of the flow rates, and consequently to evaluate its effect on the installation studied which is the main objective of this work. In order to analyze better the hydrodynamic behavior of this column, the measured RTDs were modelled using a DTSPRO V4.2 software.

Key words : Residence time distribution, hydrodynamics, radiotracer, Technetium-99m, modeling, ideal reactors, DTSPRO V4.2 software.

Résumé

Les réacteurs représentent le cœur des processus industriels, de ce fait, la connaissance précise de la dynamique d'écoulement des flux de matière dans les réacteurs industriels demeure nécessaire pour évaluer leur performance. Plusieurs paramètres servant à la caractérisation de l'hydrodynamique des réacteurs peuvent être obtenus directement par des mesures de la distribution des temps de séjour (DTS) : temps de séjour moyen, variance, nombre de Péclet, coefficient de dispersion axiale. Le débit, étant lié à ces paramètres peut avoir des effets non négligeables sur ces mesures de DTS et par conséquent sur l'hydrodynamique des réacteurs industriels. Dans la présente étude, des évaluations de la DTS, à différents débits d'alimentation, ont été effectuées dans une colonne de flow rig à échelle de laboratoire assimilée à un réacteur industriel, en utilisant le Technétium-99m comme radiotracteur. Le Technétium-99m a été injecté de manière instantanée à l'entrée du système, quatre détecteurs à scintillation NaI ont été placés à différentes positions pour suivre l'évolution de la matière radioactive et pour vérifier par la méthode du temps de transit le débit d'écoulement. Les spectres obtenus ont été analysés pour tirer le maximum d'informations sur le fonctionnement de notre système à différentes valeurs du débit, et par conséquent évaluer son effet sur l'installation étudié qui est l'objectif principal de ce présent travail. Une modélisation du comportement hydrodynamique de la colonne a été réalisée à l'aide du logiciel DTSPRO V4.2.

Mots clés : Distribution des temps de séjours, hydrodynamique, radiotracteur, Technétium-99m, modélisation, réacteurs idéaux, DTS Pro V4.2

TABLE DES MATIERES

LISTE DES TABLEAUX

LISTE DE FIGURES

LISTE DES SIGLES

LISTE DES ABREVIATIONS

INTRODUCTION GENERALE.....	17
Partie 1 : Revue bibliographique.....	19
Chapitre 1 :	20
1.1. Définition d'un réacteur	21
1.2. Classification des réacteurs	21
1.2.1. Réacteurs idéaux	21
1.2.2. Déviations de l'idéalité.....	23
1.3. Distribution des temps de séjour	26
1.3.1. Définition	26
1.3.2. Notions d'âges, d'espérances de vie et du temps de séjour	26
1.3.3. Temps de passage.....	27
1.3.4. Fonction de distribution des temps de séjour	27
1.3.5. Propriétés de la fonction de distribution des temps de séjour	28
1.3.6. Fonction de distribution des âges internes, $I(t)$ et fonction d'intensité, $\Lambda(t)$	29
1.4. Détermination expérimentale de la distribution des temps de séjour.....	30
1.4.1. Principe.....	30
1.5. Types d'injection.....	32
1.5.1. Injection impulsion.....	32
1.5.2. Injection échelon	32
1.6. Fonctions de distribution des divers types d'écoulement.....	34
1.6.1. Ecoulement d'un mélange parfait	34
1.6.2. Ecoulement piston	34
1.6.3. Ecoulement quelconque	34
1.7. Diagnostic du mauvais fonctionnement	36
1.7.1. Court-circuit	36
1.7.2. Volume mort	37
1.8. Modélisation des écoulements non-idéaux	38
1.8.1. Modèle piston à dispersion axiale	38
1.8.2. Modèle des réacteurs parfaitement agités en cascade	39

TABLE DES MATIERES

1.8.3. Modèles à plusieurs paramètres	40
Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur	42
2.1. Structure de l'atome	43
2.2. Systématique des noyaux	44
2.2.1. Noyaux stables	44
2.2.2. Noyaux instables	44
2.3. Radioactivité.....	46
2.3.1. Découverte et définition	46
2.3.2. Unités de mesure et activité	46
2.3.3. Période radioactive	47
2.4. Rayonnement.....	48
2.4.1. Définition	48
2.4.2. Types de rayonnement	48
2.4.3. Pouvoir de pénétration des rayonnements ionisants	51
2.5. Traceurs radioactifs	53
2.5.1. Définitions	53
2.5.2. Classification des radiotraceurs.....	53
2.5.3. Caractéristiques et critères de choix d'un radiotraceur	55
2.5.4. Radiotraceurs potentiels	56
2.5.5. Technétium ^{99m}Tc	57
2.6. Radioprotection	59
2.6.1. Définition de l'irradiation et de la contamination.	59
2.6.2. Dose absorbée, équivalente et efficace	59
2.6.3. Modes d'exposition aux rayonnements ionisants.....	60
2.6.4. Principes fondamentaux de la radioprotection	60
2.6.5. Protection contre l'exposition externe et interne.....	61
2.6.6. Gestion des effluents radioactifs liquides.....	62
2.7. Applications industrielles des radiotraceurs et travaux antérieurs	63
2.7.1. Mesure du débit d'écoulement	63
2.7.2. Diagnostic et analyse des processus par la DTS	64
Partie 2 : Expérimentation.....	67
Chapitre 3 : Matériel et méthode.....	68
3.1. Dispositif expérimental	69

TABLE DES MATIERES

3.2. Radiotraceur utilisé et injection.....	71
3.3. Chaîne d'acquisition.....	72
3.3.1. Détecteurs à scintillation NaI	73
3.3.2. Système d'acquisition (GDP : Gauging and Data Processing unit).....	74
3.3.3. Ordinateur.....	74
3.4. Traitement de spectres.....	75
3.4.1. Correction du bruit de fond	75
3.4.2. Correction de la radioactivité	75
3.4.3. Correction du point de départ.....	76
3.4.4. Lissage des courbes.....	76
3.4.5. Extrapolation des données.....	76
3.4.6. Normalisation des données expérimentales	76
3.5. Logiciel DTSPro V.4.....	77
3.5.1. Objectif.....	77
3.5.2. Description	77
3.5.3. Simulation d'un modèle	79
3.6. Aspects radioprotection.....	84
Chapitre 4 : Résultats et discussion.....	88
4.1. Conditions expérimentales et analyse de l'injection du radiotraceur.....	89
4.2. Vérification du débit d'alimentation	91
4.3. Caractérisation hydrodynamique de la colonne et effet du débit	94
4.3.1. Traitement de spectres.....	95
4.3.2. Analyse des données de DTS	100
4.4. Modélisation de la colonne par DTSPro	103
4.4.1. Modélisation pour un débit de 4 L/min.....	103
4.4.2. Modélisation pour un débit de 12 L/min.....	104
4.4.3. Modélisation pour un débit de 20 L/min.....	105
4.4.4. Modélisation pour un débit de 20 L/min avec agitation.....	107
4.5. Analyse des erreurs	112
CONCLUSION GENERALE.....	113
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	115

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1. Exemples des techniques de traçage classique.....	30
Tableau 1.2. Réponse des systèmes à différents signaux d'entrée.....	35
Tableau 1.3. DTS des modèles de réacteur piston à dispersion axiale	39
Tableau 2.1. Radiotraceurs utilisés dans l'industrie.....	56
Tableau 2.2. Propriétés générales du Technétium	57
Tableau 2.3. Limites de doses en mSv pour 12 mois consécutif	60
Tableau 3.1. Caractéristiques des détecteurs à scintillation NaI.....	73
Tableau 3.2. Paramètre des réacteurs élémentaires.....	81
Tableau 4.1. Paramètres opératoires des expériences.	89
Tableau 4.2. Résultats de calculs du débit par la méthode du temps de transit	93
Tableau 4.3. Valeurs de bruit de fond enregistrées avant chaque expérience.....	95
Tableau 4.4. Fonctions utilisées pour l'extrapolation.	96
Tableau 4.5. Paramètres hydrodynamiques de la colonne.	101
Tableau 4.6. Récapitulatif des résultats de la modélisation de comportement hydrodynamique de la colonne pour les différents cas d'étude.	110

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1. Réacteur fermé	22
Figure 1.2. Réacteur continu parfaitement agité.	22
Figure 1.3. Réacteur piston.....	22
Figure 1.4. Dysfonctionnements dans un RCPA.....	23
Figure 1.5. Dysfonctionnements dans un RP : (a). Mélange dans la direction radiale,(b). Mélange dans la direction longitudinale	24
Figure 1.6. Deux états extrêmes du micromélange d'un fluide : (a). Ségrégation totale, (b). Mélange maximum.....	24
Figure 1.7. Exemple sur la précocité et le retard du mélange.	25
Figure 1.8. Fonction de distribution du temps de séjour.	27
Figure 1.9. Variance de la fonction de DTS.....	28
Figure 1.10. Schéma pour la mesure de la DTS.....	31
Figure 1.11. (a). Injection impulsion (b). Injection échelon.....	33
Figure 1.12. Défauts d'écoulement dans un système quelconque.	37
Figure 1.13. Représentation de la dispersion axiale.....	38
Figure 1.14. Représentation du modèle N réacteurs parfaitement mélangés en série.....	40
Figure 1.15. Modèles à plusieurs paramètres : (a) Cholette et Cloutier, (b) Adler et Hovorka (c) Ecoulement piston avec recyclage (d) mélangeurs parfaits en série avec recyclage (e) mélangeurs parfaits en série avec échange.....	41
Figure 2.1. Hiérarchie structurale dans un atome.....	43
Figure 2.2. Répartition des atomes stables et radioactifs en fonction de Z et de N	45
Figure 2.3. Désintégration alpha.	49
Figure 2.4. Processus de désintégration bêta (plus et moins).....	50
Figure 2.5. Pouvoir de pénétration des particules alpha, bêta et des rayons gamma.	52
Figure 2.6. Principe du générateur de radio-isotopes.....	54
Figure 2.7. Schéma de décroissance du couple $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$	58
Figure 2.8. Mesure du débit par la méthode du temps de transit.	64
Figure 3.1. Photographie du dispositif expérimental.	70
Figure 3.2. Matériel et produits utilisés : (a) Château de plomb (b) flacon de Technétium-99m (c) Plateau (d) Conteneur en plomb (e) Seringues (f) Malle de stockage en plomb.....	71
Figure 3.3. Schéma globale de l'installation.	72
Figure 3.4. Détecteurs à scintillation NaI.....	73
Figure 3.5. Collimateurs en plomb.....	73
Figure 3.6. Système d'acquisition et câbles coaxiaux.....	74

LISTE DES FIGURES

Figure 3.7. Schéma d'un modèle sur le logiciel DTSPro.....	78
Figure 3.8. Fenêtres principales du logiciel DTSPro	79
Figure 3.9. Fenêtre modèle de projet.....	80
Figure 3.10. Paramétrage des modules et des branches	81
Figure 3.11. Paramètres de simulation	82
Figure 3.12. Tableau des données expérimentales	83
Figure 3.13. Visualisation des résultats sous forme de courbe.	83
Figure 3.14. Tenue de protection individuelle : (1) Combinaison (2) Sur-chaussures (3) Lunettes protectrices (4) Masque (5) Gants jetables.....	85
Figure 3.15. Dosimètres : (a) dosimètre passif (b) dosimètres actifs	86
Figure 3.16. Personal Radiation Detector (RadEYE PRD).....	86
Figure 3.17. Appareils de mesure de la radioactivité dans l'air ambiant : (a) RADIAGEM (b) appareil de contrôle de contamination surfacique.....	87
Figure 3.18. Poubelle en aluminium spécifique	87
Figure 4.1. Réponses du détecteur (D1) aux injections et pour différents débits.....	90
Figure 4.2. Principe de la méthode du temps de transit.	91
Figure 4.3. Réponses des détecteurs (D2) et (D3) pour un débit de 20 L/min.....	92
Figure 4.4. Réponses des détecteurs (D2) et (D3) pour un débit de 20 L/min (répété)	92
Figure 4.5. Représentation graphique de la deuxième injection.	93
Figure 4.6. Distribution du radiotraceur dans les flux de sortie pour des débits de 4L/min, 12L/min et 20 L/min respectivement.	94
Figure 4.7. Exemple de données récoltées par le détecteur 4 pour un débit de 4L/min. (a) nombre de coups récoltés en (cps) (b) intervalle de temps en (ms).	95
Figure 4.8. Traitement de spectre pour un débit de 4 L/min.	97
Figure 4.9. Traitement de spectre pour un débit de 12 L/min.	98
Figure 4.10. Traitement de spectre pour un débit de 20 L/min... ..	99
Figure 4.11. Courbe de la fonction intensité (Q=20L/min).....	101
Figure 4.12. Modèle décrivant le comportement de la colonne à un débit de 4 L/min.....	103
Figure 4.13. Résultats de la modélisation à un débit de 4 L/min	104
Figure 4.14. Modèle décrivant le comportement de la colonne à un débit de 12 L/min.....	104
Figure 4.15. Comparaison des deux courbes, expérimentale et celle du modèle à un débit de 12 L/min.	105
Figure 4.16. Modèle représentant le comportement de la colonne à un débit de 20 L/min sans agitation.....	105

LISTE DES FIGURES

Figure 4.17. Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats de la modélisation à un débit de 20 L/min sans agitation.	106
Figure 4.18. Distribution du radiotraceur dans les flux de sortie pour un débit de 20 L/min et une agitation de 127 tr/min.....	107
Figure 4.19. Traitement de spectre pour un débit de 20 L/min avec agitation.....	108
Figure 4.20. Modèle de comportement de la colonne à un débit de 20 L/min avec agitation.	109
Figure 4.21. Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats de la modélisation à un débit de 20 L/min avec agitation	109
Figure 4.22. Ecoulement du colorant en présence d'agitation	111
Figure 4.23. Ecoulement du colorant en absence d'agitation.....	112

LISTE DES SIGLES

Symboles	Significations	Unités
Lettres latines		
A	Nombre de masse	-
A(t)	Activité à l'instant t	Bq
A ₀	Activité à l'instant initial	Bq
B _r	Valeur du bruit de fond	cps
C(t)	Concentration de traceur à l'instant t	mole.m ⁻³
C ₀	Concentration de traceur à l'injection	mole.m ⁻³
d	Distance entre les deux points de mesure	m
D	Diamètre interne de la canalisation	m
D _{ax}	Coefficient de dispersion axiale	m ² . s ⁻¹
E(t)	Fonction de distribution des temps de séjour	s ⁻¹
F(t)	Distribution cumulative	-
I	L'intensité résiduelle après avoir traversé une distance x	-
I(t)	Fonction de distribution des âges internes	s ⁻¹
I ₀	Intensité initiale	-
L	Longueur du réacteur	m
n(t)	Nombre de coups mesuré	cps
n _B (t)	Nombre de coups après correction du bruit de fond	cps
n _c (t)	Nombre de coups corrigé	cps
n _c (t _i)	Nombre de coups corrigé au temps i	cps
n _E (t)	Données après extrapolation	cps
n _L (t)	Données obtenues après lissage	cps
n _p (t)	Données après la correction de point de départ	cps
n _r (t)	Nombre de coups après correction de la radioactivité	cps
N	Nombre des RCPA en cascade	-
N	Nombre de neutrons	-
Pe	Nombre de Péclet	-
Q	Débit volumique à l'entrée du réacteur	m ³ . s ⁻¹
Q _a	Débit correspondant au \bar{t}_s	m ³ . s ⁻¹
Q _c	Débit de court-circuit	m ³ . s ⁻¹
S	Section de la canalisation	m ²
t	Temps	s
t _{1/2}	Période radioactive ou demi-vie	s
t _{inj}	Temps d'injection	s
t _m	Constante du temps d'échange d'un volume mort	s
τ _n	Temps de passage dans chaque réacteur	s
t _r	Temps de transit	s
\bar{t}_s	Temps de séjour moyen	s
U	Vitesse d'écoulement	m.s ⁻¹
V _a	Volume accessible au fluide	m ³
V _{inj}	Volume injecté	m ³
V _m	Volume mort	m ³
V _R	Volume géométrique du réacteur	m ³
x	Epaisseur	m
Z	Numéro atomique	-

LISTE DES SIGLES

Lettres grecques		
α	Fraction de court-circuit	-
$\Lambda(t)$	Fonction d'intensité	s
β	Fraction de volume mort	-
Δt	Temps d'échantillonnage	s
λ	Espérance de vie	s
λ	Constante de désintégration radioactive	s ⁻¹
μ_{eff}	Coefficient d'absorption massique effective	Kg.m ²
μ_n	Moment simple autour de l'origine	-
ρ	Densité de la matière	Kg.m ⁻³
σ	L'écart type	s
σ^2	La variance	s ²
τ	Temps de passage	s

LISTE DES ABREVIATIONS

Abréviations	Significations
AIEA	Agence Internationale de l'Energie Atomique
ALARA	As Low As Reasonably Achievable
CRNA	Centre de Recherche Nucléaire d'Alger
DTS	Distribution des Temps de Séjour
EPI	Equipements de Protection Individuelle
FM	Flow Measurement
GDP	Gauging and Data Processing unit
NaI	Iodure de sodium
RCPA	Réacteur Continu Parfaitement Agité
RF	Réacteur Fermé
RP	Réacteur Piston
TDS	Temps, Distance et Blindage

INTRODUCTION GENERALE

Les réacteurs chimiques occupent une place centrale dans l'industrie, ils assurent la mise en œuvre des transformations chimiques. Ces réacteurs industriels sont conçus de manière à se comporter comme des réacteurs parfaits (RP ou RCPA). Cependant, les schémas d'écoulement observés dans la pratique s'écartent souvent des schémas idéaux. Ces déviations de l'idéalité sont dues à la présence d'une ou plusieurs anomalies au sein des réacteurs (court-circuit, zones stagnantes, etc.). Ces dysfonctionnements peuvent entraîner une détérioration significative de la qualité du produit et une diminution de l'efficacité du processus, ce qui peut provoquer des pertes économiques importantes pour l'industrie. (Datta et al, 2019)

Une mesure de la distribution des temps de séjour constitue l'une des méthodes de caractérisation hydrodynamique les plus informatives, permettant l'identification des éventuelles irrégularités présentes dans une installation. La détermination de la DTS est réalisée expérimentalement par 'la méthode des traceurs'. Traditionnellement des traceurs stables sont utilisés : colorants (changement de couleurs), produits chimiques (changement de concentration), sels (changement de conductivité). Or, ces traceurs conventionnels ne peuvent être utilisés qu'à échelle de laboratoire, en raison de leurs nombreux inconvénients. Par exemple, ces traceurs ne permettent pas la détection en ligne, les échantillons doivent généralement être analysés hors site, ce qui demande du temps et des frais supplémentaires. De plus dans certains cas il n'est pas possible de prélever les échantillons manuellement dans un système à haute température/pression (Sheoran et al, 2018).

Les radiotraceurs sont les substances les plus communément utilisées pour la détermination de la DTS dans une installation industrielle. Les radiotraceurs présentent divers avantages par rapport aux traceurs conventionnels, tels qu'une sensibilité de détection élevée pour des concentrations extrêmement faibles et la possibilité de détection en ligne en fournissant des informations dans les plus brefs délais (Sheoran et al, 2018).

Les réacteurs industriels sont généralement des réacteurs où la matière entre et sort en permanence, ces échanges de matière avec l'extérieur sont quantifiés en termes de débit. La connaissance du débit d'alimentation est d'une importance fondamentale pour le bon fonctionnement des réacteurs, leurs rendements et leurs comportements hydrodynamiques en sont profondément dépendants, par conséquent il est indispensable d'étudier l'effet du débit sur l'hydrodynamique globale pour l'ajustement et l'optimisation des conditions de fonctionnement des réacteurs (Miroslav, 2020).

La détermination de la DTS par radiotraceur a fait l'objet de nombreux travaux de recherche, et est devenue un outil d'analyse des unités industrielles largement appliquée pour optimiser les processus, résoudre les problèmes, améliorer la qualité des produits, étudier l'influence des paramètres opératoires (agitations, débit...).

Le travail de recherche présenté dans ce document a pour objectif l'étude de l'influence du débit d'alimentation sur le comportement hydrodynamique d'une colonne de flow rig en effectuant des mesures de DTS par traçage radioactif. Ce document est scindé en deux parties:

INTRODUCTION GENERALE

Une première partie, consacrée à l'étude bibliographique, qui traite les thèmes suivants :

- Caractérisation hydrodynamique des réacteurs par la détermination de la distribution des temps de séjour : des notions sur les réacteurs, la fonction de distribution des temps de séjour et ses caractéristiques sont abordées.
- Radioactivité et radiotraceurs : un bref descriptif sur la radioactivité, les types de rayonnements et les radiotraceurs (plus particulièrement le Technétium 99-métastable) sont présentés,

Une seconde partie, essentiellement expérimentale, consacrée à :

- La description du dispositif expérimental, de la chaîne d'acquisition, ainsi que du logiciel DTSPV4.2 utilisé pour la modélisation ;
- La présentation et interprétations des résultats obtenus, traitement des spectres et modélisation.

Partie 1 :
Revue
bibliographique

Chapitre 1 :
Notions de
distribution des
temps de séjour

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

La transformation de la matière première en génie des procédés consiste à élaborer des produits dont les qualités fonctionnelles sont définies par des contraintes d'usage et de réglementation. Ces opérations de transformation sont mises en œuvre dans des réacteurs chimiques (Villiermaux, 1982).

L'hydrodynamique agit sur les performances du réacteur et a une influence toute aussi importante que la cinétique des transformations qui s'y opèrent. (Villiermaux, 1982) Si la cinétique réactionnelle est un concept classiquement abordé en cinétique chimique, l'hydrodynamique repose sur une analyse statistique du parcours des molécules traversant le système. La méthode qui permet d'aboutir, par une approche systémique, à la description de l'hydrodynamique d'un système, c'est à dire à la description de la dispersion et du degré de macro-mélange des fluides dans un réacteur réel, est l'étude de la distribution des temps de séjour DTS des molécules dans le réacteur (Mendert, 2016).

1.1. Définition d'un réacteur

Un réacteur chimique est tout appareillage permettant de réaliser une réaction chimique, c'est-à-dire de transformer des espèces moléculaires en d'autres espèces moléculaires. Néanmoins, cette appellation est limitée aux cas où la transformation chimique est effectuée dans le but de produire une ou plusieurs espèces chimiques déterminées, ou d'éliminer d'un mélange ou d'un procédé un ou plusieurs composés (Trambouze, 1984).

1.2. Classification des réacteurs

1.2.1. Réacteurs idéaux

Les réacteurs idéaux sont des configurations réactionnelles particulièrement simples, où les conditions hydrodynamiques et physiques sont supposées idéalisées et bien déterminées : cuve parfaitement agitée, écoulement piston parfait, pertes de charge et phénomènes de diffusion négligeables, absence de gradients de concentration et de température. etc. (Villiermaux, 1982). Nous distinguons trois réacteurs idéaux de base :

A. Réacteur fermé (RF)

Le RF est idéal au sens où son contenu est à composition, température, pression, et éventuellement d'autres conditions physiques uniformes, son état initial est supposé parfaitement maîtrisé et connu. Technologiquement, c'est une cuve fermée munie d'un système d'agitation performant (Schweich, 2001), comme le montre la figure (1.1),

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

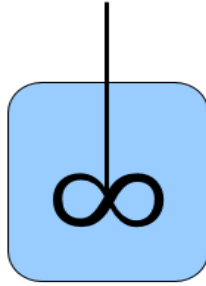


Figure 1.1. Réacteur fermé

B. Réacteur continu parfaitement agité (RCPA)

Le réacteur continu parfaitement agité est la version continue du réacteur fermé. En plus des caractéristiques internes de ce dernier, l'idéalité réside aussi dans la dispersion parfaite et instantanée du fluide entrant dans la masse réactionnelle interne. Technologiquement, c'est souvent une cuve munie d'un mobile d'agitation, d'une tubulaire d'entrée et d'une tubulaire de sortie (Schweich, 2001 ; Tramboouze, 1984), comme l'illustre la figure (1.2),

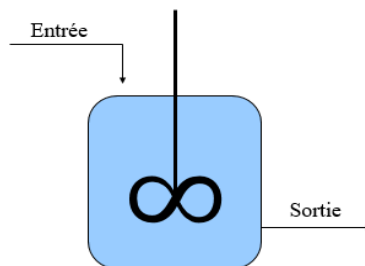


Figure 1.2. Réacteur continu parfaitement agité.

C. Réacteur piston (RP)

Le RP est un réacteur continu dans lequel le mélange réactionnel progresse par tranches parallèles et indépendantes de composition uniformes n'échangeant pas de matières entre elles (Guisnet, 2007). Un exemple simple est fourni par un réacteur tubulaire qui en est la réalisation technologique la plus courante (Schweich, 2001).

La figure (1.3) présente le schéma simplifié de ce modèle,

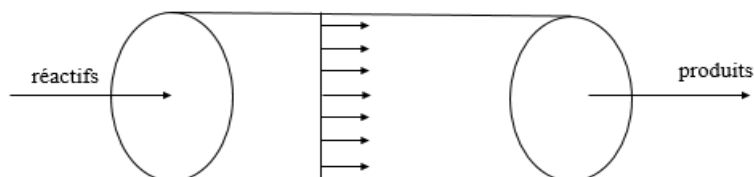


Figure 1.3. Réacteur piston.

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.2.2. Déviations de l'idéalité

Dans la pratique industrielle, aucun système ne se comporte d'une manière idéale : une géométrie complexe, mauvaise conception, condition de fonctionnement fluctuantes...etc. peuvent perturber l'écoulement et causer des dysfonctionnements au sein du système (Hweij et Azizi, 2015). Il serait intéressant de pouvoir chiffrer les écarts d'un réacteur réel par rapport à l'idéalité (Trambouze, 1984).

Ces écarts sont caractérisés et quantifiés à deux niveaux (Schwiech, 2001) :

➤ A l'échelle macroscopique

Dans un réacteur conçu comme un RCPA, le mélange réactionnel peut stagner dans certaines zones en créant des volumes morts, ou une partie du fluide sort directement du réacteur sans réagir ce qui correspond à un court-circuit (Guinset, 2007).

Dans les réacteurs en écoulement piston, deux types de dysfonctionnements sont également possibles : mélange dans la direction longitudinal et mélange incomplet dans la direction radiale (Guinset, 2007).

Les figure (1.4) et (1.5) illustrent ces différentes déviations dans un RCPA et dans un RP respectivement.

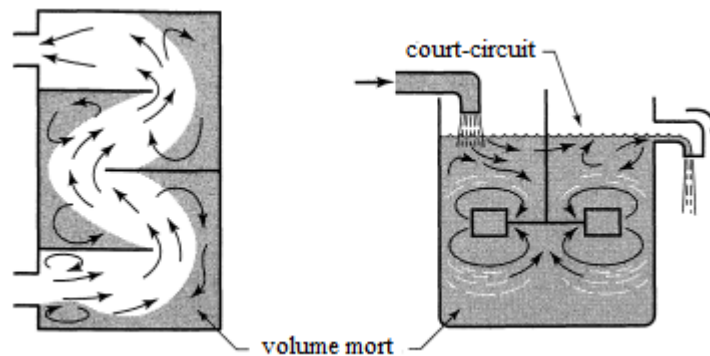


Figure 1.4. Dysfonctionnements dans un RCPA (Levenspiel, 1999).

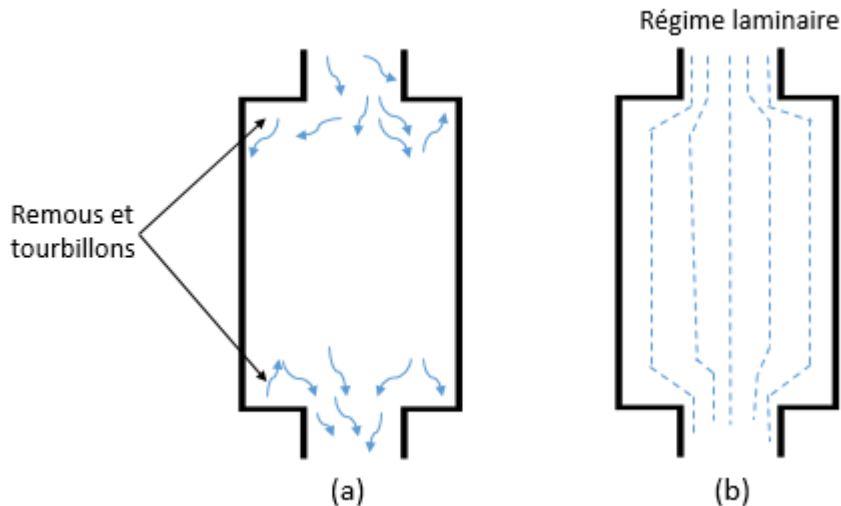


Figure 1.5. Dysfonctionnements dans un RP : (a). Mélange dans la direction radiale, (b). Mélange dans la direction longitudinale (Levenspiel, 1999)

➤ A l'échelle microscopique

Pour appréhender le rôle du mode de mise en contact des réactifs. C'est le problème de micro-mélange (Schweich, 2001) :

Au sein d'un fluide en mélange, peuvent subsister des agrégats créant des hétérogénéités locales conduisant à une ségrégation (Trambouze, 1984). Les molécules peuvent rester groupées par paquets de petite dimension à l'échelle macroscopique, appelés domaines de ségrégation. Si ces paquets ne se défont pas lors de la traversée du réacteur, la ségrégation est totale, état macrofluide. Dans le cas général, la ségrégation est partielle et le fluide peut être considéré comme un mélange de macrofluide et de fluide intimement mélangé à l'échelle moléculaire, état microfluide (Guinset, 2007).

La figure (1.6) illustre ces deux états de ségrégation.

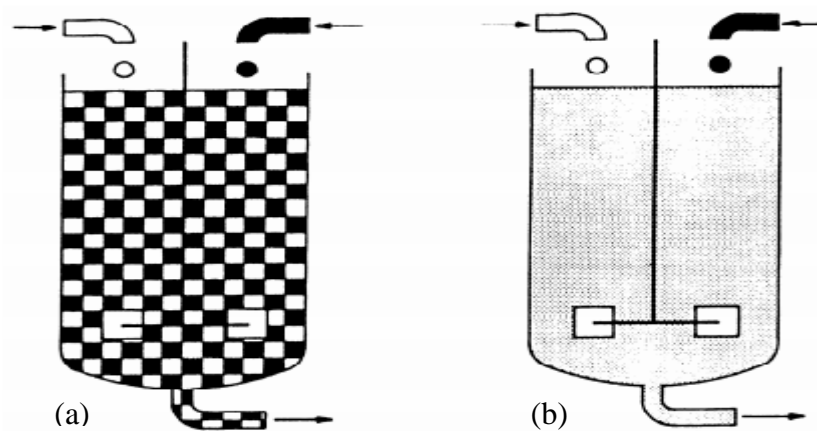


Figure 1.6. Deux états extrêmes du micromélange d'un fluide : (a). Ségrégation totale, (b). Mélange maximum (Trambouze, 1984).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

La précocité et le retard du mélange dans le récipient : les éléments de fluides d'un seul courant peuvent se mélanger les uns avec les autres soit tôt soit tard dans leur écoulement à travers le récipient (Levenspiel, 1999).

La figure (1.7) illustre un exemple sur ce phénomène du mélange.

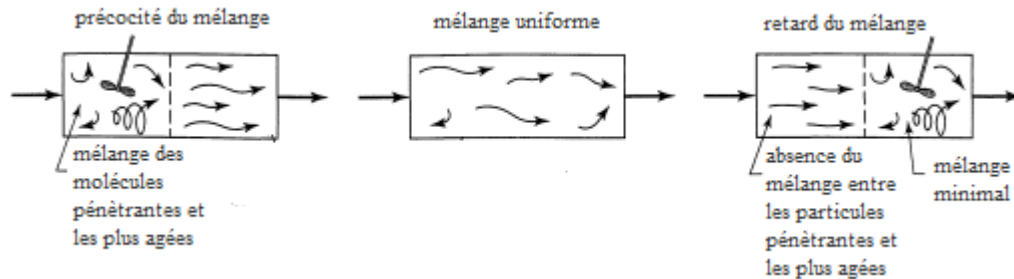


Figure 1.7. Exemple sur la précocité et le retard du mélange (Levenspiel, 1999).

La distribution des temps de séjour du fluide est le moyen choisi pour évaluer les écarts à échelle macroscopique, mais elle est incapable de donner des informations relatives au micro-mélange (Guinset, 2007). Il faut faire appel à la mécanique des fluides pour quantifier les processus du mélange (Schwiech, 2001).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.3. Distribution des temps de séjour

1.3.1. Définition

Le mérite revient à Danckwerts, en 1953 d'avoir proposé une approche systémique pour décrire le comportement hydrodynamique dans les réacteurs réels ou toute autre installation, en définissant des fonctions de distribution aisément accessibles par des mesures expérimentales (Villermaux, 1982).

La notion de distribution des temps de séjour (DTS) permet ainsi de (Houzelot, 2013) :

- Diagnostiquer la présence de zones stagnantes ou de phénomènes de court-circuit ;
- Établir un modèle d'écoulement hydrodynamique qui permet de calculer les performances chimiques d'un réacteur.

1.3.2. Notions d'âges, d'espérances de vie et du temps de séjour

L'approche systémique, par rapport à l'approche conventionnelle qui utilise l'écriture locale de bilans de matière, d'énergie et de quantité de mouvement, se démarque par le fait que l'on attribue, à chaque entité présente dans le réacteur, un caractère spécifique. Cette approche systémique est plus connue sous le terme de bilan de population (Houzelot, 2013).

Ainsi, pour la distribution des temps de séjour, on peut affecter à chaque molécule (Houzelot, 2013) :

« L'âge interne a » de la molécule qui est défini comme le temps qui s'est écoulé depuis qu'elle a franchi la surface d'entrée du réacteur, son espérance de vie λ comme le temps qui lui reste à passer dans le réacteur avant de franchir la surface de sortie et son « temps de séjour \bar{t}_s » comme le temps qu'elle aura passé au total dans le réacteur (Villermaux, 1982) :

$$\bar{t}_s = a + \lambda \quad (1.1)$$

Etant donné le grand nombre de molécules et leurs comportements différents liés au type d'écoulement. Il existe des fonctions de distribution des caractéristiques a et \bar{t}_s : $I(t)$ et $E(t)$ (Trambouze, 1984).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.3.3. Temps de passage

Le temps de passage ou temps de séjour géométrique est le temps nécessaire pour qu'un fluide traverse un réacteur de volume V_R . Il est obtenu en divisant le volume du réacteur par le débit à l'entrée du réacteur (Fogler,2006 ; Houzelot, 2013) :

$$\tau = \frac{V_R}{Q} \quad (1.2)$$

Tel que :

V_R : Volume géométrique du réacteur (m^3) ;

Q : Débit entrant dans le réacteur ($m^3.s^{-1}$).

1.3.4. Fonction de distribution des temps de séjour

La fonction de distribution des temps de séjour $E(t)$ est définie comme la probabilité qu'une molécule entrant dans le réacteur y résidera pendant un temps t . $E(t)$ prend une unité de temps⁻¹. Cette fonction doit être normalisée : (Schmidt, 1998 ; Levenspiel, 1999)

$$\int_0^{\infty} E(t) dt = 1 \quad (1.3)$$

La distribution cumulative est donnée de la manière suivante :

$$F(t) = \int_0^t E(t) dt \quad (1.4)$$

Cette fonction (1.4) représente dans le flux de sortie la fraction du fluide dont le temps de séjour est inférieur à t . (Trambouze, 1984)

La figure (1.8) représente la fonction de DTS en fonction du temps,

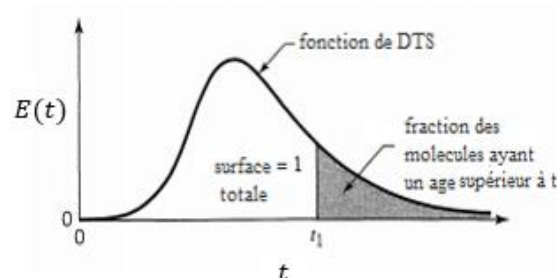


Figure 1.8. Fonction de distribution du temps de séjour (Levenspiel, 1999).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.3.5. Propriétés de la fonction de distribution des temps de séjour

La fonction de distribution des temps de séjour peut-être facilement caractérisée par ses moments simples autour de l'origine (Schweich, 2001) :

$$\mu_n = \int_0^{\infty} t^n E(t) dt \quad (1.5)$$

Où $n=0, 1, 2, \dots$

Le moment d'ordre zéro donne l'aire sous la courbe, qui est égale à l'unité :

$$\mu_0 = \int_0^{\infty} E(t) dt \quad (1.6)$$

Le moment de premier ordre présente le temps de séjour moyen :

$$\mu_1 = \int_0^{\infty} t E(t) dt = \bar{t}_s \quad (1.7)$$

L'étalement autour du temps de séjour moyen est caractérisé par l'écart type, σ , ou la variance, σ^2 :

$$\sigma^2 = \mu_2 - \mu_1^2 = \int_0^{\infty} (t - \bar{t}_s)^2 E(t) dt \quad (1.8)$$

Où :

$\mu_2 = \int_0^{\infty} t^2 E(t) dt$ Est le moment du deuxième ordre de la fonction de distribution des temps de séjours (Berne et al, 2008).

Plus la valeur de la variance est grande, plus l'étalement de la distribution sera grand (Fogler, 2006), comme le montre la figure (1.9). Elle est particulièrement utile lors de la modélisation (Levenspiel, 1999).

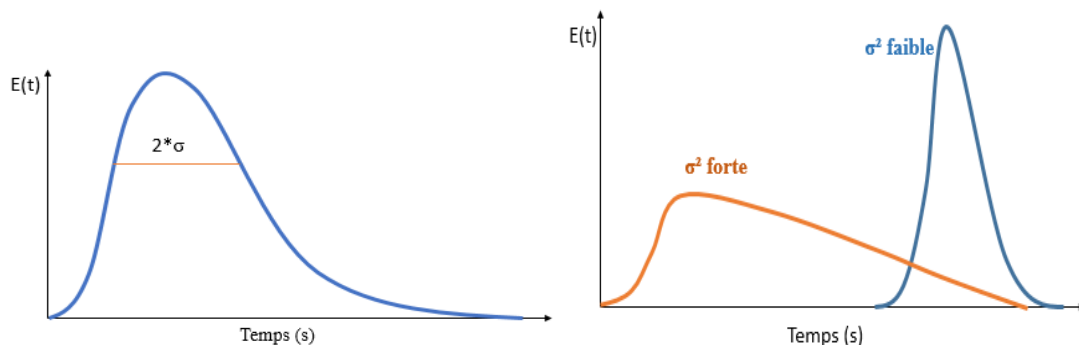


Figure 1.9. Variance de la fonction de DTS (Berne et al, 2008 ; Levenspiel, 1999).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

Les moments d'ordre supérieur permettent de calculer des quantités telles que l'asymétrie et l'aplatissement de la fonction de DTS, mais ils sont souvent difficiles à estimer et non fréquemment utilisés (Berne et al, 2008).

1.3.6. Fonction de distribution des âges internes, $I(t)$ et fonction d'intensité, $\Lambda(t)$

La distribution des âges internes $I(t)$ est une fonction monotone décroissante, où $I(t) dt$ représente la fraction de fluide à l'intérieur du réacteur dont l'âge interne est compris entre t et $t+dt$ (Trambouze, 1984 ; Rodrigues, 2021). $I(t)$, Peut être calculé par l'équation (1.9) :

$$I(t) = \frac{1}{\bar{t}_s} (1 - F(t)) \quad (1.9)$$

La fonction d'intensité notée $\Lambda(t)$ est définie comme étant la fraction d'éléments fluides, à l'intérieur du réacteur et qui dans chaque classe d'âge, a une espérance de vie nulle (Rodrigues, 2021). Elle est donnée en fonction de $E(t)$ et $I(t)$ par l'équation (1.10) suivante (Villiermaux, 1982) :

$$\Lambda(t) = \frac{E(t)}{\bar{t}_s I(t)} = \frac{E(t)}{1-F(t)} \quad (1.10)$$

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.4. Détermination expérimentale de la distribution des temps de séjour

1.4.1. Principe

La méthode consiste à utiliser un traceur- substance quantifiable par une propriété particulière : radioactivité, couleur, conductivité thermique ou électrique etc. ; pour marquer les molécules à l'entrée du réacteur et utiliser un détecteur approprié pour dénombrer, en fonction du temps, ces molécules dans le courant de sortie (Guinset, 2007 ; Houzelot, 2013).

Le traceur est injecté dans le réacteur, en veillant à ne pas perturber le régime d'écoulement sous la forme d'un signal choisi telle que la réponse soit facilement exploitable. Ainsi des signaux du type échelon ou impulsion sont utilisés (Guinset, 2007 ; Trambouze, 1984).

Le tableau (1.1) présente les différents traceurs utilisés pour étudier la DTS,

Tableau 1.1. Exemples des techniques de traçage classique (Schwiech,2001).

Traceur	Exemple	Détection
Chimique	NaCl	Conductimètre
Colorant	Fluorescéine	Colorimètre
Isotope radioactif	Technétium 99m	Détecteur γ

Le traceur doit satisfaire les exigences suivantes (Schwiech, 2001) :

- Être une substance inerte n'ayant pas d'interaction physique ou chimique avec les éléments du réacteur ;
- Avoir des propriétés physiques aussi voisines que possible de celles du fluide tout en étant détectable ;
- L'injection du traceur ne doit pas perturber l'écoulement.

L'étude de la distribution des temps de séjour repose sur les hypothèses restrictives suivantes (Villermaux ,1982).:

- L'écoulement est en régime permanent ;
- L'écoulement ne fait pas intervenir des processus aléatoires macroscopiques comme les créations des tourbillons ;
- Le fluide est incompressible ;
- L'écoulement à travers l'entrée et la sortie se fait uniquement par convection forcée, à l'exclusion de toute diffusion et de tous mélange en retour ;

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

- Les conduites sont de petits diamètres devant les dimensions du réacteur.

La figure (1.10) schématise le principe expérimental pour la détermination de la DTS,

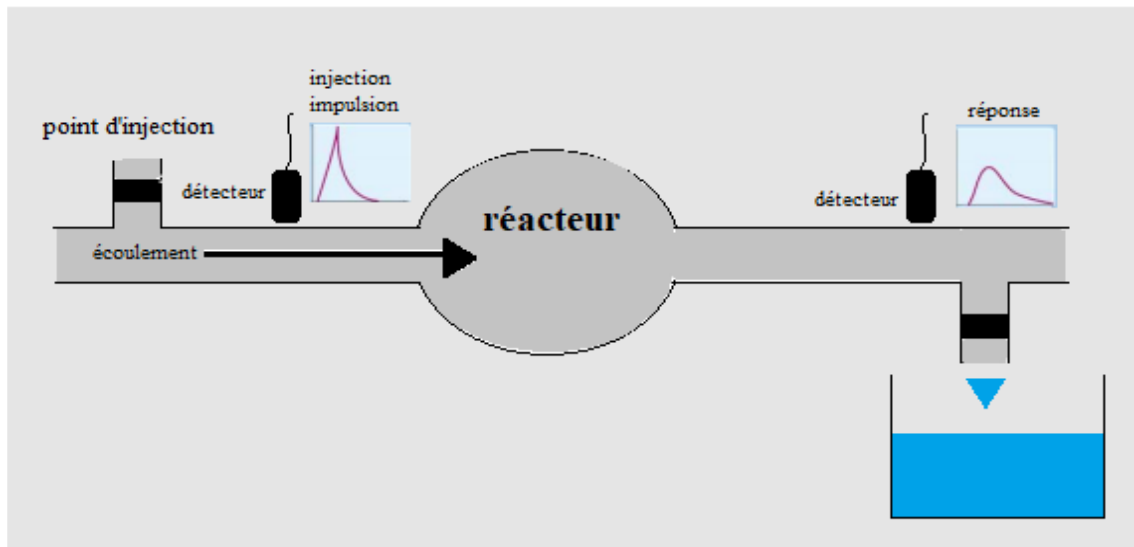


Figure 1.10. Schéma pour la mesure de la DTS (Berne et al ,2008).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.5. Types d'injection

1.5.1. Injection impulsion

L'injection impulsion consiste à introduire une quantité donnée de traceur à l'entrée du réacteur, pendant un temps très court (Villermux, 1982).

L'injection impulsion peut être réalisée de deux manières soit à l'aide d'une seringue, soit à partir d'une nourrice sous pression. Cette injection est à rapprocher mathématiquement de l'injection de Dirac caractérisée de la manière suivante (Houzelot, 2013 ; Trambouze, 1984) :

$$\begin{cases} \delta(t) = \infty ; t = 0 \\ \delta(t) = 0 ; t \neq 0 \end{cases} \quad (1.11)$$

On considère qu'expérimentalement elle est atteinte si la durée physique de la perturbation est inférieure à 1 % du temps de séjour moyen des fluides traversant le réacteur. (Houzelot, 2013)

Pour une injection impulsion, la fonction de distribution des temps de séjour est définie comme suit :

$$E(t) = \frac{c(t)}{\int_0^{\infty} c(t) dt} \quad (1.12)$$

$C(t)$: Concentration de traceur à l'instant t , (mole.m^{-3}) (Villermux, 1982).

1.5.2. Injection échelon

Dans une injection échelon, la concentration du traceur passe brusquement de 0 à C_0 dans l'alimentation à l'instant $t=0$ (Villermux, 1982).

La fraction de distribution des temps de séjour des molécules en sortie ayant séjournées moins longtemps que t , est donnée par :

$$F(t) = \frac{C(t)}{C_0} \quad (1.13)$$

$C(t)$: Concentration de traceur à l'instant t (mole.m^{-3}) ;

C_0 : Concentration de traceur à l'injection (mole.m^{-3}).

La figure (1.11) illustre les réponses aux injections impulsion et échelon respectivement,

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

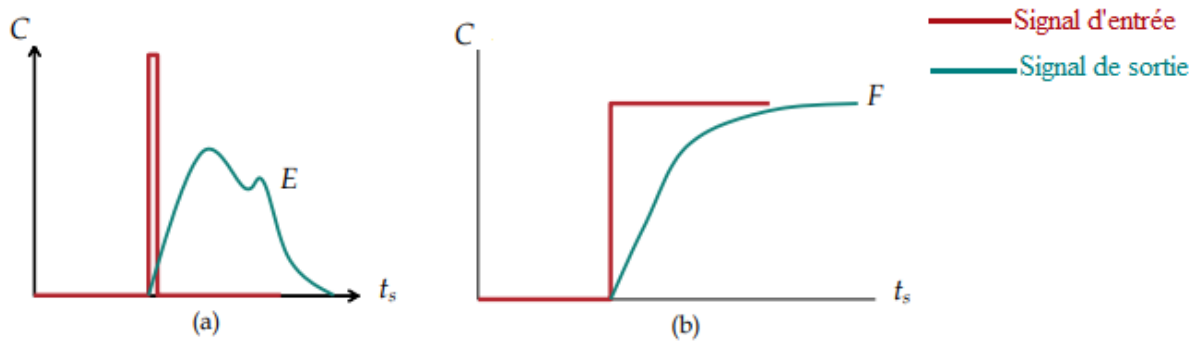


Figure 1.11. (a). Injection impulsion (b). Injection échelon (Debacq, 2016)

L'injection instantanée (impulsion de Dirac) de traceur est la plus utilisée en pratique car elle :

- Donne directement la fonction de distribution des temps de séjour, $E(t)$;
- Nécessite une petite quantité de traceur (minimiser le coût) (Berne et al, 2008 ;Fogler, 2006).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.6. Fonctions de distribution des divers types d'écoulement

1.6.1. Ecoulement d'un mélange parfait

Pour une injection impulsion, la fonction de distribution des temps de séjour $E(t)$, d'un réacteur parfaitement agité est donnée par l'équation (1.14). (Schweich, 2001)

$$E(t) = \frac{1}{\bar{t}_s} e^{-t/\bar{t}_s} \quad (1.14)$$

Tel que,

\bar{t}_s : Temps de séjour moyen (s).

Pour une injection échelon, la fonction de distribution $F(t)$ d'un réacteur parfaitement agité est donnée par l'équation (1.15). (Trambouze, 1984)

$$F(t) = \left(1 - e^{-\frac{t}{\bar{t}_s}}\right) \quad (1.15)$$

1.6.2. Ecoulement piston

Dans le cas d'un écoulement piston, toutes les molécules se déplacent à la même vitesse et le système agit comme un retard pur. Tous les signaux entrants sont donc transmis sans déformation et se retrouvent en sortie au bout d'un temps $t = \tau$. La répartition des temps de séjour se réduit au temps de passage, τ . (Trambouze, 1984)

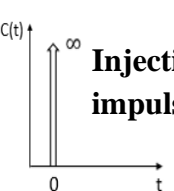
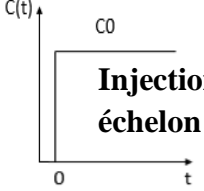

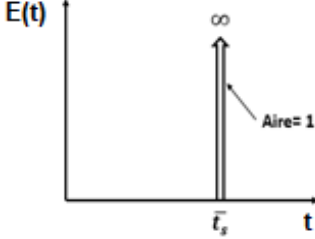
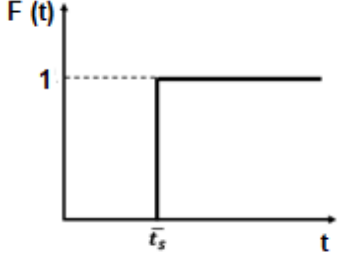
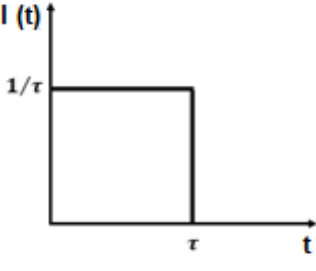
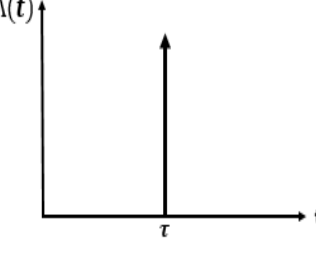
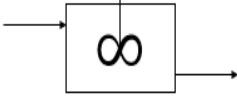
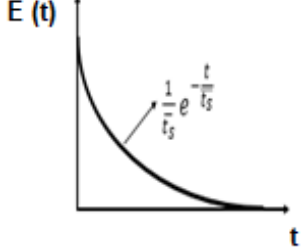
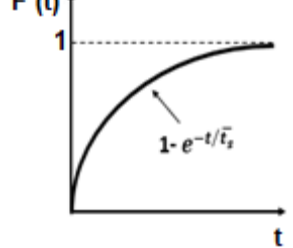
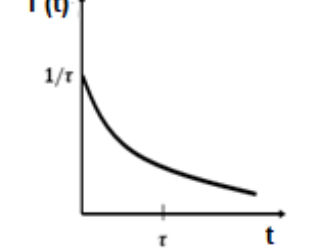
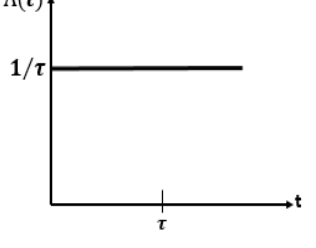

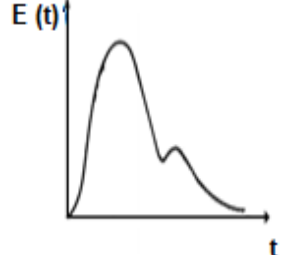
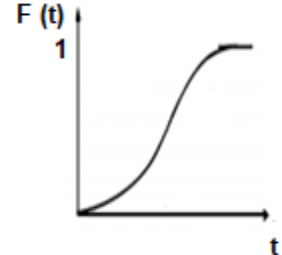
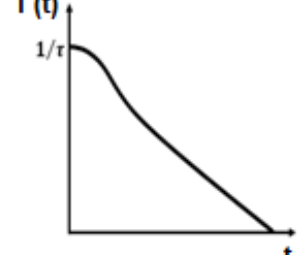
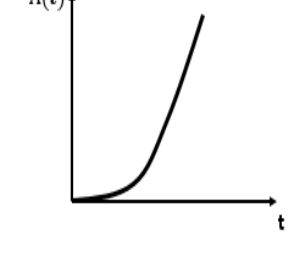
1.6.3. Ecoulement quelconque

Pour un système quelconque des fonctions de distribution ayant des formes variées peuvent être obtenues. (Trambouze, 1984)

La représentation des diverses fonctions de distribution et réponses à des signaux d'entrée pour les trois types d'écoulement précités sont résumés dans le tableau (1.2)

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

Tableau 1.2. Réponse des systèmes à différents signaux d'entrée (Trambouze, 1984).

Type d'écoulement	 <p style="text-align: center;">Injection impulsion</p>	 <p style="text-align: center;">Injection échelon</p>	$I(t)$	$\Lambda(t)$
<p style="text-align: center;">Piston</p> 				
<p style="text-align: center;">Mélange parfait</p> 				
<p style="text-align: center;">Quelconque</p> 				

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.7. Diagnostic du mauvais fonctionnement

Connaissant les valeurs du temps de séjour moyen \bar{t}_s (déterminé expérimentalement) et du temps de passage τ ; La comparaison de ces valeurs et l'examen de la forme de la DTS permettent de détecter des anomalies de fonctionnement (Schwiech, 2001) :

1.7.1. Court-circuit

Si $\bar{t}_s > \tau$, cela révèle l'existence de cheminements préférentiels dans le système étudié (Villiermaux, 1982).

Le court-circuit est un dysfonctionnement très courant dans les systèmes industriels tels que : réacteurs mal garnis, réacteurs avec de petits rapports longueur / diamètre, échangeur de chaleur mal conçus, etc. (Berne et al, 2008)

L'existence d'un court-circuit est révélée graphiquement par la présence de deux pics dans la courbe de DTS (figure 1.12), le premier est propre au court-circuit, tandis que le deuxième pic représente le reste du fluide à l'intérieur du système, tel que (Berne et al, 2008 ; Villiermaux, 1982) :

$$Q = Q_a + Q_c \quad (1.16)$$

Q_a : Débit correspondant au \bar{t}_s ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) ;

Q : Débit volumique à l'entrée du réacteur ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) ;

Q_c : Débit de court-circuit $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

Dans ce cas la fraction de court-circuit, α , peut être calculée comme suit (Villiermaux, 1982):

$$\alpha = \frac{Q_c}{Q} = 1 - \frac{\tau}{\bar{t}_s} \quad (1.17)$$

Dans certains cas, la courbe de DTS expérimentale peut ne pas montrer deux pics distincts en raison de l'échange entre le court-circuit et le reste du fluide (Berne et al, 2008).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.7.2. Volume mort

Si $\bar{t}_s < \tau$, ceci peut être l'indice de l'existence d'un volume mort V_m tel que (Villiermaux, 1982) :

$$V_R = V_a + V_m \quad (1.18)$$

V_a : Volume accessible au fluide (m^3) ;

V_R : Volume géométrique du réacteur (m^3) ;

V_m : Volume mort (m^3).

Le volume mort est généralement considéré comme une zone où le traceur ne pénètre pas en raison de l'entartrage, d'un matériau solidifié ou d'une autre barrière. (Berne et al , 2008) L'estimation de la fraction de volume mort, β , se fait à l'aide de l'équation (I.19) ci-dessous (Villiermaux, 1982):

$$\beta = \frac{V_m}{V_R} = 1 - \frac{\bar{t}_s}{\tau} \quad (1.19)$$

L'existence de ces zones stagnantes peut être suspectée par une trainée sur la courbe de DTS (figure 1.12). (Guinset, 2007)

La figure (1.12) représente l'allure de la courbe de DTS des systèmes quelconques en présence d'un court-circuit et d'un volume mort.

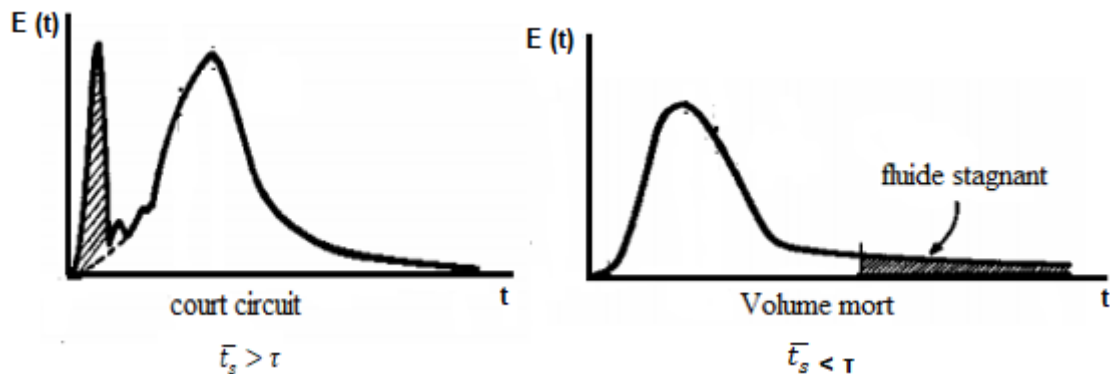


Figure 1.12. Défauts d'écoulement dans un système quelconque (Villiermaux, 1982).

Pour un réacteur réel, L'étude de la fonction intensité $\Lambda(t)$ est intéressante car lorsque ces phénomènes sont francs, elle ne présente plus une croissance monotone en fonction de t (Villiermaux, 1982).

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

1.8. Modélisation des écoulements non-idéaux

Ayant obtenu par la méthode des traceurs une courbe expérimentale de la DTS, une assimilation de l'allure observée à un modèle hydrodynamique simple est utilisée pour prédire la conversion et pour servir de base à l'extrapolation du réacteur (Villiermaux, 1982).

1.8.1. Modèle piston à dispersion axiale

Ce modèle repose sur la superposition d'un écoulement piston convectif de vitesse U et d'une dispersion aléatoire dans la direction axiale causant un mélange entre les tranches comme le montre la figure (1.13), cette dispersion obéit formellement à la loi de Fick (Villiermaux, 1982).

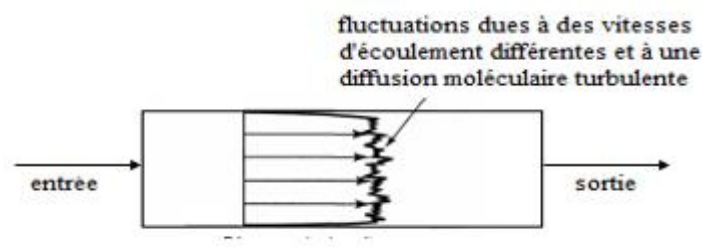


Figure 1.13. Représentation de la dispersion axiale (Levenspiel, 1982).

La distribution des temps de séjour dans ce modèle dépend d'un paramètre adimensionnel appelé le nombre de Péclet, tel que :

$$Pe = \frac{UL}{D_{ax}} \quad (1.20)$$

Avec :

D_{ax} : Coefficient de dispersion axiale qui dépend à la fois de la nature du fluide, du régime d'écoulement et de la structure géométrique du réacteur ($m^2.s^{-1}$) ;

U : Vitesse d'écoulement ($m.s^{-1}$) ;

L : Longueur du réacteur (m) (Villiermaux, 1982).

- **Pour des faibles écarts à l'écoulement piston ($Pe > 100$) :**

Les courbes de la DTS sont symétriques, l'écoulement est proche du piston et fonction de distribution est donnée par la relation suivante (Villiermaux, 1982) :

$$E(t) = \frac{1}{2} \left(\frac{Pe}{\pi t} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(- \frac{Pe(\tau - ts)^2}{4\tau^2} \right) \quad (1.21)$$

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour


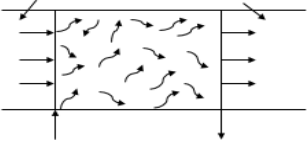
La variance de ces courbes est donnée par la relation (Villiermaux, 1982) :

$$\sigma^2 = \frac{2\bar{t}_s^2}{Pe} \quad (1.22)$$

- **Pour des grandes déviations par rapport à l'écoulement piston (Pe < 100) :**

Les courbes de DTS sont non symétriques. Le tableau (1.3) rassemble les équations de DTS de ces modèles (villiermaux, 1982)

Tableau 1.3. DTS des modèles de réacteur piston à dispersion axiale (villiermaux, 1982)

Modèles de dispersion axiale	L'équation de DTS	σ^2/\bar{t}_s^2
<p>Ouvert à la dispersion</p> 	$E(t) = \frac{1}{2} \left(\frac{Pe}{\pi t s} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{Pe(\tau - t s)^2}{4 t s} \right)$	$\frac{2}{Pe} + \frac{8}{Pe^2}$
<p>Fermé à la dispersion</p> 	<p>L'équation de ce modèle ne possède pas une solution analytique.</p>	$\frac{2}{Pe} + \frac{8}{Pe^2} \left(1 - e^{-\frac{1}{Pe}} \right)$

1.8.2. Modèle des réacteurs parfaitement agités en cascade

Il est possible de représenter l'écoulement du fluide dans un réacteur réel en assimilant celui-ci à une cascade de N RCPA en série de même volume total (villiermaux, 1982).

Le bilan de matière est effectué successivement pour chaque réacteur de la série de N réacteurs de même volume, donc pour lesquels les temps de passage sont identiques $\tau_1 = \tau_2 = \dots = \tau_i = \tau_N$. Le bilan conduit à l'expression de la DTS suivante (Guinset, 2007) :

$$E(t) = \left(\frac{N}{\tau} \right)^N \frac{\tau^{N-1} \exp\left(-N \frac{t}{\tau}\right)}{N-1} \quad (1.23)$$

Avec

τ : Temps de passage total (s) ;

N : nombre des RCPA en cascade.

La figure (1.14) schématise le modèle de cascade de N RCPA.

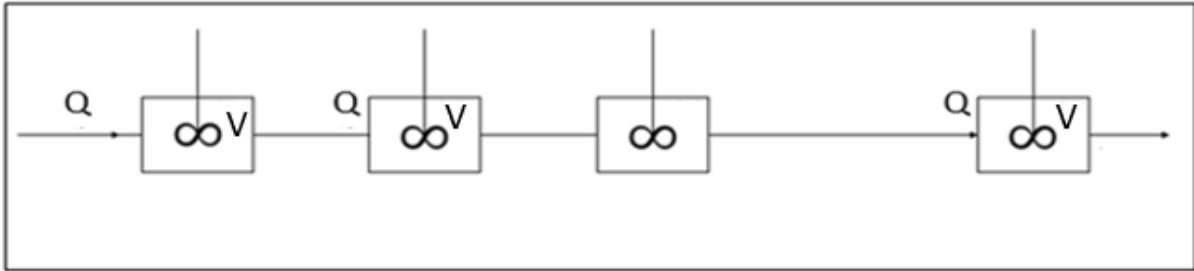


Figure 1.14. Représentation du modèle N réacteurs parfaitement mélangés en série.

1.8.3. Modèles à plusieurs paramètres

Les modèles : RP avec dispersion axiale et cascade de N RCPA, ne sont pas capables de représenter tous les réacteurs réels (par exemple, aucun d'entre eux n'est capable de décrire plusieurs pics comme on peut l'observer dans les systèmes avec court-circuit). (Berne et al, 2008) Pour rendre compte du comportement des réacteurs dans lesquels le comportement est complexe, d'autres modèles peuvent être utilisés (Guinset, 2007). La figure (1.15) présente quelques exemples de ces différents modèles.

Chapitre 1 : Notions de distribution des temps de séjour

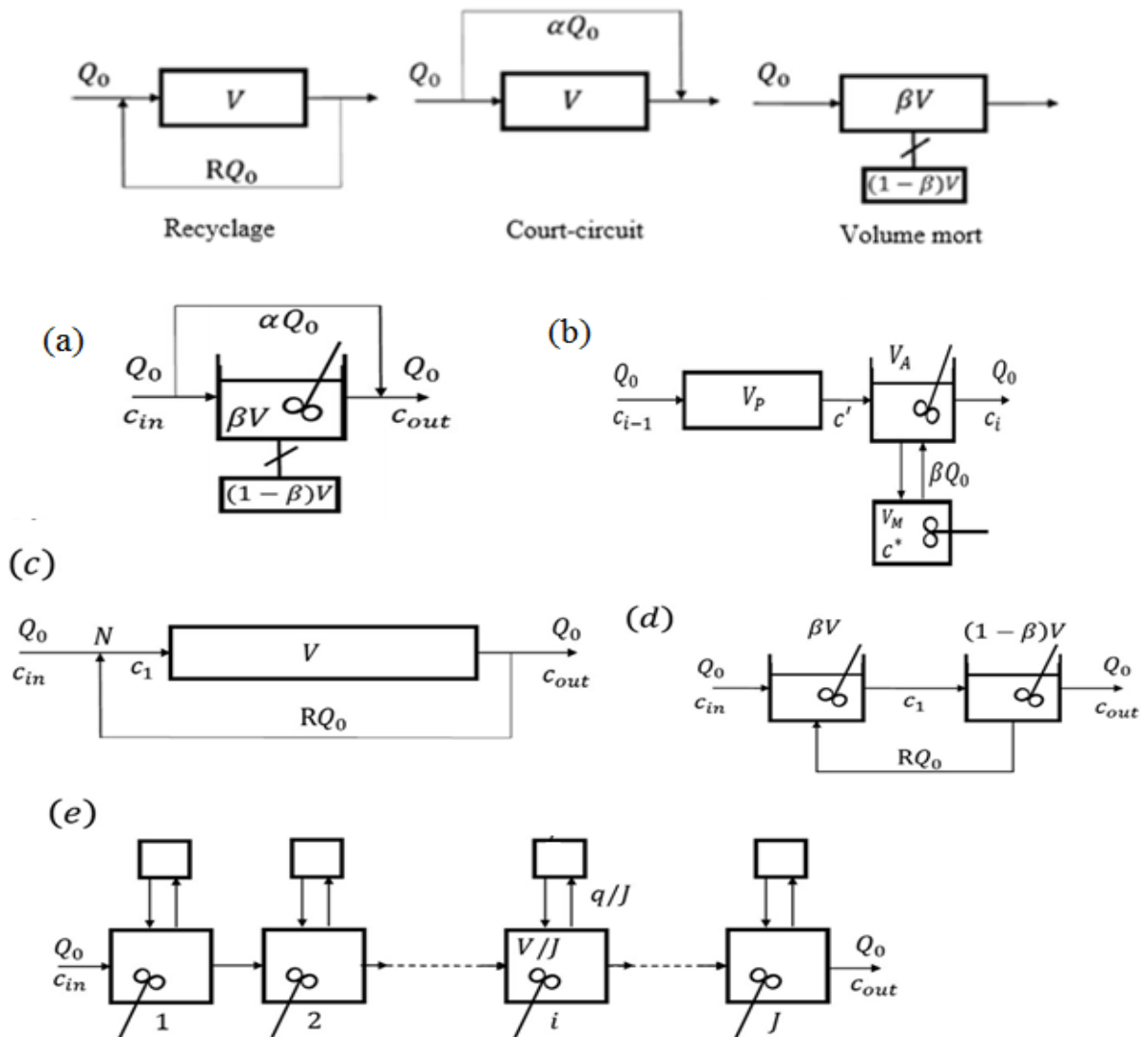


Figure 1.15. Modèles à plusieurs paramètres : (a) Cholette et Cloutier, (b) Adler et Hovorka (c) Ecoulement piston avec recyclage (d) mélangeurs parfaits en série avec recyclage (e) mélangeurs parfaits en série avec échange (Rodrigues, 2021).

Chapitre 2 :

Radioactivité et

radiotraceur

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Les applications de la radioactivité sont très nombreuses dans des domaines fort divers, qu'ils s'agissent de la production industrielle d'électricité d'origine nucléaire, de l'utilisation des rayonnements à des fins thérapeutiques ou de l'emploi des isotopes radioactifs. L'emploi des radioisotopes s'est étendu ; durant les trente dernières années ; à presque toutes les branches de l'activité scientifique et technique. Ils sont devenus des outils irremplaçables propres à satisfaire les besoins de la recherche et de l'industrie. (Foos, 2009)

2.1. Structure de l'atome

L'atome est constitué d'un noyau central, de très petite dimension (diamètre courant $\sim 10^{-15}\text{m}$), formé de neutrons et de protons, dans lequel la masse de l'atome est pratiquement toute concentrée. Autour de ce noyau gravitent des électrons, et occupent un volume relativement grand (diamètre courant de l'atome $\sim 10^{-10}\text{m}$) (Gambini et Granier, 2007).

Protons et électrons portent une charge électrique égale mais opposée en signe, respectivement positive et négative. Le neutron est électriquement neutre (Delacroix et al, 2006).

La hiérarchie structurale dans un atome est représentée dans la figure (2.1) ;

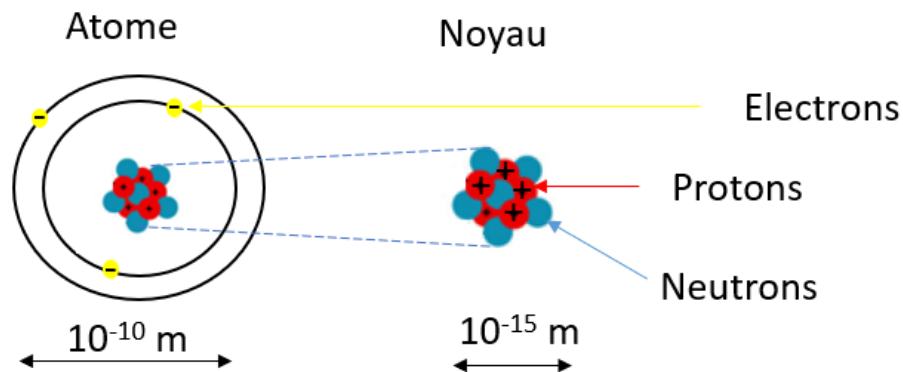


Figure 2.1. Hiérarchie structurale dans un atome

Chaque noyau se distingue donc par :

- Le nombre de protons, appelé numéro atomique, Z ;
- Le nombre de neutrons, N ;
- Le nombre de nucléons (protons + neutrons), appelée nombre de masse, A (Négre, 2008) (DOE, 1993).

Conformément aux conventions internationales, le nucléide X est représenté de la manière suivante (Foos, 2009) : ${}^Z_A X$

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

La cohésion des nucléons dans les noyaux atomiques est assurée par les forces nucléaires (interaction forte) qui sont attractives, intenses, indépendantes de la charge électrique. Au sein du noyau atomique, ces forces nucléaires attractives l'emportent sur les forces coulombiennes répulsives qui existent entre les protons. (Négrell, 2008)

2.2. Systématique des noyaux

Dans la nature, les noyaux peuvent être stables ou instables. Les noyaux instables sont dits radioactifs (Delacroix et al,2006). Le nombre de nucléides connus est d'environ 3000, dont 264 sont stables, les autres étant radioactifs, parfois avec des durées de vie allant de microsecondes à des trillions d'années (Foos, 2009 ; Sood et al, 2000).

2.2.1. Noyaux stables

Selon la configuration du noyau (c'est-à-dire la valeur de A et le rapport Z/A), les noyaux atomiques peuvent être stables s'ils contiennent un nombre suffisant de neutrons pour compenser la forte concentration de charges positives issues des protons (Négrell, 2008).

Les noyaux stables, sont alors ceux qui ont un nombre de neutrons égal (ou légèrement supérieur dans le cas des noyaux les plus lourds) à celui des protons. Ils occupent une zone très étroite, appelée ligne ou vallée de stabilité, dans un diagramme $N-Z$ (figure (2.2)) (Gambini et Granier, 2007).

2.2.2. Noyaux instables

En dehors de la vallée de stabilité (figure (2.2)), les noyaux sont dits instables et correspondent aux noyaux :

- Ayant un excès de particule de même type (protons ou neutrons), ce sont des radio-isotopes d'éléments stables ;
- Ayant un numéro atomique supérieur à 82 (au-delà du plomb) et deux exceptions, le technétium de numéro atomique 43 et le prométhéum de numéro atomique 61, ce sont des éléments radioactifs n'ayant aucun isotope stable (Gambini et Granier, 2007 ; Négrell, 2008)

A mesure que le nombre de nucléons augmente, l'interaction coulombienne, devient plus importante que la force nucléaire. Par conséquent, il devient énergétiquement possible pour le noyau de se désintégrer et d'émettre des rayonnements pour retrouver une configuration plus stable (Charlton, 1986 ; Delacroix et al,2006).

Le diagramme $N-Z$ est représenté dans la figure (2.2) ci-après ;

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

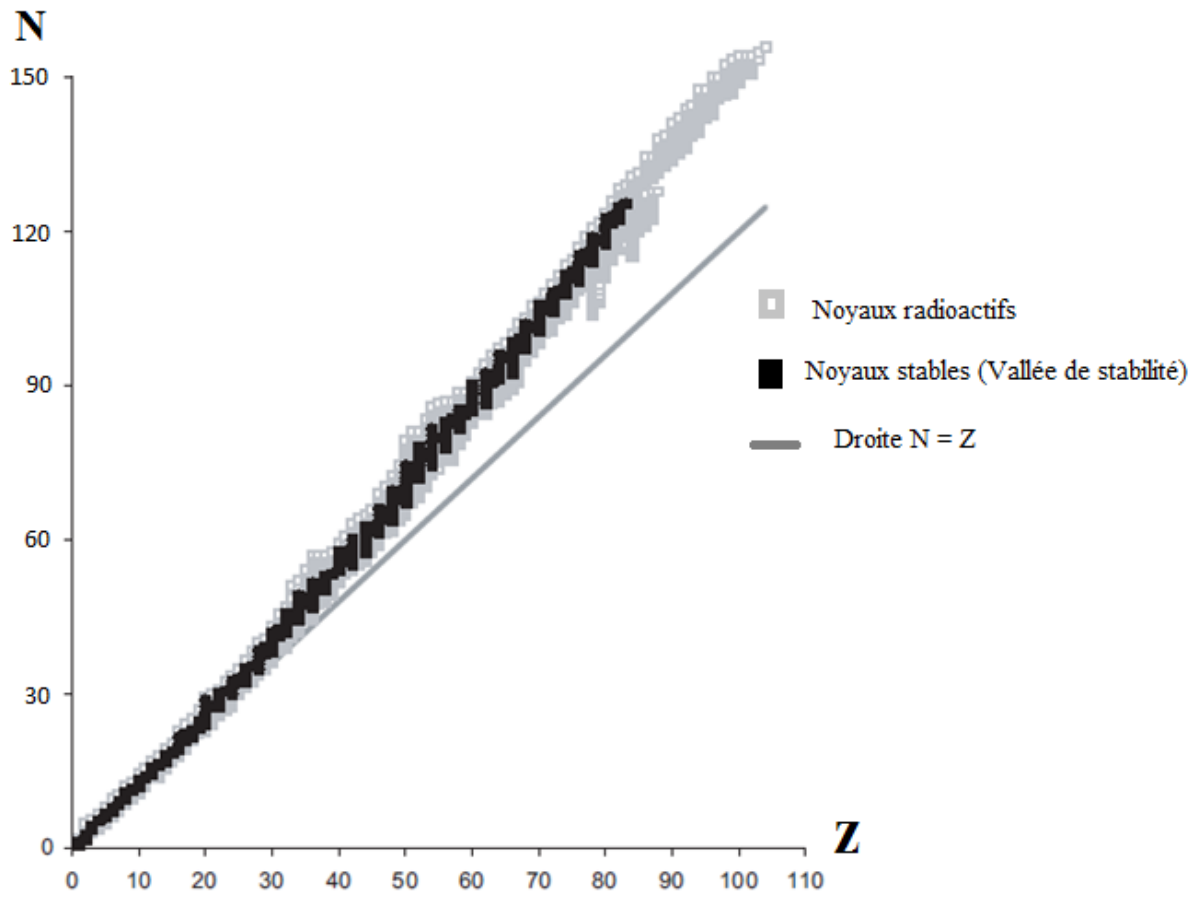


Figure 2.2. Répartition des atomes stables et radioactifs en fonction de Z et de N (Jimonet et Métivier, 2007).

2.3. Radioactivité

2.3.1. Découverte et définition

Au cours de recherches destinées à approfondir le phénomène d'émission de rayons X, découvert en 1895 par W.C. Röntgen, Henri Becquerel découvrit, en mars 1896, un nouveau rayonnement, invisible et pénétrant, émis spontanément par l'uranium (Bimbot et al, 1999).

En 1898, Pierre et Marie Curie découvrirent, dans les sels d'uranium, deux autres éléments qui émettaient des rayonnements semblables, mais de façon beaucoup plus intense. Ils baptisèrent le premier polonium et le second radium (Bimbot et al, 1999).

Pierre et Marie Curie conclurent que ces rayons uraniques étaient dus à un phénomène atomique, caractéristique de l'élément et non lié à ses états chimiques et physiques. Phénomène ultérieurement appelé « radioactivité » par Pierre et Marie Curie (Sood et al, 2000).

La radioactivité est un processus de désintégration des noyaux instables, accompagné d'une émission de particules (alpha, bêta) et/ou de rayonnements électromagnétiques (rayons gamma) (L'Annunziata, 2007), donnant naissance soit à un atome fils plus stable et du même élément que l'atome parent, soit à un nouvel atome et donc un nouvel élément (Berne et al, 2008).

Cette désintégration radioactive est :

- Aléatoire, l'heure de la désintégration ne peut pas être déterminée avec précision ; (DOE, 1993)
- Spontanée, elle se produit sans aucune intervention extérieure (Berne et al, 2008).

La radioactivité peut être d'origine naturelle (due aux rayonnements cosmiques et telluriques) ou artificielle obtenue par des réactions nucléaires (Biau et Vidal, 2009).

2.3.2. Unités de mesure et activité

L'activité, A, d'un radionucléide est le paramètre universel et légal permettant de quantifier l'émission d'une source radioactive (Gambini et Granier, 2007). Elle est définie comme étant le nombre de désintégrations ou de transformations que la quantité de matériel subit dans une période donnée. Les deux unités d'activité les plus courantes sont la Curie, Ci et le Becquerel, Bq (l'unité SI) (Berne et al, 2008).

$$1 \text{ Bq} = 1 \text{ désintégration/s} \quad (2.1)$$

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bq} \quad (2.2)$$

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

L'activité d'une source décroît de manière exponentielle selon un facteur propre à chaque radioélément : la constante radioactive λ , la formule permettant le calcul de l'activité à un instant t est la suivante (Bourrel et Courrière, 2003) :

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (2.3)$$

$A(t)$: Activité à l'instant t (Bq) ;

A_0 : Activité à l'instant initial (Bq) ;

t : Temps de décroissance radioactive (s) ;

λ : Constante de désintégration radioactive ; est une valeur statistique exprimant la probabilité de désintégration d'un radionucléide, dans un intervalle de temps donné. Elle est exprimée en s^{-1} (DOE, 1993).

2.3.3. Période radioactive

L'un des paramètres les plus utiles pour estimer la vitesse à laquelle un nucléide se décomposera est la période radioactive. (DOE, 1993)

Une période radioactive ou demi-vie est le temps au bout duquel la moitié des noyaux radioactifs initialement présents se désintègre, elle est fonction de la constante de désintégration λ et est donnée par la relation suivante :

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (2.4)$$

La période radioactive est spécifique à chaque radio-isotope et varie dans des gammes de valeurs très vastes, de la fraction de seconde à plusieurs milliards d'années (Bourrel et Courrière, 2003).

2.4. Rayonnement

2.4.1. Définition

Par définition, le rayonnement est l'émission d'énergie sous forme d'ondes (rayonnements électromagnétiques) ou de particules (rayonnements particulaires) à travers un milieu (Berne et al, 2008).

Les rayonnements sont caractérisés par leur énergie et leur pourcentage d'émission par désintégration. L'énergie est exprimée en électron-volt (eV) ou plus généralement en ses multiples (Delacroix et al, 2006).

2.4.2. Types de rayonnement

A. Rayonnements non ionisants

Le rayonnement non ionisant inclut : la lumière visible, l'infrarouge, les ondes radio, les micro-ondes (Gambini et Granier, 2007).

B. Rayonnements ionisants

Les rayonnements ionisants sont susceptibles de provoquer des ionisations de la matière avec laquelle ils interagissent, c'est-à-dire qu'ils peuvent, par l'énergie qu'ils communiquent aux atomes, éjecter un ou plusieurs électrons de leur cortège électronique. (Biau et Vidal, 2009)

Ces rayonnements ionisants sont soit :

- Des particules chargées, dites « directement ionisantes », comme des particules alpha, des particules bêta, des protons ou des ions (Biau et Vidal, 2009) ;
- Des particules non chargées, dites « indirectement ionisantes », des neutrons (n) ou des photons (γ : gamma s'ils sont issus d'un noyau radioactif, ou X s'ils sont issus de transitions dans le cortège électronique d'un atome, ou ultraviolets B et C) (Biau et Vidal, 2009 ; Gambini et Granier, 2007).

Ces particules ionisent indirectement le milieu par l'intermédiaire des particules directement ionisantes qu'elles mettent en mouvement (électrons dans le cas des photons, noyaux atomiques et surtout protons dans le cas des neutrons) (Gambini et Granier, 2007).

Les rayonnements ionisants peuvent être émis à partir de sources radioactives ou produits par des appareils électriques (tubes à RX, accélérateurs de particules, générateurs de neutrons. etc.) (Biau et Vidal, 2009).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

• Particules alpha

La particule alpha, structurellement équivalente au noyau d'un atome d'hélium, se compose de deux protons et de deux neutrons. Elle est émise suite à une désintégration de radionucléides dont le nombre atomique excède 82, $Z > 82$. (L'Annunziata, 2007)

Lorsqu'un noyau instable éjecte une particule alpha, son nombre atomique diminue de 2 et son nombre de masse diminue de 4. (DOE, 1993) comme le montre la figure (2.3) ;

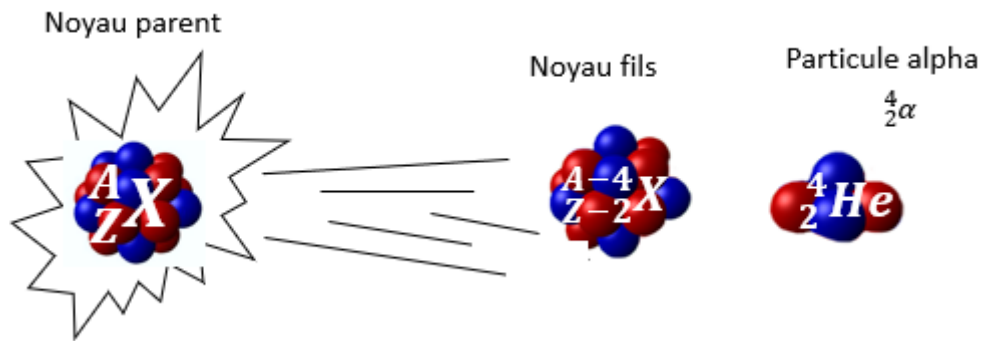


Figure 2.3. Désintégration alpha (L'Annunziata, 2007).

• Particules bêta

Il existe deux types de la particule bêta :

- Bêta moins (électron) ;
- Bêta plus (positron).

Ces particules proviennent du processus de transformation d'un proton en un neutron ou vice versa. Si un neutron devient un proton, un électron chargé négativement est émis ; lorsqu'un proton devient un neutron, un électron chargé positivement (positron) est émis. L'électron et le positron émis à partir du noyau de l'atome, sont appelés particules bêta pour les distinguer des électrons qui orbitent autour de l'atome (Berne et al, 2008).

Un neutrino (ou antineutrino) est également émis pendant la désintégration bêta ; il s'agit d'une particule neutre qui n'a pas de masse et emporte une partie de l'énergie du processus de décomposition (conservation de l'énergie) (Berne et al, 2008). Le neutrino est associé à une émission de positrons, et son antiparticule, l'antineutrino, est associée à une émission d'électrons (DOE, 1993).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Le processus de désintégration bêta (moins et plus) est montré dans la figure (2.4) ci-dessous ;

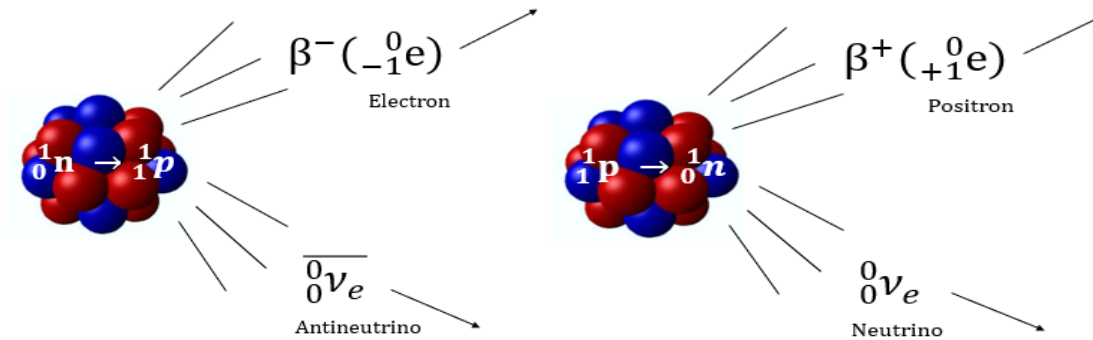


Figure 2.4. Processus de désintégration bêta (plus et moins). (L'Annunziata, 2007).

La désintégration bêta est une transformation isobarique, le nombre de masse, A, reste constant (Gardel, 1959).

Dans le cas de la désintégration β^- , le noyau se transforme selon l'équation suivante (Gambini et Granier, 2007) :



Dans le cas de la désintégration β^+ , le noyau se transforme de la façon suivante (Gambini et Granier, 2007) :



- **Désexcitation nucléaire et rayons gamma**

Après une désintégration alpha ou bêta, le noyau est souvent laissé dans un état excité, ce qui signifie que la décomposition produit un noyau qui a encore un excès d'énergie. Cette énergie est perdue en émettant des rayonnements appelés rayons gamma (Berne et al, 2008).

L'émission du rayonnement gamma, est une transition dite « isomérique » (TI), elle permet le passage d'un état excité à un état plus stable sans variation du nombre de masse, A, ni du nombre atomique, Z ; un simple changement de l'état énergétique du noyau excité a lieu (Gardel, 1959).

Les rayonnements gamma, sont comme la lumière, des rayonnements électromagnétiques, se propageant à la vitesse de la lumière (300000 km.s^{-1} dans le vide) sous forme de faisceaux d'énergie que l'on appelle, photons. Ils sont caractérisés par une longueur d'onde, λ , excessivement courte ($\sim 10^{-16} \text{ m}$), une fréquence, ν , très élevée et par conséquent très haute énergie ($E = h\nu$), l'énergie qu'ils transportent peut aller de quelques dizaines de milliers d'électronvolts à plusieurs millions (Gardel, 1959 ; Foes, 2009 ; Berne et al, 2008).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Habituellement, la durée de l'état excité est très brève, 10^{-12} à 10^{-11} s. Dans certains cas exceptionnels, la durée de vie de l'état excité est longue, supérieure à 0.1 s. Par convention, le noyau ainsi formé est dit dans un état métastable, identifié par la lettre m inscrite à la suite du nombre de masse, A (Gambini et Granier, 2007).

2.4.3. Pouvoir de pénétration des rayonnements ionisants

A. Particules alpha

En raison de leur masse relativement importante et de leur charge (+2 unités) ; les particules alpha interagissent facilement avec les matériaux qu'elles rencontrent, et sont très ionisantes. La plupart des particules alpha ont des énergies comprises entre 4 et 6 MeV, ne se déplacent que de quelques centimètres dans l'air et sont généralement arrêtées par une feuille de papier, elles sont donc très peu pénétrantes. Ce type de rayonnement présente un risque interne pour la santé par inhalation, ingestion ou absorption cutanée. (Berne et al, 2008).

B. Particules bêta

Les particules bêta sont des électrons ou des positrons énergétiques. Ils interagissent avec la matière mais moins facilement que les particules alpha. Les particules bêta peuvent voyager jusqu'à plusieurs mètres dans l'air et sont arrêtées par de fines couches de métal ou de plastique (Charlton, 1986 ; Berne et al, 2008).

C. Rayons gamma

Les rayons gamma peuvent voyager jusqu'à des centaines de mètres dans l'air et peuvent facilement pénétrer à travers la plupart des matériaux (Berne et al, 2008). Contrairement aux rayonnements alpha et bêta, les rayons gamma ne sont pas arrêtés mais seulement atténués. Leur atténuation suit une loi physique de type exponentiel (équation (2.1)) dès qu'une épaisseur minimale d'écran a été franchie. Pour cela, des matériaux de forte densité (le plomb par exemple) sont utilisés (Delacroix et al, 2006).

Pour un faisceau étroit de rayons gamma, mono-énergétiques, d'intensité I_0 , à travers un milieu de densité d , l'intensité résiduelle après avoir traversé une distance x est donnée par (Charlton, 1986) :

$$I = I_0 \exp(-\mu_{eff} \cdot x \cdot \rho) \quad (2.7)$$

I_0 : Intensité initiale ;

μ_{eff} : Coefficient d'absorption massique effective ($\text{Kg} \cdot \text{m}^2$) ;

x : Epaisseur (m) ;

ρ : Densité de la matière ($\text{Kg} \cdot \text{m}^{-3}$).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Le pouvoir de pénétration des particules alpha, bêta et des rayons gamma est illustré dans la figure (2.5) ;

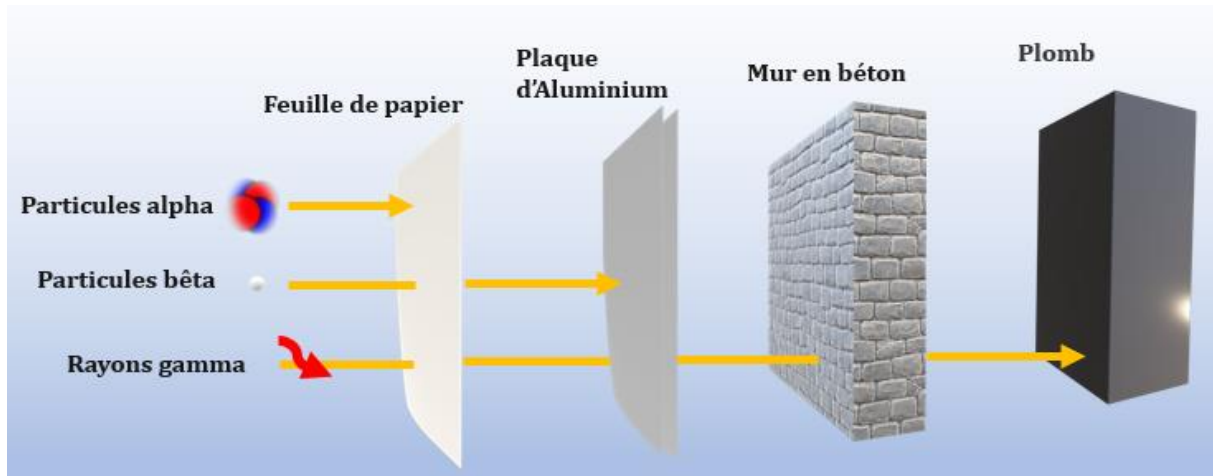


Figure 2.5. Pouvoir de pénétration des particules alpha, bêta et des rayons gamma (Delacroix et al, 2006).

2.5. Traceurs radioactifs

Depuis sa découverte, la radioactivité est utilisée à diverses fins. L'industrie et la recherche utilisent des sources de rayonnements ionisants dans une grande variété d'applications.

Les sources radioactives utilisées sont classées en deux catégories distinctes :

- Sources scellées, dont la matière radioactive est enfermée dans une enveloppe dont l'étanchéité permet à la fois le passage du rayonnement selon l'intensité utile et la réduction maximale du risque de contamination en évitant toute dispersion de matière radioactive dans le milieu ambiant (Foos, 2009). Elles sont utilisées comme source de rayonnement pour étudier l'interaction d'un rayonnement avec la matière (Charlton, 1986).
- Sources non scellées, dont la matière radioactive se trouve dans un état aisément dispersible, par exemple : une solution radioactive liquide. Elles sont souvent utilisées comme traceurs (AIEA, 2011 ; Charlton, 1986).

2.5.1. Définitions

Les traceurs sont définis comme des signaux ou des caractères distinctifs naturellement ou artificiellement associés à certains individus d'une population à étudier et qui permettent, en repérant et en suivant « à la trace » ces éléments « marqués », d'identifier cette entité et d'en observer le devenir et le cheminement au cours d'un processus déterminé, qu'il soit chimique, physique ou biologique (Foos, 2009).

Un radiotraceur est un composé chimique dont l'atome a été marqué, en remplaçant l'isotope stable par son homologue radioactif dont l'instabilité, génératrice de rayonnements, permet de le détecter avec une grande facilité et une extrême sensibilité (Foos, 2009).

2.5.2. Classification des radiotraceurs

A. Radiotraceurs intrinsèques et extrinsèques

Les radiotraceurs intrinsèques (radiotraceurs chimiques) sont des molécules chimiquement identiques à la substance tracée, par exemple : $^3\text{H}_2\text{O}$ pour l'eau, $^{24}\text{NaOH}$ pour le NaOH ou $^{14}\text{CO}_2$ pour le CO_2 , etc. Dans ce cas, la substance est tracée de l'intérieur, dans l'intimité de son noyau, par conséquent le traceur suivra tous les mouvements et toutes les réactions de la molécule elle-même. Ils sont utilisés pour l'étude de la cinétique des réactions chimiques, des solubilités, des processus dominés par la diffusion atomique et moléculaire, etc. (Axelsson et al, 2004).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Les radiotraceurs extrinsèques (radiotraceurs physiques) sont constitués de molécules pouvant s'identifier à un milieu dont on veut connaître les caractéristiques hydrodynamiques. Toutes les substances qui permettent le traçage en dehors de la structure moléculaire ou ionique entrent dans cette catégorie. (Bjørnstad et al, 2004) Industriellement, cette catégorie de radiotraceur est la plus utilisée. (Charlton, 1986).

B. Radiotraceurs naturels et artificiels

Les radiotraceurs naturels, comme leur nom l'indique, sont générés par la nature, citons à titre d'exemple le radiotraceur naturel $^{14}\text{CO}_2$, utilisé pour étudier les variations et l'efficacité de la sélection végétale. Cette classe de radiotraceurs, est principalement utilisée pour tracer des processus dans l'environnement, les études géosphériques, biologiques et agricoles et ne sont pas particulièrement pertinents pour l'étude des processus industriels (Axelsson et al, 2004).

La plupart des radioisotopes servant de radiotraceurs et utilisés industriellement, sont artificiels. Leur production repose sur la modification du rapport N/Z d'une « matière-cible » soit par :

- Irradiation neutronique d'isotopes stables dans des réacteurs nucléaires (Foos, 2009).
- Irradiation d'isotopes stables par des particules chargées d'énergie élevée (particule alpha, protons, ions lourds, etc.) dans des accélérateurs tels que les cyclotrons (Foos, 2009).
- Utilisation des générateurs de radioisotopes parent-fils : Un générateur de radionucléides est un dispositif chimique/physique/mécanique qui est basé sur la relation génétique nucléaire parent-fils. Dans le générateur, un noyau parent de longue période se désintègre en un noyau fils de période beaucoup plus courte. La séparation des deux espèces se fait par voies chimiques : le noyau parent est adsorbé sur un support matériel – une résine échangeuse d'ions- contenue dans une petite colonne, tandis que le noyau fils est extrait hors du générateur par un solvant sélectif (Sood et al, 2000 ; Berne et al, 2008). Le noyau parent est lui-même produit dans un réacteur ou dans un cyclotron (Sood et al, 2000).

Le principe des générateurs d'isotopes est illustré dans la figure (2.6) ;

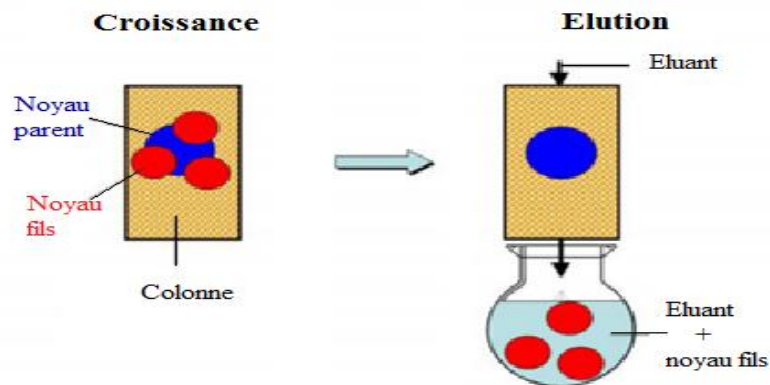


Figure 2.6. Principe du générateur de radio-isotopes (IAEA, 2013)

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

2.5.3. Caractéristiques et critères de choix d'un radiotraceur

Le choix d'un radiotraceur approprié est essentiel pour mener à bien une étude particulière. Les caractéristiques suivantes sont à prendre en compte dans le choix d'un radiotraceur (Pant et al, 2001 ; Berne et al, 2008) :

- Comportement physico-chimique

Les propriétés physiques et chimiques du radiotraceur doivent être identiques à celles du système à étudier (Charlton, 1986).

- Demi-vie

L'utilisation d'un radiotraceur de demi-vie courte est souhaitable afin de réduire les résidus radioactifs dans les flux de sortie mais aussi pour des raisons de sécurité radiologique. (Charlton, 1986). Cependant, la période radioactive choisie doit être suffisante pour permettre le transport, la préparation et l'utilisation du radiotraceur (Charlton, 1986).

- Activité

L'activité est un facteur important à considérer du point de vue de la sûreté radiologique (Pant et al, 2001). De plus, il est impératif que l'activité du radiotraceur soit, compte tenu de la dilution et possibilité de fractionnement du flux de processus, suffisante pour être détectable (Charlton, 1986).

- Types et énergies des rayonnements émis

La plupart des radiotraceurs utilisés industriellement sont des émetteurs de rayons gamma, car ils ont la capacité à pénétrer la plupart des matériaux même les plus denses, en effet, de nombreuses mesures peuvent être effectuées en attachant simplement les détecteurs de rayonnement à la surface des canalisations ou des cuves (Charlton, 1986 ; Pant et al, 2001).

L'énergie du rayonnement doit être suffisamment élevée pour :

- Assurer le passage des rayonnements à travers les parois et par conséquent leur détection ;
- Minimiser la quantité de radiotraceur utilisée. (Charlton, 1986)

Des rayons gamma d'énergie de 140 keV et plus se sont révélés utiles (Berne et al, 2008).

- Disponibilité et coût

Le radiotraceur devrait être disponible, à un coût modéré (Berne et al, 2008).

- Radiotoxicité

La radiotoxicité est la capacité du radionucléide à causer des dommages, en raison des radiations émises, lorsqu'il est introduit dans le corps humain. (IAEA, 1963) Pour cela, la détention et l'utilisation de substances radioactives doivent répondre à des obligations réglementaires qui garantissent la protection des personnes et des biens. (Delacroix et al, 2006)

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

2.5.4. Radiotraceurs potentiels

Le tableau (2.1) répertorie la liste des radiotraceurs les plus utilisés dans l'industrie.

Tableau 2.1. Radiotraceurs utilisés dans l'industrie (Berne et al, 2008)

Isotopes	Demi-vies (unité de temps)	Radiations	Energie (MeV) Emission (%)	Formes chimiques	Phase tracée
Sodium-24 (²⁴ Na)	15heures	Gamma	1,37 (100%) 2,75 (100%)	Carbonate de sodium	Aqueuse
Brome-82 (⁸² Br)	36heures	Gamma	0,55 (70%) 1,32 (27%)	Bromure d'ammonium p- Dibromobenzene Dibrophenyl Bromométhane, Bromoéthane	Aqueuse Organique Organique Gazeuse
Lanthane-140 (¹⁴⁰ La)	40heures	Gamma	1,16 (95%) 0,92 (10%) 0,82 (27%) 2,54 (4%)	Chlorure de lanthane Oxyde de lanthane	Aqueuse/solide Solide
Or-198 (¹⁹⁸ Au)	2,7 jours	Gamma	0,41 (99%)	Acide tétrachloroaurique	Aqueuse/solide
Mercure-197 (¹⁹⁷ Hg)	2,7 jours	Gamma	0,077 (17%)	Métal	Mercure
Iode-131 (¹³¹ I)	8n04 jours	Gamma	0,36 (80%) 0,64 (9%)	Iodure de sodium Iodure de benzène	Aqueuse Organique
Chrome-51 (⁵¹ Cr)	28 jours	Gamma	0,32 (9.8 %)	Chlorure de chrome	Aqueuse
Molybdène-99 (⁹⁹ Mo)	67 heures	Gamma	0,18 (4.5 %) 0,74 (10%) 0,78 (4%)	Molybdate de sodium	Aqueuse
Technétium- 99m (^{99m} Tc)	6heures	Gamma	0,14 (90%)	Pertechnétate de sodium	Aqueuse
Scandium-46 (⁴⁶ Sc)	84 jours	Gamma	0,89 (100%) 1,84 (100%)	Chlorure de scandium Oxyde de scandium	Aqueuse/solide Solide
Xénon-133 (¹³³ Xe)	5,27 jours	Gamma	0,08 (100%)	Xénon	Gazeuse
Krypton-79 (⁷⁹ Kr)	35 heures	Gamma	0,51 (15%)	Krypton	Gazeuse

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

2.5.5. Technétium ^{99m}Tc

Le Technétium, élément 43 du tableau de Mendeleïev, est un métal de transition d'origine synthétique découvert par Perrier et Segré en 1937, se présentant sous forme d'une poudre gris argent. Le technétium ne possède aucun isotope stable, tous les isotopes connus sont en effet radioactifs. Le plus utilisé est le Technétium-99 métastable ou ^{99m}Tc (Pascal, 1960).

L'ensemble des propriétés du technétium sont résumées dans le tableau (2.2) ;

Tableau 2.2. Propriétés générales du Technétium (Pascal, 1960 ; Schwochau, 2000)

Propriétés	
Symbole	Tc
Numéro atomique	43
Famille	Métaux de transition
Groupe	VIIB
Configuration électronique	[Kr] $4d^5 5s^2$
Densité (/)	11,497
Température de fusion (°C)	2140

Le ^{99m}Tc est un émetteur γ ayant une énergie caractéristique de 140 (keV), détectable à travers des parois d'environ 20 mm d'épaisseur. C'est un radionucléide de courte période radioactive ($T_{1/2} = 6$ heures). Ces caractéristiques en font du ^{99m}Tc un radiotraceur convenable à un large éventail d'études, aussi bien dans le domaine médical qu'en industrie (Berne et al, 2008 ; Chacko et al, 2009).

- Obtention du ^{99m}Tc

Le ^{99m}Tc est produit dans des générateurs ($^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$), par désintégration β^- du ^{99}Mo , lui-même obtenu par fission de l'uranium-235 ou par irradiation neutronique du ^{98}Mo (^{98}Mo (n,γ) ^{99}Mo) dans des réacteurs nucléaires (Sood et al, 2000).

Les générateurs ($^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$), sont disponibles dans tous les services de médecine nucléaire, et permettent la production de technétium-99m, à faible coût, et sous forme de pertechnétate de sodium ($\text{Na}^{99m}\text{TcO}_4$), qui est la forme chimique appropriée pour tracer les systèmes aqueux dont le potentiel redox est incapable de réduire l'ion pertechnétate $^{99m}\text{TcO}_4^-$. De nombreuses recherches ont montré que $\text{Na}^{99m}\text{TcO}_4$ est idéal pour le traçage radioactif de l'eau (Chacko et al, 2009 ; IAEA, 2013).

Le ^{99m}Tc donne le ^{99}Tc par transformation isomérique, celui-ci étant un radionucléide d'une période de $2,1 \times 10^5$ ans qui par décroissance β^- donne l'élément stable le ruthénium-99 (^{99}Ru), l'ensemble des transformations sont résumées dans la figure (2.8) (Sood et al, 2000).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

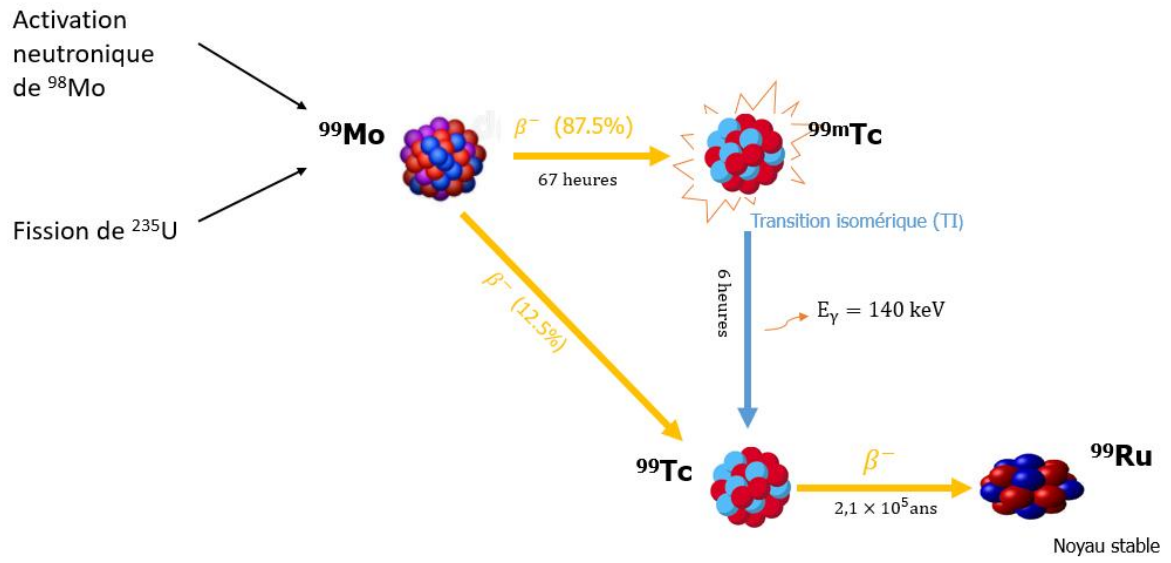


Figure 2.7. Schéma de décroissance du couple $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ (Sood et al, 2000).

2.6. Radioprotection

Les radiotraceurs émettent des rayonnements ionisants, qui sont potentiellement dangereux pour la santé et, par conséquent, des mesures de radioprotection sont nécessaires à toutes les étapes de l'exploitation (Berne et al, 2008).

2.6.1. Définition de l'irradiation et de la contamination.

L'irradiation est la pénétration d'un rayonnement à l'intérieur de la matière, inerte ou vivante. En la traversant, le rayonnement va y perdre tout ou partie de son énergie (Foos, 2009).

La contamination est le dépôt d'une substance sur un support (inerte ou vivant) (Foos, 2009). Le contrôle de la contamination s'effectue avec différents types d'équipements selon qu'il s'agisse de contamination atmosphérique (Bq.m^{-3}) ou de contamination surfacique (Bq.cm^{-2}) (Delacroix et al, 2006).

2.6.2. Dose absorbée, équivalente et efficace

La quantité d'énergie cédée par rayonnement par unité de masse de matière est appelée dose absorbée et s'exprime en gray (Gy). (Delacroix et al, 2006)

$$1 \text{ Gy} = 1 \text{ Joule. Kg}^{-1} \quad (2.8)$$

Pour une même valeur de la dose absorbée, les photons, les neutrons ou les particules alpha n'ont pas la même « efficacité biologique ». La dose absorbée doit alors être pondérée en la multipliant par un facteur tenant compte de la nature du rayonnement et de la sensibilité des tissus ou organes irradiés. (Par exemple pour les rayons gamma le facteur qualité vaut 1). On parlera alors de dose équivalente et qui sera exprimée en sievert (Sv) (Delacroix et al ; Charlton, 1986)

$$1 \text{ Sv} = 1 \text{ Gy} = 1 \text{ Joule.Kg}^{-1} \quad (2.9)$$

Le débit de dose est la dose reçue dans un laps de temps donné. L'unité retenue est le sievert par heure (Sv/h).

Pour considérer le détriment global des rayonnements agissant sur les différents tissus ou organes d'un individu, on définit la dose efficace (mesuré en Sievert) à partir de laquelle sont fondées les limites de doses pour l'organisme entier. (Delacroix et al, 2006).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Les limites de doses sont résumées dans le tableau (2.3) ci-après ;

Tableau 2.3. Limites de doses en mSv pour 12 mois consécutif (Art. R. 231-76 du code de travail)

	Travailleurs	Apprentis et étudiants
Dose efficace (mSv) Exposition externe et interne	20	6

2.6.3. Modes d'exposition aux rayonnements ionisants

A. Exposition externe

Trois types d'exposition externe sont distingués :

- Exposition externe au contact (toucher les contenants des matières radioactives (bêchers, pipettes, seringues, etc.)) ;
- Exposition externe à distance ;
- Exposition externe par immersion (manipulation des sources radioactives gazeuses) (Delacroix et al, 2006).

La surveillance de l'exposition externe est réalisée par dosimétrie passive et/ou opérationnelle.

B. Exposition interne

L'exposition interne résulte de l'incorporation des radionucléides dans l'organisme par ingestion ou inhalation (Delacroix et al, 2006).

2.6.4. Principes fondamentaux de la radioprotection

La protection des travailleurs exposés aux rayonnements ionisants repose essentiellement sur les principes de justification, d'optimisation et de limitation.

- Justification

Les installations et activités qui entraînent des risques radiologiques doivent être globalement justifiées par une analyse des avantages qu'elles procurent sur le plan individuel ou collectif, notamment en matière sanitaire, sociale, économique ou scientifique. (Delacroix et al, 2006 ; CNRS, 2018)

- Optimisation

Pour les expositions provenant de n'importe quelle source, à l'exception de l'exposition médicale thérapeutique, les doses, le nombre de personnes exposées et la probabilité d'avoir

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

des expositions doivent tous être maintenus aussi bas que raisonnablement réalisables. (Principe ALARA) (Berne et al, 2008)

- **Limitation**

Les doses doivent être réduites afin qu'elles ne dépassent pas les limites fixées (Delacroix et al, 2006).

2.6.5. Protection contre l'exposition externe et interne

A. Contre l'exposition externe

Le moyen de protection, contre l'exposition externe, le plus élémentaire est connu sous le nom de « TDS » ou « Temps, Distance et Blindage » (Berne et al, 2008).

- Réduire le temps passé autour de la source de rayonnement ;
- S'éloigner de la source radioactive ;
- Augmenter l'épaisseur du blindage pour atténuer l'énergie des rayonnements (Berne et al, 2008; Foos, 2009).

B. Contre l'exposition interne

La protection contre l'exposition interne repose sur les principes suivants : conception des équipements et locaux (ventilation, filtration, etc.), protection individuelle adapté (blouses, gants, masques, etc.) (Delacroix et al, 2006).

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

2.6.6. Gestion des effluents radioactifs liquides

La gestion peut se faire par décroissance des déchets, elle consiste à entreposer les déchets et effluents sur site jusqu'à réduction significative de leurs activités (CNRS, 2018).

Pour être gérés par décroissance, les déchets et effluents doivent répondre aux 2 conditions suivantes :

- Ne contenir que (ou n'être contaminés que par) des radionucléides de période radioactive inférieure à 100 jours ;
- Ne pas générer de produits de filiation dont la période serait supérieure à 100 jours (CNRS, 2018).

Cependant, dans le cas où les produits de filiation sont des radionucléides de période supérieure à 100 jours, les déchets peuvent être gérés par décroissance si le rapport de la période du radionucléide père sur celle du radionucléide descendant est inférieur à 10^{-7} . C'est le cas en particulier du ^{99m}Tc (période 6 heures) dont le rapport des périodes avec son fils, le ^{99}Tc (période $2,1 \times 10^5$ ans) est égale à $3,26 \cdot 10^{-9}$ (CNRS, 2018).

Après décroissance, les effluents liquides peuvent être rejetés dans des conditions identiques aux effluents non radioactifs dans un réseau d'assainissement à condition que leur activité volumique doit être inférieure à la valeur seuil de 10Bq/L (CNRS, 2018).

2.7. Applications industrielles des radiotraceurs et travaux antérieurs

Les applications industrielles des radiotraceurs sont extrêmement nombreuses et diversifiées. Les radiotraceurs rendent souvent possible l'obtention de résultats d'une rare précision grâce à des méthodes relativement aisées à mettre en œuvre. Leur utilisation permet de déterminer la plupart des paramètres régissant les déplacements de la matière dans les installations industrielles. En introduisant un radiotraceur dans un circuit de production industrielle puis en mesurant, en fonction du temps, à divers points, sa concentration, divers paramètres peuvent être déduits. (Foos, 2009 ; Lévêque, 1962)

Industriellement, cette technique est appliquée principalement pour :

- La détection des fuites ;
- La mesure de la corrosion des tuyauteries ;
- Les études de mélange et de mixage ;
- La mesure du débit d'écoulement ;
- Le diagnostic et l'analyse des processus par la DTS (Ramamoorthy et Haji-Saeid, 2004).

2.7.1. Mesure du débit d'écoulement

Les radiotraceurs peuvent être utilisés dans la mesure du débit afin d'étalonner les débitmètres existants ou, pour mesurer les débits lorsque l'installation de débitmètres est difficile. La mesure du débit à l'aide de radiotraceurs est applicable aux flux liquides, gazeux ainsi qu'aux flux solides. (Viitanen, 2005)

La méthode la plus courante pour la mesure du débit est la "méthode du temps de transit", elle est basée sur la mesure du temps de séjour d'une impulsion de traceur entre deux points de mesure séparés par une distance connue, d . Cette méthode est particulièrement adaptée aux écoulements dans les canalisations. (Viitanen, 2005 ; Kasban et al, 2010)

Le débit volumétrique, Q , est donné par :

$$Q = \frac{d}{\Delta t} S = \frac{d}{t_r} \frac{\pi D^2}{4} \quad (2.10)$$

D : Diamètre interne de la canalisation (m).

S : Section de la canalisation (m^2).

d : Distance entre les deux points de mesure (m).

$t_r = \Delta t = t_2 - t_1$: Temps de transit (s).

La méthode du temps de transit est illustrée à la figure 2.8.

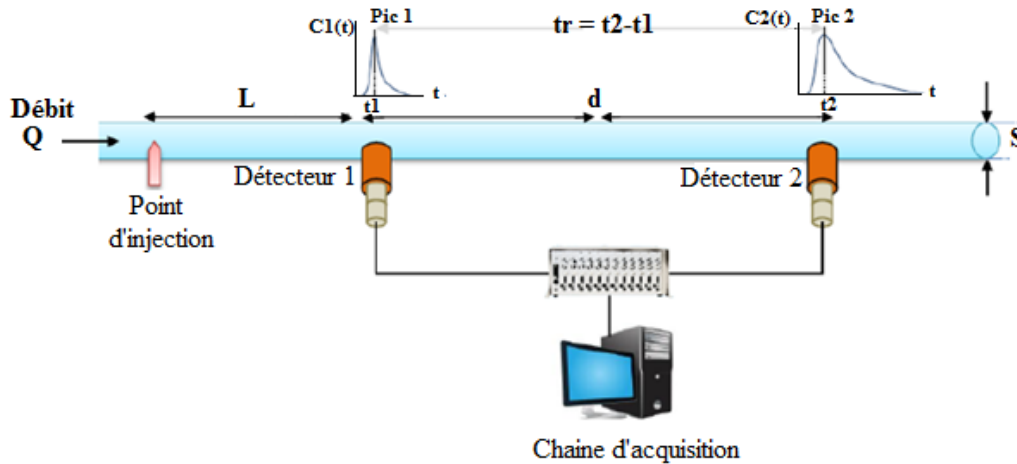


Figure 2.8. Mesure du débit par la méthode du temps de transit (Yunos et al, 2018).

Selon Pant et al. (2016) une longueur de mélange adéquate entre le point d'injection et le premier point de détection est la condition la plus critique pour une mesure précise du débit.

D'après Yunos et al. (2018) La longueur de mélange effective, L , (figure 2.9) doit être au moins égale à 100 voire à 200 fois le diamètre interne de la conduite dans le cas d'une section de canalisation droite. Cette longueur de mélange peut être réduite par la présence de coudes, des vannes etc. créant des turbulences supplémentaires qui améliorent le mélange.

Plusieurs études ont été menées dans ce contexte, la plus récente est celle de Miroslav et al. 2020 (Miroslav et al., 2020) qui ont mesuré le débit circulant dans un flow rig d'eau à échelle pilote par la méthode de transit, pour l'étalonnage des débitmètres existants, en utilisant le Technétium-99 (activité : 2 GBq) comme radiotraceur. Les résultats de l'étude ont montré la possibilité d'un étalonnage des débitmètres avec une erreur relative inférieure à 1%.

2.7.2. Diagnostic et analyse des processus par la DTS

La détermination de la distribution des temps de séjour d'un processus est probablement l'application industrielle la plus utilisée des traceurs radioactifs.

Plusieurs études de DTS moyennant des radiotraceurs ont été menées sur divers systèmes à échelle de laboratoire, pilote et industriel. Quelques travaux de recherche récentes effectuées dans ce sens seront présentés dans ce paragraphe.

Sheoran et al. (2016) (Sheoran et al., 2016) ont mesuré la distribution des temps de séjour de la phase liquide dans un digesteur industriel de pâte à papier, afin d'identifier les dysfonctionnements et étudier la dynamique de l'écoulement. Le brome-82 (activité : 110MBq) a été utilisé comme radiotraceur. Les courbes de DTS obtenues ont montré l'existence de court-circuit dans les tubes 1 et 2 du digesteur. Les résultats de simulation à l'aide de logiciel DTSPRO V.4.2, ont indiqué qu'une association complexe des modèles de base s'est avérée appropriée pour décrire l'écoulement de la phase liquide.

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Noraishah et al. (2017) (Noraishah et al, 2017) ont mené une étude sur la distribution des temps de séjour dans une centrale électrique, en utilisant le Technicium-99 d'activité d'environ 10,6 Bq. La modélisation de la DTS a été réalisée à l'aide du logiciel DTS de l'Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA), elle a montré que les modèles les plus appropriés pour décrire l'écoulement sont : le modèle à dispersion axiale, le modèle à dispersion axiale avec échange et le modèle des mélangeurs parfaits en série.

Dans le but d'étudier l'effet de la capacité de recirculation sur l'hydrodynamique de deux réacteurs de production d'acétate d'éthyle, à échelle industrielle, Datta et al. (2019) (Datta et al., 2019), ont utilisé le Brome-82 ($\text{NH}_4^{82}\text{Br}$) d'activité de 5 mCi comme radiotraceur pour mesurer la DTS. Les résultats ont montré que la recirculation affecte les caractéristiques d'écoulement et le temps de séjour moyen. Pour trois différentes capacités de recirculation les réacteurs R1 et R2 présentent en plus d'un volume mort, un court-circuit. Le réacteur R1 doit fonctionner à une capacité de recirculation maximale, le réacteur R2, par contre, doit fonctionner à la plus basse capacité.

El Korchi et al. (2019) (El Korchi et al, 2019), ont utilisé le Technétium-99m d'une activité de 29,6 MBq comme radiotraceur pour déterminer la DTS dans une colonne de distillation à garnissage, conçue à échelle de laboratoire. Les données obtenues ont été traitées puis modélisées par deux modèles : le modèle de cascade de mélangeurs parfaits et le modèle de cascade de mélangeurs parfaits avec échange. Les résultats montrent que le modèle le plus adapté pour décrire l'écoulement dans la colonne est le modèle de cascade de mélangeurs parfaits avec échange.

Goswami et al. 2019 (Goswami et al., 2019), ont utilisé des particules de charbon marquées à l'or-198 (^{198}Au) d'activité d'environ 1,5 mCi comme radiotraceur, afin d'étudier la dynamique des particules de charbon (fines et grosses) dans un gazéificateur à lit fluidisé, à échelle pilote. Les DTS mesurées à différentes conditions de fonctionnement sont traitées et simulées avec le logiciel DTSpro. Les résultats de la simulation ont indiqué que le gazéifieur se comportait comme un mélangeur idéal dans toutes les conditions de fonctionnement pour les particules fines. Une petite fraction des particules plus grossières était court-circuitée à température ambiante.

Gitau et al. (2019) (Gitau et al., 2019) ont mesuré la distribution des temps de séjour dans un broyeur à boulets d'une cimenterie, dans le but d'évaluer les performances et d'optimiser le fonctionnement. Le radiotraceur utilisé est le technétium-99m (activité : 2 GBq) adsorbé sur le clinker. Les résultats ont montré qu'une dispersion axiale s'y produisait.

Adwet et al (2019). (Adwet et al., 2019) ont étudié la distribution des temps de séjour dans un bassin de stabilisation des eaux usées. L'iode-131 d'activité de 5 GBq a été utilisé comme radiotraceur. Les résultats de l'enquête ont confirmé qu'il existait plusieurs anomalies d'écoulement, un volume mort de 93% et un court-circuit de 3 %. Le modèle de cascade de trois RCPA en parallèle a été proposé et s'est avéré approprié pour décrire le comportement de l'écoulement des eaux usées dans ce bassin.

Chapitre 2 : Radioactivité et radiotraceur

Luabanya et al. ((2020) (Luabanya et al., 2020) ont utilisé l'approche de la DTS pour évaluer les paramètres hydrodynamiques d'un digesteur aérobie d'une station d'épuration des eaux usées. En utilisant le technicium-99m ($\text{Na } ^{99\text{m}}\text{TcO}_4$) d'une activité de 25,9 GBq comme radiotraceur. Les résultats de l'enquête ont révélé l'existence d'un volume mort de 89%. Les mélangeurs parfaits en série avec d'échange décrivaient le mieux le type d'écoulement existant dans le digesteur, après modélisation de l'écoulement avec le logiciel DTSPRO V4.

Partie 2 :

Expérimentation

Chapitre 3 :

Matériel et méthode

Chapitre 3 : Matériel et méthode

L'objectif de ce présent travail est d'étudier l'effet de la variation du débit d'alimentation sur la distribution des temps de séjour dans une colonne de flow rig à échelle de laboratoire. La DTS est déterminée expérimentalement par traçage radioactif. Le radiotraceur utilisé est le Technétium-99 métastable fourni par l'Hôpital Mohamed Lamine Debaghine de Bab El Oued (ex Maillot).

3.1. Dispositif expérimental

Afin d'atteindre des conditions aussi proches que possible de celles rencontrées dans l'industrie, les expériences de détermination de la DTS par traçage radioactif ont été menées sur une colonne de flow rig considérée comme un modèle physique de simulation des réacteurs industriels. Le flow rig étudié (Figure (3.1)), a été acquis par le CRNA dans un cadre de projet de l'AIEA. C'est une installation conçue à échelle de laboratoire permettant de tester la méthode des radiotraceurs, à petite échelle, avant de l'appliquer dans l'industrie, pour s'assurer que les équipements et les logiciels sont fiables dans de telles applications et aussi pour mettre en évidence le potentiel de la technologie des radiotraceurs. Cette installation est constituée principalement :

- D'un ensemble de conduites en PVC de 32 mm de diamètre supportées sur une ossature métallique ;
- D'une colonne en plexiglass de 120 L, déposée sur un support métallique, elle est composée de quatre cuves agitées juxtaposées, les cuves (de diamètre intérieur de 12 cm et de diamètre extérieur de 36 cm et d'une hauteur de 40 cm) sont munies de chicanes pour améliorer le degré du mélange.
- D'un agitateur commun aux quatre cuves, muni de quatre pales (3 cm × 3 cm de dimension), qui tournent au moyen d'un moteur à courant continu et contrôlées par un variateur de vitesse, permettant ainsi d'agiter individuellement le mélange de chaque cuve.
- D'une pompe qui fait circuler le fluide à l'intérieur de l'installation en circuit fermé ;
- De deux débitmètres insérés dans deux branches différentes pour la mesure du débit d'écoulement, gradués avec deux échelles différentes ' $L \cdot \text{min}^{-1}$ ' et ' $\text{gal} \cdot \text{min}^{-1}$ ' (Le débit du fluide dans le système peut varier dans une fourchette de 4 à 40 L/min);
- De six vannes de deux à trois voies insérées dans le système de manière à orienter la circulation du fluide ;
- De deux vannes pour le réglage du débit ;
- D'une cartouche de résine échangeuse d'ions permettant de piéger le radiotraceur injecté après chaque essai pour réduire le bruit de fond et éviter toutes interférences entre deux expériences successives (si une série de mesures répétées doit être effectuée) ;
- D'un système de vidange permettant l'évacuation du fluide de la colonne à la fin de chaque expérience.

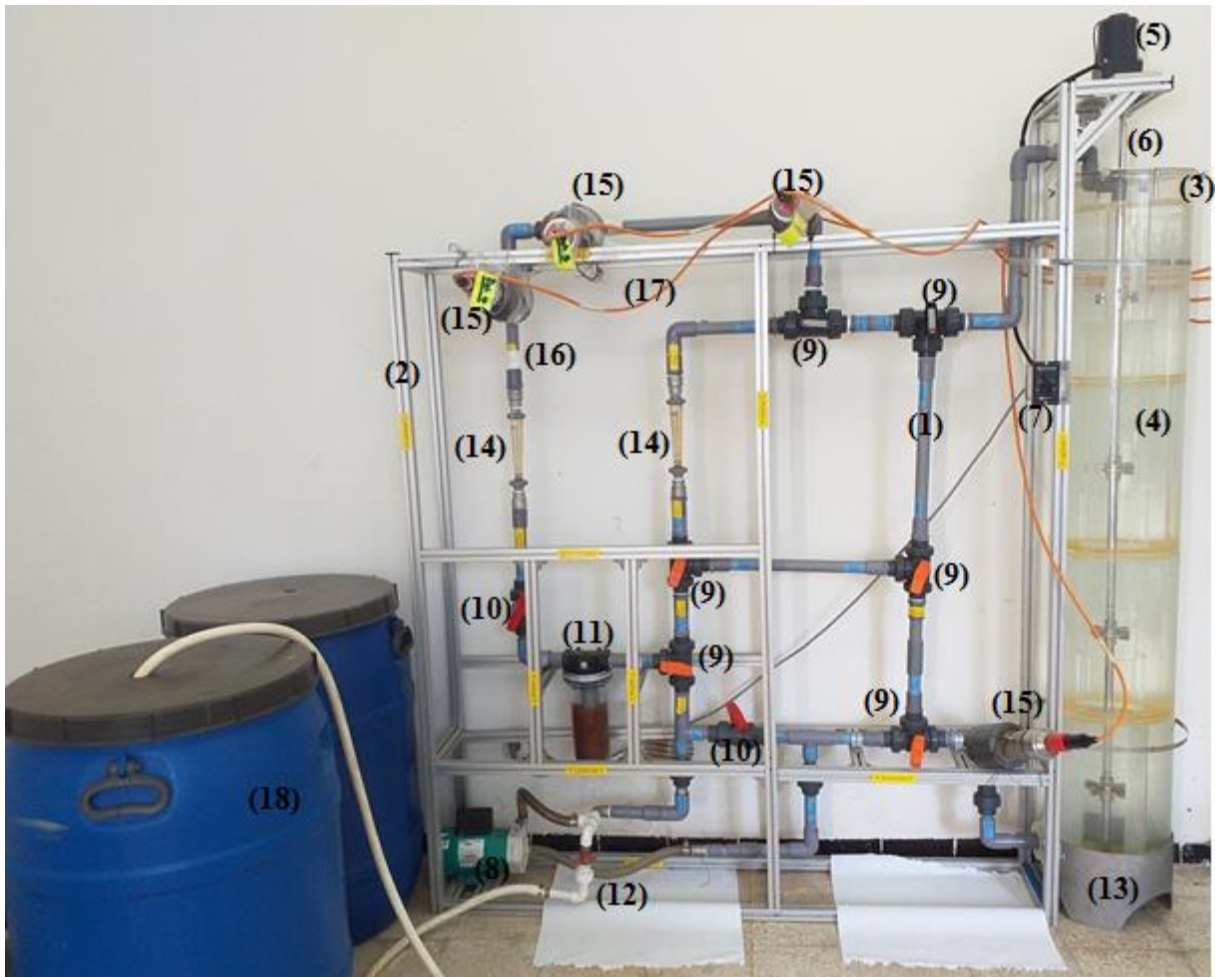


Figure 3.1. Photographie du dispositif expérimental.

(1) Conduites en PVC.

(2) Ossature métallique.

(3) Colonne en plexiglass de 120L.

(4) Cuve.

(5) Moteur à courant continu.

(6) Agitateur commun.

(7) Variateur de vitesse.

(8) Pompe.

(9) Vannes.

(10) Vanne pour réglage du débit.

(11) Cartouche de résine.

(12) Système de vidange.

(13) Support métallique.

(14) Débitmètres.

(15) Détecteurs collimatés.

(16) Point d'injection.

(17) Câbles coaxiaux.

(18) Fûts de stockage en plastique.

3.2. Radiotracteur utilisé et injection

Le fluide en circulation dans le flow rig est l'eau, par conséquent, un radiotracteur présentant les mêmes propriétés physico-chimiques que l'eau est le ^{99m}Tc [$T_{1/2} = 6$ heures ; énergie gamma : 140 keV (90%)], sous la forme d'une solution de pertechnétate de sodium $\text{Na}^{99m}\text{TcO}_4$, a été choisi.

Pour la réalisation de cette étude, quatre flacons de technétium- 99m d'une activité de 2 mCi ont été reçus de l'Hôpital Mohamed Lamine Debaghine de Bab El Oued (ex Maillot). Pour atténuer les rayons gamma émis les flacons ont été logés dans des conteneurs en plomb et transportés dans des véhicules blindés.

Une faible quantité de radiotracteur a été injectée dans le circuit et de manière instantanée (injection impulsion) à l'aide d'une seringue de 10 mL. Ce type d'injection a été choisi car il permet :

- D'économiser le produit ;
- De réduire l'exposition aux rayonnements émis ;
- De minimiser la quantité des matières radioactives dans les effluents liquides.

Le matériel et les produits utilisés sont présentés dans la figure (3.2) ci-dessous ;

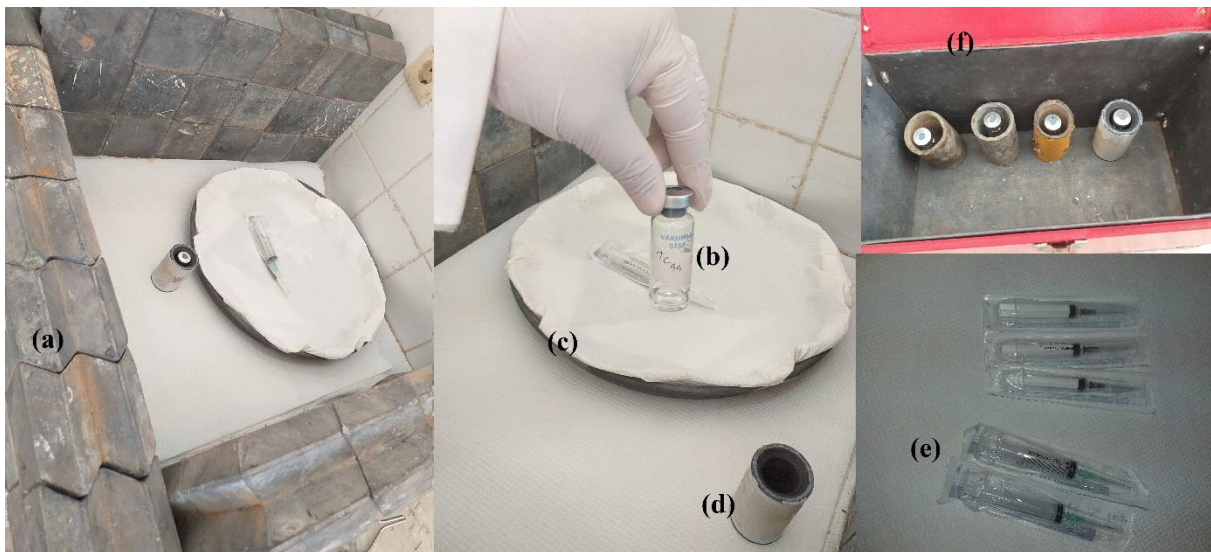


Figure 3.2. Matériel et produits utilisés : (a) Château de plomb (b) flacon de Technétium-99m (c) Plateau (d) Conteneur en plomb (e) Seringues (f) Malle de stockage en plomb.

3.3. Chaîne d'acquisition

Dans cette expérience, quatre détecteurs à scintillation collimatés (Figure (3.3)) ont été utilisés et placés à plusieurs endroits pour détecter la matière radioactive du point d'injection à la sortie du système :

- Un détecteur (D1) a été placé à quelques centimètres du point d'injection pour vérifier le type d'injection ;
- Deux détecteurs (D2 et D3) ont été placés sur une des canalisations horizontales du flow rig et séparés par une distance de 55 cm, destinés à la mesure du débit d'écoulement par la méthode du temps de transit. Afin de permettre l'homogénéisation du radiotraceur et d'assurer une bonne mesure du débit, le point d'injection a été judicieusement positionné à une distance égale à près de 51 cm avant D2 ;
- Le dernier détecteur (D4) a été placé à la sortie de la colonne pour la caractérisation hydrodynamique de cette dernière.

Ces quatre détecteurs sont connectés par des câbles coaxiaux à deux systèmes d'acquisition (GDP) réglés pour enregistrer les données de détection à des intervalles de temps réguliers. Chaque GDP est relié à un ordinateur exécutant le logiciel d'acquisition des données « Flow Measurement FM ».

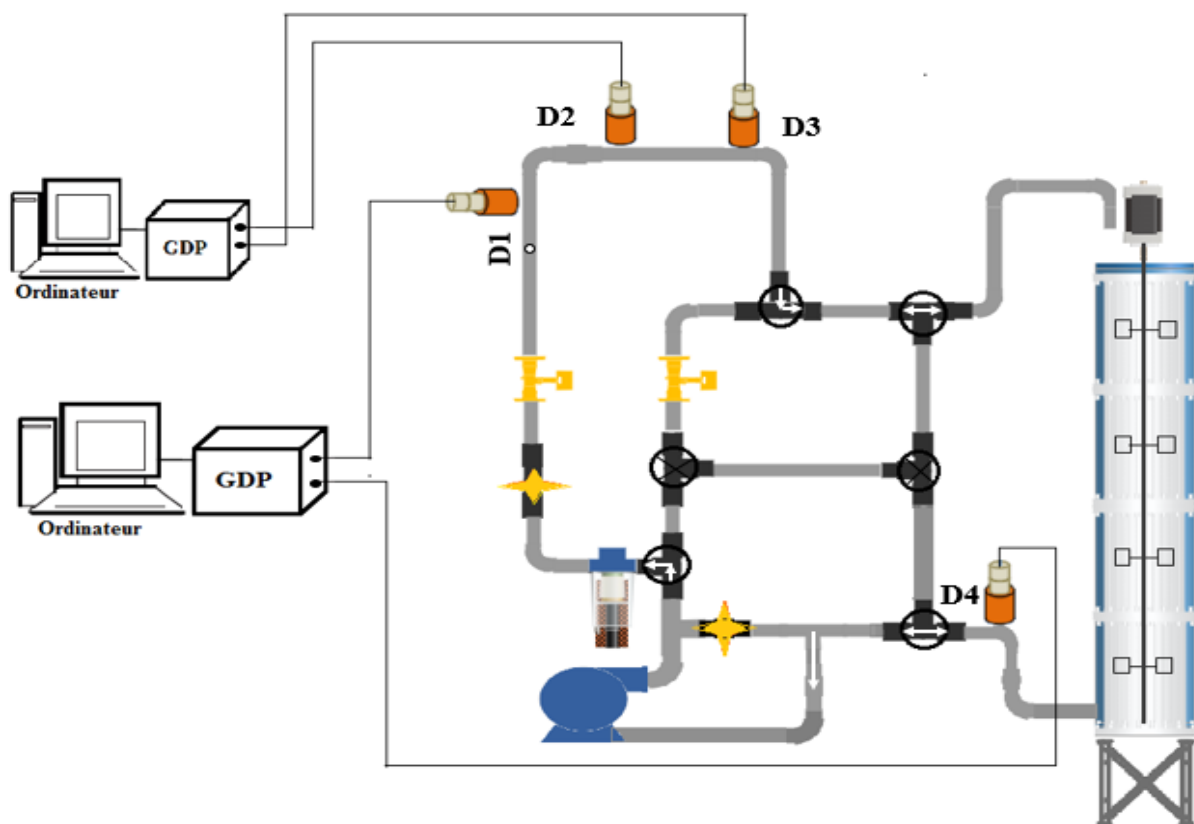


Figure 3.3. Schéma globale de l'installation.

3.3.1. Détecteurs à scintillation NaI

Les détecteurs à scintillation utilisent la propriété de certaines substances d'émettre de la lumière sous l'effet des rayonnements ionisants pour la mesure des radiations (Gambini et Grenier, 2007). La lumière de scintillation produite est convertie en un signal électrique par un tube photomultiplicateur (PMT). Le signal est transmis à un circuit interne de traitement de signal pour le comptage. Le comptage consiste à mesurer le nombre de particules pénétrant dans le détecteur par unité de temps. Cette mesure est binaire (on parle de coups) et donc la concentration de la matière radioactive est délivrée en cps ou nombre de coups/s (Pochet, 2005).

Les détecteurs à scintillation à l'iodure de sodium (NaI) sont les plus utilisés pour la détection on-line des rayons γ (ils sont capables de détecter les rayons gamma transmis par le traceur à travers les parois des installations) (El Korchi et al, 2019).

Dans cette étude, les détecteurs comportant un scintillateur à l'iodure de sodium (cristal 50mm×50mm de dimension), conçus par FORCE Institute, sont utilisés (Figure (3.4)). Leurs caractéristiques sont présentées ci-après :

Tableau 3.1. Caractéristiques des détecteurs à scintillation NaI (FORCE Institute, 1997)

Matériau de revêtement	Acier inoxydable
Dimension du revêtement	300mm× Ø64
Poids	2,6 Kg
Température d'utilisation	0-40°C



Figure 3.4. Détecteurs à scintillation NaI.

- **Collimateurs**

Pour éviter la détection des radiations environnantes et donc réduire le bruit de fond, les détecteurs sont placés dans des collimateurs en plomb de 22,6 mm d'épaisseur (FORCE Institute, 1997), montrés dans la figure (3.5),



Figure 3.5. Collimateurs en plomb.

3.3.2. Système d'acquisition (GDP : Gauging and Data Processing unit)

Le système d'acquisition utilisé pour assurer la collecte et le traitement des données est montré dans la figure (3.6), conçu par FORCE Institute. C'est un instrument standard qui peut être configuré pour plusieurs applications. Il peut être branché au maximum avec quatre détecteurs. La capacité de RAM de cet appareil est de 3250 enregistrements selon le nombre de détecteurs associés (FORCE Institute, 1997).

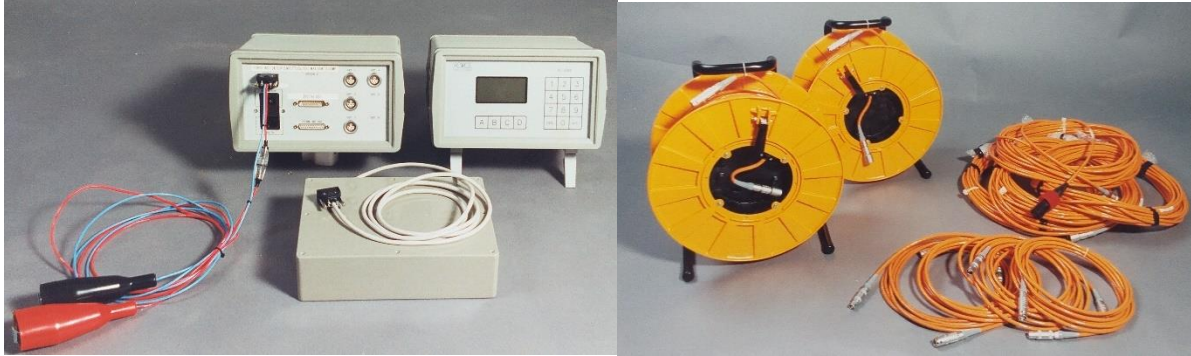


Figure 3.6. Système d'acquisition et câbles coaxiaux.

3.3.3. Ordinateur

L'ordinateur équipé du logiciel d'acquisition FM permet la visualisation des données (comptage/seconde) enregistrées en fonction du temps sous forme de spectres, qui donnent immédiatement l'aspect de la réponse.

- **Logiciel Flow Measurement FM**

En plus de la visualisation des données dans un temps aussi proche que possible du temps réel, le logiciel FM permet de déterminer avec précision la vitesse et par conséquent le débit d'un écoulement associé à un radiotraceur dans une portion de conduite fermée à section constante (Mesure du débit par la méthode du temps de transit). Sans les détecteurs et le GDP le logiciel n'est pas fonctionnel (FORCE Institute, 1997).

3.4. Traitement de spectres

Après avoir injecté le radiotracer dans le système, les données sont obtenues sous forme de spectres donnant le nombre de coups en fonction du temps, $n(t)$. Ces spectres ne peuvent pas être utilisés tels quels, ils doivent être traités avant toute analyse ultérieure. Les principaux traitements (ou corrections) des spectres expérimentaux sont les suivants :

3.4.1. Correction du bruit de fond

Cette étape consiste à éliminer le rayonnement de fond existant, qui correspond au niveau du signal avant l'injection du radiotracer dans le système. L'équation suivante est utilisée pour la correction du bruit fond (Berne et al, 2008 ; Kasban et al, 2010) :

$$n_b(t) = n(t) - B_r \quad (3.1)$$

Avec :

$n_b(t)$: Nombre de coups après correction du bruit de fond (cps).

$n(t)$: Nombre de coups mesuré (cps).

B_r : Valeur du bruit de fond (cps)

3.4.2. Correction de la radioactivité

Étant donné que les radiotraceurs se désintègrent de manière exponentielle avec le temps, il est nécessaire de corriger la radioactivité. Pour cela la relation suivante est utilisée (Berne et al, 2008 ; Kasban et al, 2010) :

$$n_r(t) = n_b(t)e^{\lambda t} = n_b(t)e^{\frac{\ln(2)t}{T_{1/2}}} \quad (3.2)$$

Avec :

$n_r(t)$: Nombre de coups après correction de la radioactivité (cps).

$n_b(t)$: Nombre de coups après correction du bruit de fond (cps).

λ : Constante de décroissance radioactive (s^{-1}).

t : Temps (s).

$T_{1/2}$: Période radioactive du radiotracer utilisé (s).

3.4.3. Correction du point de départ

Le système d'acquisition des données est généralement allumé avant l'injection pour garantir la détection du radiotracer. Afin de supprimer tout comptage avant l'injection une correction du point de départ est appliquée (Berne et al, 2008 ; Kasban et al, 2010). Les données seront notées $n_p(t)$.

3.4.4. Lissage des courbes

Le but du lissage est d'éliminer, ou du moins de diminuer, les fluctuations dues au comptage ou à l'électronique. Généralement, on fait appel à des logiciels (Dans ce présent travail Origin 2018 a été utilisé) pour effectuer cette correction (Berne et al, 2008 ; Kasban et al, 2010). Les données obtenues après lissage sont notées $n_L(t)$.

3.4.5. Extrapolation des données

L'extrapolation des données est nécessaire lorsque les courbes expérimentales sont incomplètes en cas de problèmes dans le système d'acquisition. L'objectif de l'extrapolation des données est de prolonger la courbe de traçage d'une manière plausible. Le nombre de points extrapolés doit être raisonnable tout dépend des données disponibles et du niveau de précision souhaitée (Berne et al, 2008 ; Sheoran et al, 2018). Les données après extrapolation sont notées $n_E(t)$.

3.4.6. Normalisation des données expérimentales

Une dernière étape peut être effectuée, à savoir la normalisation des données expérimentales. La normalisation est obligatoire lors de la modélisation des données de DTS à l'aide d'un logiciel approprié. La courbe de concentration du traceur (donnée en cps) est normalisée en divisant chaque point par l'aire sous la courbe (c'est-à-dire le nombre total de coups) (Berne et al, 2008):

$$E(t) = \frac{n_c(t)}{\int_0^{\infty} n_c(t) dt} \quad (3.3)$$

Avec :

$n_c(t)$: Nombre de coups corrigé (résultat de toutes les opérations précédentes) (cps).

Puisque les taux de comptage sont connus à des intervalles discrets Δt , l'équation (3.3) devient :

$$E(t) = \frac{n_c(t_i)}{\sum_{i=0}^n n_c(t_i) \Delta t} \quad (3.4)$$

$n_c(t_i)$: Nombre de coups corrigé au temps i (cps).

Δt : Temps d'acquisition (s).

3.5. Logiciel DTSPPro V.4

Le logiciel DTSPPro V4.2 a été développé par PROGEPI (centre de valorisation du Laboratoire Réaction et Génie des Procédés, LRGP). Il est actuellement distribué et utilisé dans 50 pays et considéré comme une référence dans l'interprétation de traçage et la modélisation des réacteurs par l'approche systémique (Haag et al, 2019).

3.5.1. Objectif

Le logiciel simplifie la modélisation des résultats des expériences de traçage dans les réacteurs et d'autres systèmes de laboratoire et industriels, (Sysmatec, 2019). Son fonctionnement est basé essentiellement sur deux concepts :

- Simuler la réponse à un signal d'entrée de tout réseau complexe sans qu'il soit nécessaire d'écrire la moindre équation de bilan. Les calculs sont effectués en utilisant la fonction du modèle dans le domaine de Laplace. (Manuel DTSPPro, 2000)
- Optimiser les paramètres du modèle pour mieux s'approcher de la courbe expérimentale donnée (Berne et al, 2008 ; manuel DTSPPro, 2000).

3.5.2. Description

Le logiciel comporte trois fenêtres principales :

A. Le modèle

Cette fenêtre permet la création d'un modèle sous forme d'un réseau de réacteurs élémentaires comportant une entrée et une sortie, il englobe trois bibliothèques :

Modules : Huit réacteurs (modules) élémentaires et complémentaires sont disponibles dans ce logiciel :

- Réacteur parfaitement agité ;
- Cascade de réacteurs parfaitement agités en série ;
- Cascade de réacteurs parfaitement agités en série avec échange d'un volume mort ;
- Cascade de réacteurs parfaitement agités avec un court-circuit ;
- Réacteur piston ;
- Réacteur piston avec une dispersion axiale ouvert à la dispersion ;
- Réacteur piston avec une dispersion axiale fermé à la dispersion ;
- Réacteur piston avec une dispersion axiale semi-ouvert à la dispersion.

Chapitre 3 : Matériel et méthode

Dans la plupart des cas industriels, les cinq premiers modèles sont suffisants. Par contre, les trois derniers modèles sont utilisés beaucoup plus pour des approches académiques.

Nœuds : Les nœuds sont les composants du réseau où la somme algébrique des débits est égale à zéro sauf à l'entrée et la sortie du réseau. Six nœuds sont disponibles :

- Nœud simple pour connecter les différentes branches ;
- Nœud d'entrée sans injection ;
- Nœud d'injection ;
- Nœud d'entrée avec injection ;
- Nœud de visualisation ;
- Nœud de sortie avec visualisation.

Branche : La branche est l'une des composantes du réseau, définie par deux nœuds reliés, un au départ l'autre à l'arrivée. Elle ne peut contenir qu'un seul module, orientée dans la direction du débit.

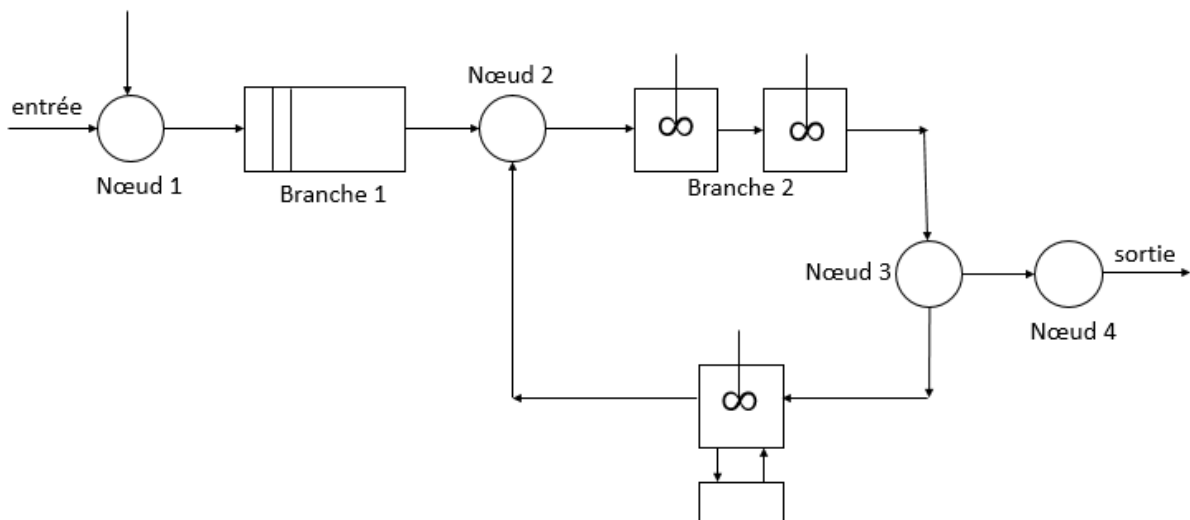


Figure 3.7. Schéma d'un modèle sur le logiciel DTSPPro.

B. Les courbes

Cette fenêtre permet la visualisation des courbes de la DTS théorique et expérimentale au même temps.

C. Les tableaux

Cette fenêtre sert à importer les résultats expérimentaux et enregistrer les résultats de simulation.

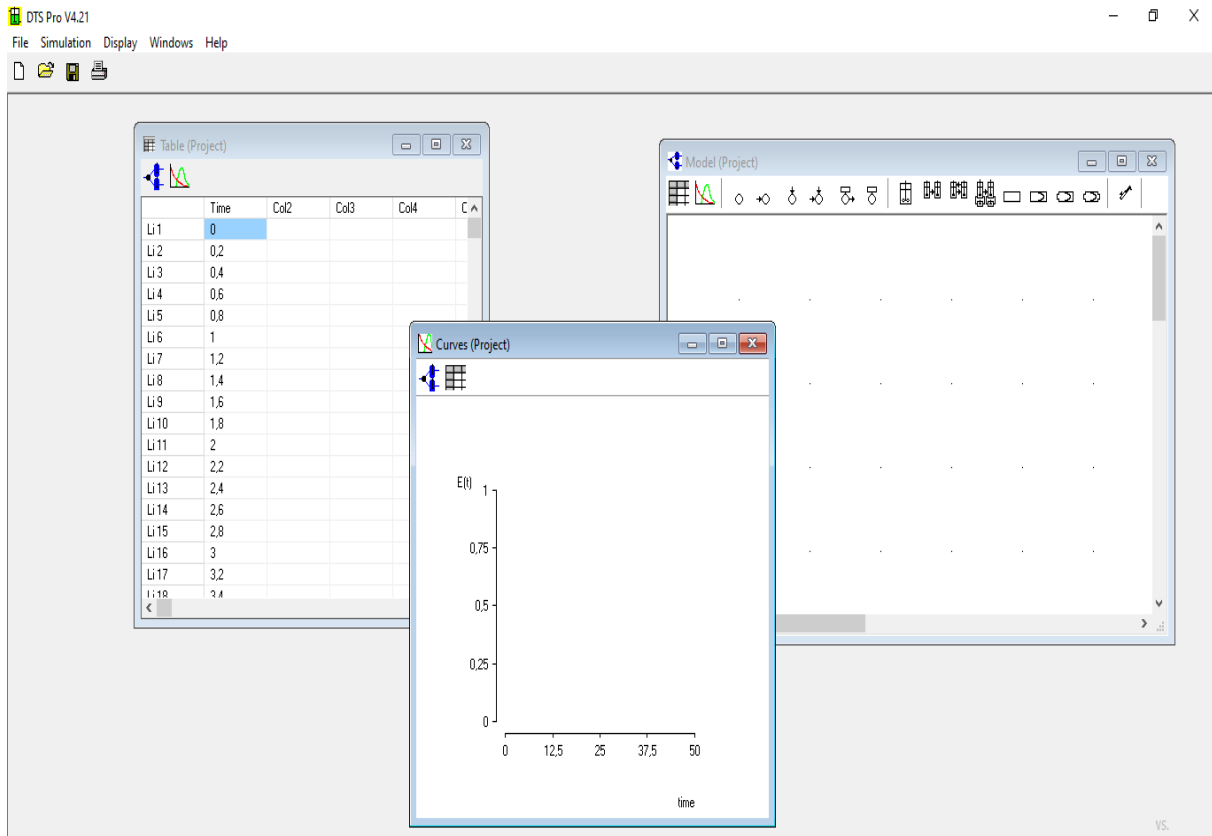


Figure 3.8. Fenêtres principales du logiciel DTSPRO

3.5.3. Simulation d'un modèle

A. Construction d'un modèle

Le modèle se crée en utilisant la fenêtre « modèle ». La surface du dessin est constituée d'une grille définie par des points facilitant le placement des différents éléments du modèle, qui sont disponibles dans la boîte à outils qui s'affiche au-dessus de l'écran :

- Les modules : les différents symboles de la boîte à outils qui s'affiche au-dessus de l'écran, permettent de choisir le type de module à représenter.
- Nœuds : le principe de la représentation des nœuds est le même que celui des modules. Le nombre de nœuds est limité à quarante, le logiciel numérote les nœuds selon l'ordre de leur création, à l'exception de celui de l'entrée et de celui de sortie.

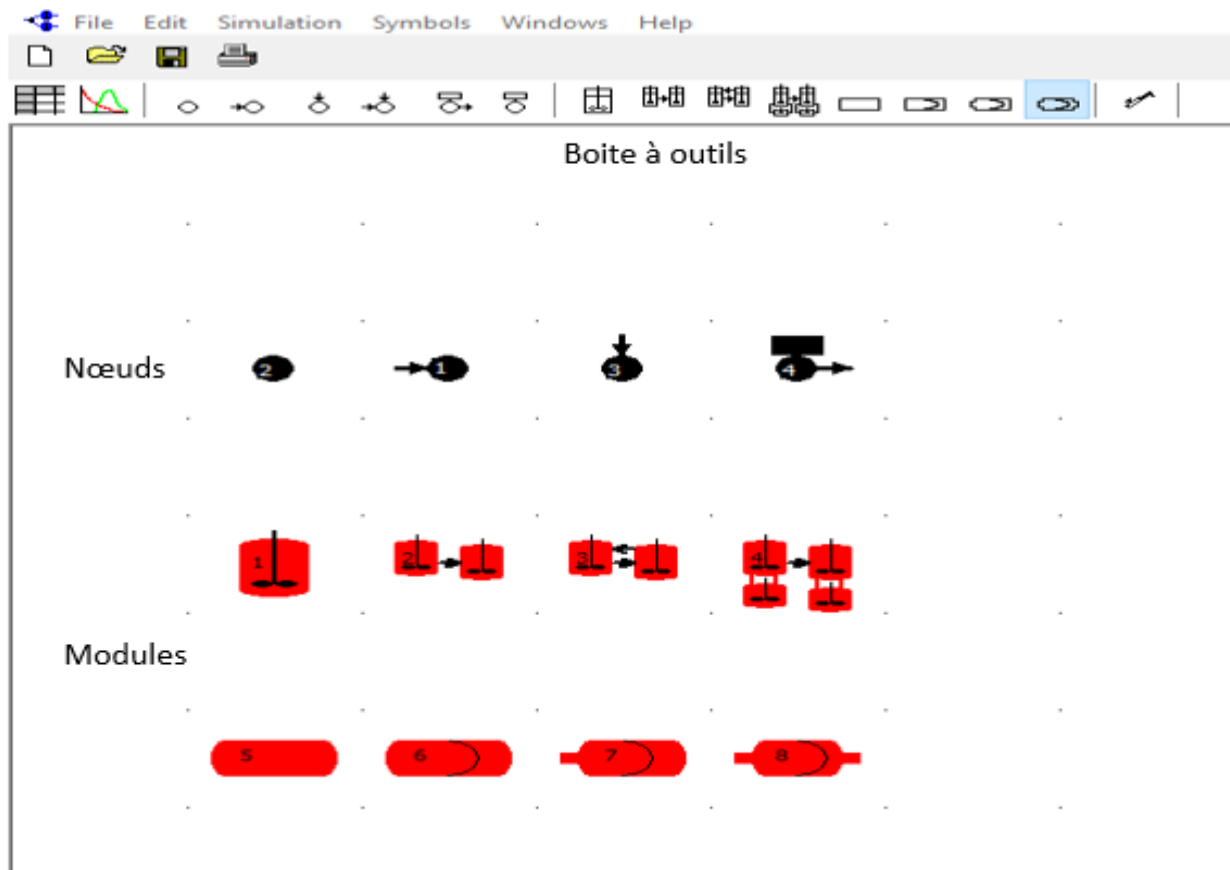


Figure 3.9. Fenêtre modèle de projet

- Les branches : la création d'une branche se fait par la connexion des nœuds et des modules, en cliquant sur le bouton gauche sur un nœud d'entrée et déplaçant le curseur sur l'élément suivant à connecter.
- Paramétrage des modules et des branches : Pour une branche, il est demandé de déterminer le débit d'écoulement uniquement. Par contre, les modules nécessitent l'introduction de plusieurs paramètres, comme le montre le tableau (3.2) :

Chapitre 3 : Matériel et méthode

Tableau 3.2. Paramètre des réacteurs élémentaires

Réacteurs élémentaires et complémentaires	Paramètres
Réacteur parfaitement agité	Temps de séjour moyen τ Ou volume V
Réacteur piston	Temps de séjour moyen τ Ou volume V
Cascade des RCPA en série	Temps de séjour moyen τ Ou volume V Nombre de RCPA (N)
Cascade des RCPA en série avec échange d'un volume mort	Temps de séjour moyen τ Ou volume V : Volume accessible V_a et le volume mort V_R Constante du temps d'échange $t_m = \frac{V_R}{\beta Q}$ Rapport du volume : $k = \frac{V_a}{V_m}$ La fraction du volume mort β Nombre de RCPA (N)
Cascade des RCPA en série avec un court-circuit	Temps de séjour moyen τ Ou volume V Nombre des RCPA (N) Fraction de court-circuit α
Réacteur piston avec dispersion axiale	Temps de séjour moyen τ Nombre de Péclet

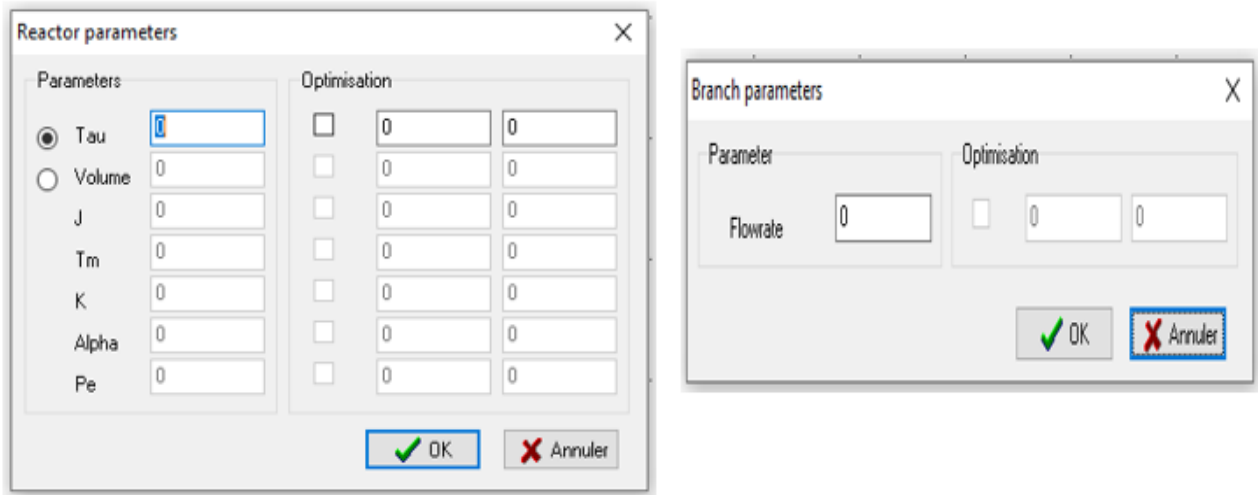


Figure 3.10. Paramétrage des modules et des branches

B. Paramètres de simulation

Avant de commencer la simulation, une vérification de certains paramètres a lieu pour confirmer qu'ils sont convenables pour la simulation souhaitée :

- Temps et nombre de points

Le temps de simulation est choisi d'une manière à ce que la réponse entière soit représentée sur cet intervalle. Le pas doit être le même pour toutes les courbes utilisées dans le projet ouvert.

- Option de réponse

Le logiciel DTSPro donne une réponse du modèle à :

- Une injection impulsion ;
- Une injection échelon ;
- Un signal quelconque

- Optimisation

Réalisation d'une étude de sensibilité sur chaque paramètre pour voir leur influence sur l'aspect général de la réponse du modèle et rapprocher les résultats de la simulation des données expérimentaux.

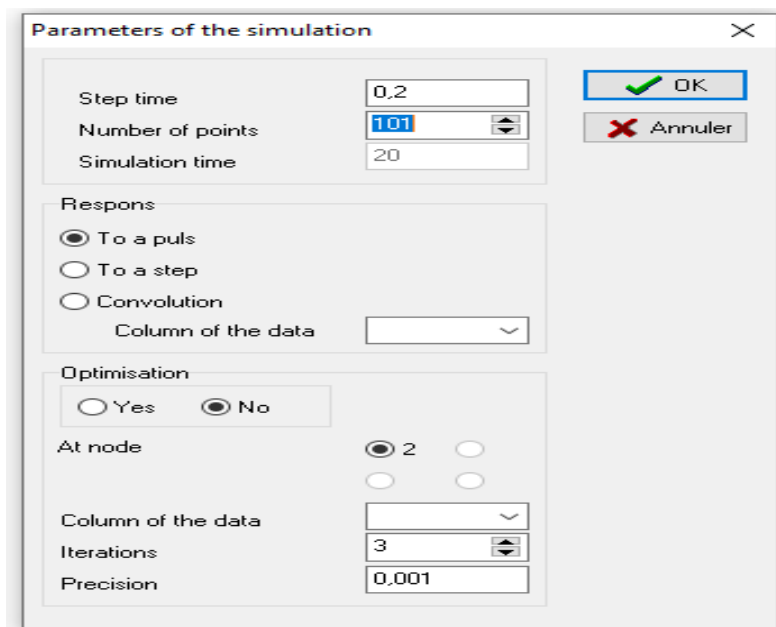
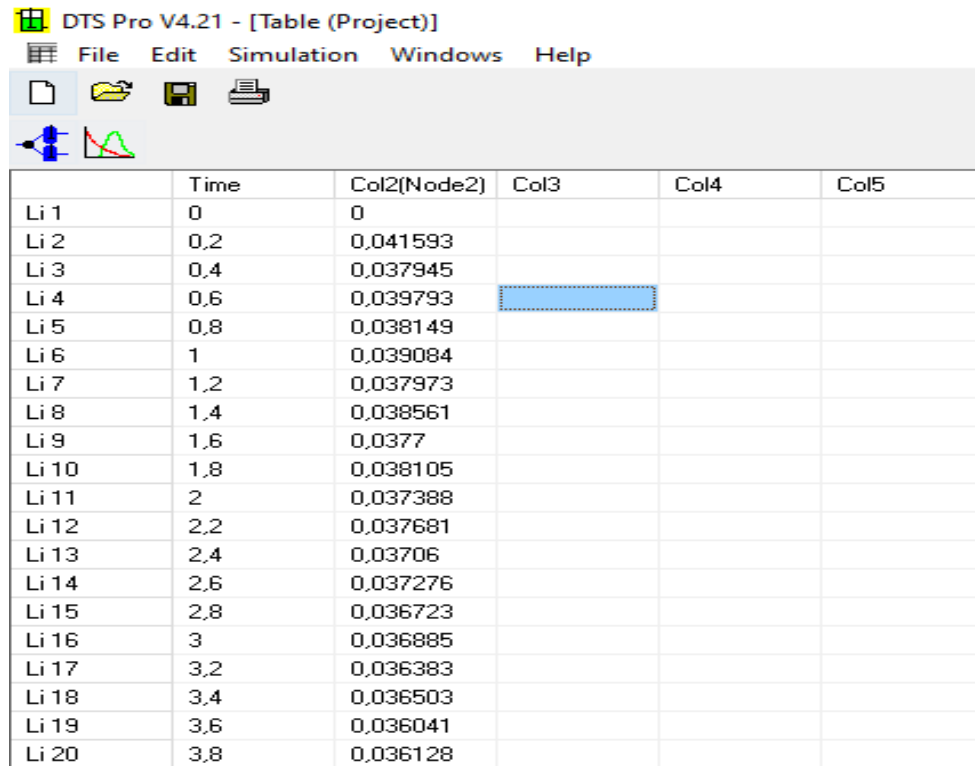


Figure 3.11. Paramètres de simulation

C. Traitement préliminaire des données expérimentales et estimation des moments

Les données expérimentales sont importées d'un fichier « Excel » ou d'un autre « fichier ASCII » vers la fenêtre tableau de logiciel.



	Time	Col2(Node2)	Col3	Col4	Col5
Li 1	0	0			
Li 2	0,2	0,041593			
Li 3	0,4	0,037945			
Li 4	0,6	0,039793			
Li 5	0,8	0,038149			
Li 6	1	0,039084			
Li 7	1,2	0,037973			
Li 8	1,4	0,038561			
Li 9	1,6	0,0377			
Li 10	1,8	0,038105			
Li 11	2	0,037388			
Li 12	2,2	0,037681			
Li 13	2,4	0,03706			
Li 14	2,6	0,037276			
Li 15	2,8	0,036723			
Li 16	3	0,036885			
Li 17	3,2	0,036383			
Li 18	3,4	0,036503			
Li 19	3,6	0,036041			
Li 20	3,8	0,036128			

Figure 3.12. Tableau des données expérimentales

D. Visualisation des courbes

Pour la visualisation des résultats de la simulation et des données expérimentales, le logiciel affiche les courbes expérimentales et théoriques sur la fenêtre « courbe ».

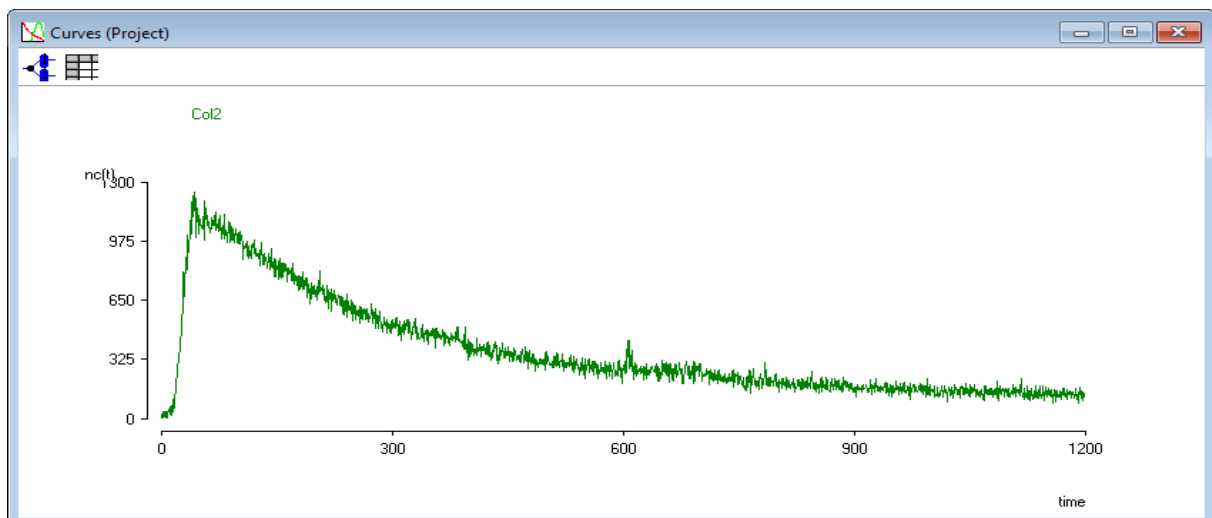


Figure 3.13. Visualisation des résultats sous forme de courbe.

3.6. Aspects radioprotection

La manipulation d'une source radioactive non scellée, le Technétium-99m, présente un risque d'exposition des personnes aux rayonnements ionisants, ce qui a fait l'objet d'une procédure administrative afin d'avoir une autorisation sur le déroulement des expériences, les étapes suivies sont :

- Une visite médicale permettant de prononcer la bonne santé des membres et leur possibilité d'assister à la manipulation ;
- L'information et la sensibilisation du personnel sur les dangers de l'exposition à la radioactivité ;
- L'appel à des équipes spécialisées en radioprotection.

Les expériences ont été réalisées en présence d'une équipe de radioprotection assurant la sécurité radiologique du personnel en proposant une démarche expérimentale appropriée :

1- Approvisionnement des tenues de protection pour éviter la contamination interne par inhalation, ingestion ou par voie cutanée, comportant :

- Une combinaison jetable ;
- Des gants jetables non stériles en latex ;
- Des sur-chaussures ;
- Des lunettes protectrices ;
- Des masques.



Figure 3.14. Tenue de protection individuelle : (1) Combinaison (2) Sur-chaussures (3) Lunettes protectrices (4) Masque (5) Gants jetables.

2- Utilisation de matériel spécial pour limiter l'exposition radioactive et éviter la contamination :

- Papier absorbant dans les zones d'injection et de préparation du radiotraceur ;
- Conteneurs cylindriques en plomb pour le déplacement et l'entreposage de la source radioactive.

3- Surveillance de l'exposition externe ; ceci est réalisée par dosimétrie. Deux types de dosimètres ont été utilisés dans ce cas :

- Dosimètre passif conçu pour chaque individu sécurisé par un code barre, nécessitant un traitement pour déterminer l'équivalent de dose reçue ;
- Dosimètre actif qui mesure la dose en temps réel et il est du type à lecture directe, de marque 'Thermo Fisher Scientific' et d'un intervalle de mesure variant entre $1\mu\text{Sv}$ et 16Sv .



Figure 3.15. Dosimètres : (a) dosimètre passif (b) dosimètres actifs

- 4- Contrôles des sources, locaux et équipements** à l'aide d'un Personal Radiation Detector (RadEYE PRD) de marque Thermo Fisher Scientific SN31120 qui permet de mesurer les rayonnements environnants en cps.

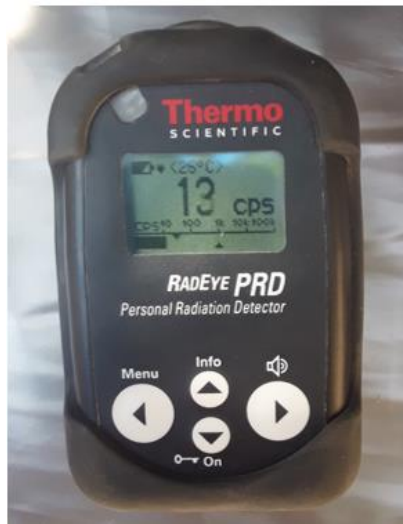


Figure 3.16. Personal Radiation Detector (RadEYE PRD)

- 5- Contrôles techniques d'ambiance,** comprenant :

- La mesure des débits de dose externes, en indiquant les caractéristiques des rayonnements en cause à l'aide d'un RADIAGEM de marque CANBERRA avec un intervalle de mesure de 0,3 μ Sv/h à 100 mSv/h ;
- Les mesures de la contamination surfacique dans le laboratoire, par des appareils de contrôle de contamination surfacique de marque CANBERRA qui détectent les rayons α , β et γ sur une surface de 15 cm².

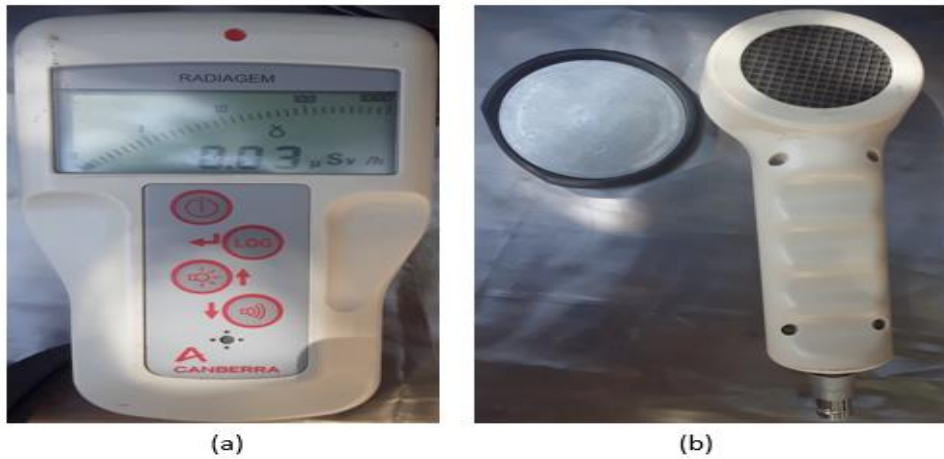


Figure 3.17. Appareils de mesure de la radioactivité dans l'air ambiant : (a) RADIAGEM (b) appareil de contrôle de contamination surfacique

Les contrôles de contamination des locaux (plans de travail, sols...), du matériel utilisé, des vêtements et des mains sont effectués après chaque manipulation. Toute trace de contamination est immédiatement éliminée à l'aide de l'alcool.

- 6- Gestion et élimination des déchets radioactifs**, les équipements de protection individuelle (EPI) et outils d'injection sont récoltés dans une poubelle en aluminium spécifique ;



Figure 3.18. Poubelle en aluminium spécifique

- Les effluents liquides sont stockés dans des fûts en plastique jusqu'à décroissance de l'activité ;
- Afin d'assurer l'élimination des déchets et effluents dans des conditions propres et éviter tout effet préjudiciable sur l'environnement, les déchets radioactifs générés sont stockés dans un conteneur approprié et placés dans une pièce isolée jusqu'à décroissance de l'activité avant leur élimination.

Chapitre 4 :

Résultats et

discussion

Chapitre 4 : Résultats et discussion

Dans le but d'étudier l'effet du débit d'alimentation sur les mesures de DTS dans une colonne de flow rig de 120L de contenance, 3 débits différents sont utilisés : 4 L/min, 12L/min et 20L/min, et en absence de toute agitation dans la colonne. Pour chaque mesure de DTS, 4 mL d'une solution de pertechnétate de sodium $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ d'une activité de 2 mCi sont instantanément injectés à l'entrée de la colonne. Avant injection, 3 mL de la solution radioactive sont dilués dans 5 mL d'eau pour assurer l'homogénéité du radiotraceur avec la phase à tracer qui est l'eau. Les données collectées par les quatre détecteurs sont directement visualisées sous forme de spectres donnant le nombre de coups en fonction du temps ($n(t)$).

Avant l'expérience, un essai à blanc est effectué en utilisant un colorant « Bleu de méthylène » afin de :

- Détecter tout dysfonctionnement dans le flow-rig (fuites dans les conduites ou dans la colonne, dysfonctionnement de la pompe ou de l'agitateur...).
- Expliquer au personnel le déroulement des faits pour assurer la réussite des expériences mettant en jeu une source radioactive non scellée « solution de $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ », dont le risque majeur de sa manipulation est la contamination.

4.1. Conditions expérimentales et analyse de l'injection du radiotraceur

Le premier détecteur (D1) est placé dans le but de vérifier le type d'injection et de s'assurer qu'il s'agit bien d'une injection impulsion de Dirac. Rappelons que l'injection impulsion consiste à injecter pendant un temps très court une petite quantité du traceur. Les temps d'injection (t_{inj}) pour les trois expériences sont donnés dans le tableau (4.1) ci-après :

Tableau 4.1. Paramètres opératoires des expériences.

Expériences	Q (L/min)	Agitation (tr/min)	V_{inj} (mL)	t_{inj} (s)	τ^* (s)
1	4	Aucune	4	3,46	1800
2	12	Aucune	4	3,78	600
3	20	Aucune	4	3,15	360

$$* \tau = \frac{V_R}{Q}; V_R = 120 L$$

Les réponses du premier détecteur (D1) pour les trois expériences, présentées dans la figure (4.1) ci-après, apparaissent comme des pics très fins, continus, similaires à la fonction impulsion de Dirac.

Selon Houzelot, (2013) on considère qu'expérimentalement l'injection est impulsionnelle si le temps d'injection est inférieur à 1 % du temps de passage ($t_{inj} < 0,01\tau$). Pour les trois

Chapitre 4 : Résultats et discussion

injections, cette condition est bien vérifiée. Nous pouvons dire que l'injection du radiotraceur pour les trois expériences est faite avec succès.

Nous remarquons que l'amplitude des pics (nombre de coups maximal) diminue de la première expérience à la troisième, ceci peut être lié à la décroissance radioactive du traceur. En effet, les expériences n'ont pas été toutes réalisées à la même heure.

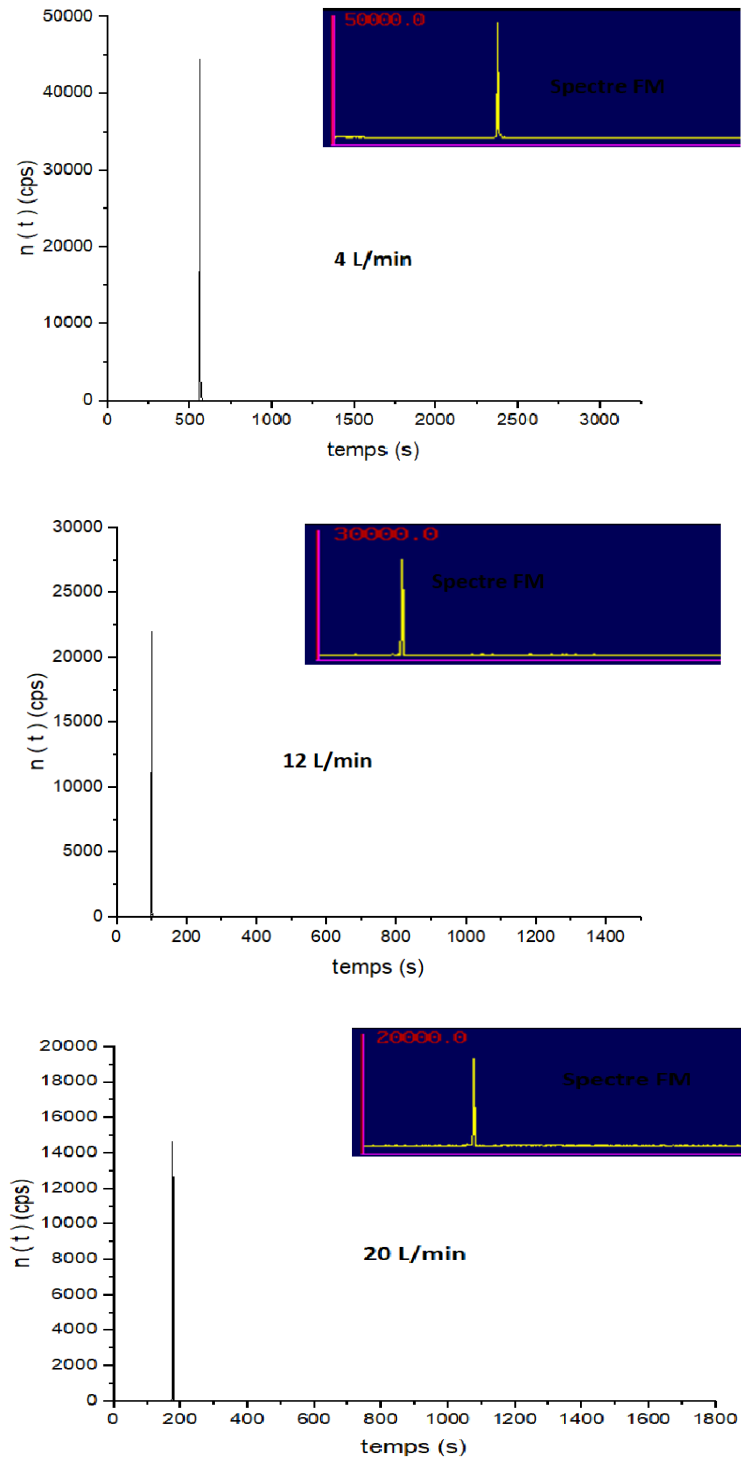


Figure 4.1. Réponses du détecteur (D1) aux injections et pour différents débits.

4.2. Vérification du débit d'alimentation

S'assurer que le débit circulant dans le système est bien celui indiqué par le débitmètre est une étape primordiale pour garantir la fiabilité des résultats. Deux détecteurs (D2) et (D3) sont utilisés pour la vérification du débit par la méthode du temps de transit, dont le principe est présenté dans la figure (4.2).

Les deux détecteurs sont séparés par une distance de 55 cm. Le point d'injection situé avant un coude a permis de réduire la longueur effective de mélange, L , à 51 cm pour un diamètre interne de la conduite, D , de 32 mm. Rappelons que selon Yunos et al. (2018) L , devrait être au moins égale à 100 voire à 200 fois le diamètre interne de la conduite. Cette longueur peut être réduite par la présence de coudes créant des turbulences qui améliorent le mélange.

Afin de vérifier l'étalonnage du débitmètre, deux expériences sont faites à un débit de 20 L/min pour assurer la reproductibilité des résultats. Les réponses des détecteurs (D2) et (D3) sont présentés dans les figures (4.3), (4.4).

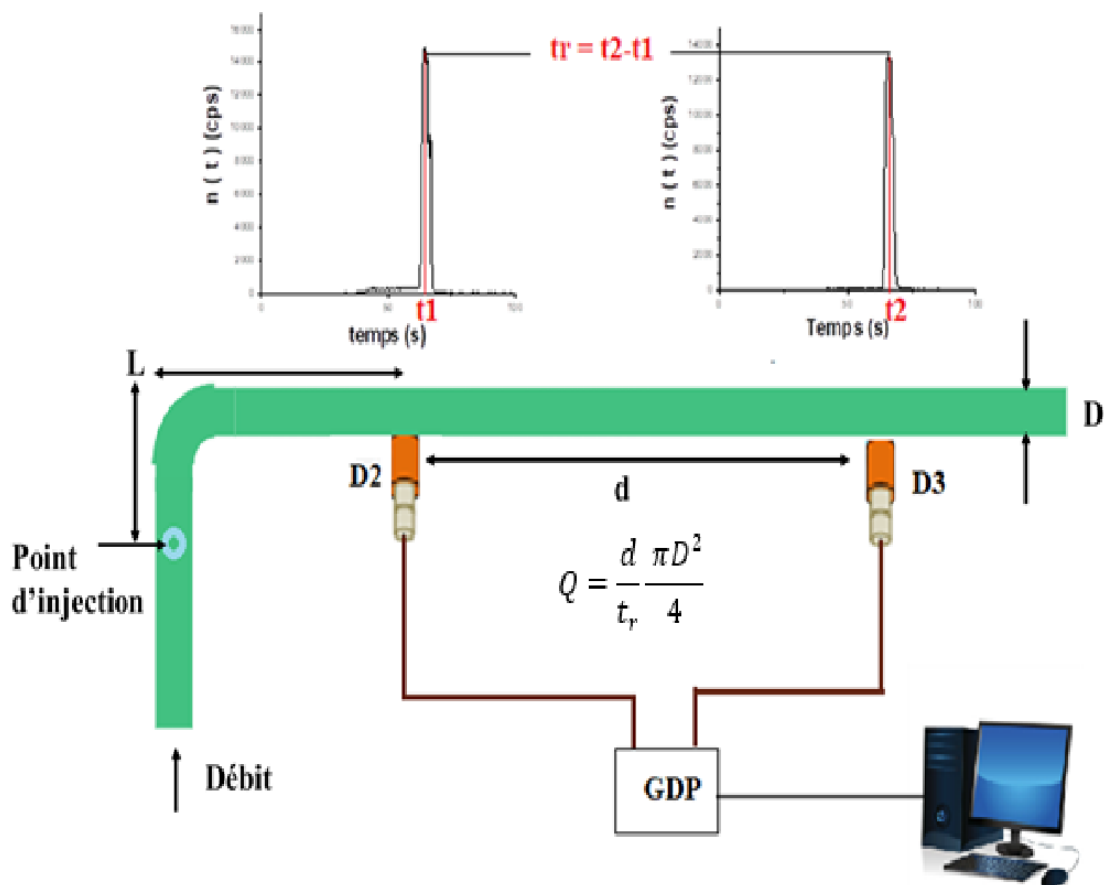


Figure 4.2. Principe de la méthode du temps de transit.

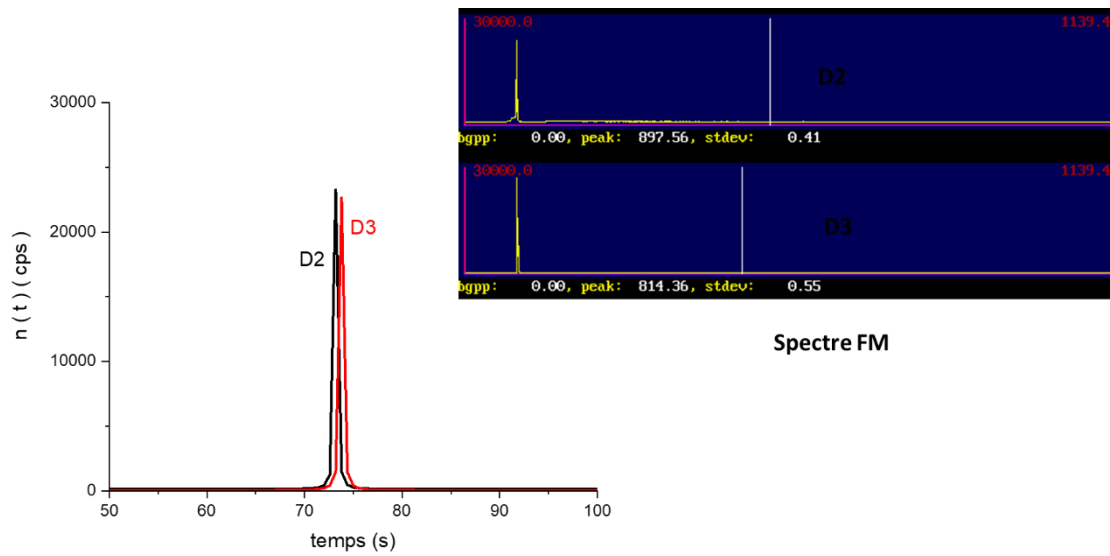


Figure 4.3. Réponses des détecteurs (D2) et (D3) pour un débit de 20 L/min

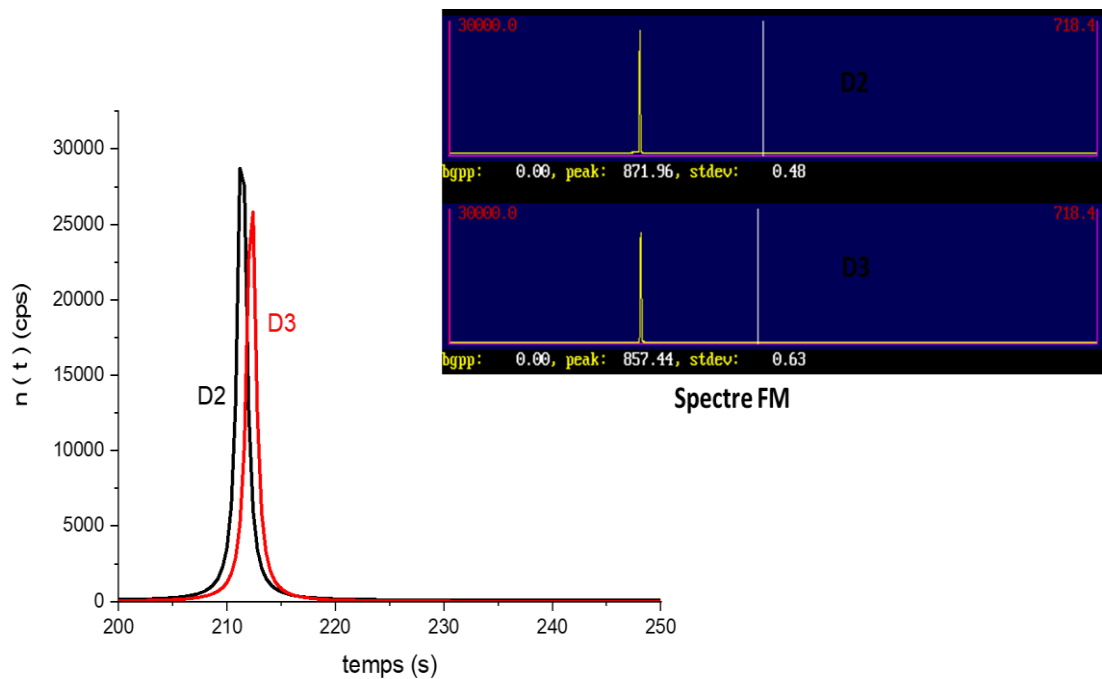


Figure 4.4. Réponses des détecteurs (D2) et (D3) pour un débit de 20 L/min (répété)

Une fois le temps de transit entre les deux détecteurs déterminé, le débit est calculé à l'aide de l'équation (2.10). Les résultats de calculs sont donnés dans le tableau (4.2) ci-dessous :

Chapitre 4 : Résultats et discussion

Tableau 4.2. Résultats de calculs du débit par la méthode du temps de transit

Q délivré (L/min)	D (m)	d (m)	t_r (s)	Q calculé (L/min)	Erreur relative* (%)
20	0,032	0,55	1,27	20,90	4,50
20	0,032	0,55	1,29	20,57	2,85
Moyenne	/	/	/	20,74	3,68

$$*\text{Erreur relative} = \frac{|Q_{\text{délivré}} - Q_{\text{calculé}}|}{Q_{\text{délivré}}} \times 100$$

Nous constatons que globalement les valeurs des débits indiquées par le débitmètre et les valeurs calculées sont très proches avec une erreur relative inférieure à 5%. On aurait, peut-être, gagné plus en précision si la longueur de mélange effective était plus grande, ce qui permettrait un meilleur mélange du radiotraceur avant la détection.

Nous remarquons également que la deuxième expérience est plus précise que la première avec une erreur relative estimée à 2,85% ceci peut être liée à la qualité de l'injection. L'injection de la deuxième expérience, présentée dans la figure (4.5) s'approche le plus de l'impulsion de Dirac avec un temps d'injection de 2,3 s, tandis que dans la première expérience le radiotraceur est injecté pendant un temps relativement plus élevé, à savoir 3,15 s (comme indiqué sur le tableau (4.1)).

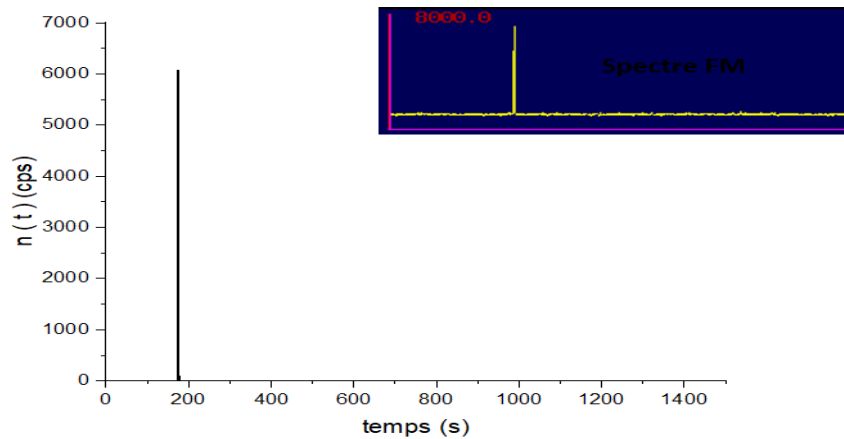


Figure 4.5. Représentation graphique de la deuxième injection.

4.3. Caractérisation hydrodynamique de la colonne et effet du débit

Un détecteur (D4) est placé à la sortie de la colonne du flow rig pour enregistrer la concentration du radiotraceur dans le flux de sortie en (cps). Cette réponse impulsionnelle est la clé de mesure de la DTS dans la colonne et par conséquent, son évaluation hydrodynamique.

Les spectres collectés de (D4) pour les 3 différents débits : 4 L/min, 12L/min et 20L/min respectivement sont présentés dans la figure (4.6) suivante :

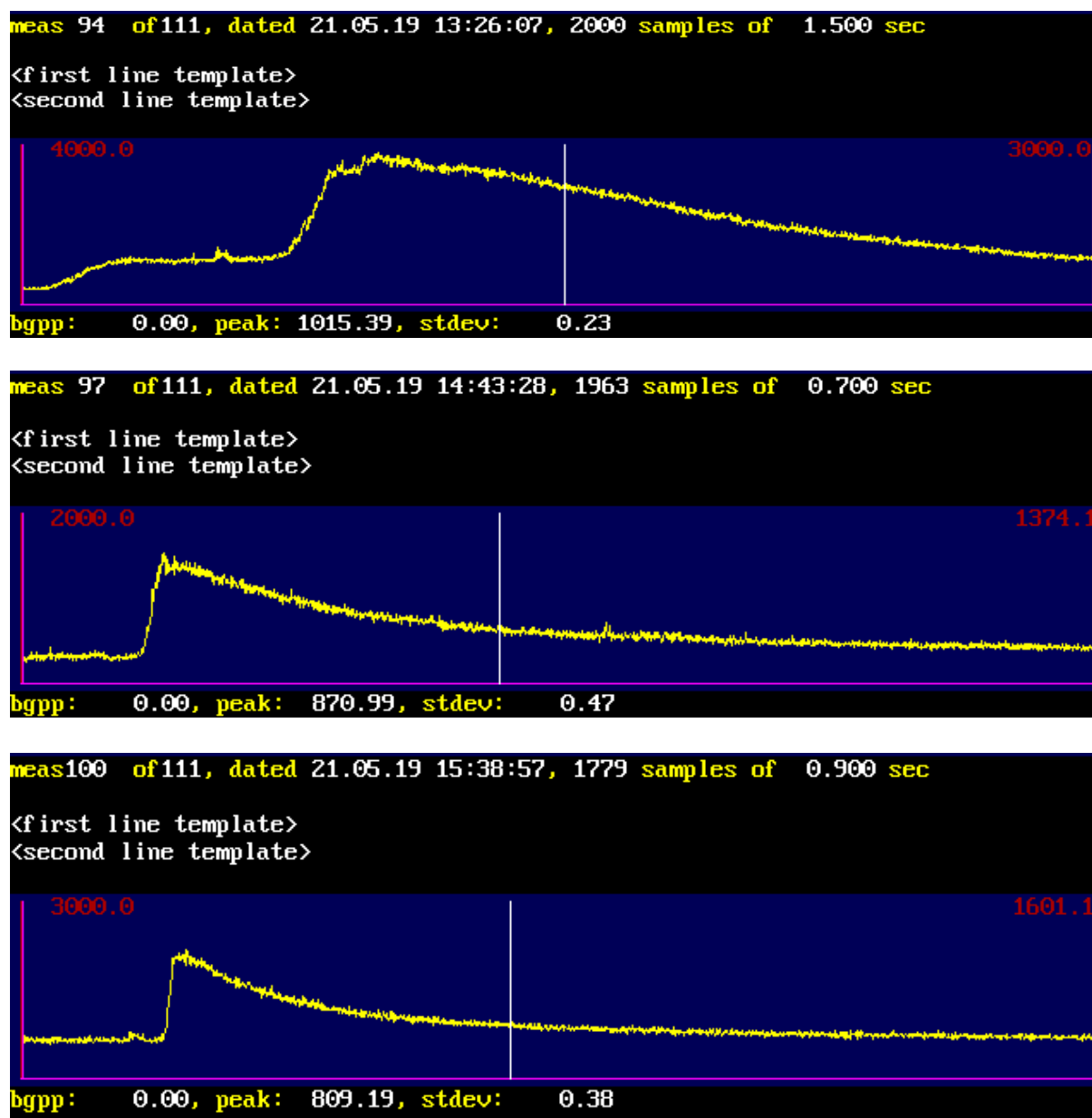


Figure 4.6. Distribution du radiotraceur dans les flux de sortie pour des débits de 4L/min, 12L/min et 20 L/min respectivement.

4.3.1. Traitement de spectres

Les données de chaque spectre FM sont récupérées sous forme de fichier (Figure 4.7) pour le traitement.

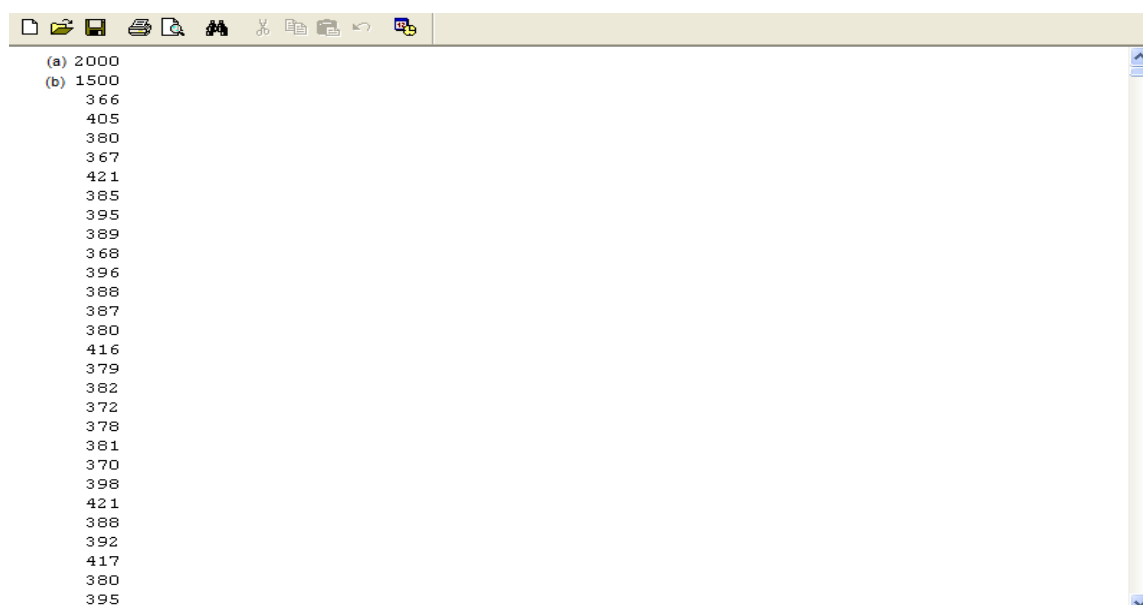


Figure 4.7. Exemple de données récoltées par le détecteur 4 pour un débit de 4L/min. (a) nombre de coups récoltés en (cps) (b) intervalle de temps en (ms).

Les spectres expérimentaux contiennent beaucoup de fluctuations dues à la sensibilité des équipements de détection et aux nombres de coups enregistrées dans un intervalle de temps très réduit. Pour l'analyse, le signal doit représenter la matière radioactive à l'intérieur du système sans bruit. Les étapes de traitement des données sont effectuées à l'aide du logiciel Origin. Ces étapes comprennent :

- La correction du bruit de fond : Le niveau du bruit de fond (B_r) est mesuré, avant chaque expérience, autour du quatrième point de détection (emplacement de D4), et dont les valeurs sont mentionnées dans le tableau (4.3). Le niveau du bruit de fond est soustrait des données expérimentales (équation (3.1)). Selon Pant (2001), après soustraction, les dépassements négatifs doivent être mis à zéro.

Tableau 4.3. Valeurs de bruit de fond enregistrées avant chaque expérience

Expériences	Q (L/min)	B_r (cps)
1	4	366
2	12	377
3	20	668

Chapitre 4 : Résultats et discussion

Nous remarquons que le bruit de fond augmente de la première à la troisième expérience, ceci peut être dû à la présence de fûts de stockage des effluents radioactifs. On rappelle que la colonne est vidée et rincée après chaque expérience et les effluents radioactifs sont stockés dans des fûts en plastique pour une gestion par décroissance avant leur élimination.

- Correction de la radioactivité : Effectuée en utilisant l'équation (3.2). Avec $T_{1/2}$ temps de demi vie du ^{99m}Tc estimé à 21600 s (6 h).
- Correction du point de départ, en éliminant tout comptage avant l'injection.
- Lissage pour réduire les fluctuations, en utilisant le logiciel Origin 2018.
- Extrapolation : Contrairement à ce qu'on peut visualiser sur les spectres FM l'acquisition n'est pas achevée pour les trois expériences. Une extrapolation des données demeure indispensable. Pour les trois courbes, une extrapolation avec des exponentielles décroissantes, retracées dans le tableau (4.4), a été faite.

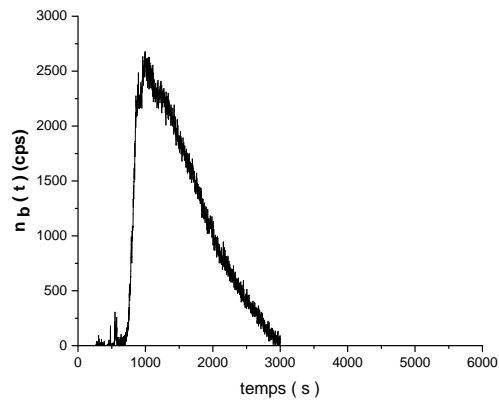
Tableau 4.4. Fonctions utilisées pour l'extrapolation.

Expériences	Q (L/min)	Fonctions	R ²
1	4	59349 exp(-0,002t)	0,99
2	12	1155,2 exp(-0,002t)	0,96
3	20	1760,6 exp(-0,003t)	0,95

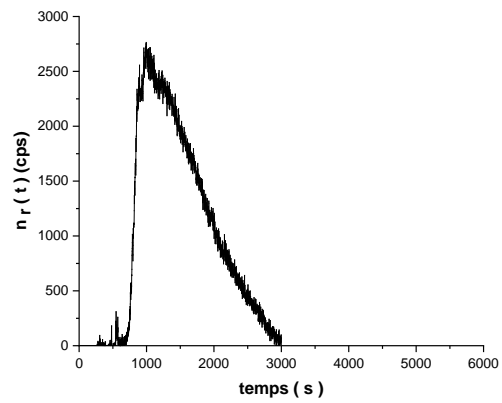
- Normalisation (détermination de la fonction de DTS : E(t)) : Effectuée par l'équation (3.4). La normalisation des données permet de faciliter le calcul des moments. C'est une étape obligatoire lors de l'ajustement du modèle avec un logiciel d'analyse de DTS.

L'ensemble des traitements effectués sur chacune des courbes expérimentales : 4 L/min, 12 L/min et 20 L/min sont présentés dans les figures (4.7), (4.8) et (4.9).

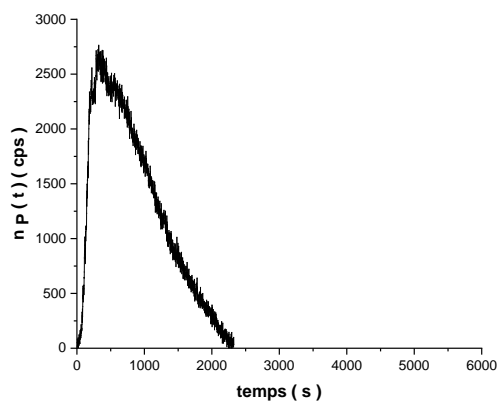
Chapitre 4 : Résultats et discussion



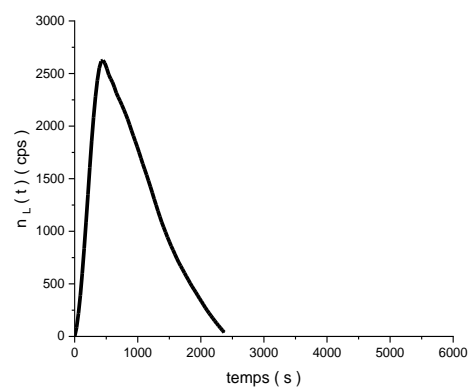
(a) Correction du bruit de fond



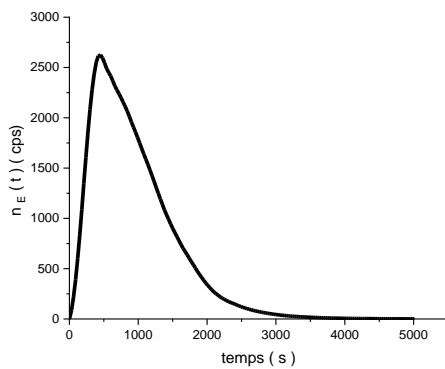
(b) Correction de la radioactivité



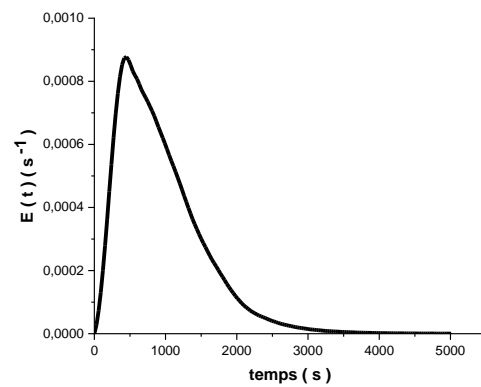
(c) Correction du point de départ



(d) Lissage



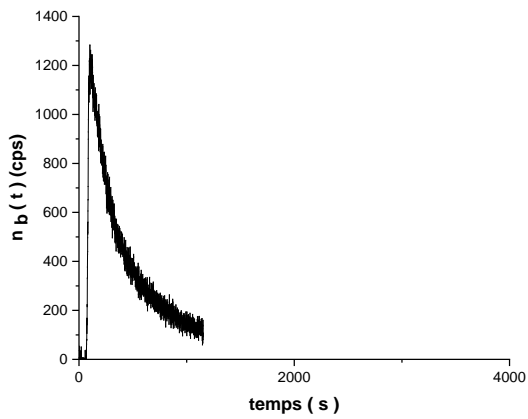
(e) Extrapolation



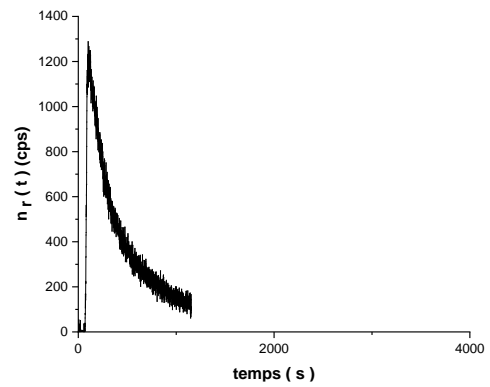
(f) Normalisation

Figure 4.8. Traitement de spectre pour un débit de 4 L/min.

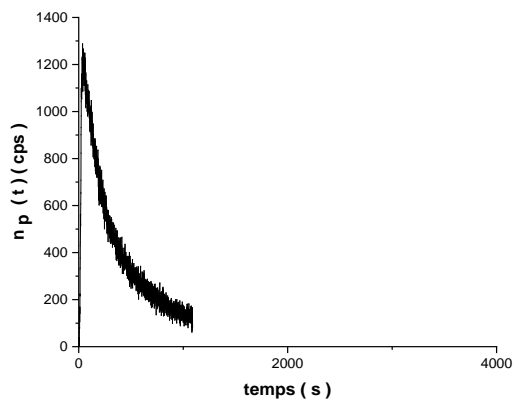
Chapitre 4 : Résultats et discussion



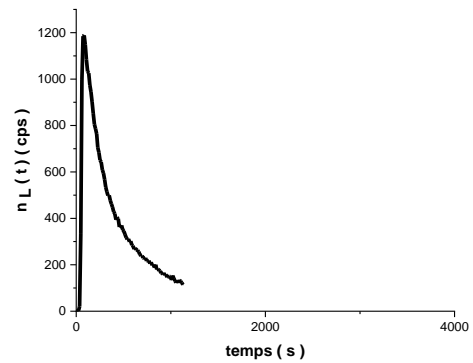
(a) Correction du bruit de fond



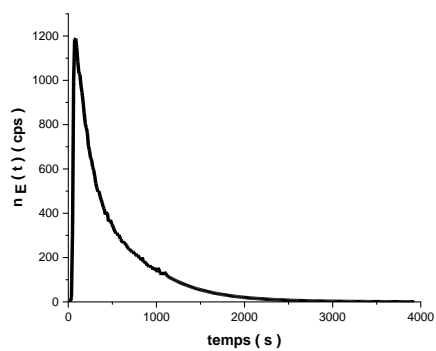
(b) Correction de la radioactivité



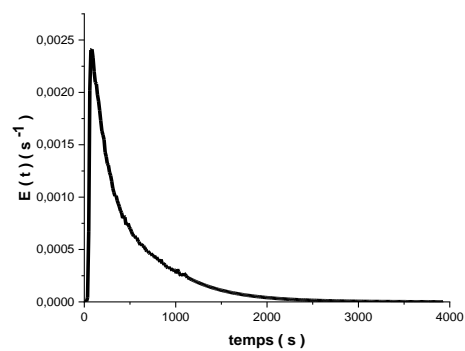
(c) Correction du point de départ



(d) Lissage

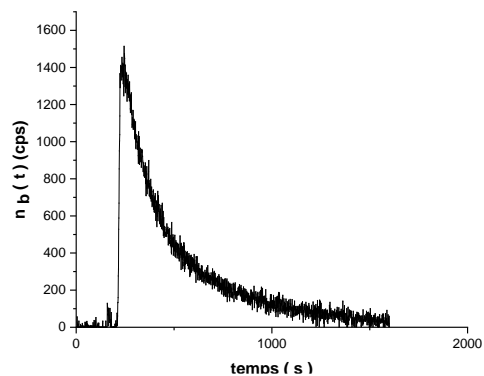


(e) Extrapolation

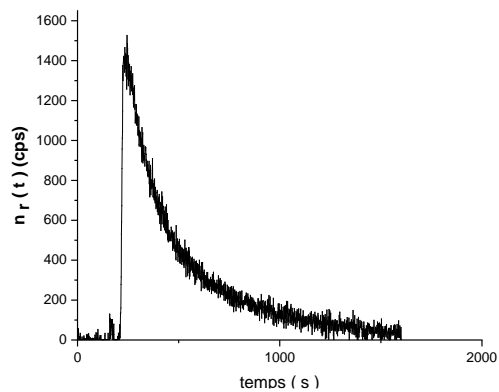


(f) Normalisation

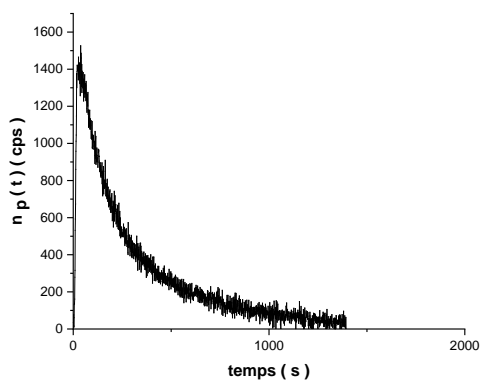
Figure 4.9. Traitement de spectre pour un débit de 12 L/min.



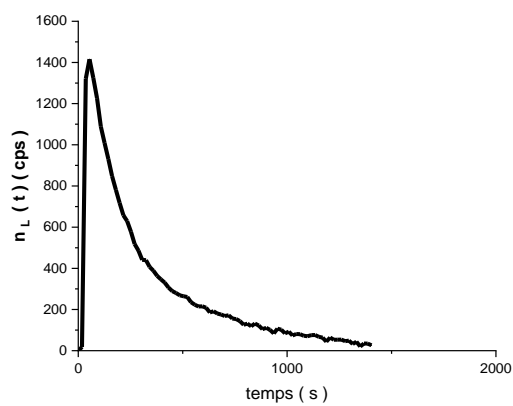
(a) Correction du bruit de fond



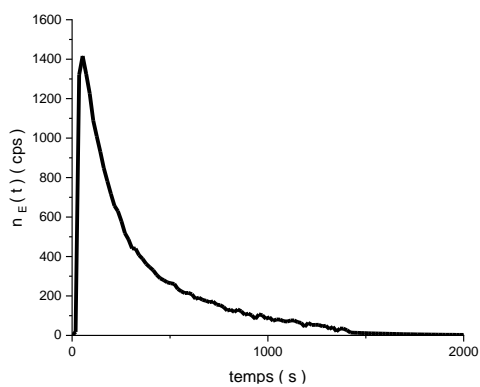
(b) Correction de la radioactivité



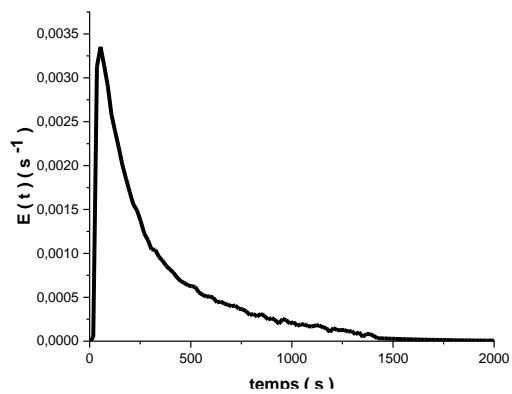
(c) Correction de point de départ



(d) Lissage



(e) Extrapolation



(f) Normalisation

Figure 4.10. Traitement de spectre pour un débit de 20 L/min.

4.3.2. Analyse des données de DTS

L'analyse des données de DTS dépend de l'objectif pour lequel les expériences ont été réalisées. Pour notre étude, l'estimation du temps de séjours moyen des particules, \bar{t}_s , est un paramètre clé pour la caractérisation de la colonne et l'identification des éventuels dysfonctionnements qu'elle peut présenter.

Comme les taux de comptage sont connus à des points discrets, l'équation (4.1) suivante est utilisée pour le calcul du temps de séjour moyen :

$$\bar{t}_s = \sum_{i=1}^n t_i E(t_i) \Delta t_i \quad (4.1)$$

Nous remarquons que la variation du débit a une influence sur l'allure des courbes de DTS, en effet, celles-ci deviennent de plus en plus fines lorsque le débit augmente. A un débit de 4 L/min la distribution est très étalée avec une variance estimée à 96,51 min² et ceci peut s'expliquer par le fait qu'à faible vitesse d'écoulement les particules ne sortent de la colonne que très lentement. Pour des débits élevés (12 L/min et 20L/min), l'étalement des réponses impulsionnelles diminue, en effet, l'augmentation de la vitesse d'écoulement accélère le transport des particules et celles-ci se retrouvent vite dans le courant de sortie. Ces observations sont confirmées par les calculs, en effet, lorsque le débit augmente le temps de séjour moyen diminue considérablement.

Les calculs montrent également que pour les débits de 4 L/min et 12L/min, le temps de séjour moyen, \bar{t}_s est inférieur au temps de passage, τ (tableau (4.5) ci-après). De plus, les courbes de DTS, décrites dans les figures (4.8f) et (4.9f), présentent des trainées. Selon Villermaux (1982), cela indique la présence d'un volume mort dans le système. Ce volume mort peut être dû à la géométrie complexe de la colonne. En effet, la colonne est constituée de quatre cuves munies de chicanes, celles-ci créent des ongles au sein de la colonne pouvant favoriser la stagnation du fluide. Selon Levenspiel (1972), le volume mort peut être également causé par la faible dispersion dans la colonne.

A 4 L/min, la fraction de volume mort, β est estimée à 48,07%, un débit de 12 L/min a permis de réduire cette fraction de 36 %. La présence d'un volume mort diminue le volume accessible, V_a . Par exemple pour un débit de 4 L/min seule un volume de 62,32 L est accessible au fluide.

Pour un débit de 20 L/min, nous avons trouvé un temps de séjour moyen, \bar{t}_s très proche du temps de passage, τ . L'écart, très faible entre les deux (Erreur relative de 0,33%) peut être négligé. Un débit de 20 L/min a permis d'éliminer complètement le volume mort.

Chapitre 4 : Résultats et discussion

L'ensemble des résultats sont résumés dans le tableau (4.5) suivant :

Tableau 4.5. Paramètres hydrodynamiques de la colonne.

Q (L/min)	τ (min)	\bar{t}_s (min)	δ^2 * (min ²)	Dysfonctionnement	β^{1*} (%)	V_a^{2*} (L)
4	30	15,58	96,51	Volume mort	48,07	62,32
12	10	8,81	70,24	Volume mort	11,91	105,71
20	6	6,02	33,03	-	-	-

$$*\delta^2 = \sum_{i=1}^n (t_i - \bar{t}_s)^2 E(t_i) \Delta t_i$$

$$^1*\beta = 1 - \frac{\bar{t}_s}{\tau}$$

$$^2*V_a = V - V_m = (1 - \beta)V$$

Suivant Berne et al (2008), l'existence d'irrégularités peut être clairement détectées par la fonction intensité, $\Lambda(t)$. La courbe de la fonction d'intensité telle qu'elle est présentée dans les figures (4.11), confirme que réellement pour un débit de 20 L/min la colonne ne présente aucune anomalie.

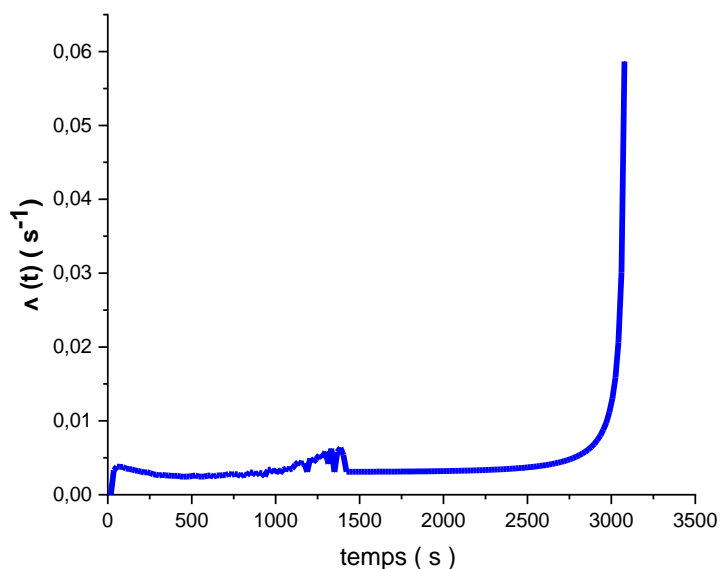


Figure 4.11. Courbe de la fonction intensité (Q=20L/min).

On rappelle qu'en absence d'anomalies et pour un système quelconque la fonction intensité est une fonction monotone croissante (Tableau 1.2), si des irrégularités prononcées apparaissent

Chapitre 4 : Résultats et discussion

dans la courbe, ceci indique la présence d'un dysfonctionnement dont la nature est déterminée par les calculs et ce, selon Villermaux (1982).

Nous remarquons que, la fonction intensité relative à un débit de 20 L/min est bien une fonction monotone croissante. Les faibles fluctuations qu'elle présente (Figure (4.11)) peuvent être liées à l'expérimentation. En effet, si nous regardons de près la courbe de DTS même après traitement, celle-ci présente quelques fluctuations. Cette fonction permet de confirmer que pour un débit de 20 L/min la colonne ne présente ni volume mort ni court-circuit.

4.4. Modélisation de la colonne par DTSPPro

Afin de procéder à une analyse plus détaillée du comportement hydrodynamique de la colonne et de rendre compte des allures des courbes observées à différents débits d'alimentation, des modèles mathématiques appropriés sont utilisés pour simuler les résultats de DTS par le logiciel DTSPPro. Ces modèles pourraient être utilisés par la suite pour servir de base à l'extrapolation de cette colonne.

Sur la base de la forme des courbes de la DTS obtenues après le traitement et des observations visuelles sur la colonne, nous avons mis en place des modèles à l'aide du logiciel DTSPPro. La création de ces modèles repose essentiellement sur les principales étapes, ci-dessous :

- Choix d'un module élémentaire ou complémentaire convenable ;
- Combinaison entre les nœuds et les différents modules ;
- Le paramétrage des modules et des branches ;
- L'optimisation des paramètres et la simulation des modèles jusqu'à l'obtention des résultats souhaités.

Les modèles que nous avons proposés pour les quatre cas étudiés (Débits de 4 L/min, 12 L/min et 20 L/min avec agitation et sans agitation) sont représentés ci-dessous par les figures (4.12), (4.14), (4.16) et (4.18).

4.4.1. Modélisation pour un débit de 4 L/min

Le modèle qui décrit mieux le comportement de la colonne pour un débit de 4 L/min ; représenté sur la figure (4.12) ; est un RP à dispersion axiale ($\tau = 41,67 s, Pe = 10$) et une cascade 2 de RCPA avec échange d'un volume mort ($\tau = 750 s, t_m = 100 s, k = 0,1$).

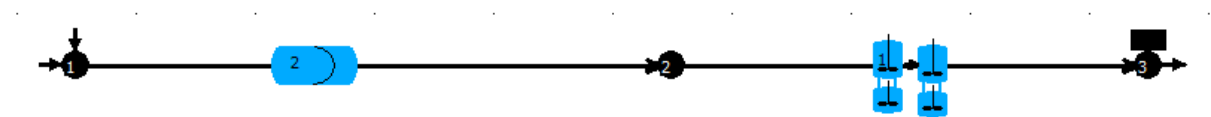


Figure 4.12. Modèle décrivant le comportement de la colonne à un débit de 4 L/min

Nous pouvons dire que cette association est représentative de la colonne car la courbe de modèle simulé est très proche de celle obtenue expérimentalement ; comme retracé dans la figure (4.13).

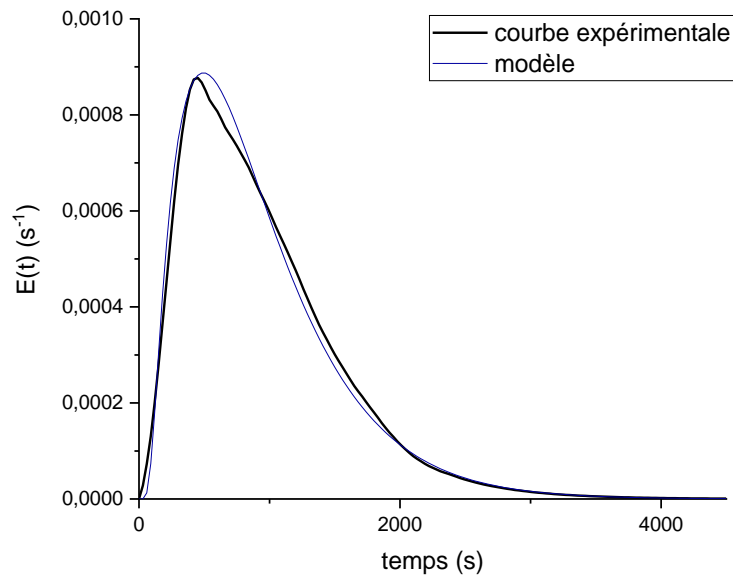


Figure 4.13. Résultats de la modélisation à un débit de 4 L/min

4.4.2. Modélisation pour un débit de 12 L/min

A un débit de 12 L/min, le modèle constitué d'un RP ($\tau = 36,67$ s) et d'un RP avec dispersion axiale ($\tau = 133,3$ s, $Pe = 0,7$) associés en série (figure (4.14)) s'avère approprié pour la description du comportement hydrodynamique de la colonne.

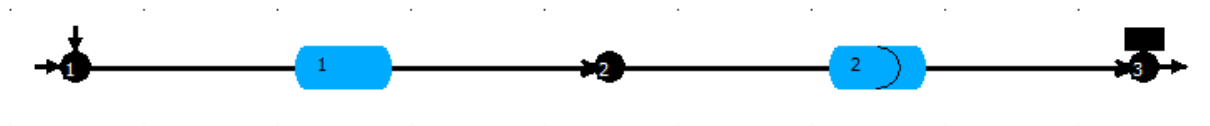


Figure 4.14. Modèle décrivant le comportement de la colonne à un débit de 12 L/min

La courbe du modèle calculée par le logiciel DTSPRO s'identifie parfaitement à la courbe de DTS expérimentale comme le montre la figure (4.15)

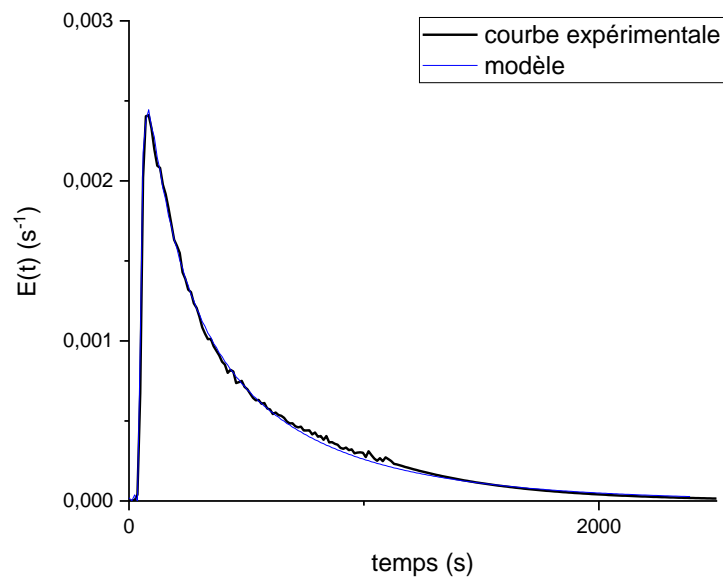


Figure 4.15. Comparaison des deux courbes, expérimentale et celle du modèle à un débit de 12 L/min.

4.4.3. Modélisation pour un débit de 20 L/min

A 20 L/min, l'écoulement à l'intérieur de la colonne est décrit par le modèle présenté dans la figure (4.16), il s'agit d'une association en série d'un RP ($\tau = 28,57 \text{ s}$) et d'un RP avec dispersion axiale ($\tau = 100 \text{ s}, Pe = 0,7$).

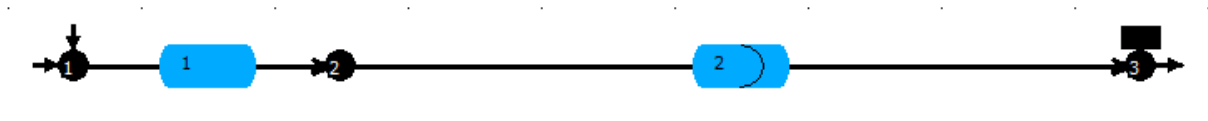


Figure 4.16. Modèle représentant le comportement de la colonne à un débit de 20 L/min sans agitation.

Cette association a été validée car les courbes de DTS expérimentale et calculée s'identifient entièrement, tel qu'énoncé dans la figure (4.17)

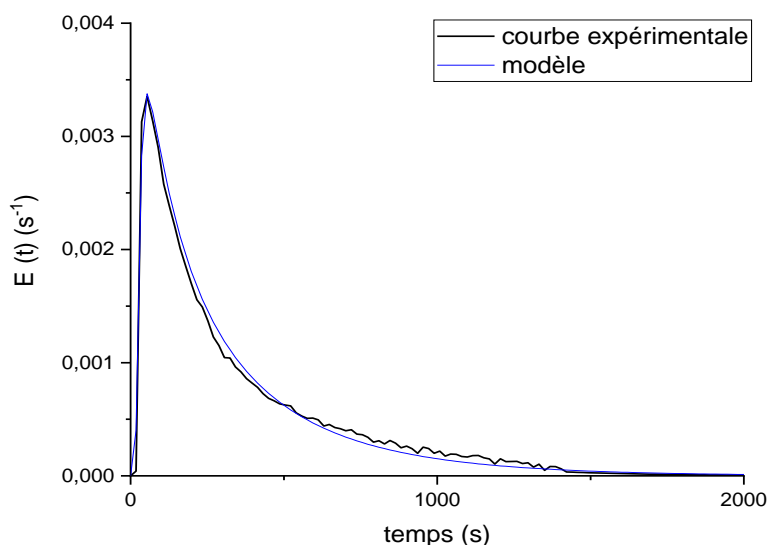


Figure 4.17. Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats de la modélisation à un débit de 20 L/min sans agitation.

L'ensemble des paramètres hydrodynamiques calculés et simulés sont regroupés dans le tableau (4.7)

Pour une correspondance acceptable entre les courbes de DTS mesurées expérimentalement et obtenues par les modèles, l'erreur moyenne entre les paramètres hydrodynamiques expérimentaux et simulés est inférieure à 5 % (tableau (4.7)).

Certains modèles contiennent un RP, selon J. Gitau et al (2019), la présence d'un RP en début du modèle indique un retard temporel de l'écoulement, en d'autres termes, en début d'écoulement la colonne agit comme un retard pur, une partie des signaux entrants est donc transmise sans déformation et se retrouve en sortie au bout d'un temps, $t = \tau_{RP}$ qui diffère d'un cas à un autre.

Nous constatons que, pour les débits de 12 L/min et 20 L/min, un même modèle permet de caractériser l'écoulement à l'intérieur de la colonne. La différence entre les deux modèles réside dans les paramètres des modules uniquement comme indiqué dans le tableau (4.7).

En absence d'agitation, tous les modèles révèlent l'existence d'une dispersion dans le sens longitudinal de l'écoulement, appelée dispersion axiale, qui peut être due principalement à la diffusion turbulente : L'alimentation et la sortie de la colonne peuvent provoquer des remous et des tourbillons conduisant à un mélange dans la direction axiale.

Nous remarquons également que l'augmentation du débit engendre un accroissement du coefficient de dispersion axial, D_{ax} se traduisant par une augmentation significative de la dispersion axiale. Cela peut être expliqué par le fait que D_{ax} est proportionnel à la vitesse d'écoulement.

Chapitre 4 : Résultats et discussion

4.4.4. Modélisation pour un débit de 20 L/min avec agitation

D'après les résultats expérimentaux, pour un débit de 20 L/min la colonne ne présente aucune anomalie (ni volume mort ni court-circuit). La modélisation révèle que pour ce même débit la dispersion axiale est très importante. Selon Moreau (2014), cette dispersion pourrait avoir des effets néfastes sur la conversion ou la sélectivité d'une réaction -Dans le cas où cette colonne devait être le siège d'une réaction chimique- car elle tend à réduire le gradient de concentration dans la direction longitudinale. L'un des paramètres influençant la dispersion axiale est l'agitation.

Dans le but d'étudier l'effet de l'agitation sur cette dispersion, nous avons proposé d'appliquer une agitation de 127 tr/min. 4 mL de la solution radioactive diluée sont injectés de façon instantanée. Le spectre collecté du détecteur (D4) est représenté par la figure (4.18).

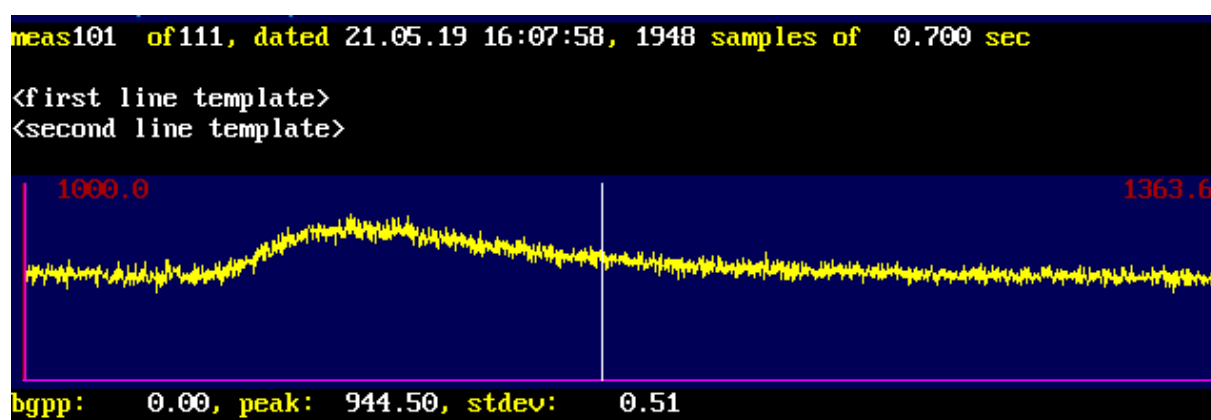
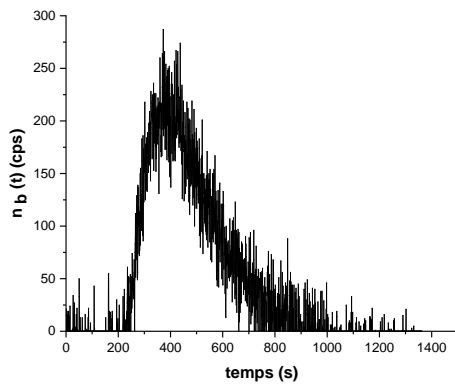


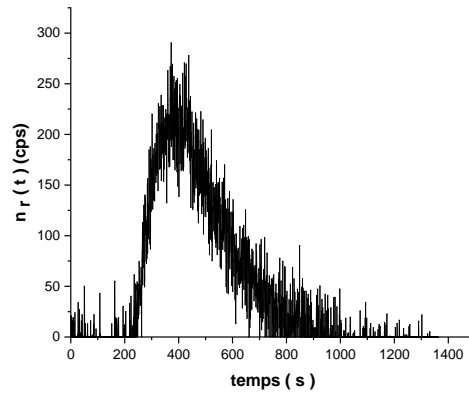
Figure 4.18. Distribution du radiotraceur dans les flux de sortie pour un débit de 20 L/min et une agitation de 127 tr/min.

La réponse impulsionnelle obtenue dans ces conditions se présente comme une courbe aplatie. L'aplatissement peut être dû à la dilution du radiotraceur qui a pu être accentuée par l'agitation, mais aussi à la décroissance radioactive du ^{99m}Tc . En effet, cette dernière expérience a été effectuée à 16h07, il faut noter qu'après 3h30 de temps presque un quart de la quantité initiale du ^{99m}Tc se désintègre engendrant une diminution de l'activité et donc une réduction du nombre de photons émis par unité de temps.

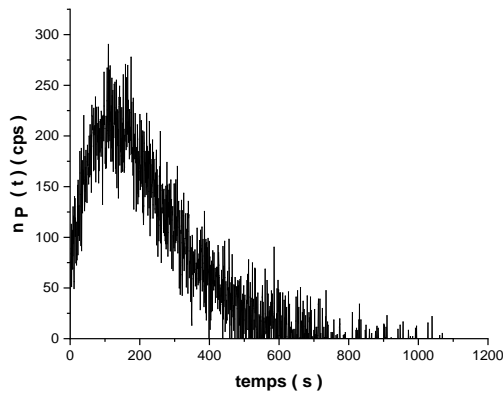
Chapitre 4 : Résultats et discussion



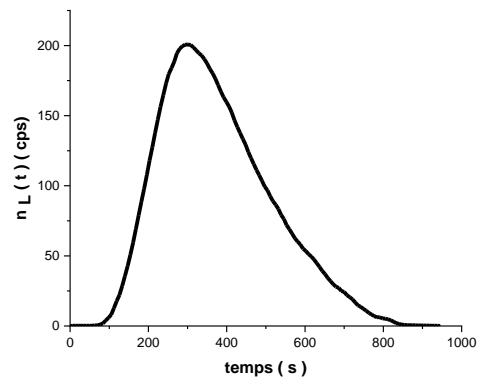
(a) Correction du bruit de fond



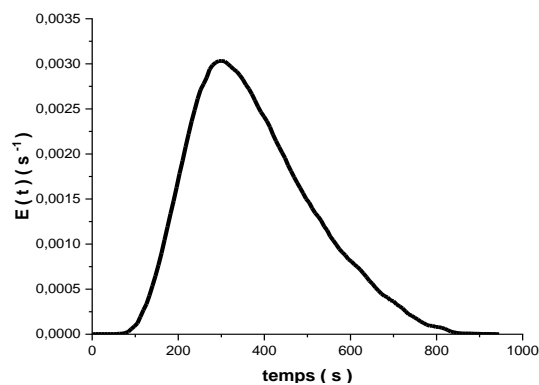
(b) Correction de la radioactivité



(c) Correction du point de départ



(d) Lissage



(e) Normalisation

Figure 4.19. Traitement de spectre pour un débit de 20 L/min avec agitation.

Pour un débit de 20 L/min, l'agitation a permis de maintenir les particules de fluide dans la colonne plus longtemps en augmentant le temps de séjour moyen de 0,26 s (le temps de séjour passe de 6,02 s à 6,28 s)

Chapitre 4 : Résultats et discussion

Lorsqu'une agitation de 127 tr/min est appliquée pour un débit de 20 L/min, une association en série d'un RP ($\tau = 85,71$ s) et d'une cascade de 4 RCPA en série ($\tau_n = 285,71$ s)(figure (4.20)), a permis de rendre compte du comportement hydrodynamique de la colonne.

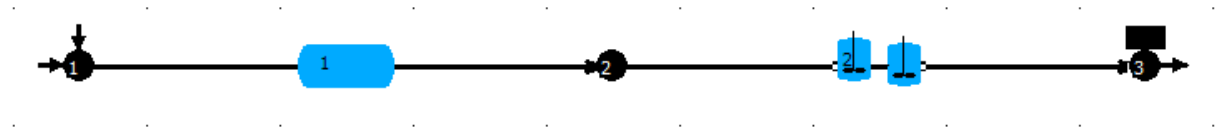


Figure 4.20. Modèle de comportement de la colonne à un débit de 20 L/min avec agitation.

La comparaison des résultats expérimentaux et simulés telle que décrite dans la figure (4.21) montre que le modèle est parfaitement adapté pour la description du comportement de la colonne.

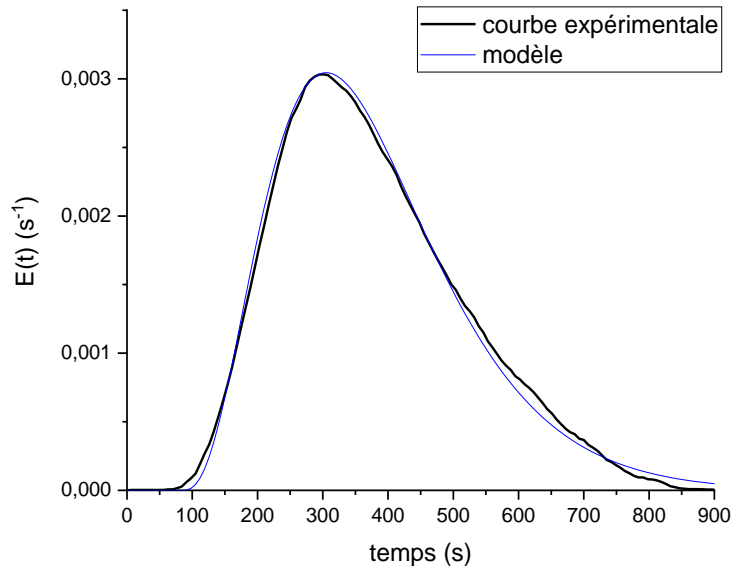


Figure 4.21. Comparaison des résultats expérimentaux et des résultats de la modélisation à un débit de 20 L/min avec agitation

Chapitre 4 : Résultats et discussion

Tableau 4.6. Récapitulatif des résultats de la modélisation de comportement hydrodynamique de la colonne pour les différents cas d'étude.

Cas	Conditions d'écoulement	Modèles						Résultats de la simulation	Résultats expérimentaux	Erreur (%)
		RP ouvert à la dispersion			Cascade de RCPA échangeant un volume mort			\bar{t}_s (min)	\bar{t}_s (min)	
1	Q = 4 L/min	τ (s)	Pe	D_{ax} (m ² /s)	N	τ_n (s)	β	15,34	15,58	1,54
		41,67	10	$1,11 \times 10^{-4}$	2	750	0,1			
2	Q = 12 L/min	RP			RP ouvert à la dispersion			8,43	8,81	4,31
		τ (s)			τ (s)	Pe	D_{ax} (m ² /s)			
		36,67			133,3	0,7	$4,77 \times 10^{-3}$			
3	Q = 20 L/min Sans agitation	RP			RP ouvert à la dispersion			6,30	6,02	4,65
		τ (s)			τ (s)	Pe	D_{ax} (m ² /s)			
		28,57			100	0,7	$7,95 \times 10^{-3}$			
4	Q = 20 L/min Avec agitation	RP			Cascade de RCPA			6,32	6,28	0,64
		τ (s)			N	τ_n (s)				
		85,71			4		285,71			

D_{ax} : Calculé avec l'équation (1.20)

Chapitre 4 : Résultats et discussion

Dans ces conditions de l'expérience la modélisation ne révèle aucune dispersion dans la direction axiale. Cette constatation a été mise en évidence lorsque nous avons effectué un essai à blanc en injectant le bleu de méthylène. 5 mL de Bleu de méthylène sont injecté avec et sans agitation dans le système. L'écoulement du colorant dans le système avec et sans agitation est décrit dans la figure (4.22) et (4.23), respectivement.

En absence d'agitation (figure (4.23)) :

- Des gradients de concentration radiaux apparaissent induisant une dispersion dans le sens radial.
- La dispersion axiale est favorisée et est prépondérante.

L'agitation a réduit la dispersion axiale et a favorisé la dispersion radiale, comme le montre la figure (4.22),

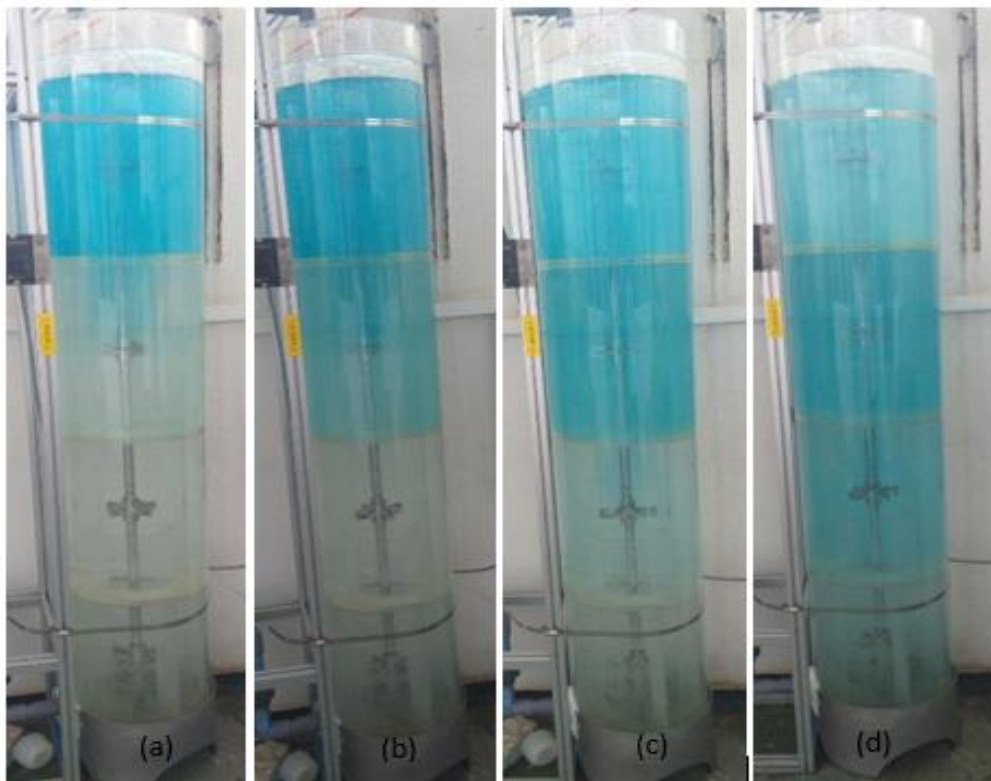


Figure 4.22. Ecoulement du colorant en présence d'agitation

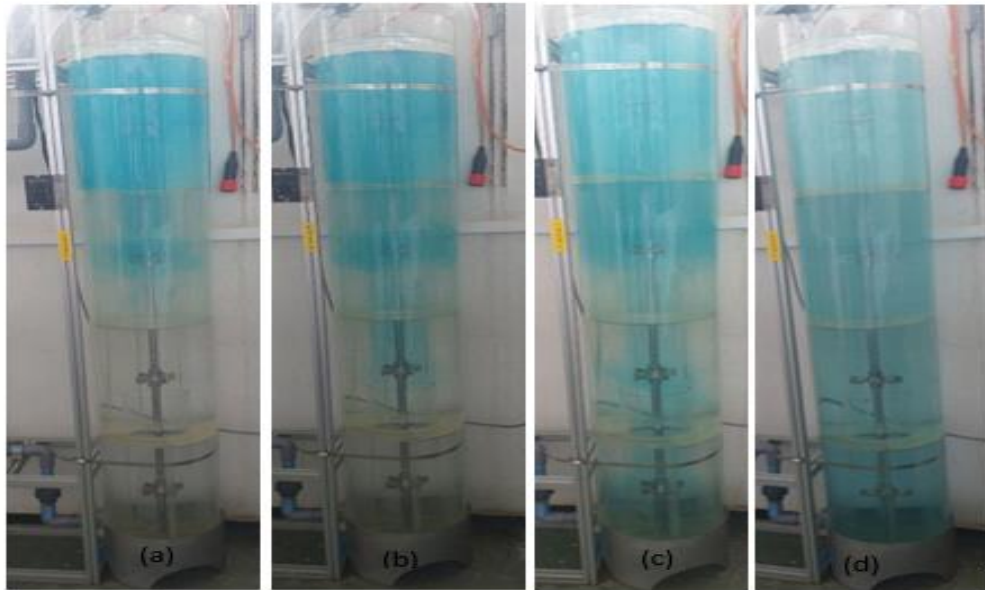


Figure 4.23. Ecoulement du colorant en absence d'agitation.

4.5. Analyse des erreurs

Toute expérience est entachée d'erreurs, même après une procédure expérimentale minutieuse. Ces erreurs se propagent ensuite dans les résultats et l'analyse des données. Elles doivent donc être quantifiées afin d'évaluer leur effet sur les résultats. Dans la présente étude, nous relevons deux différentes sources d'erreurs à savoir :

- L'erreur dans la mesure des débits : Estimée inférieure à 5 % ;
- L'erreur dans le calcul du temps de séjour moyen expérimental \bar{t}_s : Due principalement à l'extrapolation des : Dans chaque courbe expérimentale environ 1000 points sont ajoutés par des fonctions à décroissance exponentielle et dont les coefficients de déterminations sont obtenus pour tous les cas $\geq 95\%$.

CONCLUSION GENERALE

L'industrie chimique est très compliquée en termes d'efficacité de fonctionnement et de rendement de production. En effet, une meilleure connaissance de l'influence des paramètres opératoires (Température, pression vitesse d'agitation, débit d'écoulement etc..) sur le caractère hydrodynamique dans les réacteurs permet aux diverses industries d'optimiser le rendement de leurs unités afin de rendre plus compétitif le produit fabriqué. Lorsqu'un réacteur est très complexe pour être étudié à l'aide d'une approche analytique classique, l'utilisation d'une approche quantitative plus globale s'impose. L'approche systémique, proposée par Danckwerts en 1953, s'appuie sur la relation entrée-sortie et sur la réponse du système à des perturbations extérieures. Elle est complémentaire de l'approche analytique détaillée et fournit un autre type d'information : globale et souvent très efficace. La Distribution des Temps de Séjour est l'exemple le plus célèbre d'approche systémique. Le traçage radioactif constitue l'une des méthodes permettant la détermination de la DTS. Cette méthodologie de traçage s'est développée avec le temps, devenant très sélective et compétitive et quelques fois unique sur le terrain.

L'objectif principal de cette présente étude est l'évaluation hydrodynamique d'une colonne de flow rig à trois valeurs de débit d'alimentation, en effectuant des mesures de DTS par traçage radioactif.

L'analyse des courbes de DTS obtenues après traitement ont permis d'établir les résultats suivants :

- A des débits de 4 L/min et 12 L/min, les courbes de DTS présentent de longues traînées et le temps de séjour moyen expérimental est inférieur au temps de passage théorique, indiquant ainsi la présence d'un volume mort dont la fraction diminue de 36 % lorsque le débit passe de 4 L/min à 12 L/min.
- Un débit de 20L/min permet l'élimination de tout le volume mort.
- Pour un débit de 20 L/min la colonne ne présente aucune anomalie (ni volume mort, ni court-circuit).

Après avoir obtenu les courbes expérimentales de DTS le travail a consisté à trouver un modèle hydrodynamique pour représenter l'écoulement. Les principaux résultats peuvent être résumés comme suit :

- Parmi la variété de modèles d'écoulement offerts par le logiciel DTSPRO utilisé, la disposition d'un réacteur piston à dispersion axiale et une cascade de deux RCPA en série avec échange d'un volume mort semble être le plus appropriée pour décrire l'hydrodynamique de l'installation étudiée, pour un débit de 4 L/min.
- Une association en série d'un RP avec un RP avec dispersion axiale décrit parfaitement l'hydrodynamique de la colonne étudiée pour les débits de 12 L/min et 20 L/min.
- En absence d'agitation, les trois modèles précités mettent en évidence la présence d'une dispersion principalement dans le sens longitudinal. Cette dispersion s'amplifie lorsque le débit augmente.

CONCLUSION GENERALE

- L'agitation tend à réduire la dispersion axiale et à favoriser la dispersion dans le sens radial.

Au final, les mesures de DTS ainsi que la modélisation ont permis globalement d'identifier les anomalies que la colonne peut présenter et d'établir des modèles pour décrire le comportement de la colonne pour différentes valeurs de débits. L'écoulement s'avère très complexe à l'intérieur de cette colonne, à notre avis ceci est dû à la géométrie. Il est évident que l'étude de l'effet du débit avec seulement trois valeurs n'est pas suffisante. Il serait intéressant de poursuivre cette recherche en étudiant une autre gamme de débits mais aussi d'autres paramètres comme l'agitation par exemple.

Le vocable « radioactif » n'est pas un frein à l'utilisation de cette technologie. Toutes les expériences ont été, en effet, réalisées dans des conditions de sécurité parfaite dans le cadre de la législation en vigueur.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

A

ADWET, Wendy, PANT, Harish, MANGALAT, Michel, et al. Evaluation of hydraulic performance of an anaerobic pond using radiotracer technique. *Applied Radiation and Isotopes*. 2019. Vol. 145, pp. 101-105. ISSN 0969-8043.

AGENCE INTERNATIONALE DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE (AIEA). Catégorisation des sources radioactives. N° RS-G-1.9, 2011. Autriche : AGENCE INTERNATIONALE DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE, 2011.

ARDISSON, Valérie. EVALUATION DE NOUVEAUX RADIOPHARMACEUTIQUES Synthèse, évaluation, et biodistribution de nouveaux radioligands peptidiques de VCAM-1 et $\alpha_v\beta_3$. Thèse de doctorat : Ingénierie pour la Santé, la Cognition et l'Environnement. Grenoble : Université Joseph-Fourier, 2006. 269p.

AXELSSON, Gudni, BJØRNSTAD, Tor, BERNE, P, et al. Radiotracer Applications in Industry - A Guidebook. Technical Report Series No. 423. Austria : International Atomic Energy Agency, 2004, 281p. ISBN 92-0-114503-9.

B

BERNE, P, BJØRNSTAD, Tor, BRISSET, Patrick, et al. Radiotracer Residence Time Distribution Method for Industrial Applications and Environment: Material for Education and On-the-Job Training for Practitioners of Radiotracer Technology [en ligne]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2008 [17/04/2021]. Format PDF. Disponible sur : https://www.researchgate.net/publication/263465660_Radiotracer_Residence_Time_Distribution_Method_for_Industrial_Applications_and_Environment

BIAU, Alain et VIDAL, Jean-Pierre. Protection contre les dangers des rayonnements ionisants. Dans : Sécurité au laboratoire, [en ligne]. 10 juin 2009. Editions T.I. [Paris, France], 2021, p16160, [Consulté le 15/04/2021], TIB378DUO, [base de données en ligne], disponible à l'adresse : <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/mesures-analyses-th1/securite-au-laboratoire-42378210/protection-contre-les-dangers-des-rayonnements-ionisants-sl6160/>

BIMBOT, René, BONNIN, André, DELOCHE, Robert, et al. Cent ans après : La radioactivité le rayonnement d'une découverte. Paris : EDP Sciences, 1999, 224p. ISBN 2-86883-430-2.

BJØRNSTAD, Tor, HILLS, A.E, PALIGE, J, et al. Radiotracers and Labelling Compounds for Applications in Industry and Environment [en ligne]. Austria: International Atomic Energy Agency, 2004 [13/04/2021]. Format PDF. Disponible sur : https://www.researchgate.net/publication/317600167_Radiotracers_and_Labelling_Compounds_for_Applications_in_Industry_and_Environment

BOURREL, François et COURRIÈRE, Philippe. Radioanalyse Définitions et techniques. Dans : Analyse des macromolécules biologiques, [en ligne]. 10 juin 2003. Editions T.I. [Paris, France], 2021, p3360, [Consulté le 15/04/2021], TIB380DUO, [base de données en ligne],

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

disponible à l'adresse : <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/mesures-analyses-th1/analyse-des-macromolecules-biologiques-42380210/radioanalyse-p3360/>

C

CHACKO, Anna k, SHAH, Rashmikant B, et CHACKO, J. Andrew. Emergency Nuclear Radiology. In: SOTO, Jorge A, LUCEY, Brian C. EMERGENCY RADIOLOGY: THE REQUISITES. United States: MOBSY Elsevier, 2009, pp. 361-383. ISBN978-0-323-05407-2

CHARLTON, J.S. Radioisotope Techniques For Problem-Solving In Industrial Process Plants. United States : Springer Netherlands, 1986, 328p, ISBN 978-94-010-8306-5

CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE (CNRS). Cahier de prévention : Risques radioactifs et radioprotection [en ligne]. CNRS, 2018, 130 p [24/04/2021]. Format PDF. Disponible sur : <http://www.dgdr.cnrs.fr/sst/cnps/guides/radioprotection.htm>

D

DATTA, Arghya, GUPTA, Raj Kumar, GOSWAMI, Sunil, et al. Residence time distribution measurements in an ethyl acetate reactor using radiotracer technique. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2019. Vol.320, pp. 711–723. ISSN 1588-2780.

DEBACQ, Marie. Génie de la Réaction Chimique : Distribution des Temps de Séjour [en ligne]. Paris : École d'ingénieur, Conservatoire national des arts et métiers, 2016, 14 p. [consulté le 10/03/2021]. Disponible sur : https://hal.archives-ouvertes.fr/cel-01487790v2/file/polyGRC_fev2016.pdf.

Décret n°2003-296 du 31 mars 2003 relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisant. Journal officiel, n° 78, 2003-04-02, pp. 5779-5787.

DELACROIX, Daniel. Guide pratique : Radionucléides & Radioprotection. Paris: EDP Sciences, 2006, 262p. ISBN 2-86883-864-2.

DEPARTMENT OF ENERGY DOE. Nuclear Physics and Reactor Theory Fundamentals Handbook Vol. 1 + 2 [en ligne]. United states: DOE, 1993 [17/04/2021]. Format PDF. Disponible sur : <https://b-ok.africa/book/2818174/5ffd66>

E

EL KORCHI, Khadidja, ALAMI, Rached, SAADAOU, Abdelaziz, et al. Residence time distribution studies using radiotracers in a lab-scale distillation column: Experiments and modeling. Applied Radiation and Isotopes. 2019. Vol.154, pp. 108889. ISSN 0969-8043.

F

FOGLER, H. Scott. Elements of Chemical Reaction Engineering _ Fourth Edition. United States of America: Pearson Education, Inc, 2006,1080 p. ISBN 23-13-047394-4.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

FOOS, Jacques. Manuel de radioactivité : 118 exercices résolus. Paris : Le Moniteur, 2009, 530p. ISBN 978-2-7056-6871-6.

FORCE INSTITUTE, Manuel d'utilisation du logiciel Flow Measurement, Septembre 1997.

FURMAN, Leszek, PETRYKA, Leszek, STEGOWSKI, Zdzisław, et al. Data acquisition and processing in radiotracer experiments. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2003. Vol. 211, n°3, pp.436-442. ISSN 0168-583X.

G

GAMBINI, Denis-jean et GRANIER, Robert. Manuel pratique de radioprotection. Paris : Tec & Doc Lavoisier, 2007, 666p, ISBN 978-2-7430-0959-5.

GARDEL, R. La Radioactivité : le point de vue de la protection et des services sanitaires. Paris: France Selection, 1959, 394p.

GUINET, Michel. Réactions et réacteurs chimiques : cinétique chimique : cours et exercices. Paris : Ellipses, 2007, 270 p. ISBN 978-2-7298-3535-4.

GITAU, Immy, GATARI, Michael et PANT, Harish. Investigation of flow dynamics of porous clinkers in a ball mill using technetium-99m as a radiotracer. Applied Radiation and Isotopes. 2019. Vol. 154, pp108902. ISSN 0969-8043.

GOSWAMI, Sunil, PANT, Harish Jagat, SHARMA, Vijay Kumar, et al. Radiotracer investigation in a pilot-scale fluidized bed coal gasifier (FBCG). Applied Radiation and Isotopes. 2019. Vol.149, pp. 22-30. ISSN 0969-8043.

H

HAAG, J, CENTRIC, C, LEMAITRE, C, et al. Modelling of Chemical Reactors : From Systemic Approach to Compartmental Modelling [En ligne]. 2019. International Journal of Chemical Engineering. [Consulté le 16/05/2021]. Disponible sur: <http://iceel.eu/wp-content/uploads/2019/03/Modcomp.pdf>

HOUZELOT, Jean-Léon. Distribution des temps de séjour et efficacité des réacteurs chimiques [en ligne]. 2013, base documentaire : TIB330DUO, j4014. [Consulté le 19 /04/2021]. Disponible sur <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/procedes-chimie-bio-agro-th2/reacteurs-chimiques-42330210/distribution-des-temps-de-sejour-et-efficacite-des-reacteurs-chimiques-j4014/>

HWEJI, Abou K et AZIZI, F. Hydrodynamics and residence time distribution of liquid flow in tubular reactors equipped with screen-type static mixers. Chemical Engineering Journal. 2015. Vol.279, pp. 948–963. ISSN 1385-8947

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

I

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). A basic toxicity classification of radionuclides. Technical Report Series No. 15. Austria: International Atomic Energy Agency, 1963, 39p. ISBN 92-0-125063-0.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). Radiotracer Generators for Industrial Applications. Vienna : International Atomic Energy Agency, 2013, 203p. ISBN 978-92-0-1

J

JIMONET, Christine et METIVIER, Henri. Personne compétente en radioprotection : Principes de radioprotection – réglementation. Paris: EDP Sciences, 2007, 362p. ISBN 978-2-86883-948-0.

K

KASBAN, H, ZAHRAN, O, ARAFA, H, et al. Laboratory experiments and modeling for industrial radiotracer applications. Applied Radiation and Isotopes. 2010. Vol.68, pp. 1049-1056. ISSN 0969-8043

KASBAN, H, ARAFA, Horya A et ELARABY, Sayed Mohamed S. Principal component analysis for radiotracer signal separation. Applied Radiation and Isotopes. 2016. Vol. 112, pp.20-26. ISSN 0969-8043.

L

L'ANNUNZIATA, Michael F. Radioactivity: Introduction and history. Pays-Bas: Elsevier Science, 2007, 609p, ISBN 978-0-444-52715-8

LEVENSPIEL, Octave. Chemical Reaction Engineering _ Third edition. New York: John Wiley & Sons, 1999. 668 p. ISBN 0-471-25424-X.

LEVEQUE, Pierre. Les Application Industrielles des Radioéléments. Collection de l'ANRT. Paris: Eyrolles, 1962, 352p.

LUABANYA, J.S.M, DAGADU, Christian P.K et HANNAH, Affum.A. Radiotracer investigation in an aerobic digester of a wastewater treatment plant. Applied Radiation and Isotopes. 2020. Vol.158, pp. 109048. ISSN 0969-8043.

N

NÉGREL, Philippe. Isotopes en analyse chimique pour la gestion de l'eau. Dans : Analyses dans l'environnement : eau et air, [en ligne]. 10 sept. 2008. Editions T.I. [Paris, France], 2021, p4215, [Consulté le 15/04/2021], TIB831DUO, [base de données en ligne], disponible à l'adresse : <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/mesures-analyses->

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

th1/analyses-dans-l-environnement-eau-et-air-42831210/isotopes-en-analyse-chimique-pour-la-gestion-de-l-eau-p4215/

NORAISHAH, Othman, ROSLAN, Yahya, MIOR, Ahmad Khusaini Adnan, et al. RADIOTRACER APPLICATION IN MALAYSIA: RESIDENCE TIME DISTRIBUTION STUDY. MALAYSIAN JOURNAL OF ANALYTICAL SCIENCES. 2017. Vol. 21, pp. 445 – 451. ISSN 1394 – 2506.

P

PANT, Harish Jagat, GOSWAMI, Sunil, BISWAL, Jayashree, et al. Discharge rate measurements in a canal using radiotracer methods. Applied Radiation and Isotopes. 2016. Vol.112, pp.89-97. ISSN 0969-8043

PANT, Harish Jagat, KUNDU, Arunabha et NIGAM, K.D.P. Radiotracer applications in chemical process industry. Reviews in Chemical Engineering. 2001. Vol. 17, pp. 165-252.

PASCAL, Paul. Nouveau traité de chimie minérale T.XVI : fluor, chlore, brome, iode, astate, manganèse, technétium, rhénium. Paris : Masson, 1960, 1195p, ISBN

POCHET, Thierry. Détecteurs nucléaires Principes physiques de fonctionnement. Dans : Instrumentation et contrôle-commande des installations nucléaires, [en ligne]. 10 juil. 2005. Editions T.I. [Paris, France], 2021, bn3480, [Consulté le 29/05/2021], TIB202DUO, [base de données en ligne], disponible à l'adresse : <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/energies-th4/instrumentation-et-controle-commande-des-installations-nucleaires-42202210/detecteurs-nucleaires-bn3480/>

PROGEPI, LSGC-CNRS-ENSIC. Instruction Manual: SOFTWARE “DTSPRO V4.2”. Nancy, France : SYSMATEC, 2000, 34 p.

PAVLOVICL Miroslav, R. PANTOVIC PAVLOVIC, Marijana, BARTL, Pavel, et al. Optimization of injected radiotracer volume for flow rate measurement in closed conduits. Hemijska industrija [en ligne]. 2020, Vol 74, pp 305-312. [Consulté le 23/04/2021]. Disponible sur <https://doi.org/10.2298/HEMIND20050325P>

R

RAMAMOORTHY, Natesan et HAJI-SAEID, Mohammad. Industrial applications of radioisotopes and radiation technology and Agency's role. International Atomic Energy Agency, October 2004. Austria: Vienna. Proceedings of the Third Eurasian Conference Nuclear Science and its Application.

RODRIGUES, Alírio E. Residence time distribution (RTD) revisited. Chemical Engineering Science. 2021. Vol.230, pp. 116188. ISSN 0009-2509.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

S

SCHMIDT, Lanny. The engineering of chemicals reactions. New York: Oxford University Press, 1998. 552 p. ISBN 0-19-510588-5.

SCHWIECH, Daniel. 2001. Génie de la réaction chimique. Paris : Technique et documentation (Lavoisier), 2001, 610 p. ISBN 978-2-7430-0459-0.

SCHWOCHAU, Klaus. Technetium: Chemistry and Radiopharmaceutical Applications. Germany: WILEY-VCH, 2000, 447p, ISBN 3-527-29496-1.

SHEORAN, Meenakshi, CHANDRA, Avinash, BHUNIA, Haripada, et al. Residence time distribution studies using radiotracers in chemical industry—A review. Chemical Engineering Communications. 2018. Vol. 205, pp. 739-758. ISSN 0098-6445.

SHEORAN Meenakshi, GOSWAMI, Sunil, J. PANT, Harish, et al. Measurement of residence time distribution of liquid phase in an industrial-scale continuous pulp digester using radiotracer technique. Applied Radiation and Isotopes. 2016. Vol. 111, pp 10-17. ISSN 0969-8043.

SOOD, D.D, REDDY, A.V.R et RAMAMOORTHY, N. Fundamentals of Radiochemistry. India: Indian Association of Nuclear Chemists and Allied, 2000, 509p.

Sysmatec. Automatisation, Science des procédés, Appareils de laboratoire. [En ligne]. [Consulté le 13/05/2021]. Disponible sur : sysmatec.ch/French/fG.

T

THOREAU, Fabien. Conception, synthèse et activité biologique de vecteurs peptidiques pour le ciblage et/ou la thérapie du cancer. Thèse de doctorat : Chimie et Sciences du Vivant. Grenoble : Université Grenoble Alpes, 2017. 319p.

TRAMBOUZE, Pierre. Les réacteurs chimiques : conception, calcul et mise en œuvre. Paris : Technip, 1984, 651 p. ISBN 2-7108-0456-5.

V

VILLERMAUX, Jacques. Génie de la Réaction Chimique : Conception et Fonctionnement des réacteurs. Paris : Technique et documentation, 1982, 401 p. ISBN : 978-2-85206-132-3.

VIITANEN, P. RADIOCHEMICAL METHODS | Radiotracers, In : Encyclopedia of Analytical Science (Second Edition). United States : Elsevier, 2005, pp. 50-58. ISBN.

Y

YUNOS, Mohd Amirul Syafiq Mohd, HUSSAIN, Siti Aslina et SIPAUM, Susan Maria. Industrial radiotracer application in flow rate measurement and flowmeter calibration using ^{99m}Tc and ^{198}Au nanoparticles radioisotope. Applied Radiation and Isotopes. 2018. Vol. 143, pp. 24-28. ISSN 0969-8043.