



**HAL**  
open science

# Étude et modélisation du comportement de la phase dispersée dans une colonne pulsée : application à un procédé de précipitation oxalique

Abdenour Amokrane

► **To cite this version:**

Abdenour Amokrane. Étude et modélisation du comportement de la phase dispersée dans une colonne pulsée : application à un procédé de précipitation oxalique. Génie des procédés. Université Claude Bernard - Lyon I, 2014. Français. NNT : 2014LYO10076 . tel-01064565

**HAL Id: tel-01064565**

**<https://theses.hal.science/tel-01064565>**

Submitted on 16 Sep 2014

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE DE L'UNIVERSITE DE LYON

Délivrée par

L'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD LYON 1

Diplôme de doctorat

Ecole doctorale de chimie de l'université de Lyon

Spécialité : Génie des Procédés

par Abdenour AMOKRANE

**ÉTUDE ET MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DE LA PHASE  
DISPERSÉE DANS UNE COLONNE PULSÉE : APPLICATION À UN  
PROCÉDÉ DE PRÉCIPITATION OXALIQUE**

Soutenue publiquement le 14 mai 2014 devant un jury composé de :

Pr Frédéric GRUY	Rapporteur
Dr Olivier LEBAIGUE	Rapporteur
Pr Michel LANCE	Examineur - Président
Dr Hervé MUHR	Examineur
Dr Sophie CHARTON	Examinatrice
Dr François PUEL	Examineur (Directeur de thèse)

# UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1

## **Président de l'Université**

**M. François-Noël GILLY**

Vice-président du Conseil d'Administration

M. le Professeur Hamda BEN HADID

Vice-président du Conseil des Etudes et de la Vie Universitaire

M. le Professeur Philippe LALLE

Vice-président du Conseil Scientifique

M. le Professeur Germain GILLET

Directeur Général des Services

M. Alain HELLEU

## ***COMPOSANTES SANTE***

Faculté de Médecine Lyon Est – Claude Bernard

Directeur : M. le Professeur J. ETIENNE

Faculté de Médecine et de Maïeutique Lyon Sud – Charles Mérieux

Directeur : Mme la Professeure C. BURILLON

Faculté d'Odontologie

Directeur : M. le Professeur D. BOURGEOIS

Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques

Directeur : Mme la Professeure C. VINCIGUERRA

Institut des Sciences et Techniques de la Réadaptation

Directeur : M. le Professeur Y. MATILLON

Département de formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine

Directeur : Mme. la Professeure A-M. SCHOTT

## ***COMPOSANTES ET DEPARTEMENTS DE SCIENCES ET TECHNOLOGIE***

Faculté des Sciences et Technologies

Directeur : M. le Professeur F. DE MARCHI

Département Biologie

Directeur : M. le Professeur F. FLEURY

Département Chimie Biochimie

Directeur : Mme le Professeur H. PARROT

Département GEP

Directeur : M. le Professeur H. HAMMOURI

Département Informatique

Directeur : M. le Professeur S. AKKOUCHE

Département Mathématiques

Directeur : M. le Professeur A. GOLDMAN

Département Mécanique

Directeur : M. le Professeur H. BEN HADID

Département Physique

Directeur : Mme S. FLECK

Département Sciences de la Terre

Directeur : Mme la Professeure I. DANIEL

UFR Sciences et Techniques des Activités Physiques et Sportives

Directeur : M. Y. VANPOULLE

Observatoire des Sciences de l'Univers de Lyon

Directeur : M. B. GUIDERDONI

Polytech Lyon

Directeur : M. P. FOURNIER

Ecole Supérieure de Chimie Physique Electronique

Directeur : M. G. PIGNAULT

Institut Universitaire de Technologie de Lyon 1

Directeur : M. C. VITON

Ecole Supérieure du Professorat et de l'Education

Directeur : M. A. MOUGNIOTTE

Institut de Science Financière et d'Assurances

Directeur : M. N. LEBOISNE

## Résumé

La thèse porte sur l'étude et la modélisation d'une colonne pulsée utilisée dans les opérations d'extraction liquide-liquide dans l'industrie nucléaire, et qui est par ailleurs également utilisée pour des opérations de précipitation oxalique en continu.

La modélisation du comportement de la phase dispersée dans la colonne est entreprise dans ce manuscrit. Tout d'abord, nous avons commencé par la modélisation du champ moyen et de la turbulence de la phase continue qui est responsable du transport et de la rupture et coalescence de la phase dispersée. Le modèle développé, validé sur des mesures PIV, prédit d'une manière très satisfaisante la turbulence. Une modélisation des temps de séjour (DTS) des gouttes par une approche lagrangienne est ensuite entreprise. Cette modélisation est validée sur des mesures de DTS prises par une technique d'ombroscopie. Les résultats de modélisation sont en très bon accord avec les mesures expérimentales.

Pour modéliser les distributions de tailles des gouttes (DTG) dans la colonne, nous avons utilisé les équations de bilan de population (PBE) que nous avons couplées avec le modèle de mécanique des fluides numérique (CFD). Un réacteur parfaitement agité (RPA) équipé d'une sonde optique est utilisé, dans un premier temps, pour acquérir les DTG relatives à notre système liquide-liquide. Par le biais d'une modélisation 0D dans le RPA basée sur la résolution du problème inverse, nous avons pu déterminer les noyaux de rupture et de coalescence adaptés à notre système pour les utiliser dans la PBE. Les noyaux de rupture et de coalescence ainsi identifiés ont ensuite été utilisés pour modéliser les DTG dans la colonne pulsée par un modèle couplé CFD-PBE basé sur la méthode QMOM.

Enfin, une validation du modèle couplé CFD-PBE est réalisée sur des mesures de DTG dans la colonne pulsée. Les résultats obtenus reproduisent parfaitement les mesures expérimentales aussi bien d'un point de vue qualitatif que quantitatif. Le modèle validé est ensuite utilisé dans le cadre d'une étude paramétrique qui a permis de donner accès à un certain nombre d'informations utiles sur le fonctionnement du procédé.

---

## **Title : MODELLING OF THE BEHAVIOUR OF A DISPERDED LIQUID PHASE IN A PULSED COLUMN**

### **Abstract**

This study was dedicated to the modeling of the dispersed behavior in a pulsed column used both in liquid-liquid extraction and continuous oxalic precipitation in the nuclear industry.

We have started by modeling the mean flow and turbulence of the continuous phase, which is responsible of the transport, breakup and coalescence of the droplets. The turbulence was accurately predicted by the model that we have validated on PIV type measurements. Then, we have moved to the modeling on the residence time distributing (RTD) of the dispersed phase via a lagrangian approach. The calculated RTDs were also validated using an ombroscopic technique allowing for the measurement of the RTD of the droplets in the pulsed column.

The droplets size distribution (DSD) of the droplets were obtained by the mains of population balance equation modeling (PBE) coupled together with the CFD validated model. In order to choose the breakup and coalescence models relevant to our system, we have first used a stirred vessel in which we performed measurements of the DSD using a probe. These measured DSD were used to choose the breakup and coalescence models by resolving the 0d inverse problem. These models were then set in the CFD-PBE coupled model, which was resolved with the QMOM method, to simulate the DSD in the pulsed column.

A validation of the CFD-PBE coupled model was also performed via DSD measurements inside the pulsed column. The simulations were found to accurately represent the experiments qualitatively and event quantitatively. Once the model was validated, it has been used to perform a parametric study that allowed us to gain understanding in the behavior of the dispersed phase in the pulsed column.

---

# Table des matières

Résumé	3
Table des matières	6
Nomenclature	6
<b>1 Modélisation de l'écoulement dans une colonne pulsée</b>	<b>13</b>
1.1 Modélisation de l'écoulement monophasique dans la colonne pulsée . . . . .	13
1.1.1 Modélisation de la turbulence . . . . .	16
1.1.2 Matériels et méthodes expérimentales . . . . .	20
1.1.3 Modèle numérique . . . . .	25
1.1.4 Résultats et discussion . . . . .	29
1.1.5 Conclusions partielles sur la modélisation de l'écoulement monophasique . . . . .	38
1.2 Modélisation des temps de séjour des gouttes . . . . .	40
1.2.1 Matériels et méthodes . . . . .	40
1.2.2 Modélisation de l'écoulement des gouttes et temps de séjour . . . . .	44
1.2.3 Résultats et discussion . . . . .	48
1.2.4 Conclusion . . . . .	52
<b>2 Équations du Bilan de Population (PBE) : identification des noyaux de rupture et coalescence</b>	<b>53</b>
2.1 Emulsification dans un Réacteur Parfaitement Agité . . . . .	56
2.1.1 Choix du RPA . . . . .	56
2.1.2 Dispositifs expérimentaux . . . . .	57
2.1.3 Étalonnage et validation de la sonde vidéo . . . . .	64
2.1.4 Validation de la détection des plus grosses gouttes . . . . .	74
2.1.5 Conditions opératoires et protocole expérimental . . . . .	76
2.2 Modèles et méthodes numériques . . . . .	77
2.2.1 Choix de méthode de résolution de la PBE . . . . .	77
2.2.2 Choix des modèles de rupture . . . . .	80
2.2.3 Choix du modèle de coalescence . . . . .	83
2.3 Résultats et discussion . . . . .	86
2.3.1 Reproductibilité des mesures de DTG . . . . .	87
2.3.2 Évolution temporelle des DTG . . . . .	87

---

---

2.3.3	Identification des noyaux de rupture . . . . .	91
2.3.4	Identification de la coalescence . . . . .	97
2.4	Conclusion . . . . .	109
<b>3</b>	<b>Modélisation des propriétés de l'émulsion : couplage CFD-PBE</b>	<b>111</b>
3.1	Présentation du modèle numérique . . . . .	112
3.1.1	La méthode QMOM . . . . .	112
3.1.2	Domaine de calcul et conditions aux limites . . . . .	113
3.1.3	Application à la modélisation des propriétés de l'émulsion . . . . .	114
3.2	Propriétés de l'émulsion dans une colonne pulsée : étude expérimentale . . . . .	119
3.2.1	Matériel et méthodes . . . . .	119
3.2.2	Conditions opératoires explorées . . . . .	120
3.2.3	Résultats et discussion . . . . .	121
3.3	Simulation des propriétés de l'émulsion en colonne pulsée et validation du modèle . . . . .	129
3.3.1	Cartographie du diamètre moyen . . . . .	129
3.3.2	Réajustement des noyaux de rupture et de coalescence dans la colonne pulsée . . . . .	129
3.3.3	Etude de sensibilité numérique . . . . .	134
3.4	Conclusion . . . . .	139
<b>4</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>141</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>153</b>
	<b>Annexes</b>	<b>157</b>
<b>A</b>	<b>Production Scientifique</b>	<b>157</b>
	Articles de Revues . . . . .	157
	Congrès, Colloques et Séminaires scientifiques . . . . .	157

---

## Nomenclature

$a$	$[m^3s^{-1}]$	Taux de coalescence
$A$	$[mm]$	Amplitude de pulsation
$A_1(m^{-2/3}), A_2, A_3$	$[-]$	Constantes du modèle de rupture d'Alopaeus
$b$	$[s^{-1}]$	Fréquence de rupture
$B$	$[m^{-6}s^{-1}]$	Taux d'apparition
$B$	$[m^{-3}s^{-1}]$ eq. 2.1 à 2.13]	Taux d'apparition
$C_1(m^{-2}), C_2, C_3, C_4$	$[-]$	Constantes du modèle de rupture et de coalescence
$d$	$[mm]$	Diamètre de goutte
$D$	$[mm]$	Diamètre de la colonne pulsée
$D_c$	$[mm]$	Diamètre de la colonne pulsée
$D$	$[m^{-6}s^{-1}]$	Taux de disparition
$D$	$[m^{-3}s^{-1}]$ eq. 2.1 à 2.13]	Taux de disparition
$D$	$[m]$	Diamètre de l'agitateur
$f$	$[Hz]$	Fréquence de pulsation
$g$		Densité de distribution en volume
$H$	$[m]$	Hauteur du liquide
$J$	$[m/s]$	Flux massique
$k$	$[m^2/s^2]$	Énergie cinétique turbulente
$K$	$[-]$	Constante du modèle de Martinez-Bazan
$L$	$[m]$	Abscisses dans la méthode QMOM
$m$	$[kg]$	Masse de l'émulsion
$m$		Moment de la distribution
$n$	$[m^{-3}]$	Densité de probabilité en nombre
$N_P$	$[-]$	Nombre de puissance de l'agitateur
$p$	$[N/m^2]$	Pression
$Re$	$[-]$	Nombre de Reynolds
$S$		Terme source
$t$	$[s]$	Temps
$T$	$[s]$	Période
$u$	$[m^3]$	Volume de la goutte fille
$u$	$[m/s]$	Vitesse instantanée
$u'$	$[m/s]$	Fluctuation de vitesse
$\vec{u}$	$[m/s]$	Vecteur vitesse
$\vec{U}$	$[m/s]$	Vitesse en entrée
$V'$	$[m^3]$	Volume de la goutte mère
$w$		Poids dans la méthode QMOM
$We$		Nombre de Weber
$x$	$[m]$	Coordonnée interne
$\vec{y}$	$[m]$	Position spatiale

### ***Lettres grecques***

$\beta$	Fonction de densité de probabilité
$\epsilon$ [ $m^2/s^3$ ] ou [ $W/kg$ ]	Dissipation turbulente
$\phi$ [%]	Fraction volumique de la phase dispersée (ou rétention)
$\kappa$	Constante dans le modèle de Martinez-Bazan, $\kappa=8.2$
$\nu$ [ $m^2/s$ ]	Viscosité cinématique
$\mu$ [ $Pa.s$ ]	Viscosité dynamique
$\rho$ [ $kg/m^3$ ]	Masse volumique
$\sigma$ [ $N/m$ ]	Tension interfaciale

### ***Abréviations***

CFD	Computational Fluid Dynamics (Mécanique des Fluides numérique)
DNS	Direct Numerical Simulation
DTG	Distribution de Tailles de Gouttes
DTS	Distribution de Temps de Séjour
LAGEP	Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés
LES	Large Eddy Simulation
LDV	Laser Doppler Velocimetry
LGCI	Laboratoire de Génie Chimique et Instrumentation, CEA Marcoule
MOX	Mixed Oxides
PBE	Population Balance Equation (Équation de bilan de population)
PIV	Particle Image Velocimetry
PUREX	Plutonium Uranium Refining by EXtraction
QMOM	Quadrature Method Of Moments
RANS	Reynolds Average Navier-Stokes
RPA	Réacteur Parfaitement Agité
UDF	User Defined Function

### ***Indices et exposants***

$B$	Rupture
$c$	Phase continue
$cr$	Critique
$C$	Coalescence
$d$	Phase dispersée
$i$	Désigne le $i$ ème moment
$k$	Désigne le moment d'ordre $k$
$S$	Superficielle
$T$	Totale
$TI$	Rupture turbulente inertielle
$TV$	Rupture turbulente visqueuse
$\theta$	Pour la goutte mère

# Introduction et contexte de l'étude

Les procédés d'extraction liquide-liquide mettent en œuvre des émulsions pour promouvoir la surface d'échange entre les deux phases immiscibles. L'industrie nucléaire utilise ces procédés dans le cycle du combustible, et notamment dans les étapes de retraitement du combustible usé, ou *aval du cycle*. Le procédé "PUREX"<sup>1</sup>, originellement développé aux USA, est le cœur de cette activité et vise à extraire les matières nobles (uranium et plutonium) des produits de fission contenus dans le combustible usé. Il est basé sur l'utilisation d'une molécule organique ayant une sélectivité élevée vis-à-vis de l'élément à extraire. Dans le but de maximiser le transfert de matière, la phase aqueuse contenant les éléments valorisables préalablement dissous est dispersée sous forme de gouttelettes dans la phase continue, qui contient la molécule extractante, dans une colonne pulsée. La séparation des deux phases se fait par la suite par des opérations de centrifugation ou de décantation. Enfin, les matières nobles sont récupérées par un procédé de précipitation oxalique dans un réacteur Vortex.

Afin de répondre aux besoins des usines de retraitement futures et de la transmutation, des alternatives au procédé actuel de retraitement sont étudiées, notamment en vue d'augmenter la flexibilité et/ou la capacité de l'étape de précipitation. Il s'agit par exemple pour la transmutation des actinides mineurs, de faciliter les étapes de préparation des cibles d'oxydes mixtes. Une solution, proposée et brevetée par le LGCI (Laboratoire de Génie Chimique et Instrumentation) du CEA Marcoule, consiste à précipiter les actinides en émulsion, dans une colonne pulsée ou une colonne à effet Couette. Ce procédé présente le double avantage :

- de mettre en œuvre des technologies connues et éprouvées, et opérables à des débits significatifs (colonne pulsée) ou au contraire minimales (colonne Couette) ;
- de confiner le précipité très collant limitant ainsi les problèmes d'encrassement et les inconvénients que cela implique tant d'un point de vue de productivité que de sécurité.

Les premiers essais menés en colonne pulsée de faible diamètre ( $D=15\text{mm}$ ) ont démontré

---

<sup>1</sup>Plutonium Uranium Refining by EXtraction

---

la faisabilité du procédé (Borda *et al.*, 2011). Néanmoins, la maîtrise du procédé et des propriétés du produit fini constitue un enjeu important qui passe par la compréhension des mécanismes de précipitation et leurs couplages avec les conditions hydrodynamiques régnant au sein de l'appareil. Dans cet objectif, la simulation numérique constitue un outil indispensable pour l'accompagnement des programmes de R&D dédiés à la mise au point et développement de ce procédé. Les travaux de ma thèse s'inscrivent dans cette démarche de modélisation (Charton, 2010). Ils trouvent un intérêt aussi bien dans ce schéma innovant de retraitement du combustible que pour les procédés d'extraction liquide-liquide. A noter qu'au-delà de l'industrie nucléaire, cadre de ce travail, les procédés d'extraction et de précipitation en émulsion sont présents dans d'autres industries de transformation de la matière, comme l'industrie pharmaceutique, auxquelles ces travaux de thèse sont donc transposables.

La comportement de la phase dispersée détermine la capacité du procédé à remplir sa fonction, à savoir une extraction plus efficace. Dans le cas du procédé de précipitation oxalique en émulsion, la phase dispersée représente les réacteurs dans lesquels a lieu la réaction de précipitation. La compréhension du comportement de la phase dispersée est donc primordiale pour la compréhension et le dimensionnement de ces procédés. Dans le cas de la colonne pulsée, qui est l'appareil utilisé à l'échelle industrielle, le comportement de la phase dispersée n'est pas complètement élucidé. Alors que les études consacrées à l'écoulement monophasique sont nombreuses, celles consacrées à la phase dispersée le sont beaucoup moins. Il en est de même en ce qui concerne la colonne Couette, utilisée à plus petite échelle pour la R & D (Nemri, 2013).

L'objectif de ces travaux de thèse est d'utiliser les capacités de la mécanique des fluides numérique (CFD) pour modéliser le comportement de la phase dispersée dans une colonne pulsée. La simulation numérique offre en effet de nombreux avantages tels que la facilité de mise en œuvre, la minimisation du nombre d'expériences au juste besoin, la possibilité d'accéder à des informations et des conditions de fonctionnement difficilement atteignables expérimentalement, etc. Les différents modèles développés sont par ailleurs validés à partir de mesures expérimentales pertinentes et variées, telles que la mesure des champs de vitesse et de turbulence, de la distribution de temps de séjour des gouttes (DTS) et de taille des gouttes (DTG).

Le premier chapitre de ce manuscrit est consacré à la modélisation des champs de vitesse et de turbulence dans la colonne pulsée. L'objectif n'est pas de décrire parfaitement toutes les échelles de l'écoulement monophasique dans la colonne, bien documenté dans la littérature, mais de s'assurer de la bonne représentativité de la turbulence par les modèles RANS<sup>2</sup> disponibles dans les codes de CFD. Dans ce cadre des mesures PIV ont été réalisées dans différentes conditions opératoires sur un prototype de colonne dédié à l'instrumentation optique. La précision de la chaîne de mesure et des résultats est discutée, avant de comparer et de discuter les différents modèles de turbulence et schémas

---

<sup>2</sup>Reynolds Average Navier-Stokes

---

numériques sur la base de ces résultats expérimentaux. Une combinaison modèle de turbulence / schéma numérique, qui représente le plus fidèlement possible la turbulence, a été définie et sélectionnée pour la suite de l'étude.

Le seconde partie du premier chapitre porte sur la modélisation des DTS des gouttes dans la colonne. La colonne "prototype" a été utilisée pour suivre et mesurer les trajectoires de gouttelettes, injectées dans la colonne, à l'aide d'une technique d'ombroscopie reposant sur l'utilisation d'une caméra et d'une lumière homogène. A nouveau, plusieurs conditions opératoires, incluant trois diamètres différents de gouttes, ont été explorées. Les résultats expérimentaux sont discutés et comparés à ceux d'études précédentes décrites dans la littérature.

La modélisation des trajectoires repose quant à elle sur un suivi lagrangien et la définition du bilan des forces qui s'exerce sur les gouttes, dans le cadre d'une approche RANS. Ces résultats numériques sont discutés et comparés aux résultats expérimentaux en termes de Distribution de Temps de Séjour (DTS) des particules.

L'équation de bilan de population (PBE) est utilisée dans le cadre d'une approche eulérienne, dans le but de modéliser les propriétés de l'émulsion dans la colonne, et en particulier la taille moyenne et la concentration des gouttelettes (rétention). Pour ce faire, un travail d'identification de noyaux de rupture et de coalescence a d'abord été entrepris, qui est décrit dans le chapitre 2. Pour simplifier la procédure d'identification, cette étude a été menée dans un réacteur parfaitement agité (RPA), dans le cadre d'une description "0D".

Les modèles de rupture et de coalescence applicables à notre procédé ont été sélectionnés et utilisés pour réaliser une identification paramétrique à partir de DTG mesurées pour l'émulsion eau/TPH dans le RPA.

Une fois les noyaux de rupture et de coalescence identifiés, un modèle couplé CFD + BPE a été développé pour décrire l'écoulement diphasique dans la colonne pulsée. Il est présenté au chapitre 3. Contrairement à l'étape d'identification paramétrique, la PBE est résolue à l'aide de la méthode QMOM, choisie pour son coût de calcul modéré associé à une très bonne précision pour les grandeurs d'intérêt, à savoir le diamètre moyen des gouttes, l'aire interfaciale et la rétention.

Des mesures de DTG ont été effectuées in situ, dans une colonne pulsée permettant l'intrusion d'une sonde spéciale, qui ont permis de valider le caractère prédictif du modèle pour différentes conditions opératoires et deux systèmes liquide-liquide différents.

La fin de ce manuscrit est l'occasion de revenir sur l'ensemble des résultats et des réalisations de ces travaux de thèse. Un certain nombre de perspectives sont proposées pour améliorer les modèles développés et replacer leur intérêt pour les procédés d'extraction liquide-liquide et de précipitation en émulsion, dans le cadre des activités de recherche et de conception menées au LGCI ou de l'analyse des procédés industriels.



# 1

## Modélisation de l'écoulement dans une colonne pulsée

Le présent chapitre regroupe l'étude de l'écoulement monophasique et celle des distributions de temps de séjour de gouttes dans la colonne pulsée. La première partie, consacrée à l'étude de l'écoulement monophasique, est articulée autour d'une description du dispositif expérimental utilisé pour la mesure des champs de vitesse et de turbulence. Le modèle numérique comportant une étude des modèles de turbulence mais également des schémas numériques est ensuite décrit. La validation du modèle numérique grâce à des résultats expérimentaux obtenus par la technique de vélocimétrie par imagerie de particules (PIV) est enfin discutée. La modélisation 3D, permettant une validation de l'hypothèse de simplification de l'écoulement dans la colonne par une approche axisymétrique est également décrite.

La seconde partie de ce chapitre est consacrée à la modélisation des temps de séjour (DTS) des gouttes dans la colonne. D'abord, le dispositif expérimental utilisé pour la mesure des DTS, ainsi que les conditions opératoires sont décrits. Dans un deuxième temps, le modèle numérique est détaillé avec les hypothèses considérées. Enfin, la discussion des résultats expérimentaux et leur confrontation aux résultats numériques a permis une validation du modèle.

### 1.1 Modélisation de l'écoulement monophasique dans la colonne pulsée

La colonne pulsée est actuellement utilisée dans l'industrie nucléaire dans les étapes de séparation de l'uranium et du plutonium, qui sont des éléments valorisables pour la pro-

---

duction d'énergie via notamment le combustible MOX<sup>1</sup>, des autres éléments constituant le combustible nucléaire usé, ces derniers étant traités comme des déchets nucléaires. La colonne pulsée trouve également d'autres applications nécessitant un cisaillement modéré et/ou comprenant des parties solides (poussières, particules), comme c'est le cas par exemple dans les industries agroalimentaire et minérale. Tout comme les différents appareils utilisés dans le domaine de l'extraction liquide-liquide, elle est utilisée pour augmenter l'aire interfaciale offerte aux échanges de matière, et ce par la dispersion d'une phase liquide dans l'autre.

La compréhension de l'hydrodynamique de la colonne est un préalable pour assurer le dimensionnement et l'optimisation du procédé d'extraction. La modélisation et la simulation numérique sont des outils importants, en complément de l'expérimentation, pour la prédiction des paramètres fondamentaux (distribution de temps de séjour et de tailles des gouttes ainsi que leur concentration) et pour le pilotage du procédé.

Depuis les années 1980, différentes études ont été consacrées à la description de l'écoulement dans une colonne pulsée. Les études expérimentales de [Oh \(1983\)](#) et [Laulan \(1980\)](#) ont porté sur la description des champs de vitesse dans la colonne à l'aide de mesures expérimentales, dans différentes conditions opératoires. Ces études ont démontré une périodicité spatiale de l'écoulement et une symétrie axiale. [Angelov et al. \(1990\)](#) ont confirmé ces résultats et démontré que l'écoulement au sein de la colonne est indépendant des conditions limites et pouvait être représenté par un seul compartiment (disque-couronne-disque ou bien couronne-disque-couronne). [Oh \(1983\)](#), [Angelov et al. \(1990\)](#) et [Legarrec \(1993\)](#), dans le cadre de leurs études numériques, ont étudié l'influence des conditions opératoires, à savoir l'amplitude et la fréquence de pulsation, ainsi que les paramètres géométriques sur l'écoulement. [Aoun-Nabli et al. \(1997\)](#) a dans un premier temps validé le modèle  $k - \epsilon$  standard sur l'écoulement stationnaire (sans prise en compte de la pulsation) en comparant ses simulations numériques aux résultats expérimentaux de pertes de charges effectués par [Leroy \(1991\)](#). Il a ensuite étudié l'écoulement pulsé en confrontant les résultats de ses simulations numériques aux mesures de dispersion axiale de [Buratti \(1988\)](#). [Aoun-Nabli et al. \(1997\)](#) a proposé une corrélation numérique, basée sur le modèle de turbulence  $k - \epsilon$  standard, pour les paramètres de l'écoulement les plus importants comme la perte de charge, la dispersion axiale et la dissipation turbulente.

A partir de là, le modèle  $k - \epsilon$  standard a été considéré comme le modèle approprié pour la modélisation de la turbulence dans la colonne. [Angelov et al. \(1998\)](#) ont tenté de valider cette approche sur des mesures expérimentales de l'écoulement moyen et de la turbulence. Bien que cette étude donne un bon aperçu de l'écoulement dans la colonne et de l'influence des conditions opératoires sur l'écoulement moyen et les grandeurs turbulentes, le modèle a été validé uniquement sur l'écoulement stationnaire (sans prise en compte de la pulsation) avec peu de points expérimentaux, ne donnant ainsi pas une validation sur toute la section de la colonne. Les schémas numériques, d'une importance non négligeable pour une modélisation fidèle de l'écoulement, n'ont pas été étudiés.

Récemment, [Bujalski et al. \(2006\)](#) ont effectué des mesures de l'écoulement dans la colonne

---

<sup>1</sup>MOX (Mixed Oxides) : combustible nucléaire contenant du dioxyde de plutonium ( $\text{PuO}_2$ ) et du dioxyde d'uranium ( $\text{UO}_2$ ).

---

par les techniques de PIV et de Laser Doppler Velocimetry (LDV)<sup>2</sup> en écoulement pulsé. Ils ont comparé leurs mesures à des simulations réalisées avec un modèle bas Reynolds  $k - \epsilon$  Low- $Re$ . Ils ont également discuté l'influence du jeu entre la couronne et la paroi de la colonne, sur les profils de vitesse, les auteurs ont conclu que le modèle  $k - \epsilon$  Low- $Re$  était capable de reproduire d'une manière satisfaisante les champs de vitesse moyens et l'évolution de la vitesse moyenne (mesurés par LDV en un point précis) dans la colonne. Il est important de noter ici que le nombre de Reynolds basé sur la vitesse débitante<sup>3</sup>, utilisé dans l'étude de Bujalski *et al.* (2006), mais également dans toutes les autres études, permet uniquement d'avoir une idée de la nature de l'écoulement, qui, localement peut être beaucoup plus turbulent que ce qui est prédit par cette valeur moyenne. Nous verrons dans la suite de ce manuscrit que le modèle  $k - \epsilon$  Low- $Re$  permet effectivement d'avoir une bonne représentation de l'écoulement moyen dans la colonne mais surestime d'une manière non négligeable les grandeurs turbulentes, à savoir l'énergie cinétique et la dissipation turbulente, dans les conditions opératoires étudiées par Bujalski *et al.* (2006). Charton *et al.* (2012) ont montré que bien que la dispersion axiale soit généralement correctement prédite par le modèle  $k - \epsilon$ , une détérioration des résultats numériques est observée lorsque les intensités de pulsation deviennent très élevées. Dans ces conditions extrêmes, le modèle bas Reynolds, basé sur des fonctions d'amortissement, permet une amélioration des prédictions numériques. Ceci est probablement dû à l'incapacité de la turbulence de devenir complètement développée, comme supposé par les modèles  $k - \epsilon$  classiques.

Contrairement à ces différentes études, qui ont considéré une approche RANS<sup>4</sup> pour la description de l'écoulement dans l'appareil, Daniel (2003) a utilisé une approche LES (Large Eddy Simulation). Pour ce faire, l'auteur a simplifié l'écoulement en considérant une géométrie sous forme de canal chicané et n'a étudié qu'une seule condition opératoire, concentrant son effort sur la description de la turbulence. Les simulations, validées par des mesures PIV, ont permis une description fidèle des interactions fluide-particules. Néanmoins, l'approche LES est coûteuse en termes de temps de calcul et n'est, par conséquent, pas appropriée pour la simulation d'applications industrielles concrètes, dans l'état actuel des moyens de calcul. Ce coût de calcul supplémentaire peut parfois être justifié, mais nous verrons dans la suite que l'approche RANS permet généralement d'atteindre une quantité importante d'informations.

Le développement d'un outil de modélisation pour la description la phase dispersée avec un coût de calcul raisonnable est important pour les études de Génie des Procédés. Le modèle doit être capable de prédire les grandeurs essentielles pour le pilotage des opérations d'extraction liquide-liquide et de précipitation comme la dispersion axiale (Charton

---

<sup>2</sup>Mesure optique se basant sur l'effet Doppler. Le fluideensemencé de petites particules est illuminé par un plan d'une onde électromagnétique dont la fréquence est parfaitement connue. Les particules, lorsqu'elles vont traverser ce plan, vont diffuser l'onde à des fréquences différentes qui sont captées et comparées à l'onde d'origine pour déterminer la vitesse.

<sup>3</sup> $Re = 2AfD_c/\nu$ . On reviendra sur l'expression du nombre de Reynolds plus loin dans le manuscrit.

<sup>4</sup>RANS pour Reynolds Averaged Navier-Stokes. La description de cette approche est faite dans la suite de ce manuscrit.

---

*et al.*, 2012), la distribution des temps de séjour (*Amokrane et al.*, 2012) et la distribution de taille de gouttes (*Amokrane et al.*, 2014). Une description efficace de la phase continue, responsable du transport et des phénomènes de rupture/coalescence de la phase dispersée, est par conséquent primordiale.

Tandis que les auteurs des différentes études, citées ci-avant, ont validé leurs modèles uniquement sur des grandeurs moyennes, comme le champs de vitesse moyenne, la perte de charge ou encore la dispersion axiale, nous avons entrepris un travail de validation de notre modèle CFD sur à la fois les grandeurs moyennes et les grandeurs turbulentes. Des mesures PIV, synchronisées sur le cycle de pulsation, ont été réalisées sous différentes conditions opératoires. Ces mesures permettent de discuter les modèles usuels basés sur une approche RANS. Différents modèles de turbulence et schémas numériques ont été étudiés et comparés aux mesures de vitesses moyennes et grandeurs turbulentes. Des simulations 3D ont été également conduites et comparées aux simulations 2D pour une discussion de la représentativité de l'écoulement en 2D axisymétrique.

### 1.1.1 Modélisation de la turbulence

La résolution complète des équations de Navier-Stokes, appelée DNS (pour Simulation Numérique Directe), pour un problème industriel instationnaire en géométrie complexe est, dans le cas actuel des moyens de calcul, impensable. Deux approches alternatives à la DNS sont possibles : l'approche RANS (Reynolds-Average Navier-Stokes) et l'approche LES (Large Eddy simulation). Ces deux approches induisent des termes supplémentaires dans le système d'équations de Navier-Stokes, qui ont besoin d'être modélisés.

La LES offre l'avantage d'une grande précision puisqu'elle résout le système pour les grandes structures turbulentes et modélise uniquement les plus petites, qui sont, généralement, considérées comme étant plus petites qu'un filtre spatial. Ce dernier est généralement supposé égal à la taille du maillage (*Daniel*, 2003). La LES réduit ainsi l'erreur induite par la modélisation des différentes échelles de la turbulence. Cependant, cette méthode souffre du fait qu'elle est très gourmande en "cpu". Ceci est d'autant plus vrai lorsque l'écoulement est polyphasique. Dans le cas de notre étude, nous avons pour objectif de proposer une modélisation du comportement de la phase dispersée dans une colonne pulsée par une approche couplant la CFD (Computational Fluid Dynamics) et la PBE (Population Balance Equation), la LES devient, par conséquent, impossible à utiliser puisque le temps de calcul inhérent au seul modèle CFD est déjà élevé.

D'un autre côté, l'approche RANS résout les équations de transport des quantités moyennes et modélise toutes les échelles de la turbulence. Son avantage le plus important est son coût en temps calcul modéré, combiné à une bonne précision, la rendant populaire pour la modélisation des écoulements dans les appareils industriels. Cette approche est donc privilégiée dans cette étude et sa capacité à modéliser l'écoulement monophasique dans la colonne pulsée sera discutée.

---

Dans un modèle RANS, les équations résolues sont obtenues par une décomposition de Reynolds des équations de Navier-Stokes instantanées, soit, en utilisant la sommation d'Einstein :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = 0 \quad (1.1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \mu \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right] + \frac{\partial}{\partial x_j}(-\overline{\rho u'_i u'_j}) \quad (1.2)$$

où les équations (1.1) et (1.2) représentent, respectivement, l'équation de conservation de la masse et de la quantité de mouvement.

Les tenseurs de Reynolds,  $-\overline{\rho u'_i u'_j}$ , doivent être modélisés pour fermer l'équation (1.2). Pour ce faire, l'hypothèse de Boussinesq (eq. (1.3)), qui relie le tenseur de Reynolds aux gradients de la vitesse moyenne, est utilisée par la plupart des modèles de turbulence :

$$-\overline{\rho u'_i u'_j} = \mu_t \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \rho k \delta_{ij} \quad (1.3)$$

avec  $\mu_t$  la viscosité turbulente et  $k$  l'énergie cinétique turbulente. L'estimation de  $\mu_t$  diffère d'un modèle de turbulence à un autre. Certains d'entre eux résolvent une équation pour  $\mu_t$ , tandis que d'autres résolvent des équations de transport pour  $k$  et  $\epsilon$  et déduisent  $\mu_t$  à partir de ces deux quantités.

### Le modèle $k - \epsilon$ standard

Le modèle  $k - \epsilon$  standard résout deux équations de transport pour  $k$  et  $\epsilon$ , respectivement :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + G_k - \rho \epsilon \quad (1.4)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \epsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho \epsilon u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\epsilon} \right) \frac{\partial \epsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\epsilon} \frac{\epsilon}{k} G_k - C_{2\epsilon} \rho \frac{\epsilon^2}{k} \quad (1.5)$$

où  $G_k$  représente la génération d'énergie cinétique turbulente par les gradients de la vitesse moyenne,  $\sigma_k$  et  $\sigma_\epsilon$  sont les nombres de Prandtl pour  $k$  et  $\epsilon$ .  $C_{1\epsilon}$  et  $C_{2\epsilon}$  sont des constantes. La viscosité turbulente est donnée par l'expression suivante :

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\epsilon} \quad (1.6)$$

avec  $C_\mu$  une constante.

Le modèle  $k - \epsilon$  standard a été proposé pour la première fois par [Launder & Spalding \(1972\)](#). Ses principales qualités sont sa très bonne stabilité, une bonne précision et un temps de calcul faible, qui en font l'un des modèles les plus utilisés pour la simulation d'écoulements industriels. Lors du développement de ce modèle, l'hypothèse de l'isotropie de turbulence a été faite, ce qui limite théoriquement sa validité à des conditions produisant ce type d'écoulement (notamment les écoulements à nombres de Reynolds élevés).

### Le modèle $k - \epsilon$ RNG

L'équation de transport de  $k$  est la même que dans le modèle  $k - \epsilon$  standard (eq. (1.4)). L'équation de transport de  $\epsilon$  présente des termes supplémentaires :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho\epsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho\epsilon u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \alpha_\epsilon \mu_{eff} \frac{\partial \epsilon}{\partial x_j} \right) + C_{1\epsilon} \frac{\epsilon}{k} G_k - C_{2\epsilon} \rho \frac{\epsilon^2}{k} - R_\epsilon \quad (1.7)$$

Comparée à l'équation (1.5), le terme  $R_\epsilon$  est ajouté dans l'équation (1.7) qui prend en compte la contribution des forts taux de cisaillement dans la production de la turbulence :

$$R_\epsilon = \frac{C_\mu \rho \eta^3 (1 - \eta/\eta_0) \epsilon^2}{1 + \beta \eta^3} \frac{1}{k} \quad (1.8)$$

avec  $\eta = Sk/\epsilon$ , où  $S$  est le tenseur des taux de déformation,  $\eta_0 = 4,38$ , et  $\beta = 0,012$ .

Les constantes présentes dans ce modèle sont différentes de celles du modèle  $k - \epsilon$  standard. Elles ont été déterminées par une procédure semi-empirique d'ajustement sur des expérimentations de turbulence isotrope, tandis que dans le cas du modèle RNG, les constantes sont déterminées par une procédure mathématique appelée "groupe de renormalisation" ([Speziale & Thangam, 1992](#)).

Pour comprendre la différence entre les modèles  $k - \epsilon$  standard et RNG, il est possible de procéder à un petit réarrangement des termes dans l'équation (1.7) ([FluentInc, 2010](#)). L'équation (1.7) peut être réécrite comme suit :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho\epsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho\epsilon u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu_{eff} + \frac{\mu_t}{\sigma_\epsilon} \right) \frac{\partial \epsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\epsilon} \frac{\epsilon}{k} G_k - C_{2\epsilon}^* \rho \frac{\epsilon^2}{k} \quad (1.9)$$

avec  $C_{2\epsilon}^*$  donné par :

$$C_{2\epsilon}^* = C_{2\epsilon} + \frac{C_\mu \eta^3 (1 - \eta/\eta_0)}{1 + \beta \eta^3} \quad (1.10)$$

Dans les régions où  $\eta < \eta_0$ , ce terme  $C_{2\epsilon}^*$  a une contribution positive, et  $C_{2\epsilon}^*$  devient plus grand que  $C_{2\epsilon}$ . Comme conséquence, lorsque nous sommes en présence d'un écoulement modérément cisailé, le modèle RNG donne des résultats similaires à ceux obtenus avec le modèle  $k - \epsilon$  standard. Inversement, dans des régions où  $\eta > \eta_0$ ,  $C_{2\epsilon}^*$  devient inférieur

à  $C_{2\epsilon}$  résultant en une augmentation de  $\epsilon$  et par conséquent une réduction de  $k$ . Ce comportement fait que le modèle RNG est plus approprié pour des écoulements fortement cisailés, présentant des courbures au niveau des lignes de courant et des recirculations. Le modèle RNG peut ainsi couvrir un plus large panel d'écoulements.

La viscosité turbulente, quant à elle, est donnée par l'expression suivante :

$$d\left(\frac{\rho^{(1/2)}k}{\sqrt{\epsilon\mu}}\right) = 1.72 \frac{\hat{\nu}}{\sqrt{\hat{\nu}^3 - 1 + C_v}} d\hat{\nu} \quad (1.11)$$

avec  $\hat{\nu} = \mu_{eff}/\mu$  et  $C_v = 100$ . L'équation (1.11) devient équivalente à l'équation (1.6) à grand nombre de Reynolds.

### Le modèle $k - \epsilon$ bas Reynolds

Pour pouvoir confronter le travail développé ici avec le travail publié par [Bujalski et al. \(2006\)](#), nous avons entrepris des simulations de l'écoulement monophasique avec un modèle bas Reynolds (bas-*Re*).

Le modèle bas-*Re* est une extension du modèle  $k - \epsilon$  standard. Il fait appel à des fonctions d'amortissement ainsi qu'à d'autres termes supplémentaires pour étendre sa validité dans les régions à bas nombre de Reynolds, par exemple proches des parois ([Rathore & Das, 2013](#)). Le modèle de [Launder & Sharma \(1974\)](#) utilise la même équation de transport pour  $k$  que le modèle  $k - \epsilon$  standard (eq. 1.4) avec un terme supplémentaire :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + G_k - \rho \epsilon - D \quad (1.12)$$

L'équation de transport de  $\epsilon$  est donnée par :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \epsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho \epsilon u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\epsilon} \right) \frac{\partial \epsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\epsilon} f_1 \frac{\epsilon}{k} G_k - C_{2\epsilon} f_2 \rho \frac{\epsilon^2}{k} + E \quad (1.13)$$

La viscosité turbulente est donnée par :

$$\mu_t = \rho C_\mu f_\mu \frac{k^2}{\epsilon} \quad (1.14)$$

Le tableau 1.1 donne les fonctions d'amortissement du modèle bas-*Re* utilisées par [Bujalski et al. \(2006\)](#) et dans ce travail. Le tableau 1.2 regroupe les différentes constantes des modèles décrits ci-dessus.

### Le modèle RSM

Le modèle de turbulence Reynolds Stress Model (ou RSM) a été également étudié dans le présent travail. Réputé être plus précis que les modèles basés sur l'hypothèse de Boussinesq (*i.e* les variantes du modèle  $k - \epsilon$  décrits ci-avant), et en particulier car il ne fait

TABLE 1.1 – Fonctions d'amortissement et termes supplémentaires dans le modèle  $k - \epsilon$  bas- $Re$ .

$D$	$E$	$f_\mu$	$f_1$	$f_2$
$2\nu \left( \frac{\partial \sqrt{k}}{\partial x_j} \right)^2$	$2\nu \nu_t \left( \frac{\partial u}{\partial x_j^2} \right)^2$	$\exp \left( \frac{-3.4}{(1 + Re_t/50)^2} \right)$	1	$1 - 0.3 \exp(-Re_t^2)$

TABLE 1.2 – Les différentes constantes utilisées dans les variantes du modèle  $k - \epsilon$ .

Modèle de turbulence	$C_\mu$	$\sigma_k$	$\sigma_\epsilon$	$C_{\epsilon 1}$	$C_{\epsilon 2}$
$k - \epsilon$ standard	0.09	1	1.3	1.44	1.92
$k - \epsilon$ RNG	0.0845	-	-	1.42	1.68
$k - \epsilon$ bas- $Re$	0.09	1	1.3	1.44	1.92

pas l'hypothèse de l'isotropie de la turbulence, nous avons estimé qu'il était intéressant de comparer ses performances à celles des modèles plus classiques ainsi qu'aux résultats expérimentaux. Le modèle RMS ferme l'équation (1.2) en résolvant une équation de transport pour le tenseur de Reynolds,  $-\rho \overline{u'_i u'_j}$ . Les hypothèses par défaut, décrites en détail dans [FluentInc \(2010\)](#), ont été considérées dans le présent travail pour les différents termes de l'équation de transport du tenseur de Reynolds.

### 1.1.2 Matériels et méthodes expérimentales

#### Description de la colonne pulsée

L'appareil utilisé pour les mesures PIV est une colonne pulsée de 50 mm de diamètre équipée d'un garnissage disques couronnes (Fig. 1.1). Le diamètre des disques est de 50 mm tandis que le diamètre interne des couronnes est de 25 mm. La distance séparant les disques des couronnes est de 24 mm. Les éléments de garnissage, d'épaisseur égale à 1mm, sont maintenus en position par quatre tiges d'une hauteur de 24 mm et de 5 mm de diamètre. Ces dernières ne sont pas prises en compte dans le cadre de l'étude numérique (sachant qu'un plan de mesure est positionné entre les tiges et n'est donc pas perturbé par celles-ci, ou très peu). Le garnissage est peint en noir afin d'éviter des réflexions pendant les mesures PIV. Pour éviter les déformations optiques, la colonne est équipée d'une double enveloppe rectangulaire remplie du même liquide que celui utilisé dans le fût (adaptation d'indice).

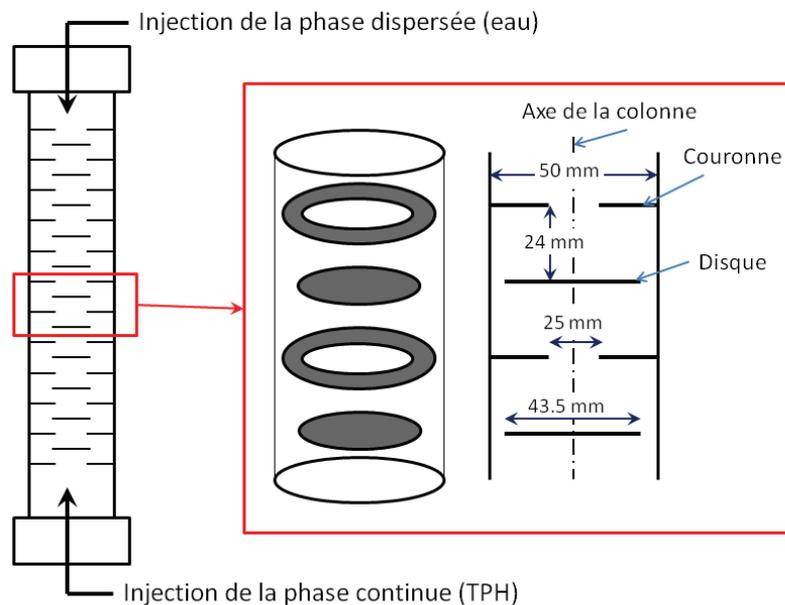


FIGURE 1.1 – Schéma de la colonne pulsée.

TABLE 1.3 – Propriétés physicochimiques du système liquide étudié par PIV à  $T = 20^{\circ}C$ 

	Masse volumique( $kg.m^{-3}$ )	Viscosité dynamique( $Pa.s$ )	indice de réfraction $n_D$
<i>TPH</i>	760	$1.23 \times 10^{-3}$	1,425

### Technique de mesure

L'écoulement monophasique du TPH (Tetrapropylène Hydrogéné), dont les propriétés physicochimiques sont données dans le tableau 1.3, a été étudié par PIV.

Le système PIV est composé d'une caméra sCMOS, offrant un champ de vision de  $2560 \times 2160$  pixels, synchronisée sur un laser Nd :YAG double cavité (fréquence doublée pour générer une lumière laser avec une longueur d'onde de 532 nm). Un système optique transforme le faisceau laser en un plan vertical d'épaisseur d'environ 1 mm traversant le centre de la colonne. La hauteur du plan est suffisamment grande pour pouvoir mesurer l'ensemble d'un compartiment (ici le compartiment étant une succession "disque-couronne-disque"). L'écoulement a étéensemencé avec des billes de verre de  $10 \mu m$  de diamètre. Leur temps de relaxation est nettement inférieur au temps séparant les deux images successives prises pour la mesure du déplacement des particules (voir plus loin).

Pour pouvoir synchroniser le système de mesure sur l'écoulement, un capteur de pression a été placé sur la jambe de pulsation. Ce capteur permet de mesurer le signal correspondant au mouvement du cycle. Ce signal est ensuite filtré et utilisé pour déclencher à la fois la caméra et le laser à différents instants du cycle de pulsation. Cette procédure permet de synchroniser la mesure du champ de vitesse sur la période de pulsation. Cette dernière a été divisée en 10 instants  $t_0$ , pour lesquels des champs de vitesse instantanés ont été mesurés. Les vitesses moyennes ainsi que les grandeurs turbulentes ont été par la suite déterminées en faisant une série de mesures successives sur un nombre déterminé de cycles de pulsation. [Paisant \*et al.\* \(2013\)](#) ont démontré que 250 cycles étaient suffisants pour atteindre une convergence des moyennes.

Le champ de vision de la caméra est de  $97,75 \times 83,75$  mm (après un grossissement de 5,9). Les fenêtres d'interrogation sont de  $32 \times 32$  pixels, avec un chevauchement de 50 % résultant en une résolution spatiale de  $16 \times 16$  pixels. Il est à noter que la résolution constitue un facteur déterminant pour la justesse des mesures PIV. En effet, plus la résolution spatiale est petite, meilleure est la justesse des mesures PIV ([Adrian \(1997\)](#), [Saarenrinne & Piirto \(2000\)](#)). Cependant, la résolution spatiale est limitée par la taille des spots produits par la réflexion de la lumière laser par les particules. La taille de ces spots est fonction de la puissance du laser, de la taille des particules ainsi que leur réflectivité. Dans notre cas, la taille moyenne des spots est de 4 pixels. Ainsi, une résolution spatiale de  $16 \times 16$  pixels est un minimum nécessaire pour s'assurer que le déplacement des particules est correctement suivi et que les particules restent dans la fenêtre d'interrogation pendant la mesure.

Le montage expérimental, ainsi qu'un exemple de résultat PIV, sont illustrés sur la figure 1.2. La fréquence et l'amplitude de pulsation ont été étudiées dans un large éventail de conditions opératoires ( $f = 0,5 - 2$  Hz,  $A = 10 - 40$  mm). L'influence du débit axial a également été étudiée et conduit à des conclusions concordantes avec la littérature ([Angelov \*et al.\* \(1998\)](#), [Bujalski \*et al.\* \(2006\)](#)), à savoir un effet négligeable sur l'écoulement à l'intérieur de la colonne.

### Vérification des mesures PIV

La détermination des grandeurs turbulentes à partir de mesures PIV devient de plus en plus fréquente ces dernières années ([Adrian \(1997\)](#), [Saarenrinne \*et al.\* \(2001\)](#), [Baldi \*et al.\* \(2004\)](#), [Drumm \*et al.\* \(2011\)](#)). La capacité d'une chaîne PIV à mesurer efficacement l'énergie cinétique turbulente,  $k$ , et la dissipation turbulente,  $\epsilon$ , est fonction de sa capacité à descendre jusqu'à la plus petite échelle de turbulence, à savoir l'échelle de Kolmogorov,  $\eta$ , ([Drumm \*et al.\* \(2011\)](#)) :

$$\eta = \left( \frac{\nu^3}{\epsilon} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (1.15)$$

Les performances de la chaîne PIV peuvent donc être vérifiées en comparant la résolution spatiale à l'échelle de Kolmogorov,  $\eta$ .

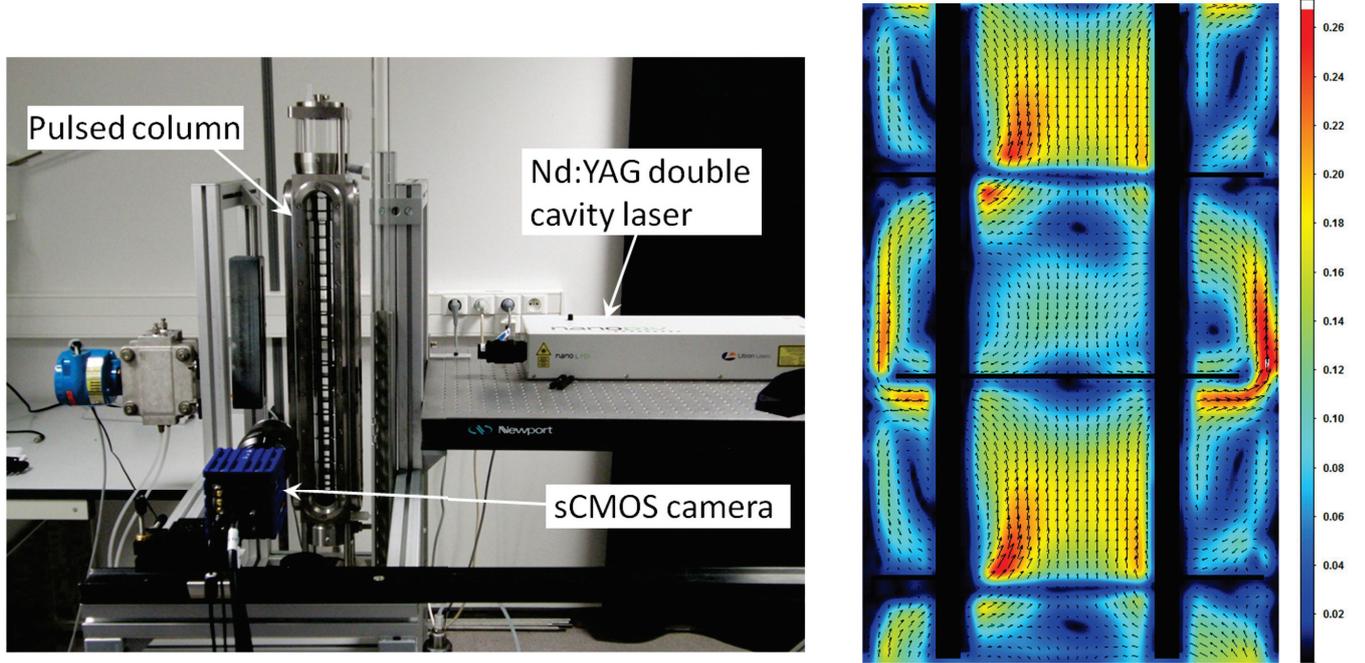


FIGURE 1.2 – Gauche : montage expérimental synchronisé de mesure PIV ; Droite : champ de vitesse moyenne.

L'énergie cinétique turbulente et la dissipation turbulente sont calculées à partir des fluctuations de vitesse et de leurs dérivées. D'abord, les champs de vitesse moyenne sont déterminés à partir des 250 ( $N = 250$ ) champs instantanés enregistrés à chacun des instants du cycle ( $t_0 = 0, (T/10), (2T/10), \dots, (T)$ ) et la vitesse moyenne est définie par :

$$\langle u \rangle = \overline{u(\mathbf{x}, t_0)} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N u(\mathbf{x}, t_0) \quad (1.16)$$

Une fois la vitesse moyenne déterminée pour chaque instant  $t_0$  du cycle, les fluctuations turbulentes,  $u'$ , sont déduites par soustraction du champ de vitesse moyenne au champ de vitesse instantané. Les fluctuations turbulentes sont ensuite moyennées sur les 250 cycles pour obtenir un champ de fluctuations turbulentes par instant du cycle.

Dans le cas d'un écoulement 3D, la dissipation turbulente peut être calculée par l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \epsilon = \nu & \left( 2 \left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_1} \right)^2 + \left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_1} \right)^2 + \left( \frac{\partial u'_3}{\partial x_1} \right)^2 + \left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_2} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_2} \right)^2 + \left( \frac{\partial u'_3}{\partial x_2} \right)^2 \right. \\ & \left. + \left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_3} \right)^2 + \left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_3} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial u'_3}{\partial x_3} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_2} \frac{\partial u'_2}{\partial x_1} \right) + 2 \left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_3} \frac{\partial u'_3}{\partial x_1} \right) + 2 \left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_3} \frac{\partial u'_3}{\partial x_2} \right) \right) \end{aligned} \quad (1.17)$$

Dans le cas d'un écoulement 2D et en coordonnées cylindriques, la dissipation turbu-

TABLE 1.4 – Échelle de Kolmogorov pour chaque instant du cycle de pulsation ( $A = 20\text{mm}$ ,  $f = 1\text{Hz}$  - RS (pour Résolution Spatiale))

$t_0$	$\frac{T}{10}$	$\frac{2T}{10}$	$\frac{3T}{10}$	$\frac{4T}{10}$	$\frac{5T}{10}$	$\frac{6T}{10}$	$\frac{7T}{10}$	$\frac{8T}{10}$	$\frac{9T}{10}$	$T$
$\eta$ ( $\mu\text{m}$ )	47.3	50.2	54.8	61	59	50.9	47	53	53	48.3
RS / $\eta$	13	12.3	11.2	10.1	10.4	12.1	13.1	11.6	11.6	12.7
$t_\eta$ (ms)	1.7	1.4	1.4	1.5	1.8	2.2	2.1	1.6	1.3	1.7

lente de l'équation (1.17) se résume à (Drumm *et al.* (2011)) :

$$\epsilon = \nu \left( 2 \left( \frac{\partial u'_r}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial u'_z}{\partial z} \right)^2 + 3 \left( \frac{\partial u'_r}{\partial z} \right)^2 + 3 \left( \frac{\partial u'_z}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial u'_r}{\partial z} \frac{\partial u'_z}{\partial r} \right) \right) \quad (1.18)$$

En ce qui concerne l'énergie cinétique turbulente, elle est donnée par l'expression suivante :

$$k = \frac{3}{4} \left( \overline{u_r'^2} + \overline{u_z'^2} \right) \quad (1.19)$$

L'équation (1.18) est utilisée pour calculer la dissipation turbulente à partir des champs de fluctuations de vitesse. Dans ce qui va suivre, nous développons le cas d'une amplitude crête-crête de 20 mm et d'une fréquence de 1Hz pour illustration, les autres conditions opératoires étudiées conduisant aux mêmes résultats et conclusions.

Les fluctuations turbulentes sont distribuées d'une manière non uniforme dans le compartiment, ceci étant dû à la nature même de l'écoulement étudié. Ainsi, il en résulte également un champ de dissipation turbulente non uniforme pour chacun des dix instants considérés du cycle de pulsation. Pour évaluer la précision de la mesure, nous nous sommes placés dans le cas le plus contraignant en considérant pour chaque instant du cycle la valeur de dissipation turbulente la plus faible, qui donne, à travers l'équation (1.15), la valeur de  $\eta$  la plus élevée.

Le tableau 1.4 illustre les valeurs les plus élevées de l'échelle de Kolmogorov et leur comparaison à la résolution spatiale pour les différents instants du cycle. Saarenrinne *et al.* (2001) ont effectué une analyse de l'énergie cinétique turbulente et de la dissipation turbulente avec le spectre de Halland de l'énergie cinétique turbulente. Ils ont montré que pour mesurer 65% de l'énergie cinétique turbulente, la résolution spatiale doit être de  $90\eta$ , et que pour en mesurer 95% la résolution doit être de  $20\eta$ . En ce qui concerne la dissipation turbulente, la résolution doit être de  $9\eta$  pour mesurer 65% et de  $2\eta$  pour capturer 90%. Dans notre cas, nous pouvons constater à partir du tableau 1.4, que nous nous situons autour de  $9\eta$  en termes de résolution spatiale. Nous pouvons par conséquent conclure que le système PIV est capable de mesurer 90% de l'énergie cinétique et environ

65% de la dissipation turbulente (soit une incertitude respective de -10 et - 35% <sup>5</sup>).

Cette performance de la chaîne de mesure PIV est plus que satisfaisante. En effet, comparée à d'autres techniques de mesure, comme la LDV, qui sont capables de réaliser des mesures à haute fréquence, la PIV offre l'avantage de la simplicité et la possibilité de faire une mesure sur toute la section de la colonne.

Le choix de la valeur du pas de temps,  $\delta t$ , séparant les deux images PIV prises pour calculer le déplacement des particules, est complexe. Ce temps dépend à la fois des conditions opératoires mais également de la résolution spatiale (Daniel, 2003).  $\delta t$  doit être comparé au temps de relaxation des particules,  $\tau$ , pour s'assurer que les grandes structures de l'écoulement sont correctement capturées, tout comme les fluctuations turbulentes. Le temps caractéristique des petites échelles de turbulence,  $t_\eta$ , appelé temps de Kolmogorov, est donné par l'expression suivante :

$$t_\eta = \left(\frac{\nu}{\epsilon}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.20)$$

Et le temps de relaxation des particules par :

$$\tau = \frac{2}{9} \left(\rho_d + \left(\frac{1}{2}\rho_c\right)\right) \frac{d_p^2}{4\mu_c} \quad (1.21)$$

$\rho_c$  et  $\rho_d$  sont, respectivement, la masse volumique de la phase continue et celle des particules ( $\rho_d = 1500 \text{ kg.m}^{-3}$ ). La valeur calculée de  $\tau$  est d'environ  $9\mu\text{s}$ , ce qui est négligeable comparé à  $t_\eta$  (voir tableau 1.4). Dans le cas présenté ici,  $\delta t$  est égal à  $800\mu\text{s}$  ce qui est inférieur à la valeur du temps de Kolmogorov. Par conséquent, nous pouvons conclure que la chaîne de mesure PIV est capable, dans les conditions opératoires étudiées, de capturer les petites échelles de turbulence.

Pour ce qui est des grandes structures de l'écoulement, qui peuvent être caractérisées par la période de pulsation  $T$ , elles sont également correctement suivies par les particules puisque  $\tau$  est négligeable devant  $T$ .

### 1.1.3 Modèle numérique

#### Maillage et conditions aux limites

Généralement, l'écoulement dans une colonne pulsée est considéré comme étant axisymétrique (Angelov *et al.* (1990), Aoun-Nabli *et al.* (1997)). Cependant, il est connu que la turbulence est par essence tridimensionnelle. Dans le but de vérifier l'exactitude de l'hypothèse d'axisymétrie de l'écoulement, des simulations 3D ont été conduites et comparées aux résultats de simulations 2D axisymétriques en termes de grandeurs moyennes mais

---

<sup>5</sup>l'erreur de mesure est ici définie comme la fraction non mesurée des grandeurs turbulentes

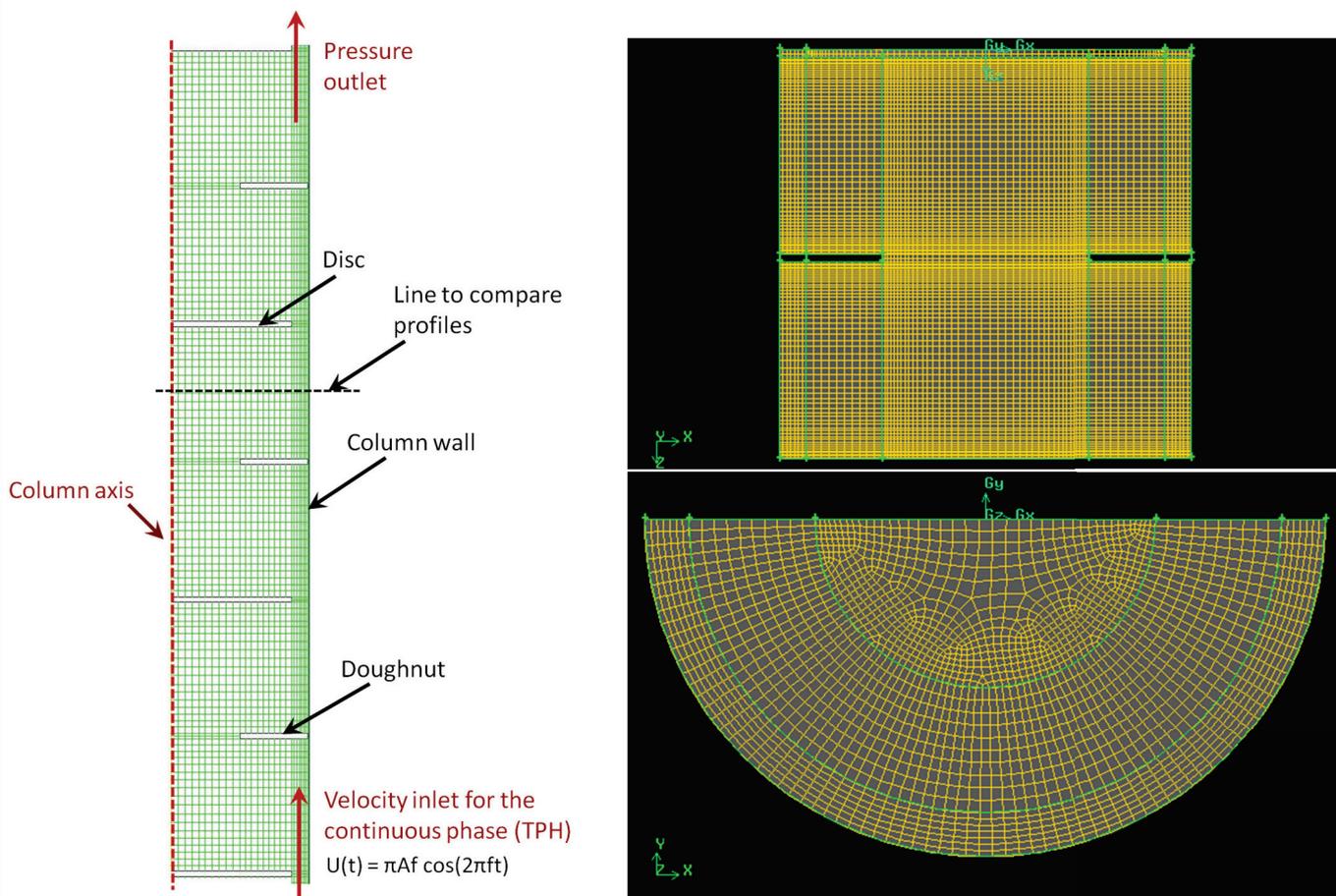


FIGURE 1.3 – à gauche : Maillage 2D axisymétrique et conditions aux limites correspondantes ; à droite : vue de haut du maillage 3D (en bas) et vue de face du maillage 3D (en haut).

surtout de grandeurs turbulentes. La figure 1.3 présente les deux maillages 2D et 3D ainsi que les conditions limites.

Le liquide est injecté au pied de la colonne sous la forme d'un profil de vitesse programmé dans une UDF (User Defined function). Ce profil périodique est donné par l'expression suivante :

$$U(t) = \pi A f \cos(2\pi f t) \quad (1.22)$$

Une condition de pression est imposée à la sortie du domaine de calcul. Les parois de la colonne, les disques ainsi que les couronnes sont considérés comme des parois avec une condition de vitesse de glissement nulle. Le maillage est raffiné en proche paroi, dans les deux cas 2D et 3D, de sorte que les gradients soient correctement calculés dans ces zones à fort gradient.

Pour éliminer un éventuel effet des conditions aux limites sur l'écoulement dans la

colonne, trois compartiments sont pris en compte. Pour chaque simulation, l'écoulement stationnaire correspondant au maximum de la vitesse est simulé dans un premier temps, ensuite, l'écoulement oscillant est calculé jusqu'à ce que la convergence soit atteinte (après 10 cycles de pulsation).

Les conditions aux limites pour la turbulence sont fixées de façon itérative. Après une simulation en régime permanent, à la vitesse maximale, les valeurs de  $k$  et de  $\epsilon$  relevées à l'entrée du compartiment situé au milieu du domaine de calcul sont imposées en première estimation. La procédure est répétée jusqu'à atteindre la convergence, généralement dès la seconde itération.

L'ensemble des simulations a été effectué à l'aide du code commercial ANSYS-Fluent<sup>®</sup>.

Une étude de sensibilité au maillage a été entreprise en 2D et en 3D. Pour les simulations axisymétriques, 4 maillages réguliers, composés de quadrilatères, contenant chacun respectivement 6300, 12000, 30000 et 53000 éléments ont été étudiés. Tandis que pour les simulations 3D, 3 maillages contenant respectivement 321000, 710000 et 3274000 hexaèdres ont été réalisés. L'indépendance des résultats vis-à-vis du maillage a été vérifiée pour les grandeurs moyennes tout comme pour la turbulence. En effet, nous pouvons constater, à partir des figures 1.4 et 1.5 qu'en ce qui concerne les grandeurs moyennes, représentées ici par la vitesse axiale, la convergence est atteinte dès 6300 mailles. Cependant, le maillage a besoin d'être raffiné d'avantage pour atteindre une convergence des quantités turbulentes, représentées ici par l'énergie cinétique. Ainsi, le maillage à 30000 mailles a été retenu pour la suite de l'étude, car il offre le meilleur compromis entre précision et temps de calcul. Le même raisonnement nous a conduit à sélectionner le maillage à 710000 mailles pour les simulations 3D.

## Schémas de discrétisation spatiale

La principale difficulté dans la discrétisation des termes convectifs est le calcul d'une propriété transportée,  $\phi$ , au niveau des volumes de contrôle et de ses flux au niveau de leurs frontières. Pour ce faire, différents schémas numériques peuvent être utilisés. Le choix du schéma numérique approprié peut être basé sur quatre catégories de critères ([Versteeg & Malalasekera, 2007](#)) :

- La conservativité (*conservativeness*) est la capacité du schéma à conserver  $\phi$  sur tout le domaine de calcul.
  - La transportivité (*transportiveness*) exprime la capacité du schéma à reconnaître et à tenir compte de la direction de l'écoulement pour la calcul de la valeur de  $\phi$  au niveau des faces du volume de contrôle en fonction de sa valeur au centre de ceux situés en amont.
-

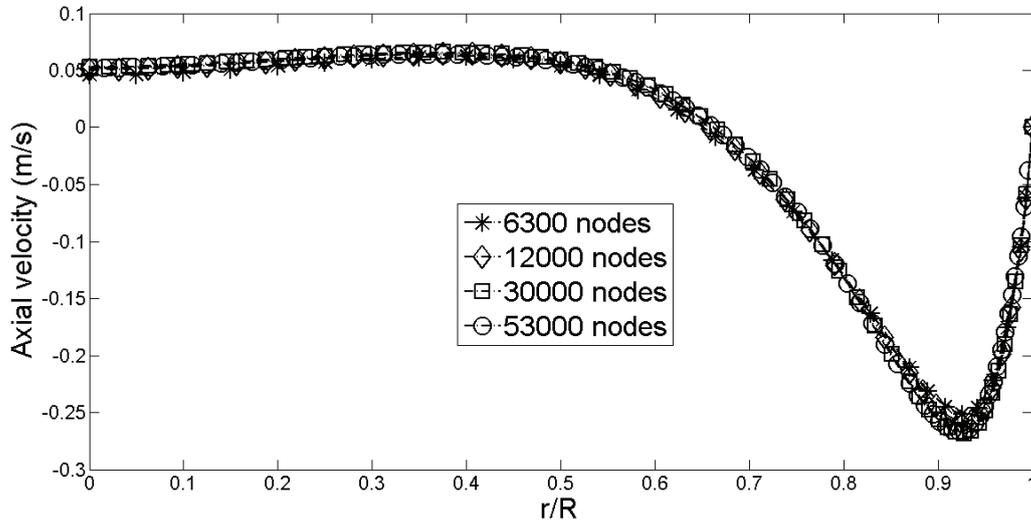


FIGURE 1.4 – Étude de sensibilité au maillage pour la vitesse axiale ( $A = 20\text{mm}$ ,  $f = 1\text{Hz}$ ,  $t_0 = T/5$ ).

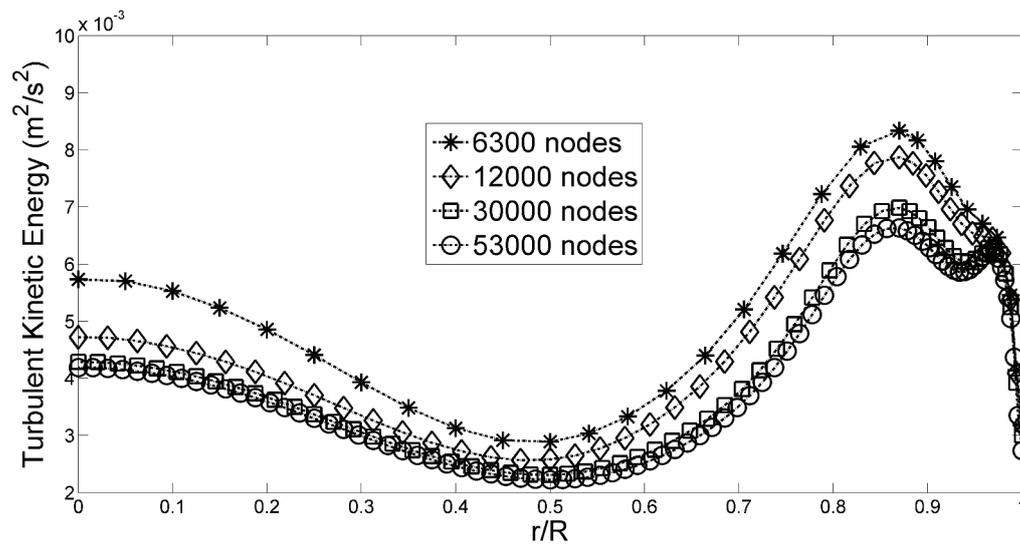


FIGURE 1.5 – Étude de sensibilité au maillage pour l'énergie cinétique turbulente ( $A = 20\text{mm}$ ,  $f = 1\text{Hz}$ ,  $t_0 = T/5$ ).

- Pour satisfaire la condition de bornage (*boundedness*) les coefficients de l'équation discrétisée doivent présenter le même signe (tous positifs ou négatifs). En cas de non satisfaction de cette condition, des problèmes de divergence peuvent être rencontrés. Il est possible dans certains cas que la solution converge malgré la non satisfaction de cette condition, mais dans ce cas, la solution peut présenter des oscillations autour d'une valeur moyenne, ce qui est communément appelé "undershoots" et "overshoots".
- L'ordre du schéma traduit l'erreur de troncature des séries de Taylor pour écrire l'équation discrétisée. Plus l'ordre du schéma est élevé, moins cette erreur de troncature est importante, et par conséquent plus la diffusion numérique (fausse diffusion) est faible.

Dans le but d'étudier l'influence des schémas numériques sur la modélisation de l'écoulement dans une colonne pulsée et d'évaluer une éventuelle nécessité d'avoir recours à des schémas d'ordre élevé, nous avons testé les quatre principaux schémas de discrétisation disponibles dans le code commercial : le schéma First-Order Upwind (*FOU*), le schéma Second-Order Upwind (*SOU*), le schéma QUICK, et le schéma Power Law (*PL*). Lorsque le schéma *FOU* est utilisé, la valeur de la variable  $\phi$  au niveau de la face est égale à celle de la cellule qui se trouve en amont. Tandis qu'avec le schéma *SOU*, cette valeur est calculée en utilisant les valeurs de  $\phi$  et ses gradients dans les cellules qui se trouvent en amont. Le schéma QUICK se base sur une moyenne pondérée du schéma Second-Order Upwind et une interpolation centrée de premier ordre. Ainsi, en fonction de la solution et de la configuration de l'écoulement, ce schéma peut consister en une interpolation centrée ou en une discrétisation type *SOU*. Enfin, le schéma *PL* fait une interpolation de la valeur de  $\phi$  au niveau de la face en utilisant la solution exacte d'une équation de convection-diffusion unidimensionnelle.

Le tableau 1.5 compare les propriétés de ces différents schémas numériques. Nous pouvons constater que les deux critères de "transportiveness" et "conservativeness" sont satisfaits par tous les schémas. Le schéma QUICK est conditionnellement stable et peut, dans certaines conditions, présenter des oscillations numériques ("undershoots" et "overshoots") (Versteeg & Malalasekera, 2007). Le schéma *FOU* est de premier ordre, ce qui le rend susceptible de présenter de la fausse diffusion. Ce risque peut cependant être minimisé en raffinant le maillage.

#### 1.1.4 Résultats et discussion

L'objectif du présent travail n'est pas de décrire le plus finement et le plus exhaustivement possible l'écoulement dans la colonne pulsée, ceci a été déjà fait dans la littérature (Aoun-Nabli *et al.* (1997), Daniel (2003), Bujalski *et al.* (2006),). Ainsi, pour éviter toute confusion, dans ce qui va suivre, nous discuterons les résultats obtenus avec une amplitude de 20 mm et une fréquence de 1 Hz. Les autres conditions opératoires présentent des

---

TABLE 1.5 – Propriétés des différents schémas numériques (FluentInc, 2010).

Schéma numérique	<i>FOU</i>	<i>SOU</i>	<i>QUICK</i>	<i>PL</i>
Conservativeness	Oui	Oui	Oui	Oui
Transportiveness	Oui	Oui	Oui	Oui
Boundedness	Oui	Oui	Conditionnellement stable	Oui
Précision	1 <sup>er</sup> ordre	2 <sup>nd</sup> ordre	3 <sup>me</sup> ordre	1 <sup>er</sup> ordre

résultats similaires.

### Discussion des schémas numériques

A notre connaissance, aucune étude n'a traité de l'influence des schémas numériques sur la simulation de l'écoulement en colonne pulsée. Pourtant, le choix du schéma numérique est important pour une modélisation fidèle des écoulements et ce d'autant plus que les quantités turbulentes sont recherchées (Patankar, 1980). Ce point a été bien illustré par Aubin *et al.* (2004) dans sa modélisation de l'écoulement dans un réacteur parfaitement agité.

Les quatre schémas numériques décrits dans la section 1.1.3 ont été combinés avec tous les modèles de turbulence décrits dans la section 1.1.1 afin d'identifier la combinaison appropriée entre "schéma numérique" et "modèle de turbulence". Le nombre de simulations numériques réalisées étant important, aussi bien en 2D qu'en 3D, seulement quelques profils seront montrés dans ce qui va suivre pour illustrer et mettre en avant les tendances globales qui en ressortent.

Comme attendu, et en accord avec la littérature (Aubin *et al.*, 2004), les profils de vitesse axiale représentatifs de l'écoulement moyen, sont peu sensibles au schéma numérique (voir la figure 1.6).

Le schéma QUICK est le plus gourmand en termes de temps de calcul. Cependant, comme on peut l'observer sur la figure 1.7, ce modèle donne des résultats similaires à ceux du schéma *SOU*. Nous avons expliqué dans la section 1.1.3 que le schéma QUICK est une moyenne pondérée du *SOU* et une interpolation centrée de premier ordre. Il est clair que dans notre cas, le schéma QUICK s'apparente au schéma *SOU*. Ce modèle est conditionnellement stable mais sa convergence est moins facile à atteindre qu'avec les autres schémas. Pour ces différentes raisons, nous considérons que le schéma QUICK n'est pas approprié pour notre application.

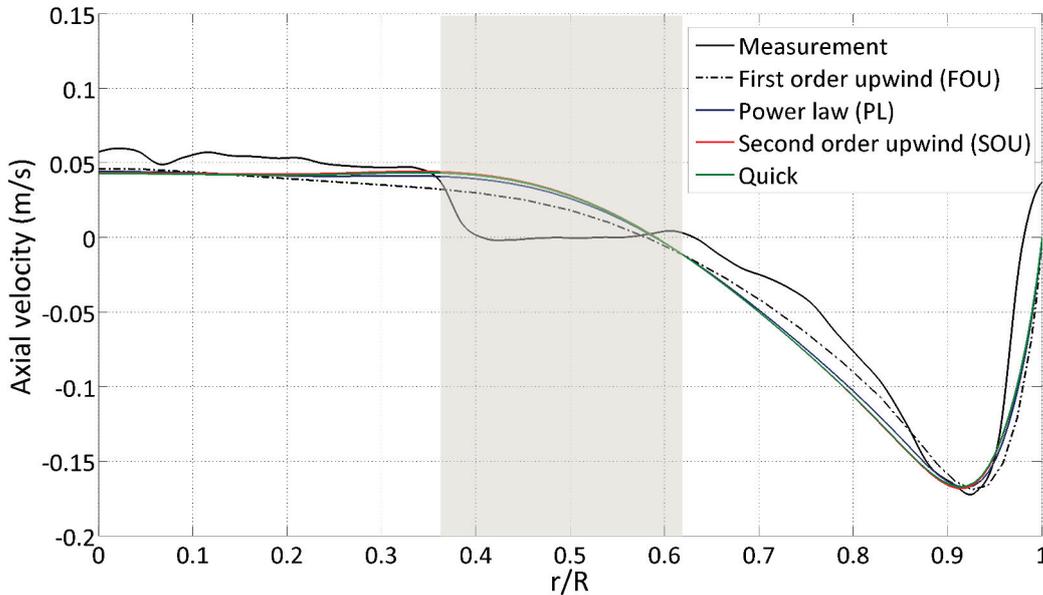


FIGURE 1.6 – Comparaison des schémas numériques en termes de vitesse axiale à  $t_0 = 4T/10$  (modèle  $k - \epsilon$  standard).

Les grandeurs turbulentes obtenues avec les schémas *SOU*, *PL* et *FOU* sont comparées sur les figures 1.8 et 1.9. La tendance générale qui se dégage de ces comparaisons est que le schéma *PL* semble donner les résultats qui se rapprochent le plus de la PIV. Ce modèle se base sur une solution exacte d'une équation de convection-diffusion monodimensionnelle ce qui peut expliquer sa bonne performance. En outre, ce schéma est stable et peu gourmand en temps de calcul. Les résultats du schéma *SOU* ne sont pas forcément les plus proches de l'expérience, malgré son ordre élevé censé limiter la diffusion numérique, mais ils restent corrects. D'ailleurs, pour certains instants du cycle, les mesures PIV se situent entre les prédictions des deux schémas *PL* et *SOU*. Pour ce qui est du temps de calcul, le *SOU* est plus coûteux mais reste raisonnable.

Parmi les différents schémas numériques investigués, le schéma *FOU* est celui qui présente les résultats les moins satisfaisants. L'énergie cinétique turbulente est sous-estimée dans tous les cas, ce qui vient certainement du fait qu'il est seulement de premier ordre, et donc probablement diffusif. Les avantages de ce modèle sont, sans conteste, sa grande stabilité et la rapidité de calcul. En outre, la convergence en maillage est atteinte avec un maillage de taille raisonnable. Il est intéressant de noter ici que le schéma *FOU* donne des résultats comparables à ceux des autres schémas pour les grandeurs moyennes. Ainsi, selon de ce qui est attendu du modèle numérique, le schéma *FOU* peut être suffisant.

Les résultats obtenus pour la dissipation turbulente sont similaires à ceux de l'énergie cinétique turbulente (voir la figure 1.9). Nous avons cependant pu constater que les

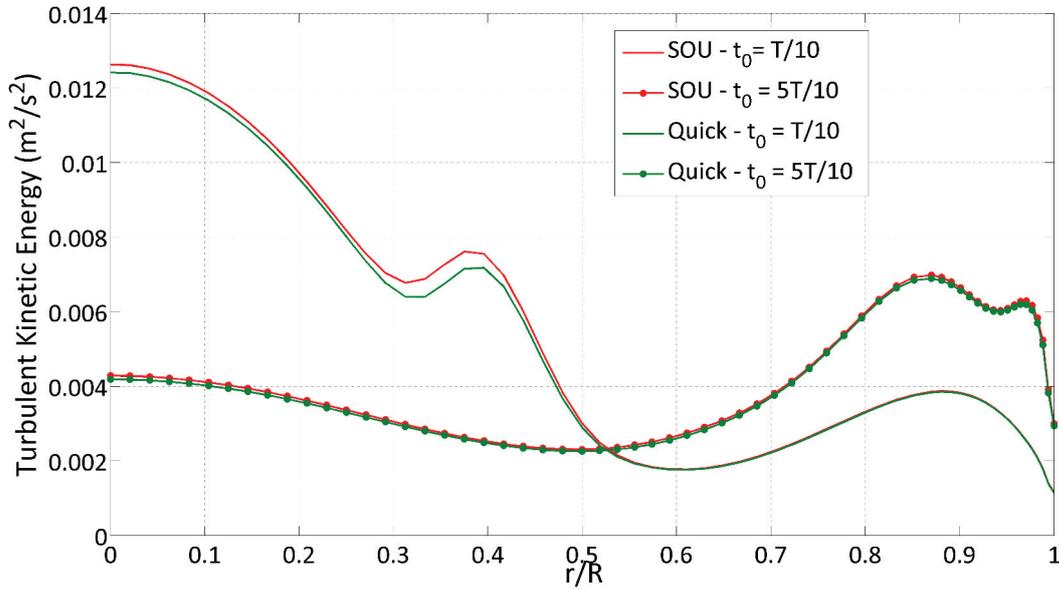


FIGURE 1.7 – Comparaison des schémas *SOU* et *QUICK* en termes d'énergie cinétique turbulente (modèle  $k - \epsilon$  standard).

écarts entre les différents schémas pour  $\epsilon$  sont moins prononcés. Ce comportement peut s'expliquer par l'effet du moyennage effectué lors du calcul de  $\epsilon$  à partir des fluctuations turbulentes.

En résumé, il n'existe pas une et une seule combinaison optimale de modèle de turbulence et de schéma numérique. Le modèle  $k - \epsilon$  RNG combiné au *PL* offre dans tous les cas des résultats satisfaisants. Il peut être intéressant dans certains cas d'utiliser le *SOU* si la précision le nécessite, avec un coût de calcul supplémentaire. Pour la modélisation des grandeurs moyennes, le schéma *FOU* suffit amplement.

### Validation de l'hypothèse d'axisymétrie

La turbulence est un phénomène de nature stochastique et tridimensionnelle. Or, modéliser des écoulements turbulents en 2D est une simplification répandue, pour des raisons évidentes de lourdeur des calculs, plus spécialement lorsque des cas industriels sont concernés. Afin d'étudier la pertinence des simulations 2D dans le cas de la colonne pulsée, nous avons comparé les résultats des simulations axisymétriques aux résultats de simulations 3D, d'une part, et aux mesures expérimentales, d'autre part.

Les résultats des simulations 2D et 3D sont comparés sur les figures 1.10, pour la vitesse axiale, et 1.11 pour l'énergie cinétique turbulente, à deux instants différents du cycle

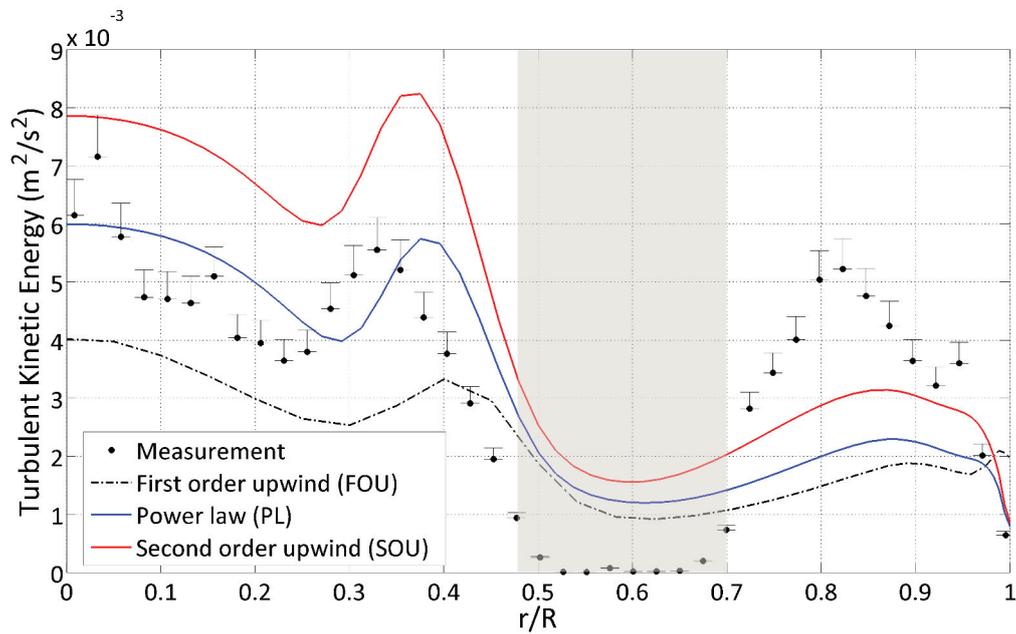


FIGURE 1.8 – Comparaison des schémas numériques en termes d'énergie cinétique turbulente (modèle  $k - \epsilon$  RNG à  $t_0 = 5T/10$ ).

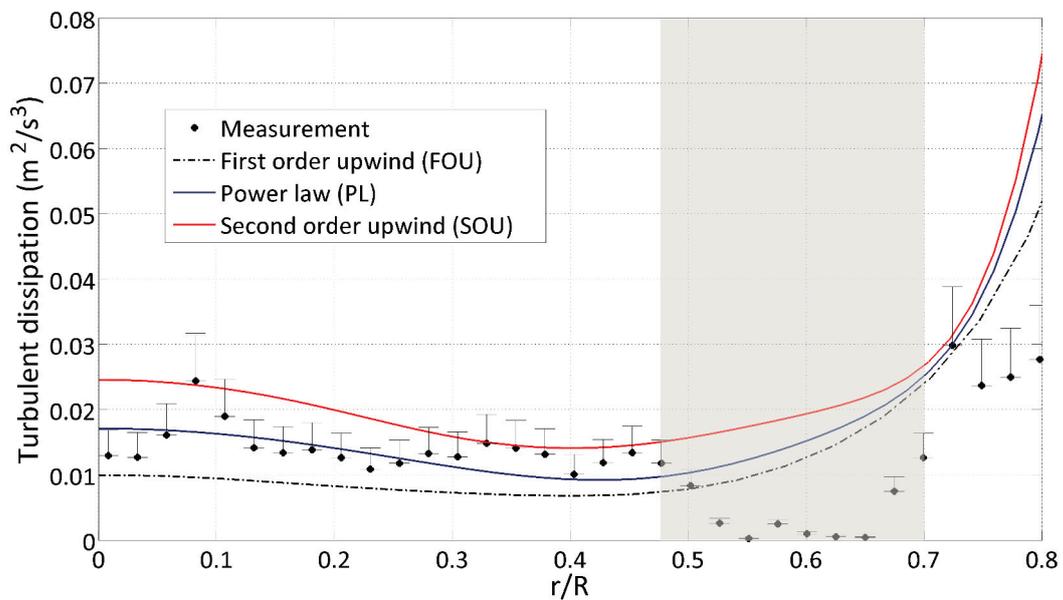


FIGURE 1.9 – Comparaison des schémas numériques en termes de dissipation turbulente (modèle  $k - \epsilon$  RNG à  $t_0 = 5T/10$ ).

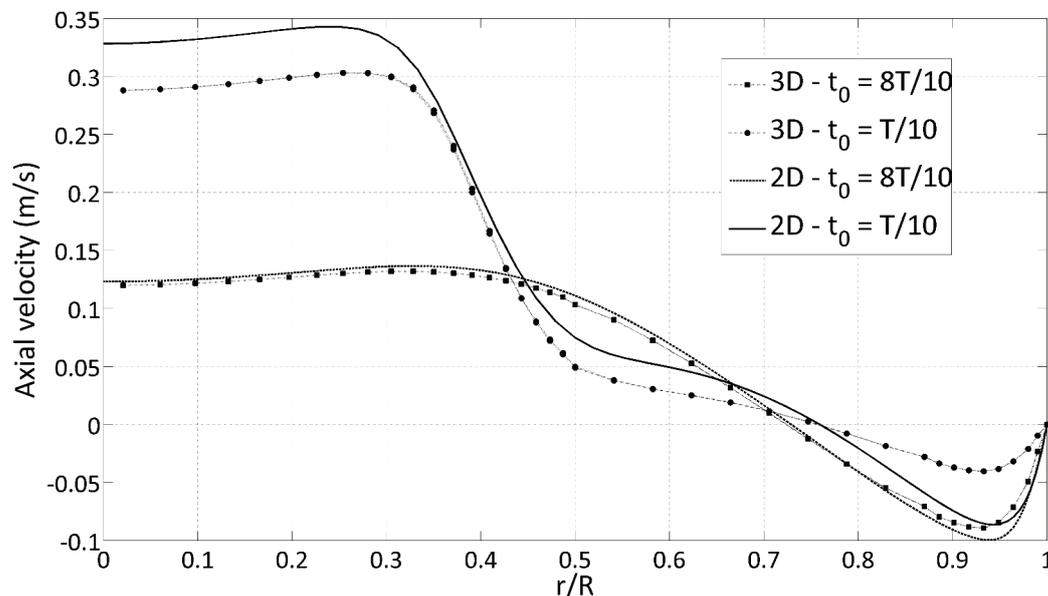


FIGURE 1.10 – Comparaison des simulations 2D axisymétriques et 3D : profils de vitesse axiale à  $t_0 = T/10$  et  $t_0 = 8T/10$  (modèle  $k - \epsilon$  standard ).

de pulsation. Les simulations ont été réalisées en utilisant le modèle  $k - \epsilon$  standard et le schéma  $FOU$ . Les résultats des autres modèles de turbulence conduisent, en effet, aux mêmes conclusions. Les différents profils sont tracés au niveau de l'emplacement situé au milieu de l'étage couronne-disque, cet emplacement est indiqué sur la figure 1.3.

Nous pouvons remarquer que pour les différents instants du cycle, un accord satisfaisant est obtenu entre les simulations 2D et 3D, aussi bien pour la vitesse axiale que pour l'énergie cinétique turbulente. Il est à noter que bien que pour certains instants du cycle nous avons obtenu des petits écarts entre les simulations 2D et 3D, ces derniers restent négligeables, spécialement vis-à-vis de la précision de la mesure. L'accord en termes d'évolution radiale des profils ainsi que l'endroit des pics est excellent.

Il est intéressant de regarder, à ce stade, les différences de temps de calcul entre les simulations 2D et 3D. Les simulations 3D ont nécessité 5 heures de calcul sur quatre processeurs en parallèle pour simuler une seule période, tandis que les simulations 2D axisymétriques ont pris 5 minutes environ pour simuler le même temps physique, et ce sur un seul processeur, donc en série. Le constat est sans appel : la simplification de l'écoulement sous forme 2D axisymétrique, indispensable pour les futures simulations couplées CFD-PBE envisagées dans la suite de l'étude est donc largement justifiée.

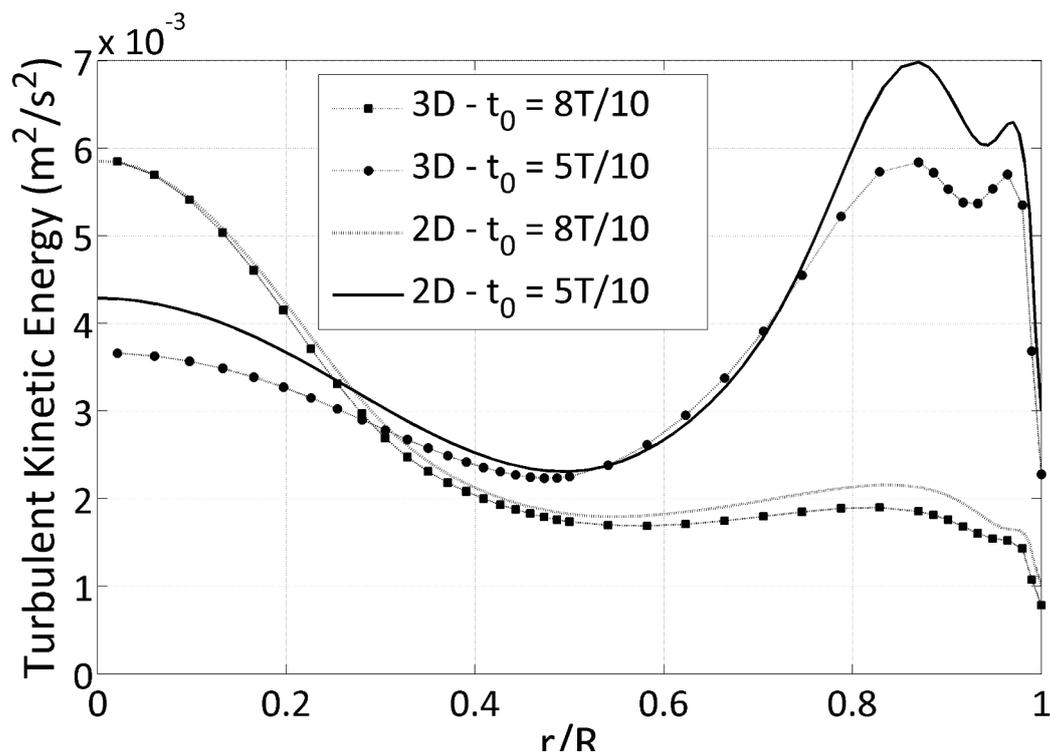


FIGURE 1.11 – Comparaison des simulations 2D axisymétriques et 3D : profils de  $k$  à  $t_0 = 5T/10$  et  $t_0 = 8T/10$  (modèle  $k - \epsilon$  standard ).

### Comparaison des modèles de turbulence

Les différents modèles de turbulence ont été comparés entre eux et confrontés aux mesures expérimentales par PIV. Les simulations 2D axisymétriques sont retenues pour cette partie de l'étude pour les raisons mentionnées ci-avant.

La figure 1.12 est une comparaison des profils de vitesse axiale calculés par les différents modèles de turbulence au même instant du cycle. Nous pouvons noter sur cette figure, comme c'est le cas sur les autres, que nous avons une partie de la colonne qui présente une absence de données expérimentales. Il s'agit de la zone occultée par les entretoises qui servent à maintenir les disques et couronnes en place. Sur les figures, nous avons marqué cette zone par une bande grise transparente, de sorte qu'elle reste à l'esprit du lecteur sans cacher les données de simulations à cet endroit. Il est à noter que nous aurions pu interpoler les mesures PIV dans cette zone sans grand risque de commettre des erreurs puisqu'elle est située au centre de la colonne, et n'est donc pas perturbée par les parois. Cependant, nous avons préféré nous limiter aux seules données expérimentales.

La vitesse axiale est correctement prédite par les quatre modèles de turbulence. On observe parfois quelques petits écarts, mais ces derniers restent toujours négligeables compte tenu de la précision de la mesure. Ce résultat peut être jugé cohérent puisque les modèles de turbulence calculent l'écoulement moyen et ne modélisent que la turbulence.

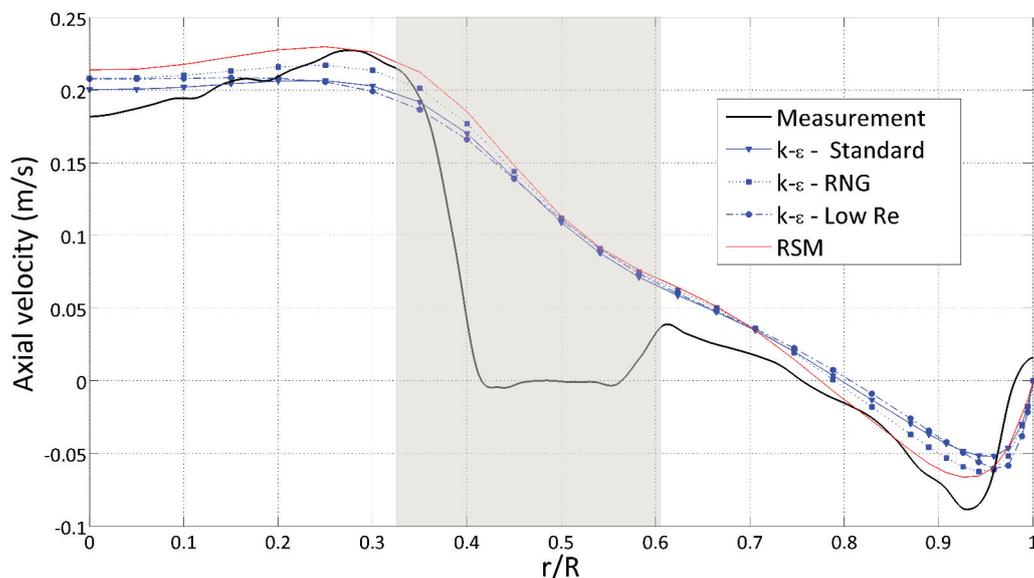


FIGURE 1.12 – Comparaison des modèles de turbulence : profils de vitesse axiale à  $t_0 = 9T/10$ .

Les différences deviennent plus visibles lorsqu'on compare les quantités turbulentes ( $k$  et  $\epsilon$ ). Ceci est illustré sur les figures 1.13 et 1.14 où les profils calculés par ces différents modèles sont comparés aux mesures PIV.

Les résultats obtenus sont complètement différents. Les modèles  $k-\epsilon$  standard et RNG donnent les résultats qui se rapprochent le plus de mesures PIV, avec des performances légèrement meilleures pour ce dernier, plus approprié pour les écoulements présentant des recirculations et des courbures dans les lignes de courant. L'écoulement dans une colonne pulsée subit, en effet, des recirculations créées par le garnissage et les oscillations. On peut remarquer que dans les conditions opératoires étudiées ici, l'écoulement est moyennement cisailé, ce qui explique les résultats assez proches de ces deux modèles. Dans la perspective de modélisation d'écoulements à l'échelle industrielle, le modèle  $k-\epsilon$  RNG devrait être préféré, puisque ces écoulements là peuvent présenter des cisaillements plus importants.

Le modèle  $k-\epsilon$  bas- $Re$  surestime complètement les grandeurs turbulentes. Hrenya *et al.* (1995) ont étudié les performances de plusieurs modèles de turbulence  $k-\epsilon$  bas- $Re$  dans le cas d'un écoulement turbulent pleinement développé dans une conduite, en les confrontant à des mesures expérimentales et des simulations DNS publiées dans la littérature. Les auteurs ont pu montrer que la plupart des modèles, y compris celui que nous avons utilisé ici (et qui a été utilisé par ailleurs par Bujalski *et al.* (2006)), surestiment l'énergie cinétique turbulente et la diffusivité turbulente. Les auteurs de cette étude ont attribué ces mauvaises performances au faible rapport de  $\sigma_k/\sigma_\epsilon$ . Ils ont trouvé que les modèles utilisant un rapport plus élevé obtenaient des résultats bien meilleurs.

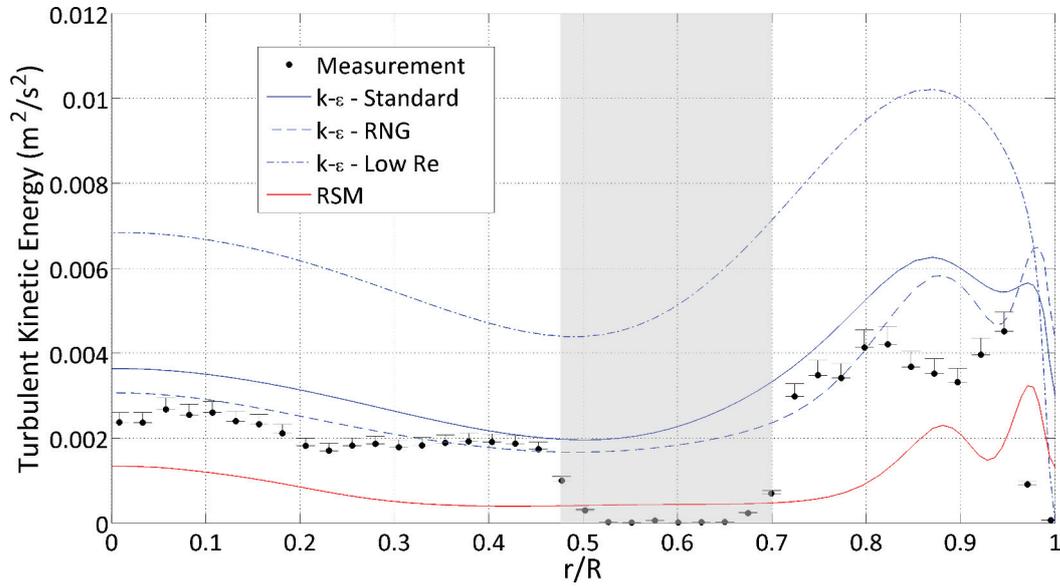


FIGURE 1.13 – Comparaison des modèles de turbulence : profils d'énergie cinétique turbulente  $t_0 = 5T/10$ .

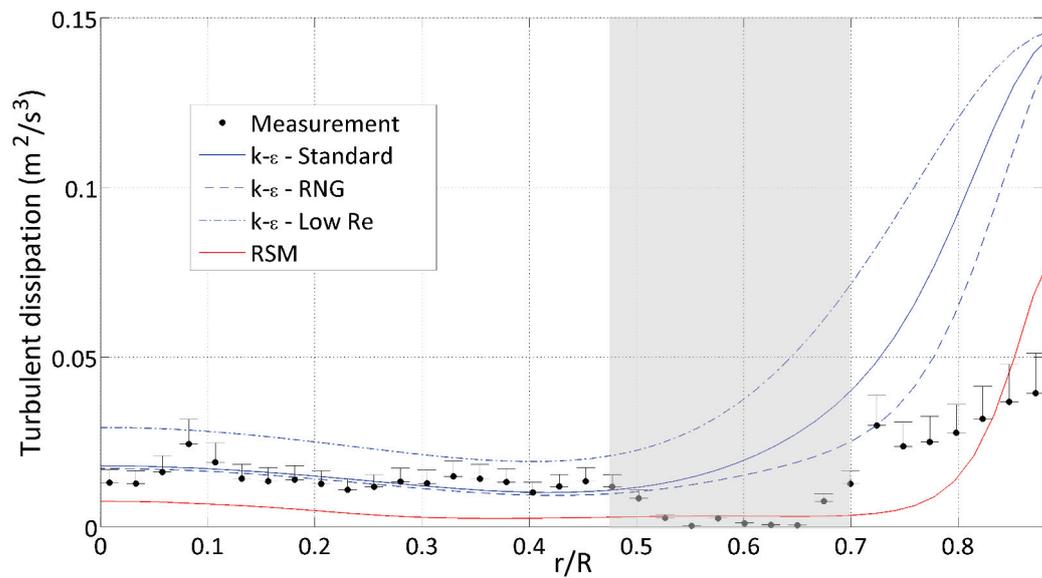


FIGURE 1.14 – Comparaison des modèles de turbulence : profils de dissipation turbulente  $t_0 = 5T/10$ .

Ce constat étant fait, nous pouvons remarquer que le modèle  $k - \epsilon$  bas- $Re$  donne des résultats plus intéressants que les autres en proche paroi, car il calcule la turbulence jusqu'à la paroi, tandis que les autres reposent sur des lois de paroi et font une projection des valeurs calculées en proche paroi. On peut aussi mentionner que l'étude de [Charton \*et al.\* \(2012\)](#) a montré que, pour modéliser la dispersion axiale, sous certaines conditions opératoires où l'écoulement s'écarte de la configuration pleinement développée, ce modèle obtient des résultats intéressants, qui peuvent notamment venir des fonctions d'amortissement utilisées.

Le modèle RSM est celui qui a obtenu les résultats les moins satisfaisants. Ce modèle sous-estime aussi bien l'énergie cinétique que la dissipation turbulente. Un comportement similaire a également été observé en 3D. Les performances de ce modèle peuvent être expliquées par son caractère probablement trop diffusif. En plus, il a nécessité un temps de calcul sensiblement plus long que les variantes du modèle  $k - \epsilon$ , vu qu'il résout plus d'équations. Nous pouvons par conséquent conclure que ce coût supplémentaire ne se justifie pas.

### 1.1.5 Conclusions partielles sur la modélisation de l'écoulement monophasique

Nous avons développé un modèle CFD capable de représenter d'une manière satisfaisante l'écoulement monophasique dans une colonne pulsée. Le modèle a été validé sur des mesures PIV, tant sur des quantités moyennes que sur des grandeurs turbulentes.

- Des mesures par PIV, synchronisées sur le cycle de pulsation, ont été réalisées ce qui nous a permis d'acquérir des champs moyens et turbulents à différents instants du cycle.
  - La bonne représentation de l'écoulement par des simulations 2D axisymétriques, hypothèse communément admise dans la littérature, a été vérifiée en les comparant à des simulations 3D ainsi qu'aux mesures expérimentales.
  - Les schémas numériques, qu'on trouve habituellement dans les codes de calcul CFD, ont été testés. Le schéma *Power Law* s'avère être celui qui donne les meilleurs résultats pour la simulation de la turbulence. Le schéma *Second Order Upwind* peut également être une alternative intéressante pour sa réduction de la diffusion numérique.
  - Finalement, différents modèles de turbulence ont été comparés, en proposant, pour la première fois, une validation des modèles sur les grandeurs moyennes mais également sur les quantités turbulentes à différents instants du cycle. Il a été montré que les modèles  $k - \epsilon$  standard et RNG donnent des résultats en très bon accord avec les mesures expérimentales, avec des résultats légèrement meilleurs pour ce dernier. Le
-

modèle  $k - \epsilon$  bas- $Re$ , qui avait été proposé dans une précédente étude de la littérature, surestime quant à lui les grandeurs turbulentes pour les conditions opératoires étudiées.

Nous pouvons conclure qu'en fonction de ce qui attendu, le choix du modèle de turbulence et du schéma numérique peut varier. Ainsi, si seules les grandeurs moyennes sont recherchées, le modèle de turbulence  $k - \epsilon$  standard (alternativement  $k - \epsilon$  RNG) combiné au schéma numérique *First Order Upwind* est largement suffisant. Dans le cas où les grandeurs turbulentes sont nécessaires, le modèle de turbulence  $k - \epsilon$  RNG devrait être préféré avec le schéma *Power Law*. Cette combinaison a montré une aptitude à simuler correctement la dissipation turbulente dans la colonne, et peut donc être utile pour déterminer les paramètres nécessaires au dimensionnement des colonnes pulsées industrielles, comme la dispersion axiale, le temps de séjour de la phase dispersée et d'une manière plus générale les propriétés de l'émulsion par une approche couplant la CFD au PBE, et qui constitue l'objet des deux derniers chapitres du présent manuscrit.

## 1.2 Modélisation des temps de séjour des gouttes

L'un des paramètres essentiels pour le dimensionnement et l'optimisation du fonctionnement des colonnes pulsées, et en particulier pour l'application de précipitation en émulsion où les gouttes sont le siège de la précipitation, est le temps de séjour de la phase dispersée dans la colonne, permettant de remonter à celui des précipités créés.

Lors des premiers travaux en colonne pulsée, le temps de séjour des gouttes était déterminé expérimentalement. Les essais étaient menés sur des appareils pilotes et représentaient une charge de travail conséquente, notamment par l'utilisation de techniques de traçage pour mesurer les temps de séjour (Laulan, 1980).

Les années 1980-90 ont été marquées par l'introduction de la simulation numérique en support au dimensionnement et à l'optimisation des procédés industriels. Pour la colonne pulsée, les études ont d'abord été dédiées à l'écoulement monophasique. Les études diphasiques, moins nombreuses, sont constituées essentiellement par les travaux de Casamatta (1981) et Dimitrova *et al.* (1988) qui ont utilisé les équations de bilan de population pour décrire le comportement de la phase dispersée dans la colonne. Bardin-Monnier (1998) a utilisé une approche numérique validée sur des mesures expérimentales, obtenues par une technique d'ombroscopie, pour déterminer la distribution des temps de séjour (DTS) de gouttes sous différentes conditions opératoires. L'auteur a pu mettre en évidence les paramètres les plus influents sur les DTS. Il a également déterminé la nature des forces à prendre en compte pour une meilleure estimation des DTS par simulation lagrangienne.

Après une synthèse des différents travaux effectués jusque là sur cet aspect, nous présentons les mesures de DTS effectuées dans la colonne d'étude. Les résultats sont ensuite confrontés aux résultats déjà publiés dans la littérature avec une amélioration des statistiques pour la détermination des DTS. Pour l'aspect numérique, le modèle précédemment proposé par Bardin-Monnier (1998) est revisité à la lumière des moyens de calculs actuels et le code commercial ANSYS-Fluent<sup>®</sup> est utilisé pour estimer la DTS des gouttes dans la colonne pulsée. Les DTS obtenues par simulation sont enfin discutées par rapport aux nouveaux résultats expérimentaux, à l'instar des propriétés de l'écoulement monophasique au début de ce chapitre.

### 1.2.1 Matériels et méthodes

#### Dispositif de mesure des temps de séjour des gouttes

Le banc d'étude expérimental utilisé pour la mesure des temps de séjour des gouttes est illustré sur la figure 1.15. La colonne est identique à celle utilisée pour la PIV, dont les dimensions sont données dans la section 1.1.2. Un écran LED est placé derrière la colonne,

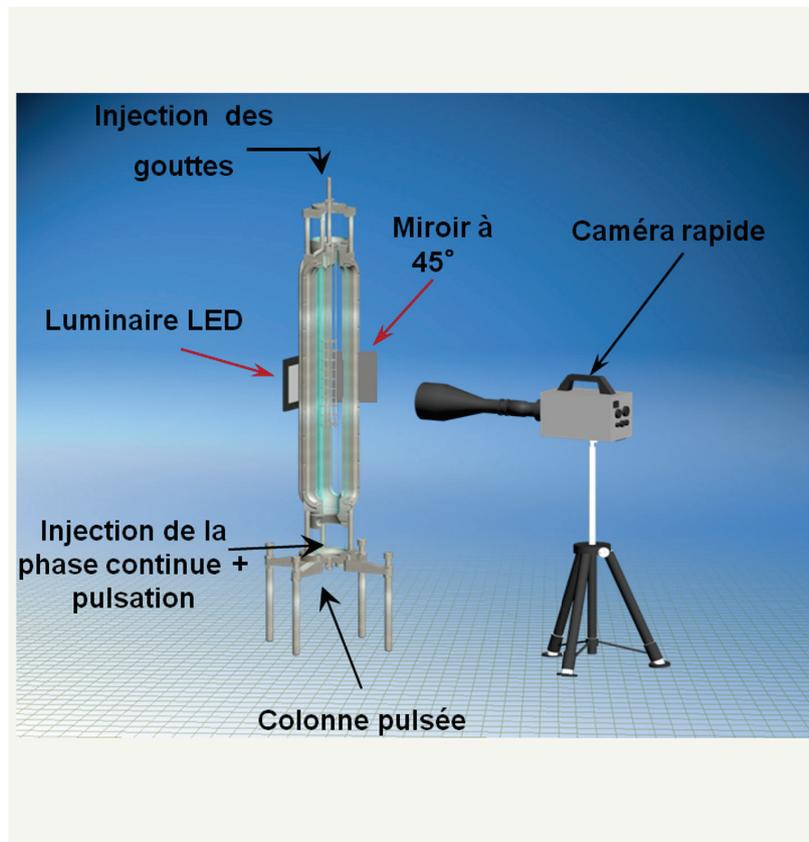


FIGURE 1.15 – Dispositif expérimental de mesure des distributions de temps de séjour des gouttes

face à la caméra rapide, pour assurer une luminosité suffisante et continue. Un miroir, à  $45^\circ$ , est placé sur le côté droit de la colonne, avec la caméra positionnée de sorte à ce que deux plans de vue soient visibles : un plan direct et un second correspondant au reflet renvoyé par le miroir (Fig. 1.16), ce qui facilite le suivi des gouttes qui peuvent être parfois cachées par le garnissage. Cette méthode présente deux avantages : le premier étant l'augmentation des statistiques puisque quasiment toutes les gouttes peuvent être traitées ; le second est l'accès aux trois coordonnées de la goutte avec une possibilité, si besoin, de reconstruire sa trajectoire (Randriamanantena, 2011).

La caméra utilisée est une Fastcam SA3 Photron avec une résolution de  $728 \times 512$  pixels. La vitesse d'acquisition est ajustée en fonction des conditions opératoires et des tailles de gouttes traitées, entre 60 images par seconde pour des gouttes de 2 à 3 mm de diamètre et de 125 images par seconde pour des gouttes de 1 mm. Le compartiment situé au milieu du garnissage qui en compte 7, est observé (Fig. 1.16). Les effets de bord sont ainsi évités.

Le système de phase étudié est décrit dans le tableau 1.6. Pour améliorer le contraste, la phase dispersée est colorée par du bleu de méthylène (0,5 % en volume), des mesures



FIGURE 1.16 – Aperçu du type d'images obtenues

de tension de surface ayant permis de vérifier que le colorant ne modifiait pas la tension superficielle<sup>6</sup>.

Pour que les gouttes soient facilement suivies et leur temps de séjour déterminé dans le compartiment observé, l'injection des gouttes a été espacée à intervalle de temps régulier. Ainsi, en utilisant un pousse-seringue équipé d'un tube en téflon, une seule goutte est créée à la fois, dont la trajectoire est ensuite suivie dans le champ de vision.

Pour pouvoir ajuster le diamètre des gouttes, il est nécessaire d'ajuster à la fois le diamètre du capillaire et le débit du pousse-seringue. La reproductibilité du diamètre a été vérifiée systématiquement avec une balance de précision. Ainsi, avant chaque essai, une série de gouttes a été générée (30 à 40) et pesée de façon à déterminer le diamètre moyen et l'écart type correspondant. Cette opération est répétée plusieurs fois pour s'assurer que les diamètres soient bien reproductibles. Les écarts types enregistrés sont compris entre 2 et 10 % (2 % pour les gouttes les plus grosses et 10 % pour les plus petites). Cette valeur d'écart type est plus que satisfaisante, le diamètre des gouttes est jugé par conséquent reproductible.

Pour être statistiquement représentatif des DTS des gouttes dans la colonne, un minimum de 300 gouttes est traité pour chaque condition opératoire. Le temps considéré est celui que passe la goutte entre son entrée dans le compartiment et sa sortie, déterminé en connaissant les numéros des images correspondantes et la vitesse d'acquisition de la caméra.

---

<sup>6</sup>L'ajout de 0,5 % en volume de bleu de méthylène fait passer la tension de surface de 43 à 42,6  $mN/m$  environ.

---

TABLE 1.6 – Propriétés du système de phase à  $T = 20^\circ C$ 

	Masse volumique ( $kg/m^3$ )	Viscosité dynamique ( $Pa.s$ )	Tension de surface ( $mN/m$ )
<i>TPH</i>	760	$1,23 * 10^{-3}$	43
Eau + bleu de méthylène	998,2	$10^{-3}$	

TABLE 1.7 – Conditions opératoires

Diamètre de goutte ( $mm$ )	Fréquence de pulsation ( $Hz$ )	Amplitude de pulsation ( $mm$ )
3	1	10
		17
	0.5	20
		30
2	1	10
		20
	0.5	20
		40
1	1	10
		20
	0.5	20
		40

Les conditions opératoires étudiées sont répertoriées dans le tableau 1.7. L'absence de rupture des gouttes est systématiquement vérifiée pour chaque condition opératoire.

Le nombre de Reynolds, estimé à partir de l'expression  $Re = 2AfD/\nu$ , est compris entre 600 et 1200. Cependant, ce  $Re$  est basé sur la vitesse débitante, ce qui ne donne qu'une indication du régime, et permet de se situer par rapport à la littérature. En effet, du fait des changements de section au passage des éléments de garnissage l'écoulement peut être localement plus de quatre fois plus turbulent que ce qu'indique cette expression. Il est donc important de tenir compte de la modélisation de la turbulence pour le calcul des DTS, ce que l'on verra par la suite dans la partie dédiée à la modélisation.

Les conditions opératoires du tableau 1.7 ont été limitées par la rupture des gouttes. En effet, au-delà de ces intensités de pulsation (l'intensité de pulsation étant le produit  $A \times f$ ) la probabilité de rupture des gouttes augmente. Pour quelques essais, nous avons

substitué les gouttes par des billes solides calibrées de façon à contourner ce problème. Cependant, dans ces conditions de pulsation très intenses, les billes faisaient plusieurs entrées et sorties dans le compartiment observé, ce qui rend la définition de leur temps de séjour impossible dans la mesure où il n'a pas été possible de les distinguer sur les vidéos.

### 1.2.2 Modélisation de l'écoulement des gouttes et temps de séjour

La détermination du temps de séjour des gouttes par simulation numérique est traitée avec le code de calcul ANSYS-Fluent<sup>®</sup> par une approche lagrangienne. Cette approche consiste à suivre les trajectoires d'inclusions pour la phase dispersée, en plus de la résolution des équations de Navier-Stokes pour la phase continue. Ces inclusions sont des sphères solides ponctuelles et peuvent être utilisées pour simuler des gouttes ou des bulles. Le modèle qui permet de réaliser un suivi lagrangien d'une phase dispersée sous ANSYS-Fluent<sup>®</sup> est appelé Discret Phase Model (DPM). Une hypothèse importante doit être vérifiée pour l'utilisation de ce modèle, à savoir un taux de rétention faible de la phase dispersée. Il est admis que cette hypothèse est valable pour des taux de rétention allant jusqu'à 10% (FluentInc (2010)).

#### Le Discret Phase Model (DPM)

Le DPM, en plus de résoudre les équations de Navier-Stokes pour la phase continue (voir la section 1.1.1), résout un bilan de force pour la phase dispersée. Ce bilan de force tient compte de plusieurs contributions et est donné par l'expression suivante :

$$\frac{du_p}{dt} = F_D(u - u_p) + \frac{g_x(\rho_p - \rho)}{\rho_p} + F_x \quad (1.23)$$

avec  $F_D(u - u_p)$  la force de traînée par unité de masse, et  $F_x$  une force d'accélération additionnelle (par unité de masse).

Plusieurs possibilités peuvent exister pour les forces additionnelles. Dans notre cas, deux types de forces sont pris en compte ( $F_x = F_{x1} + F_{x2}$ ) :

- $F_{x1} = \frac{\rho}{2\rho_p} \frac{d}{dt}(u - u_p)$  est la force de masse ajoutée. Cette force tient compte du mouvement relatif de l'inclusion par rapport au fluide porteur.
- $F_{x2} = \frac{\rho}{\rho_p} u_{pi} \frac{du}{dx_i}$  est la force de gradient de pression. Cette force est celle que doit exercer un fluide sur un élément de lui même, occupant un volume identique à celui

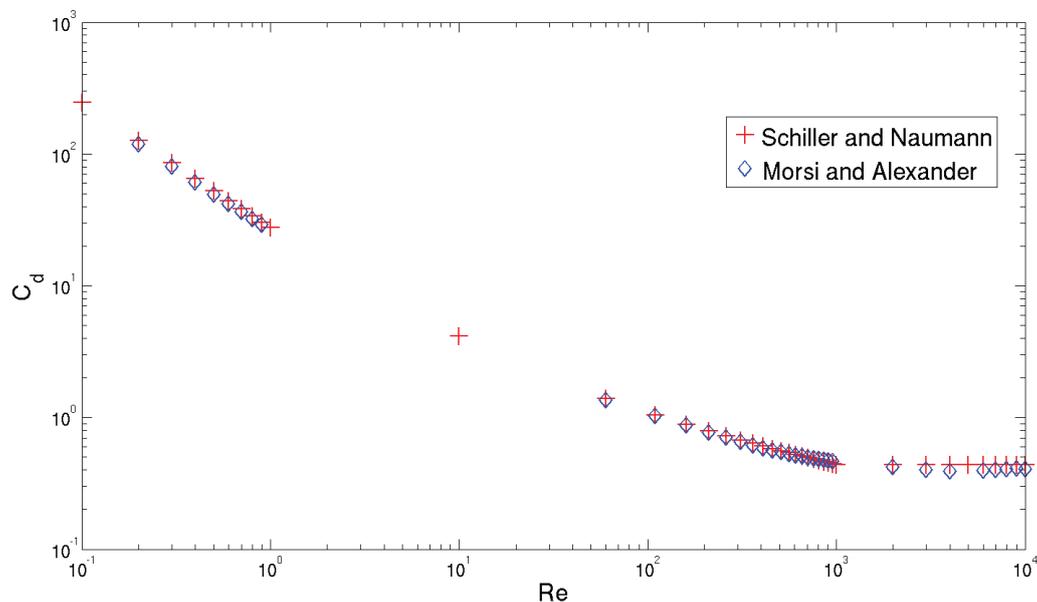


FIGURE 1.17 – Comparaison de deux corrélations pour le calcul du coefficient de traînée.

de la particule, pour lui fournir une accélération égale à celle de l'écoulement non perturbé.

Il est possible également de tenir compte de la force de portance qui devient importante dans le cas d'inclusion sous forme de bulles (rapport  $\rho/\rho_p$  élevé) ou dans le cas d'un écoulement fortement cisailé. N'étant pas dans l'un de ces deux cas, cette force n'est pas prise en compte pour la modélisation des DTS. Il a été également démontré que cette force joue un rôle négligeable pour le calcul des DTS dans un écoulement liquide-liquide (Bardin-Monnier, 1998).

La force de traînée est donnée par l'expression suivante :

$$F_D = \frac{18\mu}{\rho_p d_p^2} \frac{C_D Re}{24} \quad (1.24)$$

avec  $C_D$  le coefficient de traînée.

Le choix de l'expression du coefficient de traînée dépend de plusieurs paramètres dont le régime d'écoulement, le domaine de validité de la corrélation, etc. Deux corrélations ont été testées et comparées pour le calcul du coefficient de traînée :

- La corrélation de Schiller & Naumann (1935) :

$$C_D = \begin{cases} 24(1 + 0.15Re^{0.687})/Re & \text{pour } Re \leq 1000 \\ 0.44 & \text{pour } Re > 1000 \end{cases} \quad (1.25)$$

- La corrélation de **Morsi & Alexander (1972)** :

$$C_D = a_1 + \frac{a_2}{Re} + \frac{a_3}{Re^2} \quad (1.26)$$

avec :

$$a_1, a_2, a_3 = \begin{cases} 0, 24, 0 & \text{pour } 0 < Re < 0.1 \\ 3.69, 22.73, 0.0903 & \text{pour } 0.1 < Re < 1 \\ 1.222, 29.1667, -3.8889 & \text{pour } 1 < Re < 10 \\ 0.6167, 46.50, -116.67 & \text{pour } 10 < Re < 100 \\ 0.3644, 98.33, -2778 & \text{pour } 100 < Re < 1000 \\ 0.357, 148.62, -47500 & \text{pour } 1000 < Re < 5000 \\ 0.46, -490.546, 578700 & \text{pour } 5000 < Re < 10000 \\ 0.5191, -1662.5, 5416700 & \text{pour } Re \geq 10000 \end{cases} \quad (1.27)$$

La figure 1.17 illustre l'évolution du  $C_D$  calculé par ces deux corrélations. Les deux corrélations se superposent parfaitement. La corrélation de **Schiller & Naumann (1935)** est la plus connue et utilisée dans la littérature. Elle offre l'avantage de s'appliquer sur une large gamme de Reynolds et de ne pas présenter de discontinuité. Elle a été retenue pour la suite de l'étude.

## La dispersion turbulente

L'utilisation du modèle DPM ne permet pas directement de tenir compte de la turbulence "vue" par les particules. Or, elles sont soumises à la turbulence de la phase continue, qui est en partie responsable de la dispersion des temps de séjour. Il est donc nécessaire de tenir compte de cet effet à travers une modélisation de la dispersion turbulente.

La prise en compte de la dispersion turbulente permet le calcul des trajectoires des gouttes non seulement à partir des champs moyens de vitesse, mais également en tenant compte des fluctuations turbulentes. La vitesse instantanée du fluide porteur se décompose en une composante moyenne et une composante fluctuante :

$$u = \bar{u} + u' \quad (1.28)$$

ANSYS-Fluent<sup>®</sup> utilise une méthode stochastique pour estimer la vitesse instantanée du fluide porteur. La fluctuation de vitesse est ainsi déterminée comme une fonction constante par intervalles de temps, correspondant à la durée de vie des tourbillons. Pour estimer la durée de vie d'un tourbillon, la notion d'échelle intégrale de temps qui décrit le temps passé en mouvement turbulent le long de la trajectoire de la particule,  $ds$ , est utilisée :

$$T = \int_0^\infty \frac{u'_p(t)u'_p(t+s)}{u_p'^2} \quad (1.29)$$

L'échelle de temps intégrale peut être considérée comme l'échelle intégrale de temps lagrangienne,  $T_L$ , pour les particules de traceur (particule avec une vitesse de glissement négligeable) :

$$T_L = C_L \frac{k}{\epsilon} \quad (1.30)$$

La constante  $C_L$  peut être déterminée en faisant l'analogie entre la diffusivité d'un traceur,  $\overline{u'_i u'_j} T_L$ , et la diffusion d'un scalaire donnée par le modèle de turbulence,  $\nu_t/\sigma$  :

- $T_L \approx 0,15 \frac{k}{\epsilon}$  pour le modèle  $k - \epsilon$  et ses variantes.
- $T_L \approx 0,3 \frac{k}{\epsilon}$  pour le modèle RSM.

Les fluctuations turbulentes sont supposées obéir à une distribution gaussienne :

$$u' = \varsigma \sqrt{u'^2} \quad (1.31)$$

avec  $\varsigma$  un nombre aléatoire qui obéit à une distribution normale. Les valeurs des RMS (Root Mean Square) des fluctuations turbulentes sont estimées à partir de la valeur de l'énergie cinétique par la relation suivante :

$$\sqrt{u'^2} = \sqrt{v'^2} = \sqrt{w'^2} = \sqrt{2k/3} \quad (1.32)$$

L'équation (1.32) est valable uniquement dans le cas d'une turbulence isotrope et est donc utilisée par les modèles  $k - \epsilon$  et  $k - w$  et leurs variantes. Dans le cas du modèle RSM, l'anisotropie est prise en compte dans le calcul des fluctuations turbulentes. Ainsi, nous aurons :

$$u' = \varsigma \sqrt{u'^2} \quad (1.33a)$$

$$v' = \varsigma \sqrt{v'^2} \quad (1.33b)$$

$$w' = \varsigma \sqrt{w'^2} \quad (1.33c)$$

Le temps caractéristique de durée de vie d'un tourbillon,  $\tau_e$ , est défini comme une constante ou bien comme une variable aléatoire de  $T_L$ . Dans le premier cas  $\tau_e = 2T_L$  et dans le second  $\tau_e = -T_L \log(r)$ , avec  $r$  un nombre aléatoire compris entre 0 et 1.

Une particule est supposée interagir avec un tourbillon pendant une période correspondant au plus petit des deux temps : le temps caractéristique de durée de vie d'un tourbillon,  $\tau_e$ , et le temps de traversée de celui-ci,  $t_{traverse}$  :

$$t_{traverse} = -\tau \ln \left[ 1 - \left( \frac{L_e}{\tau |u - u_p|} \right) \right] \quad (1.34)$$

avec  $\tau$  le temps de relaxation d'une particule et  $L_e$  la taille caractéristique d'un tourbillon (avec  $L_e \propto \frac{k^{3/2}}{\epsilon}$ ).

## Domaine de calcul et conditions limites

Le domaine de calcul et les conditions limites pour la phase dispersée sont équivalents à ceux utilisés pour le calcul de l'écoulement de la phase continue seule (voir la section 1.1.3).

Le calcul des DTS est entrepris en trois étapes. D'abord, l'écoulement stationnaire de la phase continue, correspondant au maximum de la vitesse en entrée, est calculé. Ensuite la pulsation est activée avec le profil de vitesse en entrée précédemment défini (eq. (1.22)) jusqu'à atteindre dix périodes d'oscillation. Enfin, les gouttes sont injectées à l'entrée du deuxième compartiment dans l'espace entre la couronne et la paroi et le calcul instationnaire poursuivi. Les rebonds sont traités comme non élastiques avec un coefficient de restitution de 100% au niveau de toutes les parois (Bardin-Monnier, 1998).

Pour être statistiquement représentatif des temps de séjour des gouttes dans la colonne, au moins 3000 gouttes sont traitées dans chaque cas et par compartiment, ce qui nécessite parfois l'injection d'un nombre important de gouttes (la centaine de milliers) car les gouttes étant représentées par des points immatériels, il arrive que ces points soient pris dans des zones mortes sans pouvoir en ressortir.

Pour suivre les gouttes, des fichiers de données qui recensent toutes les gouttes qui passent à chaque entrée et sortie des compartiments situés en aval du lieu d'injection, sont enregistrés. Les gouttes sont identifiées par des numéros, avec un certain nombre d'informations dont le temps physique auquel elles ont passé la frontière, leur positions dans l'espace, leur vitesse, etc. Ces fichiers sont ensuite traités par un programme développé sous Malab<sup>®</sup> qui permet de ne considérer que les gouttes sorties du compartiment. Le temps de séjour est ainsi calculé tout en éliminant les gouttes (ou les points immatériels) restées coincées dans le compartiment.

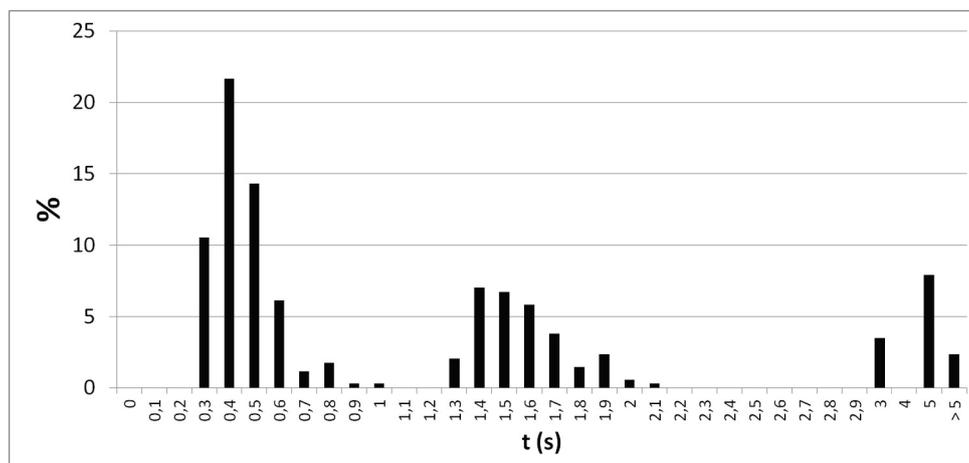
### 1.2.3 Résultats et discussion

#### Résultats expérimentaux

Les temps de séjour des gouttes peuvent être représentés sous forme d'histogrammes ou de valeurs moyennes. La figure 1.18 est un exemple d'histogramme représentant la DTS de gouttes pour une condition opératoire donnée. Nous pouvons constater que la distribution est multimodale et que les pics sont généralement centrés sur des multiples de la fréquence de pulsation. Ceci est en accord avec les observations de Bardin-Monnier (1998).

La figure 1.19 représente le temps de séjour moyen dans un compartiment pour différentes tailles de gouttes et conditions opératoires. Nous pouvons constater que le temps de séjour moyen diminue avec l'intensité de pulsation,  $Af$ , et le diamètre de goutte. En effet, l'intensité de pulsation caractérise l'écoulement de la phase continue, donc la phase porteuse. Lorsque la phase continue est pulsée plus fortement, l'évolution des gouttes est plus rapide dans la colonne ce qui se traduit par une diminution du temps de séjour moyen.

---

FIGURE 1.18 – Histogramme de DTS :  $A = 20$  mm,  $f = 0,5$  Hz,  $d_p = 3$ mm

Pour ce qui est de l'influence du diamètre de goutte, l'inertie de la phase dispersée accélère l'évolution de la goutte et contribue également à réduire le temps de séjour des gouttes dans la colonne. Une fois encore, ces observations sont en accord avec celles de [Bardin-Monnier \(1998\)](#), avec dans notre cas une statistique plus importante pour l'estimation des temps de séjour.

L'intensité de pulsation,  $Af$ , est généralement utilisée dans la littérature comme paramètre pour caractériser l'écoulement dans une colonne pulsée. On peut cependant remarquer que ce paramètre ne permet pas de caractériser à lui seul l'écoulement dans une colonne pulsée. Sur la figure 1.19, le temps de séjour moyen diminue avec l'intensité de pulsation quelle que soit la fréquence de pulsation. Cependant, cette diminution du temps de séjour est différente pour les deux fréquences étudiées. Ainsi, à intensité de pulsation égale, le temps de séjour moyen diminue plus fortement pour une fréquence de 0,5 Hz. Ceci peut s'expliquer par l'amplitude plus étendue du mouvement de la phase continue qui pousse la goutte à sortir plus rapidement du compartiment. Cet effet doit être pris en compte pour le choix des conditions opératoires selon l'effet recherché pour le temps de séjour des gouttes (augmentation ou diminution de celui-ci). Par exemple, dans le cadre de ces travaux de thèse récents, [Brunet \(2005\)](#) a développée un contacteur de type colonne pulsée pour les applications de mise en contact solide/liquide. L'auteur a pu démontré qu'en jouant sur la fréquence et l'asymétrie de pulsation il était possible de moduler le temps de séjour des particules dans le contacteur. Ainsi, il est possible d'uniformiser le temps de séjour de particules de différentes tailles.

Nous avons également remarqué, dans le cadre des mesures des champs de vitesse dans la colonne (section 1.1.2), que le suivi de la vitesse moyenne ou maximale dans un compartiment pendant une période ne pouvait être correctement appréhendé par le seul paramètre  $Af$ . Ainsi, l'évolution de la vitesse maximale ou moyenne dans un compartiment ne se superpose pas pour une même intensité de pulsation à différentes fréquences ([Paisant et al., 2013](#)).

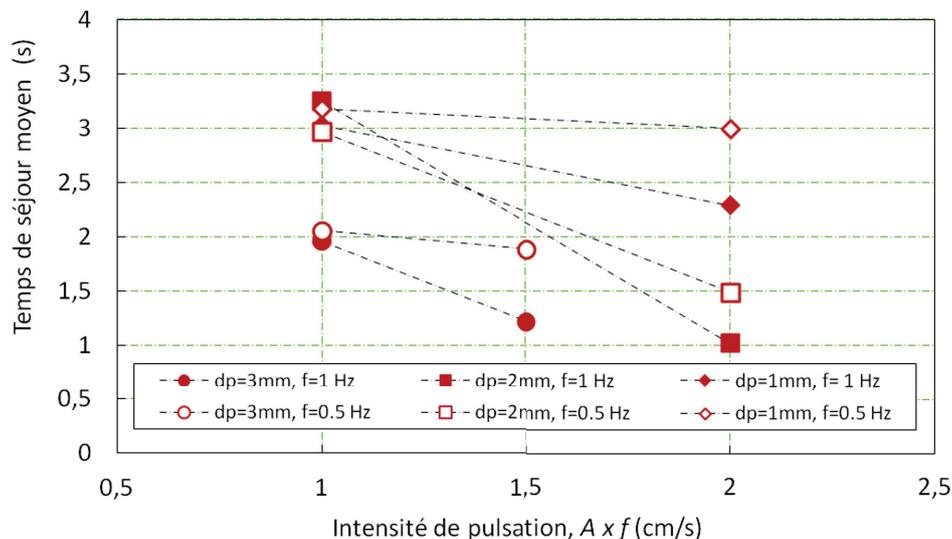


FIGURE 1.19 – Temps de séjour moyen dans un compartiment pour différentes tailles de gouttes et conditions opératoires

Il est intéressant de remarquer, sur la figure 1.19, que pour les faibles intensités de pulsation (1 cm/s ici), les temps de séjour moyens sont assez proches indépendamment du diamètre de goutte. L'écart devient plus important avec l'augmentation de l'intensité de pulsation. On peut attribuer cet effet à la turbulence, notamment à l'effet de la dispersion turbulente sur la DTS. En effet, dans le cas des faibles intensités de pulsation, l'écoulement moyen serait principalement responsable du transport des gouttes dans la colonne. Lorsque la pulsation augmente, la dispersion turbulente devient importante se traduisant par des écarts plus prononcés des temps de séjour de gouttes pour un même diamètre et une même intensité de pulsation.

### Comparaison des DTS simulées et mesurées

La détermination des DTS simulées a été effectuée en considérant les différents modèles de turbulence décrits dans la section 1.1.1. La figure 1.20 illustre la comparaison des temps de séjour moyens mesurés et calculés avec ces différents modèles de turbulence. La ligne continue correspond à la bissectrice et les deux lignes discontinues à des écarts relatifs de  $\pm 15\%$ .

Nous pouvons constater, à partir de la figure 1.20, que la plupart des temps de séjour calculés rentrent entre les deux lignes discontinues. Il est intéressant de remarquer qu'il n'est pas possible de dégager une tendance de surestimation ou de sous-estimation du temps de séjour par les différents modèles de turbulence. Ceci est probablement dû au caractère stochastique de la dispersion turbulente. Il est également difficile de discriminer les modèles de turbulence puisque les performances de ces modèles sont proches.

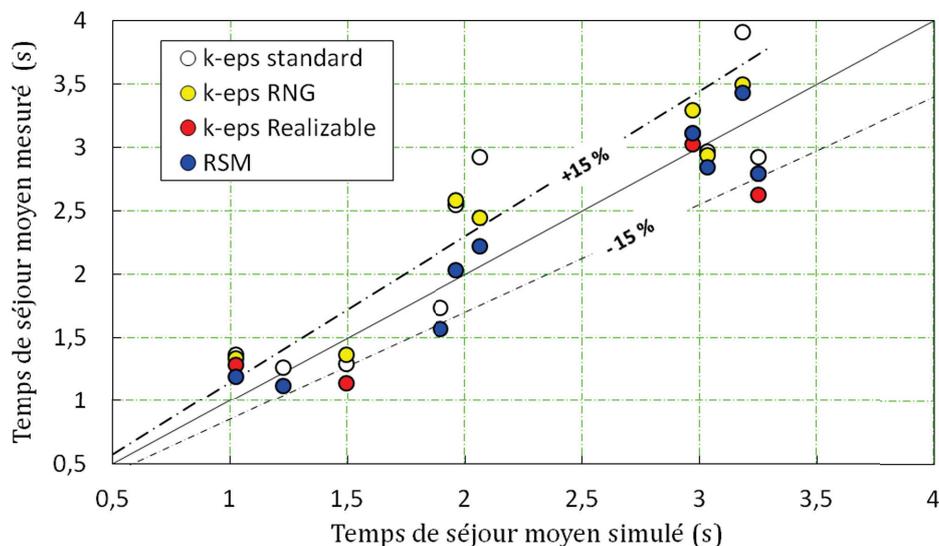


FIGURE 1.20 – Comparaison du temps de séjour moyen mesurés et simulés avec plusieurs modèles de turbulence

Nous pouvons remarquer que le modèle RSM montre des écarts moins importants que les autres. Or nous avons vu que ce modèle est plus diffusif pour l'estimation de la turbulence. Il ne peut par conséquent être considéré comme ayant des performances meilleures. Nous pouvons également constater que les modèles  $k - \epsilon$  standard et RNG obtiennent des résultats très proches ce qui peut s'expliquer par leur performances similaires en terme de modélisation de la turbulence.

Les différents modèles ont montré des évolutions qualitatives des DTS comparables à celles observées expérimentalement. Nous avons ainsi pu retrouver une diminution de temps de séjour moyen avec l'intensité de pulsation et le diamètre de gouttes ainsi que l'effet de la fréquence de pulsation, à intensité égale, sur les DTS.

L'estimation des DTS par le modèle est jugée satisfaisante. Les écarts observés sont largement compensés par le gain de temps et d'effort qu'offre le modèle. En effet, alors qu'une mesure de temps de séjour pour un jeu de conditions opératoires donné peut prendre 3 jours, la modélisation sur un seul processeur nécessite quelques heures pour avoir une estimation des DTS. Le modèle permet également d'avoir des informations qualitatives, que nous avons trouvé parfaitement comparables aux mesures, intéressantes pour la compréhension et le dimensionnement des procédés. L'effet séparé de la fréquence et de l'amplitude de pulsation peut par exemple être étudié d'une manière plus étendue par le modèle. La possibilité d'explorer des conditions opératoires plus contraignantes qui ne peuvent être traitées expérimentalement peut également être entreprise. La simplicité du modèle est également un avantage non négligeable.

Le modèle, malgré ses nombreux avantages, est néanmoins perfectible. La modélisation de la dispersion turbulente peut être revue pour utiliser des modèles plus phénoménologiques. Il pourrait également être intéressant de résoudre le problème de blocage des gouttes, ou points immatériels, en imposant aux gouttes de s'arrêter à une certaine distance de la paroi, qui peut être équivalente au rayon de la goutte. Les rebonds peuvent également être améliorés avec des modèles basés sur des mesures physiques.

### 1.2.4 Conclusion

Le temps de séjour de la phase dispersée est un paramètre important du fonctionnement des colonnes pulsées. Il peut avantageusement être déterminé par simulation numérique. Nous avons entrepris dans ce travail une démarche de modélisation par les outils de mécanique des fluides numériques (CFD), utilisant le code ANSYS-Fluent<sup>®</sup>, validée sur des mesures expérimentales réalisées sur une colonne d'échelle laboratoire. Les mesures expérimentales, réalisées avec différents diamètres de gouttes et sous différentes conditions opératoires, ont montré une diminution du temps de séjour des gouttes avec le diamètre de celles-ci et l'intensité de pulsation. Il a de plus été démontré que l'utilisation de l'intensité de pulsation à elle seule ne suffit pas pour caractériser l'écoulement dans la colonne. Il serait en effet nécessaire de tenir compte de l'effet séparé de l'amplitude et de la fréquence de pulsation pour une meilleure compréhension de l'écoulement.

Le modèle développé, simple et rapide, a démontré une aptitude à modéliser les DTS d'une manière satisfaisante. La comparaison des résultats numériques aux DTS mesurées a permis de valider le modèle qui donne des résultats qualitativement en bon accord avec l'expérience et quantitativement avec des écarts de l'ordre de  $\pm 15\%$ . Ces écarts peuvent être dûs au caractère stochastique du modèle utilisé pour la dispersion turbulente qui pourrait être amélioré par une modélisation plus phénoménologique.

Le bon accord qualitatif entre expérience et modélisation peut permettre de modéliser le comportement de la phase dispersée dans des conditions inaccessibles expérimentalement. L'effet séparé de l'amplitude et fréquence de pulsation sur le temps de séjour des gouttes peut également être aisément approfondi par le modèle.

---

## 2

# Équations du Bilan de Population (PBE) : identification des noyaux de rupture et coalescence

Le présent chapitre est consacré à l'identification des noyaux de rupture et coalescence pour la phase dispersée. Ces phénomènes traduisent les interactions avec l'écoulement de la phase continue à travers les éléments de garnissage, qui permet de créer une émulsion et ainsi d'augmenter l'aire interfaciale, paramètre clé pour l'échange de matière.

Pour caractériser les propriétés de la phase dispersée plusieurs approches peuvent être envisagées. L'approche lagrangienne permet, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent (voir section (1.2)), de modéliser la distribution des temps de séjour des gouttes ainsi que leur dispersion axiale. D'un autre côté l'approche eulérienne permet d'accéder notamment à la rétention (Retieb *et al.*, 2007) ou encore à l'aire interfaciale (Randriamantena, 2011).

Toujours dans le cadre de l'approche eulérienne, les équations de bilan de population (*Population Balance Equation* en anglais, ou PBE) offre l'avantage de suivre l'évolution de la phase dispersée en tenant compte des phénomènes de rupture et de coalescence et permet ainsi d'accéder à la distribution de taille de la population (gouttes, bulles, cristaux, etc.). Selon la méthode de résolution de la PBE, la distribution complète est obtenue ou seulement le diamètre moyen. Ces dernières années, de plus en plus de travaux sont consacrés à l'étude d'un deuxième paramètre en plus de la taille des gouttes (ou bulles), le plus souvent une deuxième dimension caractéristique, la température ou la concentration. On parle dans ce cas de bilan de population multivariable.

---

Les travaux précurseurs en PBE ont été ceux de [Hulburt & Katz \(1964\)](#) et [Randolph \(1969\)](#). La PBE, déterminée à partir d'une analogie avec l'équation de Boltzmann, est un système d'équations intégro-différentielles qui permet de déterminer le comportement d'une population de particules à partir d'une équation de bilan de conservation de ces particules dans le volume de contrôle ([Ramkrishna, 2000](#)). Ce bilan s'écrit en considérant un nombre de densité de probabilité  $n(\vec{y}, x, t)$ , où  $\vec{y}$  est la position spatiale de la goutte et  $x$  la coordonnée interne, le volume dans notre cas ([Ramkrishna \(2000\)](#), [Ramkrishna & Mahony \(2002\)](#)). Soit :

$$\frac{\partial}{\partial t} [n(x, t)] + \nabla \cdot [\vec{u} n(x, t)] = S(x, t) \quad (2.1)$$

$S(x, t)$  est le terme source. Dans le cas d'une émulsion liquide-liquide, qui ne présente pas de croissance ou de nucléation, il représente les phénomènes de rupture et coalescence et s'écrit :

$$S(x, t) = B^b - D^b + B^c - D^c \quad (2.2)$$

avec  $B$  et  $D$  signifiant *naissance* (Birth) et *mort* (Death),  $b$  et  $c$  en exposant *brisure* et *coalescence*. Ainsi  $B^b$  et  $D^b$  sont respectivement l'apparition et la disparition de nouvelles particules par rupture et  $B^c$  et  $D^c$  l'apparition et la disparition de gouttes par coalescence. Ces différents termes sont donnés par :

$$B^b(x, t) = \int_{\Omega_x} b(V') \beta(x|V') n(V', t) dV' \quad (2.3)$$

$$D^b(x, t) = b(x) n(x, t) \quad (2.4)$$

$$B^c(x, t) = \frac{1}{2} \int_0^x a(x - V', V') n(x - V', t) n(V', t) dV' \quad (2.5)$$

$$D^c(x, t) = \int_0^\infty a(x, V') n(x, t) n(V', t) dV' \quad (2.6)$$

Le taux de rupture dans l'équation (2.3) est le produit  $b(V') \beta(x|V')$ , avec  $b(\epsilon)$  la fréquence de rupture qui représente la fraction de gouttes de volume  $V'$  qui vont casser.  $b(V') \beta(x|V')$  décrit la distribution des gouttes filles (des gouttes passant par brisure de la goutte mère  $V'$  à la goutte  $x$ ). Le taux de coalescence  $a(x - V', V')$  quant à lui, s'exprime souvent sous le forme d'un produit de fréquence de collision et d'efficacité de collision. L'équation (2.5) exprime la "naissance" d'une goutte de volume  $x$  par la coalescence de deux gouttes de volumes  $x - V'$  et  $V'$ . Le facteur 1/2 permet d'éviter de comptabiliser deux fois une même collision.

Dans cette étude, les noyaux de rupture et coalescence sont d'abord choisis et leurs paramètres identifiés pour notre système de phase et nos conditions opératoires. Le choix des

---

modèles pour les taux de rupture et coalescence nécessite de passer en revue les différents modèles disponibles dans la littérature de façon à sélectionner ceux qui peuvent modéliser notre procédé. Les modèles sélectionnés, qui sont souvent des modèles phénoménologiques, contiennent des constantes à identifier, ce qui se fait en ajustant les distributions de taille de gouttes (DTG) mesurées dans notre procédé à celles obtenues par résolution numérique de la PBE.

Pour ce faire, il serait nécessaire de disposer de DTG mesurées dans la colonne pour pouvoir réaliser l'étape de résolution du problème inverse. Dans l'état actuel des choses, à notre connaissance, aucune étude de la littérature ne propose des mesures de DTG dans une colonne pulsée. Leur faisabilité est en effet assez complexe en raison de la nature périodique de l'écoulement, nécessitant des mesures à des fréquences élevées d'acquisition, des temps de manipulation et de dépouillement conséquents, etc. Des techniques de mesure non intrusives pourraient être envisagées, dont on peut se faire une idée de la complexité de mise en œuvre en se référant au travail de [Augier \*et al.\* \(2003\)](#), et plus récemment de [Randriamanantena \(2011\)](#) utilisant la Fluorescence Induite par Laser (LIF). Ce dernier a réalisé une première tentative de suivi de l'aire interfaciale, néanmoins, le caractère transitoire (périodique) de l'écoulement et les hétérogénéités locales de tailles et de formes des gouttes, en particulier au niveau des plateaux, n'ont pas permis d'aboutir au résultat souhaité.

Il faut ajouter à cette complexité de mesure, la complexité et la lourdeur de l'identification des paramètres par méthode inverse qui nécessiterait l'acquisition de données à différents instants du cycle, à l'instar des mesures par PIV, ce qui rend l'opération d'identification très coûteuse et limite la quantité de travail pouvant être effectuée dans le cadre d'une thèse.

Ces différentes raisons nous ont conduits à définir une alternative à la colonne pulsée pour l'identification des noyaux de rupture et coalescence. Un appareil permettant de réaliser des mesures simples et rapides de DTG, tout en étant assez représentatif des conditions turbulentes que nous pouvons rencontrer dans une colonne pulsée a été choisi.

Ce chapitre est articulé en deux parties. Le dispositif expérimental qui nous a permis de mesurer les DTG est un réacteur parfaitement agité (RPA). Il est d'abord présenté en détail. La seconde partie est consacrée au recensement et à l'étude des noyaux de rupture et de coalescence pour en sélectionner quelques-uns qui s'appliquent dans notre cas. Une discussion des méthodes de résolution de la PBE est également présentée pour choisir celle qui sera ensuite utilisée pour l'identification des noyaux retenus par méthode inverse. Enfin, les résultats d'identification des noyaux de rupture et de coalescence seront présentés et discutés vis-à-vis des résultats de la littérature.

## 2.1 Emulsification dans un Réacteur Parfaitement Agité

### 2.1.1 Choix du RPA

Le choix de travailler en RPA pour cette étape d'identification résulte de différentes considérations. Tout d'abord, l'acquisition de DTG dans un RPA est réalisable avec des systèmes de sonde vidéo in-situ très efficaces, c'est d'ailleurs l'un des appareils les plus utilisés pour ce type de mesure. Les travaux sont innombrables dans la littérature, pour ne citer que les récents : [Pacek \*et al.\* \(1994\)](#), [Ritter & Kraume \(2000\)](#) ou encore [Khalil \(2011\)](#). L'autre avantage de l'utilisation d'un RPA est la possibilité d'avoir recours à une représentation 0D. En effet, la dissipation turbulente est généralement considérée comme quasi-uniforme dans un RPA, ce qui permet d'effectuer une modélisation PBE en assimilant le réacteur à un seul volume de contrôle. Ceci simplifie considérablement la résolution du problème inverse et réduit d'autant le temps nécessaire à l'identification des noyaux de rupture et de coalescence. Cependant, à ce stade, une question s'impose, celle de s'assurer de la quasi-uniformité de la dissipation turbulente dans le RPA et de sa représentativité par rapport à l'écoulement dans une colonne pulsée.

La colonne pulsée, équipée d'un garnissage disque et couronne, est un appareil qui fonctionne sous des régimes d'écoulement peu cisailés, comme nous pouvons le constater sur la figure 2.1 qui représente la distribution de dissipation turbulente dans un compartiment, obtenue à partir d'une simulation CFD. Le choix d'un agitateur permettant de reproduire les conditions d'écoulement peu cisailées a été basée sur les études expérimentales de [Mavros \*et al.\* \(1998\)](#) et [Aubin \*et al.\* \(2001\)](#), ainsi que l'étude numérique des mêmes auteurs ([Aubin \*et al.\*, 2004](#)). Dans leurs études expérimentales, [Mavros \*et al.\* \(1998\)](#) et [Aubin \*et al.\* \(2001\)](#) ont réalisé des mesures de la turbulence dans un RPA pour différents types d'agitateurs : une turbine à pales inclinées, une turbine Rushton, une hélice Mixel TT et une hélice Lightnin A310. La technique utilisée pour la mesure de la turbulence est la Vélocimétrie Laser Doppler (LDV). Plusieurs configurations et positionnements des agitateurs ont été étudiés et des mesures de turbulence et d'efficacité de pompage<sup>1</sup> ont été effectuées. Les champs d'énergie cinétique et de dissipation turbulentes mesurés par les auteurs indiquent que l'hélice Mixel TT<sup>®</sup> (hélice à grandes pales minces) est celle qui répond le mieux au cahier des charges que nous nous sommes fixés. En effet, cette hélice offre une distribution quasi-uniforme de la turbulence, avec de faibles niveaux de cisaillement. Les auteurs ont également montré qu'au niveau de l'efficacité de pompage, cette hélice offrait le meilleur rendement. En revanche, la turbine Rushton présente les niveaux de cisaillement les plus élevés, avec une distribution de la dissipation turbulente s'écartant considérablement d'une situation homogène. Nous pouvons par ailleurs noter que les dimensions de l'agitateur et du RPA utilisés dans ces différentes études sont quasiment identiques aux nôtres (que nous décrirons dans la suite de ce chapitre).

---

<sup>1</sup>Plus le débit de fluide mis en mouvement par le mobile est important, plus l'agitateur est considéré comme ayant une bonne capacité de pompage ([Guntzburger, 2012](#)).

---

Le choix du mobile d'agitation s'étant arrêté sur un mobile de type Mixel TT, il convient de s'assurer que la gamme de dissipation turbulente rencontrée dans la colonne pulsée est correctement reproduite à travers une série de conditions opératoires en RPA. Nous avons, par conséquent, étudié plusieurs vitesses d'agitation qui nous ont permis de reproduire les valeurs les plus significatives calculées et observées dans la colonne pulsée (voir section (1.1)).

### 2.1.2 Dispositifs expérimentaux

Pour mesurer les DTG dans le réacteur, et leurs évolutions, nous avons utilisé un système de sonde vidéo in-situ développé au LAGEP<sup>2</sup>. Nous présentons ici ce système de sonde vidéo ainsi que le RPA dans lequel les différentes mesures de DTG ont été réalisées. Nous avons en outre procédé à un étalonnage de la méthode de mesure en considérant des distributions de taille de billes calibrées, ce qui nous a permis d'estimer le degré de confiance que nous pouvons accorder aux DTG mesurées. Des recoupements ont enfin été effectués avec à une autre technique de mesure, basée sur la réflexion de la lumière, et développée par l'entreprise SOPAT GmbH.

#### Le réacteur parfaitement agité et la sonde vidéo

Le RPA utilisé est cylindrique avec un fond de forme arrondie (figure 2.2). Son volume est de 0,86L, la hauteur de liquide,  $H$ , égale au diamètre, est de  $T = 103$  mm. L'agitation est assurée par une hélice Mixel TT dont les dimensions sont répertoriées dans le tableau 2.1. Les dimensions des différents éléments du montage expérimental ainsi que leur positionnement ont été choisis en se basant sur les recommandations de la littérature (Brown *et al.*, 2004). Ainsi, l'agitateur est positionné à une hauteur  $H/3$  du fond du RPA.

La sonde vidéo EZ Probe D25L1200<sup>®</sup> est équipée d'une caméra CCD positionnée sur une tête déportée et d'une source lumineuse LED (Light Emitting Diode) placée en face de la caméra afin d'assurer une lumière la plus homogène possible et de permettre de récupérer l'ombre des gouttes qui passent dans l'entrefer (figure 2.3). Les flashes lumineux de la LED sont déclenchés par un générateur d'impulsions qui est synchronisé avec la fréquence d'acquisition de la caméra. Une fois la lumière envoyée dans la zone d'analyse et passée par des optiques, elle est récupérée par la caméra pour qu'un système de conversion analogique-numérique récupère les données vidéo et les transmette à l'ordinateur. Des vidéos acquises avec une fréquence de 50 Hz sont enregistrées pour être ensuite extraites sous forme d'images qui seront post-traitées par un algorithme permettant de remonter aux diamètres des gouttes. La durée de ces vidéos dépend de la mesure souhaitée et des conditions opératoires explorées. Ainsi, la vidéo est courte, soit 40 s, lorsque la rétention est élevée (car permettant sans difficulté d'avoir un nombre de gouttes suffisant pour atteindre

---

<sup>2</sup>Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés, UMR5007, Université de Claude Bernard, Lyon.

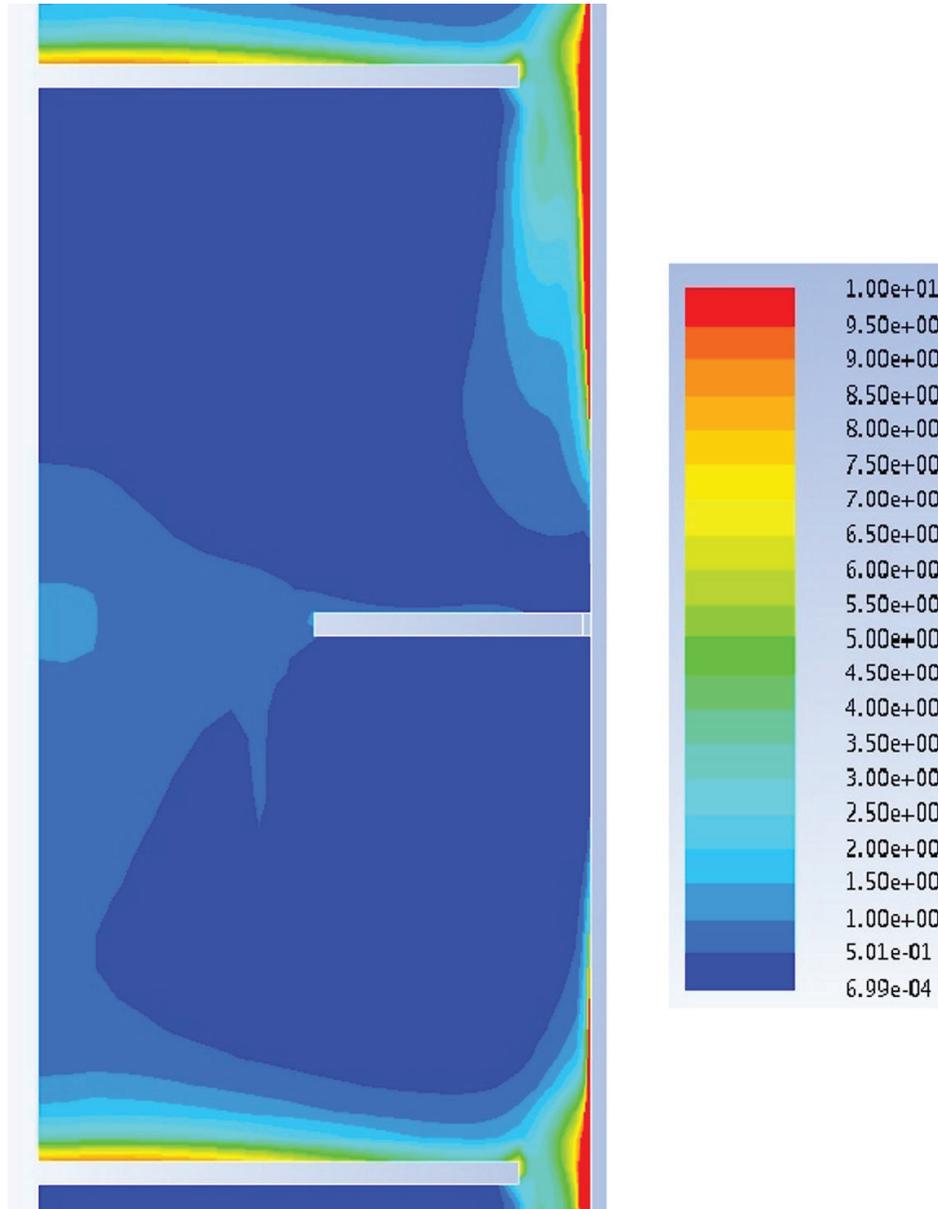


FIGURE 2.1 – Distribution de dissipation turbulente (unités en  $W/kg$ ) dans un compartiment de la colonne pulsée ( $A = 20mm$ ,  $f = 1Hz$ ) - simulée avec ANSYS-Fluent<sup>®</sup>.

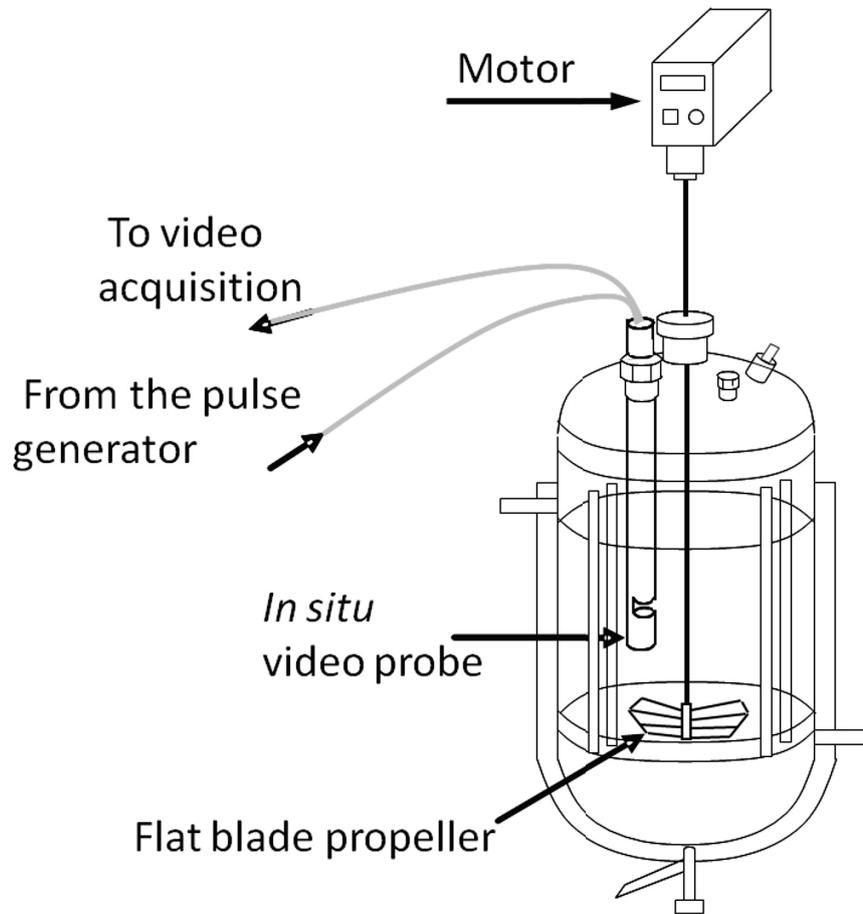


FIGURE 2.2 – Le RPA agité par une hélice Mixel TT. La sonde vidéo est positionnée au dessus de l'agitateur.

une convergence au niveau des statistiques). Les vidéos peuvent être plus longues dans le cas d'émulsions très diluées (généralement deux minutes). La résolution des images est de  $720 \times 480$  pixels. La taille des pixels est de  $2 \mu\text{m}$  ce qui permet de détecter des gouttes de  $8 \mu\text{m}$ .

La sonde vidéo est positionnée au dessus de l'agitateur dans la zone d'aspiration du mobile. Elle est inclinée d'un angle de  $30^\circ$  pour faciliter la circulation du fluide mis en mouvement par l'agitateur, et qui transporte les gouttes à travers l'entrefer de la sonde. Plusieurs positions radiales ont été testées, sans que cela n'ait d'influence sur les DTG mesurées. Le détail sera donné dans la partie consacrée à la validation de la sonde. La sonde est donc placée directement à quelques millimètres au dessus de l'agitateur.

---

TABLE 2.1 – Dimensions de l'hélice Mixel TT (par rapport au diamètre du RPA,  $T$ ).

	Dimension
Diamètre ( $D_a$ )	$3/5T$
Nombre de pales	3
Épaisseur de la pale	$D_a/50$
Angle entre deux pales	$120^\circ$
Nombre de puissance ( $N_p$ )	0,8

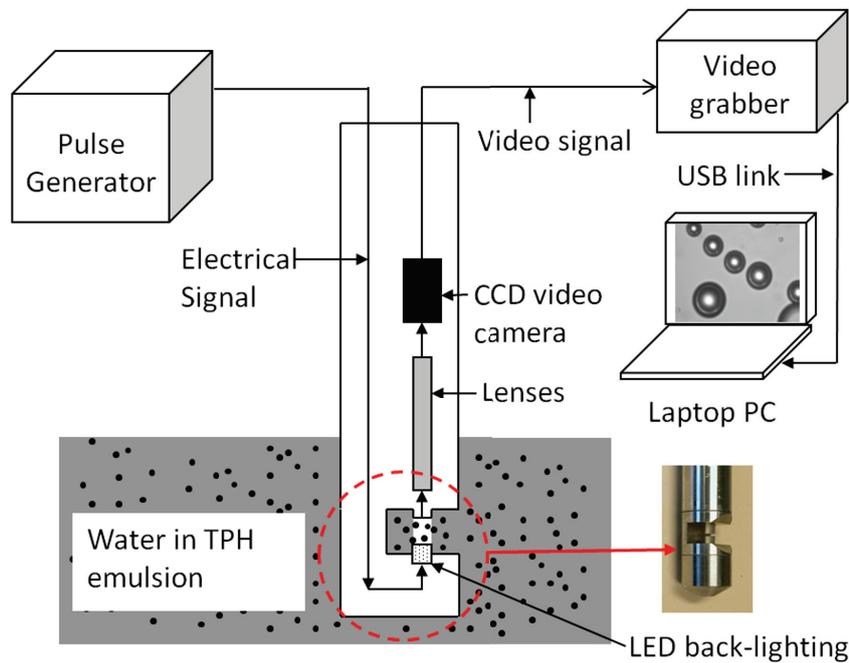


FIGURE 2.3 – Sonde vidéo in-situ utilisée pour la mesure des DTG.

### Traitement des images

Le traitement des images est effectué avec un algorithme reposant sur le principe de la transformée de Hough proposée par Illingworth & Kittler (1988). L'algorithme, mis en œuvre dans un logiciel développé par Peng *et al.* (2007), fonctionne en cinq étapes (Khalil, 2011) :

1. Adoucissement de l'image au moyen d'un filtre passe-bas : les points aberrants sont éliminés (ceux qui représentent une grande différence d'intensité avec les points voisins)
2. application d'une méthode de gradients pour détecter les contours des gouttes sur l'image adoucie : les pixels qui présentent un gradient faible sont considérés comme faisant partie du fond de l'image ou de l'intérieur de la goutte, et au contraire, ceux qui présentent un gradient élevé sont considérés comme faisant partie du contour de la goutte.
3. Binarisation de l'image adoucie par seuillage : les pixels ayant une valeur supérieure à un seuil sont conservés et leur valeur mise à l'unité. L'inverse est appliqué pour ceux dont la valeur est inférieure à ce même seuil (ils sont éliminés et leur valeur mise à zéro).
4. Application de la transformée de Hough pour détecter les centres des gouttes. Chaque point de l'image binarisée est analysé. Ainsi, chaque point vote pour l'ensemble des jeux de paramètres générant des disques auxquels il appartient. Les pixels ayant reçu le plus grand nombre de votes (scores) sont considérés comme étant les cercles des disques, qui sont de facto représentatifs des gouttes.
5. Les diamètres des gouttes sont enfin déterminés en appliquant une fonction qui sélectionne les meilleurs cercles en fonction de leur position et de leur intensité lumineuse.

Ces différentes étapes sont réalisées par des filtres et autres outils mathématiques qui font intervenir un certain nombre de paramètres réglables. Ces paramètres permettent de fixer les limites basses et hautes des diamètres des gouttes détectées, de régler le seuil du gradient d'intensité lumineuse à partir duquel les pixels sont conservés par la transformée de Hough. Il existe également un paramètre dont la fonction est de différencier deux cercles concentriques et qui permet notamment de choisir le cercle à prendre dans ce cas de figure. Ces différents paramètres sont fixés après plusieurs essais en observant les matrices calculées par le logiciel (matrice des gradients, matrice des scores...). Nous nous sommes également appuyés, en partie, sur les conclusions de Khalil (2011) qui a utilisé, dans le cadre de sa thèse au LAGEP, le même logiciel et la même sonde pour mesurer des DTG pour une application de cristallisation en émulsion. Cependant, des différences importantes existent entre le système étudié par cet auteur et le nôtre, notamment au niveau des tailles de gouttes, limitées dans son cas à  $90\mu\text{m}$  tandis qu'ils peuvent atteindre plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$  dans cette étude, nécessitant certains ajustements.

---

Les erreurs commises lors du traitement des images sont dues essentiellement à une fausse détection de gouttes réelles ou imaginaires. Le premier cas de figure peut se présenter sous forme d'erreur au niveau du diamètre estimé de la goutte, ou bien d'une mauvaise détection de gouttes concentriques. Le deuxième cas de figure est provoqué par la présence, bien que plus rare, de bulles ou encore d'impuretés (solides de taille très faible, cheveux...). Pour limiter ces dernières, l'eau utilisée comme phase dispersée est une eau distillée. Il nous a ainsi été possible d'estimer l'erreur commise et d'avoir une idée de sa répercussion sur les DTG mesurées. En accord avec les résultats de [Khalil \(2011\)](#), le taux d'erreur est limité, se situant en dessous de 5%.

La principale difficulté que nous avons rencontrée lors de la prise des images et de leur traitement est le collage des gouttes sur les hublots de la sonde, car ceux-ci, en verre, sont directement au contact de l'émulsion. Le fonctionnement de notre système de phase, eau dans l'huile, est particulièrement sensible à la mouillabilité, ce qui peut rendre la mesure inexploitable. Pour éliminer ce phénomène, les hublots ont été préalablement rendus hydrophobes par un procédé de silanisation qui consiste à venir greffer sur la surface du verre des groupes hydrophobes. Malgré ce pré-traitement, des gouttes parviennent, après une utilisation plus ou moins longue des hublots, à se coller à la surface. Dans ce cas, pour ne pas détecter ces gouttes rémanentes qui fausseraient les DTG, nous avons procédé à des calculs d'images moyennes, avec une fréquence adaptée. Sur ces images moyennes, qui ne sont autres que la somme de toutes les images divisée par leur nombre, seules les gouttes collées restent visibles puisque répétées sur l'ensemble des images. L'emplacement de ces gouttes est alors enregistré dans une matrice qui va contenir les coordonnées des pixels occupées par les gouttes fixes. Les images sont par la suite traitées en ayant remplacé ces endroits par la valeur de l'image de fond, ce qui résout automatiquement et très efficacement le problème. Il pourrait, dans le futur, être intéressant d'essayer de tester d'autres types de matériaux pour la fabrication des hublots pour éliminer d'une manière définitive ce problème de collage des gouttes, chose que nous n'avons pas eu le temps de faire dans le cadre de la thèse. Ceci contribuera à réduire le temps de post-traitement des images.

Nous avons également pris des précautions pour qu'une goutte ne soit pas détectée à plusieurs reprises. Pour cela, nous avons traité une image sur deux, ce qui laisse largement le temps à la goutte déjà détectée de sortir du champ de vision. Pour toutes les expériences, un nombre minimal de 1000 gouttes a été considéré, ce qui nous place confortablement au dessus des recommandations de la littérature ([Pacek \*et al.\* \(1994\)](#), [O'Rourke & MacLoughlin \(2005\)](#)) qui situe le nombre entre 500 et 1000 pour être statistiquement représentatif de la population qui se trouve réellement dans le réacteur.

Nous pouvons voir sur la figure [2.4](#) un exemple des images avant et après traitement.

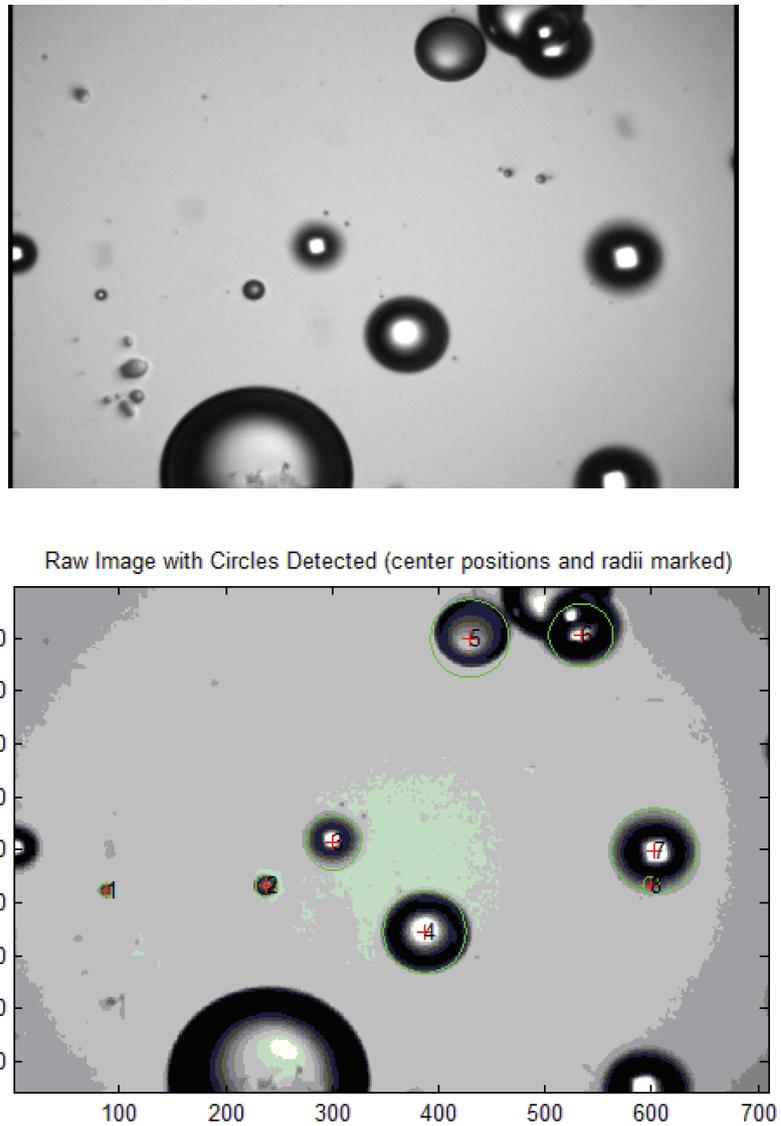


FIGURE 2.4 – Exemple d'image avant et après post-traitement. Les croix rouges correspondent aux centres des cercles, les contours verts sont les bords des gouttes analysées.

### 2.1.3 Étalonage et validation de la sonde vidéo

Cette étape de validation a pour but de répondre à deux questions que nous pouvons nous poser :

- La première est liée à la mise en suspension de l'émulsion dans le RPA. Il est en effet important de s'assurer que dans les conditions opératoires explorées, toutes les gouttes créées dans le réacteur sont bien mises en suspension. Dans le cas contraire, la DTG mesurée sera biaisée, ce qui fausserait l'identification des noyaux de rupture et de coalescence par la suite.
- La taille maximale des particules que nous pouvons mesurer constitue la deuxième question. Celle-ci est liée à la première, puisque ce sont logiquement les plus grosses gouttes qui sont les plus difficiles à mettre en suspension, mais elle est également liée à l'entrefer lui-même, dont la taille et la forme peuvent induire une ségrégation, par exclusion des gouttes elles-mêmes ou des filets fluides qui les transportent. Il est donc nécessaire de s'assurer que les grosses gouttes présentes dans le réacteur sont toutes détectées.

Pour répondre à ces deux questions, nous avons utilisé des populations connues de billes calibrées, que nous avons mesurées dans le RPA avec le système vidéo, en l'absence donc de phénomènes de rupture ou de coalescence.

Le système de phase étudié est une dispersion de gouttes d'eau dans le TPH, dont les propriétés physicochimiques sont données dans le tableau 1.6. Il a la particularité d'avoir un rapport élevé de densité et une tension de surface également importante.

Deux matériaux ont été choisis pour les billes calibrées en lien avec les propriétés du système de phase à simuler. Des billes de polystyrène tout d'abord, qui associées à l'isopropanol (IPA) pour la phase continue, permettent d'avoir un rapport de densité entre la phase dispersée et la phase continue identique à celui du système liquide-liquide étudié. L'IPA, de densité proche du TPH, a été choisi compte tenu de la non compatibilité chimique du polystyrène avec le TPH. Bien que l'ajustement de densité soit intéressant pour l'optimisation des paramètres de la sonde, l'utilisation de billes de verre, de densité significativement plus élevée que celle de l'eau, a également été considéré, afin d'étudier les phénomènes de ségrégation redoutés dans des conditions pénalisantes. En effet ces billes de forte densité permettent de séparer l'effet de la vitesse minimale de mise en suspension (dû à la masse) de celui de la taille de l'entrefer (lié à la taille). Nous avons ainsi constitué plusieurs distributions de billes de verre dans l'eau ou de billes de polystyrène dans l'IPA, dont la répartition repose sur des observations préalables de DTG mesurées :

- une première distribution de billes de verre, notée DTB-1, favorisant les billes de petites et moyennes tailles;
-

TABLE 2.2 – Rapports de masses volumiques des différents systèmes de phases.

Système de phase (phase dispersée / phase continue )	Rapport de masses volumiques
Eau / TPH	1,333
Polystyrène / Isopropanol	1,329
Verre / Eau	2,500

TABLE 2.3 – Constitution des distributions de billes de verre (répartition en nombre normée).

Billes de verre Diamètre ( $\mu m$ )	DTB-1 $N_i/N_{Total}$	DTB-2 $N_i/N_{Total}$
98±2,8	0,56	0,19
155,8±1,5	0,21	-
200,9±1,9	0,13	0,43
268,5±3,4	0,08	0,23
451,1±6	0,01	0,15

- une seconde, notée DTB-2, favorisant plutôt les grosses tailles
- enfin une distribution de billes de polystyrène, DTB-3.

Dans les trois cas, la masse de billes représente 1% de la masse totale du mélange. Les tableaux 2.3 et 2.4 illustrent la constitution de ces différentes distributions. Les répartitions sont données en nombre ( $N_i$  étant le nombre de billes dans la classe considérée et  $N_{Total}$  le nombre total des billes dans la distribution). Les diamètres et la précision sont données par le fournisseur. Elles ont été vérifiées par granulométrie laser et à l'aide d'un microscope optique couplé à une méthode d'analyse d'images (Touchard, 2013).

Les mesures réalisées avec les DTB ont été effectuées séparément en vidant après chaque essai le réacteur et en le nettoyant. Le protocole expérimental consiste à remplir le RPA avec la phase continue (eau ou IPA), puis avec la distribution de billes étudiée. Le moteur de l'agitateur, préalablement réglé à la vitesse souhaitée, est alors mis en route. Pour les premiers essais, des vidéos ont été enregistrées à différents instants (5, 10, 20, 30, 60, 120 minutes) après la mise en route du moteur. Ayant constaté que les DTB mesurées ne variaient pas avec le temps, nous nous sommes contentés par la suite de ne prendre qu'une seule mesure au bout de 30 minutes d'agitation. Les vidéos enregistrées sont ensuite traitées avec le logiciel décrit dans la section 2.1.2. Cette méthode permet d'étalonner à la fois le système de mesure mais également le traitement d'images.

TABLE 2.4 – *Constitution de la distribution des billes de polystyrène (répartition en nombre normée).*

Billes de polystyrène Diamètre ( $\mu\text{m}$ )	DTB-3 $N_i/N_{Total}$
98,7±1	0,22
147±2,8	0,13
196±3,8	0,34
266±4,2	0,22
430±8,7	0,09

### Reproductibilité des mesures de distribution de tailles de billes

Avant d'étudier l'effet des différents points discutés ci-avant, nous avons entrepris des essais de reproductibilité avec les mêmes conditions opératoires à quelques jours d'intervalle. La figure 2.5 illustre les résultats obtenus avec la DTB-1 pour une vitesse de rotation de 500 tr/min et une entrefer de 1,2 mm. Les essais conduits sont reproductibles à 6% (erreur relative), ce qui est très satisfaisant vu les sources d'erreur possibles que sont la difficile manipulation des billes, le traitement des images, etc. Nous n'avons fait que cet essai, puisque dans le cadre de la thèse de [Khalil \(2011\)](#) la reproductibilité a toujours été très satisfaisante.

### Vitesse minimale de mise en suspension

L'influence de la vitesse de rotation a été étudiée pour les différentes DTB. Les figures 2.6 et 2.7 illustrent les distributions mesurées pour les billes de verre (DTB-1 et DTB-2). La distribution initiale, qui correspond à celle qui devrait être retrouvée, apparaît en motif rayé rouge. Ces mesures sont réalisées avec un entrefer de 1,5 mm, avec la sonde positionnée à proximité de l'agitateur, donc loin de la paroi du réacteur.

Sur la figure 2.6 les résultats du diamètre 451  $\mu\text{m}$  sont difficilement exploitables vu la hauteur du pic. Nous pouvons constater que pour les vitesses de rotation de 400 et 500 tr/min, la DTB mesurée est différente de la distribution initiale. Cette dernière est retrouvée à partir d'une vitesse de 600 tr/min, avec des résultats similaires entre 600 et 700 tr/min, ce qui nous amène à conclure que la vitesse minimale de mise en suspension pour les billes inférieures à 451  $\mu\text{m}$  est de 600 tr/min. Nous pouvons remarquer que des écarts sont toujours présents, quelle que soit la vitesse de rotation, pour les billes de 155,8  $\mu\text{m}$ . En effet, pendant les mesures des DTB, nous avons pu remarquer que des billes flottaient au niveau de la surface de l'eau dans ce cas. Après analyse au microscope, nous avons pu déterminer que le diamètre de ces billes flottantes correspondait bien à celui manquant dans la DTB mesurée. Il s'avère, d'après le fournisseur des billes, que

---

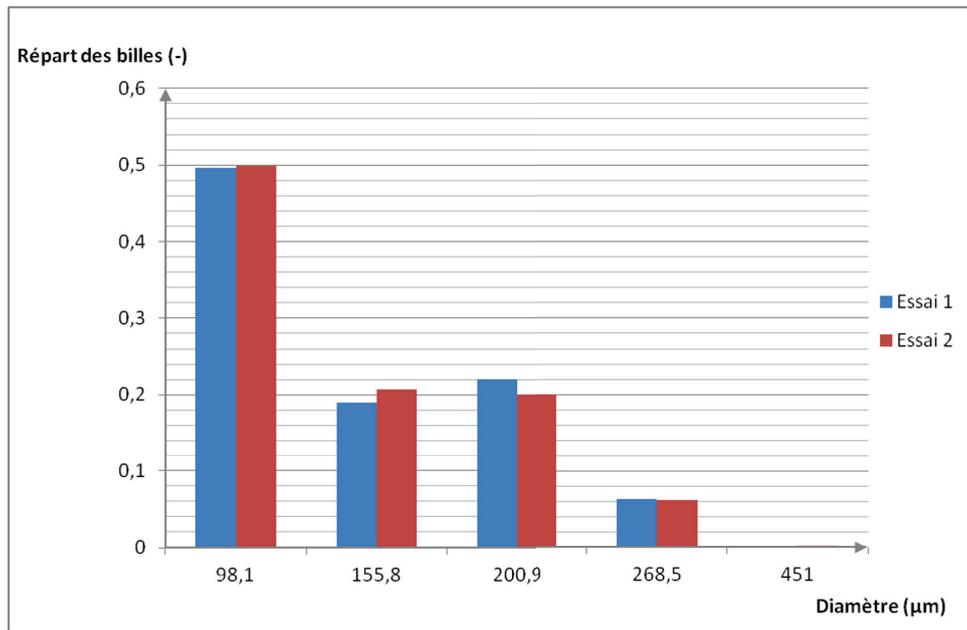


FIGURE 2.5 – Reproductibilité des mesures de distribution de tailles de billes (cas de la DTB-1).

TABLE 2.5 – Équivalence en diamètre entre les billes de polystyrène et les billes de verre.

Billes de verre $D_v$ (µm)	Diamètre de polystyrène équivalent $D_p$ (µm)
98,0	130,9
155,8	208,0
200,9	268,3
268,5	358,6
451,1	602,2

ce problème est bien fréquent et qu'il est dû à des forces électrostatiques. Malgré nos tentatives de remédier à ce problème, en prenant notamment une eau non-désionisée ou en utilisant des ultrasons, le problème a persisté. Par conséquent, cette classe de gouttes a été ignorée dans le dépouillement des mesures de la DTB-2 puisque l'objectif était de se focaliser sur les grosses billes.

En ce qui concerne la DTB-2 (fig. (2.7)), la vitesse de mise en suspension s'avère être de 700 tr/min, ce qui est cohérent avec le résultat trouvé pour la DTB-1. L'écart entre 700 et 800 tr/min reste dans la limite de reproductibilité des mesures (fig. (2.5)), soit inférieur à 6%. Il est intéressant, à ce stade, de considérer le diamètre des billes de polystyrène (ou des gouttes d'eau) de masse équivalente à celle des billes de verre non mises en suspension,

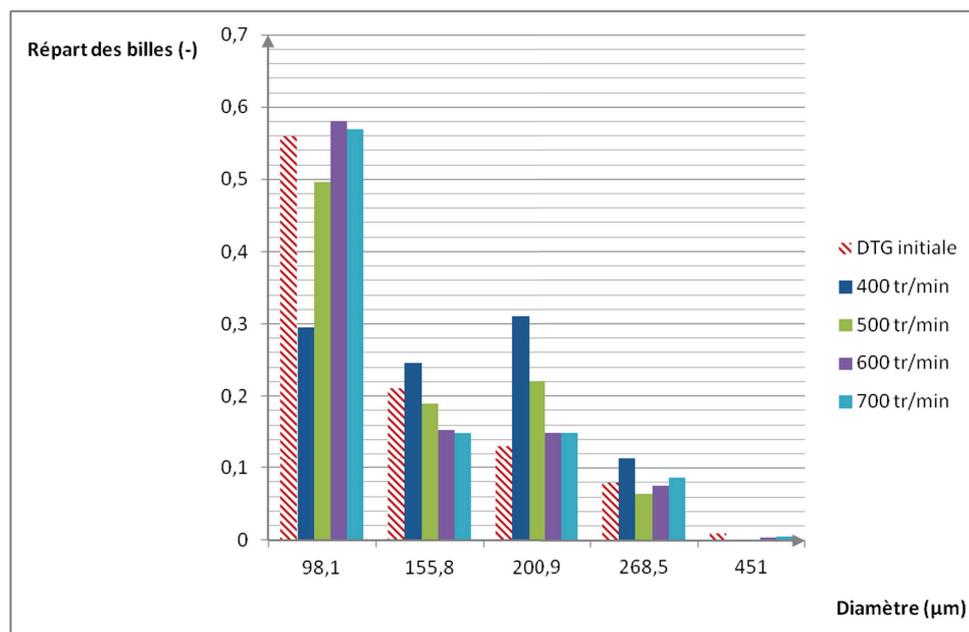


FIGURE 2.6 – Distribution de tailles de billes de verre, DTB-1, mesurée par la sonde en fonction de la vitesse de rotation (en tr/min).

calculé selon :

$$D_p = \left(\frac{\rho_v}{\rho_p}\right)^{1/3} D_v \quad (2.7)$$

et reporté dans le tableau 2.5. Les billes ou gouttes que nous ne parvenons pas à mettre en suspension en dessous de 700 tr/min seraient de diamètre supérieur à 602,2 μm. Nous verrons dans la partie consacrée à la mesure des DTG du système de phase eau/TPH que de tels diamètres ne sont pas présents dans nos distributions.

Il est à noter ici qu'il n'a pas été possible de travailler à des vitesses supérieures à 800 tr/min, pour des raisons de débordement du réacteur et d'entraînement de bulles d'air. Afin de minimiser l'effet de la présence de bulles dans le réacteur, une mise en route du moteur est effectuée avant chaque essai avec la seule phase continue présente. Ainsi, les bulles peuvent être visualisées, le cas échéant, sur les images enregistrées. La figure 2.8 illustre l'influence de la vitesse de rotation sur la distribution mesurée à partir de la DTB-3 (polystyrène dans l'IPA). Nous pouvons constater qu'à partir d'une vitesse de rotation de 400 tr/min nous retrouvons l'ensemble de la distribution initiale. Un écart résiduel subsiste pour les classes 266 et 430 μm, sans effet apparent de la vitesse. Concernant les billes de 430 μm, ce résultat est cohérent avec les seuils de mise en suspension observés sur les billes de verre. L'ajout d'une masse connue de billes de 266 μm à la DTB-3 ne modifie pas l'écart relatif entre la mesure et la distribution théorique, ce qui indique qu'une petite quantité de billes de cette classe a été perdue au fil des manipulations (tamisages, séchages, pesées). En réajustant la distribution initiale à la lumière de cette perte de masse, nous avons constaté une amélioration de la correspondance de l'ensemble des diamètres, qui étaient déjà dans la limite de reproductibilité des mesures. L'écart important observé

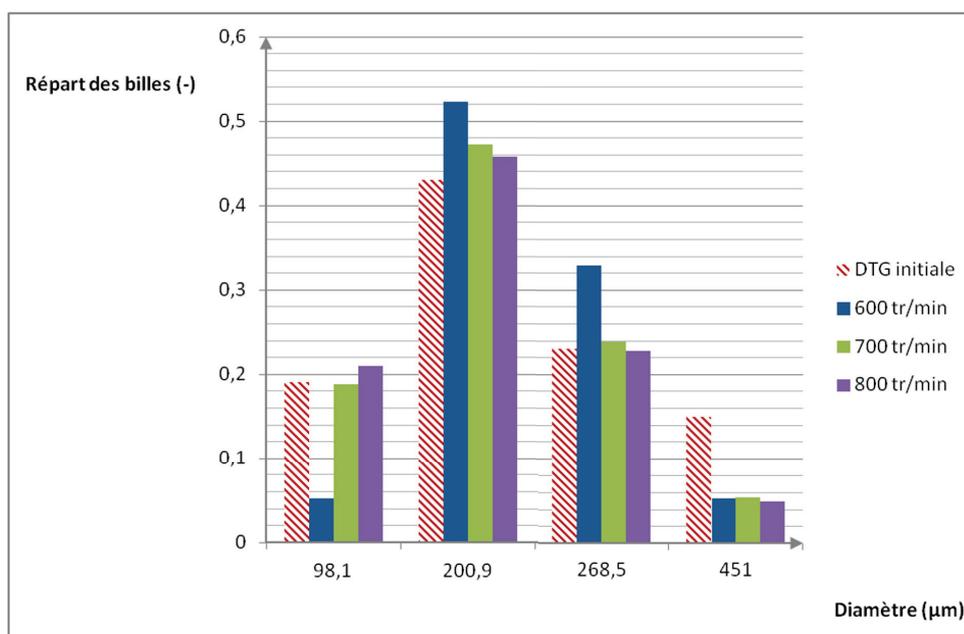


FIGURE 2.7 – Distribution de tailles de billes de verre, DTB-2, mesurée par la sonde en fonction de la vitesse de rotation (en tr/min).

pour les billes de 430 μm, laisse présager un problème d'exclusion lié à l'entrefer. La détection des billes de cette taille aurait du en effet évoluer avec la vitesse de rotation. L'influence de l'entrefer est discutée dans les sections 2.1.3 et 2.1.4. Il est possible de trouver dans la littérature différentes études consacrées à la vitesse minimale de mise en suspension de particules (solides ou liquides). Nous avons tenté de confronter nos résultats aux corrélations les plus connues. Les travaux pionniers de [Zwietering \(1958\)](#) ont donné naissance à une corrélation très utilisée dans la littérature pour la vitesse minimale de mise en suspension de particules ([Atiemo-Beng et al., 2004](#)). Cette corrélation est basée sur une analyse dimensionnelle et des exposants empiriques. La vitesse minimale de mise en suspension est donnée par l'expression suivante :

$$N_{ms} = S\nu^{0.1} \left[ \frac{g(\rho_d - \rho_c)}{\rho_c} \right]^{0.45} X^{0.13} d_p^{0.23} D^{-0.85} \quad (2.8)$$

avec  $\nu$  la viscosité cinématique de la phase continue ;  $g$  l'accélération de la gravité ;  $\rho_c$  et  $\rho_d$ , respectivement, les masses volumiques de la phase continue et celle de la phase dispersée ;  $X$  le rapport de la masse des particules suspendues à celle du liquide  $\times 100$  ;  $d_p$  le diamètre  $d_{43}$  des particules et  $D$  le diamètre de l'agitateur.  $S$  est un nombre adimensionnel qui dépend du type du mobile d'agitation mais également du rapport  $D/T$  et  $C/T$  ( $C$  étant la distance qui sépare le mobile du fond du réacteur). La difficulté principale de l'utilisation de cette corrélation est le choix de ce paramètre. Il existe des tableaux qui donnent des valeurs de  $S$  recommandées pour différents types de mobile, selon leur positionnement par rapport au fond de la cuve, et par exemple pour les turbines à pales inclinées. Cependant, il n'existe pas, à notre connaissance, de telles données pour le mobile que nous utilisons dans notre étude. [Mak \(1992\)](#) donne un tableau où nous pouvons voir que cette constante

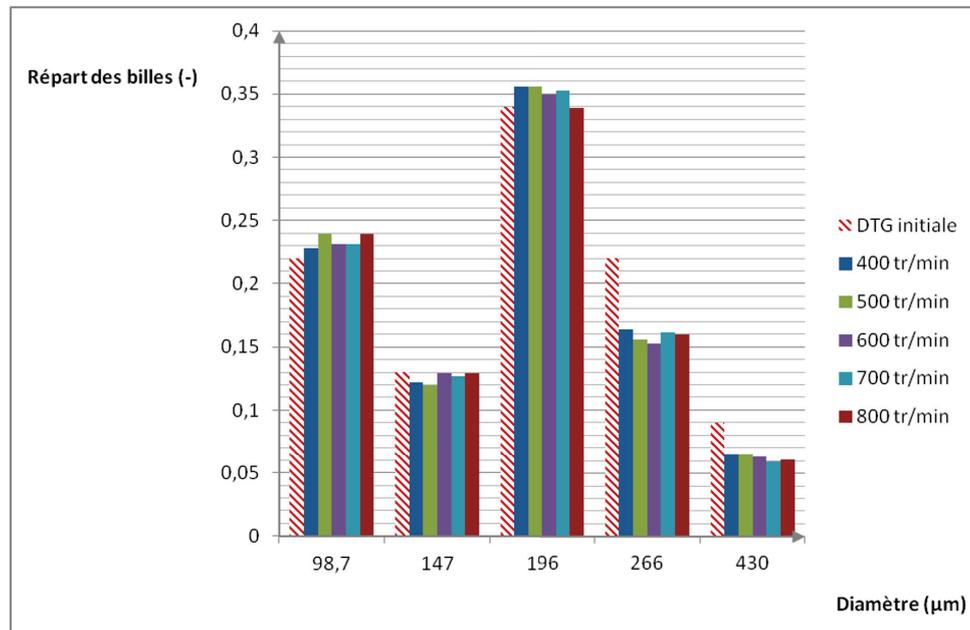


FIGURE 2.8 – Distribution de taille de billes de polystyrène, DTB-3, mesurée par la sonde en fonction de la vitesse de rotation (en tr/min) (entrefer=1,5mm).

varie entre  $S = 3,4$  pour une turbine à pales inclinées de  $45^\circ$  et  $S = 7$  pour une hélice Lightnin A-310. Cette variation du simple au double va se répercuter sur la vitesse de mise en suspension avec le même facteur. Malgré cela, nous avons utilisé la relation (2.8) pour estimer le seuil de mise en suspension de nos particules de polystyrène, en considérant les deux limites données par l’auteur. Le tableau 2.6 regroupe les résultats obtenus pour  $S = 3,4$ . Nous pouvons constater que les valeurs obtenues ici sont assez proches de celles que nous trouvons expérimentalement. En assimilant le mobile à une autre turbine A-310, vue la nature axiale de l’écoulement, la vitesse de mise en suspension donnée par la corrélation serait 2 fois plus élevée, et en désaccord avec les observations expérimentales sur les billes de verre. De plus, la valeur de  $S = 3,4$  caractéristique de cette turbine à pales inclinées est donnée pour un rapport  $C = T/8$ , ce qui est loin de notre configuration (où  $C = T/3$ ).

La relative imprécision sur les paramètres de cette corrélation, dont les limites ont par ailleurs déjà été pointées, notamment pour des taux de rétention inférieur à 2%, ou supérieur à 15% ou encore pour des valeurs élevées du rapport  $d_p/T$  (Choudhury (1997) cité par Atiemo-Beng *et al.* (2004)), a conforté cette étape d’étalonnage préliminaire avec des billes calibrées.

### Influence de la taille l’entrefer

L’influence de la taille de l’entrefer, qui est l’espace offert au passage des billes (ou des gouttes), est étudié pour déterminer les conditions optimales pour la mesure des DTG par

TABLE 2.6 – Vitesses minimales de mise en suspension estimées par la corrélation de [Zwietering \(1958\)](#).

Billes de polystyrène Diamètre ( $\mu$ m)	Vitesse minimale de mise en suspension ( $S = 3, 4$ ) (tr/min)
98	330
147	358
196	379
266	403
430	443

la suite. L’entrefer de la sonde est théoriquement réglable de quelques centaines de microns à quelques millimètres. Cependant, les problèmes de mise au point des optiques pour capter toute la distribution réduisent cette distance. Les essais que nous avons effectués ont montré qu’on ne pouvait pas aller au-delà de 1,5 mm d’entrefer au risque de ”flouter” les petites gouttes, ce qui les rendraient non détectables, ou détectables avec de faux diamètres. Nous avons étudié trois tailles d’entrefer : 0,9 ; 1,2 et 1,5 mm. En comparaison à l’étude de [Khalil \(2011\)](#), qui a utilisé un entrefer de 0,9 mm puisque ces gouttes les plus grosses sont de l’ordre de 100  $\mu$ m, nous sommes contraints de chercher la taille d’entrefer la plus adaptée pour nos mesures.

Le haut de la figure 2.9 illustre une comparaison d’une mesure de la DTB-2 à différentes tailles d’entrefer à une vitesse de rotation de 800 tr/min. Une taille d’entrefer minimum de 1,2 mm semble nécessaire pour se rapprocher au mieux de la distribution initiale avec, comme précédemment évoqué, un écart important pour les plus grosses particules, probablement dû à un défaut de mise en suspension des billes. Pour l’entrefer 0,9 mm, nous pouvons avoir l’impression que les petites billes ne sont pas correctement détectées, cependant, il faut garder en tête que c’est toute la distribution qui est fautive car un pic mal détecté a forcément une influence sur les autres puisque les distributions sont normées. Le même résultat est observé pour la distribution de billes de polystyrène (fig. (2.9) en bas). Les conclusions des essais menés avec les billes de verre sont similaires. Ces différents résultats sur la taille de l’entrefer seront complétés par la confrontation que nous avons faites des DTB et DTG mesurées par la sonde à une autre technique de mesure que ne développerons dans la section 2.1.4.

### Influence de la position de la sonde

Le dernier paramètre susceptible d’influencer les mesures est la position de la sonde. En effet, en fonction de la qualité du mélange et de la configuration de l’écoulement, nous pouvons avoir un effet si la sonde est, par exemple, positionnée dans une zone centrale de recirculation ou carrément dans une zone morte. Pour lever ces doutes, nous avons étudié

---

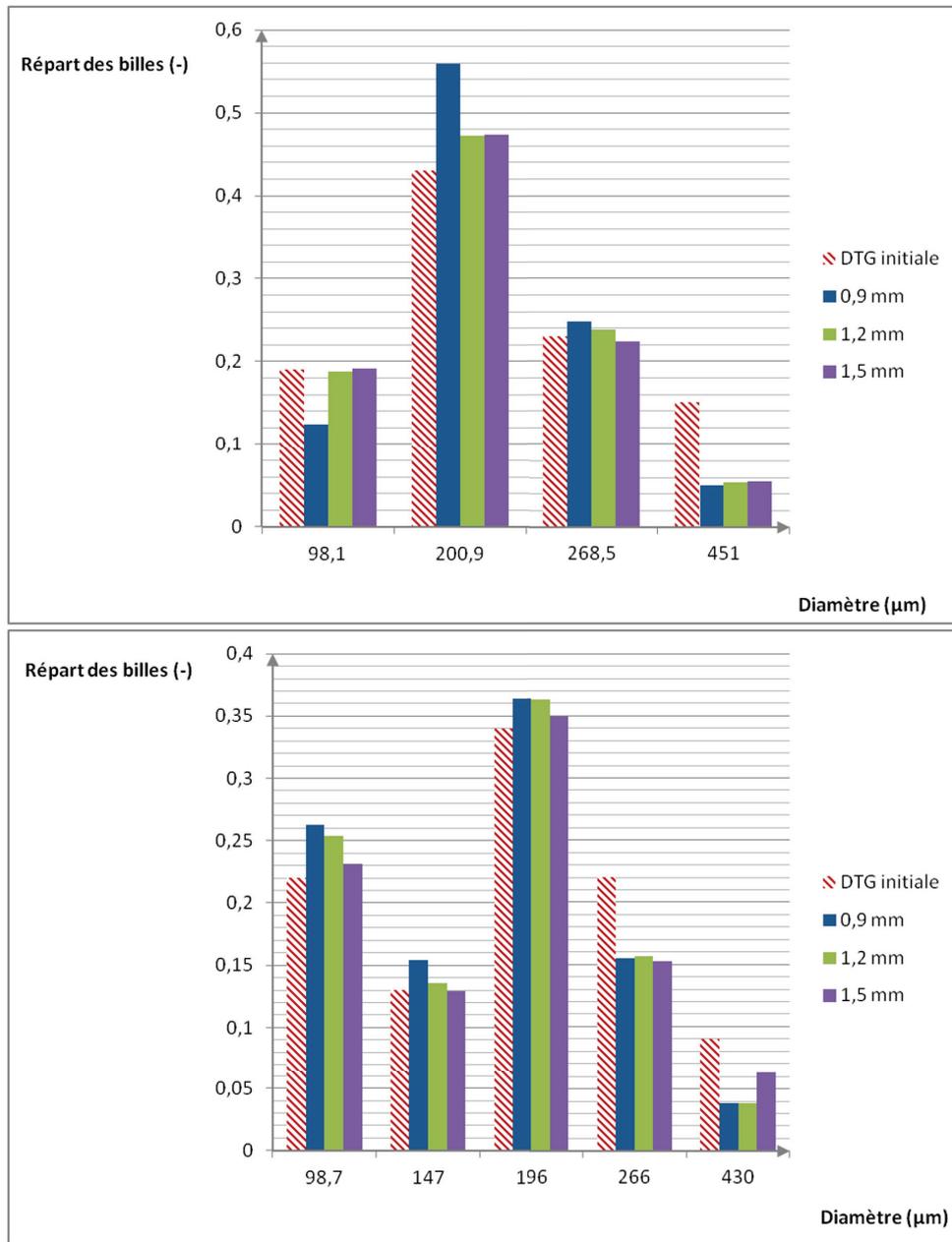


FIGURE 2.9 – Distributions de taille de billes mesurées par la sonde en fonction de la taille de l'entrefer ( $\omega = 800 \text{ tr/min}$ ). En haut : billes de verre, DTB-2; en bas : billes de polystyrène, DTB-3

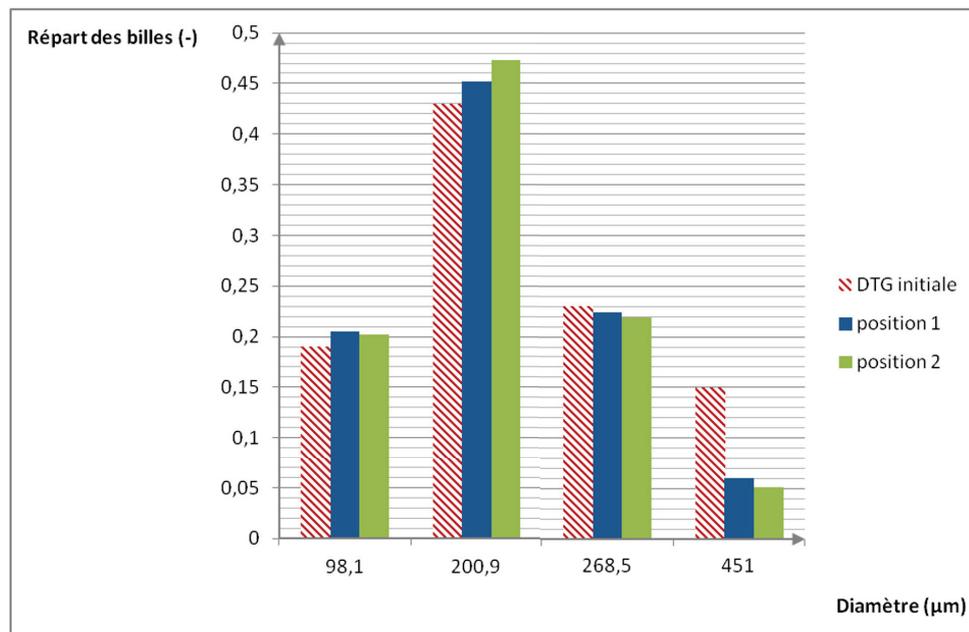


FIGURE 2.10 – Distribution de tailles de billes de verre, DTB-2, mesurée par la sonde en fonction de la position de la sonde ( $\omega = 800 \text{ tr/min}$ ).

deux positions de la sonde : une position proche de l’agitateur, que nous avons nommé *position – 1*, et une position proche de la paroi du réacteur, que nous avons nommé *position – 2*.

La position de la sonde a très peu d’effet, comme nous pouvons le voir sur la figure 2.10, sur la distribution mesurée. Cette figure est un exemple de ce que nous avons pu constater sur d’autres essais. Positionner la sonde au dessus du bout des pales de l’agitateur semble améliorer légèrement la qualité des distributions mesurées. Ceci peut s’expliquer pour le mouvement du fluide descendant aspiré par l’agitateur à cet endroit. Cependant, la différence entre les deux positions reste dans la limite de reproductibilité des mesures.

## Conclusion

Nous pouvons conclure que les conditions optimales de mesure des DTG d’eau dans le TPH sont une vitesse minimale de rotation égale ou supérieure à 400 tr/min, ce qui se traduit par une bonne mise en suspension de l’ensemble des tailles de gouttes observées. L’entrefer doit être au minimum égal à 1,2 mm, avec une préférence pour l’entrefer de 1,5 mm pour améliorer la détection des grosses gouttes. Quant à la position de la sonde, peu d’influence est observée. La position au dessus du bout des pales de l’agitateur (*position – 1*) est conservée pour la suite de l’étude.

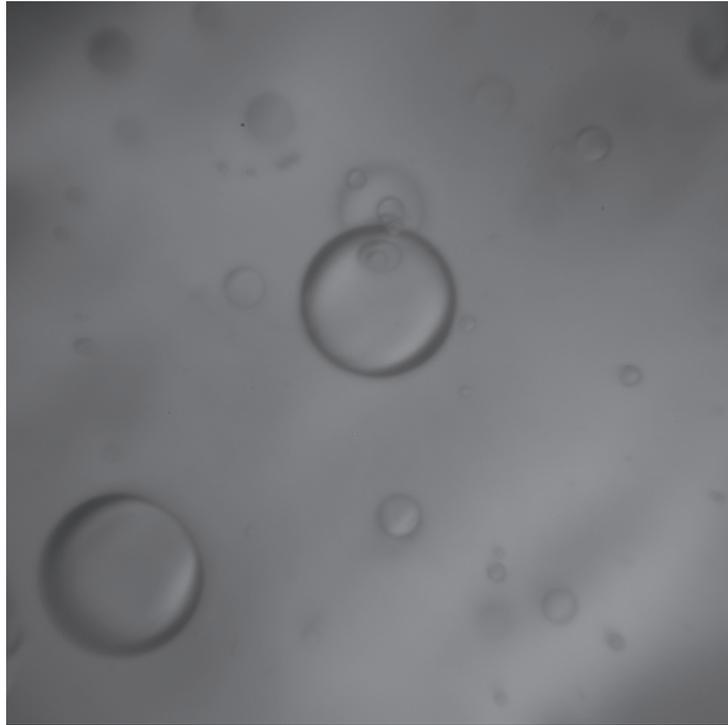


FIGURE 2.11 – Exemple des images prises par la sonde développée par la société SOPAT GmbH.

#### 2.1.4 Validation de la détection des plus grosses gouttes

Soucieux de la détection des plus grosses gouttes, nous avons utilisé une technique de mesure vidéo développée récemment et commercialisée par la société SOPAT GmbH. Elle est basée sur la réflexion de la lumière incidente a contrario de la première sonde vidéo basée sur la transmission de la lumière incidente. Ainsi, une différence d'indice de réfraction des phases mises en contact permet à la lumière acheminée dans le réacteur d'être réfléchi par les gouttes (Maass *et al.*, 2011). Le principe de la sonde est semblable à celui de la sonde développée au LAGEP. La différence se situe au niveau de l'éclairage qui peut être réalisé par transmission ou par réflexion. Dans le cas de la sonde SOPAT GmbH, la lumière ne nécessite pas forcément d'être placée en face de la caméra déportée, ce qui permet d'éviter d'éventuels problèmes pouvant être provoqués par une taille restreinte d'entrefer. Dans le cas de présence d'entrefer, celui-ci peut être d'une grande taille ( $> 5\text{mm}$ ) sans que cela n'ait d'incidence sur la qualité des images collectées. C'est cet avantage qui a essentiellement motivé l'emploi de cette technique de mesure, à titre de comparaison avec notre sonde vidéo ombroscopique.

La différence au niveau des images prises par les deux sondes est illustrée sur les figures 2.4 et 2.11. Dans le cas de la sonde LAGEP, la goutte est un disque noir sur fond clair tandis que dans le cas de la sonde SOPAT seul le contour de l'image est différencié du reste, avec l'intérieur et l'extérieur de la goutte en fond clair. C'est ce contour qui est recherché par le logiciel de traitement d'images.

---

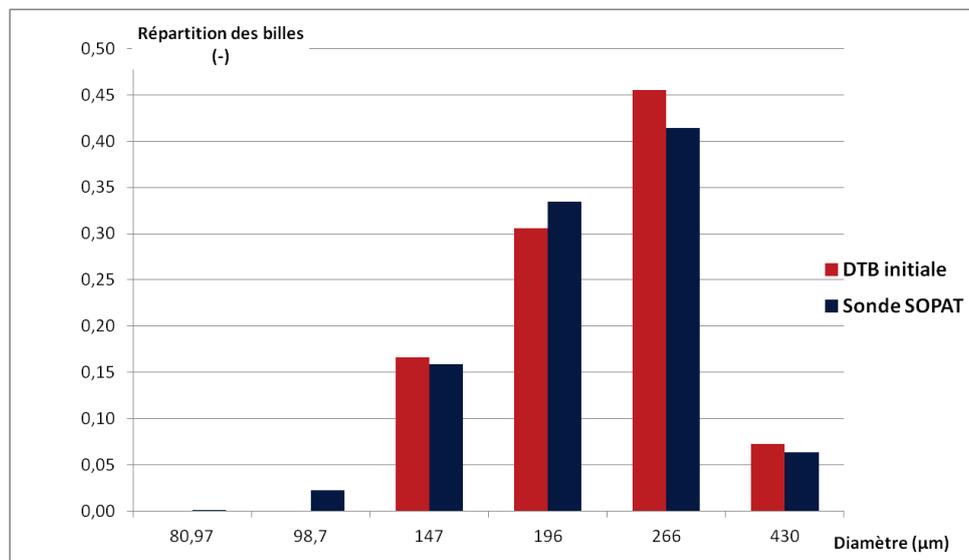


FIGURE 2.12 – Mesure d’une distribution de tailles de billes calibrées par la sonde SOPAT.

Comme précédemment, nous avons dans un premier temps mesuré une distribution de billes calibrées (fig. (2.12)). Un très bon accord entre la mesure et la DTB initiale a été observé, l’erreur relative maximale étant d’environ 7%. Nous pouvons remarquer que les grosses billes sont correctement détectées par la sonde, avec une erreur relative de 8,5%. L’absence d’entrefer améliore donc considérablement la détection des grosses billes. Nous pouvons également remarquer que la sonde SOPAT détecte des billes de diamètre 98,7  $\mu\text{m}$  qui n’appartiennent pas, en théorie, à la DTB initiale. Une fois encore, il s’agit d’un problème de pollution de la population de billes lors du processus de tamisage, par un résidu de billes provenant d’un autre lot. Il est intéressant de noter que, par conséquent, l’erreur relative est certainement inférieure à 7%, puisque la distribution est en nombre normée. Quoiqu’il en soit, l’accord reste très satisfaisant même avec la présence de ce pic.

La figure 2.13 présente une comparaison d’une mesure de DTG d’eau dans le TPH avec les deux sondes à une vitesse de rotation de 600 tr/min. La distribution de gouttes évoluant dans le temps à cause des phénomènes de rupture et coalescence, nous avons pris des mesures à différents instants et avons présenté sur la figure trois instants : 20, 60 et 120 minutes. Nous pouvons constater que les DTG mesurées par les deux sondes sont parfaitement superposables. L’écart relatif maximal au niveau des pics est d’environ 9,3%, ce qui est assez proche de la reproductibilité observée avec la sonde ombroscopique (6%).

Enfin, il est intéressant de remarquer que la sonde SOPAT ne détecte aucune goutte de diamètre supérieur à 300  $\mu\text{m}$ , et ce y compris lors des premiers instants d’agitation. Nous pouvons donc affirmer que les DTG obtenues par la sonde LAGEP sont représentatives de ce qui se passe réellement dans le réacteur. La sonde LAGEP est utilisée par la suite pour mesurer les DTG d’eau dans le TPH qui ont servi à l’identification des noyaux de

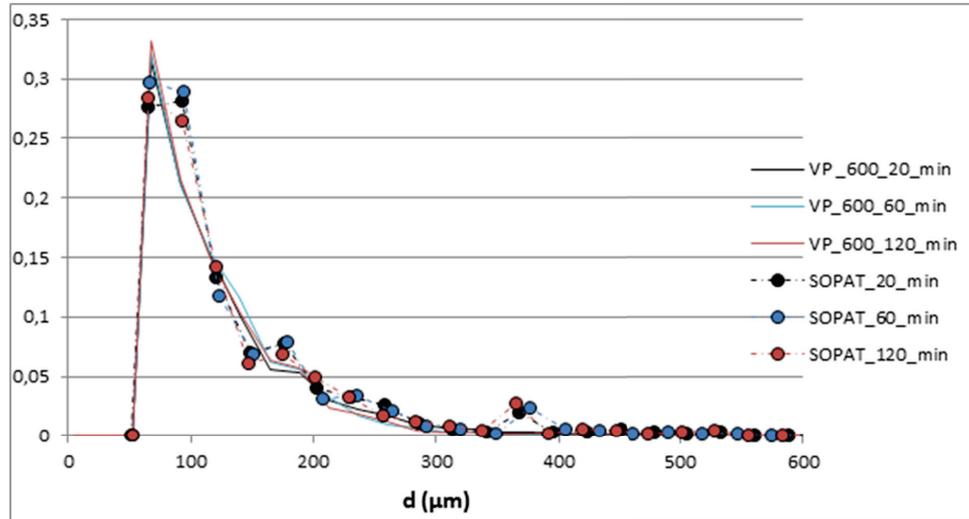


FIGURE 2.13 – Comparaison d’une mesure de DTG d’eau dans le TPH par les deux sondes ( $\omega = 600 \text{ tr/min}$ ).

rupture et coalescence.

### 2.1.5 Conditions opératoires et protocole expérimental

Les conditions opératoires étudiées sont regroupées dans le tableau 2.9. La dissipation turbulente moyenne dans le RPA est calculée par la formule suivante :

$$\varepsilon = \frac{N_p \rho_c N^3 D^5}{m_T} \quad (2.9)$$

avec  $N_p$  le nombre de puissance de l’agitateur,  $D$  son diamètre,  $N$  la vitesse de rotation (en  $\text{tr/s}$ ) et  $m_T$  la masse totale de l’émulsion. On notera que les valeurs de la dissipation turbulente moyenne sont les mêmes indépendamment de  $\phi$ . Avant chaque essai, afin de s’assurer de l’absence de bulles ou d’impuretés dans le réacteur, le moteur entraînant l’agitateur est mis en route avec la seule phase continue présente dans le RPA et une première série de vidéos est enregistrée afin de détecter d’éventuelles impuretés ou bulles. Le moteur est ensuite réglé à la vitesse de rotation souhaitée puis stoppé. La phase dispersée, préalablement pesée pour atteindre la fraction massique recherchée, est injectée dans le réacteur. Le moteur est remis en route et la vitesse de rotation vérifiée. Cet instant est considéré comme le temps du début de l’essai. Des vidéos sont prises à des instants fixés, avec une fréquence plus élevée pour les premiers instants, où la dynamique est rapide. Il n’a pas été nécessaire, pour les vitesses de rotation étudiées, de monter à une vitesse de rotation supérieure puis redescendre à la vitesse voulue puisque la mise en suspension de l’émulsion se fait correctement comme on a pu le voir précédemment.

TABLE 2.7 – Conditions opératoires pour la mesure des DTG dans le RPA.

Fraction massique de phase dispersée ( % )	Vitesse de rotation ( tr/min )	Dissipation turbulente ( W/kg )
1	500	0,46
	600	0,84
	700	1,35
5	500	0,46
	600	0,84
	700	1,35
10	500	0,46
	600	0,84
	700	1,35

## 2.2 Modèles et méthodes numériques

La présente section est consacrée à la description du modèle numérique développé en vue du couplage avec la CFD. Comme précédemment évoqué, ce modèle est développé en configuration 0D afin d'identifier les noyaux de rupture et de coalescence.

Les modèles de rupture et de coalescence sont abondants dans la littérature, même s'ils ont généralement été développés ou appliqués pour des applications en gaz-liquide. Seuls les modèles jugés intéressants pour notre application seront décrits. La résolution de la PBE nécessite également le choix d'une méthode de résolution. Là aussi, il existe un nombre important de méthodes, que nous ne pourrions pas décrire dans cette partie, mais dont nous nous contenterons également de donner un aperçu. Nous détaillerons en revanche celle choisie dans notre cas. Enfin, un aperçu de la procédure d'identification des noyaux de rupture et de coalescence sera donné.

### 2.2.1 Choix de méthode de résolution de la PBE

Les méthodes de résolution de la PBE peuvent se diviser en trois grandes familles : les méthodes Monte Carlo, les méthodes de classes et les méthodes des moments.

Les méthodes Monte Carlo sont des méthodes probabilistes qui utilisent un échantillon d'une population de particules et suivent l'évolution de cet échantillon sous l'action de rupture ou coalescence avec des probabilités proportionnelles à l'intensité de ces phénomènes (Lee & Matsoukas, 2000). L'avantage de cette méthode est la non nécessité de recourir à une discrétisation qui par ailleurs est évolutive en fonction de l'état du système (Smith & Matsoukas, 1997). Cette méthode offre également l'avantage d'être très précise et est

parfois utilisée comme méthode de référence, qui sert en quelque sorte comme un cas test pour comparer d'autres méthode. Ainsi, [Marchisio \*et al.\* \(2003a\)](#) ont utilisé la méthode de Monte-Carlo, en complément de solutions analytiques obtenues sur des cas tests simples, pour discuter la validité de la méthode des moments qu'ils ont développée. Le principal inconvénient de ces méthodes probabilistes est leur durée de calcul exorbitante.

Les méthodes de classes se basent sur une discrétisation de la population de particules en un nombre déterminé de classes. L'évolution de la population est ensuite calculée par l'action des phénomènes de rupture et coalescence sur l'ensemble de ces classes jusqu'à atteindre un équilibre. Les méthodes de classes sont nombreuses et peuvent différer suivant la manière dont la population est discrétisée. On peut citer quelques exemples, comme la méthode dite Fixed Pivot ([Kumar & Ramkrishna, 1996](#)), qui redistribue les particules naissantes vers les noeuds adjacents de façon à conserver la bilan de matière, ou encore la Cell Average ([Kumar \*et al.\*, 2006](#)), qui est une variante de la première avec une redistribution de la moyenne de toutes les nouvelles gouttes naissantes dans une classe, plutôt que de la faire individuellement pour chaque particule. Cela améliore ainsi la conservation de la masse et corrige le défaut de la première qui était une surestimation de la densité de probabilité. D'autres méthodes diffèrent par la manière même dont l'équation de bilan de population est déterminée. On peut citer la méthode des volumes finis que nous détaillerons par la suite. L'avantage des méthodes de classes est de pouvoir calculer directement la distribution. Cependant, leur précision dépend de plusieurs facteurs que sont la formulation de la PBE, le choix de la discrétisation mais surtout le nombre de classes. Elles peuvent par conséquent se révéler très coûteuses en temps de calcul ce qui rend leur couplage à la CFD difficilement envisageable, ce que nous verrons par la suite.

Les méthodes des moments sont une alternative à ces deux premières familles. Ces méthodes se basent sur un suivi des moments de la distribution, plutôt que de suivre la distribution elle-même. La précision de ces méthodes se traduit par leur conservation des deux premiers moments de la distribution, qui représentent physiquement le nombre total de particules et leur diamètre total (ou leur volume total si la variable interne considérée est le volume). Il en existe plusieurs variantes. Ainsi, les méthodes classiques des moments calculent directement les moments de la distribution. Ces méthodes ont été vite remplacées par des méthodes calculant les moments par des approximations quadratiques. En effet, les premières sont pénalisées par leur incapacité d'intégrer tous les noyaux de rupture et de coalescence à cause de problèmes de fermeture des équations de transport des moments, notamment ceux qui dépendent de la variable interne. Le développement des méthodes approximant les moments de la distribution par quadrature permet de contourner ce problème. Ces méthodes nombreuses peuvent être classées essentiellement en fonction de la manière dont les moments sont approximés. Ainsi, on peut trouver la méthode QMOM, introduite par [Marchisio \*et al.\* \(2003b\)](#), qui approxime les moments de la distribution par le biais de poids et d'abscisses. Ces derniers, déterminés par un problème inverse sur les premiers moments, permettent ensuite de construire par l'approximation quadratique l'ensemble des moments. La méthode DQMOM ([Marchisio & Fox, 2005](#)) diffère de la QMOM par le fait que pour celle-ci, ce sont les poids et abscisses qui sont suivis par des équations de transport et non pas les moments. Il en existe d'autres que nous n'aborderons

---

pas ici.

Comme on peut s'en douter, l'avantage principal des méthodes des moments est leur faible coût de calcul qui les rend particulièrement utilisées pour le couplage avec la CFD. C'est d'ailleurs la méthode QMOM qui sera utilisée dans notre étude. Cependant, avec ces méthodes, il n'est possible d'accéder qu'aux moments de la DTG. S'il est nécessaire de connaître toute la distribution, un algorithme de reconstruction devra être utilisé, mais ces outils mathématiques peuvent se révéler inexacts dans certains cas particuliers (population multimodale par exemple).

### La méthode des volumes finis (FV)

La méthode des volumes finis (ou Finite Volumes Method, FV) a été introduite par [Filbert & Laurencot \(2004\)](#) pour résoudre des problèmes présentant la coalescence seule. Elle a été étendue par [Kumar \*et al.\* \(2009\)](#) pour la résolution de problèmes présentant aussi bien la rupture que la coalescence. La méthode consiste en la division de la distribution,  $n(x, t)$ , en un certain nombre de classes,  $\Lambda_i = [x_{i-1/2} + x_{i+1/2}]$ . L'originalité de cette méthode est d'utiliser les flux entre les différentes classes de la distribution dans le but de conserver la masse totale, ce qui rend la méthode intrinsèquement conservative. La forme de la distribution en masse,  $g(x, t) = xn(x, t)$ , est donnée par :

$$\frac{\partial g(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \int_0^x \int_{x-u}^{x_{max}} ua(u, t)n(u, t)n(v, t) dudv \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left( \int_0^\infty \int_0^x ub(v) \beta(u | v) n(v, t) dudv \right) \quad (2.10)$$

L'évolution de la distribution en masse peut être décrite en termes de flux à travers les frontières d'une classe (ou cellule). Ainsi, pour une cellule  $i$  à l'instant  $t$ , elle est exprimée comme suit :

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{(J_{i+1/2}^C + J_{i+1/2}^B - J_{i-1/2}^C - J_{i-1/2}^B)}{(x_{i+1/2} - x_{i-1/2})} \quad (2.11)$$

avec les flux donnés par :

$$J_{i+1/2}^C = \sum_{k=1}^i \left( \sum_{j=\alpha_{i,k}}^I \int_{\Lambda_j} \frac{a(u, x_k)}{u} dug_i + \int_{x_{i+1/2}-x_k}^{x_{\alpha_{i,k}-1/2}} \frac{a(u, x_k)}{u} dug_{\alpha_{i,k}-1} \right) \quad (2.12)$$

$$J_{i+1/2}^B = - \sum_{k=i+1}^I g_k \int_i \frac{b(v)}{v} dv \int_0^{x_{i+1/2}} u\beta(u, x_k) du \quad (2.13)$$

avec  $\alpha_{i,k}$  est l'indice de chaque cellule, tel que  $x_{i+1/2} - x_k \in \Lambda_{\alpha_{i,k}-1}$ . Nous pouvons remarquer que le terme advectif,  $\nabla \cdot [\vec{u}n(x, t)]$ , dans l'équation (2.1) n'est pas pris en compte dans cette partie car le réacteur est supposé 0D, donc homogène.

Le choix de cette méthode numérique pour identifier les noyaux de rupture et de coalescence est motivé par son caractère conservatif. [Becker \*et al.\* \(2011\)](#) ont testé différents modèles de rupture et différentes méthodes de résolution de la PBE pour un système

---

liquide-liquide, qu'ils ont comparé à des DTG mesurées dans un RPA. Ils ont notamment considéré les méthodes FV, Cell Average et Fixed Pivot. Ils ont pu conclure que la méthode FV obtenait les meilleurs résultats justement grâce à sa très bonne conservation de la masse.

Le temps de calcul est de quelques secondes dans le cadre de notre modélisation 0D, ce qui est tout à fait acceptable. Cette méthode ne serait en revanche pas applicable pour un couplage avec la CFD, puisqu'il s'agit d'une méthode de classes qui devient vite très coûteuse lorsque les inhomogénéités spatiales sont prises en compte. L'opération d'identification a été réalisée sous Matlab<sup>®</sup>.

### 2.2.2 Choix des modèles de rupture

Historiquement, les colonnes à bulles étaient parmi les premiers appareils modélisés par la PBE, ce qui peut expliquer l'abondance des noyaux de rupture pour les applications gaz-liquide. Lorsqu'il s'agit de système liquide-liquide, les noyaux de rupture deviennent moins nombreux et non universels.

Dans cette étude, le choix des noyaux de rupture est basé sur trois critères : *(i)* l'applicabilité du modèle aux systèmes liquide-liquide, *(ii)* le domaine d'applicabilité du noyau, notamment en ce qui concerne les diamètres des gouttes pour lesquels il a été développé, *(iii)* le mécanisme responsable de la rupture des gouttes. En ce qui concerne le mécanisme de rupture, étant dans notre cas dans un écoulement localement turbulent, la rupture est essentiellement due à la turbulence, à travers des fluctuations de pression au niveau de l'interface ou bien par collision des gouttes avec les tourbillons.

Il existe dans la littérature beaucoup de modèles de rupture. Certains articles sont consacrés à passer en revue ces différents modèles et à aiguiller le chercheur dans son choix (Lasheras *et al.*, 2002; Liao & Lucas, 2009). Nous nous sommes concentrés sur les travaux, plus récents, de Liao & Lucas (2009) qui ont publié une revue des modèles de rupture pour les gouttes et bulles. Dans le cas d'une rupture par les fluctuations ou collisions turbulentes, ils ont classé les mécanismes responsables en quatre catégories.

- La première serait liée à une énergie cinétique turbulente de la goutte supérieure à une valeur critique. L'idée est que la goutte subissant une collision avec un tourbillon se met à osciller et casse si l'énergie cinétique apportée par cette collision est supérieure à l'énergie de surface qui tend à la ramener vers l'équilibre.
  - La deuxième catégorie serait provoquée par une présence, autour de la goutte, de fluctuations turbulentes plus importantes qu'une valeur critique. Ceci est donc dû à une différence de fluctuations turbulentes dans le voisinage de la goutte qui à son tour est provoquée par l'arrivée d'une succession de tourbillons de différentes tailles.
-

- L'énergie cinétique du tourbillon bousculant la goutte est considérée dans la troisième catégorie. Dans ce cas, la rupture a lieu si l'énergie cinétique turbulente apportée par le tourbillon est supérieure à une valeur critique, liée à la tension de surface de la goutte. On peut remarquer que cette catégorie est assez proche de la première bien que l'auteur ait fait une distinction.
- Enfin, la dernière catégorie, dans laquelle la rupture est provoquée lorsque l'énergie inertielle du tourbillon bombardant la goutte est supérieure à celle de cette dernière. Dans ce cas, on considère un bilan de forces entre l'inertie du tourbillon et la tension interfaciale de la plus petite goutte.

Le choix d'un modèle de rupture, parmi ceux présentés dans cet article de revue, est particulièrement important et complexe. En effet, un certain nombre de ces noyaux dépendent de grandeurs difficilement mesurables, comme la longueur caractéristique des tourbillons ou encore le taux d'amortissement de la turbulence. Un exemple de ces modèles est celui développé par [Tsouris & Tavlarides \(1994\)](#) qui fait appel à cette dernière grandeur. D'autres modèles encore sont développés spécifiquement pour les applications gaz-liquide et prédisent des taux très élevés de coalescence, aboutissant à des tailles de gouttes irréalistes, comme c'est le cas du modèle de [Luo & Svendsen \(1996\)](#). Il est donc également essentiel de connaître le domaine d'applicabilité du modèle, comme souligné par [Becker et al. \(2011\)](#), qui ont regroupé les modèles de rupture les plus utilisés et ont listé les conditions opératoires pour lesquels ils ont été développés.

### Le modèle de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#)

[Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) ont développé le modèle historique le plus connu et communément utilisé de la littérature. Le modèle est fondé sur l'idée selon laquelle une goutte casse si l'énergie transmise par la collision goutte-tourbillon est supérieure à son énergie de surface. Le modèle est donné par l'expression suivante :

$$b(d_i) = C_1 d_i^{-2/3} \frac{\varepsilon^{1/3}}{1 + \alpha} \exp \left[ -\frac{C_2 \sigma (1 + \alpha)^2}{\rho_d \varepsilon^{2/3} d_i^{5/3}} \right] \quad (2.14)$$

Le modèle de Coulaloglou et Tavlarides prend en compte l'influence du taux de rétention sur la fréquence de rupture. Il contient deux constantes,  $C_1$  et  $C_2$ , qui doivent être identifiées. C'est l'objet de ce chapitre.

### Le modèle de [Martinez-Bazan et al. \(1999\)](#)

Le modèle de [Martinez-Bazan et al. \(1999\)](#) est basé sur la cinématique d'un écoulement turbulent pleinement développé, et évite ainsi toute formulation de concept pour les tourbillons. La fréquence de rupture est caractérisée par rapport au nombre adimensionnel

---

de Weber ( $We$ ). Le modèle suppose qu'une goutte a besoin de subir une déformation et qu'une quantité d'énergie suffisante a besoin d'être apportée par les fluctuations du fluide environnant pour que la rupture ait lieu (Liao & Lucas, 2009).

Hakansson *et al.* (2009) ont modifié le modèle original développé par Martinez-Bazan *et al.* (1999) en ajoutant un facteur qui tient compte de la durée de vie d'un tourbillon (terme  $B$  dans l'équation (2.15)). Un autre terme (le terme  $C$  dans l'équation (2.15)) est ajouté pour prendre en compte l'action des tourbillons dont la taille est plus grande que la goutte sur la rupture provoquée par le mécanisme visqueux. Ce second type de rupture est appelé "turbulent viscous breakage". Le modèle modifié est donné par l'équation suivante :

$$b(d_i) = \underbrace{K_{TI} \sqrt{\frac{\kappa \varepsilon^{2/3} d_i^{2/3} - 8\sigma We_{cr}/(\rho_c d_i)}{d_i}}}_A \cdot \underbrace{\frac{\rho_c \varepsilon^{1/3} d_i^{4/3}}{2\mu_d}}_B + \underbrace{K_{TV} \sqrt{\frac{2\kappa_c \varepsilon^{1/3} d_i^{-2/3}/\rho_c - 8\sigma Ca_{cr}/(\rho_c d_i)}{d_i}}}_C \frac{\mu_c}{\mu_d} \quad (2.15)$$

Dans l'équation (2.15) le terme  $A$  donne le modèle original de Martinez-Bazan *et al.* (1999) quand le nombre de Weber critique, donné par l'expression (2.16), est égal à l'unité.  $K_{TI}$  et  $K_{TV}$  sont des constantes que nous devons ajuster, dans les conditions opératoires décrites dans la section 3.2.2. Comme nous le verrons par la suite, le terme  $C$  a une influence négligeable sur les résultats. Par conséquent, le terme visqueux a été négligé dans les simulations.  $\kappa$  est une constante déterminée à partir d'une analyse théorique de la turbulence isotrope (Martinez-Bazan *et al.*, 1999). Sa valeur est de 8,2. Le nombre de Weber critique,  $We_{cr}$  est donné par :

$$We_{cr} = \frac{\kappa \rho_c \varepsilon^{2/3} d_{cr}^{5/3}}{8\sigma} \quad (2.16)$$

avec  $d_{cr}$  la diamètre maximal stable, à savoir le diamètre en dessous duquel une goutte ne peut plus casser. Bien qu'il existe des modèles pour le déterminer, nous avons considéré une valeur constante égale à  $d_{cr} = 10\mu\text{m}$ , dans un souci de simplification.

### Le modèle de Alopaeus *et al.* (2002)

Le modèle développé par Alopaeus *et al.* (2002) a la particularité de prendre en compte la viscosité de la goutte pour estimer la fréquence de rupture. Ce modèle rentre dans la seconde catégorie décrite par Liao & Lucas (2009). Il s'écrit :

$$b(d_i) = A_1 \varepsilon^{1/3} \operatorname{erfc} \left( \sqrt{A_2 \frac{\sigma}{\rho_c \varepsilon^{2/3} d_i^{5/3}} + A_3 \frac{\mu_d}{\sqrt{\rho_c \rho_d} \varepsilon^{1/3} d_i^{4/3}}} \right) \quad (2.17)$$

Les paramètres qui ont besoin d'être identifiés sont  $A_1$ ,  $A_2$  et  $A_3$ .

---

### Distribution des gouttes filles

La distribution des gouttes filles permet de définir le type de gouttes produites à partir de la rupture d'une goutte mère. Ainsi, la goutte mère peut produire une rupture binaire, ou peut se fragmenter en un nombre plus important de gouttelettes. Cette distribution détermine également la proportion de volume de la goutte mère allant dans les gouttes filles. Ainsi, pour une rupture binaire par exemple, les deux gouttes filles peuvent être égales en volume ou avoir des fractions différentes (40/60%, 30/70% etc). Le choix du noyau de rupture est donc complété par celui de la distribution des gouttes filles (éq. (2.3)).

Il existe des modèles de rupture pour lesquels la distribution des gouttes filles est intégrée, par exemple celui de Luo & Svendsen (1996). D'autres auteurs ont développé, avec le modèle de rupture, une distribution de gouttes filles spécifique, en fonction de leurs observations expérimentales.

Dans notre cas, les premières mesures de DTG nous ont permis d'observer des distributions monomodales et s'apparentant à des distributions gaussiennes. Nous avons donc choisi de représenter la distribution des gouttes filles par le modèle de Valentas *et al.* (1966) qui répond à ces critères et s'écrit :

$$\beta(d_1^3 | d_0^3) = \frac{2.4}{d_0^3} \exp\left(-\frac{4.5(2d_1^3 - d_0^3)^2}{d_0^6}\right) \quad (2.18)$$

avec  $d_0$  et  $d_1$  respectivement les diamètres de la goutte mère et de la goutte fille. Ce modèle fait l'hypothèse d'une rupture binaire.

### 2.2.3 Choix du modèle de coalescence

Les modèles de coalescence sont également très nombreux dans la littérature et le plus souvent développés pour des applications gaz-liquide. Le choix du modèle de coalescence, qui constitue le but de cette partie du manuscrit, est basé sur l'applicabilité du modèle à notre système, la prise en compte de considérations physiques, sa simplicité et son comportement. Liao & Lucas (2010) ont recensé et décrit les différents modèles existants.

La modélisation de la coalescence est plus complexe que celle de la rupture, puisque dans ce cas il s'agit de prédire non seulement les interactions des gouttes avec le fluide environnant mais également leurs interactions les unes avec les autres. Généralement, trois théories ont été avancées pour décrire la coalescence (Liao & Lucas, 2010).

- La plus présentée est la théorie du drainage du film. Cette théorie a été posée pour la première fois par Shinnar & Church (1960) qui stipulaient que, après leur collision, deux bulles peuvent se coller et être empêchées de coalescer par un film mince de

liquide coincé entre elles. Les forces d'attraction conduisent ensuite les bulles à se rapprocher, entraînant un drainage du film suivi par la coalescence. Il s'agit donc d'un processus en trois étapes : la collision des gouttes piégeant un film de liquide entre-elles, le maintien des gouttes en contact jusqu'au drainage du film qui atteint une épaisseur critique et enfin la rupture du film entraînant la coalescence.

- Une deuxième théorie, proposée par [Howarth \(1964\)](#), repose sur l'énergie des collisions. Elle stipule que les forces d'attraction de nature moléculaire sont négligeables devant la turbulence dans le contrôle du processus de coalescence. La coalescence aurait lieu si les deux gouttes qui subissent une collision arrivent à des vitesses supérieures à une vitesse critique, et serait donc immédiate, sans piégeage du film de liquide et sans drainage.
- Enfin, la troisième théorie développée par [Lehr \*et al.\* \(2002\)](#), s'appuie sur des observations expérimentales indiquant que l'efficacité de collision est plus importante lorsque la vitesse d'approche des bulles est petite, introduisant ainsi le principe de la vitesse d'approche critique.

Dans tous les cas, la collision constitue le moteur du processus de coalescence. Cette dernière est le produit de la vitesse relative entre les gouttes (ou bulles). Cette vitesse relative prend son origine dans différents phénomènes et est ainsi décrite par des modèles différents. Nous pouvons distinguer selon les hypothèses : des collisions entraînées par (*i*) les fluctuations turbulentes, (*ii*) les gradients de vitesse, (*iii*) des forces volumiques telles que la poussée d'Archimède, (*iv*) la capture dans des tourbillons ou encore (*v*) l'effet du sillage des gouttes ([Liao & Lucas, 2010](#)). Cependant, toutes les collisions ne conduisent pas à la coalescence, la notion d'efficacité de collision est introduite. Ainsi, la fréquence de coalescence est souvent exprimée comme étant le produit de la probabilité de collision,  $h(d_i, d_j)$ , et de l'efficacité de collision,  $\lambda(d_i, d_j)$ .

### Le modèle de coalescence de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#)

Le modèle de coalescence de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) est l'un des plus connus et communément utilisés dans la littérature. Il exprime la fréquence de coalescence sous forme d'un produit de fréquence de collision et d'efficacité de collision. Dans le cadre de nos travaux, nous avons choisi de concentrer nos efforts sur ce modèle pour des questions de temps mais surtout de stabilité. En effet, alors que la rupture est traitée de manière assez robuste par les codes et ne pose pas de problème numérique particulier, le traitement de la coalescence est plus délicat. Ainsi, aussi bien dans le cas de la modélisation 0D que dans le modèle couplé CFD-PBE, nous avons rencontré des problèmes de stabilité numérique, sur lesquels nous reviendrons par la suite, qui ont limité le nombre des modèles de coalescence étudiés.

---

**Fréquence de collision**  $h(d_i, d_j)$

La fréquence de collision peut être liée à plusieurs phénomènes, comme expliqué ci-avant. Dans le cadre du modèle de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#), l'hypothèse de collisions causées par le mouvement aléatoire de fluctuations turbulentes est privilégiée. Ce mouvement aléatoire de fluctuations turbulentes est supposé similaire au mouvement des molécules de gaz dans le cadre de la théorie cinétique des gaz. Ainsi, en faisant la similitude, la fréquence de collision est exprimée comme étant le volume effectif déplacé par une goutte par unité de temps :

$$h(d_i, d_j) = S_{ij}u_{rel} \quad (2.19)$$

avec  $S_{ij}$  la section de collision qui s'exprime comme suit :

$$S_{ij} = \frac{\pi}{4}(d_i + d_j)^2 \quad (2.20)$$

Pour estimer la vitesse relative,  $u_{rel}$ , les auteurs supposent que les gouttes prennent la vitesse des tourbillons de même taille. En effet, les tourbillons de petite taille n'ont pas assez d'énergie pour transporter les gouttes, quant à ceux de taille supérieure, ils ne font que les transporter sans mouvement relatif possible entre les gouttes. Il en résulte que la vitesse  $u_{rel}$  est égale à la RMS des vitesses de tourbillon équivalent :

$$u_{rel} = (u_{t1}^2 + u_{t2}^2)^{1/2} \quad (2.21)$$

D'un autre côté, pour estimer la vitesse des tourbillons, le domaine inertiel du spectre de turbulence isotrope est considéré. Ainsi, en supposant que la longueur caractéristique d'un tourbillon est  $l_0$  et que sa vitesse est  $u_0$ , celle-ci peut s'exprimer comme la RMS de l'intensité turbulente, à savoir  $u_0 = (2k/3)^{1/2}$ , avec  $k$  l'énergie cinétique turbulente. Nous pouvons à présent dériver de ces équations la longueur caractéristique d'un tourbillon :

$$l_0 \propto \frac{k^{3/2}}{\epsilon} \quad (2.22)$$

La vitesse d'un tourbillon est donc donnée par :

$$u_t^2 = \theta(\epsilon d)^{2/3} \quad (2.23)$$

où  $\theta$  est une constante. Au final, la fréquence de collision s'exprime selon :

$$h(d_i, d_j) = C_3(d_i + d_j)^2(d_i^{2/3} + d_j^{2/3})^{1/2}\epsilon^{1/3} \quad (2.24)$$

avec  $C_3$  une constante à identifier.

**Efficacité de collision**  $\lambda(d_i, d_j)$

Le modèle de coalescence de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) se base sur la théorie du drainage du film pour déterminer l'efficacité de collision en comparant le temps de contact des gouttes,  $t_{contact}$ , au temps de drainage,  $t_{drainage}$  :

$$\lambda(d_i, d_j) = \exp\left(-\frac{t_{drainage}}{t_{contact}}\right) \quad (2.25)$$


---

Le temps de drainage est estimé en supposant que les gouttes sont déformables et leur interface mobile. Dans ce cas, le film interfacial est chassé par un flux laminaire, avec un temps de drainage donné par :

$$t_{drainage} = \frac{3\mu_c F}{16\pi\sigma^2} \left( \frac{d_i d_j}{d_i + d_j} \right)^2 \left( \frac{1}{h_0^2} - \frac{1}{h^2} \right) \quad (2.26)$$

avec  $h_0$  et  $h$  respectivement l'épaisseur initiale et critique du film.  $F$  représente la force d'attraction, supposée proportionnelle à la RMS de la vitesse des deux tourbillons :

$$F \sim \rho_c \epsilon^{2/3} (d_i + d_j)^{2/3} \left( \frac{d_i d_j}{d_i + d_j} \right)^2 \quad (2.27)$$

Enfin, le temps de contact est considéré proportionnel au temps caractéristique des fluctuations turbulentes d'un tourbillon de taille  $d_i + d_j$  :

$$t_{contact} \sim \frac{(d_i + d_j)^{2/3}}{\epsilon^{1/3}} \quad (2.28)$$

En assimilant  $h_0$  et  $h$  à des constantes et en injectant les équations (2.26), (2.27) et (2.28) dans l'équation (2.25) on obtient l'expression de l'efficacité de collision :

$$\lambda(d_i, d_j) = \exp \left[ -C_4 \frac{\mu_c \rho_c \epsilon}{\sigma^2} \left( \frac{d_i d_j}{d_i + d_j} \right)^4 \right] \quad (2.29)$$

avec  $C_4$  une nouvelle constante à identifier.

L'expression finale de la fréquence de coalescence est donnée par :

$$a(d_i, d_j) = C_3 (d_i + d_j)^2 (d_i^{2/3} + d_j^{2/3})^{1/2} \epsilon^{1/3} \exp \left[ -C_4 \frac{\mu_c \rho_c \epsilon}{\sigma^2} \left( \frac{d_i d_j}{d_i + d_j} \right)^4 \right] \quad (2.30)$$

Il existe plusieurs variantes de cette expression. Les plus importantes sont celles visant à prendre en compte l'effet du taux de rétention dans l'expression de la fréquence de coalescence. En effet, il est évident qu'en présence d'un taux de rétention élevé, la fréquence de collision augmente entraînant plus de coalescence. Certains auteurs multiplient la fréquence de collision par un facteur pour tenir compte de ce fait. On peut citer [Hibiki & Ishii \(2002\)](#) qui l'ont multiplié par  $1/(\phi_{max} - \phi)$ , avec  $\phi_{max}$  la rétention maximale possible (égale à 0,74 d'après les auteurs) et  $\phi$  la rétention actuelle. Nous allons, le moment venu, vérifier l'effet de ces corrections sur les distributions simulées.

## 2.3 Résultats et discussion

Nous présentons ici les résultats d'identification des noyaux de rupture et de coalescence. Dans un premier temps, les résultats expérimentaux sont présentés, en insistant sur la reproductibilité des mesures et leur interprétation, puis nous abordons les simulations 0D.

---

### 2.3.1 Reproductibilité des mesures de DTG

Pour s'assurer de la reproductibilité, nous avons comparé des mesures réalisées à 6 mois d'intervalle. A l'instar des billes calibrées, pour lesquelles nous avons observé une reproductibilité de l'ordre de 6% (fig. 2.5), une très bonne reproductibilité a également été observée dans le cas des gouttes d'eau dans le TPH. Ainsi, la figure 2.14 illustre les résultats obtenus pour une vitesse de rotation de 500 tr/min. Nous pouvons constater que la reproductibilité est très bonne pour les différents instants de mesure. Les premiers instants ne sont pas représentés sur la figure. Ils présentent une reproductibilité moins bonne, mais néanmoins acceptable, et ne sont de toutes façons pas considérés dans le processus d'identification des noyaux de rupture et coalescence. Nous pouvons aussi remarquer que le diamètre moyen en nombre, représenté sur la figure 2.15 par le diamètre arithmétique  $d_{10}^3$ , est parfaitement reproductible avec un écart négligeable.

### 2.3.2 Évolution temporelle des DTG

L'évolution de la DTG dans le temps est perceptible sur la figure 2.16. Pour illustration, nous présentons les résultats d'une expérience réalisée à une vitesse de rotation de 600 tr/min et une rétention de 1%, les autres conditions opératoires présentent les mêmes évolutions. Nous pouvons constater un décalage de la DTG cumulée vers la gauche avec le temps. Ceci est signe d'une apparition de gouttes de plus en plus petites, produites par la rupture. Nous pouvons aussi remarquer que les DTG semblent se stabiliser à partir de 120 minutes d'agitation. Ce *palier* n'est pas observé pour tous les essais, ainsi, dans la plupart des cas nous avons remarqué une évolution de la DTG même après 240 minutes d'agitation.

#### Influence de la vitesse d'agitation

L'augmentation de la vitesse de rotation entraîne une rupture plus importante, se traduisant par l'apparition de gouttes de plus en plus petites. Nous pouvons voir sur la figure 2.17 qu'aux mêmes instants de mesure, les DTG se décalent vers les petites tailles avec l'augmentation de la vitesse d'agitation (vers la gauche du graphe).

#### Influence du taux de rétention $\phi$

La rétention est un paramètre influent sur les propriétés de la phase dispersée. C'est aussi un des paramètres qu'on souhaite connaître pour la compréhension et le dimensionnement

---

<sup>3</sup> $d_{mn} = \frac{\sum_i n_i d_i^m}{\sum_i n_i d_i^n}$  avec  $n_i$  le nombre de gouttes dans la classe  $i$ .

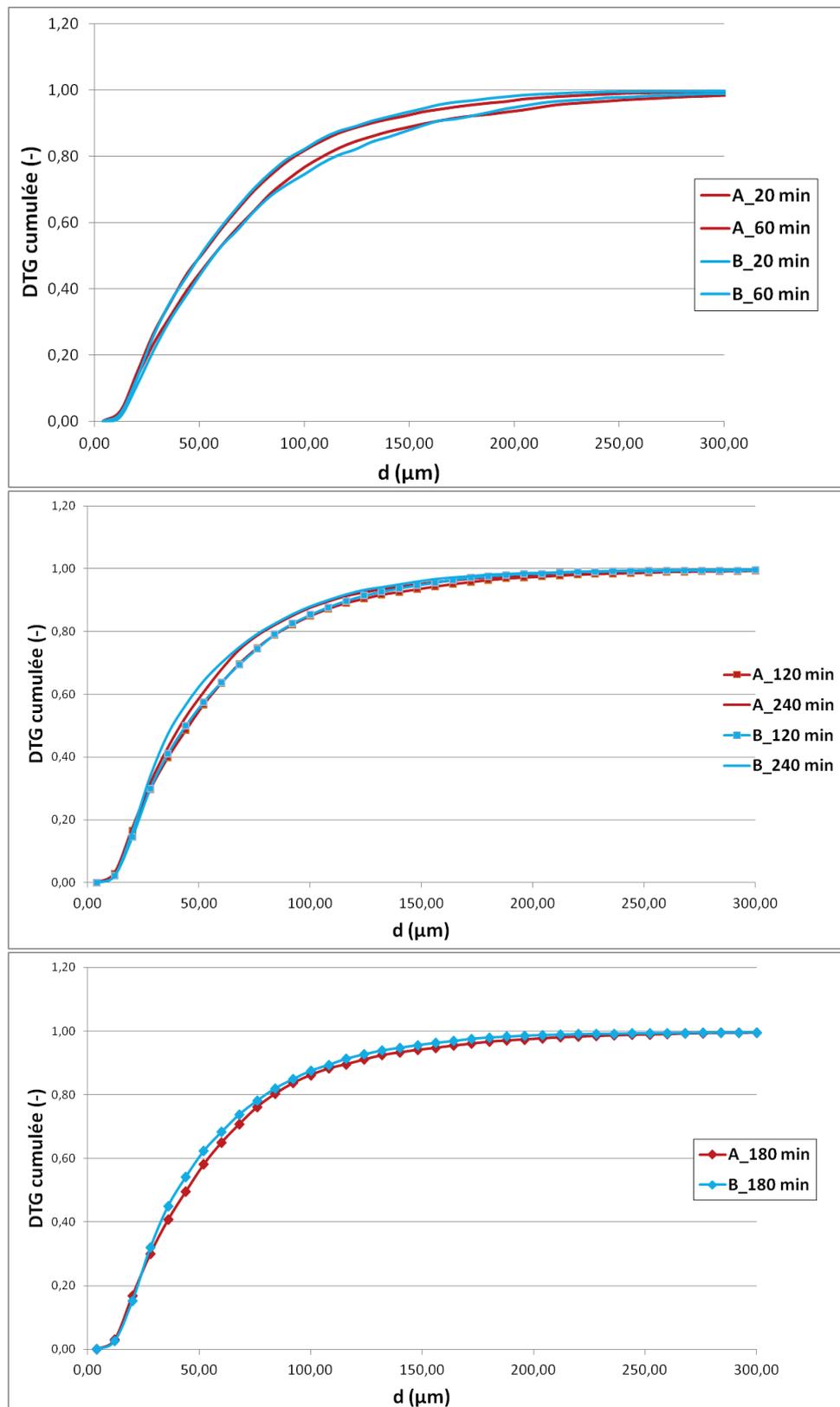


FIGURE 2.14 – Reproductibilité des mesures de DTG à différents instants ( $\phi = 1\%$ ,  $\omega = 500 \text{ tr/min}$ ).

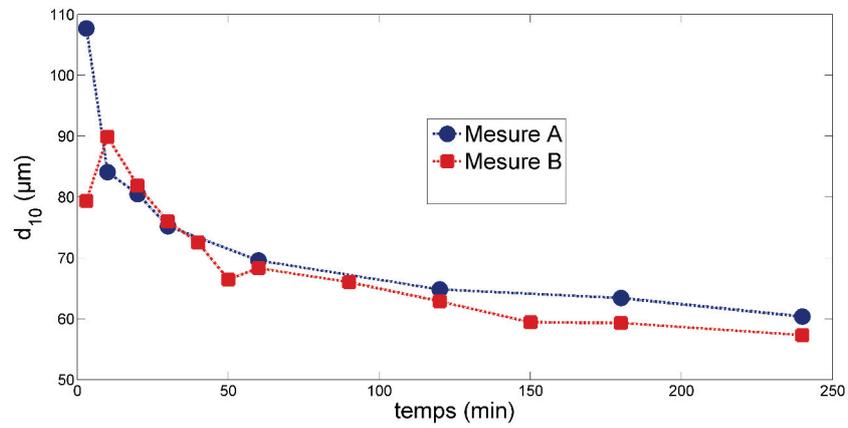


FIGURE 2.15 – Reproductibilité : diamètre arithmétique fonction du temps pour deux mesures de DTG similaires ( $\phi = 1\%$ ,  $\omega = 500 \text{ tr/min}$ ).

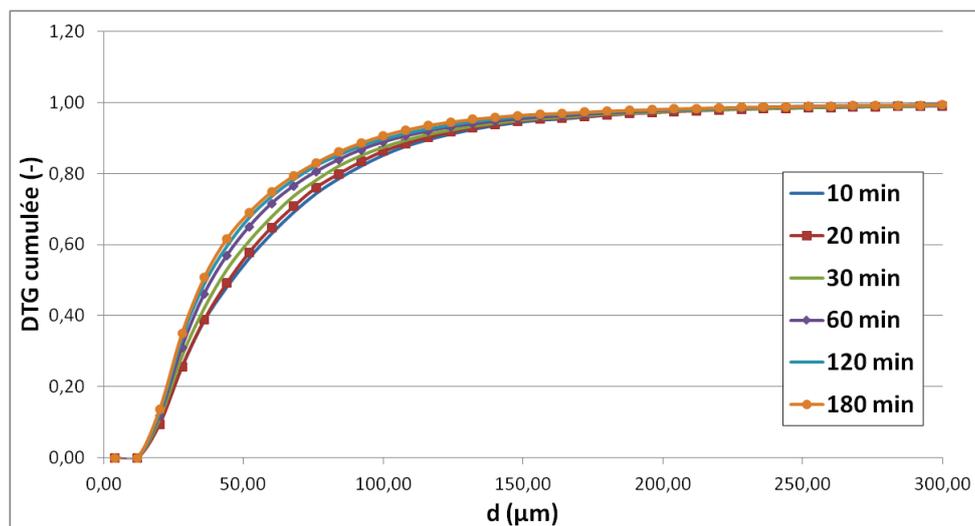


FIGURE 2.16 – Évolution de la DTG en fonction du temps ( $\phi = 1\%$ ,  $\omega = 600 \text{ tr/min}$ ).

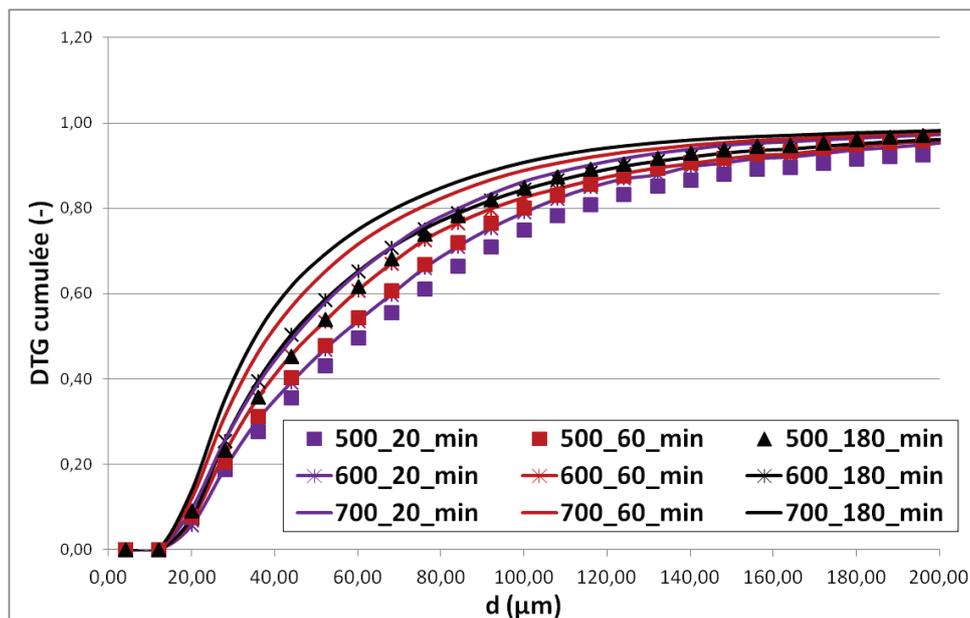


FIGURE 2.17 – Évolution de la DTG fonction de la vitesse de rotation à différents instants ( $\phi = 1\%$ ).

des procédés. Il est donc utile de vérifier son effet sur les DTG mesurées.

La DTG en nombre normée de la figure 2.18 permet de constater qu'à faible taux de rétention, la DTG évolue dans le temps en se décalant de plus en plus à gauche avec un pic de plus en plus haut. Il est aussi intéressant de remarquer sur cette figure que dès le début de l'agitation, les diamètres des plus grosses gouttes ne dépassent rarement les 200 à 250  $\mu\text{m}$ . Rappelons que le diamètre maximum quantifiable avec notre système de mesure, est de 358  $\mu\text{m}$  (voir section 2.1.3).

Lorsque le taux de rétention augmente, l'émulsion est stabilisée plus tôt. On peut constater sur la figure 2.19 qui compare les DTG mesurées à différents instants pour trois taux de rétention, qu'au bout de 240 minutes d'agitation, la DTG a l'air de continuer à évoluer pour  $\phi = 1\%$ . Tandis qu'elle se stabilise autour de 60 et 10 minutes, respectivement, pour  $\phi = 5\%$  et  $\phi = 10\%$ . Ainsi, nous pouvons dire que l'augmentation du taux de rétention, qui entraîne plus de coalescence, a un effet stabilisateur sur l'émulsion avec un équilibre atteint de plus en plus tôt. Il est intéressant de remarquer sur cette figure que l'endroit du pic n'évolue pas énormément et reste globalement centré sur le même diamètre (environ 36  $\mu\text{m}$ ). Quant à sa hauteur, elle est similaire, à l'équilibre, pour les différentes valeurs de  $\phi$ .

Il est difficile de distinguer clairement une évolution des DTG fonction de  $\phi$  sur la figure 2.19. Aussi nous avons tracé sur la figure 2.20 l'évolution du diamètre moyen arithmétique en fonction du temps à différents taux de rétention. Il est intéressant de constater que la diamètre moyen  $d_{10}$  augmente avec  $\phi$ . Ceci est bien le signe d'une coalescence plus importante. Nous pouvons aussi retrouver les remarques faites ci-avant sur le fait que la DTG se stabilise plus tôt avec  $\phi$ . Ainsi, par exemple, nous pouvons voir que pour une

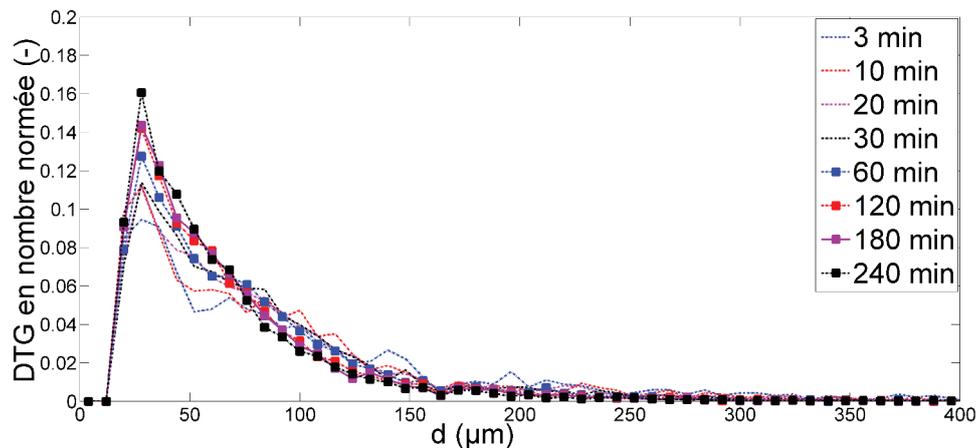


FIGURE 2.18 – DTG en nombre normée en fonction à différents instants ( $\phi = 1\%$ ,  $\omega = 500$   $tr/min$ ).

rétenion de  $\phi = 10\%$  le diamètre moyen n'évolue quasiment plus au-delà de 10 minutes d'agitation.

### 2.3.3 Identification des noyaux de rupture

Dans un premier temps, nous avons essayé d'identifier les noyaux de rupture séparément. Nous avons travaillé sur les mesures de DTG à  $\phi = 1\%$  qui théoriquement ne devraient pas présenter de coalescence ou très peu. Dans cette partie, nous discuterons les résultats obtenus par cette approche, nous nous comparerons également à la littérature et nous reviendrons par la suite sur la validité de cette hypothèse.

Les DTG mesurées à  $\phi = 1\%$ , pour différentes vitesses de rotation, ont été modélisées par PBE avec la méthode des volumes finis (sec. 2.2.1). Les noyaux de rupture décrits dans la section 2.2.2 ont été ajustés sur les DTG mesurées par la résolution du problème inverse par une méthode de moindres carrés sous Matlab<sup>®</sup>. La DTG mesurée à 20 minutes est prise comme distribution initiale pour éviter les phases de mise en place de l'émulsion.

Afin d'illustrer l'influence des paramètres ajustables des modèles que nous cherchons à identifier, nous comparons sur la figure 2.21 la DTG prédite dans le RPA avec les constantes par défaut, préconisées par Coualoglou & Tavlarides (1977), à celle que nous avons mesurée. Il est évident que le modèle ne prédit pas correctement l'évolution des DTG avec ces constantes ( $C1 = 0,0048$  et  $C2 = 0,05$ ), et que la rupture est trop importante. Bien que dans la littérature ces constantes soient supposées universelles, nous pouvons voir ici la nécessité d'identifier ces paramètres pour le système eau/TPH, permettant d'obtenir l'ajustement illustré sur la figure 2.22.

Les trois modèles de rupture décrits au paragraphe 2.2.2 permettent, après ajustement,

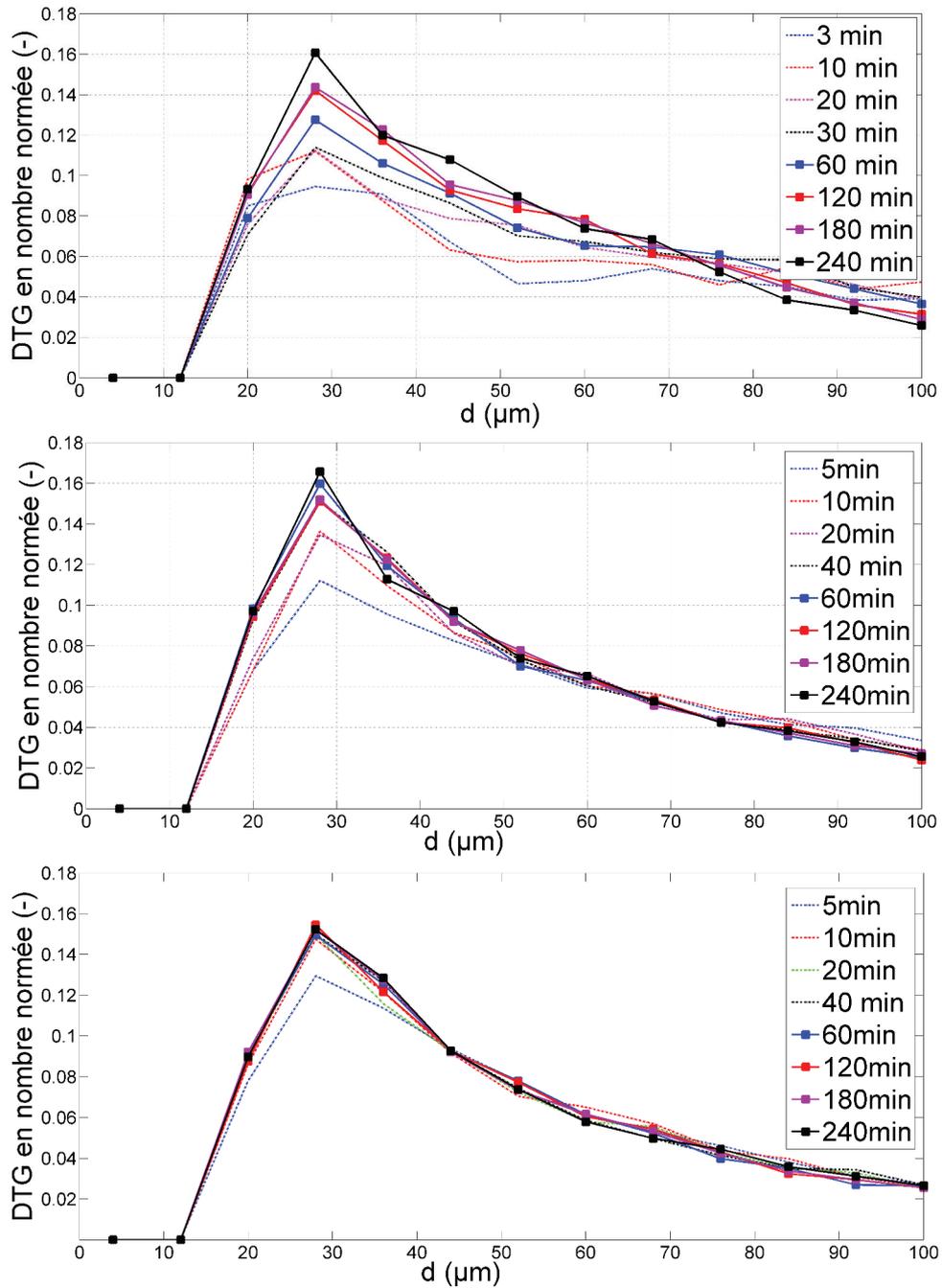


FIGURE 2.19 – DTG en nombre normée à différents instants : (**haut**)  $\phi = 1\%$ ; (**milieu**)  $\phi = 5\%$ ; (**bas**)  $\phi = 10\%$  ( $\omega = 500 \text{ tr/min}$ ).

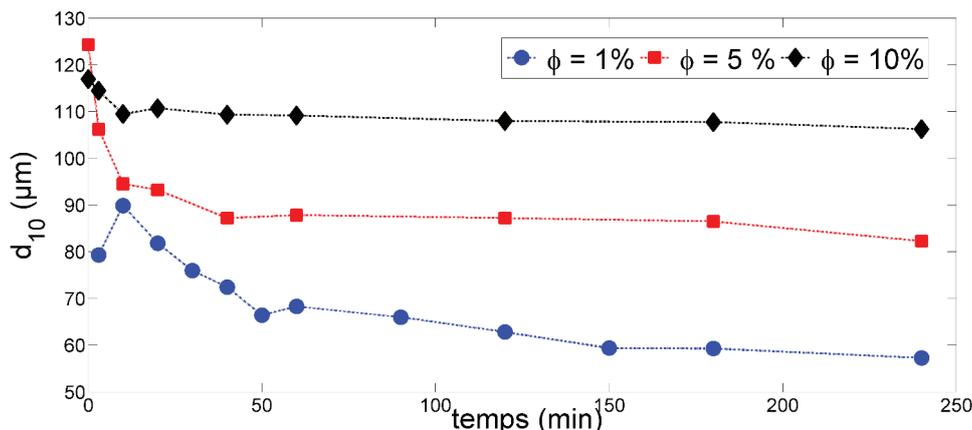


FIGURE 2.20 – Évolution du diamètre moyen arithmétique,  $d_{10}$ , en fonction du temps pour différents taux de rétention ( $\omega = 500 \text{ tr}/\text{min}$ ).

de prédire correctement l'évolution de la DTG dans le temps (Amokrane *et al.*, 2014). Les constantes ajustées, ainsi que celles préconisées dans la littérature, sont répertoriées dans le tableau 2.8. Les valeurs ajustées apparaissent sensiblement différentes de celles par défaut. Plusieurs explications sont possibles. Tout d'abord, dans notre cas, nous considérons une émulsion d'eau dans le TPH, tandis que pour les travaux cités dans la littérature concernent généralement l'émulsion inverse (huile dans l'eau). Il faut ajouter à cela le fait que la nature de l'écoulement généré par l'agitateur est différente. Notre mobile d'agitation crée un écoulement axial, tandis que la turbine Rushton, utilisée par Coualoglou & Tavlarides (1977) et Alopaeus *et al.* (2002) crée un écoulement radial. Ceci a un effet non négligeable sur les DTG obtenues, comme illustré par les travaux de Pacek *et al.* (1999). Ces derniers ont pu constater qu'un mobile d'agitation à écoulement radial génère une distribution plus large et plus grosse, c'est-à-dire présentant moins de petites gouttes. Pour ce qui est du modèle de Martinez-Bazan *et al.* (1999), la constante donnée par l'auteur a été déterminée sur des bulles dans un jet d'eau turbulent dans des conditions opératoires très éloignées des nôtres. Il n'est donc pas étonnant de trouver une constante également très différente. Ainsi, les valeurs que nous avons obtenues à partir du processus d'identification traduisent une tendance à la rupture plus faible.

Parmi ces trois modèles, celui de Martinez-Bazan *et al.* (1999) semble offrir le meilleur ajustement des DTG simulées. Cependant, il nécessite un paramètre supplémentaire, le diamètre critique,  $d_{cr}$ . De son côté, le modèle de Coualoglou & Tavlarides (1977) prend en compte l'effet de la rétention dans l'estimation du taux de rupture, mais présente une évolution a priori non cohérente de la fréquence de rupture avec le diamètre des gouttes. Ainsi, une augmentation de la rupture est tout d'abord observée, jusqu'à atteindre un diamètre maximum, au-delà duquel la probabilité de rupture décroît et tend vers zéro pour les gros diamètres. Or il est plus logique de penser que la rupture est d'autant plus facile que le diamètre de la goutte est grand, ce que prédit le modèle d'Alopaeus *et al.* (2002). Nous avons donc décidé de considérer les trois modèles de rupture pour la suite de l'étude.

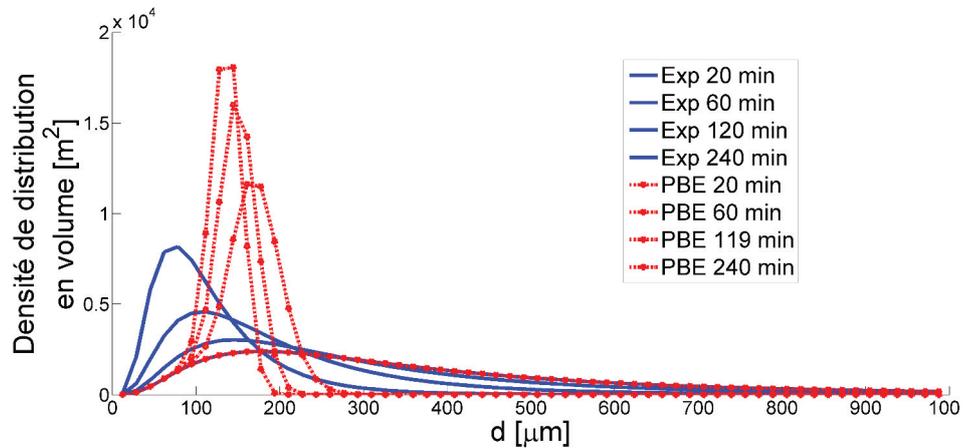


FIGURE 2.21 – Comparaison du modèle de *Coualoglou*, en utilisant les constantes par défaut ( $C_1 = 0.0048$ ,  $C_2 = 0.08$ ), avec les DTG mesurées. ( $\epsilon = 0.48 \text{ W/kg}$ ).

TABLE 2.8 – Comparaison entre les valeurs de la littérature et celles ajustées pour trois modèles de rupture : *Coualoglou & Tavlarides*, *Martinez – Bazan* et *Alopaeus*.

Modèle de rupture	Système de phase	Constantes	Valeurs originales	Valeurs ajustées
<i>Coualoglou &amp; Tavlarides</i>	Huile/Eau	$C_1$	$4,78 \times 10^{-3}$	$4,73 \times 10^{-6}$
	Turbine Rushton $\omega = 190 - 310 \text{ tr/min}$ $\epsilon = 0.16-0.69 \text{ W/kg}$ $\rho_c = 1000 \text{ kg/m}^3$ $\rho_d = 972 \text{ kg/m}^3$ $\mu_c = 10^{-3} \text{ Pa.s}$ $\mu_d = 1,3 \times 10^{-3} \text{ Pa.s}$ $\sigma = 43.03 \times 10^{-3} \text{ N/m}$	$C_2$	0,0552	0,0035
<i>Martinez – Bazan</i>	Bulles (0,1-3mm) Jet turbulent $\epsilon = 25-300 \text{ W/kg}$	$K_{TI}$	2,5	$3,44 \times 10^{-7}$
<i>Alopaeus</i>	Huile/Eau ( $\mu\text{m}$ )	$A_1$	0,986	0,001
	Turbine Rushton $\omega = 378 - 765 \text{ tr/min}$ $\epsilon = 1,04-8,58 \text{ W/kg}$ $\rho_c = 1000 \text{ kg/m}^3$ $\rho_d = 800 \text{ kg/m}^3$ $\mu_c = \mu_d = 10^{-3} \text{ Pa.s}$ $\sigma = 43.6 \times 10^{-3} \text{ N/m}$	$A_2$ $A_3$	$8,92 \times 10^{-4}$ 0,2	$5,25 \times 10^{-4}$ $6,19 \times 10^{-6}$

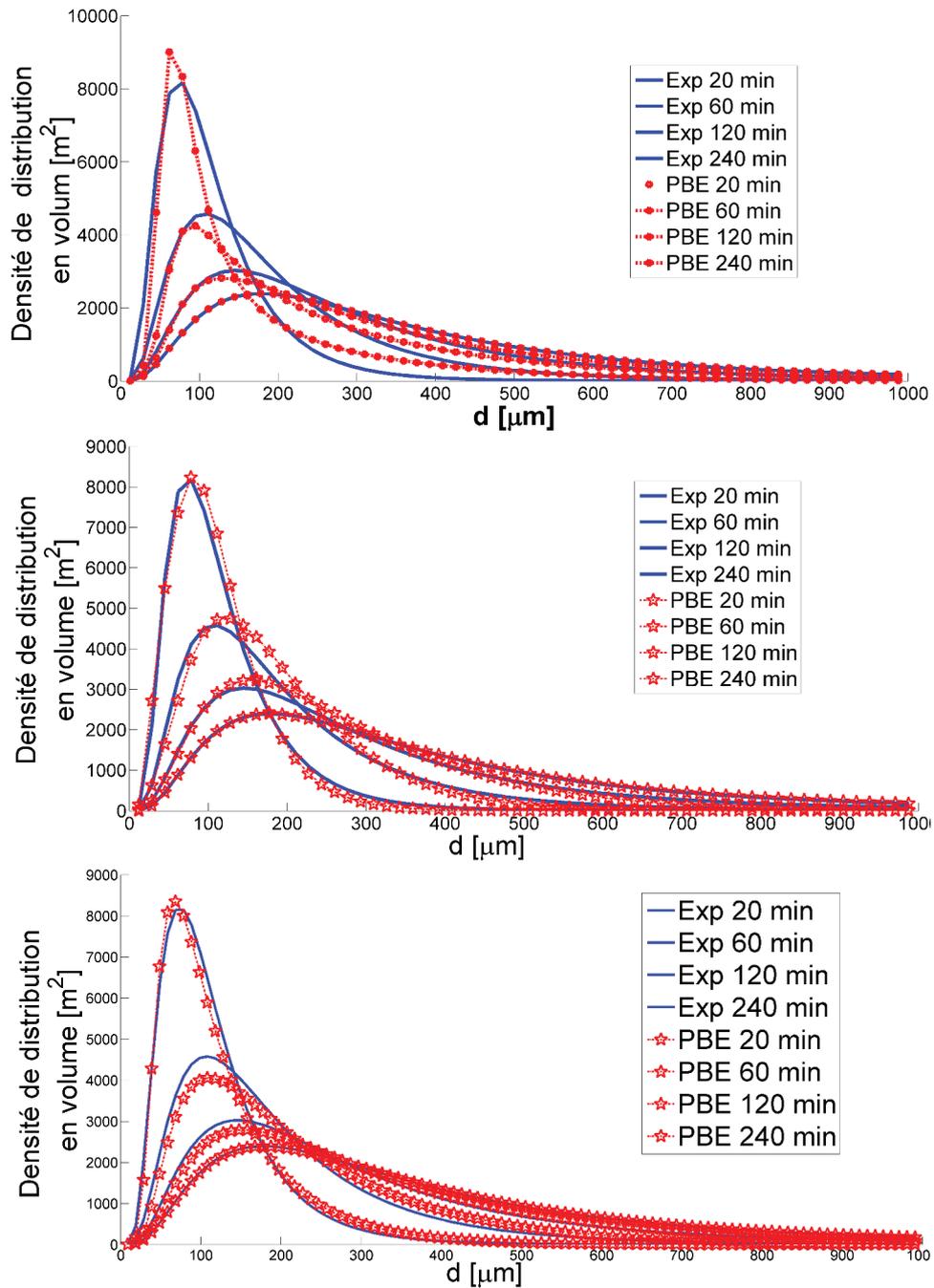


FIGURE 2.22 – Ajustement des DTG simulées sur les DTG mesurées pour différents modèles de rupture : **(haut)** *Coualaloglou*; **(milieu)** *Martinez – Bazan*; **(bas)** *Alopaeus* ( $\epsilon = 0.48 \text{ W/kg}$ ).

### Influence de la définition de la dissipation turbulente, $\epsilon$

Il y a plusieurs façons de définir la dissipation turbulente dans le RPA. Par exemple, [Alopaeus et al. \(2002\)](#) ont considéré dans leurs travaux un modèle multizone où l'émulsion subit la rupture au voisinage de l'agitateur, et où les gouttes entrent en collision dans les zones de recirculation, ce qui entraîne de la coalescence. Ainsi, plutôt que de considérer une dissipation turbulente moyenne dans le réacteur, à l'instar de ce que nous avons fait pour identifier le noyaux de rupture (formule (2.9)), [Alopaeus et al. \(2002\)](#) ont supposé que toute l'énergie était dissipée dans la région enveloppant l'agitateur pour identifier les paramètres de leur modèle.

Nous avons cherché à étudier l'influence de la définition de  $\epsilon$  sur l'identification des constantes. Il s'agit donc en toute rigueur de savoir quelle fraction de la turbulence est dissipée dans le volume enveloppant l'agitateur et quelle est la valeur de ce volume. Par exemple, dans le cas d'un agitateur Mixel TT<sup>®</sup>, [Mavros et al. \(1998\)](#) ont déterminé que 66% de l'énergie totale était dissipée au voisinage du mobile (dans un volume qu'ils ont pris 5 mm en dessous et au dessus de l'agitateur et 9,5 mm au-delà des pales de ce dernier, le choix du volume étant fixé par l'incapacité de la technique de mesure d'aller au-delà de ces limites). Dans ce cadre, nous avons considéré deux définitions :

- en considérant le volume défini par [Mavros et al. \(1998\)](#) pour la dissipation de l'énergie turbulente, nous nommerons ce cas **cas-1** ;
- en considérant le volume enveloppant directement l'agitateur, que nous nommerons **cas-2**.
- Ces deux cas sont comparés au cas standard, que nous appellerons **cas-0**, où la dissipation turbulente moyenne est estimée par la relation (2.9).

La différence entre les trois cas réside uniquement dans la valeur de la dissipation turbulente considérée dans les simulations. En effet, il ne s'agit pas ici d'un modèle multizone à proprement parler, qui nécessiterait de connaître les flux de matière échangés entre les différentes zones et de définir les mécanismes dans chacune d'entre-elles, ce qui nécessite un développement conséquent tant d'un point de vue expérimental que numérique. Ceci est certainement une perspective intéressante pour raffiner le modèle.

Le tableau 2.9 regroupe les constantes identifiées avec les différents modèles de rupture en utilisant ces trois définitions de la dissipation turbulente. A première vue, nous constatons une différence notable des différentes constantes. La figure 2.23 compare les taux de rupture prédits par les trois modèles, pour les trois cas. Nous pouvons constater que les taux de rupture prédits par les modèles de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) et de [Martinez-Bazan et al. \(1999\)](#) se superposent parfaitement. En effet, lorsque la valeur de dissipation turbulente change, le modèle de rupture s'adapte pour prédire un taux de rupture qui lui permette de s'ajuster aux DTG mesurées. Ces dernières étant inchangées, il est normal que le taux de rupture soit le même également. Le modèle d'[Alopaeus et al.](#)

---

TABLE 2.9 – Sensibilité des paramètres identifiés vis-à-vis de la définition de la dissipation turbulente pour trois modèles de rupture : *Coulaloglou & Tavlarides*, *Martinez – Bazan* et *Alopaeus*.

Modèle de rupture	<i>cas-0</i> ( $\epsilon = 0,47 \text{ W/kg}$ )	<i>cas-1</i> ( $\epsilon = 2,85 \text{ W/kg}$ )	<i>cas-2</i> ( $\epsilon = 7 \text{ W/kg}$ )
<i>Coulaloglou &amp; Tavlarides</i>	$C_1=4,73 \times 10^{-6}$ $C_2=0,0035$	$C_1=2,43 \times 10^{-6}$ $C_2=0,0108$	$C_1=1,81 \times 10^{-3}$ $C_2=0,0197$
<i>Martinez – Bazan</i>	$K_{TI}=3,44 \times 10^{-7}$	$K_{TI}=1,11 \times 10^{-7}$	$K_{TI}=6,15 \times 10^{-8}$
<i>Alopaeus</i>	$A_1=0,0011$ $A_2=5,25 \times 10^{-4}$ $A_3=6,19 \times 10^{-6}$	$A_1=0,0011$ $A_2=0,0015$ $A_3=0,0113$	$A_1=0,0011$ $A_2=0,0029$ $A_3=0,0014$

(2002) présente un comportement légèrement différent. Nous pouvons en effet observer des différences sur la figure 2.23, dont l'effet, étudié dans la partie couplage CFD-PBE, est cependant négligeable sur le diamètre moyen prédit dans la colonne pulsée. Un changement de plusieurs ordres de grandeur apparaît en effet nécessaire pour observer une répercussion sur le diamètre moyen à l'équilibre. Une fois encore, la sensibilité semble importante quand il s'agit de capturer la dynamique de la rupture. Celle-ci devient moins importante quand il s'agit de prédire l'équilibre. Le modèle d'*Alopaeus et al. (2002)* semble être le moins sensible vis-à-vis de la dynamique de la rupture. Sur la figure 2.24, nous avons utilisé les constantes identifiées dans le *cas-2* pour simuler les DTG obtenues dans des conditions similaires à celles du *cas-0*. Autrement dit, nous prenons les constantes identifiées en considérant une dissipation turbulente de 7 W/kg pour simuler l'état d'équilibre du système obtenu avec  $\epsilon = 0,47 \text{ W/kg}$ . Dans le cas du modèle d'*Alopaeus et al. (2002)*, nous constatons que bien que les DTG simulées ne se superposent pas aux mesures, les écarts restent relativement faibles. En revanche, on observe sur la figure 2.25 relative au modèle de *Coulaloglou & Tavlarides (1977)*, que les écarts sont beaucoup plus importants. Le modèle de *Martinez-Bazan et al. (1999)* présente un comportement similaire. Ces deux modèles sont donc plus sensibles à la définition de la dissipation turbulente pour capturer la dynamique de la rupture comme énoncé précédemment.

### 2.3.4 Identification de la coalescence

L'identification du noyau de coalescence est plus complexe que la rupture. En effet, l'ajout de la coalescence augmente considérablement le temps de calcul et crée de l'instabilité dans le modèle. Ceci a contribué à limiter le choix du modèle de coalescence, qui s'est porté sur le modèle de *Coulaloglou & Tavlarides (1977)* (voir la section 2.2.3) qui est le plus connu et le plus communément utilisé dans la littérature.

Il est important de noter que les DTG dont nous disposons ne pouvaient être toutes utilisées pour la tâche d'identification de la coalescence. En effet, celles mesurées à  $\phi =$

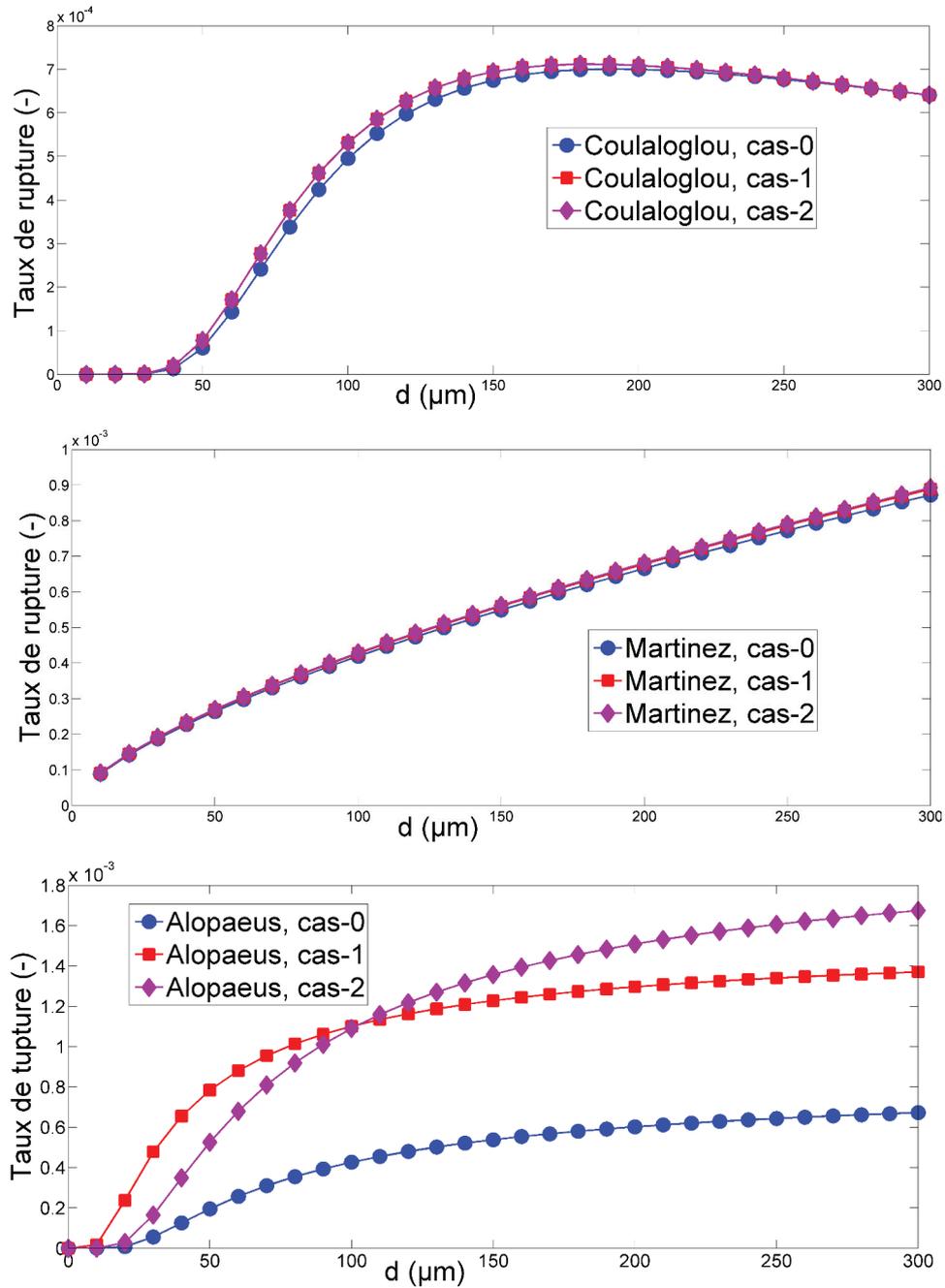


FIGURE 2.23 – Influence de la définition de la dissipation turbulente sur le taux de rupture prédit par les modèles de (**haut**) Coualaloglou, (**milieu**) Martinez – Bazan et (**bas**) Alopaeus ( $\epsilon = 0,48 \text{ W/kg}$ ).

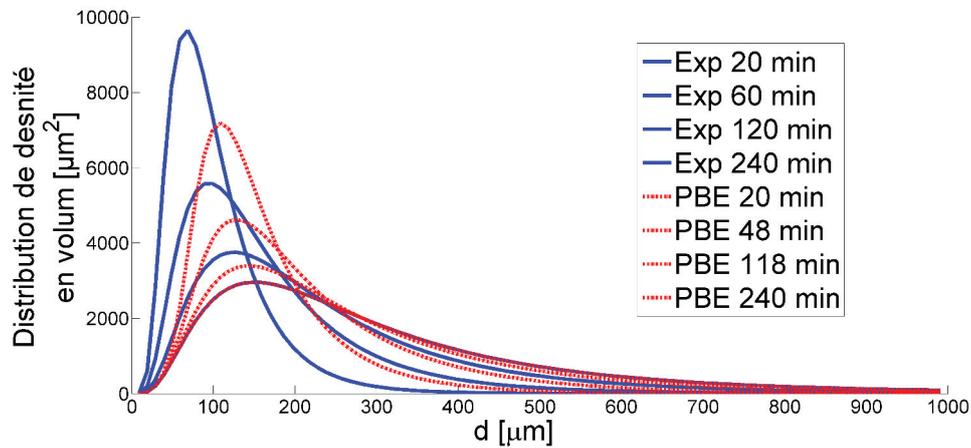


FIGURE 2.24 – Simulation du *cas-0* ( $\epsilon = 0,48 W/kg$ ) avec les constantes identifiées avec le *cas-2* ( $\epsilon = 7 W/kg$ ) : modèle d'*Alopæus et al.* (2002).

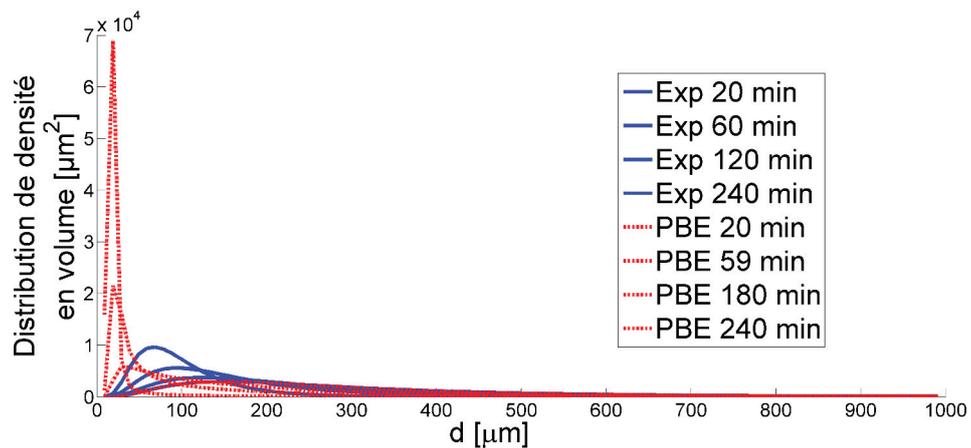


FIGURE 2.25 – Simulation du *cas-2* ( $\epsilon = 7 W/kg$ ) avec les constantes identifiées avec le *cas-0* ( $\epsilon = 0,48 W/kg$ ) : modèle de *Coulaloglou & Tavlarides* (1977).

---

10% présentent très peu d'évolution entre les différents instants de mesure (fig. (2.19)), ce qui rend le processus d'identification peu fiable. Pour bien comprendre la procédure d'identification de la coalescence, nous la décomposons ici en trois étapes :

- D'abord la simulation des DTG à  $\phi = 5\%$  est entreprise en utilisant les constantes de rupture déterminées à  $\phi = 1\%$  (pas de coalescence).
- Ensuite, nous simulons les DTG à  $\phi = 5\%$  en utilisant les constantes de rupture déterminées à  $\phi = 1\%$  et en ajoutant l'identification du noyau de coalescence.
- Enfin, nous réalisons l'identification des noyaux de rupture et de coalescence simultanément sur les DTG à  $\phi = 1\%$  puis sur les DTG à  $\phi = 5\%$ .

#### **Simulation des DTG à $\phi = 5\%$ en utilisant les constantes de rupture déterminées à $\phi = 1\%$**

Lorsque nous utilisons le modèle de rupture de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) avec les constantes identifiées à  $\phi = 1\%$  pour simuler les DTG à  $\phi = 5\%$  sans prise en compte d'un modèle de coalescence, nous obtenons des valeurs de densité volumique de distribution calculées plus faibles et réparties sur une gamme plus importante de tailles (en particulier vers les grandes tailles), ainsi qu'un mode inférieur vis-à-vis des caractéristiques des DTG mesurées. Le modèle de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) fait intervenir dans le calcul du taux de rupture une division de ce dernier par le taux de rétention. Ceci ne devrait avoir qu'un effet mineur puisque la division n'est que d'un facteur 1,05 (division par  $1+\phi$ ). Les deux autres modèles de rupture présentent des résultats similaires à ceux présentés en figure 2.26. De plus la DTG calculée continue d'évoluer entre 30 et 40 minutes, ce qui n'est plus le cas expérimentalement. L'absence de modèle de coalescence qui vient équilibrer la rupture se fait donc déjà ressentir dès 5% de phase dispersée.

#### **Simulation des DTG à $\phi = 5\%$ en utilisant les constantes de rupture déterminées à $\phi = 1\%$ et en rajoutant la coalescence**

La figure 2.27 illustre les résultats obtenus avec le modèle de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#)). Nous constatons que le modèle n'arrive pas à s'ajuster sur les DTG mesurées. Les fines gouttes font défaut, les particules de grande taille sont en excès, seule la position du mode et la dynamique de variation de la DTG est à peu près correcte. L'efficacité de collision semble favoriser la coalescence des petites gouttes, mais la rupture des grosses gouttes est insuffisante.

---

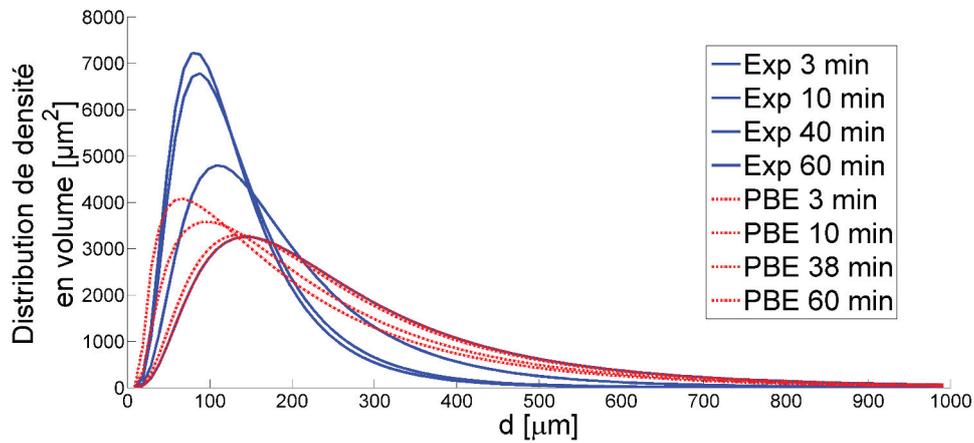


FIGURE 2.26 – Simulation des DTG à  $\phi = 5\%$  en utilisant les constantes identifiées à  $\phi = 1\%$  : rupture seule avec le modèle de [Coualoglou & Tavlarides \(1977\)](#) ( $\epsilon = 0,48$  W/kg).

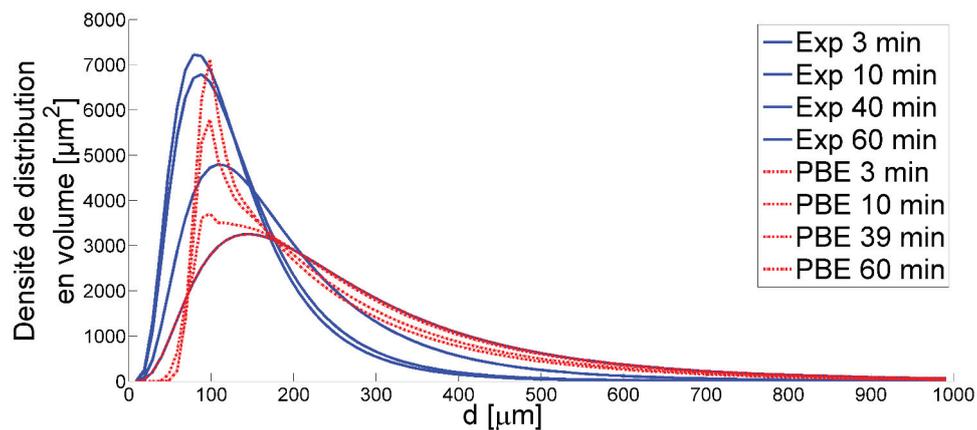


FIGURE 2.27 – Simulation des DTG à  $\phi = 5\%$  en utilisant les constantes identifiées à  $\phi = 1\%$  et en identifiant la coalescence :  $C_3 = 4 \times 10^{-5}$ ,  $C_4 = 7 \times 10^{15}$  (modèle de rupture de [Coualoglou & Tavlarides \(1977\)](#),  $\epsilon = 0,48$  W/kg).

---

**Simulation des DTG à  $\phi = 1\%$  et  $\phi = 5\%$  en identifiant simultanément la rupture et la coalescence**

Pour identifier la rupture et la coalescence simultanément, nous avons repris les DTG mesurées à 1% et à 5%. Celles à 10% ne peuvent pas être utilisées pour l'identification car elles ne présentent pas d'évolution, comme précédemment indiqué. Selon le noyau de rupture utilisé, 4 ou 5 constantes sont ajustées à la fois. L'ajustement se fait en fixant l'efficacité de collision dans le noyau de coalescence et en ajustant les autres paramètres. Si cette constante n'est pas fixée au préalable, le modèle ne parvient pas à s'ajuster sur les DTG mesurées. Évidemment, différentes valeurs ont été assignées à ce paramètre pour trouver le meilleur ajustement.

Le tableau 2.10 regroupe l'ensemble des constantes identifiées en combinant à chaque fois les trois modèles de rupture au modèle de coalescence choisi. A partir de la seule observation de ce tableau il est difficile d'appréhender le comportement des différents modèles de rupture. Au cours du processus d'identification, nous avons observé deux comportements différents. D'un côté, le modèle de rupture de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) et de l'autre les deux autres modèles de rupture, tous trois combinés au même modèle de coalescence.

Dans le premier cas, les DTG simulées arrivent à s'ajuster sur la mesure pour les deux rétentions. L'ajustement est correct, comme nous pouvons le voir sur les figures 2.28 et 2.29, la simulation reproduisant l'ensemble des instants mesurées. Dans ce cas, les constantes de rupture retrouvées sont différentes de celles identifiées dans le cas où seule la rupture est considérée. Nous pouvons d'ailleurs voir sur la figure 2.30 où nous avons utilisé la rupture seule avec ces nouvelles constantes, que les DTG sont bien décalées à gauche avec des valeurs modales de densité volumique plus importantes. La coalescence permet, comme on pouvait s'y attendre, de ramener les DTG simulées sur la mesure. Dans le deuxième cas, les modèles de [Martinez-Bazan \*et al.\* \(1999\)](#) et [Alopaeus \*et al.\* \(2002\)](#) présentent un comportement différent. En effet, les constantes identifiées dans ce cas sont très proches de celles identifiées avec de la rupture seule, ce qui produit un taux de coalescence très faible, voire négligeable. Nous n'avons pas réussi à empêcher ce comportement puisque, quelles que soient les valeurs initiales des paramètres, le modèle converge vers les valeurs obtenues avec la rupture seule. Nous verrons dans la partie consacrée au modèle CFD-PBE que certains exemples de la littérature peuvent également présenter un comportement similaire, où seule la rupture semble avoir un réel effet sur les diamètres moyens simulés. Pour s'affranchir de la difficulté constatée avec les modèles de [Martinez-Bazan \*et al.\* \(1999\)](#) et [Alopaeus \*et al.\* \(2002\)](#), nous avons repris l'identification avec ces deux modèles en forçant les constantes de rupture. Ainsi, préalablement, nous mettons des constantes qui semblent cohérentes, autrement dit qui prédisent des DTG plus hautes et décalées à gauche quand seule la rupture est considérée, et nous ajustons par la résolution du problème inverse les constantes du modèle de coalescence. Le tableau 2.11 regroupe quatre jeux de constantes obtenus de cette façon sur le modèle d'[Alopaeus \*et al.\* \(2002\)](#). Pour mieux comprendre l'effet des constantes sur la probabilité et l'efficacité

---

TABLE 2.10 – Identification simultanée des noyaux de rupture ( *Coulaloglou & Tavlarides*, *Martinez – Bazan* et *Alopaeus*) et de coalescence (*Coulaloglou*) sur les DTG à  $\phi = 1\%$  et  $\phi = 5\%$ .

Modèle de rupture	Constantes identifiées $\phi = 1\%$	Constantes identifiées $\phi = 5\%$
<i>Coulaloglou &amp; Tavlarides</i>	$C_1=4,81 \times 10^{-6}$ $C_2=3,73 \times 10^{-4}$ $C_3=3,86 \times 10^{-7}$ $C_4=2 \times 10^{15}$	$C_1=7,69 \times 10^{-5}$ $C_2=0,0026$ $C_3=1,51 \times 10^{-6}$ $C_4=791$
<i>Martinez – Bazan</i>	$K_{TI}=3,5 \times 10^{-7}$ $C_3=1,56 \times 10^{-7}$ $C_4=2 \times 10^{15}$	$K_{TI}=1,72 \times 10^{-6}$ $C_3=2 \times 10^{-7}$ $C_4=2,87 \times 10^3$
<i>Alopaeus</i>	$A_1= 0,0011$ $A_2=4,31 \times 10^{-4}$ $A_3=0,2$ $C_3=2,1 \times 10^{-12}$ $C_4=2 \times 10^{16}$	$A_1= 0,0039$ $A_2=3,89 \times 10^{-4}$ $A_3=0,2$ $C_3=2,17 \times 10^{-4}$ $C_4=2 \times 10^{17}$

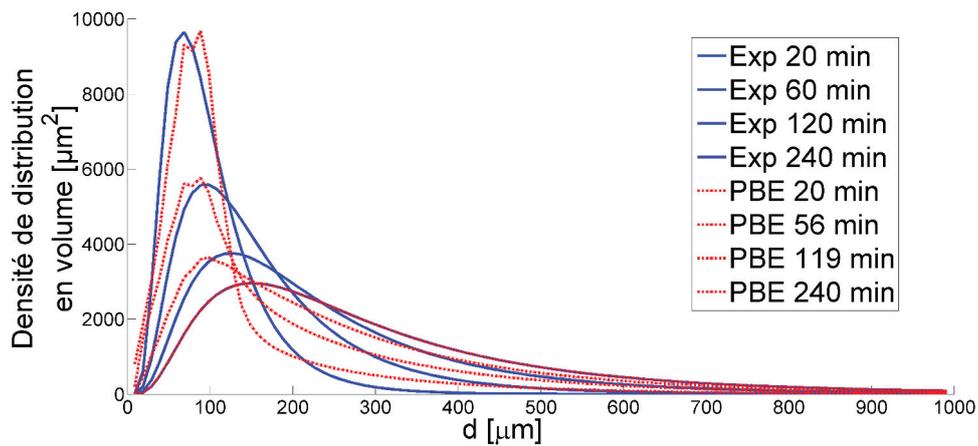


FIGURE 2.28 – Identification simultanée de la rupture et de la coalescence sur les DTG à  $\phi = 1\%$  (modèle de rupture de *Coulaloglou & Tavlarides* (1977),  $\epsilon = 0,48$  W/kg).

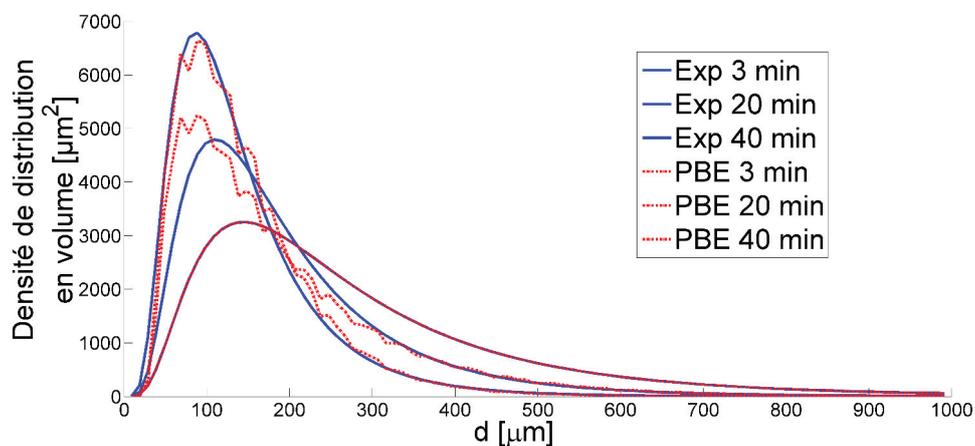


FIGURE 2.29 – Identification simultanée de la rupture et de la coalescence sur les DTG à  $\phi = 5\%$  (modèle de rupture de Coualoglou & Tavlarides (1977),  $\epsilon = 0,48$  W/kg).

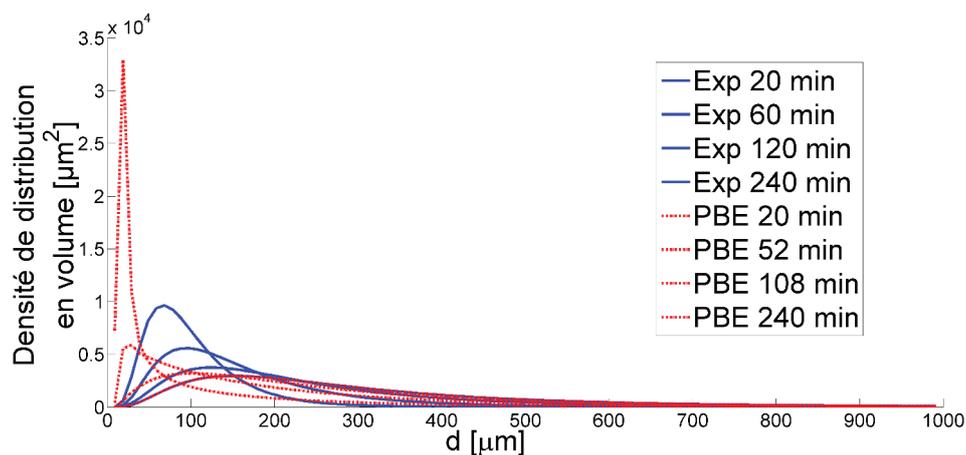


FIGURE 2.30 – Simulation des DTG à  $\phi = 1\%$  avec la rupture seule (en utilisant les constantes du tableau 2.10, modèle de rupture de Coualoglou & Tavlarides (1977),  $\epsilon = 0,48$  W/kg).

---

de collision, nous avons tracé la figure 2.31 qui permet de voir que la constante  $C_3$  agit sur l'ordre de grandeur de la fréquence de collision. Nous pouvons aussi constater que l'efficacité de collision augmente avec le diamètre de la goutte, ce qui est cohérent puisque le modèle de coalescence se base sur la section des gouttes. La constante  $C_4$ , quant à elle, permet de situer l'efficacité de collision sur les petites ou les grosses gouttes. Ainsi, plus ce paramètre est petit, plus l'efficacité de collision touche les grosses gouttes. La valeur de l'efficacité de collision maximale étant égale à l'unité.

La figure 2.32 permet de comparer le taux de rupture et de coalescence pour les quatre jeux de données du tableau 2.11. Nous pouvons remarquer que l'augmentation de la rupture s'accompagne d'une augmentation de la coalescence. Ces deux effets ne sont donc pas dissociables puisque c'est la compétition entre les deux qui permet de stabiliser l'émulsion. Ceci peut aussi expliquer les DTG plus hautes que nous avons remarquées dans les mesures à  $\phi = 5\%$  comparées à celles à  $\phi = 1\%$ . Néanmoins, nous pouvons penser que le jeu de données que nous avons nommé **Jeu 3** présente le comportement le plus cohérent. En effet, l'efficacité de coalescence doit présenter un maximum et diminuer pour les grosses gouttes, ce qui est physiquement le plus plausible. Numériquement, ce comportement évite d'avoir des diamètres de plus en plus importants, qui peuvent biaiser les distributions simulées. Comme conclusion sur cette partie d'identification du noyau de coalescence, nous pouvons dire que le modèle de rupture de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) combiné au modèle de coalescence permet de prédire correctement les DTG mesurées pour les deux taux de rétention retenus pour cette étude. Les deux autres modèles ne parviennent pas à s'ajuster automatiquement sur les DTG mesurées. Ils tendent à prédire une coalescence quasi nulle et ne font que prédire la rupture. Néanmoins, nous avons vu qu'il est possible de forcer le modèle d'[Alopaeus et al. \(2002\)](#) à représenter aussi bien la rupture que la coalescence. Les constantes identifiées dans cette partie seront utilisées dans la partie consacrée au modèle couplé CFD-PBE pour simuler les DTG dans une colonne pulsée. Nous pouvons aussi dire que les phénomènes de rupture et de coalescence doivent être considérés simultanément pour une compréhension plus fine des différents modèles. Il peut être possible de dissocier ces deux phénomènes dans des cas précis, comme par exemple en présence de surfactant. Cette piste n'a pas été explorée dans le présent manuscrit car elle engendre une modification importante des propriétés de l'émulsion.

TABLE 2.11 – Identification simultanée du noyau de rupture d'*Alopaeus* et de coalescence (*Coulaloglou*) sur les DTG à  $\phi = 5\%$  : différents jeux de constantes obtenus en fixant préalablement la rupture.

Modèle de rupture	Constantes fixée	Constantes identifiées
<i>Alopaeus</i>	Aucune ( <b>Jeu 1</b> )	$A_1 = 0,0039$ $A_2 = 3,89 \times 10^{-4}$ $A_3 = 0,2$ $C_3 = 2,17 \times 10^{-4}$ $C_4 = 2 \times 10^{17}$
<i>Alopaeus</i>	$A_1$ et $A_3$ ( <b>Jeu 2</b> )	$A_1 = 0,008$ $A_2 = 4,44 \times 10^{-14}$ $A_3 = 0,2$ $C_3 = 5,77 \times 10^{-7}$ $C_4 = 2 \times 10^3$
<i>Alopaeus</i>	$A_1$ et $A_3$ ( <b>Jeu 3</b> )	$A_1 = 0,01$ $A_2 = 4,44 \times 10^{-14}$ $A_3 = 0,2$ $C_3 = 9,5 \times 10^{-7}$ $C_4 = 2 \times 10^{13}$
<i>Alopaeus</i>	$A_1$ et $A_3$ ( <b>Jeu 4</b> )	$A_1 = 0,001$ $A_2 = 5,88 \times 10^{-9}$ $A_3 = 0,002$ $C_3 = 1,1 \times 10^{-6}$ $C_4 = 2 \times 10^3$

---

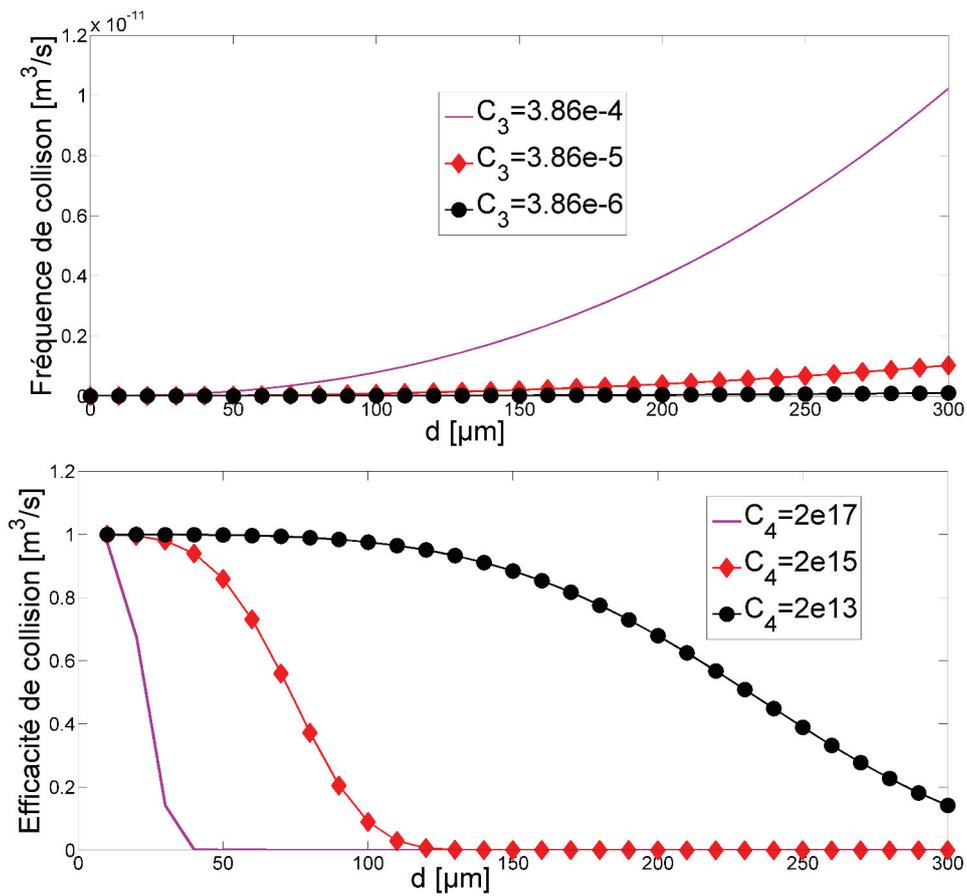


FIGURE 2.31 – Effet des constantes  $C_3$  et  $C_4$  sur la fréquence et l'efficacité de collision.

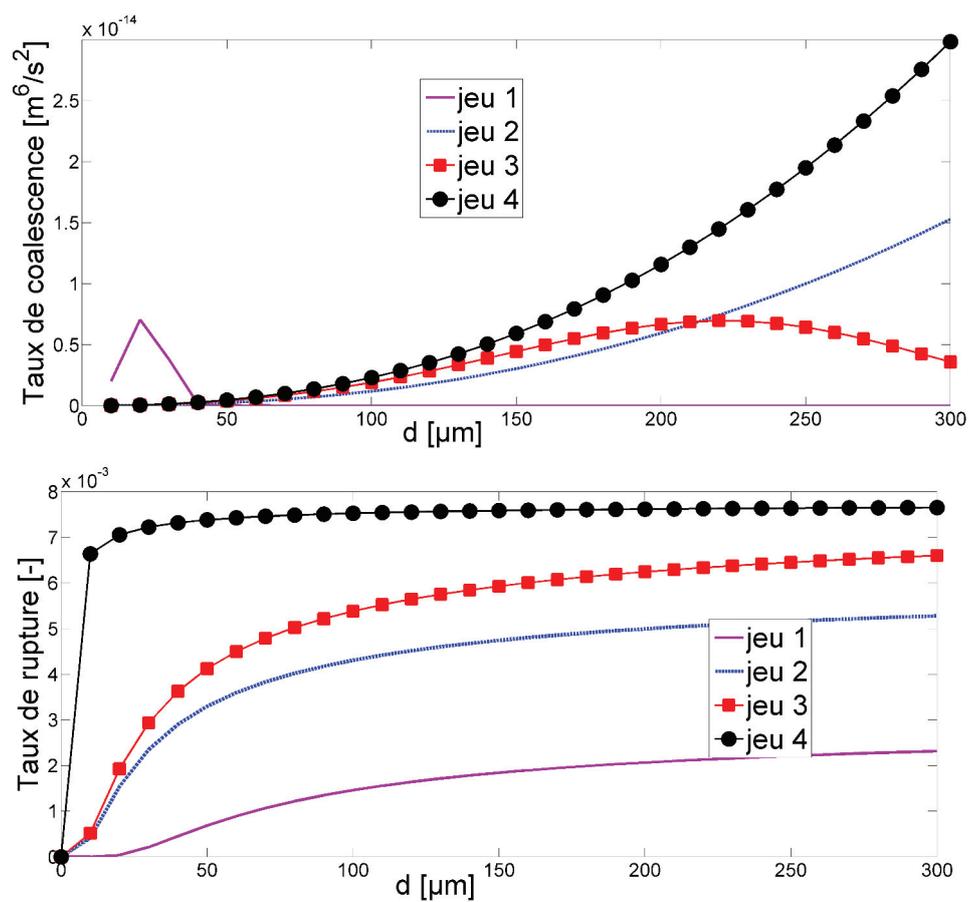


FIGURE 2.32 – Simulation des DTG à  $\phi = 1\%$  avec la rupture seule (en utilisant les constantes du tableau 2.10, modèle de rupture de Coualoglou & Tavlarides (1977),  $\epsilon = 0,48 \text{ W/kg}$ ).

## 2.4 Conclusion

Le présent chapitre a été consacré à l'identification des noyaux de rupture et coalescence dans le but de modéliser les distributions de taille de gouttes dans une colonne pulsée. Nous avons notamment utilisé un RPA pour décrire les conditions d'écoulement prépondérantes dans une colonne pulsée, notamment en ce qui concerne la dissipation turbulente. Des DTG ont été mesurées par une sonde vidéo in-situ plongée dans un RPA agité par une hélice. Ce type de mobile a été choisi pour assurer un cisaillement modéré associé à un pompage élevée.

Le sonde vidéo a été préalablement calibrée et validée en mesurant des distributions de billes calibrées, puis en se comparant à un autre système de mesure in-situ. Cette étape nous a permis de déterminer les conditions optimales de mesure des DTG et d'évaluer la précision de ces mesures.

Nous avons ensuite entrepris le travail d'identification des noyaux de rupture et coalescence. Dans un premier temps, une étude bibliographique nous a permis de sélectionner la méthode de résolution de la PBE ainsi que les noyaux de rupture et coalescence. Ces derniers ont ensuite été identifiés sur les DTG mesurées.

L'identification a été entreprise premièrement sur les DTG à  $\phi = 1\%$  en ne considérant que la rupture après avoir fait l'hypothèse de l'absence de coalescence à cause de la faible rétention. Les trois modèles de rupture étudiés ont été capables de s'ajuster sans grande difficulté sur les DTG et les constantes ont ainsi pu être déterminées. Nous avons également pu déterminer l'influence que peut avoir la définition de la dissipation turbulente. Avec l'hypothèse d'une partie de l'énergie dissipée dans un volume précis enveloppant le mobile d'agitation, nous avons pu montrer que la sensibilité vis-à-vis des valeurs des constantes identifiées demeure négligeable. Cependant, nous pensons qu'une étude plus poussée sur ce volet peut être intéressante en se basant sur une approche multizone où la rupture et la coalescence ont lieu dans des endroits précis du réacteur.

L'ajout de la coalescence a pour effet de rendre la tâche d'identification plus complexe, puisque la résolution du problème inverse prend plus de temps et les simulations deviennent moins stables numériquement. Dans un premier temps, nous avons repris les constantes de rupture identifiées et essayé d'identifier les constantes du modèle de coalescence. Cette approche s'est révélée infructueuse, puisque ces constantes prédisent des DTG en contradiction avec l'effet escompté. En effet, l'observation des DTG mesurées à différents taux de rétention nous a permis de comprendre que la coalescence et la dynamique de rupture augmentent avec la rétention. Il n'est donc pas possible de dissocier ces deux effets, à moins d'inhiber complètement la coalescence. Il est ainsi nécessaire d'identifier les noyaux de rupture et coalescence ensemble. Nous avons alors observé des comportements différents des différents modèles de rupture combinés au modèle de coalescence. Ainsi, le modèle de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) permet de reproduire correctement les DTG mesurées. En revanche, dans le cas d'un ajustement non contraint, les deux autres

---

## 2. ÉQUATIONS DU BILAN DE POPULATION (PBE) : 110 IDENTIFICATION DES NOYAUX DE RUPTURE ET COALESCENCE

---

modèles de rupture prédisent une coalescence quasi nulle. Il a été nécessaire de fixer au préalable une partie des constantes de rupture afin de mener à bien l'identification des autres constantes en particulier pour la coalescence.

Enfin, cette démarche d'identification nous a permis d'avoir une meilleure compréhension du comportement de l'émulsion et des phénomènes de rupture et coalescence.

Un modèle couplé CFD-PBE est présenté dans le chapitre suivant où les constantes identifiées dans ce chapitre sont utilisées pour modéliser les DTG dans une colonne pulsée.

## 3

# Modélisation des propriétés de l'émulsion : couplage CFD-PBE

Contrairement aux études historiques sur la modélisation des colonnes pulsées (Casamatta (1981), Aoun-Nabli *et al.* (1997)), le couplage de la mécanique des fluides numérique et du bilan de population est aujourd'hui possible grâce à l'évolution des moyens de calcul et à l'émergence de nouvelles méthodes de résolution de la PBE. L'avantage de ce couplage est d'avoir un accès à la distribution de taille de gouttes tout en tenant compte des inhomogénéités du champ turbulent moyen dans la colonne.

Dans le présent chapitre, nous réalisons un couplage CFD-PBE pour modéliser les DTG dans un colonne pulsée. Pour ce faire, nous tenons compte des conclusions des études dédiées d'une part à l'hydrodynamique et d'autre part à la représentation de la population de gouttes, présentées respectivement aux chapitres (1.1) et (2). Nous articulerons ce travail en différentes parties.

- Tout d'abord, nous décrivons le modèle développé, et en particulier la méthode QMOM choisie. Les raisons de ce choix sont discutées et les résultats des simulations effectuées dans la colonne pulsée de diamètre  $D = 50$  mm utilisée pour l'étude hydrodynamique et décrite au chapitre 1 sont discutés et comparés aux données de la littérature.
  - Nous décrivons ensuite les expériences réalisées dans une colonne pulsée de diamètre  $D = 25$ mm classiquement utilisée au laboratoire pour tester les schémas d'extraction. Des mesures de DTG ont été réalisées in-situ, et pour différentes conditions opératoires, afin d'avoir des données pour la validation du modèle couplé, dont les composantes sont par ailleurs validées séparément dans les chapitres précédents.
  - Enfin, une étude de sensibilité à la fois numérique et expérimentale a été réalisée, dont les résultats sont comparés et discutés dans la dernière partie.
-

## 3.1 Présentation du modèle numérique

### 3.1.1 La méthode QMOM

Les méthodes des moments reposent sur la résolution d'équations de transport pour les moments de la distribution plutôt que pour la distribution elle-même. Elles sont toutes basées sur les moments par rapport à une coordonnée interne, le diamètre de la goutte, noté  $L$ , dans notre cas.

Le moment d'ordre  $k$  de la distribution, vis-à-vis de la coordonnée interne  $L$ , est donné par l'expression suivante :

$$m_k(\vec{y}, t) = \int_0^\infty n(L, \vec{y}, t) L^k dL \quad (3.1)$$

L'avantage évident de ces méthodes est la réduction du nombre d'équations à résoudre, et la réduction du temps de calcul qui en résulte. Néanmoins, le suivi direct des moments de la distribution, qui est l'essence de la méthode des moments classique, pose des problèmes de fermeture, notamment lorsque les noyaux de rupture et de coalescence dépendent de la coordonnée interne. Pour contourner ce problème, [McGraw \(1997\)](#) a proposé la méthode des moments quadratiques, QMOM (*Quadrature Method of Moments* en anglais), où la fermeture exacte nécessaire dans la méthode classique est remplacée par une approximation quadratique. La méthode QMOM peut donc être généralisée à tous types de noyaux de rupture et de coalescence et couvre ainsi un éventail plus large d'applications.

L'approximation quadratique du moment d'ordre  $k$  est donnée par :

$$m_k = \sum_{i=1}^N w_i L_i^k \quad (3.2)$$

où  $m_k$ , définie par ses  $N$  abscisses  $L_i$  et  $N$  poids  $w_i$ , peut être calculée par ses  $2N$  premiers moments  $m_0, \dots, m_{(2N-1)}$ .

La procédure utilisée pour le calcul des poids et abscisses repose sur l'algorithme "Product-Difference-Algorithm" (PDA) proposé par [Gordon \(1968\)](#). Cet algorithme transforme une séquence de moments en un ensemble de coefficients d'une fraction continue. Une matrice diagonale est ensuite définie à partir des produits et des sommes de ces coefficients. Les poids et abscisses sont enfin déterminés à partir des valeurs propres et vecteurs propres de cette matrice ([Marchisio et al., 2003b](#)). Ceci étant fait, toute intégrale qui fait appel à la densité de probabilité en nombre peut être calculée. Ainsi le terme source de l'équation (2.1) devient :

$$B_k^b = \sum_{i=1}^N w_i \int_0^\infty L_i^k b(L_i) \beta(L|L_i) dL \quad (3.3)$$

$$D_k^b = \sum_{i=1}^N w_i L_i^k b(L_i) \quad (3.4)$$


---

$$B_k^c = \frac{1}{2} \sum_i^N w_i \sum_j^N w_j (L_i^3 + L_j^3)^{k/3} a_{ij} \quad (3.5)$$

$$D_k^c = \sum_i^N L_i^k w_i \sum_j^N a_{ij} w_j \quad (3.6)$$

Marchisio *et al.* (2003b) ont démontré que pour simuler la distribution d'une manière satisfaisante, il suffisait de résoudre ses six premiers moments. Nous avons choisi d'utiliser ce nombre dans le cadre de notre étude.

Le choix de la QMOM est essentiellement dû à son faible coût en temps de calcul. Il est généralement possible de reconstruire la distribution complète à partir de la connaissance des moments, à partir d'outils mathématiques. Néanmoins, comme déjà expliqué chapitre 2, cette procédure ajoute un degré d'incertitude au modèle. De plus, que ce soit dans le cadre de l'extraction liquide-liquide, ou encore du procédé de précipitation, la connaissance du diamètre de Sauter  $d_{32}$ , ou du  $d_{45}$ , est largement suffisante. La QMOM, qui conserve les six premiers moments à partir desquels ces différentes définitions du diamètre moyen peuvent être calculées est donc particulièrement bien adaptée à notre problématique.

### 3.1.2 Domaine de calcul et conditions aux limites

Les simulations couplées CFD-PBE ont été réalisées avec le modèle  $k - \epsilon$  standard. Le domaine de calcul et le maillage, sélectionnés dans le cadre de la validation du modèle hydrodynamique pour la colonne de diamètre  $D = 50\text{mm}$  (voir section 1.1.2) ont été conservés pour les simulations couplées CFD-PBE. Par analogie, pour la colonne de diamètre  $D = 25\text{mm}$  utilisée pour le suivi en ligne des propriétés de l'émulsion, nous avons utilisé un domaine comportant 6 compartiments découpés en 36300 cellules. Dans les deux cas, nous nous sommes assurés de la convergence en maillage.

De même, les conditions aux limites, pour la phase continue, sont similaires à celles considérées lors de l'étude de l'écoulement monophasique (voir section 1.1.3).

En ce qui concerne la phase dispersée, dans le cadre de la méthode QMOM, il convient d'initialiser les moments dans tout le domaine et de choisir une configuration appropriée au niveau des conditions aux limites d'entrée et de sortie du domaine.

Le  $d_{32}$  est lié au moment d'ordre zéro, représentant le nombre total de gouttes, par la relation suivante :

$$d_{32} = \left( \frac{6\phi}{\pi m_0} \right)^{1/3} \quad (3.7)$$

Ainsi, pour fixer une valeur initiale et/ou aux limites du  $d_{32}$ , il est nécessaire de choisir des valeurs de la rétention,  $\phi$ , et du moment d'ordre zéro,  $m_0$ . Les valeurs initiales ou aux limites des autres moments,  $m_1$  à  $m_5$ , se déduisent de  $m_0$  par récurrence.

Une autre solution, pourrait consister à injecter la phase dispersée sous forme d'un terme source au sein du domaine au lieu de l'injecter au niveau des conditions aux limites.

Cependant, cette méthode est plus laborieuse puisqu'elle nécessite de déterminer par itération le débit massique injecté a posteriori.

La convergence des calculs est suivie sur les grandeurs d'intérêt, à savoir le diamètre moyen, la fraction volumique de la phase dispersée et les moments. Lors des simulations, des problèmes de stabilité, liés à la difficulté des schémas numériques à assurer la conservation de la masse ont été rencontrés. Ces instabilités sont d'autant plus importantes quand la coalescence est activée. Le même type d'instabilité a été observé lors des simulations 0D présentées au chapitre (2), également lors de la prise en compte de la coalescence. Seul le schéma upwind d'ordre 1, *FOU*, a permis d'avoir des calculs numériquement stables. Notons que, dans la mesure où le pas de temps est plus petit dans ces simulations couplées que lors des simulations hydrodynamiques seules, l'écart de précision du schéma *FOU* par rapport aux autres schémas testés au chapitre (1) est vraisemblablement réduit.

Les simulations ont été réalisées en parallèle sur 4 processeurs. Le temps nécessaire pour une simulation est variable, allant de 10 à 24 h selon le pas de temps et les conditions opératoires simulées.

### 3.1.3 Application à la modélisation des propriétés de l'émulsion

Le modèle couplé CFD-PBE a dans un premier temps été utilisé pour modéliser les propriétés de l'émulsion dans la colonne de diamètre  $D = 50\text{mm}$  qui nous a permis d'étudier l'écoulement monophasique et la distribution de temps de séjour des gouttes, et sur laquelle la dissipation turbulente a été caractérisée expérimentalement.

#### Choix du pas de temps

Le choix du pas de temps,  $dt$ , est basé sur le critère de Courant :

$$N_c = \frac{U_x dt}{\Delta X} < 1 \quad (3.8)$$

où  $U_x$  et  $\Delta X$  désignent respectivement la vitesse et la dimension de la maille dans la direction  $x$ . Pour estimer la valeur du pas de temps, nous avons considéré la maille la plus petite et la vitesse maximale qui est donnée par :

$$U_{max} = \frac{1}{T_*} \pi A f \quad (3.9)$$

avec  $T_*$  la transparence, à savoir la fraction de surface offerte au passage du liquide. Dans ces conditions, les plus contraignantes, il vient  $dt = 1\text{ms}$ .

Pour le vérifier, nous avons comparé les résultats des simulations avec ce pas de temps à

---

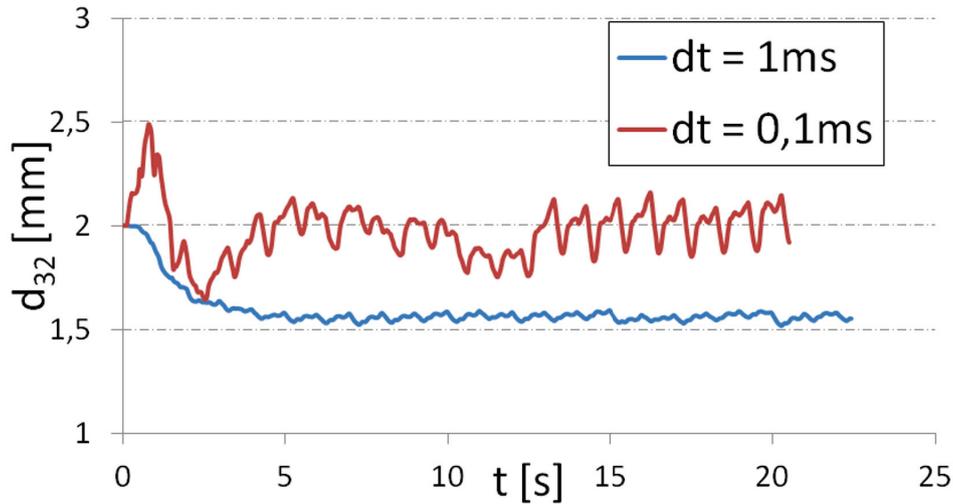


FIGURE 3.1 – Influence du pas de temps sur la stabilisation de la condition initiale (exemple avec un diamètre initial  $d_{32} = 2\text{mm}$ ,  $f = 1\text{Hz}$ ,  $A = 4\text{cm}$ ).

ceux obtenus avec un pas de temps dix fois plus petit  $dt = 0,1\text{ms}$ , pour différentes conditions initiales et avec des taux de rupture et de coalescence nuls. Dans un tel cas, si le pas de temps est correct, la valeur du  $d_{32}$  doit osciller autour de la valeur initiale, sous l'effet de la pulsation. Les résultats sont illustrés sur la figure 3.1. Nous pouvons constater que le  $dt$  préconisé par le critère de Courant ne permet pas de reproduire correctement le diamètre moyen initial. Les résultats obtenus avec  $dt = 0,1\text{ms}$  sont en revanche satisfaisants. Les oscillations observées sont liées aux différents niveaux de turbulence rencontrés dans l'écoulement pulsé. Néanmoins, l'inconvénient de l'utilisation d'un pas de temps aussi petit est le temps de calcul élevé. Aussi, pour les simulations préliminaires décrites ci-après nous utiliserons un pas de temps de 1 ms, et nous baserons les comparaisons qualitatives sur le diamètre convergé de la figure 3.1. Ce résultat sera également utilisé comme diamètre initial effectif<sup>1</sup>. En revanche pour les études quantitatives et les comparaisons modèle / expérience menées sur la colonne de diamètre  $D = 25\text{mm}$ , nous utiliserons le pas de temps de  $dt = 0,1\text{ms}$ .

### Prise en compte des termes source dans la PBE

Afin de vérifier que le modèle couplé répond d'une manière cohérente aux noyaux de rupture et coalescence, nous avons dans un premier temps étudié l'influence des paramètres de ces noyaux sur les propriétés de l'émulsion, prédites par le modèle.

La figure 3.2 permet d'apprécier la robustesse et la sensibilité du modèle numérique à une augmentation du taux de rupture ou du taux de coalescence. Pour ce faire, nous

<sup>1</sup>A chaque fois qu'une autre valeur du diamètre initial est utilisée, un calcul préalable est réalisé pour déterminer le diamètre initial effectif.

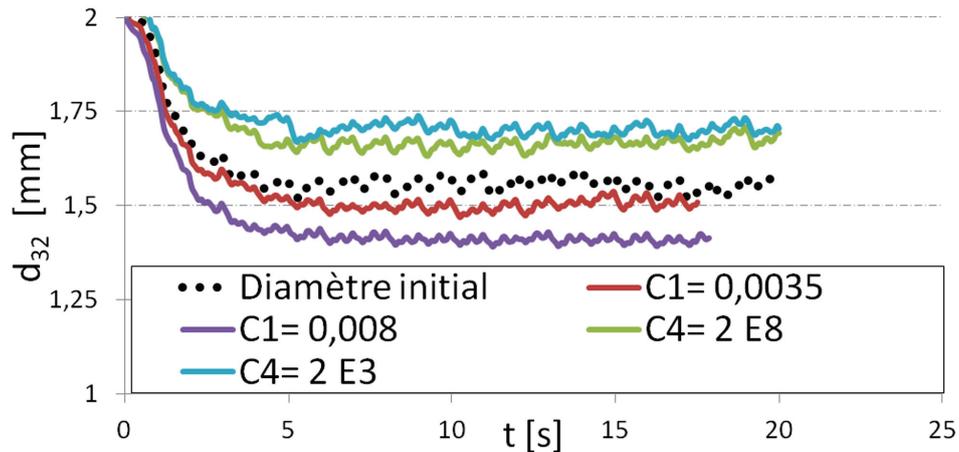


FIGURE 3.2 – Sensibilité du modèle couplé aux noyaux de rupture et de coalescence. Les constantes par défaut sont :  $C_1 = 3,51 \times 10^{-6}$ ,  $C_2 = 0,0035$ ,  $C_3 = 3,86 \times 10^{-3}$ ,  $C_4 = 2 \times 10^{15}$  (modèle de rupture de Coualaloglou,  $f = 1\text{Hz}$ ,  $A = 4\text{cm}$ )

avons artificiellement (et significativement) modifié les constantes correspondantes dans le modèle de Coualaloglou & Tavlarides (1977). Chaque courbe correspond à la modification d'une constante, comme indiqué dans la légende, les autres étant maintenues à leur valeur par défaut. On observe que l'augmentation du taux de rupture, respectivement du taux de coalescence, entraîne effectivement une diminution, respectivement une augmentation, du diamètre moyen, ce qui confirme la sensibilité du modèle. En outre, compte-tenu de l'importance des variations imposées aux paramètres, on peut également affirmer que *i*) le code est robuste vis-à-vis de ces paramètres et *ii*) que les noyaux de rupture y sont peu sensibles.

Les résultats obtenus, dans les mêmes conditions, en utilisant les constantes identifiées en RPA au chapitre 2, rappelées dans le tableau 2.10, sont illustrés sur la figure 3.3. On observe qu'à l'équilibre, le diamètre moyen prédit par le modèle se superpose au diamètre initial effectif, signe de l'absence significative de rupture et de coalescence en utilisant ces constantes. Ce comportement, qui a également été observé pour d'autres valeurs de l'amplitude et de la fréquence de pulsation, amène un questionnement sur les écarts entre le processus d'émulsification en colonne pulsée (simulation) et en RPA (identification de ces noyaux). Et notamment :

- Le diamètre des gouttes. En effet, et bien que comme nous le verrons par la suite, les DTG mesurées en colonne pulsée sont proches de celles considérées lors de l'identification paramétrique, de très grosses gouttes sont également détectées, au-delà des limites rencontrées dans le RPA.
- Le champ de turbulence. En effet, la dissipation turbulente est localement très élevée dans la colonne pulsée, notamment au niveau des jeux entre les couronnes et les parois. Ces endroits jouent vraisemblablement un rôle important dans le processus de rupture. Or, comme nous l'avons indiqué au chapitre 2, ces niveaux de turbulence

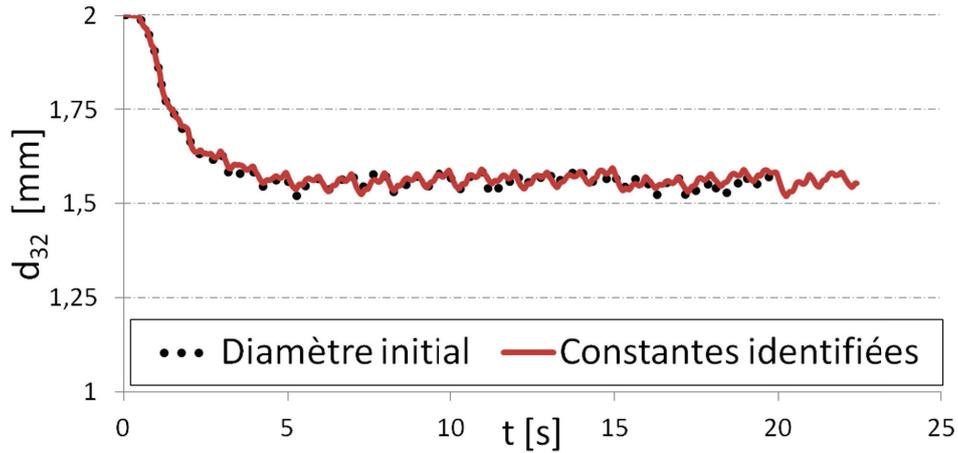


FIGURE 3.3 – Modélisation du diamètre moyen en utilisant les constantes identifiées dans le RPA :  $C_1 = 3,81 \times 10^{-6}$ ,  $C_2 = 3,74 \times 10^{-4}$ ,  $C_3 = 3,86 \times 10^{-7}$ ,  $C_4 = 2 \times 10^{15}$  (modèle de rupture de *Coulaloglou*,  $f = 1$  Hz,  $A = 4$  cm).

n'ont pas pu être étudiés dans le RPA à cause d'un problème de débordement de l'émulsion.

Nous verrons par la suite (section 3.3) qu'il sera nécessaire d'ajuster les paramètres de nos noyaux de rupture et de coalescence en vue de la comparaison modèle / expérience.

Il est intéressant à ce stade de discuter ce résultat vis-à-vis des principaux modèles de la littérature.

Les travaux de *Hsia & Tavlarides (1980)* et *Bapat & Tavlarides (1985)* ont également considéré l'émulsification dans un RPA. Le système de phase qu'ils ont utilisé est similaire à celui de *Coulaloglou & Tavlarides (1977)*, décrit dans le tableau 2.8, et dont les propriétés physico-chimiques sont assez proches du nôtre. Les constantes identifiées par ces différents auteurs pour le modèle de rupture et de coalescence de *Coulaloglou & Tavlarides (1977)* sont regroupées dans le tableau 3.1.

La figure 3.4 compare les diamètres moyens estimés par notre modèle CFD-PBE en utilisant ces différentes constantes. Nous constatons que, leurs constantes étant pratiquement identiques, les diamètres moyens obtenus avec les constantes préconisées par *Coulaloglou & Tavlarides (1977)* et *Bapat & Tavlarides (1985)* se superposent. L'écart au niveau des constantes de coalescence n'induit pas de différence significative puisque, comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, ces constantes ne font que décaler l'efficacité de collision vers les gouttes les plus grosses. Nous pouvons penser que compte-tenu de la valeur élevée de la constante  $C_4$  ( $C_4 = 2 \times 10^{12}$ ), l'ensemble de la gamme des diamètres présents dans le procédé est couvert. Par conséquent, la diminution de la constante n'a pas d'effet tangible sur les DTG.

Les résultats obtenus avec les constantes proposées par *Hsia & Tavlarides (1980)* indiquent un diamètre moyen à l'équilibre plus petit, ce qui était prévisible compte-tenu de la valeur du paramètre  $C_1$ .

TABLE 3.1 – Constantes identifiées dans la littérature pour le noyau rupture et de coalescence de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#).

Auteur de l'étude	$C_1$	$C_2$	$C_3$	$C_4$
<a href="#">Coulaloglou &amp; Tavlarides (1977)</a>	0,00487	0,0552	$2,17 \times 10^{-4}$	$2,28 \times 10^{13}$
<a href="#">Hsia &amp; Tavlarides (1980)</a>	0,0103	0,06354	$4,5 \times 10^{-4}$	$1,891 \times 10^{13}$
<a href="#">Bapat &amp; Tavlarides (1985)</a>	0,00481	0,08	$1,9 \times 10^{-3}$	$2 \times 10^{12}$

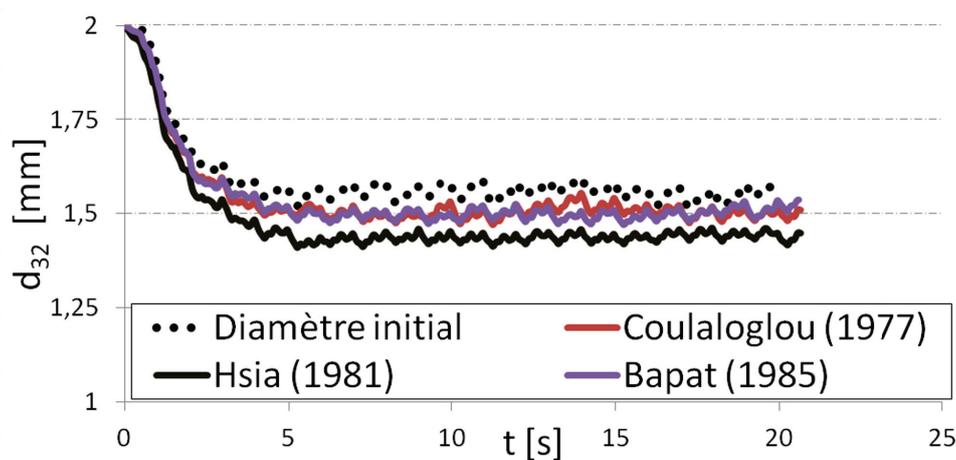


FIGURE 3.4 – Influence des constantes données dans la littérature sur la prédiction du  $d_{32}$  par le modèle CFD-PBE - Cas du modèle de rupture de Coulaloglou ( $f = 1\text{Hz}$ ,  $A = 4\text{cm}$ )

A nouveau, nous constatons que la sensibilité du modèle à ces constantes n'est pas élevée, un changement important des constantes se traduisant, comme dans le premier exemple, par une baisse relativement faible du diamètre moyen. Ce résultat est intéressant puisqu'il nous permet d'affirmer que ces noyaux sont peu sensibles aux fluctuations des valeurs numériques.

Pour finir, toujours à partir des données de la littérature, nous avons testé l'influence séparée de la rupture et de la coalescence sur la taille moyenne de l'émulsion. A titre d'exemple, la figure 3.5 montre les résultats obtenus avec les constantes de [Hsia & Tavlarides \(1980\)](#), les autres jeux de constantes conduisant aux mêmes conclusions. Le résultat est pour le moins surprenant puisque lorsque la coalescence est désactivée, le modèle converge vers la même valeur. D'un autre côté, lorsque la rupture est désactivée, le diamètre moyen se superpose parfaitement au diamètre initial.

Il semble que dans ces modèles, bien que les différents auteurs affirment avoir identifié à la fois la rupture et la coalescence, toute l'évolution de la distribution soit attribuée à la rupture. En effet les expériences décrites dans la littérature sont souvent réalisées en augmentant l'agitation, donc la turbulence. Pour identifier la rupture et la coalescence des expériences suivant le chemin inverse (en diminuant l'agitation) sont indispensables.

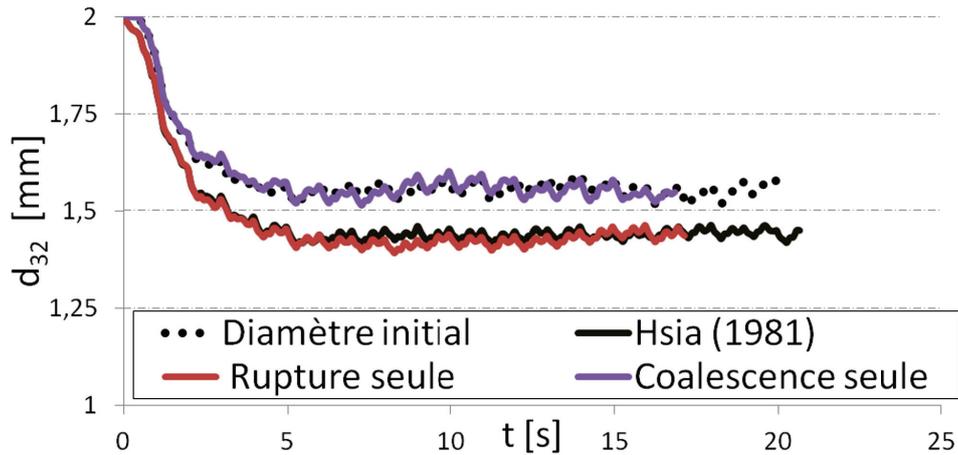


FIGURE 3.5 – Influence relative des noyaux de rupture et de coalescence sur la prédiction du  $d_{32}$  par le modèle CFD-PBE utilisant avec les constantes données par Hsia & Tavlarides (1980) avec la rupture et la coalescence seules ( $f = 1\text{Hz}$ ,  $A = 4\text{cm}$ )

## 3.2 Propriétés de l'émulsion dans une colonne pulsée : étude expérimentale

### 3.2.1 Matériel et méthodes

La colonne de diamètre  $D = 50$  mm utilisée pour valider le modèle CFD est adaptée aux mesures optiques non intrusives. Comme discuté au chapitre 2, et bien que de nouvelles techniques soient en cours de développement, comme l'holographie (Lamadie, 2013), il est encore aujourd'hui difficile de quantifier expérimentalement les propriétés de la population de gouttelettes, et ses évolutions. Aussi, pour valider le modèle couplé CFD-PBE, une méthode intrusive a été utilisée afin de mesurer les DTG dans une colonne pulsée d'extraction classiquement utilisée en R&D au CEA. Cette colonne a un diamètre interne de  $D = 25$  mm. Elle est pourvue de différentes vannes de prélèvement, régulièrement espacées dans la direction axiale. L'une de ces vannes a été enlevée afin de pouvoir introduire une sonde endoscopique (section 2.1.4), en prenant les précautions nécessaires pour perturber le moins possible l'écoulement. Les mesures de DTG seront utilisées dans ce chapitre pour discuter la validité du modèle.

La colonne pulsée utilisée pour les mesures de DTG est schématisée sur la figure 3.6. Tout comme la colonne de  $D = 50$  mm, elle est équipée d'un garnissage à disques et couronnes. Le diamètre des disques est de 25 mm tandis que le diamètre interne des couronnes est de 12,25 mm. La distance séparant les éléments de garnissage est de 24 mm. Les éléments de garnissage, d'épaisseur égale à 1 mm, sont maintenus en position par deux tiges d'une hauteur de 24 mm et de 2 mm de diamètre. Une fois encore, ces dernières ne sont pas prises en compte dans le cadre de l'étude numérique. La colonne comporte 20 compartiments.

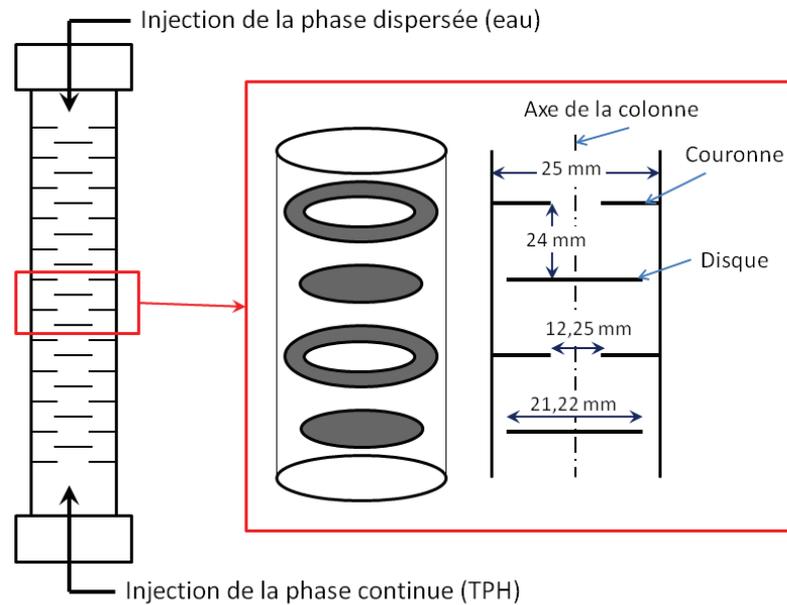


FIGURE 3.6 – Schéma de la colonne pulsée de diamètre  $D = 25$  mm

Le fût de colonne est percé de plusieurs orifices distants de 22 cm. La sonde SOPAT, dont le principe a été décrit au chapitre 2, est introduite dans un de ces orifices situé au milieu du garnissage entre un disque et une couronne. Elle affleure au niveau de la paroi de la colonne de façon à ne pas perturber l'écoulement. Les deux orifices, situés en dessous et au dessus, ont servi pour réaliser des prélèvements d'émulsion dans le but de mesurer la concentration de phase dispersée (rétention).

### 3.2.2 Conditions opératoires explorées

Les mesures de DTG ont été réalisées pour deux systèmes d'émulsion eau dans l'huile (fonctionnement en phase organique continue) :

- le premier est le système eau/TPH, dont les propriétés sont données dans le tableau 1.6, qui est le système utilisé tout le long de cette étude<sup>2</sup>.
- Le second est composé d'un mélange d'acide nitrique et de RBS<sup>3</sup> pour la phase

<sup>2</sup>Ici il n'y a pas eu d'ajout de bleu de méthylène dans l'eau. Cet ajout a eu lieu uniquement pour la mesure des distributions de temps de séjour des gouttes dans le premier chapitre. Les propriétés des deux systèmes demeurent inchangées.

<sup>3</sup>Détergent qui présente des propriétés surfactantes.

TABLE 3.2 – Propriétés du système de phase visqueux à  $T = 20^{\circ}C$ .

	Masse volumique (kg/m <sup>3</sup> )	Viscosité dynamique (Pa.s)	Tension de surface (mN/m)
<i>Marcol + TPH (85/15%)</i>	833	$13,8 \times 10^{-3}$	29
Acide nitrique (1,5 mol/L) + RBS (0,9%)	1050,5	$1,04 \times 10^{-3}$	

aqueuse, et d'un mélange de Marcol<sup>4</sup> et de TPH dans les proportions (85/15%) pour la phase organique. Il est décrit dans le tableau 3.2. Cette formulation permet de simuler, en terme de viscosité et de tension interfaciale, un des systèmes de phase étudiés dans les programmes de R&D sur l'extraction liquide-liquide.

Le tableau 3.3 regroupe l'ensemble de conditions opératoires considérées pour les mesures de DTG en colonne pulsée. Les essais référencés E1 à E11 sont relatifs au système eau/TPH, et les essais E12 à E15 au système acide nitrique/Marcol+TPH.

Ces valeurs des conditions opératoires ont été choisies afin d'étudier la sensibilité de l'émulsion à l'intensité et la fréquence de pulsation, à la rétention ainsi qu'aux propriétés des fluides. Afin de pouvoir étudier séparément les effets de la pulsation et de la rétention, il est possible d'ajuster cette dernière en agissant sur les débits d'alimentation des deux phases.

Après chaque changement de conditions opératoires, un délai suffisant est laissé afin de laisser à l'émulsion le temps de se stabiliser. Une fois l'écoulement établi, une série d'images est enregistrée avec l'endoscope et des prélèvements sont effectués pour déterminer la fraction volumique de phase dispersée  $\phi$ . Pour chaque expérience, le nombre de gouttes traitées est supérieur à 1000, afin que la mesure soit représentative de la DTG réelle. A noter que pour l'essai E9 seules 200 gouttes ont pu être détectées, il en résulte une représentativité statistique faible.

### 3.2.3 Résultats et discussion

Un exemple de DTG en nombre normée mesurée dans la colonne pulsée est donné sur la figure 3.7. On note que la distribution est positionnée dans la plage de diamètre rencontrée dans le RPA, illustrée par exemple sur la figure 2.18. Néanmoins, les positions des pics ne coïncident pas entre celle du RPA, ayant servi à l'identification (environ  $32\mu\text{m}$ ) et celle de la colonne pulsée (environ  $150\mu\text{m}$ ). Nous pouvons également remarquer que dans la colonne pulsée, des gouttes de diamètre supérieur à  $500\mu\text{m}$  sont détectées, avec des pourcentages certes assez faibles. Ces gouttes peuvent avoir un effet non négligeable sur le  $d_{32}$  estimé. Nous reviendrons sur les conséquences de ces deux remarques dans la partie dédiée à la modélisation CFD-PBE de la colonne.

<sup>4</sup>Il s'agit d'une huile blanche.

TABLE 3.3 – Conditions opératoires explorées pour la mesure des DTG dans la colonne pulsée  $D = 25$  mm.

Essai	Amplitude de pulsation (mm)	Fréquence (Hz)	Débit de phase dispersée (L/h)	Débit de phase continue (L/h)
E1	40	1	0,867	0
E2	60	1	0,867	0
E3	40	1	1,734	0
E4	60	1	1,734	0
E5	60	1	3,467	0
E6	40	1	3,467	0
E7	20	1	3,467	0
E8	40	0,5	3,467	0
E9	80	0,5	3,467	0
E10	120	0,5	3,467	0
E11	60	1	2,6	0
E12	15	1	0,867	2,667
E13	15	1	0,427	2,667
E14	37	1	0,427	2,667
E15	37	1	0,867	2,667

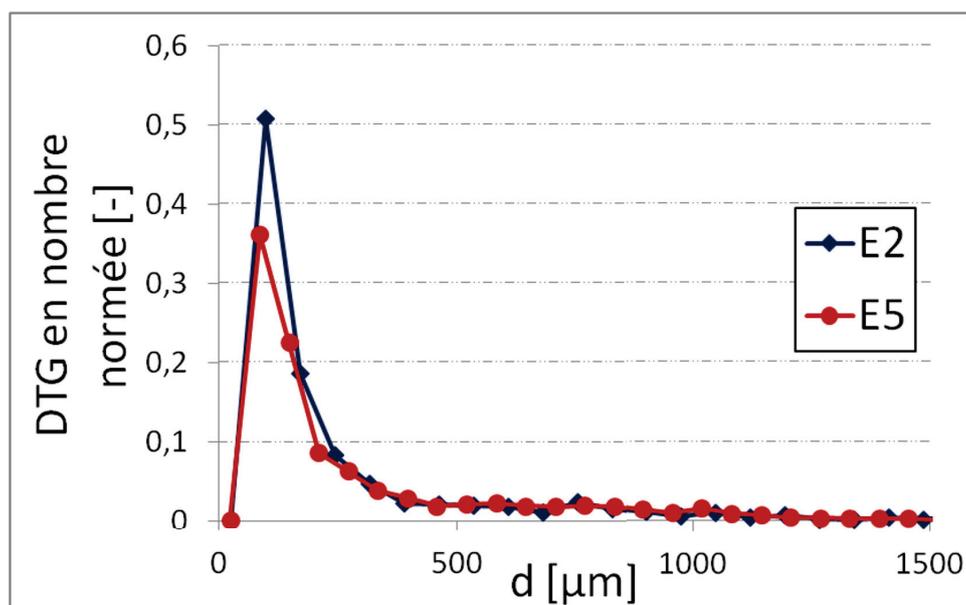


FIGURE 3.7 – Exemple de DTG en nombre normés mesurés dans la colonne pulsée ( $D = 25$  mm).

---

Le tableau 3.4 regroupe les valeurs de  $d_{32}$  et de  $\phi$  mesurées au cours des différents essais<sup>5</sup>. Pour une meilleure compréhension des tendances observées, nous discuterons les deux systèmes de phase séparément.

### Cas du système Eau/TPH

L'augmentation de l'intensité de pulsation s'accompagne par une diminution du  $d_{32}$  (cf. Table (3.4)). Ceci peut être observé lors des transitions entre des essais E1 → E2, E3 → E4, pour lesquels la valeur de  $A$  est augmentée de 4 cm/s à 6 cm/s. L'inverse est également vérifié puisque une diminution de l'intensité de pulsation engendre une augmentation du  $d_{32}$  (E5 → E6).

Parallèlement, il est intéressant de noter que la rétention,  $\phi$ , augmente elle aussi avec l'intensité de pulsation. Ainsi, dans ces expériences où la phase continue ne circule pas, une augmentation de la pulsation, qui agit directement sur la rupture, produit des gouttes de plus en plus petites qui ont un temps de séjour plus élevé. On pourrait à l'inverse penser qu'une concentration plus importante de gouttelettes augmente la fréquence des collisions et donc de coalescence des gouttes. Pour dissocier ces deux effets antagonistes présumés de l'intensité de pulsation, nous pouvons comparer les essais E6 et E11 pour lesquels les valeurs de  $\phi$  sont proches mais les intensités de pulsation différentes. Nous pouvons constater que le diamètre moyen de la distribution  $d_{32}$  diminue bien avec la pulsation. Cet effet est observé quelle que soit la fréquence de pulsation considérée. Ainsi, pour la séquence E8 → E9 → E10, où la fréquence est de  $f = 0,5$  Hz, le  $d_{32}$  diminue également avec l'intensité de pulsation.

La figure 3.8 illustre l'évolution des DTG cumulées en fonction de l'intensité de pulsation. On observe bien dans tous les cas que la population de gouttes se décale vers la gauche lorsque l'intensité de pulsation augmente, en accord avec la diminution du  $d_{32}$ . On peut remarquer, en haut de la figure 3.8, qu'entre les essais E3 et E4, où une augmentation significative de la rétention a été observée, les deux courbes se croisent alors que ce n'est pas le cas lorsque  $\phi$  n'évolue pas ou peu (du fait de l'adaptation des débits) par exemple entre les essais E6 et E11, comme illustré au bas de la même figure. Ce comportement est observé sur les autres essais, non présentés ici<sup>6</sup>.

L'intensité de pulsation augmente le niveau de turbulence dans la colonne, ce qui favorise la rupture, mais favorise également a priori la rencontre des gouttelettes. Dans une configuration où la concentration de gouttes augmente également, cette augmentation de la fréquence de collision serait donc exacerbée. En outre, l'efficacité de coalescence est plus élevée pour les petites gouttes. Ce croisement des courbes pourrait donc être interprété par l'augmentation de la fraction volumique de phase dispersée,  $\phi$ , consécutive au surcroît de gouttes créée par la rupture (lié à l'augmentation d'intensité), qui accroît la

<sup>5</sup>A noter qu'avec le système vidéo, l'ensemble de la DTG est accessible, mais nous raisonnerons principalement sur le  $d_{32}$  en vue des comparaisons avec les simulations, pour lesquelles seuls les moments de la distribution sont calculés

<sup>6</sup>Dans ce raisonnement l'effet potentiel de la variation du débit n'est pas pris en compte.

TABLE 3.4 – Résultats des mesures de DTG dans la colonne pulsée ( $D = 25mm$ ).

Essai	Amplitude de pulsation (mm)	Fréquence (Hz)	Intensité de pulsation (cm/s)	$d_{32}$ (mm)	$\phi$ (%)
E1	40	1	4	1,22	2
E2	60	1	6	0,88	2,7
E3	40	1	4	1,14	4,5
E4	60	1	6	0,74	6
E5	60	1	6	0,81	12,5
E6	40	1	4	1,08	9,7
E7	20	1	2	1,68	3,5
E8	40	0,5	2	1,12	4,7
E9	80	0,5	4	0,86	11
E10	120	0,5	6	0,81	12,25
E11	60	1	6	0,87	8,5
E12	15	1	1,5	0,58	5
E13	15	1	1,5	0,28	3
E14	37	1	3,7	0,38	10
E15	37	1	3,7	0,28	15

coalescence des plus petites gouttes. Nous retrouvons ici le comportement décrit par les modèles d'efficacité de collision (fig. 2.31).

L'effet de la fraction volumique de phase dispersée,  $\phi$ , sur le  $d_{32}$  peut être évalué en comparant les essais E2, E4, E11 et E5, tous réalisés à une intensité de pulsation de 6 cm/s, où encore les essais E1, E3 et E6 réalisés à 4 cm/s. Cet effet n'est pas aussi important que celui de l'intensité de pulsation. On observe néanmoins quelques variations, mais celles-ci restent faibles ce qui ne permet pas de dégager de tendance claire. Bien que la valeur du  $d_{32}$  évolue peu (Tableau 3.4), nous pouvons distinguer une tendance au décalage vers la droite des DTG lorsque  $\phi$  augmente (cf. 3.9).

En résumé, l'intensité de pulsation a un effet de premier ordre et la rétention un effet de second ordre sur la DTG pour les conditions opératoires étudiées.

Contrairement aux distributions de temps de séjour des gouttes, on n'observe pas d'effet séparé de la fréquence et de l'amplitude de pulsation sur la DTG. Les écarts entre les  $d_{32}$  mesurés au cours des essais à même intensité de pulsation (E5, E10 et E7, à 6 cm/s) ne sont en effet pas significatifs, ce que confirment les DTG cumulées en nombre, comparées sur la figure 3.10 pour les essais E5 et E10. Ces deux essais présentent en outre la même fraction volumique de gouttes. Les résultats obtenus lors de l'essai E7 n'ont pas été représentés sur la figure car on a noté la présence de très grosses gouttes lors du traitement des images enregistrées. Ces grosses gouttes n'étant pas contenues complètement dans le champ de vision, elles n'ont pas été prises en compte dans la mesure.

---

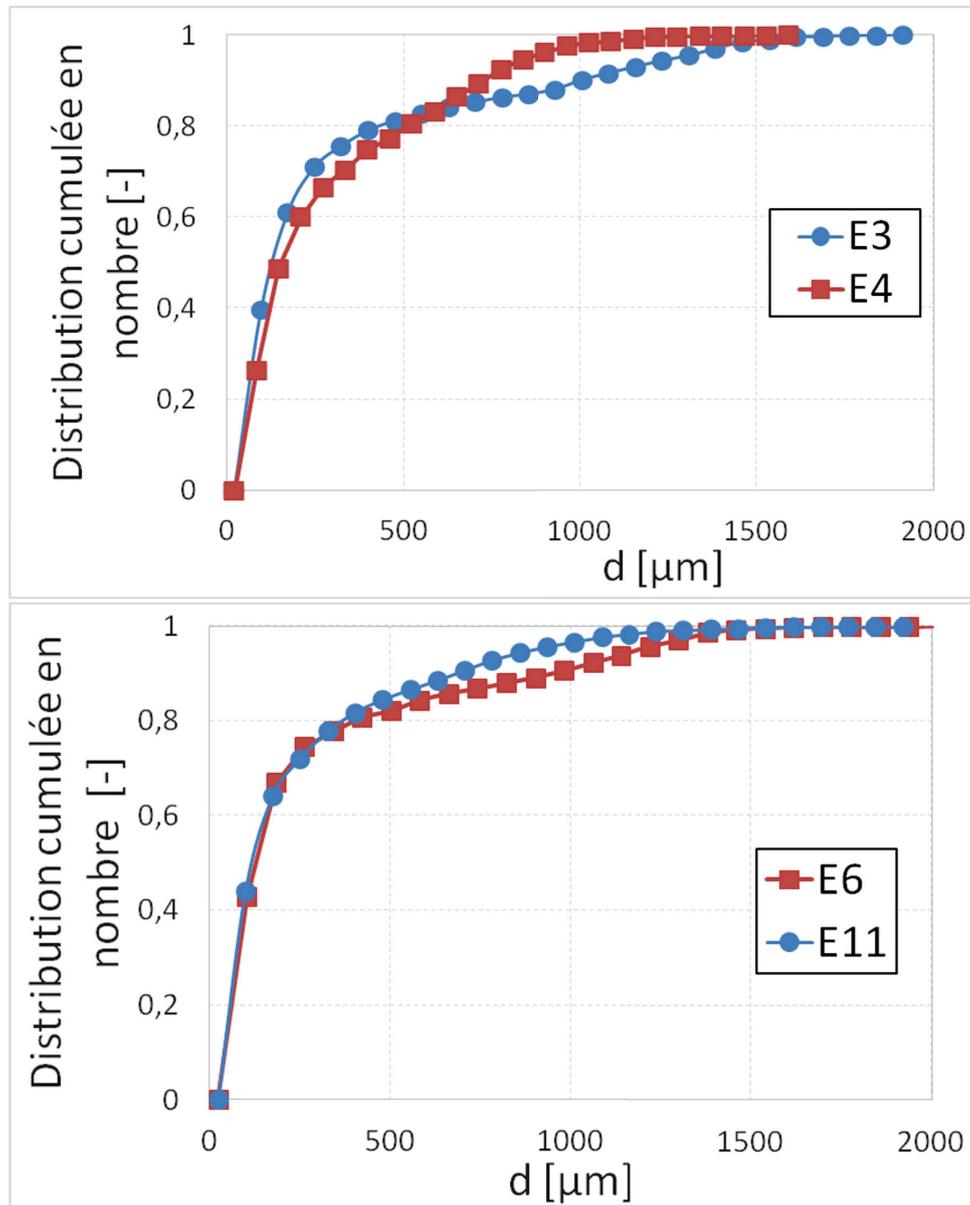


FIGURE 3.8 – DTG cumulée en nombre : comparaison de l'effet de l'intensité de pulsation à  $\phi$  variable (*haut*) et  $\phi$  constant (*bas*).

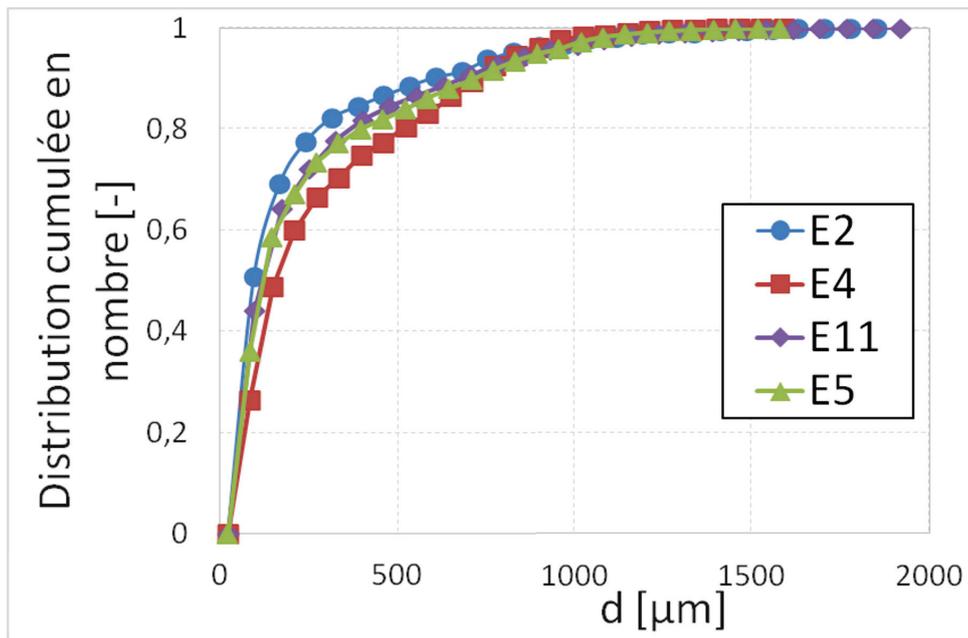


FIGURE 3.9 – DTG cumulée en nombre : comparaison de l'effet de la rétention à intensité de pulsation constante ( $\phi = 2,7 ; 6 ; 8,5$  et  $12,5\%$  respectivement pour E2, E4, E11 et E5).

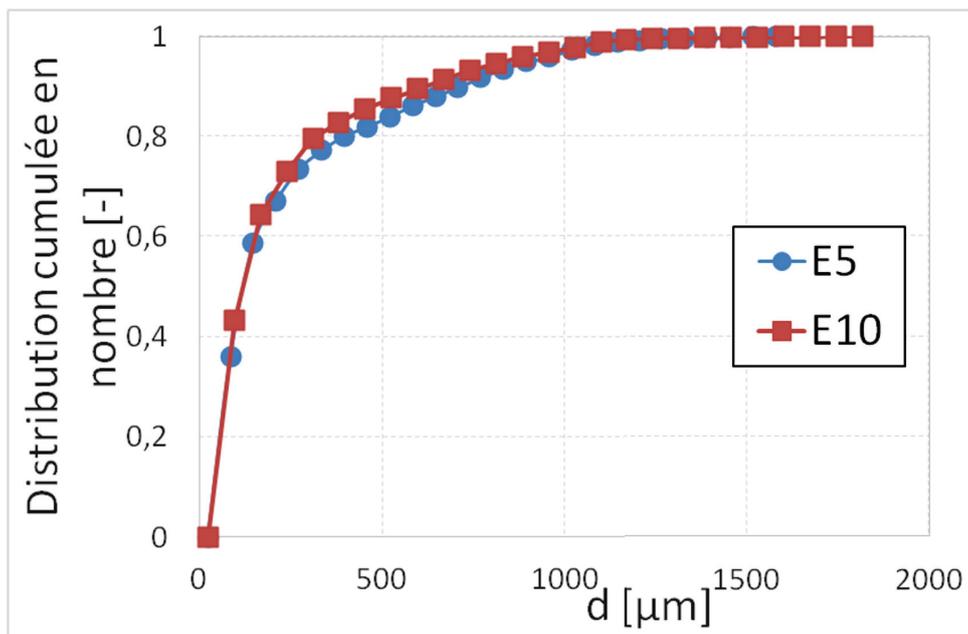


FIGURE 3.10 – DTG cumulée en nombre : comparaison de l'effet séparé de  $f$  et de  $A$  à intensité égale.

### Cas du système acide nitrique/Marcol+TPH

La dispersion de gouttes d'acide nitrique dans un mélange de Marcol et de TPH a été considérée pour appréhender l'effet des propriétés du fluide sur le comportement de l'émulsion. Ce système est en effet très différent de notre système de référence : la phase continue est 13 fois plus visqueuse et la tension interfaciale est 30% plus faible. Le rapport de densité des deux phases est en revanche assez proche de celui du système Eau/TPH.

Les conditions opératoires des essais E12 à E15 sont légèrement différentes de celles des essais E1 à E11 réalisés avec le système eau/TPH. La principale différence réside dans l'imposition d'un débit net de phase continue. Les intensités de pulsation testées avec le nouveau système sont cependant comparables aux cas précédents. Le comportement observé avec le système acide nitrique/Marcol+TPH est néanmoins nettement différent du précédent. En particulier, on observe que le diamètre moyen à l'équilibre  $d_{32}$  est dans tous les cas nettement inférieur à celui observé pour le système eau/TPH, y compris à plus faible intensité de pulsation. A partir de ces quelques essais, nous avons tenté de comprendre comment l'augmentation de la viscosité de la phase continue et la diminution de la tension interfaciale pouvaient expliquer cette diminution du  $d_{32}$ .

Les études évaluant l'influence de la viscosité de la phase continue sur les phénomènes de rupture et de coalescence sont peu nombreuses. En effet, la plupart des applications concernent des émulsions de type "huile dans l'eau", étudiant ainsi l'influence de la viscosité de la phase dispersée sur l'émulsion. [Becker \(2013\)](#) a récemment étudié l'influence de la viscosité de la phase dispersée. A partir de la mesure des DTG, il a observé que dans ce cas, l'augmentation de la viscosité s'accompagne d'une apparition de gouttes de plus en plus grosses ainsi que par un changement de la forme de la distribution. Cette dernière s'élargit au fur et à mesure que la viscosité augmente et un pic secondaire de gouttes plus fines apparaît.

La figure 3.11 illustre la DTG mesurée pour l'essai E12. Il est intéressant de remarquer que la largeur de la DTG s'accroît avec la viscosité de la phase continue. Ainsi, tout comme dans le cas de l'émulsion inverse (par exemple l'étude de [\(Becker, 2013\)](#)), la viscosité agit sur les mécanismes de coalescence et de rupture des gouttes.

Tout d'abord, il est important de noter que les régimes d'écoulement des essais E1 à E11 ne sont pas les mêmes que ceux des essais E12 à E15. En effet, les nombres de Reynolds caractéristiques des essais sur le système eau/TPH sont compris entre 100 et 1800 contre  $45 \leq Re \leq 112$  pour le second système, compte-tenu principalement de l'écart de viscosité dynamique. Il est clair que dans ces conditions l'écoulement n'est plus turbulent et que les mécanismes de rupture sont différents, ce qui empêche une comparaison plus poussée des deux systèmes. Néanmoins, nous pouvons noter que, dans la partie de rupture turbulente visqueuse de son modèle, [Martinez-Bazan et al. \(1999\)](#) postule que le taux de rupture augmente avec la viscosité de la phase continue. Ceci est cohérent avec

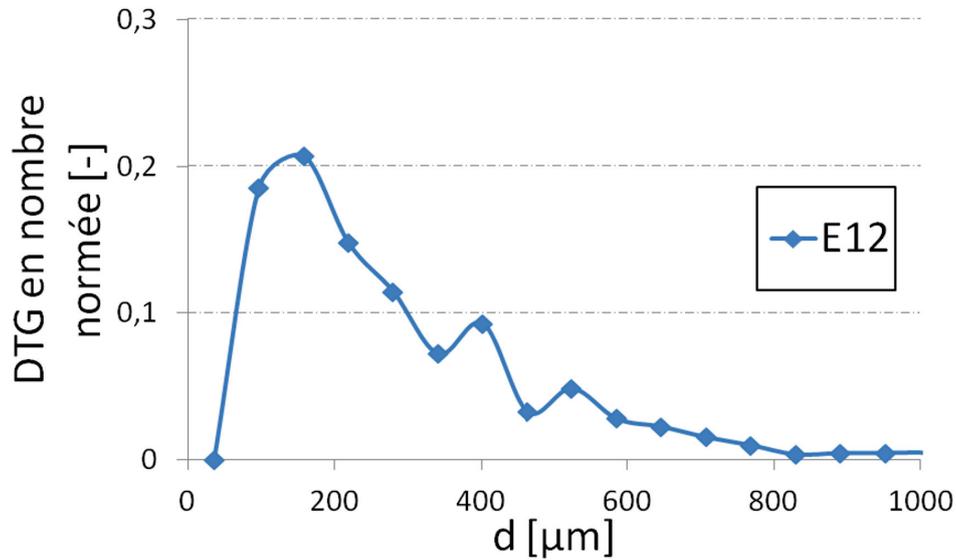


FIGURE 3.11 – Exemple de DTG mesurée pour le système acide nitrique dans le Marcol+TPH.

la diminution du diamètre moyen observée ici.

D'autre part, il y a vraisemblablement un effet de la différence de viscosité sur la dynamique de l'interface proprement dite, comme dans le cas des émulsions directes, qui se traduirait par une modification de la population des gouttes filles, et en particulier ici par une augmentation significative de la proportion de fines gouttelettes (gouttelettes satellites plus nombreuses lors de la rupture).

En ce qui concerne la coalescence, on peut penser que les conditions moins turbulentes atteintes en augmentant la viscosité de la phase continue ont pour effet de rendre la coalescence difficile, en diminuant la probabilité de collision des gouttes. D'autre part, la diminution de la tension interfaciale entre les deux phases liquides est également propice à une stabilisation de l'interface, donc à une diminution de la coalescence.

Par ailleurs, nous avons signalé au début de cette section que les essais avec le système acide nitrique/Marcol+TPH avaient été réalisés avec la phase continue en écoulement, ce qui n'était pas le cas des essais en eau/TPH. Cet écoulement axial, superposé au mouvement oscillant imposé par la pulsation, est également susceptible de modifier l'équilibre entre les phénomènes de rupture et de coalescence soit par un effet d'entraînement des plus fines gouttes (le cas échéant), soit en ralentissant le processus de coalescence lui-même. En effet, l'écoulement permettrait d'alimenter en continu le film interfacial et ralentirait ainsi considérablement son drainage.

Du point de vue de l'extraction liquide-liquide, la diminution du  $d_{32}$ , qui traduit une augmentation de la surface d'échange est a priori intéressante. Néanmoins, l'augmentation des fines peut rendre le pilotage de la colonne plus délicat (ce qui nous a incité à travailler avec un débit non nul de phase continue). En outre, en conditions industrielles,

l'augmentation de la viscosité va augmenter les pertes de charge (en dehors de l'industrie nucléaire, les colonnes d'extraction liquide-liquide fonctionnent généralement en phase aqueuse continue). D'autres essais seraient donc nécessaires pour définir si ce système à plus forte viscosité et faible tension de surface est pertinent pour un procédé d'extraction.

### 3.3 Simulation des propriétés de l'émulsion en colonne pulsée et validation du modèle

Après avoir étudié la sensibilité du modèle numérique, en particulier vis-à-vis des paramètres ajustables des noyaux de rupture et de coalescence (section 3.1), puis la sensibilité de l'émulsion effectivement générée en colonne pulsée (DTG, fraction volumique de phase dispersée) vis-à-vis des paramètres opératoires  $A$ ,  $f$ , et propriétés des fluides (section 3.2), nous allons dans ce chapitre confronter les résultats numériques aux résultats expérimentaux disponibles. On s'intéresse donc dans les deux approches à la colonne de diamètre  $D = 25$  mm. Il s'agit en effet de discuter la validité du modèle couplé CFD-PBE et des modèles de rupture-coalescence utilisés, et de proposer des pistes d'amélioration.

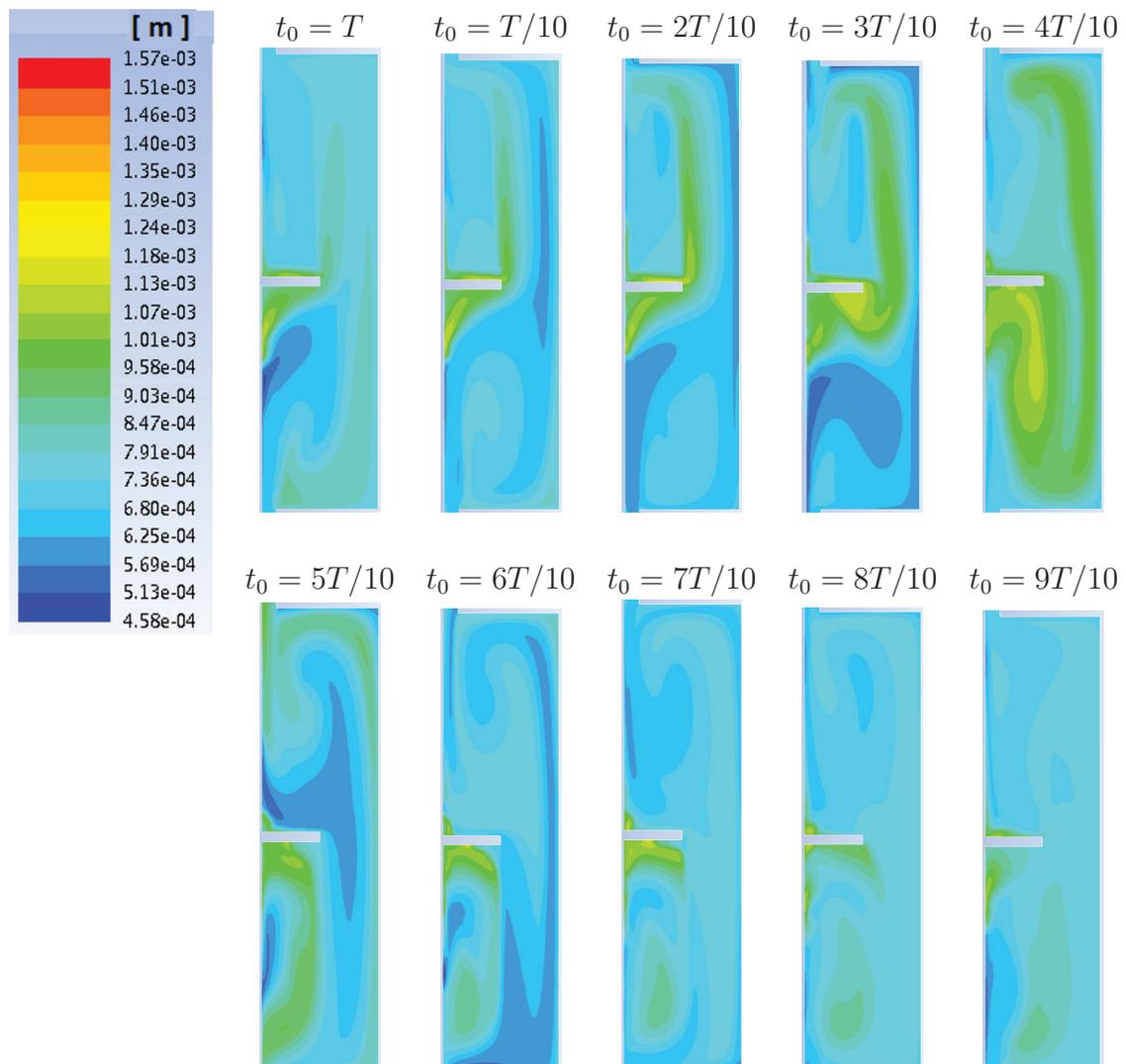
#### 3.3.1 Cartographie du diamètre moyen

Le tableau 3.5 illustre la distribution spatiale du diamètre moyen dans un compartiment de la colonne et son évolution au cours d'une période de pulsation. Pour faciliter la compréhension, et faire le lien avec le diamètre moyen  $d_{32}$  principalement discuté dans cette étude, nous avons tracé sur la figure 3.12 l'évolution du  $d_{32}$  et du profil de vitesse axiale sur un cycle de pulsation. Nous pouvons remarquer que les variations du diamètre moyen sont plus importantes pendant les phases d'accélération du fluide porteur. A l'inverse, dans les phases de décélération, de grosses gouttes apparaissent dans l'étage supérieur et essentiellement à l'intérieur des rouleaux. C'est à l'extérieur des rouleaux, où les filets du fluide sont accélérés, que les diamètres des gouttes sont les plus faibles. Il est également intéressant de noter que les gouttes les plus grosses sont localisées au niveau des trous de couronnes, dans les zones peu agitées.

#### 3.3.2 Réajustement des noyaux de rupture et de coalescence dans la colonne pulsée

Comme discuté lors des simulations préalables présentées au paragraphe 3.1.3 de la section 3.1, nous n'avons pas pu reproduire les niveaux de turbulence rencontrés en colonne pulsée lors des expériences en RPA. En outre, nous avons en première approximation négligé l'anisotropie de la turbulence dans le RPA (en considérant une dissipation moyenne

TABLE 3.5 – Distribution du diamètre moyen dans un compartiment (disque-couronne-  
 disque) de la colonne à différents instants du cycle de pulsation.



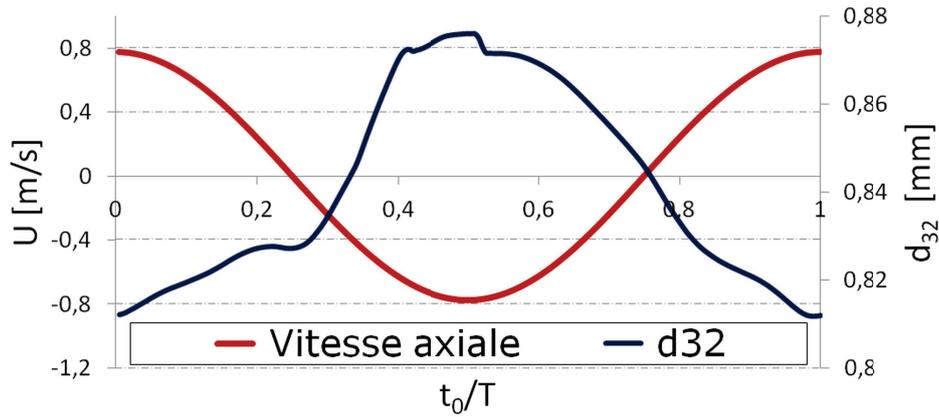


FIGURE 3.12 – Profil de vitesse axiale et évolution du  $d_{32}$  ( $A = 6$  cm,  $f = 1$  Hz, paramètres des noyaux ajustés (cf. Tab. 3.6))

homogène) or les deux systèmes présentent des niveaux d'anisotropie différents, la dissipation turbulente étant concentrée dans des zones très localisées de la colonne (les jeux, qui représentent quelques % du volume) alors qu'elle est répartie dans un volume relativement plus important entourant le mobile dans le cas du RPA (qui représente quelques dizaines de % du volume total). Une étape préalable de réajustement des paramètres des noyaux de rupture a donc été réalisée à partir des mesures de DTG atteintes à l'équilibre en colonne pulsée. On rappelle que l'identification des paramètres à partir de la dynamique d'évolution de la DTG, qui nécessiterait d'appliquer la méthode inverse aux équations couplées CFD-PBE, a été jugée irréalisable, donc écartée.

Pour ce réajustement, nous avons considéré les séries d'expériences successives réalisées avec le système Eau/TPH. En effet, cela permet de connaître dans chaque cas l'état initial de l'émulsion et en particulier le diamètre  $d_{32}$  requis pour fixer les conditions initiale et aux limites de la simulation. En particulier, nous avons considéré les séries :

- $E1 \rightarrow E2$ .
- $E3 \rightarrow E4 \rightarrow E5 \rightarrow E6 \rightarrow E7 \rightarrow E8$ .

Pour les raisons évoquées précédemment, nous n'avons pas utilisé les essais E7 et E8. Le système visqueux n'a pas non plus été considéré pour cette étape d'identification (les noyaux sélectionnés ne tenant pas compte de l'effet de la viscosité de la phase continue), mais nous avons néanmoins simulé un de ces cas pour tester la réponse du modèle.

La procédure utilisée est la suivante : à la lumière des résultats de l'étude de sensibilité menée à la section 3.1, nous avons lancé plusieurs simulations en ajustant d'abord les constantes auxquelles les noyaux sont les plus sensibles (cf Figure 3.2). La procédure a été menée en considérant de préférence les essais pour lesquels nous disposons des données à intensité de pulsation croissante (*i.e.* déplaçant l'équilibre vers la rupture) et décroissante (*i.e.* déplaçant l'équilibre vers plus de coalescence). Le pas de temps utilisé est  $dt = 0,1$

TABLE 3.6 – Constantes du modèle de Coualaloglou, ajustées à partir des résultats en colonne pulsée.

$C_1$	$C_2$	$C_3$	$C_4$
0,0803	0,0635	$4,5 \times 10^{-2}$	$1,89 \times 10^{11}$

TABLE 3.7 – Comparaison des résultats numériques et expérimentaux.

	$d_{32}$			$\phi$		
	Mesure (mm)	Simulation (mm)	Erreur relative (%)	Mesure (%)	Simulation (%)	Erreur relative (%)
E1 → E2	0,88	0,85	3,4	2,7	2,85	5,5
E3 → E4	0,74	0,84	13,5	6	5,6	6,6
E5 → E6	1,08	0,89	16,8	9,7	9,5	2

ms. Le jeu de constantes ainsi ajustées est donné dans le tableau 3.6. Ces constantes sont utilisées pour l'ensemble des simulations présentées ci-après.

La figure 3.13 illustre la procédure et le résultat obtenu pour l'identification des noyaux de rupture et de coalescence dans le cas où l'intensité est d'abord augmentée de 4 à 6 cm/s (E1 → E2) puis redescendue à 4 cm/s (E5 → E6). Sur cette figure, le diamètre initial pour la simulation de la transition E1 → E2 est indiqué afin d'illustrer le déplacement de l'équilibre dans le sens de la rupture.

Les performances des constantes identifiées à partir de E1 → E2 sont ensuite testées sur la séquence E3 → E4, correspondant à la même modification des conditions opératoires, mais pour une fraction volumique de phase dispersée initiale plus importante. On observe également un bon comportement du modèle, même si un léger écart est observé par rapport au  $d_{32}$  mesuré. Enfin, la réponse du modèle à une diminution de l'intensité de pulsation (séquence E5 → E6) est également qualitativement très correcte, et quantitativement acceptable. En effet, même si l'écart à la mesure est un peu plus important, l'évolution relative du diamètre sous l'effet de la coalescence est bien reproduite par la simulation.

Les résultats expérimentaux et numériques, obtenus avec les constantes ajustées, sont comparés dans le tableau 3.7. Nous pouvons constater que le taux de rétention est parfaitement prédit par la simulation. L'erreur relative pour le  $d_{32}$  est très satisfaisante, signe que le jeu de constantes donné dans le tableau 3.6 est un bon compromis, qui permet de représenter aussi bien la rupture que la coalescence. En effet, la coalescence joue un rôle important dans les procédés que nous étudions.

---

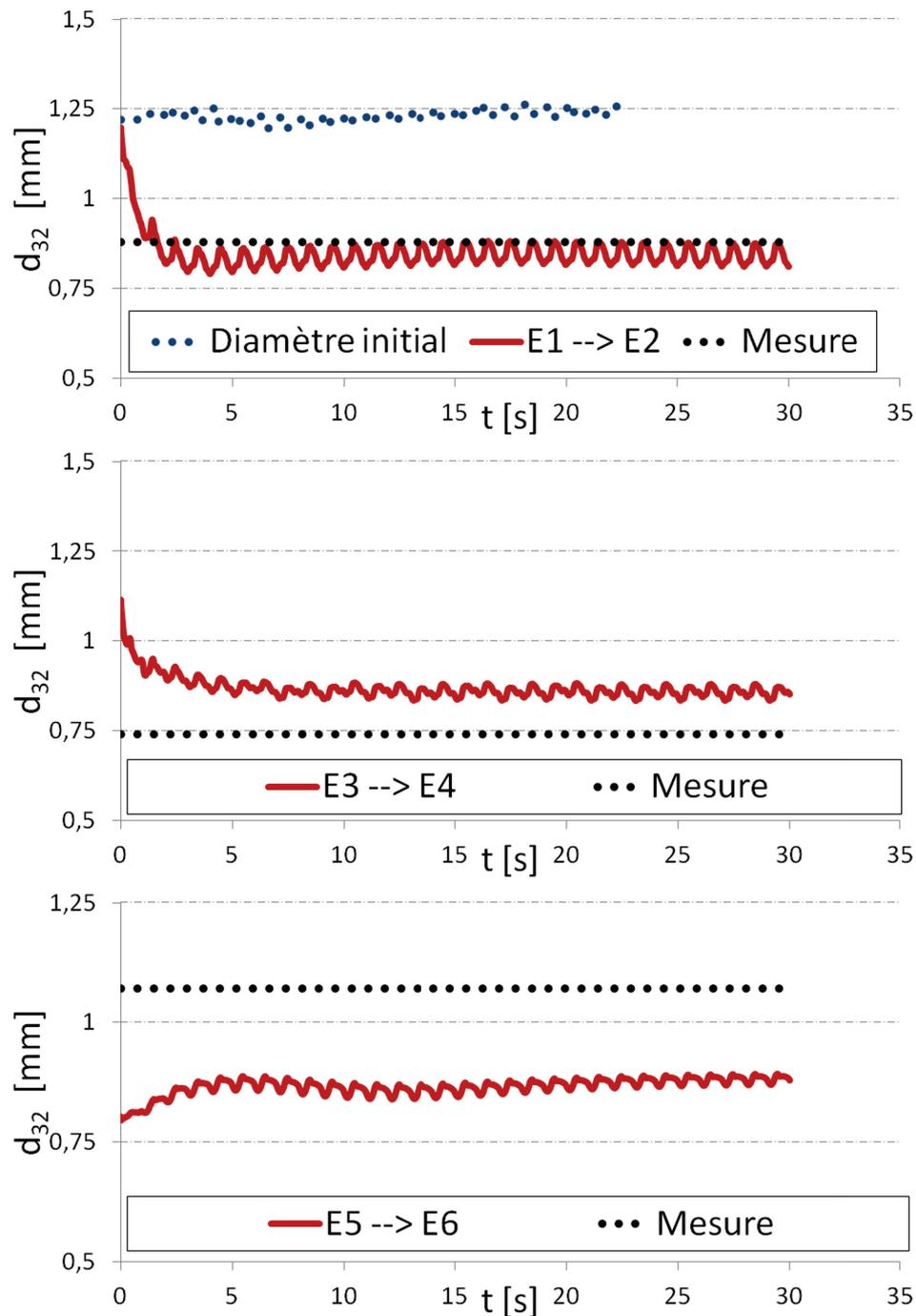


FIGURE 3.13 – Performances des noyaux de rupture et coalescence de *Coulaloglou* après ajustement des paramètres : prédictions des DTG dans la colonne pulsée  $D = 25$  mm pour différentes conditions opératoires.

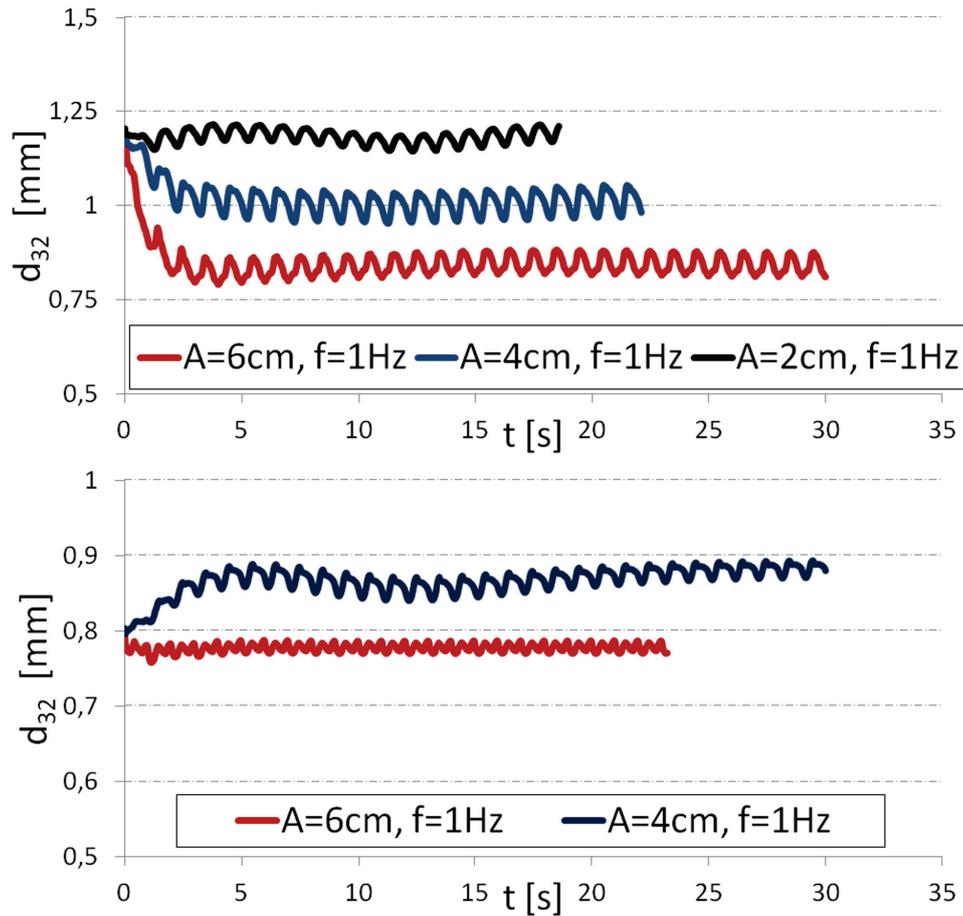


FIGURE 3.14 – Effet de l’intensité de pulsation sur le diamètre moyen : (*haut*)  $d_{init} = 1,22$  mm ; (*bas*)  $d_{init} = 0,81$  mm.

### 3.3.3 Etude de sensibilité numérique

#### Influence de l’intensité de pulsation

L’effet de l’intensité de pulsation sur le diamètre moyen, tel que prédit par le modèle, est illustré sur la figure 3.14, où des séquences proches des séquences expérimentales E5 → E6 → E7 sont considérées. Dans ces simulations, seule l’amplitude de pulsation est modifiée. Deux exemples, correspondant à deux diamètres initiaux sont donnés. En accord avec les résultats expérimentaux, l’augmentation de l’intensité de pulsation, qui produit une turbulence plus intense, s’accompagne bien par une rupture accrue et par conséquent une diminution du diamètre moyen.

Similairement, la figure 3.15 illustre l’évolution de la rétention avec l’intensité de pulsation. Le comportement prédit par le modèle est une nouvelle fois conforme aux observations expérimentales indiquant une augmentation de la rétention avec l’intensité de

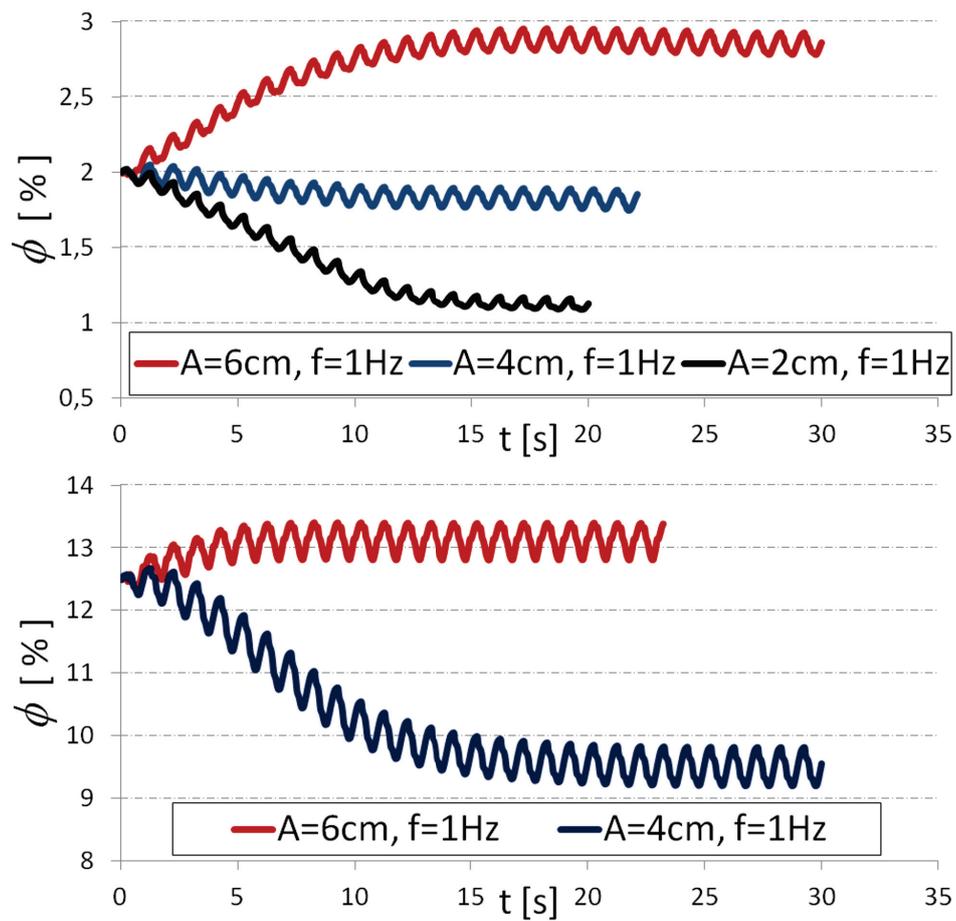


FIGURE 3.15 – Effet de l'intensité de pulsation sur la fraction volumique de phase dispersée (*haut*)  $\phi_{init} = 2\%$ ; (*bas*)  $\phi_{init} = 12,5\%$

pulsation. Ceci est également en accord avec les résultats expérimentaux de Hocq (1994).

Nous pouvons en outre observer sur la figure 3.14 qu'à même intensité de pulsation, le modèle converge vers le même diamètre final indépendamment du diamètre initial. Ainsi à une intensité de pulsation de 4 cm/s, le modèle prédit un diamètre moyen  $d_{32}$  d'environ 0,9 mm dans les deux cas. Ceci démontre à nouveau que le modèle est cohérent et valide numériquement.

### Effet séparé de l'amplitude et de la fréquence de pulsation

Comme déjà évoqué à plusieurs reprises dans le manuscrit, l'influence individuelle de la fréquence et de l'intensité de pulsation n'est pas complètement élucidée. L'intensité de pulsation  $A \times f$  est généralement considérée comme le paramètre de référence dans la littérature, pour la caractérisation de l'hydrodynamique de la colonne pulsée. Une analyse de l'effet séparé de l'amplitude et de la fréquence de pulsation, complémentaire à celle, non concluante, abordée lors de l'étude expérimentale, a été menée.

Sur la figure 3.16 nous avons considéré l'effet séparé de l'amplitude et de la fréquence, à intensité de pulsation fixée, dans deux cas de figure : le premier étant dominé par la rupture, à cause notamment de l'intensité de pulsation élevée ( $Af = 6$  cm/s) et du diamètre initial important, et le second étant plutôt dominé par la coalescence ( $Af = 4$  cm/s et un diamètre initial réduit). Il est intéressant de remarquer que dans les deux configurations, bien que l'intensité de pulsation soit conservée, des évolutions différentes du diamètre moyen peuvent être prédites par le modèle.

Dans le premier cas ( $d_{init} = 1,22$  mm), les  $d_{32}$  calculés à l'équilibre pour les fréquences de pulsation  $f = 1$  et  $f = 0,5$  Hz sont proches, à l'instar des observations expérimentales (essais E5 et E10). En revanche, l'utilisation d'une fréquence de pulsation plus élevée  $f = 2$  Hz donne un diamètre nettement inférieur. Il est possible qu'à ce niveau de fréquence, l'écoulement n'ait pas le temps de se relaminariser entre deux changements de sens, ce qui le maintient à un niveau de turbulence élevé, produisant ainsi plus de rupture. D'autre part, nous avons mis en évidence au chapitre 1 que la diminution du temps de séjour des gouttes, spécialement pour les plus grosses, avec l'augmentation de l'intensité de pulsation est plus marquée à haute fréquence.

Les valeurs de rétention restent proches avec respectivement  $\phi = 3,2$ ; 2,85 et 2,7 % pour  $f = 0,5$ ; 1 et 2 Hz. La fraction volumique de phase dispersée apparaît donc moins sensible à la fréquence, ce qui est également en accord avec les mesures expérimentales.

Le comportement de l'émulsion dans la configuration supposée dominée par la coalescence est différent (cf. Figure 3.16 *bas*). Les valeurs de  $d_{32}$  et de  $\phi$  prédites dans les trois cas considérés présentent des écarts beaucoup plus faibles. Le diamètre moyen calculé à  $f = 0,5$  Hz est bien légèrement inférieur aux deux autres cas, mais la différence n'est pas significative et aucune tendance claire ne se dégage.

---

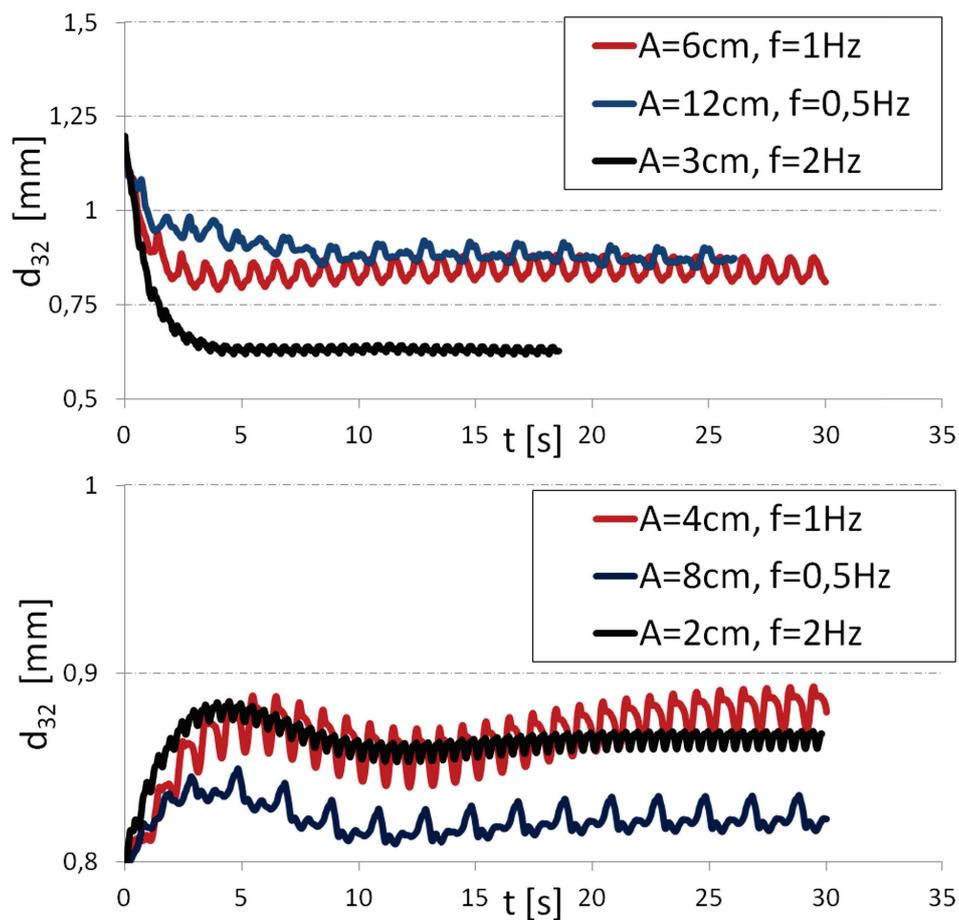


FIGURE 3.16 – Effet séparé de l’amplitude et de la fréquence de pulsation dans deux cas de figure : (*haut*,  $Af = 6 \text{ cm/s} - d_{init} = 1,22 \text{ mm}$ ) un cas dominé par la rupture ; et (*bas*,  $Af = 4 \text{ cm/s} - d_{init} = 0,81 \text{ mm}$ ) un cas dominé par la coalescence.

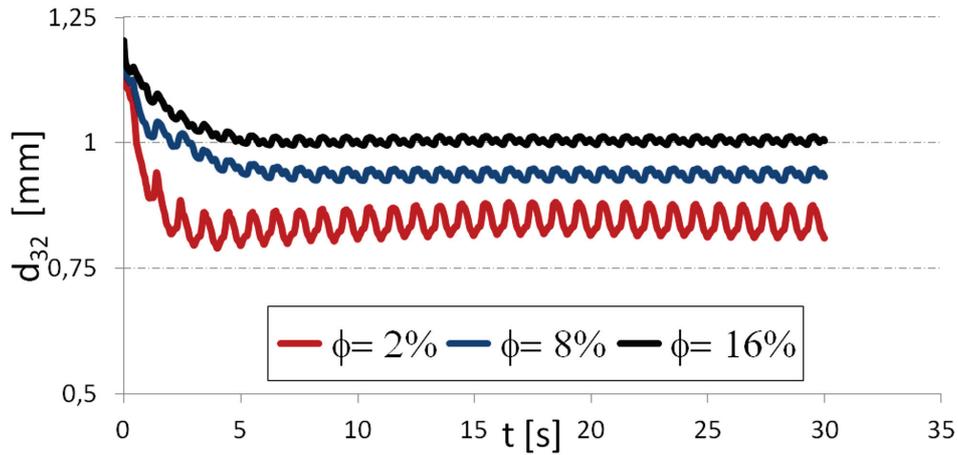


FIGURE 3.17 – Effet de la fraction volumique initiale de phase dispersée sur le  $d_{32}$  ( $Af=6$  cm/s)

### Effet de la fraction volumique initiale de phase dispersée

La figure 3.17 indique que le diamètre moyen augmente avec  $\phi$ . L'augmentation de la concentration de gouttes a donc pour effet d'accroître la probabilité de collision des gouttes ce qui se traduit par une coalescence accrue. Cet effet est néanmoins moins marqué que celui de l'intensité de pulsation (voir figure 3.14, en accord avec les observations expérimentales).

Pour mémoire, dans le chapitre 2 nous avons parlé de l'existence de variantes du modèle de coalescence sélectionné pour notre étude. Celles-ci se présentent généralement sous forme d'une multiplication du modèle original par un facteur de sorte à prendre en compte l'effet de la fraction volumique de la phase dispersée par exemple. Pour illustrer l'influence de ces modifications, nous avons simulé les cas présentés sur la figure 3.17 en multipliant le noyau de coalescence par  $1/(\phi_{max} - \phi)$  comme suggéré par Hibiki & Ishii (2002) (non représentés sur la figure). Dans ce cas, le diamètre moyen prédit est naturellement plus important mais il semble avoir un effet beaucoup plus marqué que ce qui a été observé expérimentalement. De plus, le paramètre  $\phi_{max}$  est difficilement identifiable puisque le même auteur donne une valeur différente par ailleurs. Par conséquent, nous pouvons affirmer que le modèle de coalescence de Coualaloglou & Tavlarides (1977) retenu pour cette étude retranscrit correctement l'effet de la rétention sans qu'il y ait besoin de recourir à ce type de corrections.

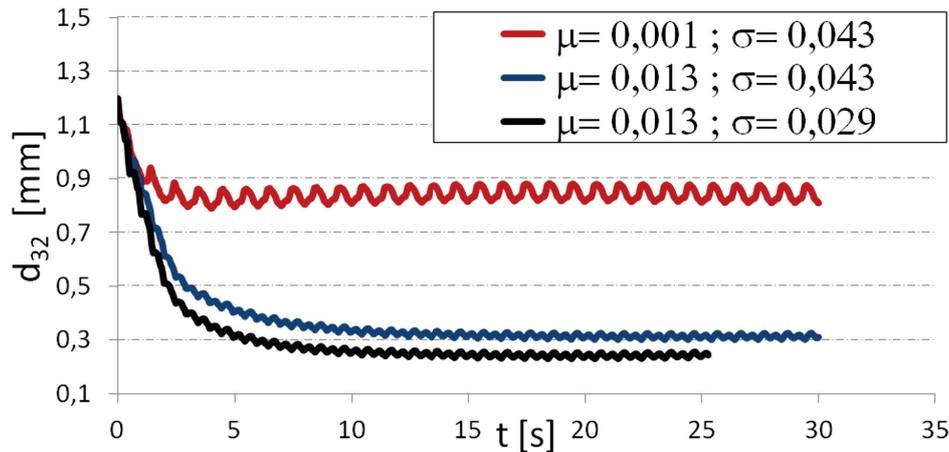


FIGURE 3.18 – Effet de la viscosité  $\mu$  (en Pa.s) et de la tension interfaciale  $\sigma$  (en N/m) sur le  $d_{32}$  prédit par le modèle

### Influence de la viscosité de la phase continue

Des simulations ont été réalisées pour évaluer comment le modèle répond à une augmentation de la viscosité de la phase continue. Contrairement à l'étude expérimentale, nous avons fait varier indépendamment la viscosité et la tension interfaciale dans les simulations. La figure 3.18 illustre l'effet de ces deux paramètres sur le diamètre moyen à l'équilibre prédit par le modèle.

Le modèle prédit une diminution du  $d_{32}$  avec l'augmentation de la viscosité. En effet, la viscosité de la phase continue est prise en compte dans le modèle de coalescence dans le calcul du temps de drainage du film interfacial (Eq. 2.26). Cependant, comme évoqué précédemment, il ne s'agit ici que de résultats qualitatifs, puisque le mécanisme de rupture turbulente est le mécanisme prépondérant dans notre modèle alors que dans le cas du système visqueux envisagé dans cette étude, l'écoulement reste dans des régimes laminaires, pour lesquels les mécanismes de rupture visqueuse sont prépondérants.

L'effet de la tension interfaciale est quant à lui conforme à celui attendu, à savoir une diminution de la taille de goutte moyenne.

## 3.4 Conclusion

Un modèle couplé CFD-PBE a été développé. La méthode QMOM a été choisie pour la résolution du PBE, ce choix étant basé sur des considérations liées au temps de calcul, mais également car le diamètre moyen  $d_{32}$  auquel il donne directement accès est un paramètre suffisant pour la compréhension et le dimensionnement du procédé.

Tout d'abord, dans le but d'avoir une validation du modèle, nous avons présenté les mesures expérimentales de DTG dans une colonne pulsée. Ces mesures ont été détaillées

et les résultats discutés. Nous avons pu notamment discerner l'effet de l'intensité de pulsation sur les DTG, celui de la rétention ainsi que l'effet séparé de l'amplitude et de la fréquence de pulsation. Ainsi, nous avons pu observer que le diamètre moyen diminue avec l'intensité de pulsation et que la rétention augmente avec ce dernier. L'effet de la rétention semble moins prononcé sur les diamètres moyens mesurés. Nous avons également discuté les résultats obtenus en utilisant un système de phase plus visqueux.

Les simulations conduites avec le modèle couplé CFD-PBE ont montré une capacité de ce dernier à reproduire la sensibilité des propriétés de l'émulsion aux conditions opératoires. Néanmoins, les paramètres du modèle de rupture et de coalescence, identifiés en RPA dans le chapitre précédent, ont dû être réajustés pour la simulation de la colonne pulsée. En effet, les expériences réalisées en RPA n'ont pas permis d'étudier les niveaux de dissipation turbulente (moyenne) maximaux rencontrés (localement) dans la colonne pulsée. Les DTG mesurées dans la colonne pulsée ont ainsi été utilisées pour ajuster ces valeurs.

Grâce à ces constantes réajustées, le modèle permet de représenter à la fois la rupture, mais également la coalescence, ce qui d'après nos simulations n'était pas le cas des différents jeux de données reportés dans la littérature. Les résultats de simulation du diamètre moyen et de la rétention sont très satisfaisants tant d'un point de vue qualitatif que quantitatif.

Une fois le modèle couplé validé, une étude de sensibilité a été entreprise pour étudier des conditions opératoires non explorées expérimentalement. L'étude de l'effet séparé de la fréquence et de l'amplitude de pulsation a été par exemple approfondie, tout comme l'influence séparée de la viscosité et de la tension interfaciale dans le système acide nitrique / Marcol+TPH.

## 4

# Conclusion et perspectives

Les procédés d'extraction liquide-liquide mettent en œuvre des émulsions dans lesquelles un liquide est mis sous forme de gouttelettes. Le comportement de cette seconde phase détermine la capacité du procédé à remplir sa fonction, à savoir une extraction plus efficace. Dans le cas du procédé de précipitation oxalique en continu, la phase dispersée représente les réacteurs dans lesquels a lieu la réaction de précipitation. La description du comportement de l'émulsion s'avère par conséquent cruciale pour la compréhension et le dimensionnement de ces deux types d'application (extraction liquide-liquide et précipitation oxalique).

Dans le cas de la colonne pulsée, qui est l'appareil utilisé dans l'industrie nucléaire, le comportement de la phase dispersée n'est pas complètement élucidé. Alors que les études dédiées à la phase continue sont nombreuses, celles consacrées à la phase dispersée le sont beaucoup moins, spécialement les études numériques.

L'objectif de ce travail a été d'utiliser les capacités de la CFD pour modéliser le comportement de la phase dispersée dans une colonne pulsée. Dans le but de valider les différents modèles développés, des mesures expérimentales ont également été réalisées. Les différents paramètres que nous avons modélisés sont les champs de vitesse et de turbulence dans la colonne, la distribution des temps de séjour des gouttes (DTS) et la distribution de taille de gouttes (DTG).

### Modélisation de l'écoulement de la phase continue

Le premier chapitre a été l'occasion de revisiter une bonne partie des études consacrées à la modélisation de la phase continue dans une colonne pulsée. Cette phase est responsable du transport, de la rupture et de la coalescence de la phase dispersée, ce qui lui a valu une attention particulière dès les années 1980-90. Ces études riches en enseignement sur l'évolution qualitative de l'écoulement dans la colonne sont souvent validées sur des grandeurs moyennes, comme le champ de vitesse. Nous avons consacré la première partie

---

de ce chapitre à la représentation de la turbulence par la méthode RANS.

Tout d'abord, nous avons effectué des mesures PIV des champs de vitesse et des grandeurs turbulentes sous différentes conditions opératoires. Les mesures PIV ont été vérifiées a posteriori en calculant les échelles de turbulences de Kolmogorov et en les comparant à la résolution de notre chaîne de mesure PIV. Ceci nous a permis d'affirmer que le degré de confiance que nous pouvions accorder aux mesures était plus que satisfaisant compte-tenu de la difficulté d'accès aux grandeurs turbulentes notamment. Nous avons pu montrer que notre chaîne de mesure était capable de capturer 90% et 65% de l'énergie cinétique turbulente et de la dissipation turbulente respectivement.

Les mesures PIV ont été ensuite utilisées pour sélectionner le modèle de turbulence et le schéma numérique qui retranscrit le plus fidèlement possible l'écoulement dans la colonne. La comparaison des modèles testés avec les profils expérimentaux nous a permis de dire que la combinaison optimale de modèle de turbulence/schéma numérique dépend de ce qui est attendu du modèle. En effet, nous avons pu constater que la plupart des modèles représentent les champs de vitesse moyens assez fidèlement. Ainsi, un surcote de calcul s'avère inutile si ce sont les grandeurs moyennes qui sont recherchées, et un schéma simple de premier ordre (*First Order Upwind*) est largement suffisant, sachant que ceci permet de gagner en temps de calcul et en finesse du maillage. En revanche, la modélisation de la turbulence nécessite plus de précaution. La combinaison du modèle de turbulence  $k-\epsilon$  RNG au schéma numérique *Power Law (PL)* semble donner les meilleurs résultats, même si ces derniers ne s'éloignent pas de ceux donnés par le modèle  $k-\epsilon$  standard combiné au schéma *Second Order Upwind (SOU)*. Cependant ce dernier est plus coûteux en termes de temps de calcul. Les performances du schéma *PL* viennent certainement du fait qu'il est dérivé à partir de la solution exacte d'un problème de convection-diffusion. Enfin, pour des raisons liées à la stabilité des calculs, le schéma *FOU* peut également être utilisé en prenant le soin de réduire la diffusion numérique.

Une comparaison de nos simulations à des études publiées dans la littérature nous a permis de montrer l'importance de la validation non seulement des grandeurs moyennes mais également de la turbulence. Ainsi, nous avons pu voir que le modèle de turbulence  $k-\epsilon$  bas- $Re$ , proposé par ailleurs dans la littérature, n'est fiable qu'à intensité de pulsation faible ou modérée. En revanche, nous avons démontré que le modèle  $k-\epsilon$  RNG est satisfaisant sur une plus large gamme de conditions opératoires représentatives de notre application industrielle.

---

### Modélisation des DTS des gouttes

Des mesures de DTS des gouttes ont été réalisées dans la colonne pulsée en utilisant un système basé sur la technique d'ombroscopie. Elles nous ont permis d'acquérir des données relatives au temps de séjour de gouttes de différents diamètres avec des conditions opératoires variables. L'évolution du temps de séjour moyen est en accord avec les observations précédentes que nous avons pu trouver dans la littérature, à savoir une diminution du temps de séjour avec l'intensité de pulsation et la taille des gouttes. Cependant, nous avons pu montrer qu'un effet séparé de la fréquence et de l'amplitude de pulsation était évident. Ainsi, à même intensité de pulsation le temps de séjour diminuait différemment selon la fréquence de pulsation. Cet effet a été également retrouvé sur les champs de vitesse moyenne et les grandeurs turbulentes.

L'approche lagrangienne est utilisée pour modéliser les DTS des gouttes. Pour ce faire, le modèle Discret Phase Model est utilisé. La confrontation des résultats numériques et expérimentaux nous a permis de valider le modèle développé. Nous avons pu montrer que le modèle reproduit parfaitement les tendances expérimentales. D'un point de vue quantitatif, le modèle est capable de prédire les DTS avec un écart relatif variable inférieur ou égal à 15%, avec les meilleurs résultats donnés par le modèle  $k - \epsilon$  standard. Aucune tendance claire de surestimation ou sous-estimation du temps de séjour moyen n'est apparue. Ceci étant certainement imputable à la nature stochastique du modèle de dispersion turbulente utilisé. Malgré cette dispersion, les résultats restent très satisfaisants vu le gain en temps qu'offre ce modèle.

L'amélioration de la représentation des DTS nécessiterait tout d'abord de considérer un autre type de modèle pour la modélisation de la dispersion turbulente. Il serait intéressant d'approfondir ce point et de chercher des alternatives à la représentation de ce phénomène. Nous pouvons également penser que des simulations 3D peuvent aider à élucider le rôle de la turbulence complète dans l'estimation des DTS. Aussi, une modélisation LES peut être envisageable à condition de disposer des ressources informatiques nécessaires.

### Identification des noyaux de rupture et de coalescence dans un RPA

Dans le deuxième chapitre, un réacteur parfaitement agité (RPA) équipé d'un mobile à écoulement axial est utilisé pour simuler l'hydrodynamique de la colonne pulsée. En effet, le RPA est caractérisé par une répartition quasi-uniforme de la turbulence, ce qui permet de réaliser des simulations 0D beaucoup plus adaptées à la sélection et à l'identification des noyaux de rupture et de coalescence.

Tout d'abord, une étude basée sur les données de la littérature nous a permis de choisir un mobile d'agitation qui produise un écoulement qui se rapproche le mieux de celui de la colonne, à savoir un écoulement peu cisailé. Le choix du mobile étant fixé, nous

nous sommes attelés à la détermination des conditions optimales de mesure des DTG au moyen de la sonde vidéo EZ Probe (ombroscopique). Ainsi, nous avons utilisé des billes calibrées qui nous ont permis d'affirmer que les mesures de DTG d'eau dans le TPH doivent être faites à des vitesses de rotation supérieures à 400 *tr/min* avec un entrefer de 1,2 mm au minimum. La confrontation de cette sonde à une autre sonde vidéo basée sur la réflexion lumineuse nous a permis de lever le doute sur la capacité de celle-ci à mesurer les grosses gouttes. Aussi, nous avons pu montrer que le système de sonde vidéo offrait une reproductibilité très satisfaisante.

Une étude théorique nous a permis de sélectionner les modèles de rupture et un modèle de coalescence applicables à notre système de phase. La méthode des volumes finis a été, quant à elle, choisie pour la résolution de la PBE en raison de son caractère conservatif. Les DTG mesurées dans le RPA à différentes conditions opératoires, faisant intervenir plusieurs vitesses de rotation et taux de rétention, ont ensuite été utilisées pour l'identification des noyaux sélectionnés.

L'identification de la rupture seule montre que les trois modèles de rupture retenus sont capables de prédire les DTG avec une très bonne précision. Cependant, ces modèles ne permettent pas d'identifier la coalescence automatiquement, à l'exception du modèle de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#). Les deux autres modèles doivent être forcés, en fixant préalablement une partie des constantes, pour réaliser l'identification. Par la suite, une observation des DTG mesurées et du comportement du modèle nous a permis d'affirmer que la rupture et la coalescence ont des dynamiques interdépendantes. Ce constat nous a conduit à une identification simultanée des noyaux de rupture et de coalescence avec les mesures à des taux de rétention de  $\phi = 1\%$  et  $5\%$ . Ainsi, nous avons pu déterminer les constantes qui offraient le meilleur ajustement aux DTG mesurées.

Ceci nous a également apporté une meilleure compréhension de l'émulsification et des différents modèles de rupture et de coalescence. Par ailleurs, nous avons pu étudier l'influence de la définition de la dissipation turbulente sur l'identification des noyaux de rupture et de coalescence. Nous avons pu voir que les différents modèles s'adaptent à la définition de la dissipation turbulente  $\epsilon$ .

Considérer un modèle multizone est une des pistes possibles pour approfondir les résultats obtenus ici. Des études de la littérature ont montré une amélioration des résultats d'identification. Il s'agit de définir des zones dans lesquelles une partie de l'énergie est dissipée et de définir le phénomène prépondérant par zone. Ceci nécessite de connaître les flux de matière entre les différentes zones qui peuvent être déterminés en ayant recours à la CFD.

Par ailleurs, les mesures de DTG ont été limitées par le débordement de l'émulsion à haute vitesse d'agitation, auquel s'ajoute le risque d'entraînement de bulles qui aurait faussé les mesures.

---

### Couplage CFD-PBE

Le couplage de la CFD et de la PBE permet de modéliser les DTG tout en tenant compte des inhomogénéités dans la distribution de la turbulence dans la colonne. Les mesures de DTG réalisées dans la colonne pulsée pour valider le modèle ont été rendues possibles grâce à une sonde optique glissée dans la paroi de la colonne. Celles-ci ont montré une diminution du diamètre moyen et une augmentation de la rétention avec l'intensité de pulsation. L'effet séparé de la fréquence et de l'amplitude de pulsation n'a pas pu être clairement mis en évidence dans les conditions opératoires explorées. L'effet de la rétention sur le diamètre moyen des gouttes est moins prononcé que celui de l'intensité de pulsation. Nous avons également pu réaliser des mesures de DTG avec un système de phase visqueux. Les DTG de ce système semblent centrées sur des diamètres nettement inférieurs à ceux du système eau/TPH. Ceci peut être expliqué par l'augmentation de la viscosité qui constituerait un frein à la coalescence ou encore la baisse de la tension interfaciale.

La CFD a été ensuite couplée à la méthode QMOM, qui permet de suivre les moments de la distribution, donnant ainsi accès avec une très bonne précision au diamètre, avec un coût de calcul modéré. L'utilisation des constantes identifiées dans le RPA n'a pas permis de modéliser correctement les DTG dans la colonne. Nous avons ensuite avancé plusieurs hypothèses pour expliquer ce comportement. Tout d'abord, la gamme de diamètre avec laquelle les noyaux sont identifiés. En effet, le diamètre moyen des gouttes dans la colonne pulsée est plus important que dans le RPA, en raison de la présence de fraction de gouttes plus grosses. De plus, l'identification des paramètres des noyaux de rupture et de coalescence est réalisée sur le diamètre moyen et non sur la DTG complète dans le cas de la colonne pulsée. Cette différence peut affecter les valeurs des paramètres identifiés. Il peut également provenir de la représentativité du champ de turbulence présent dans le RPA de celui rencontré dans la colonne pulsée. En effet, localement dans la colonne, notamment au niveau des parois, les niveaux de dissipation turbulente sont très élevés. Ces endroits peuvent jouer un rôle important dans la rupture. Les mesures effectuées dans le RPA ne nous ont pas permis de simuler ces niveaux de turbulence à cause de problèmes pratiques liés au débordement de l'émulsion et au risque d'entraînement de bulles d'air. L'identification faite dans le RPA repose sur la dynamique des phénomènes de rupture et de coalescence, tandis que dans le cas de la colonne pulsée, nous nous sommes intéressés uniquement à l'état de l'émulsion à l'équilibre. Une étude de la dynamique de rupture dans la colonne pulsée peut également être envisagée avec une comparaison avec le comportement observé dans le RPA pour une meilleure compréhension de ce résultat. Cependant, ceci nécessiterait des moyens de mesure complexes comparables à ceux utilisés pour les mesures PIV avec notamment la nécessité de procéder à une synchronisation de la mesure sur le cycle de pulsation.

Les DTG mesurées dans la colonne pulsée ont été utilisées pour identifier les noyaux de rupture et de coalescence. Le modèle couplé CFD-PBE s'est montré capable de prédire aussi bien la rupture que la coalescence, ce qui est une nouveauté au regard des données de la littérature. L'accord quantitatif du modèle vis-à-vis de la rétention est excellent et

est plus que satisfaisant pour ce qui est du diamètre moyen. Qualitativement, le modèle reproduit parfaitement les observations expérimentales y compris celles liées à l'augmentation de la viscosité de la phase continue. Le modèle constitue donc un précieux outil de R&D.

Par manque de temps, seul le modèle de rupture de [Coulaloglou & Tavlarides \(1977\)](#) a été considéré dans cette dernière étape de ces travaux. Il serait intéressant de poursuivre l'identification des autres modèles pour bénéficier de leurs spécificités. Aussi, pour rendre compte plus précisément de l'effet de la viscosité, il est nécessaire de sélectionner un autre modèle basé sur la rupture visqueuse plus adaptée à un écoulement laminaire.

### **Bilan de population multivariable et couplage avec la chimie**

La connaissance des DTG dans la colonne est une étape importante pour la modélisation du procédé. Cette tâche étant réalisée, il convient d'entreprendre une étude pour déterminer les profils de concentration des gouttes dans la colonne. Le bilan de population bivarié (PBE-2D) peut être envisagé comme une solution pour atteindre cet objectif. En plus de la modélisation des DTG par la méthode que nous avons utilisée dans ce manuscrit, ce dernier résout une seconde variable interne qui peut correspondre à la concentration. Tout comme la PBE-1D, l'utilisation de cette approche nécessite de choisir des méthodes de résolution. Il faut dire que les travaux consacrés à ce type de problématique sont peu nombreux dans la littérature et assez récents. La méthode DQMOM a été proposée pour la première fois par [Marchisio & Fox \(2005\)](#). La méthode est proche de la QMOM dans son concept si ce n'est qu'elle réalise un suivi direct des abscisses et poids sans avoir recours à un algorithme d'inversion. D'un autre côté, la méthode CQMOM a été introduite par [Yuan & Fox \(2011\)](#). Cette dernière suit le même raisonnement que la QMOM sauf que dans ce cas l'algorithme d'inversion tient compte de la dépendance des moments vis-à-vis d'une autre variable, qui peut être la concentration par exemple. Ces deux méthodes peuvent servir pour suivre à la fois les DTG et les profils de concentration des gouttes. Cependant, en plus d'un travail nécessaire sur le choix des méthodes, d'autres éléments doivent être pris en compte notamment la dépendance des phénomènes de rupture et de coalescence avec cette seconde variable interne.

La prise en compte de la précipitation est partiellement abordée dans le cadre de la thèse ([Charton \*et al.\*, 2013](#)). Nous nous sommes notamment intéressés à l'influence de l'hydrodynamique qui se trouve à l'intérieur des gouttes sur la formation des précipités. Les conditions limites sont imposées à partir des données simulées par le modèle de l'écoulement monophasique. Pour les conditions initiales, celles-ci peuvent être obtenues à partir des profils de concentration des gouttes. Cependant, il existe encore un certain nombre de verrous à lever pour réaliser le couplage, notamment le rôle de la coalescence dans le déclenchement de la réaction de précipitation et l'identification des paramètres des équations cinétiques de nucléation, croissance et agglomération des précipités.

---

## Bibliographie

- ADRIAN, R.-J. 1997 Dynamic ranges of velocity and spatial resolution of particle image velocimetry. *Measurement Science and Technology* **8**, 1393–1398.
- ALOPAEUS, V., KOSKINEN, J. & KESKINEN, K.-I. 2002 Simulation of the population balance for liquid-liquid systems in a non ideal stirred tank. Part 2 : parameter fitting and the use in the multiblock model for dense dispersions. *Chemical Engineering Science* **57**, 1815–1825.
- AMOKRANE, A., CHARTON, S., LAMADIE, F., BECKER, J., KLEIN, J.-P. & PUEL, F. 2012 Study of the dispersed phase behavior in a pulsed column for oxalate precipitation in emulsion. 9th International conference on CFD in the mineral and process industries, Melbourne, Australia.
- AMOKRANE, A., CHARTON, S., SHEIBAT-OTHMAN, N., BECKER, J., KLEIN, J.-P. & PUEL, F. 2014 Development of a CFD-PBE coupled model for to the simulation of the drops behavior in a pulsed column. *Canadian Journal of Chemical Engineering* **92**, 220–233.
- ANGELOV, G., GOURDON, C. & LINE, A. 1998 Simulation of flow hydrodynamics in a pulsed solvent extraction column under turbulent regimes. *Chemical Engineering Journal* **71**, 1–9.
- ANGELOV, G., JOURNE, E., LINE, A. & GOURDON, C. 1990 Simulation of the flow patterns in a disc and doughnut column. *Chemical Engineering Journal* **45**, 87–97.
- AOUN-NABLI, M.-S., GUIRAUD, P. & GOURDON, C. 1997 Numerical experimentations : a tool to calculate the axial dispersion coefficient in discs and doughnuts pulsed solvent extraction columns. *Chemical Engineering Science* **52**, 2353–22368.
- ATIEMO-BENG, V.-A., PENNEY, W.-R. & ARMENANTE, P. 2004 *Chapter 10 : Solid-Liquid Mixing*. Handbook of industrial mixing, Wiley Interscience.
- AUBIN, J., FLETCHER, D.-F. & XUEREBO, C. 2004 Modeling turbulent flow in stirred tanks with CFD : the influence of the modeling approach, turbulence model and numerical scheme. *Experimental, Thermal and Fluid Science* **28**, 431–445.
-

- AUBIN, J., MAVROS, P., FLETCHER, D., BERTRAND, J. & XUERE, C. 2001 Effect of axial agitator configuration (up-pumping, down-pumping, reverse rotation) on flow patterns generated in stirred vessels. *Institution of Chemical Engineers* **79**, 845–856.
- AUGIER, F., MASBERNAT, O. & GUIRAUD, P. 2003 Slip velocity and drag law in a liquid-liquid homogeneous dispersed flow. *A.I.Ch.E Journal* **49**, 2300–2316.
- BALDI, S., DUCCI, A. & YIANNESKIS, M. 2004 Determination of dissipation rate in stirred vessels through direct measurement of fluctuating velocity gradients. *Chemical Engineering and Technology* **27**, 275–281.
- BAPAT, P.-M. & TAVLARIDES, L.-L. 1985 Mass transfer in a liquid-liquid CFSTR. *A.I.Ch.E Journal* **31**, 659–666.
- BARDIN-MONNIER, N. 1998 Simulations et expériences Lagrangiennes d'écoulements diphasiques dans les colonnes pulsées à garnissage disques-couronnes. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
- BECKER, J. 2013 Coupling of population balance modelling and computational fluid dynamics applied to turbulent emulsification processes in complex geometries. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1.
- BECKER, J., PUEL, F., HENRY, R. & SHEIBAT-OTHMAN, N. 2011 Investigation of discrete balance models and breakage kernels for dilute emulsification systems. *Industrial and Engineering Chemistry Research* **50**, 11358–11374.
- BORDA, G., BRACKX, E., BOISSET, L., DUHAMET, J. & ODE, D. 2011 Use of a pulsed column contactor as a continuous oxalate precipitation reactor. *Nuclear Engineering and Design* **241**, 809–814.
- BROWN, D.-A.-R., JONES, P.-N. & MIDDLETON, J.-C. 2004 *Experimental methods, part A : Measurement tools and techniques for mixing and flow visualization studies*. Handbook of industrial mixing, Wiley Interscience.
- BRUNET, L. 2005 Conception et analyse d'un nouveau type de colonne pulsée appliquée au contact solide/liquide. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
- BUJALSKI, J.-M., YANG, W., NIKOLOV, J., SOLNORDAL, C.-B. & SCHWARTZ, M.-P. 2006 Measurement and CFD simulation of single-phase flow in solvent extraction column. *Chemical Engineering Science* **61**, 2930–2938.
- BURATTI, M.-F. 1988 Etude des phénomènes de mélange axial dans les colonnes pulsées équipées de garnissages disques-couronnes. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
- CASAMATTA, G. 1981 Comportement de la population des gouttes dans une colonne d'extraction : transport, rupture, coalescence, transfert de matière. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
-

- CHARTON, S. 2010 Procédé continue de coprécipitation oxalique : étude exploratoire et programme de développement du modèle. *Tech. Rep.*. Commissariat à l’Energie Atomique et aux Energies Alternatives.
- CHARTON, S., DUHAMET, J., BORDA, G. & ODE, D. 2012 Axial dispersion in pulsed disk and doughnut columns : a unified law. *Chemical Engineering Science* **75**, 468–477.
- CHARTON, S., KACEM, A., AMOKRANE, A., BORDA, G. & PUEL, F. 2013 Actinides oxalate precipitation in emulsion : from the drop scale to the industrial process. *Chemical Engineering Research and Design* **91**, 660–669.
- CHOUDHURY, N.-H. 1997 Improved predictive methods for solids suspension in agitated vessels at high solid loadings. PhD thesis, University Arkansas.
- COULALOGLOU, C.-A. & TAVLARIDES, L.-L. 1977 Description of interaction processes in agitated liquid-liquid dispersions. *Chemical Engineering Science* **32**, 1289–1297.
- DANIEL, C. 2003 Dynamique des écoulements liquide-liquide oscillants en géométrie chicanée. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
- DIMITROVA, A.-K., GOURDON, C. & CASAMATTA, G. 1988 Simulation of hydrodynamics and mass transfer of a disks and rings pulsed column. *Industrial and Engineering Chemistry Research* **27**, 329–333.
- DRUMM, C., HLAWITSCHKA, M.-W. & BART, H.-J. 2011 CFD simulations and Particle Image Velocimetry measurements in an industrial scale rotating disc contactor. *American Institute of Chemical Engineers* **57**, 10–26.
- FILBERT, F. & LAURENCOT, P. 2004 Numerical Simulation of the Smoluchowski coagulation equation. *SIAM Journal on Scientific Computing* **25**, 2004–2010.
- FLUENTINC 2010 *Fluent User’s Guide*.
- GORDON, R.-G. 1968 Error bounds in equilibrium statistical mechanics. *Aerosol Science and Technology* **56**, 655–663.
- GUNTZBURGER, Y. 2012 Une méthode expérimentale d’évaluation globale du pompage d’un agitateur : application au mélangeur Maxblend en milieux Newtonien et non-Newtonien. *Tech. Rep.*. Université de Montréal.
- HAKANSSON, A., TRAGARDH, C. & BERGENSTAHL, B. 2009 Dynamic simulation of emulsion formation in a high pressure homogenizer. *Chemical Engineering Science* **64**, 2915–2925.
- HIBIKI, T. & ISHII, M. 2002 Two-group interfacial area transport equations at bubbly-to-slug flow transition. *Nuclear Engineering and Design* **202**, 39–76.
- HOCQ, S. 1994 Etude du transfert de matière en colonne pulsée à l’aide d’un système de mesure de tailles de concentration en soluté des gouttes. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
-

- HOWARTH, W.-J. 1964 Coalescence of drops in a turbulent flow field. *Chemical Engineering Science* **19**, 33–38.
- HRENYA, C.-M., BOLIO, E.-J., CHAKRABARTI, D. & SINCLAIR, J.-L. 1995 Comparison of Low Reynolds number  $k$ - $\epsilon$  turbulence models in predicting fully developed pipe flow. *Chemical Engineering Science* **50**, 1923–1941.
- HSIA, M.-A. & TAVLARIDES, L.-L. 1980 A simulation model for homogeneous dispersion in stirred tanks. *Chemical Engineering Journal* **20**, 225–236.
- HULBURT, H. & KATZ, S. 1964 Some problems in particle technology. *Chemical Engineering Science* **19**, 555–574.
- ILLINGWORTH, J. & KITTLER, J. 1988 A survey of the Hough transform. *Computer vision, graphics and image processing* **44**, 87–116.
- KHALIL, A. 2011 Etude expérimentale d'un procédé de cristallisation en émulsion huile dans l'eau : application au distearate d'éthylène glycol. Thèse de doctorat, Université de Lyon.
- KUMAR, J., PEGLOW, M., WARNECKE, G., HEINRICH, S. & MORL, L. 2006 Improved accuracy and convergence of discretized Population Balance for aggregation : The Cell Average Technique. *Chemical Engineering Science* **61**, 3327–3342.
- KUMAR, J., WARNECKE, G., PEGLOW, M. & HEINRICH, S. 2009 Comparison of numerical methods for solving Population Balance Equations incorporating aggregation and breakage. *Powder Technology* **189**, 218–226.
- KUMAR, S. & RAMKRISHNA, D. 1996 On the solution of Population Balance Equations by discretization - I. A Fixed Pivot Technique. *Chemical Engineering Science* **51**, 1311–1332.
- LAMADIE, F. 2013 Mesure d'un écoulement diphasique liquide/liquide par holographie numérique en ligne : application à la caractérisation des émulsions en colonne pulsée. Thèse de doctorat, CNAM Paris.
- LASHERAS, J.-C., EASTWOOD, C., MARTINEZ-BAZAN, C. & MONTANES, J.-L. 2002 A review of statistical models for the break-up of an immiscible fluid immersed into a fully developed turbulent flow. *International Journal of Multiphase Flow* **28**, 247–278.
- LAULAN, A. 1980 Hydrodynamique et rupture de gouttes dans une colonne pulsée à disques et couronnes. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
- LAUNDER, B.-E. & SHARMA, B.-I. 1974 Application of the energy dissipation model of turbulence to the circulation of flow near a spinning disc. *Letters in Heat and Mass Transfer* **1**, 131–138.
- LAUNDER, B.-E. & SPALDING, D.-B. 1972 Lectures in mathematical models of turbulence. *Academic Press* .
-

- LEE, K. & MATSOUKAS, T. 2000 Simultaneous coagulation and break-up using constant-N Monte Carlo. *Powder Technology* **110**, 82–89.
- LEGARREC, S. 1993 Modélisation et simulation numérique de l'écoulement et de la dispersion d'un contaminant dans une colonne pulsée. Thèse de doctorat, Conservatoire des Arts et Métiers.
- LEHR, F., MILLIES, M. & MEWES, D. 2002 Bubble-size distributions and flow fields in bubble columns. *A.I.Ch.E Journal* **48**, 2426–2443.
- LEROY, P. 1991 Etude et quantification des pertes de charge dans les colonnes pulsées à garnissage disques couronnes. Thèse de doctorat, INP Lorraine.
- LIAO, Y. & LUCAS, D. 2009 A litterature review of theoretical models for drop and bubble breakup in turbulent dispersions. *Chemical Engineering Science* **64**, 3389–3406.
- LIAO, Y. & LUCAS, D. 2010 A litterature review of mechanisms and models for the coalescence process of fluid particles. *Chemical Engineering Science* **65**, 2851–2864.
- LUO, H. & SVENDSEN, H.-F. 1996 Theretical model for drop and bubble breakup in turbulent dispersions. *A.I.Ch.E Journal* **42**, 1225–1233.
- MAASS, S., WOLLNY, S., VOIGT, A. & KRAUME, M. 2011 Experimental comparison of measurement techniques for drop size distributions in liquid/liquid dispersions. *Experimental Fluids* **50**, 259–269.
- MAK, A.-T.-C. 1992 Solid-liquid mixing in a mechanically agitated vessels. PhD thesis, University College-London.
- MARCHISIO, D.-L. & FOX, R.-O. 2005 Solution of population balance equations using the direct quadrature method of moments. *Journal of Aerosol Science* **36**, 43–73.
- MARCHISIO, D.-L., PIKTURNA, J.-T., FOX, R.-O., VIGIL, R.-D. & BARRESI, A.-A. 2003a Quadrature method of moments for population balance equations. *AIChE Journal* **49**, 1266–1276.
- MARCHISIO, D.-L., VIGIL, R.-D. & FOX, R.-O. 2003b Implementation of the quadrature method of moement in CFD codes for agregation-breakage kernels. *Chemical Engineering Science* **58**, 3337–3351.
- MARTINEZ-BAZAN, C., MONTANES, J.-L. & LASHERAS, J.-C. 1999 On the breakup of an air bubble injected into fully developed turbulent flow. Part 1 : breakup frequency. *Journal of Fluid Mechanics* **401**, 157–182.
- MAVROS, P., XUEREB, C. & BERTRAND, J. 1998 Determination of 3D flow fields in agitated vessels by Laser-Doppler Velocimetry : use and interpretation of RMS velocities. *Institution of Chemical Engineers* **76**, 223–233.
- MCGRAW, R. 1997 Description of aerosol dynamics by the quadrature method of moments. *Aerosol Science and Technology* **27**, 255–265.
-

- MORSI, S.-A. & ALEXANDER, A.-J. 1972 An investigation of particle trajectories in two-phase flow systems. *Journal of Fluid Mechanics* **55**, 193–208.
- NEMRI, M. 2013 Etude expérimentale et numérique du mélange du mélange et de la dispersion axiale dans une colonne à effet Taylor-Couette. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
- OH, W.-Z. 1983 Analyse du fonctionnement hydrodynamique d'une colonne pulsée à disques et couronnes - étude du champ des vitesses. Thèse de doctorat, INP Toulouse.
- O'ROURKE, A.-M. & MACLOUGHLIN, P.-F. 2005 A comparison of measurement techniques used in analysis of evolving liquid-liquid dispersions. *Chemical Engineering and Processing* **44**, 885–894.
- PACEK, A.-W., CHAMSART, S., NEINOW, A.-W. & BAKKER, A. 1999 The influence of impeller type on mean drop size and drop size distribution in an agitated vessel. *Chemical Engineering Science* **54**, 4211–4222.
- PACEK, A.-W., MOORE, A.-P.-T., CALABRESE, R.-W. & NEINOW, A.-W. 1994 Video technique to measuring dynamics of liquid-liquid dispersion during phase inversion. *A.I.Ch.E Journal* **40**, 1940–1949.
- PAISANT, J.-F., AMOKRANE, A., LAMADIE, F., CHARTON, S., RANDRIAMANANTENA, T. & DUHAMET, J. 2013 Use of synchronised PIV to measure a pulsed flow velocity field in a discs and doughnuts column. 13th International Symposium on Particle Image Velocimetry, Delft, Netherlands.
- PATANKAR, S. 1980 *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*. Mac Graw Hill.
- PENG, T., BALIJEPALLI, A., GUPTA, S.-K. & LEBRUN, T. 2007 Algorithms for on-line monitoring of microspheres in an optical tweezers-based assembly cell. *Journal of Computin and Information Science in Engineering* **7**, 330–338.
- RAMKRISHNA, D. 2000 Population Balances - Theory and Applications in Particulate Systems in Engineerig. *Tech. Rep.*. Academic Press : San Diego, CA.
- RAMKRISHNA, D. & MAHONY, A.-W. 2002 Population Balance Modeling : Promise for the Future. *Chemical Engineering Science* **57**, 595–606.
- RANDOLPH, A.-D. 1969 Effect of crystal breakage on cristal size distribution in a mixed suspension crystallizer. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* **8**, 58–63.
- RANDRIAMANANTENA, T. 2011 Caractérisation et modélisation du comportement de la phase dispersée dans les colonnes pulsées. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI.
- RATHORE, S.-K. & DAS, M.-K. 2013 Comparison of two low-Reynolds number turbulence models for fluid flow study of wall bounded jets. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **61**, 365–380.
-

- RETIEB, S., GUIRAUD, P., ANGELOV, G. & GOURDON, C. 2007 Hold-up within two phase countercurrent pulsed extraction columns via Eulerian simulations. *Chemical Engineering Science* **62**, 4558–4572.
- RITTER, J. & KRAUME, M. 2000 On-line measurement technique for drop size distributions in liquid-liquid systems at high dispersed phase fractions. *Chemical Engineering and Technology* **23**, 579–581.
- SAARENINNE, P. & PIIRTO, M. 2000 Turbulent kinetic energy dissipation rate estimation from PIV velocity vector field. *Experiments in Fluids* **29**, 300–307.
- SAARENINNE, P., PIIRTO, M. & ELLORANTA, H. 2001 Experiences of turbulence measurement with PIV. *Measurement Science and Technology* **12**, 1904–1910.
- SCHILLER, L. & NAUMANN, Z. 1935 Über die grundlegenden Berechnungen bei der Schwerkraft-aufbereitung. *Z. Ver. Deutsch. Ing* **77**, 318–326.
- SHINNAR, R. & CHURCH, J.-M. 1960 Predicting particle size in agitated dispersions. *Industrial and Engineering Chemistry* **52**, 253–256.
- SMITH, M. & MATSOUKAS, T. 1997 Constant-number Monte Carlo simulation of population balances. *Chemical Engineering Science* **53**, 1777–1786.
- SPEZIALE, C.-G. & THANGAM, S. 1992 Analysis of an RNG-based turbulence model for separated flows. *Tech. Rep.*. NASA.
- TOUCHARD, C.-S. 2013 Etude de la mise en suspension de particules dans les cellules de mesure. *Tech. Rep.*. Commissariat à l’Energie Atomique et aux Energies Alternatives.
- TSOURIS, C. & TAVLARIDES, L.-L. 1994 Breakage and coalescence models for drops in turbulent dispersion. *A.I.Ch.E Journal* **40**, 395–406.
- VALENTAS, K.-J., BILOUS, O. & AMUNDSON, N.-R. 1966 Analysis of breakage in dispersed phase systems. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* **5**, 271–279.
- VERSTEEG, H.-K. & MALALASEKERA, W. 2007 *An introduction to Computational Fluid Dynamics : the Finite Volume Method*. Pearson Education.
- YUAN, C. & FOX, R.-O. 2011 Conditional quadrature method of moments for kinetic equations. *Journal of Computational Physics* **230**, 8216–8246.
- ZWIETERING, T.-N. 1958 Suspending of solid particles in liquid by agitators. *Chemical Engineering Science* **8**, 244–253.
-



# Annexes



# Annexe A

## Production Scientifique

### Articles de Revues

- A1** S. Charton, A. Kacem, A. Amokrane, G. Borda, F. Puel, J.-P. Klein, 2013, Actinides oxalate precipitation in emulsion modeling : From the drop scale to the industrial process, *Chemical Engineering Research and Design*, 91, pp. 660-669.
- A2** A. Amokrane, S. Charton, N. Sheibat-Othman, J. Becker, J. P. Klein, F. Puel, 2014, Development of a CFD? PBE coupled model for to the simulation of the drops behavior in a pulsed column, *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 92, pp. 220-233.
- A3** A. Amokrane, S. Charton, F. Lamadie, J.-F. Paisant, F. Puel, 2014, Single-phase flow in a pulsed column : Particle Image Velocimetry validation of a CFD based model, *Chemical Engineering Science*, 114, pp. 40-50.

### Congrès et Colloques

#### Communications Orales

- Co1** A. Amokrane, T. Randriamanantena, B. Cariteau, F. Lamadie, S. Charton, F. Puel, 2011, Procédé de précipitation en colonne pulsée : étude du comportement des gouttes dans la colonne, 13ème congrès de la SFGP, Lille.
- Co2** A. Amokrane, S. Charton, F. Lamadie, J. P. Klein, F. Puel, 2012, Study of the dispersed phase behaviour in a pulsed column for oxalate predipitation in emulsion, 20th International Congress of Chemical and Process Engineering, CHISA, Prague.
-

- Co3** A. Amokrane, S. Charton, F. Lamadie, J. Becker , J. P. Klein, F. Puel, 2012, Study of the dispersed phase behavior in a pulsed column for oxalate predipitation in emulsion, 0th International Conference on CFD in the Minerals and Process Industries CFD2012, Melbourne,.
- Co4** J.-F. Paisant, A. Amokrane, F. Lamadie, S. Charton, T. Randriamanatena, 2013, Use of synchronized PIV to measure a pulsed flow velocity field in a disks and doughnuts column, 10th International Symposium on Particle Image Velocimetry, Delft.

### **Communications Posters**

- Cp1** S. Charton, A. Amokrane, B. Boichard, G. Borda, D. Ode, F. Puel, 2011, Oxalate precipitation in emulsion : from the drop scale to the industrial process, 18th International Symposium on Industrial Crystallisation ISIC, Zurich.
-



Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Chemical Engineering Research and Design

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/cherd](http://www.elsevier.com/locate/cherd)

IChemE

## Actinides oxalate precipitation in emulsion modeling: From the drop scale to the industrial process

Sophie Charton<sup>a,\*</sup>, Amine Kacem<sup>a</sup>, Abdenour Amokrane<sup>a,b</sup>, Gilles Borda<sup>a</sup>, François Puel<sup>b</sup>, Jean-Paul Klein<sup>b</sup>

<sup>a</sup> CEA, DEN, DTEC, SGCS, F-30207 Bagnols-sur-Cèze, France

<sup>b</sup> Université de Lyon, Université Lyon 1, CNRS, CPE Lyon, UMR 5007, Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés (LAGEP), 43 Bd du 11 Novembre 1918, F-69622 Villeurbanne, France

### A B S T R A C T

An original process of actinides coprecipitation based on pulsed flow column is studied. The novelty of this process lies in the confinement of the aqueous reagents in separated droplets, dispersed in an inert organic phase (W/O emulsion). Precipitation occurs inside drops when they coalesce. Besides the implementation of well-known technologies of the nuclear industry, this precipitation in emulsion process is particularly convenient for the control of supersaturation, and ensures the sticky precipitates' confinement within drops, thereby limiting the fouling risk and its adverse consequences on productivity and safety.

A thorough understanding of the precipitation mechanisms and their interactions with the hydrodynamic conditions prevailing around and inside the drops is essential for the process optimization. In this context, numerical simulations were conducted, accompanying experiments, to study the process sensitivity. Different levels were considered in the modeling task, going from the emulsion behavior inside the column, to the reagents mixing and precipitation within the drops.

Regarding the drop scale, on which we focus in this paper, preliminary static and dynamic observations revealed a stage of mixing of the reagents, followed by a progressive concentration of particles at the drop center leading to their agglomeration. In the modeling three configurations of the reagents' mixing were therefore considered relatively to the Hill vortices experimentally noticed. CFD simulations allowed calculating possible mean supersaturation profiles in the drop. Two simplified models were proposed to simulate the precipitation inside the drops. Based on the population balance modeling framework, they consider primary nucleation and growth mechanisms and take into consideration either instantaneous or progressive mixing of the reagents. These simplified models were validated with CFD + PBM simulations. Based on the drop scale simulations, process modeling has been discussed.

© 2013 The Institution of Chemical Engineers. Published by Elsevier B.V. All rights reserved.

**Keywords:** Precipitation in emulsion processes; Population balance modeling; Multiscale modeling; Nuclear fuel reprocessing

### 1. Introduction

Oxalic acid precipitation is used in the nuclear fuel treatment industry to recover selected actinides dissolved in nitric acid media. This operation is currently processed in a vortex flow apparatus (Auchapt and Ferlay, 1983), which size and capacity are limited, to mitigate the risk of criticality. In order to manufacture new compositions of nuclear fuel and/or

transmutation targets, an alternative to the current method of reprocessing spent nuclear fuel, would be to co-extract chosen actinides and then to co-precipitate them in a single step.

The production of such a co-precipitate solid would require the development of a specific apparatus, either in order to increase the production rates, the latter being significantly enhanced by the joint precipitation of uranium and minor actinides for new nuclear fuel production, or to process high

\* Corresponding author. Tel.: +33 466796229.

E-mail address: [sophie.charton@cea.fr](mailto:sophie.charton@cea.fr) (S. Charton).

Received 27 July 2012; Received in revised form 24 January 2013; Accepted 1 February 2013

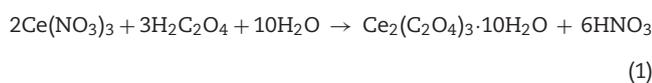
0263-8762/\$ – see front matter © 2013 The Institution of Chemical Engineers. Published by Elsevier B.V. All rights reserved.  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.cherd.2013.02.001>

activity elements for transmutation purpose. To this end, we are studying a new concept of oxalic precipitation process, based on the use of either a pulsed or a Taylor–Couette flow column (Borda et al., 2008).

In this process, an inert organic phase (Tetra Propylene Hydrogen TPH) is pumped from bottom to top in a closed circuit. Both reagents: the complexing agent (oxalic acid) and the cations to be precipitated (dissolved in nitric acid) are fed individually in the contactor, where they are immediately dispersed as droplets: (i) thanks to the complex flow around the column's internals, generated by the pulsation (pulsed column Nemri et al. (2012)), (ii) or due to the Taylor vortices (Taylor–Couette column). The droplets are moving counter-currently to the inert organic phase, down to the settler, where the organic, aqueous and solid phases separate, thus enabling the solid recovery by filtration. The principle of the process is depicted in Fig. 1 for the pulsed column. The novelty of this process lies in the confinement of the reagents in drops of aqueous phase dispersed in the inert organic phase as shown in Fig. 1.

This “in emulsion” process exhibits the double advantage of (i) implementing well-known technologies of the nuclear industry, and (ii) ensuring the confinement of the sticky precipitate in the organic diluent, thereby limiting the risk of contamination of the apparatus and its adverse consequences in terms of productivity, safety, etc. Moreover, contrary to conventional contactors where the precipitation process is strongly dependent on the position of the two feed lines, here the initial mixing of the reagents and reaction induction time are not directly influenced by the apparatus feed conditions.

Regarding pulsed column, the process feasibility was demonstrated in a wide range of flow-rates and chemical conditions. The apparatus, operating conditions and main results are described in (Borda et al., 2011). Feasibility was also demonstrated recently in Taylor–Couette configuration, for which a parametric study is under progress. For these production tests of  $\text{Ce}^{\text{III}}$ ,  $\text{Nd}^{\text{III}}$  and mixed  $\text{U}^{\text{IV}} + \text{Ce}^{\text{III}}$  precipitates, neodymium ( $\text{Nd}^{\text{III}}$ ) and cerium ( $\text{Ce}^{\text{III}}$ ) cations are used to simulate actinides, in order to reduce the inventory of radioactive materials involved in feasibility studies. The precipitation reaction of cerium in nitric media follows:



Whatever the column technology, besides the classical chemical parameters known to influence supersaturation (pH, reagents ratio, etc.), purely hydrodynamic conditions were observed to have an effect on the produced solid properties, such as particle size distribution and particle habit, presumably due to the evolution of the emulsion properties. Indeed, the droplets' size, their residence time, collision frequencies, etc. are strongly related to the pulsation amplitude and frequency in the pulsed column (respectively the gap size and the rotor speed regarding the Taylor–Couette contactor).

Therefore, as for the vortex flow reactor today used in the fuel processing plant (Bertrand et al., 2012), a comprehensive modeling study of the interactions between the precipitation mechanisms and the hydrodynamic conditions prevailing around the droplets in the pulsed column has been undertaken. The methodology is transposable to the Taylor–Couette configuration. In this aim, CFD is used both at the column and

at the drop scales independently. Indeed, contrary to usual emulsion crystallization processes, where the particles derive from solidification of the dispersed droplets (Davey et al., 1997; Khalil et al., 2012), where reagents are transferred from the continuous phase (Bandyopadhyaya et al., 1997), or where the crystallization occurs by a quasi-crystallization mechanism (Espitalier et al., 1997), in the studied process the continuous phase is totally inert. Its only role is to allow collisions between droplets, i.e. the actual reactors, whose coalescence initiates the reaction. Actually, despite the increased complexity of the modeling task, the decoupling of these two scales eliminates the influence of the column's feeding conditions on the nucleation process and the properties of the solid.

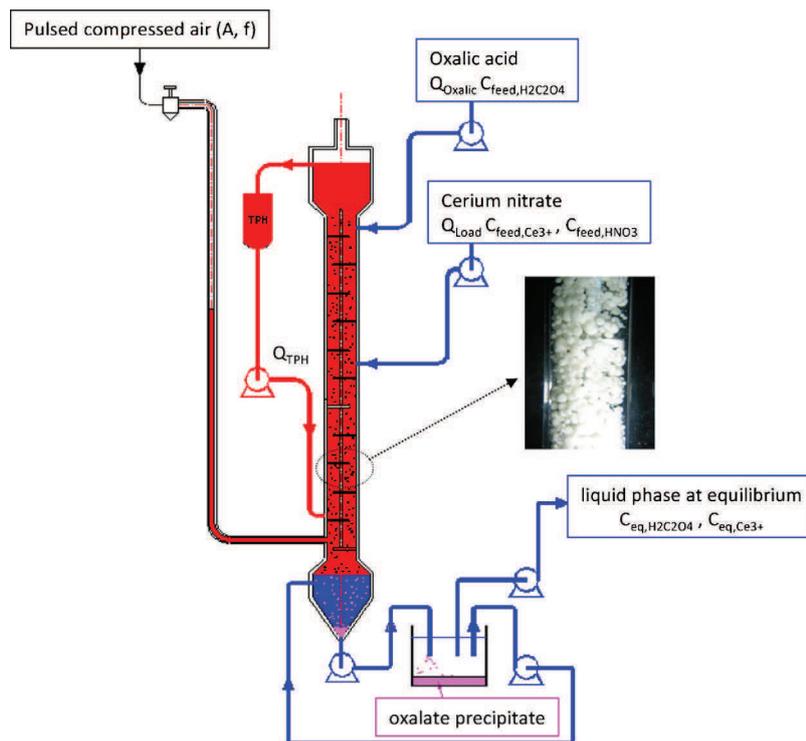
At the column level, the drop population behavior is considered in order to correlate their size distribution, residence times and collision frequency to the reactor operating conditions, such as column and packing geometry, amplitude and frequency of the pulsed flow, feed rates, etc. (Amokrane et al., 2012). Whereas at the drop scale, which is the object of this article, the reagents mixing within the drops, depending on their outer and initial conditions, and the resulting solid particles nucleation, growth and agglomeration processes are considered.

After examining the available precipitation data in Section 2, the methodology developed to model the processes occurring in the droplets is presented. The detailed description of the mixing process during the coalescence is not taken into account for the moment, however, preliminary experimental observations, supplemented by flow simulations, allowed us to simplify the problem in the framework of a chemical engineering approach, described in Section 3. To conclude, the extrapolation to the simulation of the precipitation in emulsion process, and its performances, is discussed in Section 4.

## 2. Precipitation data

The obvious required parameters, for precipitation modeling purpose, are the equilibrium data (product solubility) and kinetic data. Both types are empirically determined, and are therefore closely related to the thermodynamic description of the ionic media, and in particular the model used for calculating activity coefficients. Moreover, kinetic data are generally dependent on operating conditions (reactor type, injection point position, stirrer speed, etc.) as discussed Section 3.3.2. While it is already difficult to obtain reliable kinetic data, little data are available regarding either actinides oxalate precipitation and their nonradioactive stand-in:

- The uranium oxalate and the neodymium oxalate systems had been studied by Andrieu (1999) and more recently by Lalleman et al. (2012). Regarding the calculation of activity coefficients, and from there the calculation of solubility products, supersaturation values, and kinetic parameters, both works relied on the Bromley model (1973), which is valid for ionic strength up to  $I = 6 \text{ mol l}^{-1}$ .
- Cerium oxalate precipitation has, to our knowledge, not been investigated since the experimental work of Chang (1987) in SRNL. The study was purely empirical and the given correlation results from non-linear regression of experimental data.



**Fig. 1 – Principle of the pulsed column contactor operating as a continuous oxalate precipitation reactor (Borda et al., 2011). The picture shows the droplets enclosing the cerium oxalate precipitate during the column functioning.**

In the present study, activity coefficients were calculated using the Davies modification of the Debye–Hückel model (Davies, 1938). Indeed, within the studied process, ionic strength within the drops remained moderate (see Table 1). This model has been commonly used in rare earth oxalate solubility studies (Chung et al., 1998). Moreover, it is simpler to implement in simulation code than the Bromley theory, for which the oxalate contribution is not known to date.

The Davies model is written as follow:

$$\log \gamma_i = \frac{-0.509 \times z_i^2 \times \sqrt{I}}{1 + 0.329 \cdot 10^8 \times a_i \times \sqrt{I}} - 0.1 \times I \quad (2)$$

$$I = \frac{1}{2} \sum_i C_i z_i^2 \quad (3)$$

where  $z_i$  is the charge number of ion  $i$ ,  $C_i$  its concentration in the solution,  $a_i$  a ion size constant, and  $I$  is the ionic strength of the solution.

Considering reaction (1) for Cerium oxalate precipitation, and assuming total dissociation of both nitric and oxalic acids (Lalleman et al., 2012), the mean activity coefficient is expressed by Eq. (4):

$$\bar{\gamma} = \left( \prod_i \gamma_i^{v_i} \right)^{1/\sum_i v_i} = (\gamma_{\text{Ce}^{3+}}^2 \times \gamma_{\text{NO}_3^-}^6 \times \gamma_{\text{H}^+}^6 \times \gamma_{\text{C}_2\text{O}_4^{2-}}^3)^{1/17} \quad (4)$$

The supersaturation ratio is given by:

$$s = \bar{\gamma} \left( \frac{C_{\text{Ce}^{3+}}^2 \times C_{\text{C}_2\text{O}_4^{2-}}^3}{K_{\text{SP}}} \right)^{1/5} \quad (5)$$

where  $K_{\text{SP}}$  is the Cerium oxalate solubility product, defined in accordance with Andrieu (1999):

$$K_{\text{SP}} = \bar{\gamma}_{\text{eq}}^5 \times C_{\text{eq,Ce}^{3+}}^2 \times C_{\text{eq,C}_2\text{O}_4^{2-}}^3 \quad (6)$$

The value of  $K_{\text{SP}}$  is calculated using the equilibrium concentrations achieved in the settler of the pulsed column (Borda et al., 2011) and reported in Table 1.

Regarding kinetic data, the general expression for the nucleation rate is of the type:

$$R_N = A_N \times \exp \left( \frac{-B_N}{(\ln s)^2} \right) \quad (7)$$

where  $A_N$  and  $B_N$  are constants and where  $s$  is the supersaturation ratio defined by Eq. (5).

The growth rate ( $G$  in  $\text{m s}^{-1}$ ) is assumed to be independent of particle size and is expressed by:

$$G = \frac{\partial L}{\partial t} = G_0 \times (C - C_{\text{eq}}) \quad (8)$$

where  $L$  is the characteristic size of the particle (m),  $C$  and  $C_{\text{eq}}$  the  $\text{Ce}^{3+}$  concentration respectively in the drop and at equilibrium, given in Table 1, and  $G_0$  is a constant.

Given the lack of kinetic data regarding cerium oxalate precipitation (except from the work of Chang (1987) from which it is not possible to derive the values of  $A_N$  and  $B_N$ ), we decided for the modeling purpose to consider only neodymium oxalate kinetic parameters (see Table 2).

**Table 1 – Typical operating conditions for Cerium oxalate precipitation in emulsion.**

	Feed	Equilibrium
$\text{Ce}^{3+}$	24 g/l	20 mg/l
$\text{HNO}_3$	1.5 N	0.92 N
$\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$	$0.7 \text{ mol l}^{-1}$	$0.25 \text{ mol l}^{-1}$
$I \text{ (mol l}^{-1}\text{)}$	2.17	0.51

**Table 2 – Kinetic parameters used for the simulations.**

$A_N$	$6.3 \times 10^{19} \text{ (m}^{-3} \text{ s}^{-1}\text{)}$
$B_N$	201
$G_0$	$6.3 \times 10^{-9} \text{ (m.s)}$

Indeed, as observed by Borda et al. (2011), cerium and neodymium oxalates precipitation experiments are leading to similar results: the average particles size ranges from 15 to 30  $\mu\text{m}$  (although Nd oxalate particles are slightly smaller than the Ce ones, in agreement with their smaller solubility), and the analysis of the outlet flux composition indicates that the precipitation reaction is total.

### 3. Study and modeling of the reaction process

#### 3.1. Preliminary experimental study

Prior to the modeling approach, drop scale experiments were conducted in order to study the relevant phenomena taking place within a newly coalesced droplet, possibly subjected to hydrodynamic conditions similar to those prevailing in a pulsed column. Observations made during and after collision of a cerium nitrate drop with another one containing oxalic acid in TPH media, helped us to identify the main stages of the precipitation process. All experiments were conducted according to Table 1 feed conditions.

The small quantities of reagents involved in these preliminary experiments, did not allow the analysis of the solid properties. The latter, already in small quantity, was generally sticking to the support plate at the end of experiments.

Regarding the reaction progress in static configuration, whatever the volumes and compositions of the two fused droplets, the same behavior was observed. First of all, no mixing occurred during the early stages of film drainage and the overall shape evolution (Pontisso et al., 2011). Moreover, a thin veil of solid particles appeared immediately after the fusion of the two drops, as attested by high-speed camera observations (Fig. 2, left). After coalescence, cerium nitrate, which exhibits the higher density, was always located in the lower part of the drop, whereas oxalic acid remained at the top, still separated by the veil of solid particles (Fig. 2, right). In the static conditions of the sessile drop tests, the veil was observed to limit the mass transfer between the two zones. After a while, the particles of the veil aggregated in clusters, which settled gradually on the support plate (Medal et al., 2010).

A second series of experiments was performed under dynamic conditions by maintaining the fused droplet in a TPH stream, instead of being immobilized on the support plate (Picard, 2012). In this configuration, the TPH flow-rate was

adjusted in order to achieve a slip velocity typical of a pulsed column i.e.  $u_{ax} = 0.1 \text{ m s}^{-1}$  (Amokrane et al., 2012). Although the device was not properly optimized for quantitative measurements, as in Groß-Hardt et al. (2008), intense agitation was observed within the moving drop. The particles gradually concentrated in the center of the drop where they can agglomerate (Medal et al., 2010). Only the smallest particles, not “bonded” in the central cluster, continued to circulate along the Hill vortices streamlines. A similar behavior was observed during the pulsed column functioning where the precipitates clusters gradually settled, while remaining confined in the drop.

#### 3.2. Mixing in a flowing drop: CFD approach

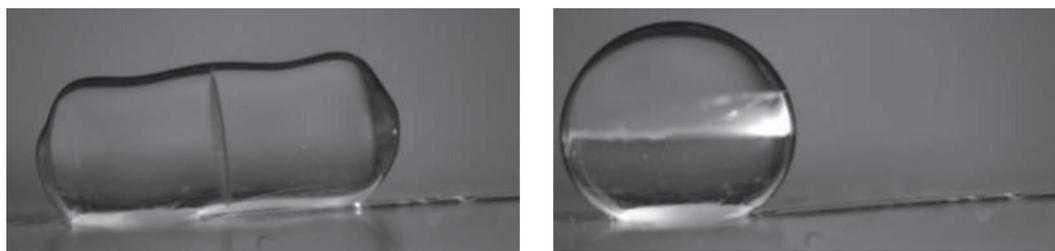
Mixing plays a major role on precipitation process, and more generally on fast chemical reaction, as discussed by several authors (Torbacke and Rasmuson, 2001; Cameirão et al., 2008; Ståhl and Rasmuson, 2009). Computational fluid dynamics (CFD) is therefore frequently used to account for micromixing (Marchisio and Barresi, 2003), and even to quantify segregation in the reactor. Hence, in the case of an agglomeration-dominated system, Ilievski et al. (2001) have studied the separate influence of shear rate, which affects particles capture efficiency and aggregates rupture; and mixing, which affects particles transport and collision rate.

In order to investigate the mixing efficiency in the drops, suggested by the intense agitation observed during the dynamic experiments, CFD simulations were performed in a 2D frame, using the commercial software ANSYS-FLUENT<sup>®</sup>.

Given the water/TPH system properties, the 2–3 mm-diameter droplets flowing in the pulsed column are characterized by an Eötvös number ranging from 0.2 to 0.6, which is typical of droplets with a spherical shape (Clift et al., 1978).

The downward movement in the column frame is simulated by imposing a constant and unidirectional velocity, equal to the slip velocity  $u_{ax}$ , at the drop wall. This was implemented using the “translational imposed velocity” option available in the software boundary conditions panel. This kind of boundary condition indeed set the tangential velocity,  $u_\theta$  all around the drop interface to  $0 \leq u_\theta \leq u_{ax}$  from pole to equator. This velocity profile is in accordance with Saboni et al. (2004) results in the considered range of Re ( $Re \leq 300$ ) and with viscosity and density ratios closed to 1.

A sensitivity study to the mesh size was performed, based on the mixing kinetics. Five quadrangular grids, going from 2000 to 12,000 cells, were tested with a time step of  $10^{-5}$  s, which is far below the characteristic times for diffusion and advective transport of the species. No significant variation of the mixing kinetics was observed above 8000 cells, which was therefore the retained value. The optimal drop mesh is shown in Fig. 3.



**Fig. 2 – Coalescence of sessile drops immersed in TPH. Left: 20 ms after coalescence: oxalic acid (in the left part) and cerium nitrate (in the right part). Right: 60 s after coalescence: oxalic acid (in the upper part), cerium nitrate (in the lower part) and in between the veil of solid particles. NB: reaction ended in approx. 200 s (Pontisso et al., 2011).**

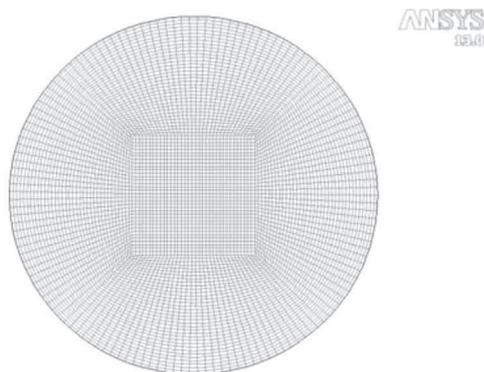


Fig. 3 – Droplet discretization for the CFD calculation (8000 cells).

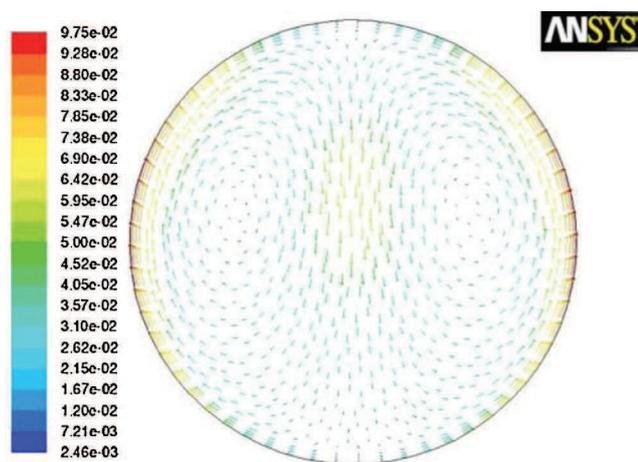


Fig. 4 – Simulated velocity vectors colored by velocity magnitude for  $u_{ax} = 0.1 \text{ m s}^{-1}$ .

Whereas species transport is solved, reaction is not taken into account at this stage. Eqs. (2)–(6) have been programmed in User Defined Functions in order to evaluate ionic strength and supersaturation for each cell of the computational domain.

As illustrated by Fig. 4, the translational movement of the droplet induces the development of Hill vortices, in agreement with the Hadamard–Rybcynski solution (Clift et al., 1978), and with experimental observations.

Three configurations were considered regarding the initial reagents distribution in the drop (see Fig. 5). The two first configurations derive from the sessile drop observations where each reagent seems to be stored in a separate hemisphere. The drop may be cut either perpendicularly (Config. 1) or in parallel (Config. 2), compared with the slip velocity vector direction. The third configuration studied (Config. 3), where one reagent is confined in the core of the drop, derives from Fang et al. (2011) micro-LIF observations of moving drop coalescence.

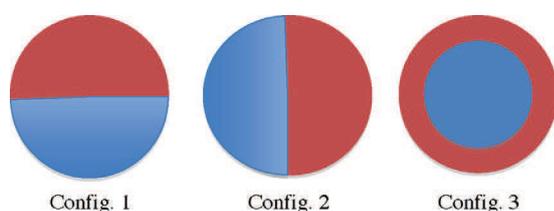


Fig. 5 – Schematic representation of the initial conditions considered for the coupled CFD + PBE simulation.

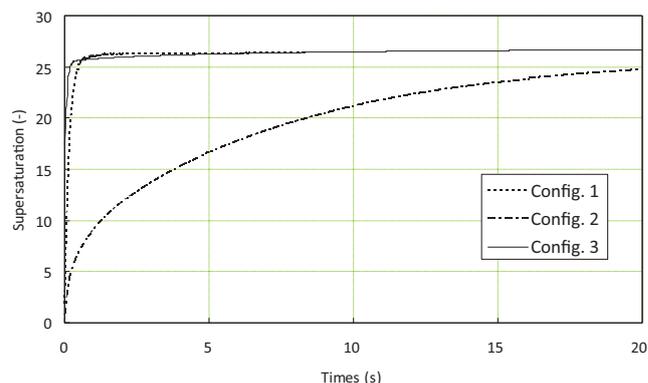


Fig. 6 – Initial conditions influence on the mixing kinetics.

The mean supersaturation evolutions predicted in each case are compared in Fig. 6. In the 1st and the 3rd configurations, homogeneous supersaturation is reached very quickly in the drop, and these two sets of initial conditions behave nearly identically. The contribution of the Hill vortices streamlines to the mixing process is clearly illustrated by the evolution of the supersaturation contours (Fig. 7). In the 2nd configuration conversely, when the concentration gradients are collinear to the velocity vectors in the drop core, the mean supersaturation exhibits a diffusion-like evolution and increases more slowly. In this configuration, the mixing of reagents by the Hill vortices is significantly less efficient (Fig. 7).

### 3.3. Precipitation modeling inside a drop: a reaction engineering approach

#### 3.3.1. Model equations and assumptions

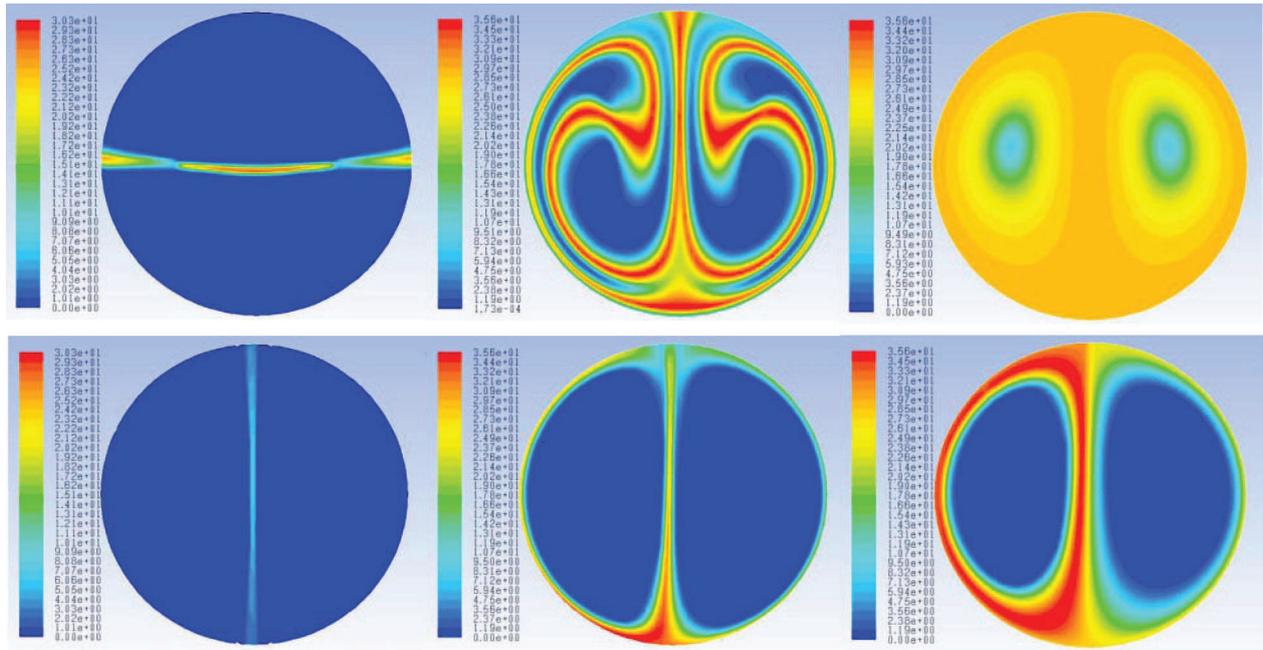
Based on the conclusion of the preliminary experiments, and the result of the CFD simulation regarding mixing, two simplified models were proposed in order to simulate the precipitation process at the drop scale.

The first one, suggested by the rapid and efficient mixing achieved in Config. 1 and Config. 3, assumes complete and instantaneous mixing of the reagents; the droplet is therefore considered as a closed continuously stirred tank reactor (CSTR).

The CSTR assumption is certainly not representative of the precipitation resulting from the collision and coalescence of two moving drops. It assumes that the reagents remain unmixed during the coalescence process, before being immediately and thoroughly mixed after coalescence. Although the experiments performed in static conditions mentioned in Section 3.1 confirmed the lack of mixing during the first stages of coalescence (as supported by high speed camera visualizations), these experiments revealed the early formation of a veil of solid particles limiting the mixing kinetics (Fig. 2, right). Moreover, besides the diffusion-like profile observed in Config. 2, CFD simulations have revealed in each case the early formation of a high supersaturation zone (Fig. 7, left), presumably conducive to the formation of a mass-transfer limiting veil.

A second model named Feed Diffusion Rate model (FDR) was therefore developed, where the CSTR, initially containing the cerium load, is fed, with a finite diffusion rate, by a “reservoir” containing the oxalic acid.

In each case, the model is based on the resolution of the transient population balance equation (PBE), Eq. (8), coupled



**Fig. 7 – From left to right, supersaturation contours at 0.5 ms, 0.1 s and 1 s for Config. 1 (on top) and Config. 2 (at the bottom).**

with the macroscopic balance equations for the species (Eq. (14a) or (14b)).

$$\frac{\partial \psi(L, t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial \psi(L, t)}{\partial L} = N(L, t) \quad (9)$$

In this equation,  $\psi$  (in  $\text{m}^{-3} \text{m}^{-1}$ ) represents the number function distribution of the particles,  $G$  is the growth rate as defined by Eq. (7), and  $N$  (in  $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1} \text{m}^{-1}$ ) is the nucleation rate for particles of size  $L$ .

Agglomeration, breakage and dissolution phenomena are not taken into account in this first approach.

We chose to solve the PBE by a five-order finite volume scheme. Derivatives with respect to particle size are discretized by biased upwind finite differences on 5 points, by analogy with the work of Marcant (1992). Since first order finite difference methods are known to be unstable and subjected to numerical diffusion (Muhur et al., 1996), the accuracy of the five-order scheme chosen was checked using the size-independent growth test-case proposed by Qamar et al. (2007).

The source term is linearized in the nucleation class, according to the methodology proposed by Marcant (1992), thereby stabilizing the resolution algorithm. The nuclei critical size  $L_{\text{crit}}$  (and consequently the boundaries of the nucleation class) is evaluated as a function of supersaturation, according to the following reaction:

$$L_{\text{crit}} = \frac{1}{\ln(s)} \left( \frac{2M_S B_N}{\rho_S (\pi/6) N} \right)^{1/3} \quad (10)$$

where  $\rho_S$  and  $M_S$  represent respectively the density (in  $\text{kg m}^{-3}$ ) and molar weight (in  $\text{kg mol}^{-1}$ ) of the solid phase and  $N$  is the Avogadro's number.

This source term is set to zero at all other nodes of the mesh.

$$N(L) = a_N L + b_N \quad (11)$$

The nucleation rate by size,  $N$ , is related to Eq. (6) by:

$$R_N = \int_{L=0}^{\infty} N(L) dL = \int_{L_{\text{inf}}}^{L_{\text{sup}}} N(L) dL \quad (12)$$

where  $L_{\text{inf}}$  and  $L_{\text{sup}}$  stands for the nucleation class boundary in the considered mesh.

The apparent (or macroscopic) reaction rate is expressed in  $\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$  by:

$$\begin{aligned} r_{\text{app}} &= \underbrace{\frac{\rho_S}{M_S} \int_{L=0}^{\infty} v_p N dL}_{\text{nucleation}} + \underbrace{\int_{L=0}^{\infty} \frac{d(n_p v_p)}{dt} dL}_{\text{growth}} \\ &= \frac{\rho_S \pi}{M_S 6} \left( R_N L_{\text{crit}}^3 + 3 \underbrace{\int_{L=0}^{\infty} L^2 G \psi(L) dL}_{\text{Int}} \right) \end{aligned} \quad (13)$$

where  $v_p$  and  $n_p$  stands respectively for the solid volume per particles and the number of particles. The integral term  $\text{Int}$  is approximated, within the implicit resolution loop.

When a perfectly mixed drop is assumed (CSTR case), the macroscopic balance equations can be written as:

$$\begin{cases} \frac{\partial C_{\text{Ce}(\text{NO}_3)_3}}{\partial t} = -2 \times r_{\text{app}} \\ \frac{\partial C_{\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4}}{\partial t} = -3 \times r_{\text{app}} \\ \frac{\partial C_{\text{solid}}}{\partial t} = r_{\text{app}} \\ \frac{\partial C_{\text{HNO}_3}}{\partial t} = 6 \times r_{\text{app}} \end{cases} \quad (14a)$$

**Table 3 – Mesh influence on the mean solid size predicted by the CSTR model.**

	n				
	20	50	100	200	300
$d_{43}$ ( $\mu\text{m}$ )	19.4	11.2	9.3	8.5	8.5

Otherwise (FDR model), the following governing equations are considered:

$$\begin{cases} \frac{\partial C_{\text{Ce}(\text{NO}_3)_3}}{\partial t} = -2 \times r_{\text{app}} \\ \frac{\partial C_{\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4, \text{reactor}}}{\partial t} = -3 \times r_{\text{app}} + k_x S (C_{\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4, \text{feed}} - C_{\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4, \text{reactor}}) \\ \frac{\partial C_{\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4, \text{feed}}}{\partial t} = -k_x S (C_{\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4, \text{feed}} - C_{\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4, \text{reactor}}) \\ \frac{\partial C_{\text{solid}}}{\partial t} = r_{\text{app}} \\ \frac{\partial C_{\text{HNO}_3}}{\partial t} = 6 \times r_{\text{app}} \end{cases} \quad (14b)$$

where the apparent mass-transfer coefficient  $k_x S$  is adjusted on the mixing kinetic predicted by the CFD simulation of Con-fig. 2.

The system of differential-algebraic equations obtained from Eqs. (9), (13) and (14) is solved in a fully implicit scheme, using the DDASSL integrator, based the GEAR method (Petzold, 1982). Finally, given the significant differences in magnitude between variables  $\psi$  and  $C$  and the particles size  $L$  in the international system of units, the equations are solved in dimensionless form. The model is programmed in FORTRAN for Linux.

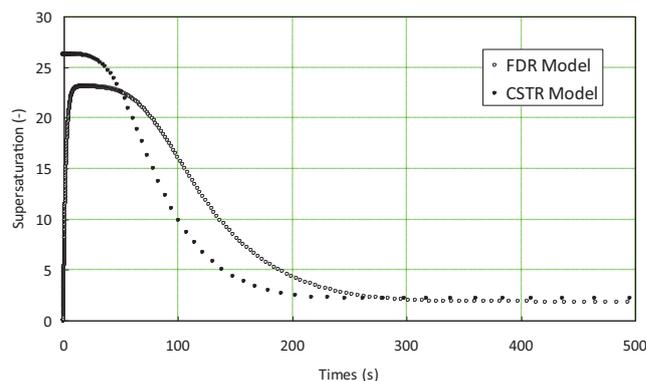
The number of discretization points,  $n$ , considered for the discretization of the PBE equation, was varied from 20 to 300, in order to study the mesh influence on the results. No significant effect is detected between  $n=200$  and  $n=300$  neither on the macroscopic variables such as supersaturation nor on the solid mean diameter  $d_{43}$  (see Table 3). The number of discretization points was therefore fixed to  $n=200$  for further calculations, which results in a running time of the order of one minute on a uniprocessor, or ten seconds on a quad core.

Simulations were all performed by combining the balance equations with the kinetic parameters given in Table 2, and the Davies model for the calculation of activity coefficient (see Section 2).

### 3.3.2. Simulation results

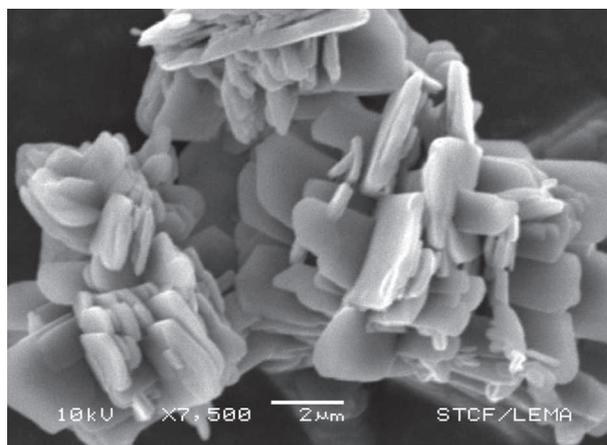
The evolutions of the supersaturation in the drop predicted by both the CSTR (immediate mixing of the reagents) and FRD (mixing limited by mass-transfer) models are compared in Fig. 8. As we can observe, mass transfer limitation (suggested by either sessile drops experiment or CFD simulation of mixing) results in a progressive increase and a slower consumption of the supersaturation in the reaction zone as compared to the CSTR case, and the maximum supersaturation is slightly lower. The predicted particle size is therefore higher than under CSTR assumption ( $d_{43} = 20.9 \mu\text{m}$  vs.  $8.5 \mu\text{m}$ ), due to a reduction of the apparent reaction rate.

Although it is not possible at this stage to compare the model predictions (on a single drop) to the particle size achieved in pulsed column (regarding the overall emulsion), it is interesting to note that the mean size of the neodymium and cerium oxalate particles reported by (Borda et al., 2011) varies from  $d_{43} = 15\text{--}20 \mu\text{m}$ , and  $d_{43} = 20\text{--}30 \mu\text{m}$  respectively, which is quite closed to the FRD value.

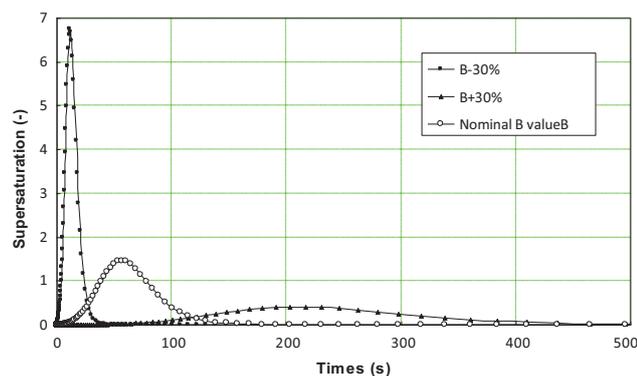


**Fig. 8 – Supersaturation profile in the drop, comparison of the CSTR and FDR models predictions.**

It should nevertheless be remembered that the aggregation phenomena was neglected in the model, while the occurrence of aggregation is suggested by SEM observations (see Fig. 9). Besides the possible occurrence of aggregation in the drops, the major uncertainty remains today the lack of kinetics data regarding cerium oxalate precipitation. As mentioned above (Section 2), the available kinetics data are relative to the neodymium system. They were measured using a high-speed mixer capable of achieving mixtures within times compatible with the measurement of nucleation kinetics (Bertrand-Andieu et al., 2004). However, given the stochastic nature of nucleation, the overall kinetic parameters are usually biased, or at least dependant of the mixing time (Zauner and Jones, 2000). Therefore, in order to investigate the uncertainty associated with kinetic data, the nucleation rate constant  $B_N$  was modified in the range  $-30\%$  to  $+30\%$ . The results regarding the apparent reaction rate  $r_{\text{app}}$  are illustrated in Fig. 10. When the nucleation rate is increased ( $B_N = -30\%$ ), a large amount of particles is created, which rapidly consume the supersaturation. The apparent rate, which is mainly due to the growth rate contribution, increases therefore sharply, and vanishes quickly as well, thus resulting in small diameter particles ( $d_{43} = 2.5 \mu\text{m}$ ). Conversely, when the nucleation rate is decreased ( $B_N = +30\%$ ), the number of nuclei decreases as well, and larger particle size is achieved ( $d_{43} = 31.3 \mu\text{m}$ ). Kinetic studies of the cerium oxalate system are underway, in order to overcome this uncertainty.



**Fig. 9 – SEM pictures of cerium oxalate aggregates produced in pulsed column (Borda et al., 2011).**



**Fig. 10** – Apparent precipitation rate using the CSTR assumption – dependence on a  $\pm 30\%$  uncertainty on kinetic data.

### 3.4. Precipitation modeling inside a drop: coupled CFD + PBE simulations

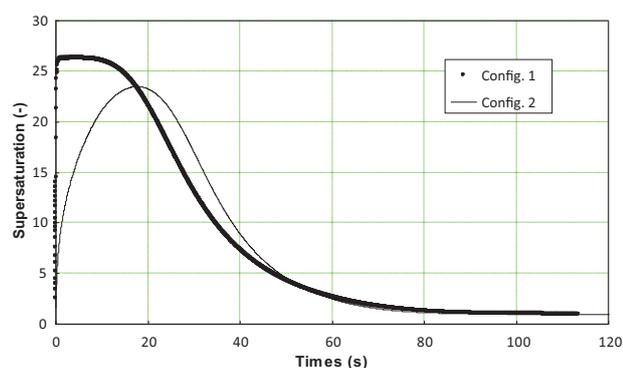
Beyond the mixing simulations presented in Section 3.2, some coupled CFD-PBE simulations were led using ANSYS-FLUENT. For the sake of comparison with the simplified approach, the same thermodynamic and kinetic models were considered, providing C++ user defined functions.

Several methods are available in the code for the PBE resolution. The “discrete method”, DM, which requires important computational effort, is rarely used, since PBE has to be solved in each cell of the computational domain. It has however been used recently and successfully by Fernández Moguel et al. (2010) for the precipitation of barium carbonate in a fluidized bed, assuming 19 classes.

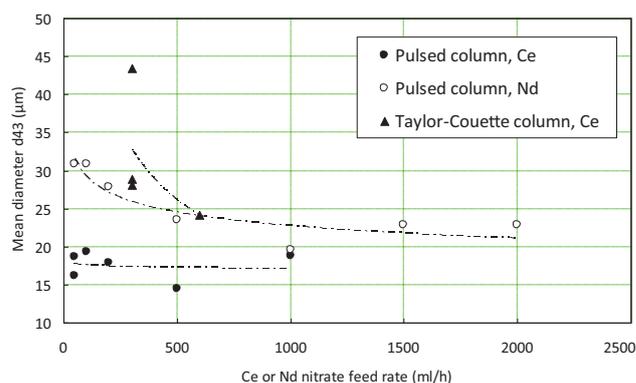
The Quadrature Method Of Moments method, QMOM, is much faster, since the PBE is transformed into a series of moment equations, which are used to approximate the particle size distribution (Marchisio et al., 2003).

QMOM simulations were performed to extend the model described Section 3.2 to the simulation of the precipitation in the flowing drop. The 6th first moments of the PSD were considered.

The simulation results regarding Config. 1 and Config. 2 are compared Fig. 11, which exhibit a qualitatively good agreement with respectively the CSTR and FRD models predictions. Additional work is nevertheless required to achieve better quantitative agreement between the simplified and the coupled-CFD approaches, especially regarding the evaluation



**Fig. 11** – Initial conditions influence on the precipitation kinetics predicted by coupled CFD + PBE simulations using the QMOM model.



**Fig. 12** – Particle size evolution with the column feed rate – fixed TPH flow-rate, fixed hydrodynamic conditions (pulsed intensity or rotor speed), fixed and identical oxalic over Ce or Nd ratio (1.7).

of the mass transfer resistance for the FRD and computational setup (time steps, PBE model and grid convergence, etc.).

## 4. Discussion: toward the industrial process modeling

The modeling of the precipitation process in emulsion in a pulsed column is a complicated task. In this aim, since the external hydrodynamic conditions at the drop boundaries interact with the precipitation, a two-scale modeling approach (column and drop) was considered and we chose to deal with these two scales separately.

For the first one a coupled CFD-PBE approach is currently developed (Amokrane et al., 2012) in order to characterize the drops population flowing in the apparatus, depending on the operating conditions. Thus, while the mean drop residence time and slip velocity are, to the first order, directly related to the column operating conditions, simulations of the drops population at the column scale, will allow the discretization of the device in a reasonable number of compartments, according to the drops coalescence frequency and their resulting chemical composition. Such compartmental modeling approach of the reactor, whose efficiency was demonstrated for the simulation of kinetic problems coupled to one-phase hydrodynamic solutions (Le Moulllec et al., 2010; Bertrand et al., 2012), is indeed particularly convenient for the liquid–liquid flow prevailing in our process.

For the drop scale, a reaction engineering type model was proposed, which is intended, eventually, at the coupling with the “column level” description. CFD was used to study the mixing kinetics in a drop undergoing a straight downward motion, with a velocity typical of the one encountered in the pulsed column. The qualitative agreement achieved between the simplified model predictions and the CFD + PBE simulations confirms that the simplification of the process modeling by simplifying the hydrodynamic description at the drop scale is feasible. This approach is used to achieve relevant droplet’s division in “reservoir” and “reactive” zones, and the evaluation of the related mass-transfer coefficients. It will now be applied for all typical boundary conditions (in terms of slip velocity type and magnitude) encountered in either the pulsed or the Taylor–Couette columns.

Beyond the possible evolution of the nuclear industry’s needs in term of either production capacity or fuel composition, one of the challenges of emulsion process for

precipitation lies in the variability it offers regarding the oxalate morphology, and its related usage properties. Indeed, because the emulsion process is slightly dependent on the position of the reagents' feed lines, the proportion (or characteristic times) of either the nucleation, growth or aggregation process can be controlled individually. For instance, as illustrated Fig. 12, particle size can be easily tuned by changing the flow-rates (i.e. the drops residence time), etc.

A reliable and phenomenological model as the one currently developed would therefore be a powerful tool for the design and production of particles with controlled properties.

## Notation

$A$	pulsation's amplitude (usually in mm)
$A_N$	kinetic parameter of the primary nucleation rate law ( $m^{-3} s^{-1}$ )
$a$	ion size constant
$a_N$	slope of the linearized nucleation rate $N$ in the nucleation class ( $m^{-3} s^{-1}$ )
$B_N$	kinetic parameter of the primary nucleation rate law
$b_N$	constant of the linearized nucleation rate $N$ in the nucleation class ( $m^{-1} m^{-3} s^{-1}$ )
$C$	molar concentration (usually $mol m^{-3}$ except in the expression of $I$ in $mol l^{-1}$ )
$d$	drop diameter (usually in mm)
$d_{43}$	mean particle diameter (usually in mm)
$f$	pulsation's frequency ( $s^{-1}$ )
$G$	growth rate of the particles ( $m s^{-1}$ )
$G_0$	kinetic parameter of the growth rate law ( $m s^{-1}$ )
$g$	gravity ( $m s^{-2}$ )
$I$	ionic strength ( $mol l^{-1}$ )
$K_{SP}$	solubility product
$k_x$	apparent mass transfer coefficient through the veil ( $m^3 s^{-1}$ )
$L$	characteristic size of the particle (m)
$M_S$	molar weight of the solid phase ( $kg mol^{-1}$ )
$N$	nucleation rate for particles of size $L$ ( $m^{-1} m^{-3} s^{-1}$ )
$N$	Avogadro number ( $mol^{-1}$ )
$n$	number of discretization points for the PBE
$n_p$	number of particles
$Q$	volumetric flow-rate (usually in $l h^{-1}$ )
$R_N$	nucleation rate ( $m^{-3} s^{-1}$ )
$r_{app}$	apparent (macroscopic) reaction rate ( $mol m^{-3} s^{-1}$ )
$s$	supersaturation ratio, also designated as "supersaturation" for simplification
TPH	Tetra Propylene Hydrogen, the organic phase in the pulsed column (inert)
$u_{ax}$	slip velocity for drops undergoing an axial motion ( $m s^{-1}$ )
$u_\theta$	tangential velocity (i.e. in the drop referential) ( $m s^{-1}$ )
$v_p$	volume of a solid particle ( $m^3$ )
$z$	charge number
$Eo = (g \Delta \rho d^2) / \sigma$	Eötvös number
$Re = (\rho u_{ax} d) / \mu$	drop Reynolds number

## Symbols

$\psi$	number particle distribution function ( $m^{-3} m^{-1}$ )
$\gamma$	activity coefficient
$\mu$	TPH viscosity (Pa s)
$\nu$	stoichiometric coefficient
$\rho$	TPH density ( $kg m^{-3}$ )
$\rho_s$	solid phase's density ( $kg m^{-3}$ )

$\sigma$  water/TPH interfacial tension ( $N m^{-1}$ )

## Subscripts

<i>crit</i>	related to the nucleation class or crystal nuclei
<i>eq</i>	at equilibrium (achieved at steady-state in the column settler)
<i>feed</i>	related to the feed solution of the column or to the reservoir zone of the drop (FRD model)
<i>load</i>	related to the cation (Nd, Ce, etc.) nitrate solution
<i>oxalic</i>	related to the oxalic acid solution
<i>reactor</i>	related to the reaction zone of the drop (FRD model)
<i>solid</i>	related to the solid phase

## References

- Amokrane, A., Charton, S., Lamadie, F., Becker, J., Klein, J.-P., Puel, F., 2012. Study of the dispersed phase behavior in a pulsed column for oxalate precipitation in an emulsion. In: Proceedings of the 9th Int. Conf. on CFD in the Minerals and Process Industries, CSIRO, Melbourne, Australia, 10–12 December.
- Auchapt, P., Ferlay, A., 1983. Vortex flow apparatus for making a precipitate. EPO Patent EP0072737.
- Andrieu, M., 1999. Etude cinétique de la nucléation et de la croissance cristalline au cours de la précipitation oxalique dans l'industrie nucléaire. Ph.D. Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Bandyopadhyaya, R., Kumar, R., Gandhi, K.S., Ramkrishna, D., 1997. Modeling of precipitation in reverse micellar systems. *Langmuir* 13, 3610–3620.
- Bertrand-Andrieu, M., Plasari, E., Baron, P., 2004. Determination of nucleation and crystal growth kinetics in hostile environment – application to the tetravalent uranium oxalate. *Can. J. Chem. Eng.* 82, 930–938.
- Bertrand, M., Plasari, E., Lebaigue, O., Baron, P., Lamarque, N., Ducros, F., 2012. Hybrid LES-multizonal modelling of the uranium oxalate precipitation. *Chem. Eng. Sci.* 77, 95–104.
- Borda, G., Duhamet, J., Gandi, F., Lanoë, J.-Y., 2008. Method and device for precipitating a solute. Patent WO 2008/025823.
- Borda, G., Brackx, E., Boisset, L., Duhamet, J., Ode, D., 2011. Use of a pulsed column contactor as a continuous oxalate precipitation reactor. *Nucl. Eng. Des.* 241, 809–814.
- Bromley, L.A., 1973. Thermodynamic properties of strong electrolytes in aqueous solution. *AIChE J.* 19 (2), 313–320.
- Chung, D.Y., Kim, E.-H., Lee, E.-L., Yoo, J.-H., 1998. Solubility of rare earth oxalate in oxalic and nitric acid media. *J. Ind. Eng. Chem.* 4 (4), 277–284.
- Cameirão, A., David, R., Espitalier, F., Gruy, F., 2008. Effect of precipitation conditions on the morphology of strontium molybdate agglomerates. *J. Cryst. Growth* 310, 4152–4162.
- Chang, T.P., 1987. Cerium Oxalate Precipitation, Dupont de Nemours Report DP-1723/DE87 007832. Savannah River Laboratory.
- Clift, R., Grace, J.R., Weber, M.E., 1978. Bubbles Drops and Particles. Academic Press, New York (Chapter 3).
- Davey, R., Hilton, A.M., Garside, J., 1997. Crystallization from oil in water emulsions: particle synthesis and purification material. *Chem. Eng. Res. Des.* 75 (A), 245–251.
- Davies, C.W., 1938. Interpretation of activity measurements. *J. Am. Ceram. Soc.* 58, 2093.
- Espitalier, F., Biscans, B., Authelin, J.-R., Laguerie, C., 1997. Modelling of the mechanism of spherical grains obtained by the quasi-emulsion crystallization process. *Chem. Eng. Res. Des.* 75 (A2), 257–267.
- Fang, W.-F., Yeh, S.I., Chen, Y.T., Yang, J.T., 2011. Coalescence and mixing of droplets with identical and distinct surface tensions on a wettability gradient surface. Seattle, USA, October 2–6. Proceedings 15th Int. Conf. Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences.

- Fernández Moguel, L., Muhr, H., Dietz, A., Plasari, E., 2010. CFD simulation of barium carbonate precipitation in a fluidized bed reactor. *Chem. Eng. Res. Des.* 88, 1206–1216.
- Groß-Hardt, E., Slusanschi, E., Bücken, H.M., Pfennig, A., Bischof, C.H., 2008. Practical shape optimization to a levitation device for single droplets. *Optim. Eng.* 9, 179–199.
- Ilievski, D., Rudman, M., Metcalfe, G., 2001. The separate roles of shear rate and mixing on gibbsite precipitation. *Chem. Eng. Sci.* 56, 2521–2530.
- Khalil, A., Puel, F., Cosson, X., Gorbachev, O., Chevalier, Y., Galvan, J.-M., Rivoire, A., Klein, J.P., 2012. Crystallization-in-emulsion process of a melted organic compound: in situ optical monitoring and simultaneous droplet and particle size measurement. *J. Cryst. Growth* 342 (1), 99–109.
- Lalleman, S., Bertrand, M., Plasari, E., Sorel, C., Moisy, P., 2012. Determination of the Bromley contributions to estimate the activity coefficient of neodymium electrolytes. *Chem. Eng. Sci.* 77, 185–189.
- Le Moullec, Y., Gentric, C., Potier, O., Leclerc, J.P., 2010. Comparison of systemic, compartmental and CFD modelling approaches: application to the simulation of a biological reactor of wastewater treatment. *Chem. Eng. Sci.* 65, 343–350.
- Marcant, B., 1992. Méthodologie d'analyse d'un système de précipitation soumis à l'influence des conditions de mélange: cas de l'oxalate de calcium. Ph.D. INPL.
- Marchisio, D.L., Barresi, A.A., 2003. CFD simulation of mixing and reaction: the relevance of micro-mixing model. *Chem. Eng. Sci.* 58, 3579–3587.
- Marchisio, D.L., Virgil, R.D., Fox, R.O., 2003. Quadrature method of moments for aggregation-breakage processes. *J. Colloid Interface Sci.* 258, 322–334.
- Medal, A., Picard, R., Charton, S., Puel, F., Borda, G., 2010. Etude de la précipitation oxalique dans une goutte et premières modélisations. In: *Proceeding of CRISTAL 6, Récents Progrès en Génie des Procédés*, 99, SFGP, Paris.
- Muhr, H., David, R., Villermaux, J., Jezequel, P.H., 1996. Crystallization and precipitation engineering: solving population balance in the case of precipitation of silver bromide crystal with high primary nucleation rates by using the first order upwind differentiation. *Chem. Eng. Sci.* 51 (2), 309–319.
- Nemri, M., Climent E., Charton, S., Lanoë, J.-Y., Ode, D., 2012. Experimental and numerical investigation on mixing and axial dispersion in Taylor–Couette flow patterns, *Chem. Eng. Res. Des.*, <http://dx.doi.org/10.1016/j.cherd.2012.11.010>, in Press.
- Petzold, L.R., 1982. A Description of DDASSL: A Differential-Algebraic System Solver. *Tech. Rep. SAND82-8637*.
- Picard, R., 2012. Contribution à l'étude de la mouillabilité dans une colonne pulse dédiée à la fabrication d'un précipité. Ph.D. Ecole Centrale Paris, tel-00711473.
- Pontisso, E.-A., Borda, G., Charton, S., Teychené, S., Biscans, B., 2011. Precipitation en emulsion: mise en évidence et étude du rôle de l'interface sur la cinétique. In: *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 101, SFGP, Paris.
- Qamar, S., Ashfaq, A., Warnecke, G., Angelov, I., Elsner, M.P., Seidel-Morgenstern, A., 2007. Adaptive high-resolution schemes for multidimensional population balances in crystallisation process. *Comput. Chem. Eng.* 31, 1296–1311.
- Saboni, A., Alexandrova, S., Gourdon, C., 2004. Détermination de la traînée engendrée par une sphère fluide en translation. *Chem. Eng. J.* 98, 175–182.
- Ståhl, M., Rasmuson, A.C., 2009. Towards predictive simulation of single feed semibatch reaction crystallization. *Chem. Eng. Sci.* 64, 1559–1576.
- Torbacke, M., Rasmuson, A.C., 2001. Influence of different scales of mixing in reaction crystallisation. *Chem. Eng. Sci.* 56, 2459–2473.
- Zauner, R., Jones, A.G., 2000. Determination of nucleation, growth, agglomeration and disruption kinetics from experimental precipitation data: the calcium oxalate system. *Chem. Eng. Sci.* 55, 4219–4232.

# DEVELOPMENT OF A CFD–PBE COUPLED MODEL FOR THE SIMULATION OF THE DROPS BEHAVIOUR IN A PULSED COLUMN

Abdenour Amokrane,<sup>1,2</sup> Sophie Charton,<sup>1\*</sup> Nida Sheibat-Othman,<sup>2</sup> Julian Becker,<sup>2</sup> Jean P. Klein<sup>2</sup> and François Puel<sup>2</sup>

1. CEA, DEN, DTEC, SGCS, F-30207, Bagnols-sur-Cèze, France

2. Université de Lyon, Université Lyon 1, CNRS, CPE Lyon, UMR 5007, Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés (LAGEP), 43 Bd du 11 Novembre 1918 F-69622, Villeurbanne, France

The pulsed column is a widely used technology for liquid–liquid extraction processes in various industries. In this work, the use of this technology has been extended to perform continuous precipitation. An original process of continuous precipitation in emulsion in a pulsed column is thereby developed. A thorough understanding of the behaviour of the dispersed phase inside the column helped to achieve process optimisation and is the purpose of this paper. In this aim, a coupled computational fluid dynamics (CFD)–population balance equation (PBE) approach was developed for the simulation of this original process, and allows the determination of the mean droplet size, which is a key parameter. On one hand, breakup and coalescence kernels for the PBE were selected by performing homogenous type experiments in a stirred tank reactor. The parameters of those kernels were adjusted by fitting the models' parameters to the measured droplets size distribution (DSD) in the stirred tank. On another hand, the continuous phase flow inside the pulsed column was investigated by CFD and has been validated using particle image velocimetry (PIV) data. The latter helped us to choose the best turbulence model representing the flow inside the pulsed column. Finally, the coupled CFD–PBE model was implemented using the quadrature method of moments (QMOM) in the CFD code ANSYS-Fluent<sup>®</sup> to determine the mean droplet size inside the column.

**Keywords:** CFD–PBE modelling, parameters identification, breakup kernels, liquid–liquid system, pulsed column

## INTRODUCTION

The pulsed column is a widely used technology in various processes and industries. For liquid–liquid extraction process, it enhances the separation efficiency, regarding the classical technologies, by performing a breakage of the dispersed phase, thus increasing the interfacial area, which is required for an efficient mass transfer. Both phases are flowing at counter current thus improving the concentration gradients along the axial direction and hence the separation efficiency. In the nuclear industry, pulsed column are currently used in the fuel reprocessing process, achieving the separation of uranium and plutonium from other waste fuel components. After separation, these components are recovered by reactive crystallisation using a vortex flow reactor. The process under study could be an alternative to the current method of recovering major actinides by performing the continuous oxalic precipitation in emulsion within a pulsed column. The novelty of this process, for which the feasibility has already been demonstrated,<sup>[1]</sup> lies in the containment of the reagents in drops of aqueous phase dispersed in an inert continuous organic phase (Figure 1, left). The precipitation occurs inside the aqueous drops after they coalesce (Figure 1, right). The process has therefore the double advantage of: (i) implementing a well-known technology of the nuclear industry, and (ii) ensuring the confinement of the sticky precipitates by the inert organic diluent (tetrapropylene hydrogen, TPH).

A thorough understanding of the precipitation mechanisms and their interactions with the particular hydrodynamic conditions prevailing around the liquid drops in the apparatus is essential for the process optimisation. In this context, modelling and numerical simulation are powerful tools, complementary to the experiments, in order to study the dispersed liquid phase behaviour within the pulsed column (i.e. drops residence times, size and concentration).

The aim of the present study was to obtain a modelling of the aqueous drops behaviour flowing in an organic continuous phase inside the pulsed column thanks to a coupled computational fluid dynamics (CFD)–population balance equation (PBE) model. First, the single-phase flow of the continuous phase was simulated and validated on particle image velocimetry (PIV) measurements. This allowed us to choose a turbulence model relevant to our system and representing the turbulence accurately inside the pulsed column. Secondly, the breakup and coalescence kernels were validated in a separate approach. To achieve this task, we chose operating conditions providing nearly homogeneous turbulence dissipation: the constants of the different kernels were adjusted by fitting the homogenous PBM results on droplets size distribution (DSD) evolutions measured in a stirred reactor. The stirred reactor offers the advantage of a flow in which the turbulence dissipation is quasi-homogeneously distributed and well determined by the power number of the stirrer. Hence, different values of  $\varepsilon$  (the turbulence dissipation) representing the range of turbulence in the column were studied with the stirred reactor in order to have a set of constants in the selected kernels as universal as possible.

Once the two parts were separately validated, that is turbulence model and breakup/coalescence kernels, the coupled CFD–PBE model was implemented in the commercial CFD code ANSYS-Fluent<sup>®</sup> to perform the simulation of the two-phase flow inside the pulsed column.

\*Author to whom correspondence may be addressed.

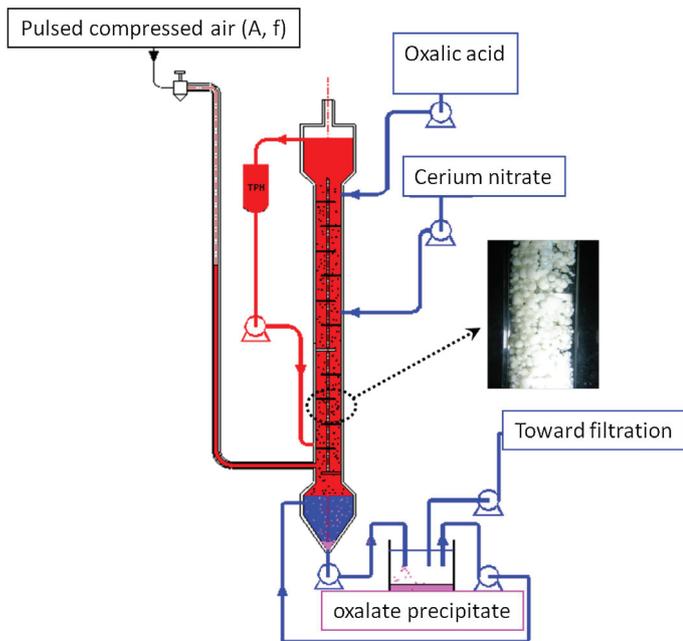
E-mail address: [sophie.charton@cea.fr](mailto:sophie.charton@cea.fr)

Can. J. Chem. Eng. 92:220–233, 2014

© 2013 Canadian Society for Chemical Engineering

DOI 10.1002/cjce.21933

Published online 7 December 2013 in Wiley Online Library ([wileyonlinelibrary.com](http://wileyonlinelibrary.com)).



**Figure 1.** Cerium oxalate precipitation in pulsed column. Sketch of the pulsed column (left) and photo of the solid phase enclosed in aqueous drops (right).

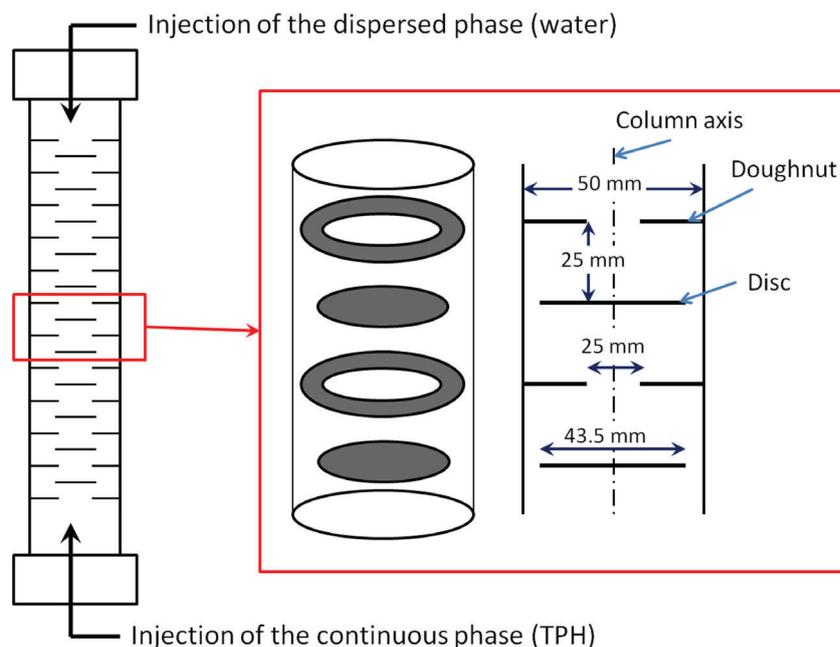
## MODELLING OF A DISC AND DOUGHNUT PULSED COLUMN

### State of the Art

Different experimental and numerical studies have been conducted to describe the monophasic flow in a disc and doughnut pulsed column. Experimental studies by Laulan,<sup>[2]</sup> Oh,<sup>[3]</sup> and Buratti,<sup>[4]</sup> were focussed on the velocity field inside the column, using different experimental techniques, and under a certain range of experimental conditions. Those studies have proved a spatial

periodic behaviour of the flow inside the column and an axial symmetry. Angelov et al.<sup>[5]</sup> have confirmed those results, and have demonstrated that the whole flow inside the column is independent from the boundary conditions and could be represented by a single compartment (disc–doughnut–disc or doughnut–disc–doughnut). Oh,<sup>[3]</sup> Angelov et al.<sup>[5]</sup> and Legarrec<sup>[6]</sup> in their numerical studies, have all assessed the influence of the pulsation frequency and amplitude, and of the geometric parameters on the flow. Aoun-Nabli<sup>[7]</sup> has first validated the standard  $k-\epsilon$  turbulence model on stationary flow (i.e. without accounting for the pulsation) by comparing his simulation results with the pressure drop measurements performed by Leroy.<sup>[8]</sup> He then studied the pulsed flow by comparing his simulation results with the axial dispersion coefficient measured by Oh<sup>[3]</sup> and Buratti.<sup>[4]</sup> Aoun-Nabli<sup>[7]</sup> has proposed a numerical correlation for the most important parameters of the flow based on the standard  $k-\epsilon$  turbulence model (pressure drop, axial dispersion coefficient, turbulent dissipation, etc.). More recently Bujalski et al.<sup>[9]</sup> have measured the velocity field inside the column by the PIV and LDV techniques. They have compared their results with simulations conducted with the low-Reynolds  $k-\epsilon$  turbulence model. The influence of the gap between the doughnut and the column wall was discussed as well.

The biphasic flow had also been studied, mostly in a Lagrangian approach. Bardin-Monnier<sup>[10]</sup> has monitored droplets trajectories using a video technique. The author has compared her numerical results with the experimental ones. The influence of relevant flow parameters and different forces on the calculation of the droplets residence times was discussed. A population balance approach has been used by some authors to study further the droplets' behaviour in the column (see Ref.<sup>[11]</sup>). We have recently presented our results<sup>[12]</sup> on modelling and monitoring the drops' residence time distribution (RTD) inside a pulsed column (the apparatus is the same as the one used in this work, see Figure 2). Our experimental results were consistent with those presented in the literature. However, while the literature usually considers the pulsation intensity,  $A \times f$ , we have observed a separate effect of the pulsation amplitude and frequency on the RTD. The model we developed held good results compared to experimental ones.



**Figure 2.** The pulsed column used in this study equipped with a disc and doughnut internals. A compartment is a succession of doughnut–disc–doughnut.

Besides the above-mentioned studies, all the reported experiments have been conducted under flow conditions (pulsation frequency and amplitude) that are different from our case. As a result, we decided to perform our own experimental measurement and numerical modelling to model our application.

Present Work: Population Balance Model (PBM)

The aim of this study was to obtain a modelling of the aqueous drops behaviour flowing in an organic continuous phase inside the pulsed column thanks to a coupled CFD–PBE model.

The PBE is used to determine the DSD inside the column. A number density function,  $n(\vec{y}, \varphi, t)$  is postulated, where  $\vec{y}$  denotes the spatial position of the droplet,  $\varphi$  is the internal coordinate, that is the volume, denoted by  $x$  in our case. The general form of the PBE for liquid–liquid systems can be written as follows:

$$\frac{\partial}{\partial t}[n(x, t)] + \nabla \cdot [\vec{u}n(x, t)] = S(x, t) \quad (1)$$

where  $S(x, t)$  is the source term accounting for the coalescence and breakup of the droplets. In this study, where coalescence is neglected in a first approximation, the source term is reduced to:

$$S(x, t) = B^b - D^b \quad (2)$$

where  $B^b$  and  $D^b$  are respectively the birth and death rates due to breakup, with:

$$B^b(x, t) = \int_{\Omega x} b(V')\beta(V|V')n(V', t) dV' \quad (3)$$

$$D^b(x, t) = b(V)n(V, t) \quad (4)$$

The breakage rate in Equation (3) is expressed as  $b(V')\beta(x|V')$ , where  $b(V')$  is the breakup frequency which is the fraction of droplets of volume  $V'$  breaking per unit time.  $\beta(x|V')$  describes the distribution of daughter droplets.

In the equations above, the use of the population balance modelling framework requires the choice of a model for the breakage (and afterwards the coalescence) kernels. Those models are most of the time phenomenological ones containing constants that need to be adjusted, and are therefore not universal. Those kernels are also a function of the turbulence dissipation, making this parameter important to be estimated with good accuracy. So, the derivation of the coupled CFD–PBE model requires some key parameters that need to be modelled with good accuracy; those parameters are interdependent of each other, which further complicates the modelling task.

A preliminary study of the continuous flow inside our pulsed column, based on PIV measurements of the velocity field (to be published), allowed us to choose the relevant turbulence model for the process simulation. The turbulence dissipation inside the pulsed column is not homogeneously distributed, as it can be seen in Figure 3.

The breakup kernels were validated in a separate approach. To achieve this task, we chose operating conditions providing nearly homogeneous turbulence dissipation. Hence the constants of the considered kernels were adjusted by fitting the homogenous PBM results on DSD evolutions measured in a stirred tank reactor, where the mean turbulence dissipation is correlated to the power number by Equation (5):

$$\varepsilon = \frac{N_P \rho_c N^3 D^5}{m_T} \quad (5)$$

where  $N_P$  is the power number of the propeller ( $N_P = 0.8$ ),  $D$  the diameter of the propeller and  $m_T$  the total mass of the emulsion.

Different values of  $\varepsilon$ , representing the range of turbulence prevailing in the column, were studied in the stirred tank reactor in order to find, for the selected kernels (see Breakup Kernels Section), sets of constants valid in a sufficiently wide range of operating conditions. A similar methodology is currently used in order to identify the corresponding coalescence kernels.

Once the two parts were separately validated, that is turbulence model and breakup/coalescence kernels, the coupled CFD–PBE model was implemented in the commercial CFD code ANSYS-Fluent<sup>®</sup>[13] to perform the simulation of the two-phase flow inside the pulsed column.

## SELECTION OF BREAKUP AND COALESCENCE KERNELS

### Emulsification in Stirred Tank Reactor

An in situ video probe dipped in a stirred tank reactor together with an image analysis treatment was used to measure the DSD of the water in TPH emulsion. Table 1 summarises the physical properties of the phase system under study.

The emulsion is created in a 1 L double jacketed cylindrical vessel, stirred with a three flat blade propeller of 60 mm of diameter. The liquid height,  $H$ , is equal to the internal vessel diameter, and the propeller is positioned at  $H/3$  above the vessel base (Figure 4). The dimensions of the different parts of the experimental setup, and their position, follow the recommendations expressed in the literature.<sup>[14]</sup> The video probe used to measure the DSD was equipped with a CCD camera together with a light emitting diode (LED) back lighting, driven by a pulse generator, and triggered by the CCD camera (Figure 5). It generates, in the 900  $\mu\text{m}$ -width gap where the emulsion is flowing, a flash light synchronised with the video camera. The frames generated are  $720 \times 480$  pixels with a resolution up to 2 pixels allowing for the detection of droplets diameter above 8  $\mu\text{m}$ . The experimental setup is described in detail by Khalil et al.<sup>[15]</sup>

During each run, a video of 40 s was regularly recorded. Afterwards, the videos were transformed in to a series of images which were treated by a Matlab<sup>®</sup> routine based on an circular Hough transform,<sup>[15]</sup> to detect and analyse the droplets visible in the different images. One image every two images was treated to avoid the detection of the same droplet twice. The number of images treated and droplets detected was a function of the emulsion concentration.

As a first step, a dilute emulsion (1%) was considered in order to study the breakage. Higher levels of concentration of water in TPH (3%, 5% and 10% where percentages are expressed by weight), will be investigated later to study coalescence. In each case, three stirring speeds were studied: 500, 600 and 700 rpm, giving respectively a turbulence dissipation of: 0.46, 0.84 and 1.35 W/kg. The values of  $\varepsilon$  were calculated using Equation (5). These values of  $\varepsilon$  are in the range of the turbulence level encountered in the pulsed column (see Figure 3). Although only breakage will be discussed in the following, this global set of experiments will allow the determination of both the breakup and coalescence kernels parameters that will provide appropriate breakup and coalescence rates in the whole column.

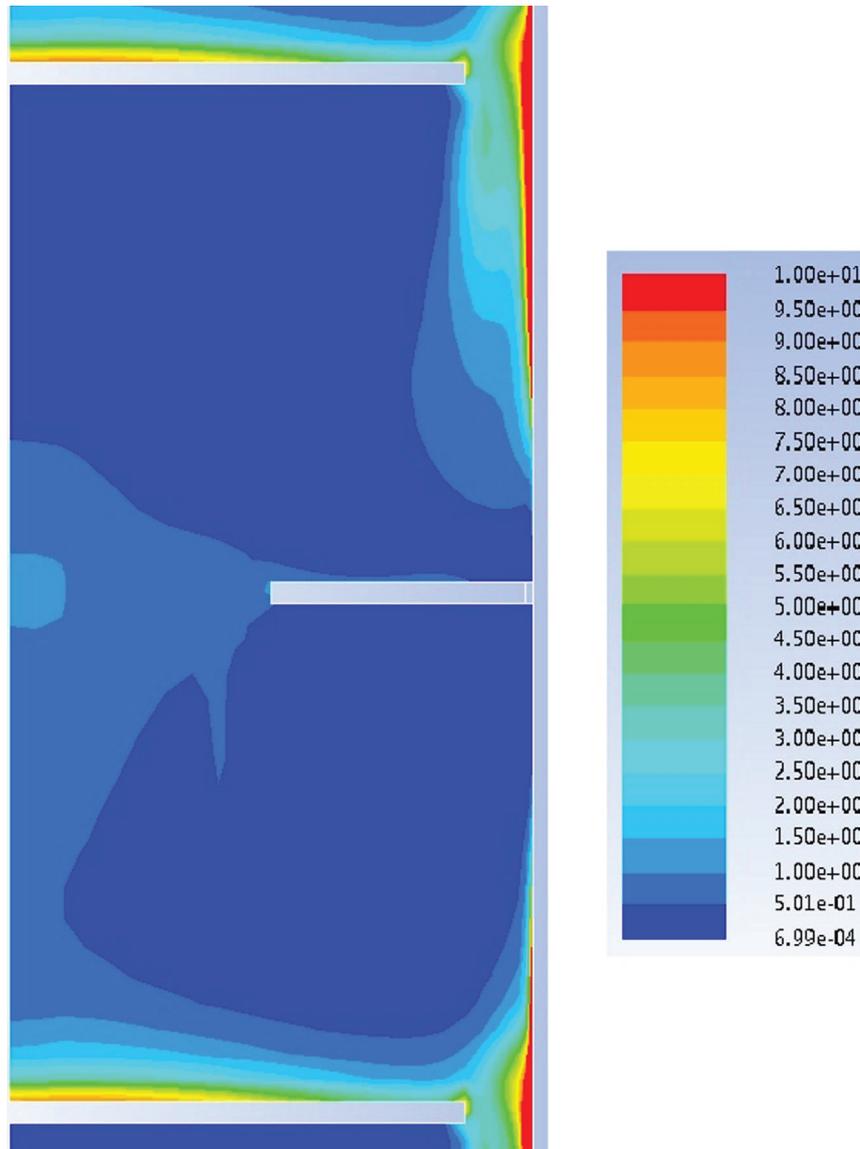


Figure 3. Distribution of the turbulence dissipation inside the pulsed column (CFD axisymmetric simulation).

### Resolution and Inversion of the Drop's Population Balance Equation

This part of the article describes the PBM used for the identification of the parameters of the breakup and coalescence kernels and the different kernels considered. The choice of the kernels is based on their applicability to liquid-liquid systems.

#### The finite volumes method (FV)

The finite volumes method (FV) was introduced by Filbert and Laurecot<sup>[16]</sup> for solving PBE with pure coalescence problems, then it was extended by Kumar et al.<sup>[17]</sup> to treat problems with both breakage and coalescence phenomenon. The method consists in dividing the DSD,  $n(x, t)$ , into a certain number of cells,

$\Delta_i = [x_{i-1/2} + x_{i+1/2}]$ . The main idea behind this method, is to make use of the mass fluxes between cells of the distribution to conserve the total mass of the system, hence the method is a conservative one. The conservative form for the mass distribution,  $g(x, t) = xn(x, t)$ , is given by:

$$\frac{\partial g(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \int_0^x \int_{x-u}^{x_{\max}} ua(u, t)n(u, t)n(v, t) du dv \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left( \int_0^{\infty} \int_0^x ub(v)\beta(u|v)n(v, t) du dv \right) \quad (6)$$

The evolution of the mass distribution can be described in terms of the mass fluxes across the cell boundaries; for cell  $i$  at time  $t$ , it is given by:

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{(J_{i+1/2}^C + J_{i+1/2}^B - J_{i-1/2}^C - J_{i-1/2}^B)}{(x_{i+1/2} - x_{i-1/2})} \quad (7)$$

Table 1. Phase system physical properties at 20°C

Component	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$\mu$ (Pa s)	$\sigma$ (N/m)
TPH (continuous phase)	760	$1.26 \times 10^{-3}$	$43 \times 10^{-3}$
Water (dispersed phase)	1000	$10^{-3}$	

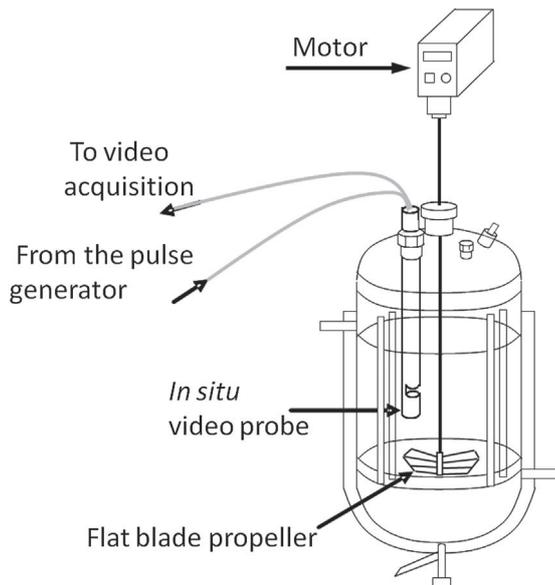


Figure 4. The stirred vessel agitated by a flat blade propeller. The in situ video probe is positioned above the propeller.

with the mass fluxes:

$$J_{i+1/2}^C = \sum_{k=1}^i \left( \sum_{j=\alpha_{i,k}}^I \int_{\Delta_j} \frac{a(u, x_k)}{u} du g_i + \int_{x_{i+1/2}-x_k}^{x_{\alpha_{i,k}-1/2}} \frac{a(u, x_k)}{u} du g_{\alpha_{i,k}-1} \right) \quad (8)$$

$$J_{i+1/2}^B = - \sum_{k=i+1}^I g_k \int_{\Delta_i} \frac{b(v)}{v} dv \int_0^{x_{i+1/2}} u \beta(u, x_k) du \quad (9)$$

where  $\alpha_{i,k}$  is the index of each cell, such that  $x_{i+1/2} - x_k \Delta_{\alpha_{i,k}-1}$ .

It is worthy to mention here that the advection term in the general form of the PBE (Equation 1),  $\nabla \cdot [\vec{u} n(x, t)]$ , was not taken

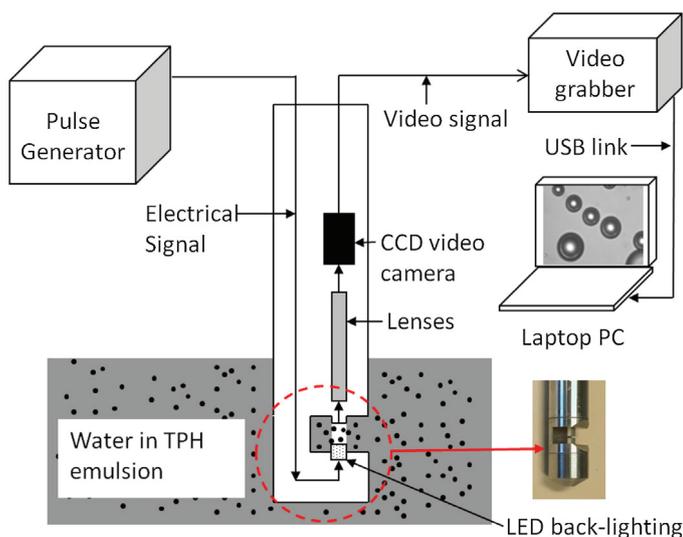


Figure 5. The in situ video probe used for the measurements of the DSD (courtesy of Ref.<sup>[15]</sup>).

into account in this part of the model as the media is assumed homogenous. The choice of the FV method to determine the constants in the breakup/coalescence kernels is due to its advantage of being a conservative one. In addition, it was recommended among other methods by Becker et al.<sup>[18]</sup> for parameters identification purpose. The method was implemented in Matlab<sup>®</sup> for the numerical identification task.

Nevertheless, this method is a sectional method, where it is necessary to divide the continuous DSD into a finite (and sufficient) number of cells. Hence, it is time consuming if implemented with the advection term. For this reason, this method was not retained for the CFD–PBE coupled model and the quadrature method of moments (QMOM) was used instead (CFD–PBE Coupled Model Section).

#### Breakup kernels

Historically, the bubble columns were amongst the first apparatus in which the methods of PBM were used, this may explain the abundance of breakup kernels for liquid–gas systems. When we come to liquid–liquid systems, the kernels are fewer and not universal ones.

In this study, the choice of the breakup kernels was based on (i) the applicability of the model to liquid–liquid systems, (ii) the range of droplets for which it was initially developed and (iii) the mechanism responsible of the breakage. Regarding the breakage mechanism, since in our process the flow is locally turbulent, the breakup of fluid particles is mainly caused by the turbulent pressure fluctuations along the surface or by particle–eddy collision.

Liao and Lucas<sup>[19]</sup> have published a literature review of theoretical models, relevant for droplets and bubbles breakup in turbulent dispersions. In case of breakup due to turbulence fluctuations and collision, they defined four categories of models, depending on: the particle kinetic energy, the velocity fluctuations around the particle surface, the turbulent kinetic energy of the hitting eddy, and finally the ratio between the inertial force of this hitting eddy and the interfacial force of the smallest daughter particle. However, amongst these models, some are based on quantities that are very difficult to estimate, such as the eddy length scale; others were developed for liquid–gas systems and are therefore not suitable for liquid–liquid systems since they predict a high breakup frequency. Becker et al.<sup>[18]</sup> have summarised the most recent and popular kernels and have specified the experimental conditions for which the models were originally developed.

**Model of Coualoglou and Tavlarides<sup>[20]</sup>.** Coualoglou and Tavlarides<sup>[20]</sup> developed the well-known and widely used model of breakup frequency. The basic premise of the model is that an oscillating deformed droplet will break if the energy transmitted from droplet–eddy collision is greater than its surface energy. The model is expressed as follows:

$$b(d_i) = C_1 d_1^{-2/3} \frac{\varepsilon^{1/8}}{1 + \alpha} \exp \left[ - \frac{c_2 \sigma (1 + \alpha)^2}{\rho_d \varepsilon^{2/8} d_i^{5/8}} \right] \quad (10)$$

The model of Coualoglou and Tavlarides accounts for the influence of the high holdup fraction on the breakup frequency. This model contains two constants  $C_1$  and  $C_2$  that need to be adjusted.

**Model of Martinez-Bazan et al.<sup>[21]</sup>.** The model of Martinez-Bazan et al.<sup>[21]</sup> is based on the purely kinematic idea of fully developed turbulent flow, thus avoiding any eddy concept formulation. In this model the breakup frequency, is characterised

with respect to the dimensionless Weber number ( $We$ ). The model assumes that a particle needs to deform and that enough energy must be provided by the turbulence stresses in the surrounding fluid in order to achieve breakage.<sup>[19]</sup>

Hakansson et al.<sup>[22]</sup> have modified the original model proposed by Martinez-Bazan et al.<sup>[21]</sup> by firstly adding a viscosity term factor (term B in Equation 11) to the existing model which accounts for the effect of the eddy lifetime. Another term (C in Equation 11) was added to account for the action of eddies larger than the droplet to the breakage occurring by the viscous mechanism. This second type of breakage is called ‘turbulent viscous breakage’. The modified model is given by:

$$b(d_i) = \underbrace{K_{TI} \sqrt{\frac{K \varepsilon^{2/8} d_i^{2/8} - 8\sigma We_{cr}/(\rho_c d_i)}{d_i}}}_{A} \cdot \underbrace{\frac{\rho_c \varepsilon^{1/8} d_i^{1/8}}{2\mu_d}}_B + \underbrace{K_{TV} \sqrt{\frac{2\kappa \mu_c \varepsilon^{1/3} d_i^{-2/3}/\rho_c - 8\sigma Ca_{cr}/(\rho_c d_i)}{d_i}}}_{C} \frac{\mu_c}{\mu_d} \quad (11)$$

In Equation (11) the term A gives the original model when the Weber critical number (12) is equal to 1.  $K_{TI}$  and  $K_{TV}$  are constants that need to be adjusted. For the experimental conditions described in Emulsification in Stirred Tank Reactor Section, no significant influence of the latter term on the results was observed. Consequently, this viscous turbulent breakage term was neglected.  $\kappa$  is a constant that has been found to be equal to 8.2<sup>[21]</sup> after a theoretical reasoning on the physics of isotropic turbulence. They also defined a critical Weber number,  $We_{cr}$ , as follows:

$$We_{cr} = \frac{\kappa \rho_c \varepsilon^{1/8} d_{cr}^{5/8}}{8\sigma} \quad (12)$$

where  $d_{cr}$  is the critical diameter which is the maximum stable droplet diameter. In this study, even though there are several models for this parameter, we have considered a constant value of 10  $\mu\text{m}$  for the maximum stable droplet diameter.

**Model of Alopaeus et al.<sup>[23]</sup>** The model developed by Alopaeus et al.<sup>[23]</sup> was also used in this study. Even though this model is available in the CFD code ANSYS-Fluent<sup>®</sup>, it was necessary to implement the model as a UDF to be able to set the adjusted parameters for the simulations. Its particularity is that it accounts for the effect of the viscous force inside the droplets for the

estimation of the breakage frequency. The model is given by:

$$b(d_i) = A_1 \varepsilon^{1/3} \operatorname{erfc} \left( \sqrt{A_2 \frac{\sigma}{\rho_c \varepsilon^{2/8} d_i^{5/8}} + A_3 \frac{\mu_d}{\sqrt{\rho_c \rho_d \varepsilon^{1/8} d_i^{4/8}}} \right) \quad (13)$$

Three parameters need to be adjusted with this model:  $A_1$ ,  $A_2$  and  $A_3$ .

**Daughter droplet size distribution,  $\beta(d_1^3/d_0^3)$ .** For the current study, based on the shape of the experimental DSD we have measured in the stirred tank, we have chosen to use the normal density function proposed by Valentas et al.<sup>[24]</sup> which assumes binary breakage. It is expressed by:

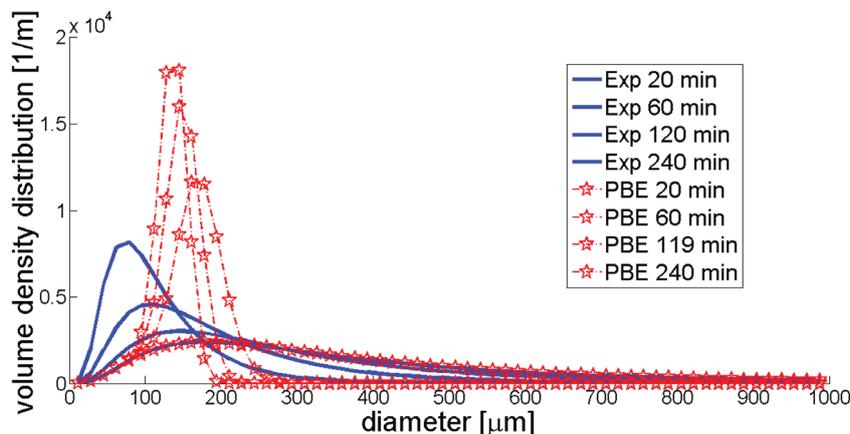
$$\beta(d_1^3/d_0^3) = \frac{2.4}{d_0^8} \exp \left( -\frac{4.5(2d_1^8 - d_0^8)^2}{d_0^6} \right) \quad (14)$$

### Results of the Parameters Identification

As already mentioned, it is the first step of our study and only the breakage will be discussed in this paper. The DSD measurement for 1% of water in TPH was measured for different revolution speeds. The PBE was resolved with the FV implemented in Matlab<sup>®</sup>. The breakup kernels, previously described,<sup>[20,21,23]</sup> were fitted to the experimental DSD by an inverse problem using the least squares method. In the fitting process, the DSD measured 20 min after the stirring start is considered as the initial DSD. DSD are then calculated until 240 min.

Figure 6 compares the calculated DSD obtained using the Coualoglou & Tavlarides model and the experimental DSD. The values used for the constants in this simulation are the default ones taken from the literature. We can clearly observe that using these values, the model fails to predict the correct DSD. In fact, they give a breakup frequency much higher than the adequate one for our case. This preliminary result gives a good illustration of the non-universality of these constants, unlike postulated in the literature. It also consolidates the need for an experimental investigation of the water/TPH system.

Table 2 illustrates the original parameters given in the literature and the phase systems for which the parameters identification was performed compared to the values adjusted on our phase system in this study. The fitted values are quite different from the original



**Figure 6.** Volume density distribution. Coualoglou & Tavlarides model compared to experimental DSD in a stirred tank:  $C_1 = 0.0048$ ,  $C_2 = 0.08$ ,  $\varepsilon = 0.48 \text{ W/kg}$ .

**Table 2.** Original and adjusted parameters for Coualoglou & Tavlarides, Martinez-Bazan, and Alopaeus breakage models

Breakage model	Phase system	Parameters	Original values	Adjusted values
Coualoglou & Tavlarides	O/W droplets (0.1–1 mm)	$C_1$	$4.87 \times 10^{-3}$	$4.83 \times 10^{-3}$
	Turbine impeller $\omega = 190\text{--}310$ rpm $\varepsilon = 0.16\text{--}0.69$ W/kg $\rho_c = 190\text{--}130$ rpm $\rho_d = 1000$ kg/m <sup>3</sup> $\mu_c = 10^{-3}$ Pa s $\mu_d = 1.3 \times 10^{-3}$ kg/m <sup>3</sup> $\sigma = 43.03 \times 10^{-3}$ N/m	$C_2$	0.0552	0.0035
Martinez-Bazan	Bubbles (0.1–3 mm) Turbulent water jet $\varepsilon = 25\text{--}300$ W/kg	$K_{T1}$	2.5	$3.44 \times 10^{-7}$
Alopaeus	O/W droplets ( $\mu\text{m}$ )	$A_1$	0.986	0.001
	Rushton turbine	$A_2$	$8.92 \times 10^{-4}$	$5.25 \times 10^{-4}$
	$\omega = 378\text{--}765$ rpm	$A_3$	0.2	$6.19 \times 10^{-6}$
	$\varepsilon = 1.04\text{--}8.58$ W/kg $\rho_c = 1000$ kg/m <sup>3</sup> $\rho_d = 800$ kg/m <sup>3</sup> $\mu_c = \mu_d = 10^{-3}$ kg/m <sup>3</sup> $\sigma = 43.6 \times 10^{-3}$ N/m			

In each case, we consider that the identification process succeeds when the relative least-square error between the modelled and the measured DSD is smaller than  $10^{-5}$ .

ones, since in this study the model system (water in oil emulsion rather than oil in water emulsion), the nature of the flow generated by the stirrer (axial flow obtained with a propeller instead of radial flow with a Rushton turbine) are significantly different from the ones encountered by Coualoglou & Tavlarides and Alopaeus. In fact, it is well demonstrated that the type of impeller has a non-negligible influence on the DSD obtained in a stirred tank.<sup>[25]</sup>

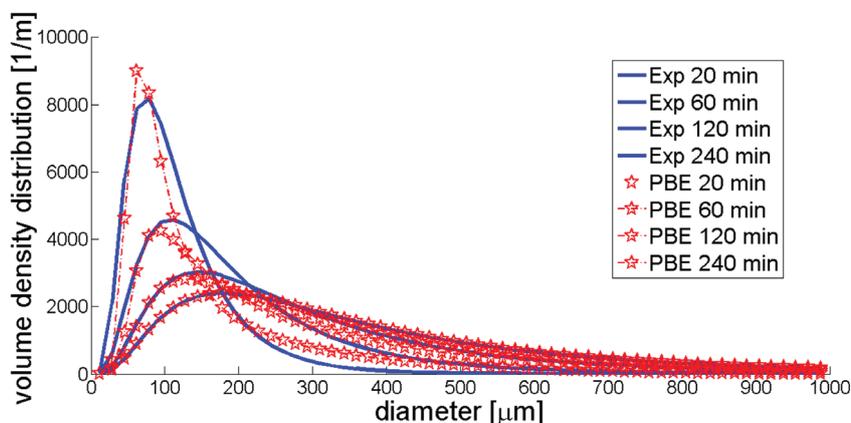
Concerning the model of Martinez-Bazan et al.<sup>[21]</sup> the original value was obtained for bubbles in a water jet under operating conditions completely different compared to ours. Consequently, the values obtained by numerical identification of the parameters are significantly different from the original ones.

The excellent agreement achieved using fitted parameters is shown in Figures 7–9 for the Coualoglou & Tavlarides, Martinez-Bazan and Alopaeus models respectively. The experimentally adjusted parameters exhibit smaller values than the default ones, reflecting the low breakage tendency of our phase system.

The model of Martinez-Bazan seems to give the better results as the fitting was better. However, this model contains an additional parameter that indirectly affects the breakup frequency: the critical diameter,  $d_{cr}$ . In this work, as previously stated, the value of this parameter was kept constant. On the other hand, the model of Coualoglou & Tavlarides accounts for the volume fraction of the dispersed phase to calculate the breakup frequency. The model of Alopaeus also gives good results and predicts a logical evolution of the breakage frequency when the diameter of the droplet is increased. The three models were kept for the implementation of the coupling of the CFD with the PBE.

#### CFD–PBE COUPLED MODEL

This part of the article is dedicated to description of the coupled CFD–PBE model. First, the validation of the single-phase flow leading to the selection of the turbulence model is discussed. Then,



**Figure 7.** Volume density distribution. Coualoglou & Tavlarides model compared to experimental DSD in the stirred tank:  $C_1 = 4.83 \times 10^{-6}$ ,  $C_2 = 0.0035$ ,  $\varepsilon = 0.48$  W/kg.

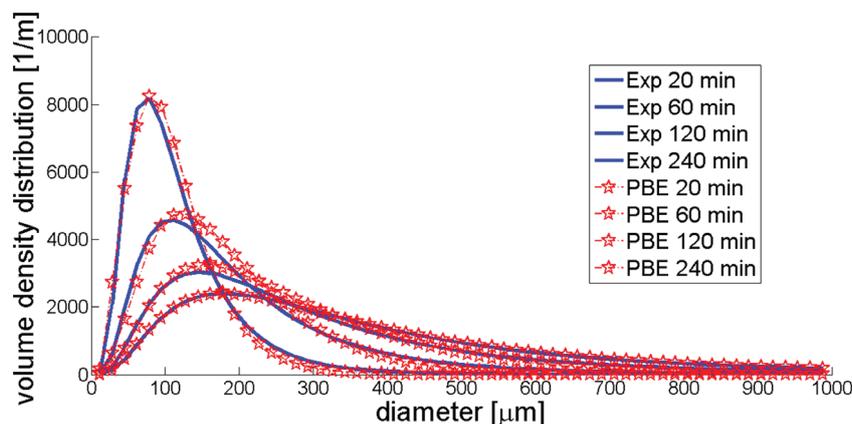


Figure 8. Volume density distribution. *Martinez-Bazan* model compared to experimental DSD in the stirred tank:  $K_{T1} = 3.44 \times 10^{-7}$ ,  $\varepsilon = 0.48 \text{ W/kg}$ .

the QMOM used in the coupled CFD–PBE method is presented. The choice of this method was done since it allows a low CPU consumption and it provides the determination of the mean droplet diameter, which is sufficient information for our application in liquid-liquid extraction, in first approximation. The determination of the entire DSD will be done in a future study. The operating conditions of the simulations are described in detail in Results and discussion section. The results obtained by the coupled model are also shortly presented and discussed..

#### Simulation of the Single-Phase Flow

##### Apparatus

The apparatus we have modelled and used for validation (see Validation of the Single-Phase Flow Model Section) consisted of a pulsed column of 50 mm of diameter equipped with discs and doughnuts internals. The disc diameter is 43.5 mm and the doughnut internal diameter 25 mm. The distance between a disc and a doughnut is 25 mm. The column is pneumatically pulsed and can work with frequencies ranging from 0.5 to 2 Hz. The column is jacketed to avoid optical deformations for the PIV measurements (Figure 2).

##### Model description

The flow inside the pulsed column is assumed to be axisymmetric, as reported by the previous studies published in the literature.

Figure 10 illustrates the calculation domain and its boundary conditions. The same calculation domain was used for the single-phase flow and the two-phase flow (i.e. the coupled CFD–PBE model). The TPH was injected at the bottom of the column as a velocity inlet profile and implemented in ANSYS-Fluent® as a user-defined function (UDF). The velocity profile is given by the following expression:

$$U(t) = \pi A f \cos(2\pi f t) \quad (15)$$

An outlet pressure condition was used at the outlet of the calculation domain. The column wall, discs and doughnuts were set as a wall boundary condition with no slip velocity. The mesh was refined near the walls to accurately calculate the zones where the highest gradients are occurring. For the two-phase flow, the dispersed phase was injected as a source term in the space offered by a doughnut (Figure 10).

Three compartments (a compartment being a succession of a disc–doughnut–disc) were used to ensure the flow independence regarding the boundaries. A prior mesh sensitivity study, comparing three different meshes, was conducted and has validated the choice of the 6300 nodes domain to perform the numerical study.

For each simulation, we first calculated the stationary flow corresponding to the maximum value of the velocity, then the transient flow was calculated for ten periods. For the two-phase flow, the injection of the dispersed phase was done after the

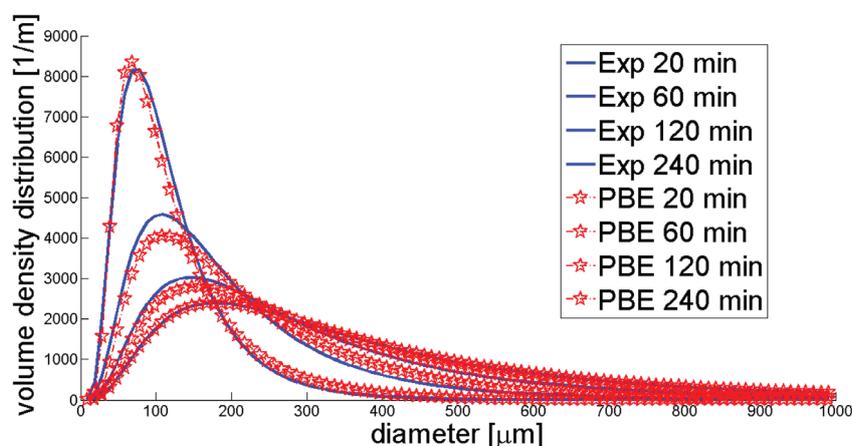


Figure 9. Volume density distribution. *Alopaeus* model compared to experimental DSD in the stirred tank:  $A_1 = 0.001$ ,  $A_2 = 5.25 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 6.19 \times 10^{-6}$ ,  $\varepsilon = 0.48 \text{ W/kg}$ .

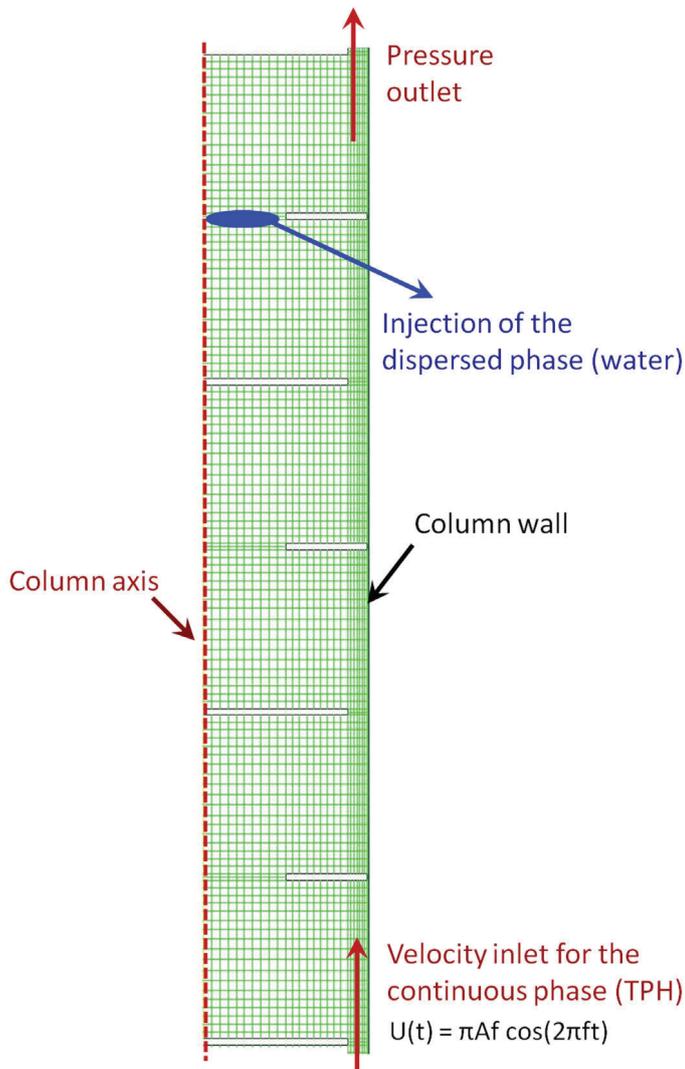


Figure 10. Axisymmetric mesh of the pulsed column (6300 nodes).

convergence of the single-phase flow is achieved, and the simulation was carried out until convergence of the DSD in the central compartments was reached.

#### Validation of the single-phase flow model

As discussed previously, an accurate modelling of the turbulence is a crucial point for the description of the emulsion behaviour, since the breakage and coalescence kernels are a function of the turbulence dissipation. The continuous phase flow-field was validated by PIV experiments. These experiments were focused on the validation of turbulence dissipation for accurate modelling purposes.

Simulations carried with two turbulence models, the standard  $k-\epsilon$  model and the Reynolds stress model (RSM), were compared to PIV measurements for several operating conditions (pulsation amplitudes between 10 and 40 mm and frequencies between 0.5 and 2 Hz). For each model, the default parameters and the standard wall law were used.<sup>[13]</sup> As the observed results are similar for the different operating conditions, only the case with a peak to peak amplitude of 20 mm and a frequency of 1 Hz is presented and discussed below.

Figure 11 illustrates the mean flow represented by the axial velocity in the middle of the compartment and Figure 12 the turbulent kinetic energy at the same location. The mean flow is well represented by both models; however, the standard  $k-\epsilon$  model exhibits slightly better results at the wall. Considering the turbulent kinetic energy,  $k$ , we observe that the models give slightly different results. The standard  $k-\epsilon$  model is able to predict accurately the turbulence profile inside the column, while the RSM slightly underestimated  $k$ . The later model is also significantly more CPU consuming than the standard  $k-\epsilon$  model.

The good agreement obtained for the single-phase flow led us to select the standard  $k-\epsilon$  model for the development of CFD-PBE coupled model.

#### The Quadrature Method of Moments (QMOM)

The idea of the moment method is to solve the transport equations for the moments of the DSD rather than for the entire distribution. Methods of moment are all based on the moments of the PBE with respect to the internal coordinate (in this case, for the sake of simplicity, the internal coordinate will be the size of the droplet,  $L$ ). The  $k$ th moment of the distribution is defined by:

$$m_k(\vec{y}, t) = \int_0^{\infty} n(L, \vec{y}, t) L^k dL \quad (16)$$

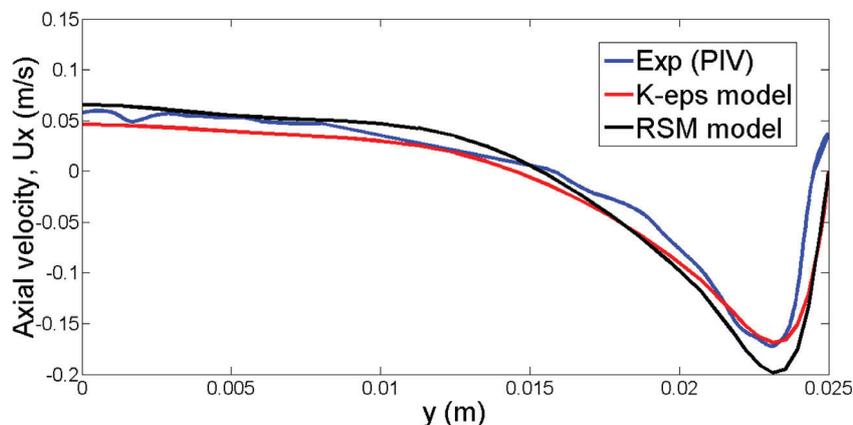


Figure 11. Axial velocity profile in the middle of the compartment, the profile is taken at  $2T/5$  ( $T$  being the period).  $A = 20$  mm,  $f = 1$  Hz.

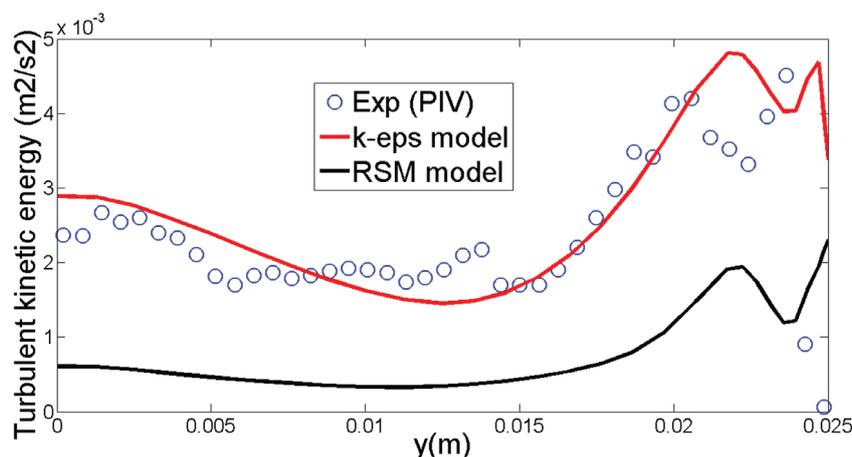


Figure 12. Turbulent kinetic energy in the middle of the compartment, the profile is taken at  $2T/5$  ( $T$  being the period).  $A = 20$  mm,  $f = 1$  Hz.

The main advantage of this method is the reduction in the number of equations to be solved, and hence the time required for the problem resolution. Solving directly for the moments of the DSD is highly binding in terms of the closures to be taken for the different kernels; this way of solving is the standard method of moments (SMM). To overcome this drawback, McGraw,<sup>[26]</sup> has proposed the QMOM, where the exact closure needed for the SMM is replaced by an approximate closure, offering the advantage of extending the applicability of the method to a wide range of applications. It is based on the quadrature approximation for the  $k$ th moment given by:

$$m_k = \sum_{i=1}^N W_i L_i^k \quad (17)$$

where the quadrature approximation is defined by its  $N$  weights  $W_i$  and  $N$  abscissas  $L_i$  and can be calculated by its first  $2N$  moments  $m_{0k}, \dots, m_{2N-1k}$ .

The procedure to determine the weights and abscissas is the Product-Difference algorithm proposed by Gordon.<sup>[27]</sup> Once the weights and abscissas are calculated, any integral where the number density function is involved can be calculated, thus, the source term can be estimated

$$B_k^B = \sum_{i=1}^N w_i \int_0^{\infty} L_k b(L_i) \beta(L|L_i) dL \quad (18)$$

$$D_k^B = \sum_{i=1}^N w_i L_i^k b(L_i) \quad (19)$$

Following Marchisio et al.<sup>[28]</sup> who have demonstrated that it is sufficient to represent the whole DSD with good accuracy, we chose to perform the simulation using only the six first moments of the DSD.

The QMOM was resolved in ANSYS-Fluent<sup>®</sup> together with the RANS equations for the continuous phase. The boundary conditions of the moments at the inlet and outlet of the calculation domain were set by assuming initial droplets of mean diameter 1 mm. We verified that this value, required to initiate the calculation, had no influence on the stationary results.

## RESULTS AND DISCUSSION

Preliminary simulations, which operating conditions are given below, were led in order to test the potentialities of the developed model. The obtained simulation results are discussed hereinafter.

In the model, the continuous phase is characterised by its superficial velocity:

$$V_s = 2Af \quad (20)$$

The Reynolds number is defined by:

$$Re = \frac{\rho_c 2Af D_c}{\mu_c} \quad (21)$$

The simulated operating conditions and the corresponding superficial  $Re$  are gathered in Table 3.

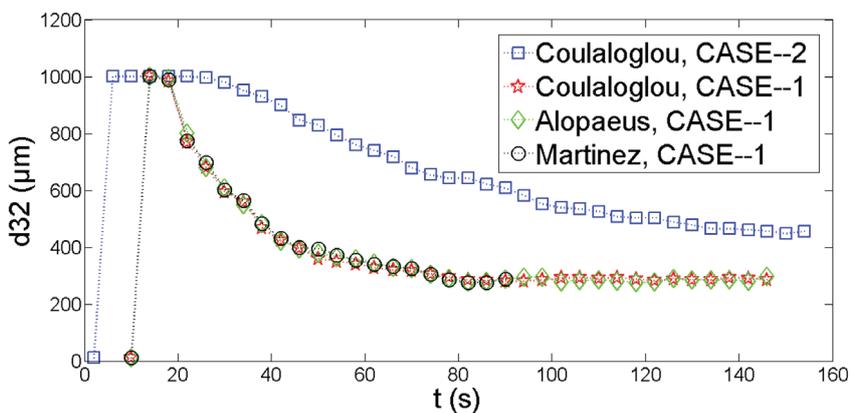
It is worthy to mention that locally the flow is much more turbulent than the value given by the superficial based  $Re$ . Indeed it may be in some places more than four times the value derived from Equation (21). So, it is expected that in such conditions the turbulence should play a dominant role in the breakage process.

Simulations were led considering each of the breakup kernels previously described in Breakup Kernels Section. The dispersed phase was injected so that its mass fraction in the emulsion was equal to 1%. Hence, for the first case (case 1), the mass flow was  $11.94 \times 10^{-4}$  and  $5.97 \times 10^{-4}$  kg/s for the second one (case 2).

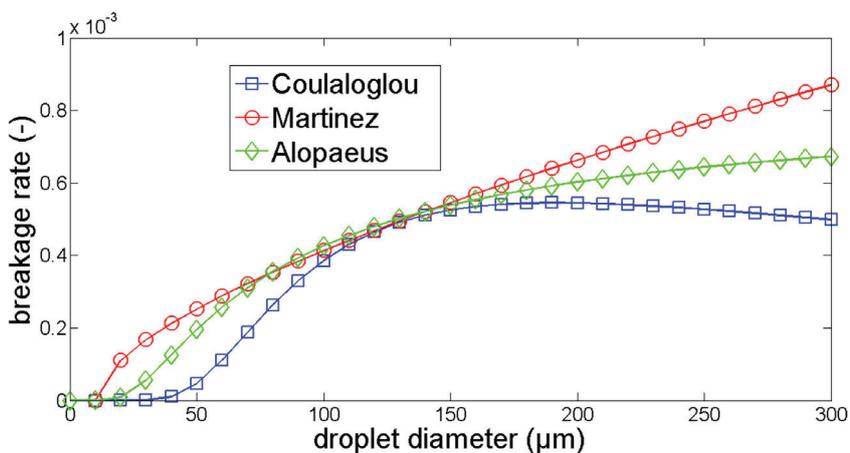
Figure 13 illustrates the mean diameter  $d_{32}$  calculated by the model in both cases and for the three breakage models. It can be observed that for both the Coualouglou & Tavlarides, Martinez-Bazan and Alopaeus models, the  $d_{32}$  is converging to a value of 0.28 mm. This indicates that even though the turbulence dissipation is not homogeneously distributed inside the pulsed column, the fitting process succeeded to make these two models usable on our phase system in the current operating conditions. Figure 14

Table 3. Operating conditions considered for the simulations

Operating condition	Pulsation amplitude (mm)	Frequency (Hz)	$Re$
Case 1	40	1	2400
Case 2	20	1	1200



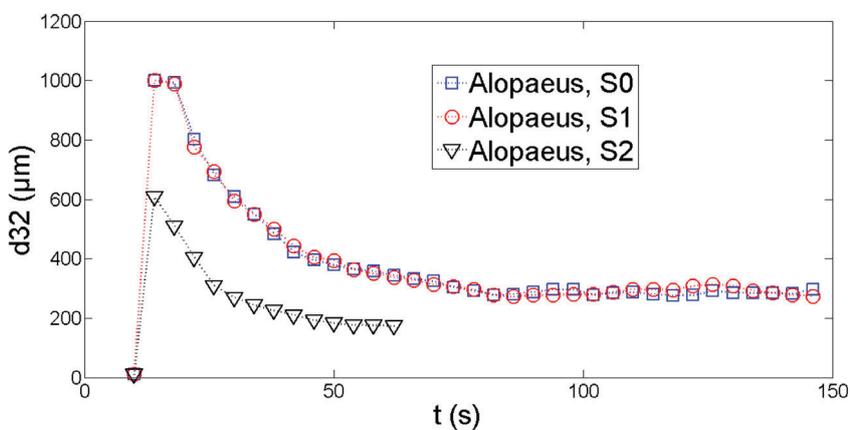
**Figure 13.** Mean drop size predicted by the coupled PBE–CFD model, comparison of the different breakup kernels. The adjusted constants are used for the Coulaloglou & Tavarides, Martinez-Bazan models, and Alopaeus models inside the pulsed column:  $C_1 = 4.83 \times 10^{-6}$ ,  $C_2 = 0.0035$ ;  $K_{T1} = 3.44 \times 10^{-7}$ ;  $A_1 = 0.001$ ,  $A_2 = 5.25 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 6.19 \times 10^{-6}$ .



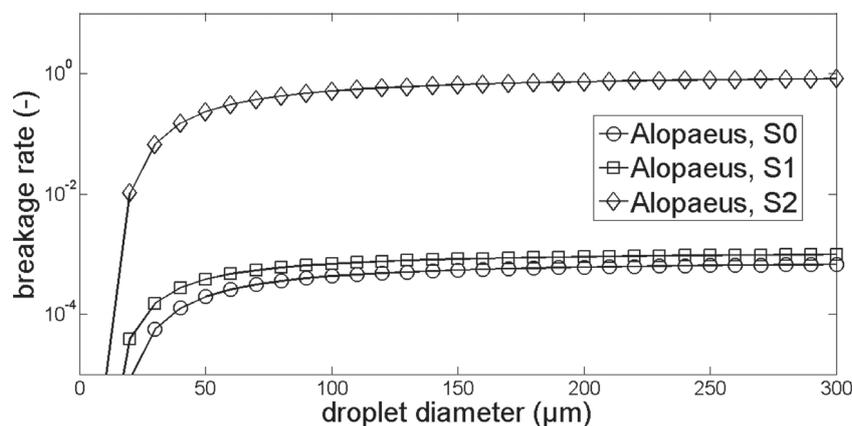
**Figure 14.** Breakage rates predicted by the Coulaloglou & Tavarides, Martinez-Bazan and Alopaeus models:  $C_1 = 4.83 \times 10^{-6}$ ,  $C_2 = 0.0035$ ;  $K_{T1} = 3.44 \times 10^{-7}$ ;  $A_1 = 0.001$ ,  $A_2 = 5.25 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 6.19 \times 10^{-6}$ .

illustrates the breakage rate given by these three models after the fitting process was performed. We can clearly see that, under the range of turbulent dissipation studied in our case and in the range of droplet's diameters, the three models predict very close values of

the breakage rate. We will see further that those values of the breakage rate are very low compared to the ones given by the three models if the default constants available in the literature are used. Figure 14 illustrates also the well-known tendency of the



**Figure 15.** Mean drop size inside the pulsed column predicted by the coupled PBE–CFD model, comparison of different sets of constants for the same breakup kernel.<sup>[23]</sup> Case S1:  $A_1 = 0.001$ ,  $A_2 = 5.25 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 6.19 \times 10^{-6}$ ; case S2:  $A_1 = 11 \times 10^{-4}$ ,  $A_2 = 6.84 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 0.0365$ ; case S0 (default constants):  $A_1 = 0.986$ ,  $A_2 = 8.92 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 0.2$ .



**Figure 16.** Breakage rates predicted by the Alopaeus model with different sets of constants. Case S1:  $A_1 = 0.001$ ,  $A_2 = 5.25 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 6.19 \times 10^{-6}$ ; case S2:  $A_1 = 11 \times 10^{-4}$ ,  $A_2 = 6.84 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 0.0365$ ; case S0 (default constants):  $A_1 = 0.986$ ,  $A_2 = 8.92 \times 10^{-4}$ ,  $A_3 = 0.2$ .

Coulaloglou & Tavlarides breakage model to predict a breakage rate presenting a peak for a certain droplet diameter and diminishing after this. This tendency is illogical and represents one of the drawbacks of this widely used model.

For the second set of operating conditions, the model of Coulaloglou & Tavlarides exhibits a higher  $d_{32}$  value. This result was expected, at least from a qualitative point of view, since case 2 is less turbulent, and thus inducing less breakage than case 1.

The results of the Alopaeus model are plot in Figure 15 under the operating conditions of case 2 with two different sets of constants: the sets named S0 and S1 were obtained considering a turbulent dissipation of 0.46 and 1.34 W/kg respectively. For the sake of comparison, case S2 has been achieved with the default constants given in the article by Alopaeus et al.<sup>[23]</sup>. The set of constants although being slightly different between the two values of the turbulent dissipation, we can observe that the converged value of the  $d_{32}$  inside the pulsed column is very close. This result reveals a low sensitivity of the final  $d_{32}$  inside the pulsed column regarding the set of constants. However, when the default constants, which are several orders higher than the adjusted ones, are used, a significative difference is observed regarding the final  $d_{32}$  value (Figure 15). The breakage rate predicted by the model of Alopaeus for those different sets of constants is represented in Figure 16. The breakage rate in cases S0 and S1 are very close; in case S2 it is several order higher, thus explaining the discrepancy on the drops size.

## CONCLUSION

An original work was undertaken to simulate the behaviour of the dispersed phase in a pulsed column. A coupled CFD-PBE approach was undertaken in this aim. First, a CFD model was developed and validated on PIV measurements. The standard  $k-\epsilon$  model was retained to model the flow turbulence in the process, as it was the one offering the best agreement with the PIV profiles. Then, a literature review was conducted to select breakup kernels applicable to our phase system and our operating conditions. After adjusting their parameters, the Coulaloglou & Tavlarides,<sup>[20]</sup> Martinez-Bazan<sup>[21]</sup> and Alopaeus et al.<sup>[23]</sup> models were found to fit well with our experimental DSD. Finally, preliminary simulations were carried out by the coupled CFD-PBE model. The first results are encouraging and give valuable qualitative information useful for the understanding and design of the process. It is obvious that

the results obtained in CFD-PBE Coupled Model Section need further validation, especially regarding the DSD actually achieved in the pulsed column, which will be the aim of our future work. However, the models we developed allow a qualitative study of the process and offers valuable information useful for its understanding and design. The easiness of implementation of this model is also an important advantage since the experiments are difficult, expensive and time consuming.

Future work will focus on coalescence kernels. Indeed, droplets' coalescence is responsible for the reagents mixing and precipitation. The final step will then consists in coupling the model with the study of the phenomena occurring at the drop scale.<sup>[29]</sup>

## NOMENCLATURE

$a$	coalescence kernel ( $\text{m}^3/\text{s}$ )
$A$	pulsation amplitude (m)
$A_1, A_2, A_3$	constants in the model of Alopaeus
$b$	breakage frequency ( $\text{s}^{-1}$ )
$B$	birth rate
$C_1, C_2$	adjustable constants in Coulaloglou & Tavlarides model
$d$	droplet diameter (m)
$D$	death rate
$D$	impeller diameter (m)
$f$	pulsation frequency (Hz)
$g$	volume density distribution
$H$	liquid height (m)
$J$	mass flux (m/s)
$k$	kinetic energy ( $\text{m}^2/\text{s}^2$ )
$K$	adjustable constants in Martinez-Bazan model
$L$	abscissas in the QMOM method (m)
$m$	mass of the dispersion (kg)
$m$	moment of the droplets distribution
$n$	number density function ( $\text{m}^{-3}$ )
$N$	diameter of the propeller (m)
$N_p$	power number of the impeller
$Re$	Reynolds number
$S$	source term
$t$	time (s)
$T$	pulsation period (s)
$u$	volume of the daughter droplet ( $\text{m}^3$ )
$\vec{u}$	velocity (m/s)

$\vec{U}$	inlet velocity (m/s)
$v$	volume of the daughter droplet ( $\text{m}^3$ )
$V$	volume of the daughter droplet ( $\text{m}^3$ )
$V_s$	superficial velocity (m/s)
$V'$	volume of the mother droplet ( $\text{m}^3$ )
$w$	weights in the QMOM
$We$	Weber number
$x$	internal coordinate
$\vec{y}$	spatial position

#### Greek Symbols

$\alpha$	dispersed phase volume fraction
$\varepsilon$	turbulence dissipation (W/kg)
$\rho$	density ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )
$\mu$	dynamic viscosity (Pa s)
$\sigma$	interfacial tension (N/m)
$\varphi$	internal coordinate
$\beta$	probability density function
$\kappa$	constant in Martinez-Bazan model, $\kappa = 8.2$

#### Subscripts/Superscripts

B	breakage
c	continuous phase
cr	critical
C	coalescence
d	dispersed phase
$i$	designates the $i$ th particle
$k$	moment of $k$ th order
S	superficial
T	total
TI	turbulent inertia breakage
TV	turbulent viscous breakage
0	for mother droplet

#### Abbreviations

CCD	charge-coupled device
CFD	computational fluid dynamics
DSD	droplets size distribution
LDV	laser doppler velocimetry
LED	light emitting diode
PBE	population balance equation
PBM	population balance model
PIV	particle image velocimetry
QMOM	quadrature method of moments
TPH	tetrapropylene hydrogen
RTD	residence time distribution
RANS	Reynolds average Navier–Stokes
RSM	Reynolds stress model
UDF	user-defined function

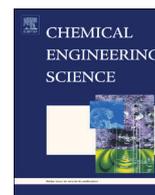
#### REFERENCES

- [1] G. Borda, E. Brackx, L. Boisset, J. Duhamet, D. Ode, *Nucl. Eng. Des.* **2011**, *241*, 801.
- [2] A. Laulan, *Hydrodynamique et rupture de gouttes dans une colonne pulsée à disques et couronnes*, PhD Thesis, INP Toulouse, 1980, Toulouse, France.
- [3] W.-Z. Oh, *Analyse du fonctionnement hydrodynamique d'une colonne pulsée à disques et couronnes- étude du champ des vitesses*, PhD Thesis, INP Toulouse, 1983, Toulouse, France.
- [4] M. F. Buratti, *Etude des phénomènes de mélange axial dans les colonnes pulsées équipées de garnissages disques-couronnes*, PhD Thesis, INP Lorraine, 1998, Nancy, France.
- [5] G. Angelov, E. Journe, A. Line, C. Gourdon, *Chem. Eng. J.* **1990**, *45*, 87.
- [6] S. Legarrec, **1993**, *Modélisation et simulation numérique de l'écoulement et de la dispersion d'un contaminant dans une colonne pulsée*, PhD Thesis, CNAM Paris, 1993, Paris, France.
- [7] M. S. Aoun-Nabli, *Simulation numérique de l'hydrodynamique et du mélange axial dans les colonnes d'extraction pulsées à garnissages disques-couronnes*, PhD Thesis, INP Toulouse, 1995, Toulouse, France.
- [8] P. Leroy, *Etude et quantification des pertes de charge dans les colonnes pulsées à garnissage disques couronnes*, PhD Thesis, INP Lorraine, 1991, Nanacy, France.
- [9] J. M. Bujalski, W. Yang, J. Nikolov, C. B. Solnordal, M. P. Schwartz, *Chem. Eng. Sci.* **2006**, *61*, 2930.
- [10] N. Bardin-Monnier, *Simulations et expériences lagrangiennes d'écoulements diphasiques dans les colonnes pulsées à garnissage disques-couronnes*, PhD Thesis, INP Toulouse, 1998, Toulouse, France.
- [11] A. K. S. Dimitrova, C. Gourdon, G. Casamatta, *Ind. Chem. Eng. Res.* **1988**, *27*, 329.
- [12] A. Amokrane, S. Charton, F. Lamadie, J. Becker, J. P. Klein, F. Puel, "Study of the dispersed phase behavior in a pulsed column for oxalate precipitation in emulsion", in *9th International Conference on CFD in the Mineral and Process Industries*, Melbourne, 10–12 December 2012.
- [13] Fluent, *12 User's Guide*, Fluent Inc., Lebanon **2010**.
- [14] D. A. R. Brown, P. N. Jones, J. C. Middleton, "Experimental Methods, Part A: Measurement Tools and Techniques for Mixing and Flow Visualization Studies", in *Handbook of industrial mixing*, E. L. Paul, V. A. Atiemo-Obeng, S. M. Kresta, Eds., Wiley Interscience, New Jersey **2004**, pp. 145–202.
- [15] A. Khalil, F. Puel, Y. Chevalier, J. M. Galven, A. Rivoire, J. P. Klein, *Chem. Eng. J.* **2012**, *165*, 946.
- [16] F. Fibert, P. Laurencot, *SIAM J. Sci. Comput.* **2004**, *25*, 2004.
- [17] J. Kumar, G. Waranecke, M. Peglow, S. Heinrich, *Powder Technol.* **2009**, *189*, 218.
- [18] J. Becker, F. Puel, R. Henry, N. Sheibat-Othman, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2011**, *50*, 11358.
- [19] X. Liao, D. Lucas, *Chem. Eng. Sci.* **2009**, *64*, 3389.
- [20] C. A. Coulaloglou, L. L. Tavlarides, *Chem. Eng. Sci.* **1977**, *32*, 1289.
- [21] C. Martinez-Bazan, J. L. Montanes, J. C. Lasheras, *J. Fluid Mech.* **1999**, *401*, 157.
- [22] A. Hakansson, C. Tragardh, B. Bergenstahl, *Chem. Eng. Sci.* **2009**, *64*, 2915.
- [23] V. Alopaeus, J. Koskinen, K. I. Keskinen, *Chem. Eng. Sci.* **2002**, *57*, 1815.
- [24] K. J. Valentas, O. Bilous, N. R. Amundson, *Ind. Eng. Chem. Fundam.* **1966**, *5*, 271.

- [25] A. W. Peck, S. Chamsart, A. W. Nienow, A. Bakker, *Chem. Eng. Sci.* **1999**, *54*, 4211.
- [26] R. McGraw, *Aerosol Sci. Technol.* **1997**, *27*, 255.
- [27] R. G. Gordon, *J. Math. Phys.* **1968**, *56*, 655.
- [28] D. L. Marchisio, R. D. Vigil, R. O. Fox, *Chem. Eng. Sci.* **2003**, *58*, 3579.
- [29] S. Charton, A. Kacem, A. Amokrane, G. Borda, F. Puel, J. P. Klein, *Chem. Eng. Res. Des.* **2013**, *91*, 660.

---

*Manuscript received January 25, 2013; revised manuscript received May 29, 2013; accepted for publication June 9, 2013.*



# Single-phase flow in a pulsed column: Particle Image Velocimetry validation of a CFD based model



A. Amokrane<sup>a</sup>, S. Charton<sup>a,\*</sup>, F. Lamadie<sup>a</sup>, J.F. Paisant<sup>a</sup>, F. Puel<sup>b</sup>

<sup>a</sup> CEA, DEN, DTEC, SGCS, F-30207 Bagnols-sur-Cèze, France

<sup>b</sup> Université de Lyon, Université Lyon 1, CNRS, CPE Lyon, UMR 5007, Laboratoire d'Automatique et de Génie des Procédés (LAGEP), 43 Bd du 11 Novembre 1918, F-69622 Villeurbanne, France

## HIGHLIGHTS

- We performed PIV measurements in a pulsed column, synchronized on the flow period.
- We measured the flow field mean velocity and turbulent quantities.
- We discussed CFD numerical schemes' and turbulence models' performances, in 2D and 3D.
- We validated the 2D  $k-\epsilon$  model for prediction of the relevant turbulent properties.

## ARTICLE INFO

### Article history:

Received 12 December 2013

Received in revised form

17 March 2014

Accepted 3 April 2014

Available online 14 April 2014

### Keywords:

CFD

PIV

Turbulent flow

Pulsed column simulation

## ABSTRACT

The pulsed column is a widely used technology for liquid–liquid extraction processes in various industries. A thorough understanding of the biphasic flow in the column is essential to achieve process optimization and design. This paper is dedicated to the modelling of the single-phase flow which is strongly influencing the transport, breakage and coalescence of droplets in the apparatus. In this aim, a Computational Fluid Dynamics (CFD) model was developed for the simulation of a disc and doughnut pulsed column. To discuss the relevance of the RANS-based CFD model, the simulation results have been compared to Particle Image Velocimetry (PIV) measurements synchronized on the pulsation period. Since the behaviour of the dispersed phase is strongly dependent on the turbulent properties of the flow, such as eddies size and dissipation rate, the discussion is focussed on turbulent quantities. In this aim, 3D simulations were first carried out and compared to 2D axisymmetric ones. Then, different numerical schemes and turbulence models were compared to experimental data to choose the model offering the most accurate modelling of the single-phase flow.

© 2014 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

Pulsed columns are currently used in the nuclear fuel industry to separate reusable elements, such as uranium and plutonium, from the other waste fuel components, which are handled as radioactive wastes. But pulsed columns are also relevant for other extraction processes requiring uniform shear and/or involving dust or solid residues, for example in the mineral or food industries. Like other apparatus dedicated to liquid–liquid extraction, it is used to achieve a high interfacial area between the two liquid, by performing an efficient breakage of the dispersed phase.

Understanding the hydrodynamics of the pulsed column is essential for process design and optimization. In this context, modelling and numerical simulation are powerful tools, complementary to the

experiments, in order to study, and therefrom predict, the dispersed phase relevant properties in the pulsed column (i.e. drops residence times, size and concentration).

Since the early 1980s, many studies have been dedicated to the flow's description in a disc and doughnut pulsed column, either experimentally (Laulan, 1980; Oh, 1983; Buratti, 1988; Leroy, 1991) or numerically (Oh, 1983; Angelov et al., 1990; Legarrec, 1993; Aoun-Nabli et al., 1997). They concluded that the overall flow inside the column is independent from the boundary conditions and could be represented, in an axisymmetrical frame, by a reduced number of compartments in the axial direction (the term “compartment” stands for the pattern either “disc–doughnut–disc” or “doughnut–disc–doughnut”). These studies also assessed the influence of the pulsation and geometric parameters on the flow properties such as the pressure drop and the axial dispersion coefficient, for which Aoun-Nabli et al. (1997) have proposed a first numerical correlation, based on the standard  $k-\epsilon$  turbulence model.

\* Corresponding author.

E-mail address: [sophie.charton@cea.fr](mailto:sophie.charton@cea.fr) (S. Charton).

From there, the  $k-\epsilon$  model was considered appropriate for the simulation of the turbulent flow in a pulsed column. Angelov et al. (1998) have first made an attempt to validate this approach experimentally, considering mean velocity and turbulent quantities. Even though the paper gives a good insight of the flow inside the pulsed column and the influence of the operating conditions on velocities and turbulence quantities, the model is only validated on a permanent flow (i.e. without accounting for the pulsation) and there are too few experimental points. At last, the influence of the numerical schemes on the accuracy of the flow modelling is not addressed.

More recently, Bujalski et al. (2006) have performed velocity measurements using PIV and Laser Doppler Velocimetry (LDV). Both techniques were implemented under pulsed conditions. The measured velocity evolution was in good agreement with simulation results obtained using a low-Reynolds  $k-\epsilon$  turbulence model. The influence of the gap between the doughnut and the column wall was discussed as well. The authors concluded that the low-Reynolds approximation was relevant to reproduce the mean velocity evolution measured at a given location in the column by LDV as well as the velocity field. It is worthy of note at that point that the Reynolds number based on a superficial velocity gives only an indication of the flow's properties in the column, that could be locally more turbulent. We will see later in this paper that the low- $Re$   $k-\epsilon$  model offers a good representation of the mean velocities inside the pulsed column but overestimates the turbulence under the operating conditions investigated by Bujalski et al. (2006). However, while revisiting the existing data regarding axial dispersion, Charton et al. (2012) observed that although  $D_{ax}$  was generally accurately estimated by the  $k-\epsilon$  model, a strong deviation was observed when the pulsation's intensity is high. Under these extreme conditions, the low- $Re$  model, based on damping functions, appeared more appropriate, due to the inability of the turbulence to fully develop, as assumed by the classical  $k-\epsilon$  model.

While all the studies identified in the literature have considered RANS models as suitable for simulating flow in a pulsed column, Daniel (2003) intended to conduct Large Eddy Simulation (LES) simulations. In this aim, he simplified the problem by considering oscillating flow in a baffle pipe. The author studied only one set of operating conditions, focussing his effort on the turbulent properties of the flow. The simulations, supplemented by PIV measurements, achieved very accurate predictions of flow-particles interactions. However, LES is highly CPU consuming, and it is not yet possible for the simulation of industrial devices.

The development of models achieving a good representation of the biphasic flow, while providing a reasonable computational effort, is indeed required for chemical engineering purpose. These models should be able to predict the relevant properties, and namely, regarding liquid–liquid extraction processes, axial dispersion coefficient (Charton et al., 2012), droplets residence times distribution (Amokrane et al., 2012), and drops size distribution (Amokrane et al., 2014). An accurate description of the single-phase flow is therefore essential, since turbulent properties are responsible for the transport of the droplets and their ability to break and coalesce.

While most of the authors in the above-mentioned studies have validated their models on mean quantities, such as mean velocity field, pressure drop and axial dispersion, the present work is an attempt to develop a model validated on both mean quantities and turbulent ones. The final aim of our work is indeed to propose a robust and reliable model to predict emulsions properties in a pulsed column, in relation with industrial applications. This model is based on CFD and Population Balance Equation (PBE) coupling (Amokrane et al., 2014). Since the turbulent dissipation rate is the coupling parameter between the CFD and the PBE,  $\epsilon$  has to be accurately estimated by the CFD solver.

The objective of our study is therefore to determine whether the accuracy of RANS models is sufficient.

For this purpose, PIV measurements, synchronized on the pulsation device, have been performed, under various operating conditions, which results have been compared to RANS-type simulation results. The measured velocity fields were used to derive the kinetic energy and turbulent dissipation rates in the column and therefrom to validate the description of both the mean velocity and the relevant turbulent parameters by the RANS-based model. The effect of the flow domain (2D, 3D), of the numerical schemes and of the turbulence model is discussed considering mean flow as well as turbulent properties.

## 2. Material and methods

### 2.1. Experimental methods

#### 2.1.1. Apparatus description

The pulsed column consists in a 50 mm internal diameter cylinder equipped with discs' and doughnuts' internals (Fig. 1). The disc diameter is 43.5 mm and the doughnut internal diameter is 25 mm. The distance between a disc and a doughnut is 25 mm. The discs and doughnuts are maintained by four rods of 25 mm in height and 5 mm in diameter, which are not taken into account for the numerical study, neither in the 2D simulations nor in the 3D ones. The discs and doughnuts are painted in black to avoid any reflexions during the PIV measurements. The column is pneumatically pulsed and can operate with frequencies ranging from 0.5 to 2 Hz. The cylindrical wall is jacketed in order to reduce optical deformations for the PIV measurements (the double rectangular box is filled with the same liquid used inside the pulsed column).

#### 2.1.2. Measurement technique

The single-phase flow of TPH (TetraPropylene Hydrogenated) (density  $\rho = 760 \text{ kg m}^{-3}$ , viscosity  $\mu = 1.23 \times 10^{-3} \text{ Pa s}$ ) has been investigated by Particle Image Velocimetry.

The PIV system consists of an sCMOS camera ( $2560 \times 2160$  pixels of  $6.5 \times 6.5 \mu\text{m}$ ) synchronized with a double cavity Nd:YAG laser (frequency-doubled laser generating laser light at a wavelength of 532 nm). An optical system transformed the cylindrical laser beam into a vertical plane of 1 mm width directed through the column's centre. The height of the illuminated sheet is large enough to perform accurate measurement in a whole compartment (here a succession of a disc–doughnut–disc). The flow is seeded by silver-coated hollow glass spheres of  $10 \mu\text{m}$  in diameter. The relaxation time of the particles was found to be negligible

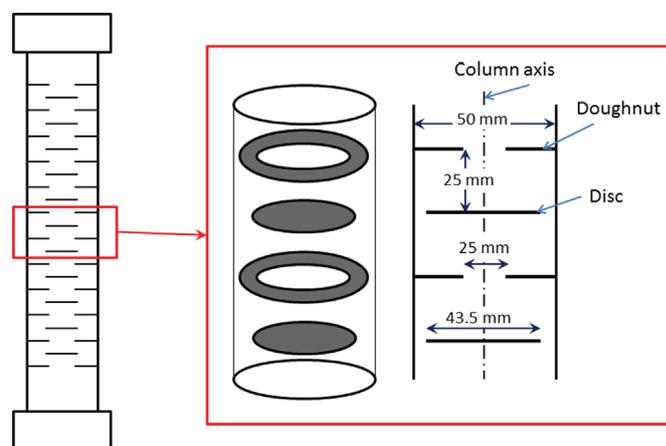


Fig. 1. Schematic diagram of the pulsed column.

compared to the time separating the two successive images taken to calculate the particles displacement.

A pressure transducer, placed on the pulsation leg, measures the oscillating signal corresponding to the flow motion. Its signal is filtered and used to trigger both the camera and the laser at different instants of the flow cycle. This procedure allows the velocity fields measurements to be synchronized on the flow period  $T$ . The pulsation period was divided in 10 different instants, for which the instantaneous velocity fields were measured. The mean velocities and turbulence quantities were then determined by performing a series of measurements on successive pulsation cycles. Paisant et al. (2013) have demonstrated that 250 flow cycles are required to reach convergence.

The camera had a field of view of  $97.75 \times 83.75 \text{ mm}^2$  (magnification  $\times 5.9$ ). The interrogation windows are  $32 \times 32$  pixels wide with an overlapping of 50% providing a spatial resolution of  $16 \times 16$  pixels. The corresponding resolution is  $616 \times 616 \mu\text{m}^2$ . The spatial resolution is indeed a crucial factor determining the accuracy of a PIV system (Adrian, 1997; Saarenrinne and Piirto, 2000): the smaller the spatial resolution, the higher the accuracy. However, the smallest spatial resolution achievable is limited by the size of the light spots reflected by the particles when illuminated by the laser sheet. The spots are functions of the optical system, the laser power and the particles' size and reflexivity. In this study, the mean spots' size was about 4 pixels. To ensure that the particle's motion is correctly captured and that they remain within the interrogation window, the resolution of the camera was not reduced below  $16 \times 16$  pixels.

The experimental setup is depicted in Fig. 2 as well as an example of results. The pulsation frequency and amplitude were varied to cover a wide range of operating conditions. The frequency ranged from  $f=0.5$  to  $f=2$  Hz and the amplitude from  $A=10$  to  $A=40$  mm. The influence of the net flow (in the axial direction) was also assessed and found to be negligible, as reported by previous authors (Angelov et al., 1998; Bujalski et al., 2006).

### 2.1.3. Assessment of the PIV measurements

The determination of turbulence quantities from PIV measurements is becoming widely used in the literature in the recent years (Adrian, 1997; Saarenrinne and Piirto, 2000; Baldi et al., 2004; Drumm et al., 2011). The ability of a PIV system to capture the

kinetic energy,  $k$ , and turbulence dissipation,  $\epsilon$ , depends on its ability to perform measurements down to the Kolmogorov length scale,  $\eta$  (Drumm et al., 2011):

$$\eta = \left( \frac{\nu^3}{\epsilon} \right)^{1/4} \quad (1)$$

where  $\nu$  is the fluid's kinematic viscosity. The accuracy of the PIV measurements can therefore be assessed by comparing the spatial resolution of the PIV measurement chain and the length scale  $\eta$ .

Both the kinetic energy and the turbulence dissipation are determined from the fluctuation velocities and their spatial derivatives. First, the phase average velocity was derived from the  $N=250$  images corresponding to the instantaneous velocity on each of the 10 cycle instants ( $t_0 = 0, (T/10), (2T/10), \dots, T$ ). At each of these time steps, the mean velocity  $\langle u \rangle$  is defined by

$$\langle u \rangle = \overline{u(\mathbf{x}, t_0)} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N u(\mathbf{x}, t_0) \quad (2)$$

Once the average velocity obtained for each  $t_0$ , the turbulence fluctuations,  $u'$ , are determined by subtraction of the average velocity from the instantaneous velocity. The fluctuations are then averaged to end with the field of turbulence fluctuations on each instant of the flow cycle.

In a three-dimensional case, the turbulence dissipation can be calculated as follows (Saarenrinne and Piirto, 2000):

$$\begin{aligned} \epsilon = \nu \left( 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_1} \right)^2} + \overline{\left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_1} \right)^2} + \overline{\left( \frac{\partial u'_3}{\partial x_1} \right)^2} + \overline{\left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_2} \right)^2} + 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_2} \right)^2} + \overline{\left( \frac{\partial u'_3}{\partial x_2} \right)^2} \right. \\ \left. + \overline{\left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_3} \right)^2} + \overline{\left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_3} \right)^2} + 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_3}{\partial x_3} \right)^2} + 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_2} \frac{\partial u'_2}{\partial x_1} \right)} \right. \\ \left. + 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_1}{\partial x_3} \frac{\partial u'_3}{\partial x_1} \right)} + 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_2}{\partial x_3} \frac{\partial u'_3}{\partial x_2} \right)} \right) \quad (3) \end{aligned}$$

In the case of a 2D flow and in a cylindrical coordinate, Eq. (3) is reduced to Drumm et al. (2011):

$$\epsilon = \nu \left( 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_r}{\partial r} \right)^2} + 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_z}{\partial z} \right)^2} + 3 \overline{\left( \frac{\partial u'_r}{\partial z} \right)^2} + 3 \overline{\left( \frac{\partial u'_z}{\partial r} \right)^2} + 2 \overline{\left( \frac{\partial u'_r}{\partial z} \frac{\partial u'_z}{\partial r} \right)} \right) \quad (4)$$

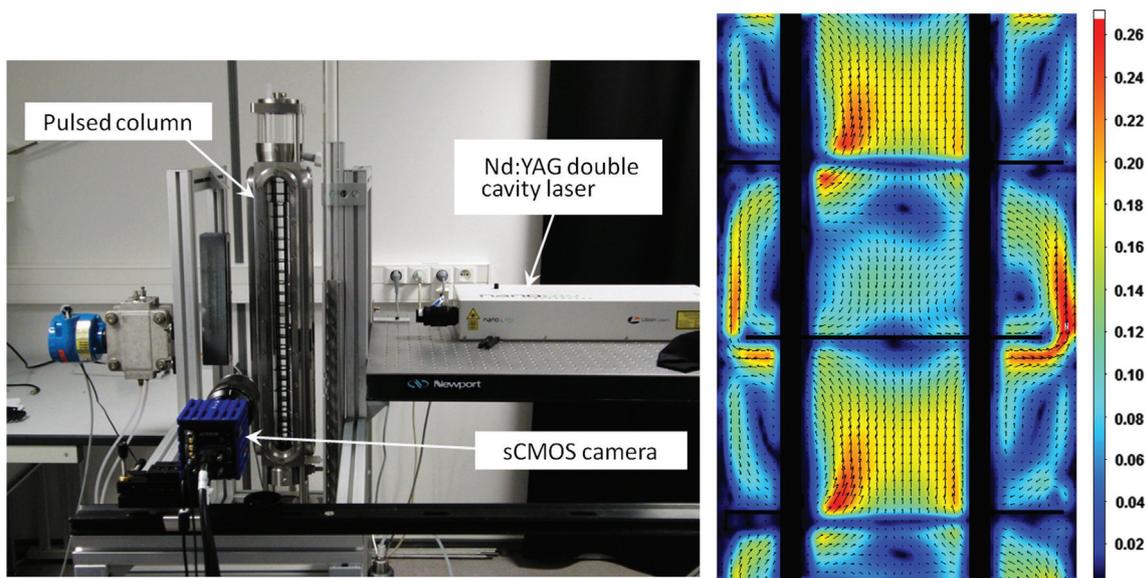


Fig. 2. Left: experimental setup for synchronized PIV measurements. Right: example of measured mean velocity field (scale is in  $\text{m s}^{-1}$ ).

**Table 1**

Kolmogorov length and time scale for each time step ( $A=20$  mm,  $f=1$  Hz, SR stands for the spatial resolution).

$t_0$	$\frac{T}{10}$	$\frac{2T}{10}$	$\frac{3T}{10}$	$\frac{4T}{10}$	$\frac{5T}{10}$	$\frac{6T}{10}$	$\frac{7T}{10}$	$\frac{8T}{10}$	$\frac{9T}{10}$	$T$
$\eta$ ( $\mu\text{m}$ )	47.3	50.2	54.8	61	59	50.9	47	53	53	48.3
SR/ $\eta$	13	12.3	11.2	10.1	10.4	12.1	13.1	11.6	11.6	12.7
$t_\eta$ (ms)	1.7	1.4	1.4	1.5	1.8	2.2	2.1	1.6	1.3	1.7

Regarding the kinetic energy, it is given by

$$k = \frac{3}{4}(\overline{u^2} + \overline{w^2}) \quad (5)$$

Eq. (4) is used to calculate the turbulence dissipation from the turbulence fluctuations measured in the pulsed column. The case of a peak-to-peak amplitude  $A=20$  mm and a frequency  $f=1$  Hz is developed here. The other investigated operating conditions have led to similar conclusions.

Because the turbulence fluctuations are not homogeneously distributed within the compartment, a field of turbulence dissipation is obtained for each instant of the cycle. Thus, a field of  $\epsilon$  is obtained for each of the 10 instants of the cycle. Rather than calculating the Kolmogorov length scale at each point in the compartment, we chose the smallest value in each turbulence dissipation field, which gave the biggest length scale in Eq. (1) thus considering the most demanding conditions.

Table 1 illustrates the biggest Kolmogorov length scale and its comparison with the spatial resolution for each moment of the cycle. Saarenrinne et al. (2001) have analysed the turbulence kinetic energy and turbulence dissipation with Halland's spectrum of turbulent kinetic energy. They have shown that in order to capture 65% of the actual turbulent kinetic energy, a spatial resolution of  $90 \times \eta$  is required. Corollary a spatial resolution of  $20 \times \eta$  is needed to reach 95% of the turbulent kinetic energy. On the other hand, to reach 65% of the turbulence dissipation the spatial resolution should be around  $9 \times \eta$ , and  $2 \times \eta$  to capture the 90% of it. We can observe from Table 1 that the resolution of our measurement chain is better than  $9 \times \eta$ . It is therefore able to capture about 95% of the kinetic energy and 65% of the turbulence dissipation. Compared to the LDV technique which is more likely to perform high frequency measurements, but in one point, the precision level achieved by the PIV chain, that allows field measurements over the whole section of the column, is very satisfactory.

The determination of the optimal time step,  $\delta t$ , separating the two consecutive images taken to calculate the particles' displacement is tedious. It is indeed a non-explicit function of both the operating conditions and the spatial resolution (Daniel, 2003).  $\delta t$  should be compared to the relaxation times of the particles,  $\tau$ , to make sure that the largest structures of the flow are correctly captured as well as the turbulence fluctuations. The time scale  $t_\eta$  of the Kolmogorov structures is given by the following expression:

$$t_\eta = \left(\frac{\nu}{\epsilon}\right)^{1/2} \quad (6)$$

And the relaxation time of the seeding particles by

$$\tau = \frac{2}{9} \left( \rho_d + \left(\frac{1}{2}\rho_c\right) \right) \frac{d_p^2}{4\mu_c} \quad (7)$$

where  $\rho_c$  and  $\rho_d$  are respectively the densities of the continuous phase and of the seeding particles ( $\rho_d = 1500$  kg m<sup>-3</sup>).  $\tau$  is close to 9  $\mu\text{s}$ , which is negligible compared to the Kolmogorov time-scale values reported in Table 1. For the case study considered here,  $\delta t$  was set to 800  $\mu\text{s}$  which is smaller than the Kolmogorov time-scale. Again, this is favorable to capture the smallest turbulent structures of the pulsed flow.

The relaxation time is obviously smaller than the time scale of the biggest structures of the flow, which correspond to the time period ( $T=1$  s) thus ensuring that the seeding particles matched correctly the motion of these structures as well.

To conclude, the error bars on the measurement results discussed in Section 4 correspond to  $-10\%$  for  $k$  and  $-35\%$  for  $\epsilon$ .

## 2.2. Numerical methods

### 2.2.1. Mesh and boundary conditions

As reported by previous authors (Angelov et al., 1990; Aoun-Nabli et al., 1997), the flow inside the pulsed column is generally assumed axisymmetric. However, it is well known that turbulence is a stochastic 3D phenomenon. 3D simulations have therefore been carried out in order to assess the validity of the axisymmetric simplification when both the mean and turbulent flow properties are considered in a pulsed column. Fig. 3 illustrates the two calculation domains and their boundary conditions. The horizontal line indicates the location that we have considered for the comparison with numerical results. It is located in the middle of the central compartment.

The fluid is injected at the bottom of the column as a velocity inlet profile and implemented in ANSYS-Fluent<sup>®</sup> as a user-defined function (UDF). The velocity profile is given by the following expression:

$$U(t) = \pi A f \cos(2\pi f t) \quad (8)$$

An outlet pressure condition was used at the other end of the calculation domain. The column wall, discs and doughnuts were set as a wall boundary condition with no slip velocity. In both the 3D and 2D cases, the mesh was refined near the walls to accurately calculate the zones where the highest gradients are occurring.

Three compartments were taken into account to ensure the flow independence regarding the boundaries. For each simulation, the converged stationary flow corresponding to the maximum value of the velocity was first calculated, then the transient flow was simulated for 10 periods.

A mesh sensitivity study was carried out to ensure that the solution is independent of the grid refinement. In 2D, four regular meshes constituted by quad cells and containing 6300; 12,000; 30,000 and 53,000 nodes were considered. Whereas for the 3D domain three hexahedral-type meshes of 321,000; 710,000 and 3,274,000 nodes were tested. Particular attention was paid to ensure that not only the mean quantities were grid independent but the turbulent ones as well. It can be observed in Figs. 4 and 5 that regarding mean quantities, represented here by the axial velocity, mesh convergence is reached with 6000 nodes. However, when we come to the turbulence quantities, represented here by the turbulent kinetic energy, the mesh needs further refinement. The mesh with 30,000 nodes was therefore retained for the 2D simulations as it offered the best compromise between CPU time consumption and accuracy of the solution. The same reasoning led to retain the 710,000 nodes-grid for the 3D simulations.

### 2.2.2. Discretization schemes

The principal problem in the discretization of the convective terms is the calculation of a transported property,  $\phi$ , at the control volume faces and its convective fluxes at the boundaries. Different schemes can be used for this aim. These different schemes may be assessed in terms of four properties to be able to choose the most suitable one: conservativeness, transportiveness, boundedness and accuracy (Versteeg and Malalasekera, 2007):

- The conservativeness is the ability of the scheme to ensure the conservation of the transported property over the whole solution domain.

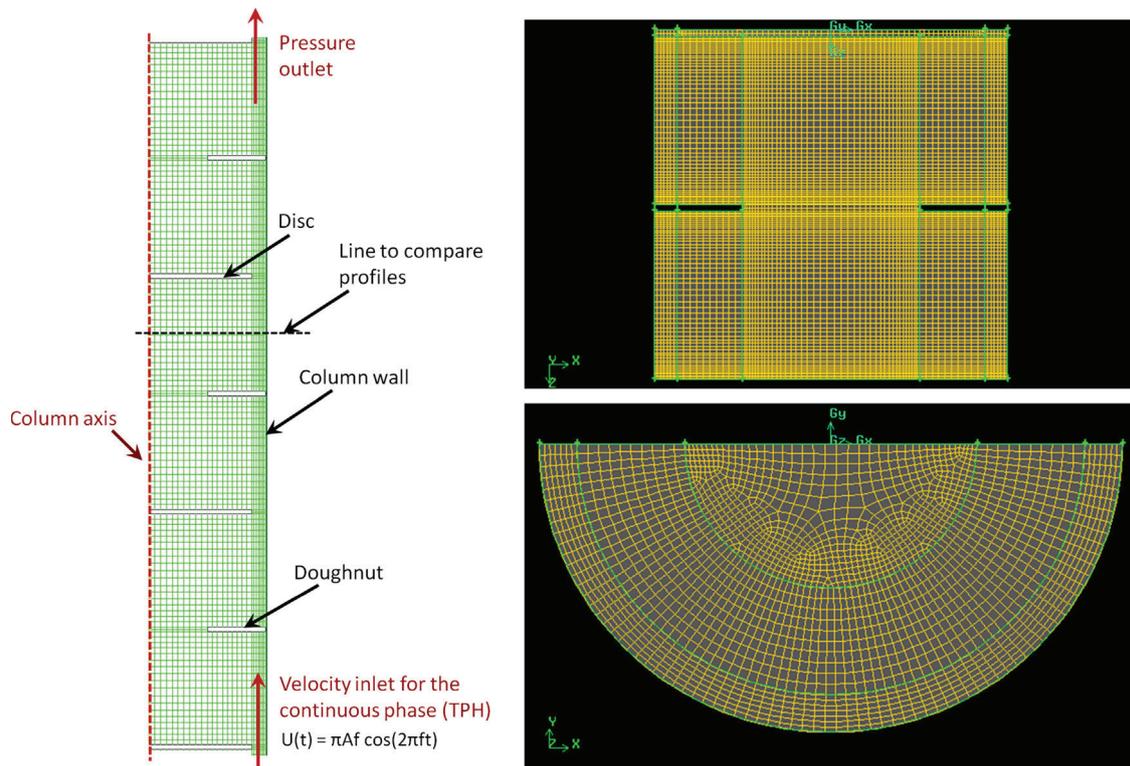


Fig. 3. Axisymmetric computational domains and corresponding boundary conditions (left) and top view of the 3D mesh (right bottom) and front view of one compartment of the 3D mesh (right top).

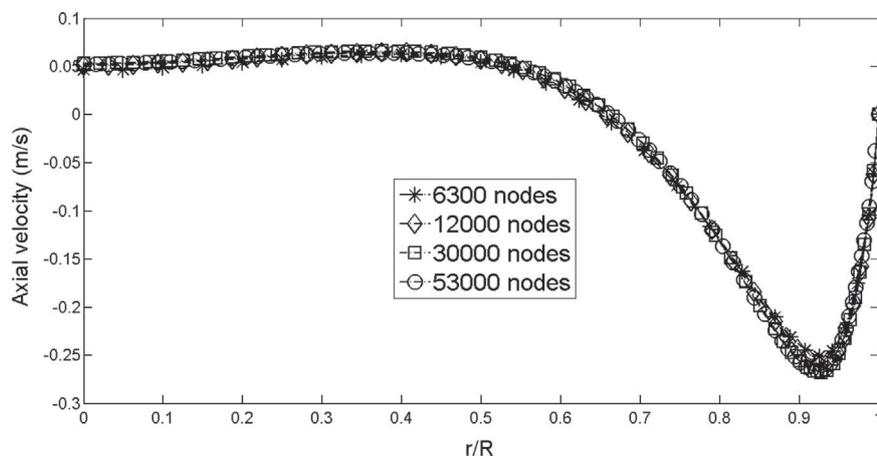


Fig. 4. Mesh sensitivity study on axial velocity ( $A=20$  mm,  $f=1$  Hz,  $t_0=T/5$ ).

- The transportiveness expresses the ability of a scheme to account for the flow direction when calculating  $\phi$  at the control volume's faces, using the values it takes at the centre of the neighbouring cells.
- To satisfy the condition of boundedness the coefficients in the discretized equations should have the same sign. If this condition is not fulfilled, convergence troubles may arise. It is possible that the solution does converge despite the non-satisfaction of this condition, however, in such a case, the solution may oscillate around the mean value.
- Concerning the accuracy of the solution, it traduces the Taylor series truncation error. The higher the scheme's order, the lower the truncation error and hence the false diffusion (numerical diffusion).

In order to assess the effect of discretization schemes on the simulation results and to evaluate the need for a high order

discretization scheme, four numerical schemes have been compared: the first-order upwind scheme (*FOU*), the second-order upwind scheme (*SOU*), the *QUICK* scheme and the power-law scheme (*PL*).

When the *FOU* scheme is used, the face value of the transported property,  $\phi_f$ , is set equal to that of the upstream cell; whereas in the second-order accuracy (*SOU*), the cell's face value  $\phi_f$  is computed from the value of  $\phi$  and its gradient in the upstream cell. The *QUICK* scheme is based on a weighted average of second-order upwind and central interpolation of  $\phi$ . So, depending on the solution, the *QUICK* scheme may yield a central interpolation or a second-order upwind one. The *PL* scheme interpolates  $\phi_f$  using the exact solution of a one-dimensional convection–diffusion equation, while the flux is evaluated using a polynomial expression.

Table 2 gives a comparison of these different schemes regarding the aforementioned properties. We can already notice that conservativeness and transportiveness are satisfied by all the schemes.

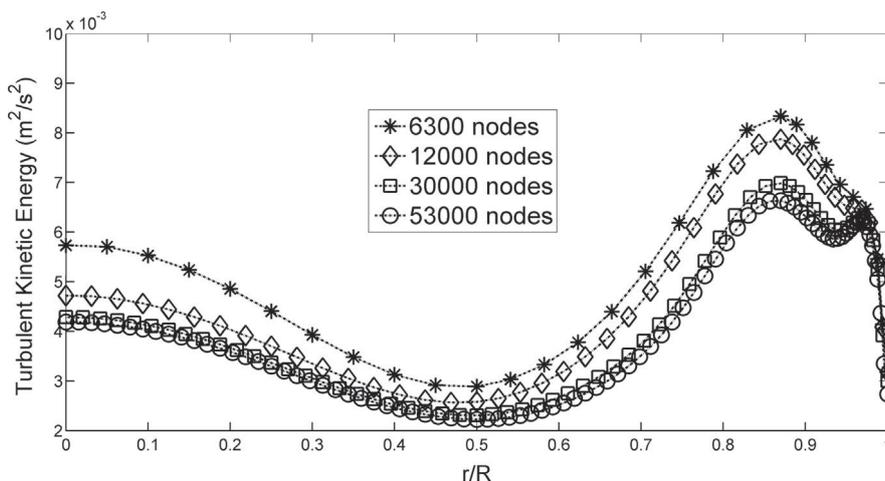


Fig. 5. Mesh sensitivity study on turbulent kinetic energy ( $A=20$  mm,  $f=1$  Hz,  $t_0 = T/5$ ).

Table 2

Properties of the investigated numerical schemes (FluentInc, 2010).

Numerical scheme	FOU	SOU	QUICK	PL
Conservativeness	Yes	Yes	Yes	Yes
Transportiveness	Yes	Yes	Yes	Yes
Boundedness	Yes	Yes	Conditionally stable	Yes
Accuracy	First order	Second order	Third order	First order

The QUICK scheme is conditionally stable, but under given flow conditions it may have unbounded solution inducing minor undershoots and overshoots (Versteeg and Malalasekera, 2007). The first-order accuracy makes the scheme prone to numerical diffusion errors. It should be noted, however, that this error could be reduced by refining the grid.

### 3. Turbulence modelling

The direct solution of the Navier–Stokes equations for industrial flows in complex geometry is probably not feasible for several years. Two alternative approaches are typically implemented to simulate these complex flows configurations: the Reynolds-Average Navier–Stokes (RANS) method and the Large Eddy Simulation (LES) method. These two methods induce additional terms in the governing equations that need to be modelled in order to achieve “closure” to the unknowns.

The LES method offers the advantage of a high accuracy since it resolves the large eddies and models only the ones that are smaller than a spatial filter, which is usually taken as the size of the mesh, resulting in the reduction of the errors due to the modelling of the different scales of turbulence eddies. However, this method is highly CPU time consuming and necessitates a significant amount of computer resources, especially when the purpose of the model is to simulate multiphase flows. Since the aim of our work is actually to develop a flow model to be solved coupled with a PBE, the LES method is out of scope.

On the other hand, RANS methods resolve the transport equations of the mean quantities of the flow with the modelling of the entire scale of turbulence eddies. Its main advantage is the reduction of CPU requirements combined with a good accuracy, thus making it suitable for practical problems modelling. The RANS approach relevance for the modelling of the single-phase flow in a pulsed column is therefore investigated in this work.

RANS equations are obtained from Reynolds averaging of the instantaneous equations of Navier–Stokes. They are given by the

following expression for a Newtonian fluid (using Einstein's summation):

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = 0 \quad (9)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \mu \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right] + \frac{\partial}{\partial x_j}(-\rho \overline{u_i u_j}) \quad (10)$$

where Eqs. (9) and (10) represent respectively the mass and momentum balance equations.

The Reynolds stresses,  $-\rho \overline{u_i u_j}$ , must be modelled in order to close Eq. (10). In this aim, the Boussinesq hypothesis (11), where the Reynolds stresses are related to the mean velocity gradients, is employed in classical turbulence models

$$-\rho \overline{u_i u_j} = \mu_t \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} \rho k \delta_{ij} \quad (11)$$

with  $\mu_t$  being the turbulent viscosity and  $k$  the turbulent kinetic energy. The calculation of  $\mu_t$  is different from one turbulence model to another. Some models resolve an equation for  $\mu_t$  while others resolve transport equations for  $k$  and  $\epsilon$  and then derive  $\mu_t$  from them.

#### 3.1. The $k$ – $\epsilon$ models

In the standard  $k$ – $\epsilon$  model, the turbulent kinetic energy,  $k$ , and the turbulence dissipation,  $\epsilon$ , are given by the following transport equations:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + G_k - \rho \epsilon \quad (12)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \epsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho \epsilon u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\epsilon} \right) \frac{\partial \epsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\epsilon} \frac{\epsilon}{k} G_k - C_{2\epsilon} \rho \frac{\epsilon^2}{k} \quad (13)$$

with  $G_k$  representing the generation of turbulent kinetic energy due to the mean velocity gradients,  $\sigma_k$  and  $\sigma_\epsilon$  the turbulent Prandtl numbers for  $k$  and  $\epsilon$ , respectively.  $C_{1\epsilon}$ ,  $C_{2\epsilon}$  and  $C_{3\epsilon}$  are

constants. The details of these different terms can be found in [FluentInc \(2010\)](#). The turbulent viscosity is computed as follows:

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\epsilon} \quad (14)$$

where  $C_\mu$  is a constant.

The  $k-\epsilon$  turbulence model was firstly proposed by [Launder et al. \(1972\)](#). It has the advantage of robustness, reasonable accuracy and CPU time saving which made this model very popular in industrial problems solving. The hypothesis of the flow being fully turbulent is made when the equations of these models were derived. It is then expected that the model performs better under such conditions (high Reynolds flows).

There are several variations on this model, among which we have considered:

- the RNG  $k-\epsilon$  model, which accounts for the contribution of large strain rate in the turbulence production;
- the low- $Re$   $k-\epsilon$  model, proposed by [Launder and Sharma \(1974\)](#) and recommended by [Bujalski et al. \(2006\)](#), which uses damping functions and some additional terms so that the governing equations become valid in the low Reynolds number regions, close to the wall ([Rathore and Das, 2013](#)).

### 3.2. The RSM turbulence model

The Reynolds Stress Turbulence model (or RSM) was also assessed in this study. Deemed to be more accurate than the  $k-\epsilon$  models, based on an eddy-viscosity, and since it does not consider isotropic turbulence, we found it relevant to compare its performances to those of classical models and to experimental data. The RSM model closes the RANS equations (10) by solving the transport equation for the Reynolds stresses,  $-\rho \overline{u_i' u_j'}$ .

A detailed description of all these models can be found in [FluentInc \(2010\)](#). The default closure assumptions were kept in this work to model the various terms in the transport equations for the Reynolds stresses.

## 4. Results and discussion

The objective of this paper is not to discuss the qualitative behaviour of the flow inside the pulsed column. This was already

described in the literature ([Aoun-Nabli et al., 1997](#); [Daniel, 2003](#); [Bujalski et al., 2006](#)). Hence, in order to avoid confusion, we will consider only the results obtained for one combination of pulsation frequency and amplitude ( $f=1$  Hz,  $A=20$  mm) in the following. Nevertheless, the findings were similar to the other investigated operating conditions.

### 4.1. Discussion on the numerical scheme

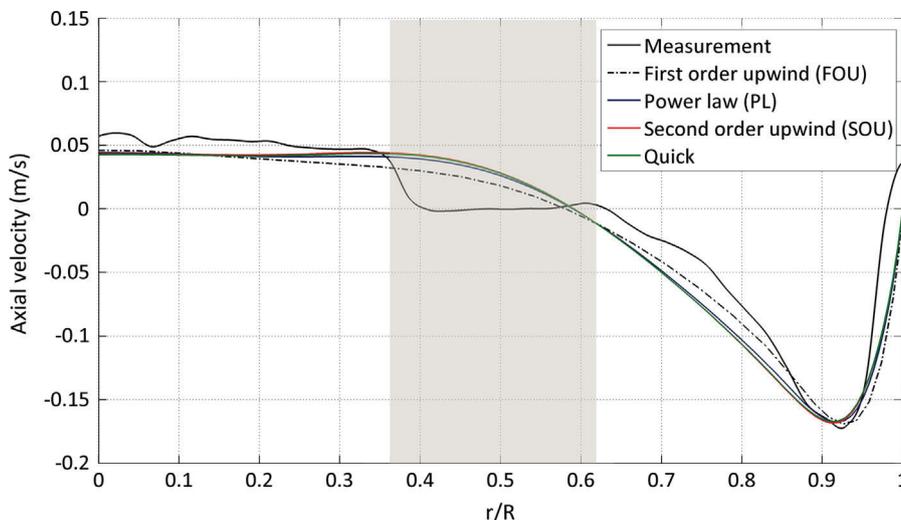
The influence of numerical schemes on the simulated solution was first considered in this paper. Indeed, to our knowledge, no published study included an assessment of the effect of discretization schemes on the prediction of the single-phase flow in a pulsed column by CFD. However, the choice of the discretization scheme may be of prime importance insofar as accurate dispersion and turbulence properties are sought ([Patankar, 1980](#)). This was demonstrated by [Aubin et al. \(2004\)](#) in their numerical investigation on flow in a stirred-tank reactor.

The four numerical schemes described in [Section 2.2.2](#) have been combined with all the turbulence models described in [Section 3](#). In fact, an accurate modelling of the single flow requires a combination of a turbulence model and a numerical scheme. The number of simulations performed in both 2D and 3D frames being important, only some relevant profiles are given which illustrate the general trends observed.

No significant effect of the numerical scheme was exhibited by the axial velocity results (see [Fig. 6](#)), in accordance with the conclusions of previous studies ([Aubin et al., 2004](#)).

The *QUICK* scheme was the most demanding in terms of CPU time consumption. However, it held exactly the same results as the other second order scheme (*SOU*), as illustrated in [Fig. 7](#). As we have explained in [Section 2.2.2](#), *QUICK* is based on a weighted balance between a *SOU* scheme and a central interpolation. Then, it is clear that the model was equivalent to a *SOU* scheme in our case. This model is conditionally stable but as it is more difficult to achieve convergence, we did not adopt it in the following.

The turbulent quantities evaluated with the *FOU*, *PL* and *SOU* schemes are compared in [Fig. 8](#). Generally, the *PL* scheme was observed to exhibit the best agreement with the PIV results. This discretization scheme is based on the exact solution of a one-dimensional convection–diffusion equation which may explain its good performance. It was found stable and reasonably acceptable regarding time CPU consumption. The results held by the *SOU*



**Fig. 6.** Comparison of the numerical schemes in terms of axial velocity at  $t_0 = 4T/10$  (standard  $k-\epsilon$  model).

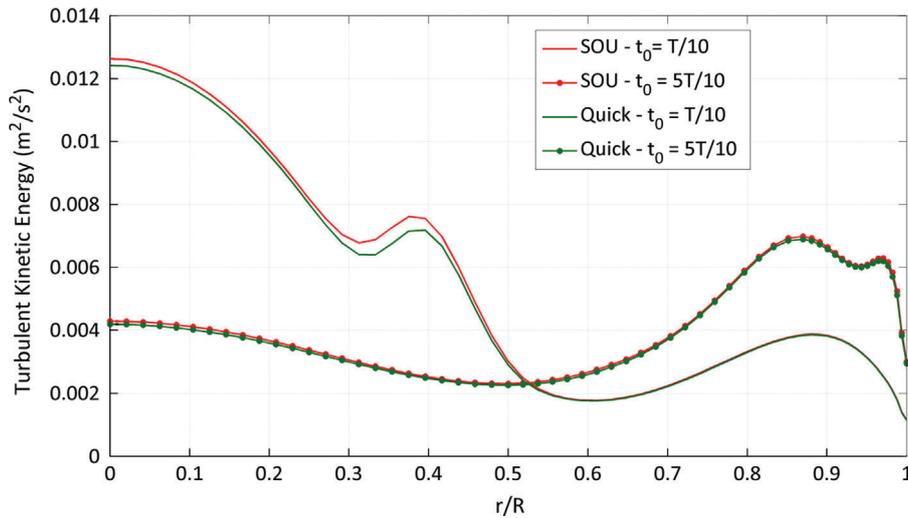


Fig. 7. Comparison of SOU and QUICK schemes in terms of turbulent kinetic energy (standard  $k-\epsilon$  model).

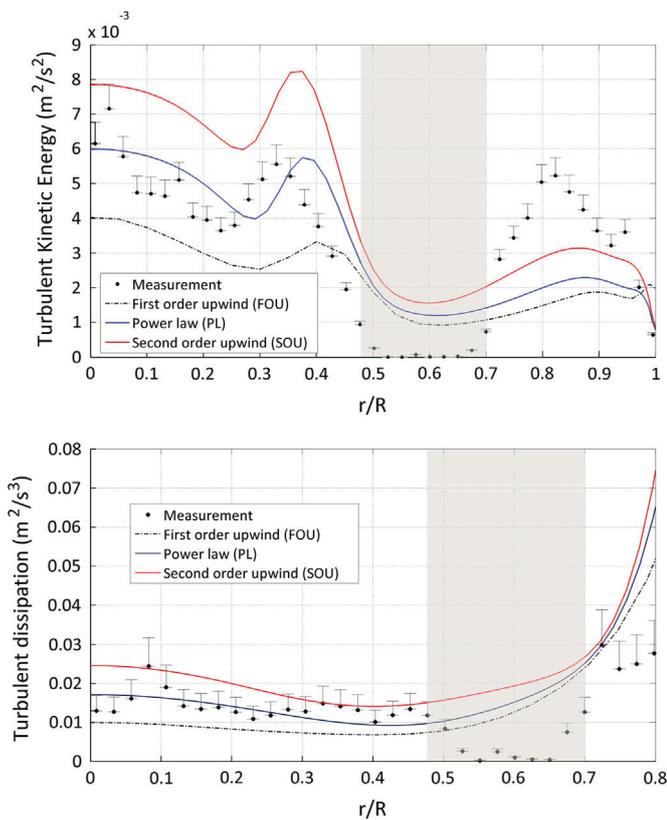


Fig. 8. Comparison of the numerical schemes in terms of  $k$  (top) and  $\epsilon$  (bottom) for the RNG model at  $t_0 = T/10$ .

scheme, although it is a second order scheme were not as good, but did not deviate strongly from the measurements. For some instants of the cycle, PIV measurements were found to lie between those of the PL and the SOU schemes. Again, the SOU scheme is more costly.

Among the investigated schemes, the FOU was found to hold the poorest results. It underestimates the turbulent kinetic energy, which comes certainly from its low accuracy (as it is only first order accurate), it is also rather diffusive. The advantage of this scheme is its stability and rapidity. The mesh convergence was reached for an intermediate grid both regarding mean quantities and turbulent ones. We have also seen previously that its performance is equivalent to the other

schemes in terms of average quantities. Hence, depending on what is wanted from the model, this scheme may be useful as well.

The results obtained for the turbulent dissipation rate are equivalent to those obtained for turbulent kinetic energy (see Fig. 8). It was noticed, however, that the discrepancies between the different schemes for  $\epsilon$  were less pronounced. This is due to the averaging action performed when the turbulence dissipation is calculated from turbulence fluctuations.

#### 4.2. Validation of the axisymmetric assumption

It is well known that the nature of turbulence is three dimensions. Simulating turbulent flow in a two-dimensional frame is a simplification made, as it could be guessed, for practical reasons linked to the prohibitive character of 3D simulations in terms of CPU requirements, especially for practical industrial cases. The 2D simulations relevance can be assessed by comparing the simulation results obtained considering a 3D and a 2D domain, and of course by comparing simulation results to PIV measurements.

The 3D and 2D axisymmetric ( $u$ ) and  $k$  simulated profiles are compared in Fig. 9 for two different instants of the pulsation period. The simulations were carried out using the standard  $k-\epsilon$  turbulence model. Results obtained with the other turbulence models exhibited the same tendencies and thus conclusions. The profiles are plotted on a line located at mid-distance between a doughnut and a disc (see Fig. 3).

It can be observed that, for each time-step, a good matching is observed between the 2D and 3D results regarding either the mean velocity or the turbulent quantity  $k$ . It should be noted that even though for some instants of the cycle there was a slight discrepancy between the 3D and 2D profiles, the latter is always negligible, especially with respect to the measurement accuracy. The qualitative agreement in terms of radial evolution and peaks location is excellent.

If we furthermore consider the time needed to perform the 3D simulations (it took 5 h to calculate one full period on 4 CPUs), compared to the 2D axisymmetric ones (which took 5 min to perform the same simulation time while ran on 1 single CPU), the 2D simplification of the pulsed-flow modelling is fully justified.

#### 4.3. Discussion on the performances of the turbulence models

The turbulence models were compared to each other and confronted to the experimental measurements. The 2D axisymmetric simulations were retained for the aforementioned reasons.

Fig. 10 compares the axial velocity calculated by the different turbulence models at a given instant of the flow cycle. We notice on this figure (as well as on the following ones) that there is a domain in the experimental data where no measurement is available and where all values were set to zero. This zone is located between the two vertical lines on the figures. It is due to the opaque rods used to maintain the internals. It should be noted that this zone could be easily interpolated since there is no

perturbation of the flow in this area. We have however chosen to keep the experimental profiles as they were recorded.

As expected, the axial velocity is accurately estimated by the four turbulence models. The models exhibit some discrepancies but they are again negligible compared to the experimental accuracy, and the agreement with the velocity profiles measured by PIV was good in each case.

The differences become visible when we come to the turbulent quantities, as illustrated by Fig. 11 where the radial profiles of turbulent properties are compared to PIV measurements. It is worth mentioning here that it is of particular importance to get a good estimation of the turbulence dissipation  $\epsilon$  since this quantity is used in most of the breakage and coalescence kernels' correlations required in the source term of the PBE.

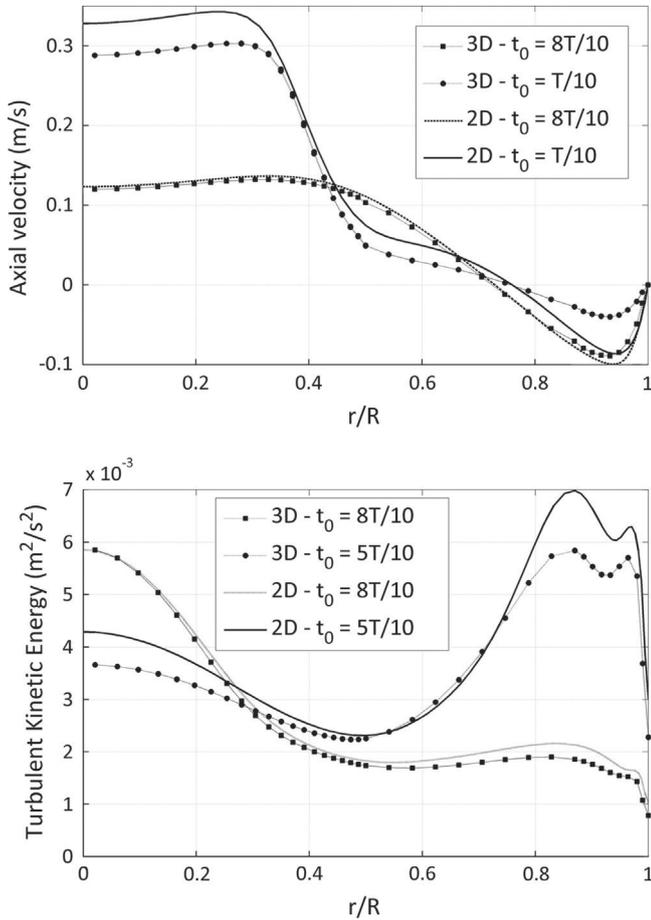


Fig. 9. Comparison of 2D axisymmetric and 3D simulations in terms of axial velocity (top) and turbulent kinetic energy (bottom).

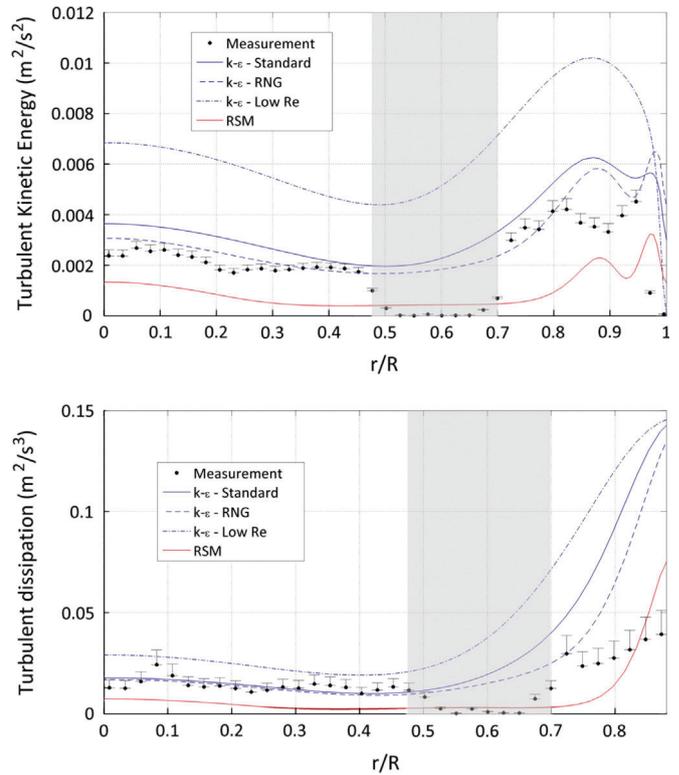


Fig. 11. Comparison of turbulence models at  $t_0 = 5T/10$  for  $k$  (top) and  $\epsilon$  (bottom).

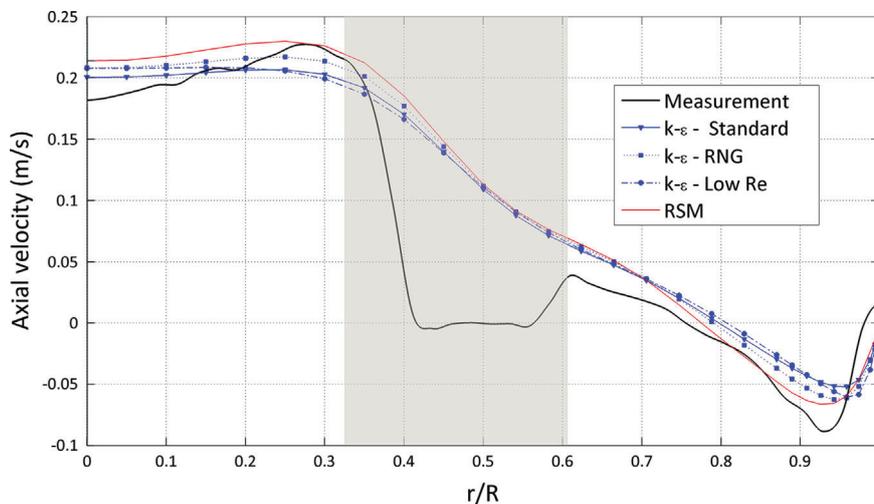


Fig. 10. Comparison of turbulence models in terms axial velocity ( $t_0 = 9T/10$ ).

The turbulence models hold indeed completely different results. The standard and RNG  $k-\epsilon$  turbulence models exhibit the best agreement with the PIV measurements, with a slightly better results for the latter, which is more appropriate to recirculation flows and curvatures in streamlines. The flow in the pulsed column undergoes indeed curvatures created by the internals and the oscillation. It should be noted that under the current operating conditions, the flow is moderately strained thus explaining the close results held by the two models. However, as regard to industrial applications the RNG  $k-\epsilon$  turbulence models should be preferred.

Conversely, the low- $Re$   $k-\epsilon$  model appears to completely overestimate the turbulence profiles. Hrenya et al. (1995) have discussed the validity of different low- $Re$   $k-\epsilon$  models in the case of the fully developed pipe flow. They have assessed the model performances in terms of mean and fluctuating quantities based on experimental measurements and DNS simulations. The authors have found that most of these models, including the one used in our study, actually overestimated the turbulent kinetic energy and the eddy diffusivity. According to the authors, this is due to the low relative value of  $\sigma_k$  compared to  $\sigma_\epsilon$ . The models based on higher value of  $\sigma_k$  were found to hold better results.

The low- $Re$  model, however, performed better near the wall as it resolved the turbulence equations up to the wall while the other models are using wall-functions. Moreover, when the pulsation intensity is high, and hence when the flow presumably deviates strongly from a fully developed one, the low- $Re$  model was also observed to perform better than the classical  $k-\epsilon$  (Charton et al., 2012).

The RSM held the poorest results. Both the turbulent kinetic energy and the dissipation were significantly underestimated. Although not reported here, the same behaviour was observed in 3D. This model may be highly diffusive which may explain its poor performances. Its CPU requirement was also significantly higher than that of  $k-\epsilon$  based models, as it resolves more equation. This cost is then not worth.

## 5. Conclusion

In this paper, a CFD based model was developed to model the single-phase flow in a pulsed column. According to the conclusions of Drumm and Bart (2006) for Rotating Disk Contactors, the conclusions of it can be reasonably extended to the two-phase flow configuration, as far as the holdup remains moderated (below 10%). The model was validated on PIV measurements for both mean flow and turbulence:

- A PIV technique was synchronized on the pulsed flow which allowed the achievement of accurate measurements at the different instants of the flow cycle.
- The 2D axisymmetric representation of the flow, which is usually assumed in the literature, was then assessed by comparison with 3D and experimental results.
- The numerical schemes available in usual CFD codes have been examined. The Power Law discretization scheme was observed to give the most accurate results for turbulent properties. The Second Order Upwind scheme may be a good option since it reduces false diffusion.
- At last, the different turbulence models have been studied including for the first time, a validation on both mean flow and turbulence quantities for different instants of the cycle. It was found that the standard and RNG  $k-\epsilon$  turbulence models held good results compared to PIV with a slightly better results for the RNG. The low- $Re$  model, which was proposed in previous study in the literature, was found to overestimate the turbulent quantities for the investigated operating conditions.

It could be concluded that depending on what is needed from the CFD model, the flexibility on the choice of the turbulence model and the numerical scheme may change. Hence, if only mean quantities are needed, the standard  $k-\epsilon$  turbulence model (alternatively RNG  $k-\epsilon$ ) combined with a First Order Upwind scheme may be sufficient. When the turbulence quantities are needed, the RNG  $k-\epsilon$  turbulence model should be preferred together with the Power Law scheme. The latter combination was observed to achieve a good representation of the turbulence dissipation in the column, and is therefore recommended for determination of the quantities required to design an industrial column, such as axial dispersion, drops residence time distribution and more generally the emulsion properties in a couple CFD-PBE framework, which is the object of our ongoing works.

## References

- Adrian, R.-J., 1997. Dynamic ranges of velocity and spatial resolution of particle image velocimetry. *Meas. Sci. Technol.* 8, 1393–1398.
- Amokrane, A., Charton, S., Lamadie, F., Becker, J., Klein, J.-P., Puel, F., 2012. Study of the dispersed phase behavior in a pulsed column for oxalate precipitation in emulsion. In: The Ninth International Conference on CFD in the Mineral and Process Industries, Melbourne, Australia, December.
- Amokrane, A., Charton, S., Sheibat-Othman, N., Becker, J., Klein, J.-P., Puel, F., 2014. Development of a CFD-PBE coupled model for the simulation of the drops behavior in a pulsed column. *Can. J. Chem. Eng.* 92, 220–233.
- Angelov, G., Gourdon, C., Line, A., 1998. Simulation of flow hydrodynamics in a pulsed solvent extraction column under turbulent regimes. *Chem. Eng. J.* 71, 1–9.
- Angelov, G., Journe, E., Line, A., Gourdon, C., 1990. Simulation of the flow patterns in a disc and doughnut column. *Chem. Eng. J.* 45, 87–97.
- Aoun-Nabli, M.-S., Guiraud, P., Gourdon, C., 1997. Numerical experimentations: a tool to calculate the axial dispersion coefficient in discs and doughnuts pulsed solvent extraction columns. *Chem. Eng. Sci.* 52, 2353–2368.
- Aubin, J., Fletcher, D.-F., Xuereb, C., 2004. Modeling turbulent flow in stirred tanks with CFD: the influence of the modeling approach, turbulence model and numerical scheme. *Exp. Thermal Fluid Sci.* 28, 431–445.
- Baldi, S., Ducci, A., Yianneskis, M., 2004. Determination of dissipation rate in stirred vessels through direct measurement of fluctuating velocity gradients. *Chem. Eng. Technol.* 27, 275–281.
- Bujalski, J.-M., Yang, W., Nikolov, J., Solnordal, C.-B., Schwartz, M.-P., 2006. Measurement and CFD simulation of single-phase flow in solvent extraction column. *Chem. Eng. Sci.* 61, 2930–2938.
- Buratti, M.-F., 1988. Etude des phénomènes de mélange axial dans les colonnes pulsées équipées de garnissages disques-couronnes (Ph.D. thesis). INP Toulouse.
- Charton, S., Duhamet, J., Borda, G., Ode, D., 2012. Axial dispersion in pulsed disk and doughnut columns: a unified law. *Chem. Eng. Sci.* 75, 468–477.
- Daniel, C., 2003. Dynamique des écoulements liquide-liquide oscillants en géométrie chicanée (Ph.D. thesis). INP Toulouse.
- Drumm, C., Bart, H.-J., 2006. Hydrodynamics in a RDC extractor: single-phase and two-phase PIV measurements and CFD simulations. *Chem. Eng. Technol.* 29, 1297–1302.
- Drumm, C., Hlawitschka, M.-W., Bart, H.-J., 2011. CFD simulations and particle image velocimetry measurements in an industrial scale rotating disc contactor. *Am. Inst. Chem. Eng.* 57, 10–26.
- FluentInc, 2010. *Fluent User's Guide*.
- Hrenya, C.-M., Bolio, E.-J., Chakrabarti, D., Sinclair, J.-L., 1995. Comparison of low Reynolds number  $k-\epsilon$  turbulence models in predicting fully developed pipe flow. *Chem. Eng. Sci.* 50, 1923–1941.
- Laulan, A., 1980. Hydrodynamique et rupture de gouttes dans une colonne pulsée à disques et couronnes (Ph.D. thesis). INP Toulouse.
- Lauder, B.-E., Sharma, B.-I., 1974. Application of the energy dissipation model of turbulence to the circulation of flow near a spinning disc. *Lett. Heat Mass Transf.* 1, 131–138.
- Lauder, B.-E., Spalding, D.-B., Brian, D., 1972. *Lectures in Mathematical Models of Turbulence*. Academic Press, London, New York.
- Legarrec, S., 1993. Modélisation et simulation numérique de l'écoulement et de la dispersion d'un contaminant dans une colonne pulsée (Ph.D. thesis). Conservatoire des Arts et Métiers, Paris.
- Leroy, P., 1991. Etude et quantification des pertes de charge dans les colonnes pulsées à garnissage disques couronnes (Ph.D. thesis). INP Lorraine, Nancy.
- Oh, W.-Z., 1983. Analyse du fonctionnement hydrodynamique d'une colonne pulsée à disques et couronnes—étude du champ des vitesses (Ph.D. thesis). INP Toulouse.
- Paisant, J.-F., Amokrane, A., Lamadie, F., Charton, S., Randriamanantena, T., Duhamet, J., 2013. Use of synchronised PIV to measure a pulsed flow velocity field in a discs and doughnuts column. In: The 13th International Symposium on Particle Image Velocimetry, Delft, The Netherlands, June.

- Patankar, S., 1980. Numerical Heat Transfer and Fluid Flow. MacGraw Hill, New York.
- Rathore, S.-K., Das, M.-K., 2013. Comparison of two low-Reynolds number turbulence models for fluid flow study of wall bounded jets. *Int. J. Heat Mass Transf.* 61, 365–380.
- Saarenrinne, P., Piirto, M., 2000. Turbulent kinetic energy dissipation rate estimation from PIV velocity vector field. *Exp. Fluids* 29, 300–307.
- Saarenrinne, P., Piirto, M., Elloranta, H., 2001. Experiences of turbulence measurement with PIV. *Meas. Sci. Technol.* 12, 1904–1910.
- Versteeg, H.-K., Malalasekera, W., 2007. An Introduction to Computational Fluid Dynamics: The Finite Volume Method, 2nd ed. Prentice Hall, Pearson Education, Essex.