Étude expérimentale et numérique du mélange et de la dispersion axiale dans une colonne à effet Taylor-Couette

Marouan Nemri

▶ **To cite this version:**

Marouan Nemri. Étude expérimentale et numérique du mélange et de la dispersion axiale dans une colonne à effet Taylor-Couette. Physique [physics]. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2013. Français. NNT : 2013INPT0055 . tel-04288592

HAL Id: tel-04288592

https://theses.hal.science/tel-04288592

Submitted on 16 Nov 2023

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.

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité

Dynamique des fluides

Présentée et soutenue par

Marouan NEMRI

Le 26 Juin 2013

Étude expérimentale et numérique du mélange et de la dispersion axiale dans une colonne à effet Taylor-Couette

---

JURY

Stavroula BALABANI	*University College London*	*Membre*
Stéphane BOURG	*CEA Marcoule*	*Membre*
Sophie CHARTON	*CEA Marcoule*	*Directeur de thèse*
Eric CLIMENT	*IMFT – INP Toulouse*	*Directeur de thèse*
Laurent FALK	*Université de Lorraine, Nancy*	*Rapporteur*
Céline GABILLET	*IRENAV, Brest*	*Membre*
Benoit HAUT	*Université libre de Bruxelles*	*Rapporteur*
Jack LEGRAND	*Université de Nantes*	*Président*

École doctorale : Mécanique, Energétique, Génie civil et Procédés (MEGeP)
Unité de recherche : Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT)

Directeur(s) de Thèse :

Eric CLIMENT (IMFT – INP Toulouse)
Sophie CHARTON (CEA Marcoule)

— Dedicated to my parents

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Laurent FALK et Benoit HAUT pour le temps qu'ils ont consacré pour l'examen attentif de mon manuscrit. Merci également à Stavroula BALABANI, Stéphane BOURG et Céline GABILLET d'avoir accepté de faire partie de mon jury et à Jack LEGRAND de l'avoir présidé.

J'adresse mes sincères remerciements à mon directeur de thèse, Eric CLIMENT de l'IMFT, pour son encadrement d'une rare précision et son implication constante dans mes travaux de thèse. Je souhaite souligner son grand apport scientifique ainsi que ses conseils avisés qui ont été prépondérants pour la bonne réussite de cette thèse. J'ai beaucoup appris à ses côtés et je lui adresse ma gratitude pour tout cela.

Je remercie au même titre ma co-directrice de thèse, Sophie CHARTON du CEA Marcoule, pour son encadrement exemplaire et son soutien tant scientifique qu'humain pendant ces trois dernières années. Je la remercie également pour avoir toujours été à l'écoute et m'avoir soutenue généreusement. Je lui suis aussi reconnaissant pour le temps conséquent qu'elle m'a accordé, sa franchise, sa sympathie et sa patience face à mes lacunes organisationnelles. Grâce à toi, j'ai pu réussir ma thèse avec la plus grande satisfaction.

Ce travail s'est déroulé principalement dans le Laboratoire de Génie Chimique et d'Instrumentation (LGCI) du CEA de Marcoule. Je remercie tous les membres du laboratoire pour leur accueil, leur amitié et les discussions intéressantes que nous avons partagées. Je remercie tout particulièrement Denis ODE pour m'avoir accueilli chaleureusement au sein de son laboratoire. J'adresse également mes sincères remerciements à Fabrice LAMADIE, qui m'a accompagné pendant les campagnes de mesures ainsi que Jean-Yves LANÖE pour m'avoir fait profiter de son immense expérience. Un grand merci aussi pour tous les thésards du LGCI, les anciens et les plus récents, pour les bons moments que nous avons pu partager. Je tiens enfin à manifester mes chaleureux remerciements à Elisabeth MEHAT pour sa gentillesse et sa grande disponibilité.

Du côté IMFT, je tiens à remercier Sébastien CAZIN et Moïse MARCHAL qui m'ont aidé à mettre en place les bancs d'essais expérimentaux et à analyser les résultats. Je leurs adresse ma gratitude pour partager avec moi leur savoir faire. Je remercie également Annaïg PEDRONO pour sa disponibilité et sa réactivité lors de mes demandes d'aide avec « JADIM ».

Plus personnellement, j'adresse ma profonde reconnaissance à mes parents pour leur soutien inconditionnel et leur confiance. Un grand merci également à mes sœurs ; Noura, Houda, Hajer et Sameh et mon petit frère Ah-

med. Enfin, merci de tout mon cœur à Thouraya, ma fiancée, pour m'avoir aidé et supporté jusqu'au bout du manuscrit et de la soutenance ...

ABSTRACT

Taylor-Couette flows between two concentric cylinders have great potential applications in chemical engineering. They are particularly convenient for two-phase small scale devices enabling solvent extraction operations. An experimental device was designed with this idea in mind. It consists of two concentric cylinders with the inner one rotating and the outer one fixed. Taylor-Couette flows take place in the annular gap between them, and are known to evolve towards turbulence through a sequence of successive instabilities. Macroscopic quantities, such as axial dispersion and mixing index, are extremely sensitive to these flow structures, which may lead to flawed modelling of the coupling between hydrodynamics and mass transfer. This particular point has been studied both experimentally and numerically.

The flow and mixing have been characterized by means of flow visualization and simultaneous PIV (Particle Imaging Velocimetry) and PLIF (Planar Laser Induced Fluorescence) measurements. PLIF visualizations showed clear evidences of different transport mechanisms including « intravortex mixing » and « inter-vortex mixing ». Under WVF and MWVF regimes, intra-vortex mixing is controlled by chaotic advection, due to the 3D nature of the flow, while inter-vortex transport occurs due to the presence of waves between neighbouring vortices. The combination of these two mechanisms results in enhanced axial dispersion. We showed that hysteresis may occur between consecutive regimes depending on flow history and this may have a significant effect on mixing for a given Reynolds number. The axial dispersion coefficient D_x evolution along the successive flow states was investigated thanks to dye Residence Time Distribution measurements (RTD) and particle tracking (DNS). Both experimental and numerical results have confirmed the significant effect of the flow structure and history on axial dispersion.

Our study confirmed that the commonly used 1-parameter chemical engineering models (e.g. the « well-mixed stirred tanks in serie » model) are not valid for Taylor-Couette reactors modelling : two parameters are at least required for an efficient description of mixing in Taylor-Couette flows.

Keywords :

Taylor-Couette flow, intravortex and intervortex mixing, PIV-PLIF, Direct numerical simulation, Axial dispersion

Table des matières

Nomenclature xiii

1 Introduction - Contexte industriel 1
1 Le traitement du combustible nucléaire . . . 3
1.1 Le procédé PUREX . . . 4
1.2 Les appareils d'extraction liquide-liquide . . . 5
1.3 La modélisation du procédé PUREX . . . 8
2 La séparation poussée . . . 9
2.1 Intérêt de la miniaturisation des appareils d'extraction . . 9
2.2 Intérêt de la colonne Couette . . . 10
3 Modélisation du mélange axial . . . 12
4 Références . . . 13

2 Dispositif expérimental et méthodologies 15
1 Dispositif expérimental . . . 17
1.1 Caractéristiques géométriques . . . 17
1.2 Équipements spécifiques . . . 18
1.2.1 Système de mise en rotation . . . 18
1.2.2 Modules complémentaires pour les méthodes optiques 19
1.3 Choix des fluides . . . 20
1.3.1 Choix de la phase continue . . . 20
1.3.2 Orientations pour le choix de la phase dispersée . . 21
2 Visualisation de l'écoulement : élément d'analyse spectrale . . 22
2.1 Principe . . . 22
2.2 Traitement des images . . . 23
3 Techniques de mesure par imagerie laser . . . 26
3.1 Vélocimétrie par Images de Particules (PIV) . . . 26
3.1.1 Principe général . . . 26

3.1.2 Description d'une chaine PIV 27
3.2 Fluorescence Induite par Plan Laser (PLIF) 31
3.2.1 Principe physique 31
3.2.2 Description d'une chaine PLIF 32
3.2.3 Corrections du signal de fluorescence 36
3.3 Problèmatique des régimes « wavy » : couplage PIV - PLIF 38
4 Synthèse 39
5 Références 40

3 Caractérisation de l'écoulement de Taylor Couette monophasique 43
1 L'écoulement de Taylor-Couette : revue de la littérature 45
1.1 Instabilités successives de l'écoulement de Taylor-Couette 46
1.2 Cas particulier des régimes ondulants (WVF et MWVF) . 49
2 Caractérisation de l'écoulement dans les configurations étudiées 50
2.1 Le régime de Taylor (TVF) 51
2.2 Le régime ondulatoire (WVF) 52
2.3 Le régime ondulatoire modulé (MWVF) 53
2.4 Le régime de Taylor turbulent (TTVF) 54
2.5 Récapitulatif des différents régimes 56
3 Simulation des différents régimes d'écoulement 59
3.1 Présentation du modèle 59
3.1.1 Le code JADIM 59
3.1.2 Domaine de calcul et maillage 59
3.1.3 Conditions aux limites 60
3.1.4 Définition des grandeurs statistiques 62
3.2 Validation du maillage 62
3.2.1 Couple hydrodynamique 62
3.2.2 Comparaison avec la PIV 64
4 Caractérisation de l'écoulement de Taylor-Couette : PIV & DNS 67
4.1 Visualisation de la structure de l'écoulement 67
4.2 Caractérisation du champ de vitesse 70
4.2.1 Le régime TVF 70
4.2.2 Le régime WVF 74
4.2.3 Le régime MWVF 79
4.2.4 Le régime TTVF 79
5 Synthèse 80
6 Références 81

4 Mixing mechanisms in Taylor-Couette flow : local approach 83

1 Experimental study : « Experimental investigation of mixing in Taylor-Couette flow patterns » . . . 85
1.1 Introduction . . . 85
1.2 Methodology . . . 87
1.2.1 Description of the apparatus . . . 87
1.2.2 Measurement techniques . . . 89
1.3 Velocity and concentration fields . . . 91
1.3.1 Flow characterization . . . 91
1.3.2 Concentration field : Observation . . . 93
1.4 Properties of mixing . . . 96
1.4.1 Mixing in TVF regime . . . 98
1.4.2 Mixing in wavy regime . . . 100
2 Numerical study . . . 106
2.1 Introduction . . . 106
2.2 Particle tracking results . . . 106
2.3 Stretching and mixing . . . 111
3 Summary . . . 114
4 Références . . . 115

5 Approche globale du mélange : la dispersion axiale 119
1 Modélisation du transport de matière : État de l'art . . . 121
2 Problématique de notre étude . . . 128
3 Étude du mélange axial basée sur l'approche statistique . . . 128
3.1 Étude expérimentale : Traçage colorimétrique . . . 129
3.1.1 Principe des traçages par spectrophotométrie . . . 129
3.1.2 Mise en œuvre de la méthode . . . 130
3.1.3 Résultats préliminaires . . . 134
3.2 Étude numérique : Traçage Lagrangien . . . 136
3.2.1 Principe de la méthode par suivi Lagrangien . . . 137
3.2.2 Discussion . . . 138
4 Étude du mélange axial basée sur les propriétés intrinsèques de l'écoulement . . . 145
4.1 Description de l'approche Eulérienne . . . 145
4.2 Discussion des résultats . . . 147
4.2.1 Observations . . . 147
4.2.2 Discussion . . . 149
5 Synthèse . . . 158
6 Références . . . 159

6 Conclusions et perspectives 161

Table des figures 165

Liste des tableaux 173

Annexes 175

A Algorithme de Traitement : PIV 177
1 Inter-corrélation 178
2 Décalage itératif sub-pixel 179
3 Déformation de mailles 179

B DTS : Aspects théoriques 181
1 Distribution de temps de séjour 182
1.1 Interprétation hydrodynamique de la DTS et diagnostics de mauvais fonctionnement 183
2 Modèles de réacteurs idéaux 184
2.1 Le réacteur piston *RP* 184
2.2 Le réacteur parfaitement agité *RPA* 185
3 Modélisation des écoulements non idéaux 186
3.1 Écoulement Piston à dispersion axiale 186
3.2 Modèle des mélangeurs en cascade 187

Nomenclature

Variables

C	Concentration	$g.L^{-1}$
D_x	Coefficient de dispersion axiale	$m^2.s^{-1}$
$e = R_e - R_i$	Entrefer	m
F	Signal de fluorescence	(-)
f	Fréquence caractéristique (analyse spectrale)	s^{-1}
L	Hauteur utile	m
$m = 2\pi f/V_\phi$	Nombre d'onde azimutal	(-)
N	nombre de mélangeur dans le modèle N RPA	
n	Nombre d'onde axial	(-)
n_D	Indice de réfraction	(-)
R	Rayon	m
$Re = \frac{\Omega Re}{\nu}$	Nombre de Reynolds	(-)
$Re' = Re/Re_c$	Nombre de Reynolds réduit	(-)
$Pe = \frac{V_{ax}L}{D_x}$	nombre de Peclet	(-)
$Sc = \nu/D_x$	nombre de Schmidt	(-)
$Ta = \sqrt{\frac{e}{R}}Re$	Nombre de Taylor	(-)
t	temps	s
t_s, $\overline{t_s}$	temps de séjour, temps de séjour moyen	s
t_{acc}	Temps de mise en rotation du rotor (accélération)	s
U	Vitesse	$m.s^{-1}$
V_ϕ	Vitesse de phase	$rad.s^{-1}$
$\Gamma = L/e$	Rapport d'aspect	(-)
Ω	Vitesse du rotor	$rad.s^{-1}$
Φ	Phase de la vague	(-)
ϵ	Coefficient d'extinction molaire	$mol^{-1}.l.cm^{-1}$
$\eta = R_i/R_e$	Facteur de forme	(-)
λ	Longueur d'onde	m
$\lambda_x = 2L/n$	Longueur d'onde axiale	m
μ	Viscosité dynamique	$Pa.s^{-1}$
ν	Viscosité cinématique	$m^2.s^{-1}$
ρ	Masse volumique	$kg.m^{-3}$
T	Couple	N.m

G	Couple adimensionnel	(-)
I	Intensity of segregation	(-)
I_{rz}	Intensity of segregation in the meridional plane (r-x)	(-)
I_θ	Intensity of segregation in the azimuthal direction (θ)	(-)
I_v	Intensity of segregation between adjacent vortices	(-)
T_c	Inner cylinder rotational period	s
T_d	Travelling wave period	s
σ_c	Standard deviation of concentration	$g^2.L^{-2}$
σ_0	Mean max	$g^2.L^{-2}$
da	Instantaneous area	m^2
dA	Reference area	m^2
$s_a = da/dA$	area stretch	(-)
S_a	rate of stretching	s^{-1}
φ_θ	déviation par rapport à la symétrie géométrique	(-)
φ_v	déviation par rapport à la symétrie dynamique	(-)
$\varphi_D = \varphi_v\varphi_\theta$	produit des deux déviation	(-)

Indices

c	critique
i	relatif au cylindre interne (rotor)
e	relatif au cylindre externe (fût)
pds	relatif au poids, massique (concentration)
0	relatif au signal incident (laser) or conditions initiales
x	relatif à la direction axiale
r	relatif à la direction radiale
θ	relatif à la direction angulaire
$r - x$	relatif au plan méridien

Acronymes et Abréviations

CP	Colonne Pulsée
CBP	Chaine Blindée Procédés (de l'installation ATALANTE)
CWVF	Chaotic Wavy Vortex Flow
DNS	Direct Numerical Simulation
DPWVF	Doubly Periodic Wavy Vortex Flow
DTS	Distribution de Temps de Séjour
EC	Extracteur Centrifuge
FAC	Fonctionnement en phase Aqueuse Continue
FFT	Transformée rapide de Fourier
FOC	Fonctionnement en phase Organique Continue
HAVL	Haute Activité et Vie Longue (déchets)
LDV	Velocimétrie Laser Dopler
MD	Mélangeur - Décanteur
MOx	Combustible mixte à base d'UO_2 et de PuO_2
MWVF	Modulated Wavy Vortex Flow
PIV	Velocimétrie par Images de Particules
PLIF	Fluorescence Induite par Plan Laser
PUREX	Plutonium Uranium Refining by EXtraction
RPA	Réacteur Parfaitement Agité
REP	Réacteur à Eau Pressurisée
SEPOU	SEparation POUssée
SPWVF	Singly Periodic Wavy Vortex Flow
TBP	Phosphate de Tri-Butyle
TPH	Tétra Propylène Hydrogéné
TTVF	Turbulent Taylor Vortex Flow
TVF	Taylor Vortex Flow
WVF	Wavy Vortex Flow
WIB	Wavy Inflow Boundary
WOB	Wavy Outflow Boundary

Introduction - Contexte industriel

1

Sommaire

1 Le traitement du combustible nucléaire 3
1.1 Le procédé PUREX 4
1.2 Les appareils d'extraction liquide-liquide 5
1.3 La modélisation du procédé PUREX 8
2 La séparation poussée 9
2.1 Intérêt de la miniaturisation des appareils d'extraction 9
2.2 Intérêt de la colonne Couette 10
3 Modélisation du mélange axial 12
4 Références 13

1 Le traitement du combustible nucléaire

La stratégie électronucléaire française est basée sur le traitement du combustible usé et le recyclage des matières valorisables.

Ainsi, depuis l'extraction du minerai d'uranium jusqu'au stockage des déchets, le combustible suit un cycle qui se décompose principalement en trois étapes majeures (voir figure 1.1) : l'amont du cycle, la phase de production d'électricité proprement dite et l'aval du cycle, où se positionne notre étude.

Après leur séjour en réacteur, les barreaux de combustible sont déchargés et refroidis quelques années dans des piscines. Ils subissent alors les opérations de *traitement* proprement dites, consistant d'une part à récupérer l'uranium et le plutonium, majoritaires en volume ; et d'autre part à séparer et conditionner les éléments, minoritaires, responsables de la dangerosité des déchets, à savoir les produits de fission et les actinides mineurs.

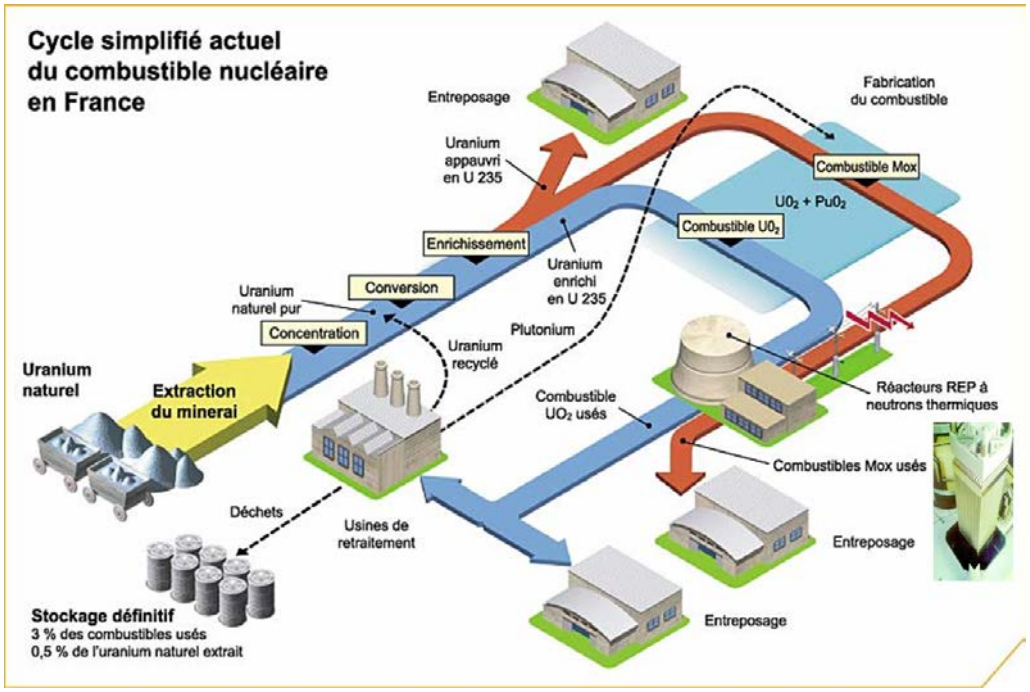


FIGURE 1.1: Le cycle du combustible.

Dans ce cadre, la recherche de procédés de séparation a constitué un champ d'investigations important depuis plus d'un demi-siècle. Nous verrons par la suite qu'elle est toujours d'actualité dans le cadre de la loi de 2006 sur les déchets.

1.1 Le procédé PUREX

Le procédé hydro-métallurgique « PUREX » (acronyme de Plutonium Uranium Refining by EXtraction), mis au point dès 1945 aux États-Unis, se base sur l'extraction liquide-liquide comme méthode de séparation. Il permet de séparer les matières nobles (l'uranium et le plutonium) des produits de fission contenus dans le combustible usé des réacteurs à eau pressurisée (REP). Il est basé sur l'utilisation d'une molécule organique ayant des propriétés remarquables de sélectivité : le phosphate de tri-butyle (TBP) en solution dans un alcane (par exemple du TPH : tétrapropylène hydrogéné). Le transfert de matière s'effectue à la surface de contact entre les deux phases liquides non miscibles : la solution aqueuse contenant le combustible dissous et la phase organique contenant l'extractant. Cette surface de contact est maximisée en créant une émulsion, constituée de fines gouttelettes de phase discontinue (ou dispersée) dans la phase continue. Après transfert, les deux phases, l'une enrichie et l'autre appauvrie en éléments à récupérer, sont séparées par décantation et/ou par centrifugation.

Les premiers ateliers industriels d'extraction PUREX ont été mis en service en 1954 à Savannah River, puis à Hanford en 1956, et Sellafield en 1964. En France, le procédé PUREX est exploité par AREVA sur le site de La Hague. Une unité industrielle existe également au Japon sur le site de Rokkasho-Mura.

Les principales étapes du procédé, schématisées sur la Figure 1.2, sont brièvement décrites ci-dessous :

- Les opérations de tête regroupant l'ensemble des traitements qui conduisent à la mise en solution du combustible depuis son arrivée à l'usine : réception, entreposage, dégainage, dissolution, clarification. Elles permettent d'aboutir à une solution nitrique claire contenant la quasi totalité de l'uranium et du plutonium.

- Les opérations de séparation et de purification de l'uranium, du plutonium et des produits de fission à l'aide des cycles d'extraction-désextraction subis par la solution de dissolution. Elles permettent d'aboutir à des solutions purifiées de nitrate d'uranyle et de nitrate de plutonium. Le nitrate d'uranyle est entreposé dans l'attente de sa transformation en dioxyde d'uranium UO_2 sur le site de Pierrelatte.

- Les opérations de fin permettant de récupérer le plutonium contenu dans la solution de nitrate de plutonium sous forme d'oxyde PuO_2. Il s'agit d'une étape de précipitation (*i.e.* conversion) oxalique, réalisée en réacteurs à effet vortex, suivie de la filtration puis de la calcination de l'oxalate de plutonium en oxyde. Le PuO_2 sera ensuite mélangé à du dioxyde d'uranium UO_2, issu de la branche enrichissement de l'amont du cycle, pour produire le combustible mixte MOx à l'usine

MELOX sur le site de Marcoule.

- Les opérations de traitements des différents effluents liquides, gazeux ou solides produits au cours des opérations principales. Notamment la vitrification et l'entreposage des produits de fission à La Hague.

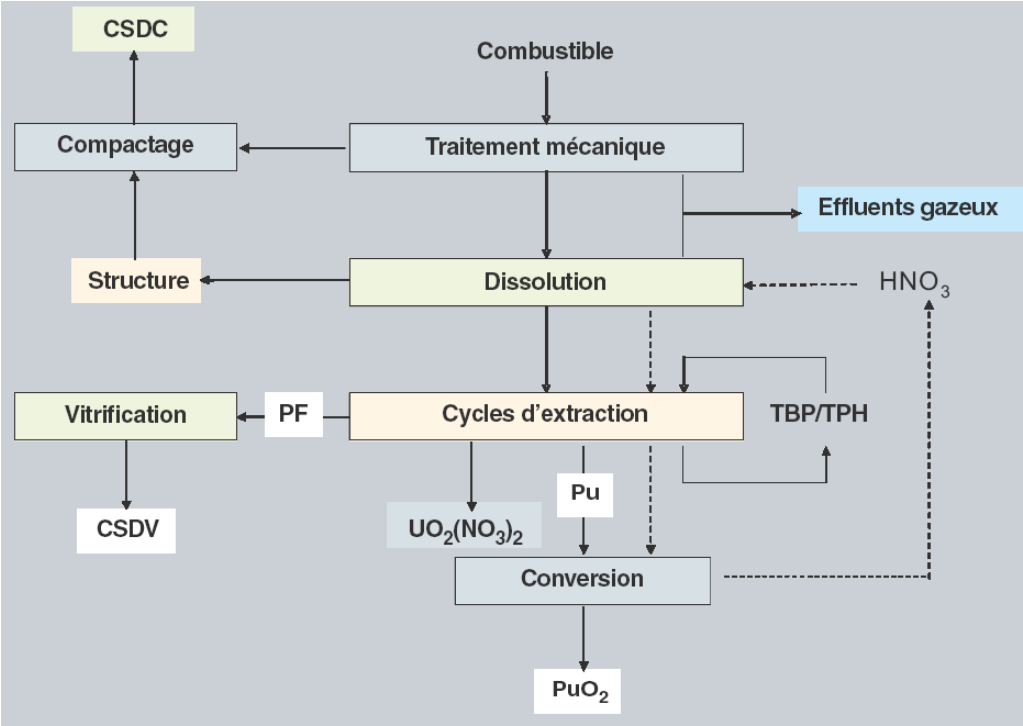


FIGURE 1.2: Principales étapes du procédé PUREX.

La mise en œuvre du procédé PUREX à la Hague a nécessité la conception et le développement d'appareils robustes, en particulier des contacteurs liquide-liquide, permettant d'atteindre, en milieu nucléaire, les capacités nominales de traitement désirées, à savoir 1600 tonnes de combustible par an.

1.2 Les appareils d'extraction liquide-liquide

Différents types de contacteurs liquide-liquide sont utilisés en milieu nucléaire : les mélangeurs-décanteurs (MD), les colonnes pulsées (CP) et les extracteurs centrifuges (EC). Ils ont en commun la création d'une émulsion de gouttelettes conduisant à la formation d'une aire interfaciale d'échange importante pour permettre le transfert de matière. Ces différents appareils sont décrits ci-après.

- **Les mélangeurs-décanteurs** sont constitués d'appareils unitaires montés en batterie (voir Figure 1.3). Chaque unité (étage) est constituée d'une chambre de mélange et d'une chambre de décantation.

L'émulsion est créée grâce à une turbine plongée dans la chambre de mélange où la phase organique et la phase aqueuse sont introduites à contre-courant. Leurs principaux avantages sont leur efficacité et leur flexibilité. Leurs inconvénients sont leur taille qui engendre un temps de séjour important des liquides pouvant conduire à la dégradation du solvant par hydrolyse et radiolyse.

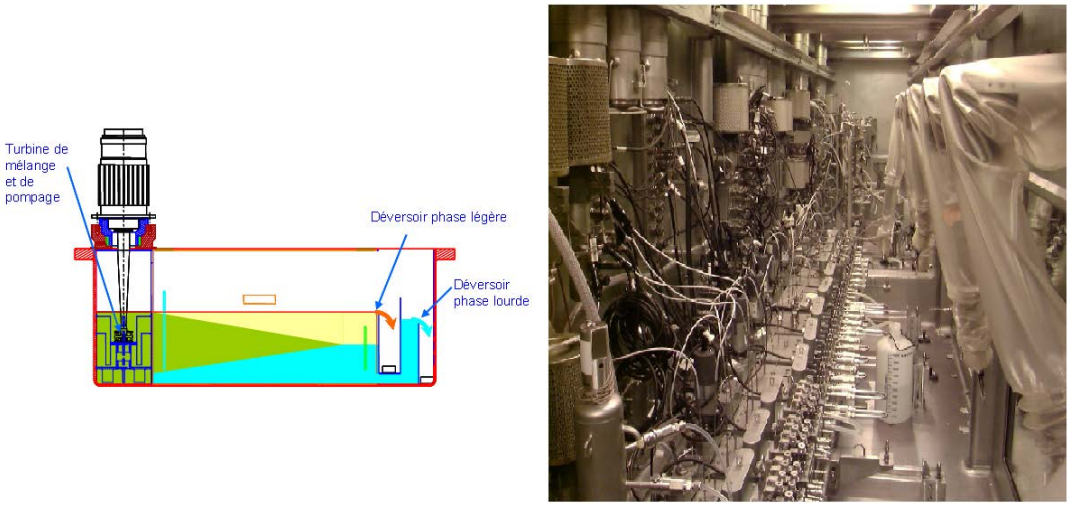


FIGURE 1.3: Schéma d'un mélangeur-décanteur (à gauche), Batteries de MD dans la Chaine Blindée Procédé de l'installation ATALANTE (à droite).

- **Les extracteurs centrifuges** sont constitués d'appareils unitaires montés en batterie (voir Figure 1.4). Chaque unité (étage) est constituée d'un bol tournant suivant un axe vertical. Les deux phases y circulent à contre-courant dans la zone annulaire qui comporte une chambre d'agitation et une chambre de décantation. Leur principal avantage réside dans leur compacité. Le temps de séjour se compte en secondes, d'où une forte limitation de la radiolyse du solvant. En revanche, ils sont très sensibles à la présence de solides qui peuvent encrasser les canaux de circulation des fluides.

- **Les colonnes pulsées** sont des appareils d'extraction continus où les étages d'extraction ne sont pas individualisés (voir Figure 1.5). L'émulsion est créée grâce à un mouvement de va-et-vient du liquide produit par une jambe de pulsation. Ce mouvement d'ensemble se superpose aux débits des phases, introduites à contre-courant, et crée l'émulsion au niveau des éléments du garnissage. Deux modes de fonctionnement sont possibles : le Fonctionnement en phase Organique Continue (mode FOC) et le Fonctionnement en phase Aqueuse Continue (mode FAC). Leur principal avantage est leur faible sen-

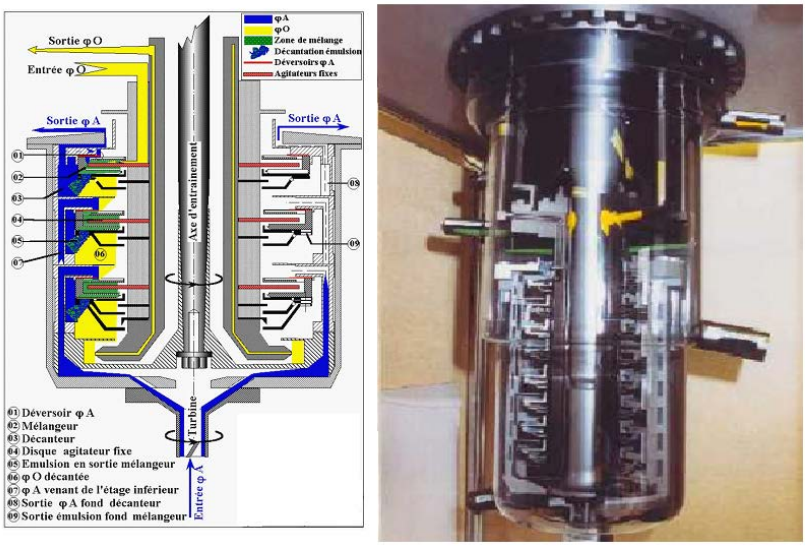


FIGURE 1.4: Schéma (à gauche) et photo (à droite) d'un extracteur centrifuge.

sibilité aux crasses et matières solides en suspension, permettant entre-autre leur utilisation en aval de la dissolution. Cependant, leur flexibilité est limitée en terme de débit et le temps de séjour du solvant est important en mode FOC.

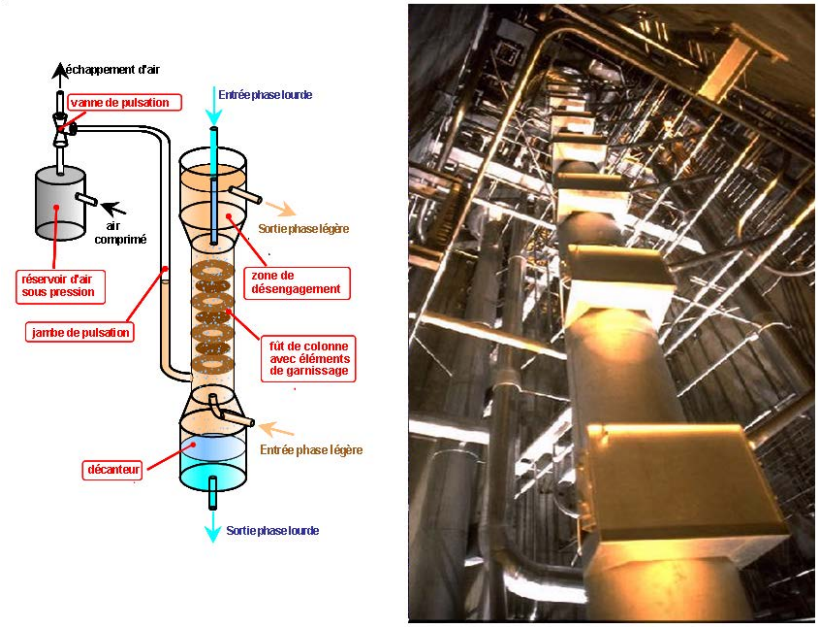


FIGURE 1.5: Schéma (à gauche) et photo (à droite) d'une colonne pulsée.

Ces appareils d'extraction, mis en œuvre dans les usines de La Hague, ont montré d'excellentes performances vis-à-vis du rendement de récupération des actinides ainsi que vis-à-vis de la sureté de fonctionnement.

1.3 La modélisation du procédé PUREX

En parallèle au développement du procédé PUREX, un effort important a été entrepris au CEA dans les années 90 dans le domaine de la modélisation. Cette démarche a abouti au développement d'un code de génie chimique, dénommé « PAREX » capable de simuler les différentes opérations unitaires du procédé. Ce code permet de modéliser les principaux phénomènes physico-chimiques mis en jeu lors des opérations d'extraction liquide-liquide (réactions chimiques, transfert de matières, hydrodynamique, thermodynamique, etc.) ainsi que leur couplage :

- **Prise en compte des équilibres de partage** : les compositions à l'équilibre thermodynamique des deux phases, pour les différentes espèces chimiques considérées, sont modélisées. Une approche semi-empirique est choisie pour déterminer les coefficients de partage à partir des coefficients d'activité des espèces dans les phases aqueuse et organique.

- **Prise en compte de la cinétique de transfert de matière** : les phénomènes de diffusion (turbulente et moléculaire) à l'interface entre les deux phases sont susceptibles de ralentir leur mise à l'équilibre (par rapport à leur temps de mise en contact). Le modèle retenu pour représenter cette résistance au transfert de matière est basé sur la théorie du double film, où chaque phase est partagée en deux régions : le cœur (*i.e* le bulk) dans lequel les concentrations sont constantes et la couche limite, où le transfert se fait suivant un gradient de concentration constant.

- **Modélisation des cinétiques des réactions d'oxydo-réduction** : étant donné le nombre d'espèces, principalement ioniques, mises en jeu dans le procédé PUREX, un grand nombre de réactions rédox doivent être considérées. La description des cinétiques de ces réactions complexes est l'un des atouts majeurs du code.

- **Modélisation des écoulements dans les contacteurs liquide-liquide** : les couplages entre les aspects physicochimiques pré-cités et les modes de transport des espèces, propres à chaque type d'appareil, sont représentés par des modèles hydrodynamiques simples. Ainsi, les contacteurs compartimentés (MD et EC) sont modélisés par des réacteurs parfaitement agités. Pour les contacteurs continus, en revanche, l'écoulement de chaque phase est représenté par un modèle

piston-dispersion.

Les résultats de simulation ont été confrontés à ceux d'expériences réalisées sur des pilotes de différentes tailles, allant jusqu'à celles des unités industrielles. Cette batterie d'essais, réalisée dans le cadre du développement du procédé, a ainsi permis l'identification des paramètres du code de génie chimique, et en particulier ceux relatifs aux couplages chimie / transport tels que la dispersion axiale, le taux de phase dispersée (*i.e.* la rétention), la surface d'échange, la résistance au transfert de matière, etc. Ce simulateur de procédé, ainsi qualifié et validé pour le procédé PUREX, constitue un outil précieux pour l'exploitation de l'usine de La Hague.

L'un des objectifs des études hydrodynamiques en cours, et dans lesquelles s'intègre notre étude, est de contribuer à réduire le degré d'empirisme du code de génie chimique, en proposant des mécanismes physiques permettant de relier les paramètres hydrodynamiques aux conditions de fonctionnement de l'appareil considéré ; ce qui permettra de réduire, pour le développement de nouveaux procédés et/ou de nouvelles usines, le besoin en expérimentations lourdes et couteuses au strict minimum.

2 La séparation poussée

Les lois successives de 1991 et de 2006, visant à réduire la quantité et la nocivité des déchets radioactifs à vie longue et à haute activité (déchets HAVL), sont à l'origine de nouvelles recherches dédiées à l'élaboration, la démonstration puis l'extrapolation industrielle des procédés *avancés* de séparation des actinides mineurs (américium, neptunium, curium). Ces procédés sont étudiés dans le cadre du programme SEPOU (pour séparation poussée), qui a financé cette thèse.

2.1 Intérêt de la miniaturisation des appareils d'extraction

La consolidation des performances observées en laboratoire des procédés du programme SEPOU nécessite la réalisation d'essais en unités pilote. Afin de diminuer les quantités de matière nécessaires à ces étapes de démonstration, et réduire ainsi les quantités de solvant et d'effluent, des contacteurs miniatures sont développés et utilisés. Pour être représentatifs, ces appareils miniatures doivent présenter des performances de séparation représentatives de celles de leurs homologues industriels, mais avec des débits plus faibles. Ils doivent de plus être opérables et démontables par télémanipulation pour pouvoir être utilisés dans les cellules "haute activité" de la chaîne blindée procédé (CBP).
A noter que des essais sont réalisés en environnement non nucléaire, pour anticiper d'éventuels problèmes de robustesse, au préalable à la nucléarisation

des appareils. Les opérations de maintenance sont en effet difficiles, voire impossibles, par télémanipulation, en environnement hautement radioactif.

2.2 Intérêt de la colonne Couette

Les contacteurs à étages discrétisés, tels que les mélangeurs-décanteurs et les extracteurs centrifuges, sont relativement bien miniaturisables. En revanche, la miniaturisation de la colonne pulsée semble avoir atteint ses limites avec les dimensions suivantes : diamètre de 15 mm et hauteur de 4 à 5 m, opérable avec un débit minimum de 1 $l.h^{-1}$. En effet, en deçà de ces dimensions (en terme de diamètre et de débit) les performances de séparation se dégradent sous l'effet de l'influence grandissante des effets de paroi. Une nouvelle colonne, dénommée « Colonne Couette » (voir figure 1.6), basée sur l'écoulement de Taylor-Couette, a été mise au point pour contourner cette limite technologique. Le fonctionnement de ce contacteur s'apparente à celui d'une colonne pulsée mais la rupture des gouttes et leur transport sont créés par le cisaillement dans l'espace annulaire dû à un rotor tournant à l'intérieur du fût de la colonne. Alimenté à contre-courant par deux phases immiscibles, l'appareil génère alors une émulsion. Cette colonne Couette, exclusivement dédiée à la R & D, permet d'atteindre des performances analogues à celles d'une colonne pulsée, y compris à faible débit. Le tableau 1.1 compare les caractéristiques du prototype Couette à celles des autres contacteurs continus.

Appareils	Diamètre (mm)	Hauteur (m)	Débit
Colonne pulsée industrielle	460 (annulaire)	8 - 9	1 $m^3.h^{-1}$
Colonne pulsée miniature	15	4 - 5	1 $l.h^{-1}$
Colonne Couette	20 (entrefer : 1,5)	0,7	100 $ml.h^{-1}$

Tableau 1.1: Propriétés des différentes colonnes.

Plusieurs études ont montré que les contacteurs centrifuges, basés sur l'écoulement de Taylor-Couette, sont particulièrement bien adaptés pour la mise en œuvre de réactions chimiques ou biochimiques, y compris en milieu polyphasique. Développés à la base pour des opérations d'extraction liquide-liquide (Davis et Weber, 1960), on trouve également ces appareils dans des applications industrielles très variées (généralement sur des unités de production de petite capacité), telles que : l'industrie pétrochimique, où ils sont utilisés pour des réactions de catalyse hétérogène (Cohen et Maron (1983), Sczechowskii *et al.* (1995)), la chimie en tant que réacteurs de polymérisation (Imamura *et al.*, 1993), les biotechnologies et la pharmacie (Coufort, 2004). D'autres études ont exploré la possibilité de l'utiliser pour

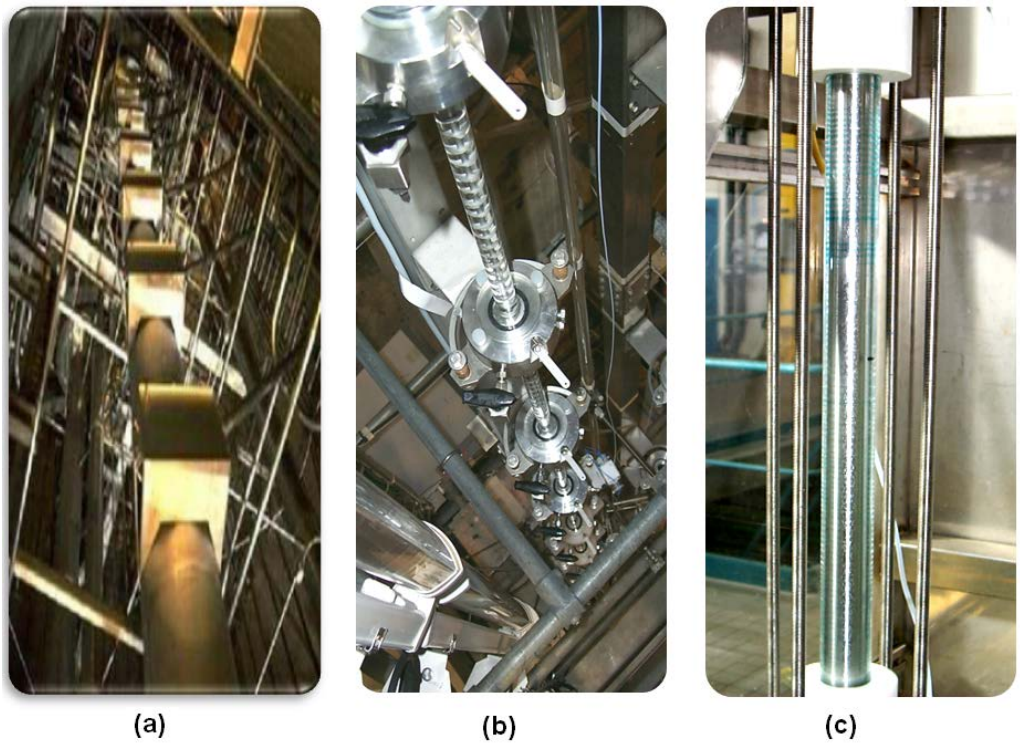


FIGURE 1.6: (a) Photo d'une colonne pulsée industrielle (La Hague), (b) Colonne pulsée miniature et (c) Colonne Couette.

des opérations de filtration (Wereley et Lueptow (1999), Holeschovsky et Cooney (1991)).

L'écoulement de Taylor-Couette est décrit au chapitre 2. C'est un écoulement académique pour lequel la transition vers la turbulence se fait par apparition successive d'instabilités. Il a fait l'objet de nombreuses recherches depuis les travaux de Taylor (1923), et demeure un sujet d'étude pour de nombreux mécaniciens des fluides. Comme nous le verrons par la suite, il possède plusieurs propriétés favorables à la mise en œuvre de l'extraction liquide-liquide :

- Un faible mélange axial, il s'apparente ainsi à un écoulement piston, ce qui est avantageux pour les opérations de séparation ;
- Un mélange radial et angulaire important, ce qui permet de créer une émulsion d'aire interfaciale favorable au transfert de matière entre les deux phases.

3 Modélisation du mélange axial

Le comportement hydrodynamique de la colonne Couette a été étudié dans le contexte du programme SEPOU par Lanoe (2002). Il s'agissait en particulier de déterminer son domaine de fonctionnement nominal (vis-à-vis de l'engorgement) et de mesurer les paramètres hydrodynamiques nécessaires à la simulation des performances de ce nouveau contacteur à l'aide du code de génie chimique PAREX. Dans ce cadre, des mesures de coefficient de dispersion axiale (D_x) ont notamment été réalisées, par traçage colorimétrique, confirmant ainsi le faible caractère dispersif de la colonne Couette par rapport à la colonne pulsée miniature. Cependant, lors de ces essais, une dispersion importante des mesures de D_x a été observée pour des conditions opératoires *a priori* identiques. Par ailleurs, malgré les nombreuses études dédiées, dans la littérature, à l'étude du mélange axial dans les écoulements de Taylor-Couette, et discutées au chapitre 5, il n'y a pas d'accord entre les différents modèles proposés pour corréler le coefficient de dispersion à la vitesse de rotation du cylindre interne lorsqu'on s'éloigne de la transition Couette / Taylor-Couette, c'est à dire dans la gamme de fonctionnement représentative du contacteur.

Ce mémoire présente une étude approfondie des mécanismes de mélange dans les écoulements de Taylor-Couette. Il se décompose comme suit :

- le **chapitre 2** présente les matériels et méthodes expérimentales développés et/ou utilisés pour l'étude ;
- le **chapitre 3** est dédié à la caractérisation des écoulements de Taylor-Couette monophasiques. Les différents états rencontrés dans le mode de fonctionnement usuel de la colonne Couette sont décrits, et une procédure permettant de garantir l'unicité de cet état hydrodynamique pour une vitesse de rotation donnée est définie ;
- le **chapitre 4** est consacré à l'étude des mécanismes de mélange locaux, et compare, pour chaque régime d'écoulement considéré, l'intensité des échanges inter-vortex et intra-vortex ;
- enfin, dans le **chapitre 5** les résultats et observations à l'échelle locale sont transposés à la colonne Couette, et le coefficient de dispersion axiale est déterminé de façon univoque pour chacun des régimes d'écoulement accessibles en extraction liquide-liquide.

4 Références

Cohen, S. et Maron, D. (1983). Experimental and theoretical study of rotating annular flow reactor. *Chemical Engineering Journal*, 27:87–97.

Coufort, C. (2004). *Étude expérimentale de la floculation en réacteur de Taylor-Couette : influence de l'hydrodynamique sur les phénomènes d'agrégation et de rupture*. Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.

Davis, M. et Weber, E. (1960). Liquid-liquid extraction between rotating concentric cylinders. *Industrial and Engineering Chemistry*, 52(11).

Holeschovsky, U. et Cooney, C. (1991). Quantitative description of ultrafiltration in a rotational filtration device. *AIChE Journal*, 37(8): 1219–1226.

Imamura, T., Saito, K. et Ishikura, S. (1993). A new approach to continuous emulsion polymerization. *Polymer International*, 30:203–206.

Lanoe, J. (2002). Performances d'une colonne d'extraction liquide-liquide miniature basée sur un écoulement de Taylor-Couette. Rapport technique, CEA Marcoule ATALANTE.

Sczechowskii, J., Koval, C. et Noble, R. (1995). A Taylor vortex reactor for heterogeneous photocatalysis. *Chemical Engineering Science*, 50(20):3163–3173.

Taylor, G. (1923). Stability of a viscous liquid contained between two rotating cylinders. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 223:289–343.

Wereley, S. et Lueptow, R. (1999). Velocity field for Taylor-Couette flow with an axial flow. *Physics of Fluids*, 11(12):3637–3649.

Dispositif expérimental et méthodologies

2

Sommaire

1 Dispositif expérimental 17
1.1 Caractéristiques géométriques 17
1.2 Équipements spécifiques 18
1.2.1 Système de mise en rotation 18
1.2.2 Modules complémentaires pour les méthodes optiques 19
1.3 Choix des fluides 20
1.3.1 Choix de la phase continue 20
1.3.2 Orientations pour le choix de la phase dispersée 21
2 Visualisation de l'écoulement : élément d'analyse spectrale 22
2.1 Principe 22
2.2 Traitement des images 23
3 Techniques de mesure par imagerie laser 26
3.1 Vélocimétrie par Images de Particules (PIV) . . . 26
3.1.1 Principe général 26
3.1.2 Description d'une chaine PIV 27
Le laser 28
La caméra 28
L'ensemencement 29
L'algorithme de traitement 29
3.2 Fluorescence Induite par Plan Laser (PLIF) . . . 31
3.2.1 Principe physique 31
3.2.2 Description d'une chaine PLIF 32
Le laser 32
La caméra 32
L'ensemencement 33
Choix de la concentration du traceur . . . 34
Le problème d'absorption 35
3.2.3 Corrections du signal de fluorescence 36
Les sources de perturbations et les choix de correction 36
Calcul des champs de concentration instantanée 37
3.3 Problèmatique des régimes « wavy » : couplage PIV - PLIF 38
4 Synthèse 39
5 Références 40

Deux principales configurations sont utilisées dans notre étude. La première est celle du prototype conçu dans les années 2000 pour étudier l'efficacité des procédés de séparation (Lanoe, 2002). Ce prototype est caractérisé par un faible entrefer ($e = 1{,}5$ mm) et un grand rapport d'aspect. Pour pouvoir accéder aux propriétés locales de l'écoulement et réaliser des mesures spécifiques (PIV et PLIF), un nouveau prototype a été conçu, caractérisé par un entrefer plus large ($e = 11$ mm). Ce chapitre est principalement consacré à la description de ce nouveau dispositif expérimental, à l'instrumentation associée et aux techniques de mesures utilisées dans le cadre de l'étude.

1 Dispositif expérimental

1.1 Caractéristiques géométriques

L'appareil est constitué de deux cylindres concentriques. Le cylindre extérieur de 70 mm de diamètre, est en borosilicate ($n_D = 1{,}472$) et fixe. Concernant le cylindre intérieur (*i.e.* le rotor), entrainé en rotation, on dispose de plusieurs spécimens adaptés aux différentes techniques de mesures envisagées. Le rotor principalement utilisé dans cette étude est en polycarbonate, de diamètre 48 mm, ce qui constitue un entrefer e de 11 mm, juste suffisant pour les mesures PIV. D'autres rotors adaptables à la colonne ont été conçus, pour répondre à des besoins futurs, en particulier :

- un rotor creux en polycarbonate de diamètre 64 mm, ce qui constitue un entrefer e de 3 mm, permettant un éclairement interne, pour les mesures d'ombroscopie (en prévision de l'étude en diphasique).

- deux rotors en inox de diamètres respectifs 48 mm et 64 mm, (respectivement e est égal à 11 mm et 3 mm), pour les traçages spectroscopiques (DTS), qui nécessitent une surface réfléchissante.

Outre l'entrefer e, chaque dispositif est caractérisé par un facteur de forme $\eta = R_i/R_e$ et un rapport d'aspect $\Gamma = L/e$. Le choix de ces paramètres est particulièrement important car ils influent directement sur la stabilité de l'écoulement et sur la multiplicité des états de l'écoulement.

Dans le tableau 2.1, les caractéristiques du nouveau prototype, dédié à l'étude de l'écoulement, sont comparées à celles de la colonne Couette utilisée pour les études procédés. Les deux appareils sont par ailleurs schématisés sur la Figure 2.1.

	Colonne Couette	Nouveau prototype
Rayon du rotor (R_i)	8,5 mm	24 mm
Rayon du fût (R_e)	10 mm	35 mm
Entrefer	1,5 mm	11 mm
Facteur de forme (η)	0,85	0,687
Hauteur utile	720 mm	640 mm
Rapport d'aspect (Γ)	480	50
Vitesse de rotation	80-1600 tr/min	4-1000 tr/min

Tableau 2.1: Caractéristiques géométriques et conditions de fonctionnement des deux dispositifs expérimentaux.

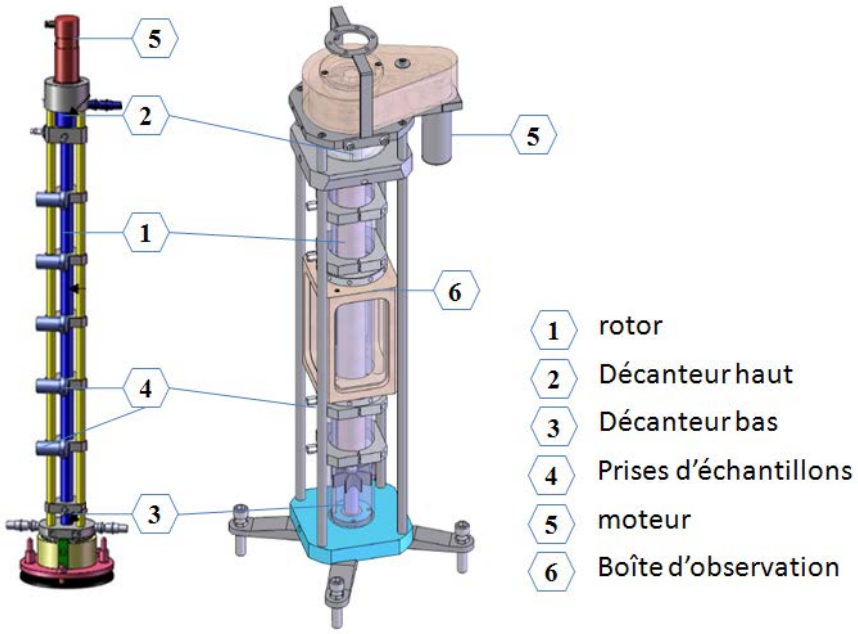


FIGURE 2.1: Dispositifs expérimentaux : Colonne "extracteur" à gauche et colonne "PIV" à droite.

1.2 Équipements spécifiques

1.2.1 Système de mise en rotation

Le moteur utilisé pour la mise en rotation du rotor est un moteur synchrone à courant continu. La vitesse du moteur peut être ajustée :

- soit manuellement grâce à un potentiomètre ; la résolution de ce dernier est de 1 mV, et il couvre une plage de 0-12 V ;
- soit par commande via un générateur de rampes, dont la résolution pour la vitesse (soit 0,008 tr/min) est comparable à celle du poten-

tiomètre. En effet, comme nous le verrons au chapitre 3, l'écoulement dépend de son histoire. L'intégration d'un module de régulation de vitesse sur le système de mise en rotation présente l'avantage de contrôler parfaitement la vitesse et l'accélération du rotor et donc de garantir la reproductibilité des régimes d'écoulement.

1.2.2 Modules complémentaires pour les méthodes optiques

Le prototype dédié aux mesures optiques est muni d'une boite d'observation, positionnée au centre du fût, qui forme une double-enveloppe en verre de qualité optique à parois planes de 1 cm d'épaisseur (voir Figure 2.2). Cette double-enveloppe sera remplie avec la même solution que l'entrefer, afin d'atténuer les effets de distorsion optique dus à la courbure des parois du cylindre.

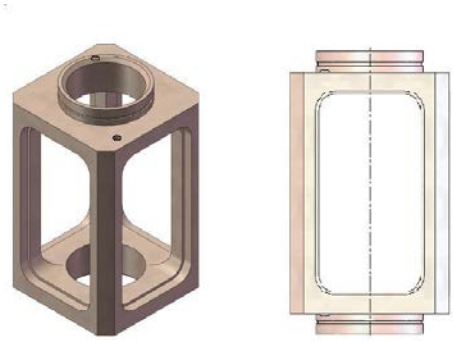


FIGURE 2.2: Boite de visualisation.

Une mire accrochée à un support rigide peut être introduite dans l'entrefer (voir Figure 2.3) . Afin de garantir l'alignement axial de la mire, la tige rigide en inox (de diamètre 5 mm) est maintenue en fond de colonne.

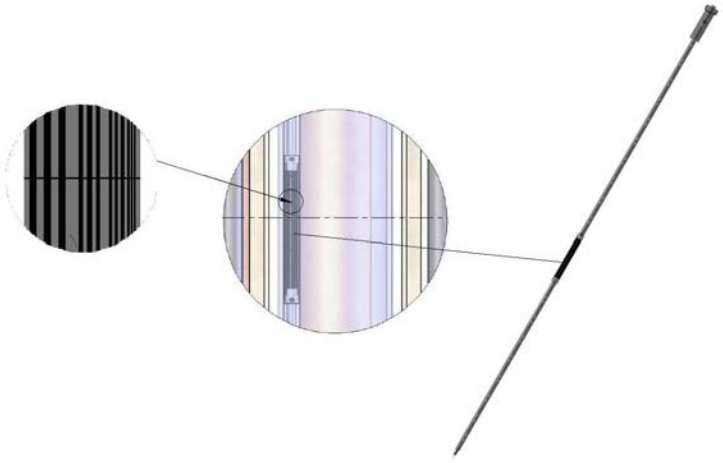


FIGURE 2.3: Ensemble mire + tige.

1.3 Choix des fluides

L'appareil peut fonctionner en régime monophasique ou diphasique. Bien que cette étude s'intéresse principalement à la caractérisation de la phase continue de l'écoulement, la réflexion a été menée sur les deux phases. Le choix des fluides est guidé par différents critères. Le premier est l'ajustement des indices optiques des deux phases, entre-elles et avec la paroi du fût, afin de pouvoir faire des mesures optiques au sein de la colonne. Le deuxième critère concerne les propriétés physiques du système liquide-liquide (viscosité, densité, tension de surface), qui permettent d'atteindre les conditions de fonctionnement souhaitées (vitesse, propriétés de l'émulsion).

1.3.1 Choix de la phase continue

La recherche de fluides à indice de réfraction élevé pour la mise en place de métrologies optiques en milieu confiné, a fait l'objet de nombreux travaux spécifiques (Budwig (1994), Narrow *et al.* (2000), Nguyen *et al.* (2004)). Nous avons écarté les solutions organiques à cause de leur viscosité élevée et de leur manipulation difficile (volatilité, inflammabilité, toxicité). Une sélection de solutions aqueuses concentrées salines a été établie d'après l'étude de Budwig (1994) et reportée dans le tableau 2.2.

Solutions	n_D	ρ (kg.m^{-3})
Iodure de zinc	1,33-1,62	-
Iodure de sodium	1,5	-
Thiocyanate de potassium	1,33-1,49	1000-1390
Thiocyanate d'ammonium	1,33-1,50	1000-1150
Thiocyanate de sodium	1,33-1,48	1000-1340

Tableau 2.2: Indice de réfraction et masse volumique de solutions salines à 20^{o}C (Budwig, 1994).

Pour chaque solution, la plage des indices de réfraction correspond bien à la valeur de l'indice de réfraction de notre fût ($n_D = 1{,}472$). En effet, la densité, la viscosité et l'indice de réfraction sont des fonctions croissantes de la concentration de l'électrolyte. Cependant, les différentes solutions sont sensibles à la lumière et ont un pouvoir corrosif élevé. Notre choix s'est porté sur une solution de thiocyanate de potassium (KSCN), la moins sensible à l'exposition à la lumière.
Une concentration proche de 64%pds à 20^{o}C, permet d'avoir un indice optique égal à celui du verre (voir figure 2.4). Les propriétés de ce système de phases sont consignées dans le tableau 2.3.

L'invisibilité du fût en dessous du niveau de liquide sur la figure 2.5 illustre l'intérêt de la solution de KSCN 64%pds.

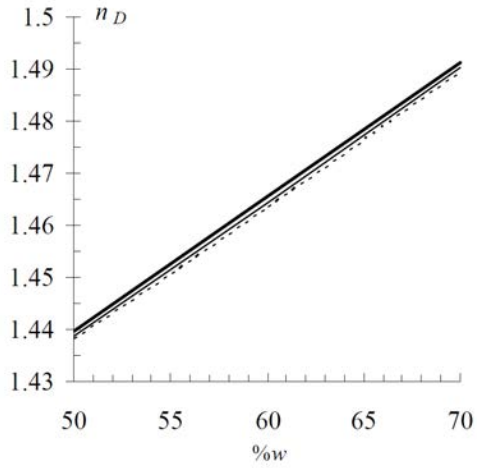


FIGURE 2.4: Relation entre l'indice de réfraction, la concentration et la température de la solution de KSCN (-) 15^{o}C,(-) 20^{o}C,(· · ·) 25^{o}C.

FIGURE 2.5: Ajustement de l'indice de réfraction (Solution KSCN).

1.3.2 Orientations pour le choix de la phase dispersée

Afin de préparer les prochaines campagnes PIV en configuration diphasique, nous avons testé deux solutions organiques (des huiles : Marcol 82 et Primol 352) qui ont des indices de réfraction proches du verre. Un mélange judicieux de ces deux huiles, par ailleurs parfaitement miscibles entre-elles, permet d'approcher l'indice de la phase continue (KSCN 64%pds). Les propriétés de ces différents produits sont regroupées dans le tableau 2.3.

Solutions	n_D	ρ (kg.m^{-3})	μ (Pa.s^{-1})
Solution de KSCN à 64%pds à 20^{o}C	1,47217	1400	2,4.10^{-3}
Marcol 82 à 20^{o}C	1,46945	848	23.10^{-3}
Primol 352 à 20^{o}C	1,47789	869	71.10^{-3}
Mélange Primol (44%)+ Marcol (56%)	1,47277	856	51.10^{-3}

Tableau 2.3: Propriétés des solutions utilisées en PIV.

2 Visualisation de l'écoulement : élément d'analyse spectrale

La visualisation de l'écoulement apporte un éclairage indispensable à l'interprétation des résultats expérimentaux, qu'ils s'agissent de mesures locales (PIV-PLIF), ou globales (traçages). En effet, comme nous le détaillerons au chapitre suivant, l'écoulement de Taylor-Couette est sensible à son histoire, ce qui amène à s'interroger sur la reproductibilité des expériences et des mesures obtenues. Aussi, pour répondre à cette problématique, une technique de visualisation de l'écoulement a été utilisée afin de définir un protocole expérimental permettant de sélectionner le régime hydrodynamique désiré.

2.1 Principe

La technique consiste à ensemencer l'écoulement avec des particules de mica, commercialisées sous le nom de Kalliroscope. Il s'agit de plaquettes microscopiques cristallines qui ont la particularité de s'aligner suivant les lignes de courant. En présence d'une lumière incidente, elles réfléchissent la lumière avec des intensités différentes suivant la surface exposée. Ceci permet d'avoir une idée de la topologie générale de l'écoulement. Les propriétés des particules sont regroupées dans le tableau 2.4. Cette technique a été utilisée dans plusieurs études (Coles (1965), Andereck *et al.* (1986)).

Traceurs	Taille (μm)	Densité (g.cm^{-3})	Composition
Kalliroscope flakes	4 - 32	3,1	mica + oxyde d'étain + dioxyde de titane

Tableau 2.4: Propriétés des particules de Kalliroscope.

Pour ces essais nous avons utilisé un éclairage uniforme (LED) et une caméra rapide Photron SA3 (cadencée à 2000 Hz en pleine résolution). Le dispositif expérimental est représenté sur la figure 2.6.

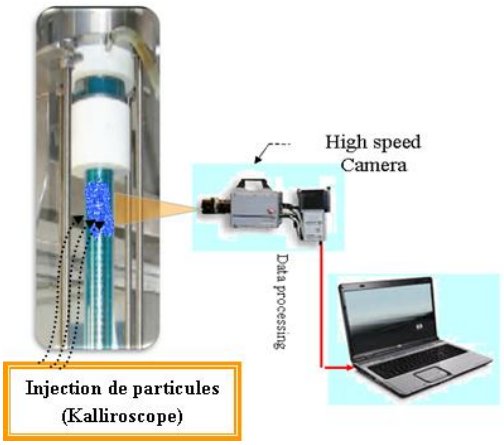


FIGURE 2.6: Schéma du dispositif expérimental de visualisation.

Deux solutions différentes ont été utilisées lors des expériences de visualisation : une solution de KSCN ensemencée avec des particules de Kalliroscope et une solution aqueuse commercialisée sous le nom de *rheoscopic fluid* qui contient un colorant bleu clair pour améliorer le contraste. Les propriétés des deux solutions ont été mesurées et sont présentées dans le tableau 2.5.

Solutions	Pourcentage massique en Kalliroscope (%)	Densité ($kg.m^{-3}$)	Viscosité (Pa.s)
Solution de KSCN à 64%pds	0,5 - 1	1400	$2{,}4.10^{-3}$
Fluide rhéoscopique	0,66	1000	$1{,}4.10^{-3}$

Tableau 2.5: Propriétés des solutions de visualisation.

2.2 Traitement des images

Les expériences de visualisation ont été réalisées sur les deux géométries d'intérêt : le prototype PIV (η =0,687) et la colonne d'extraction miniature (η=0,85). Pour chaque série d'images, les opérations suivantes sont réalisées :

- **Visualisation directe :** La visualisation de l'écoulement permet d'identifier les différents régimes. En s'appuyant sur la graduation axiale (voir figure 2.7), on mesure directement la longueur d'onde axiale définie par $\lambda = 2L/n$, où n est le nombre de cellules dans la direction axiale et L la hauteur utile de la colonne.

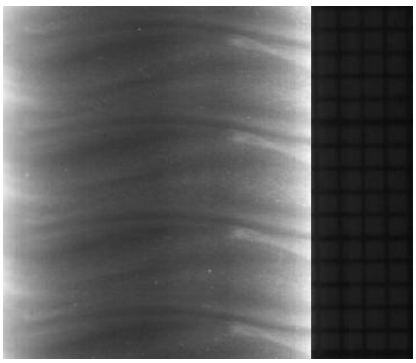


FIGURE 2.7: Visualisation de l'écoulement : détermination de λ.

- **Analyse spectrale :** Pour caractériser les régimes ondulatoires (WVF et MWVF) un traitement spectral des images avec le logiciel Matlab® permet de remonter à la fréquence caractéristique de chaque état d'écoulement. La transformée de Fourier (FFT) de l'évolution du niveau de gris en un point permet de mesurer la fréquence caractéristique de l'ondulation. La figure 2.8 montre l'évolution d'une onde azimutale en fonction du temps. L'application d'une FFT sur une ligne permet d'obtenir le spectre caractéristique de notre onde. En effet, dès la transition TVF $\mapsto$ WVF, on observe sur les spectres de fréquence l'apparition d'un pic qui caractérise le passage de l'onde azimutale, ainsi que d'autres pics qui correspondent à ses harmoniques. Le pic principal correspond à la fréquence f caractéristique de l'ondulation (voir figure 2.9). Une fois cette fréquence mesurée, on peut remonter au nombre d'onde azimutal défini par : $m = 2\pi f/V_\phi$ où f est la fréquence caractéristique du régime en s^{-1} et V_ϕ la vitesse de phase en $rad.s^{-1}$.

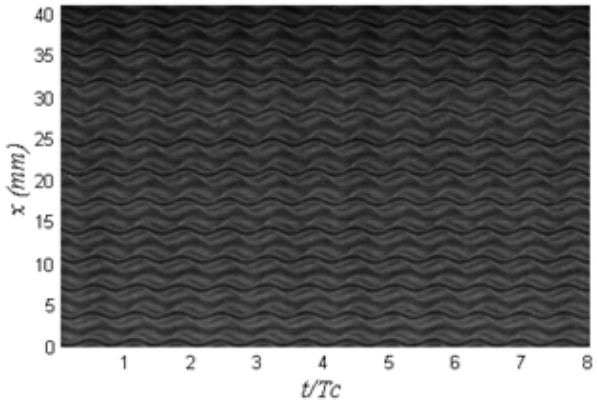


FIGURE 2.8: Évolution d'une onde dans le temps (Colonne d'extraction, Ω=200 rpm).

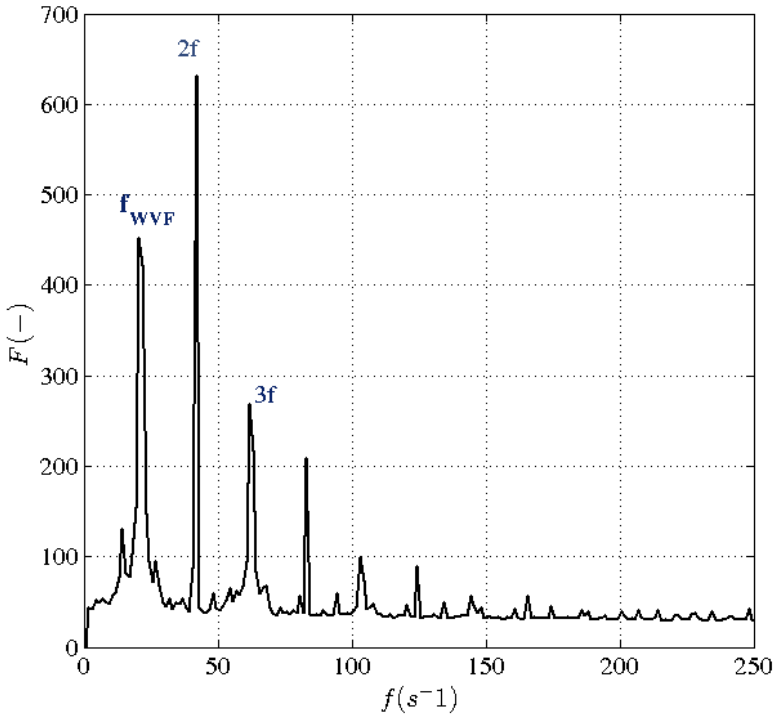


FIGURE 2.9: Spectre du niveau de gris (régime WVF).

- **Diagramme spatio-temporel :** Le suivi de l'évolution d'une ligne de pixels en fonction du temps permet de construire des diagrammes spatio-temporels. Ce diagramme permet également de déterminer la vitesse de phase V_ϕ. Sur la figure 2.10 la pente des droites correspond à la vitesse V_ϕ.

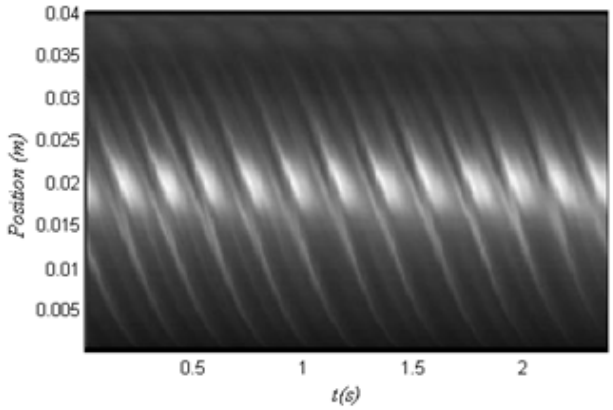


FIGURE 2.10: Diagramme spatio-temporel (régime WVF).

3 Techniques de mesure par imagerie laser

Deux techniques de mesures par imagerie laser sont utilisées : la PIV (Particle Image Velocimetry), et la PLIF (Planar Laser Induced Fluorescence). La PIV pour la caractérisation de l'écoulement et la PLIF pour l'étude du mélange. Ces deux méthodes sont décrites en détails ci-dessous.

3.1 Vélocimétrie par Images de Particules (PIV)

Pour réaliser une étude locale de l'hydrodynamique d'un écoulement, deux principales méthodes sont utilisées : la PIV (Vélocimétrie par images de particules) et la LDV (Vélocimétrie Laser Dopler).
La LDV est une technique non intrusive, elle permet de mesurer des fluctuations temporelles en un point donné. Grâce à sa haute fréquence, elle permet l'analyse spectrale de l'écoulement. L'ensemble des échelles de temps peut ainsi être déterminé. Toutefois, cette méthode reste une mesure ponctuelle. Gollub et Freilich (1974) ont utilisé cette technique pour mesurer la vitesse radiale à une position fixée. Heinrichs *et al.* (1988) l'ont également utilisée pour mesurer la composante axiale de la vitesse dans un écoulement Taylor-Couette.
La PIV est également une méthode non intrusive. Contrairement à la LDV, elle fournit des champs de vitesse. Wereley et Lueptow (1999) ont utilisé cette technique pour mesurer les composantes radiale et axiale de vitesse dans un plan méridien, pour des régimes non ondulatoires. Dans les régimes « wavy », Akonur et Lueptow (2003) ont mesuré les composantes radiales et azimutales dans un plan perpendiculaire à l'axe de rotation du rotor.

Dans un premier temps, le principe de cette technique est présenté, la mise en place du banc d'essai et le traitement associé sont ensuite décrits.

3.1.1 Principe général

La PIV est une méthode de mesure du champ instantané de vitesse dans un écoulement. Elle est basée sur l'analyse statistique de doublets d'images, séparées l'une de l'autre par un très bref laps de temps. L'écoulement étudié est ensemencé à l'aide de particules de quelques micromètres de diamètre. A l'aide d'un laser impulsionnel à double cavité, on crée deux nappes coplanaires d'épaisseur environ 1,5 mm. Les deux impulsions laser sont décalées d'un intervalle de temps Δt réglable par l'expérimentateur et illuminent le même plan de l'écoulement ensemencé. Une caméra placée perpendiculairement au plan de mesure permet d'enregistrer les images instantanées des traceurs. Ceux-ci, bien que micrométriques, apparaissent nettement par diffusion de Mie. Les images sont ensuite divisées en cellules d'interrogation. Une cellule d'une image est mise en correspondance avec la même cellule

dans l'image jumelle. Une inter-corrélation est alors appliquée entre les deux cellules, et la position de son maximum donne la valeur du déplacement le plus probable de l'ensemble des particules. Cette procédure, appliquée à l'ensemble des cellules d'interrogation, permet d'obtenir la projection bi-dimensionnelle d'un champ de vecteurs vitesse. L'acquisition de nombreux doublets d'images permettra de calculer des grandeurs statistiques pour la vitesse dans le plan étudié.

3.1.2 Description d'une chaine PIV

Le principe d'une chaine PIV est représenté sur la figure 2.11 ci-dessous. La chaîne PIV complète montée à l'IMFT est présentée sur la figure 2.12. Elle comprend plusieurs éléments qui doivent être adaptés les uns aux autres et paramétrés en fonction des mesures que l'on souhaite réaliser. Il s'agit :

- du laser ;
- de la caméra ;
- de l'ensemencement ;
- de l'algorithme de traitement.

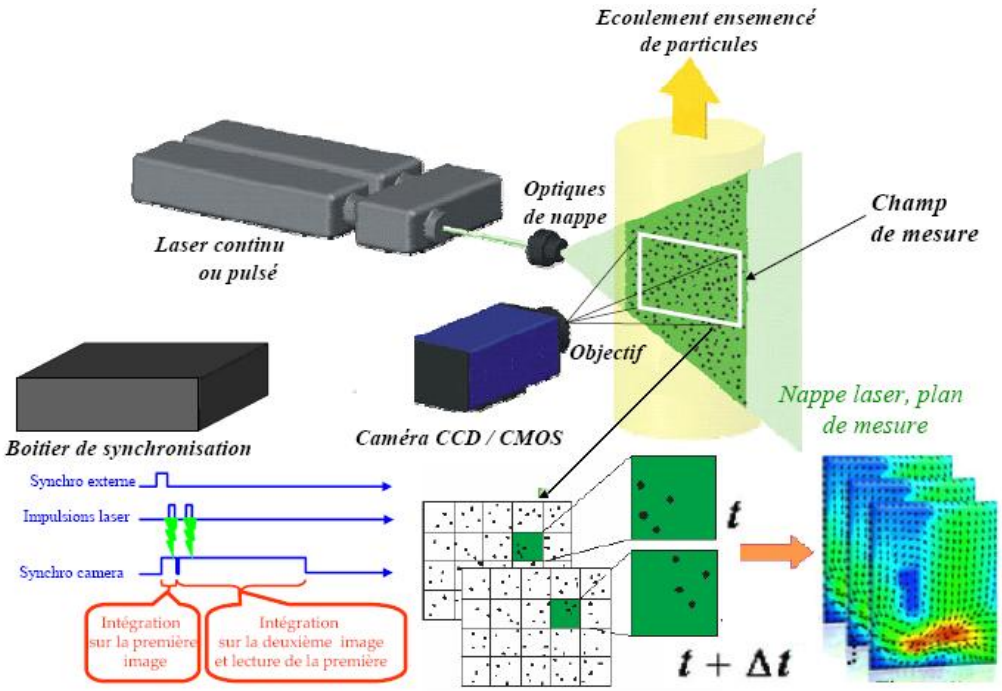


FIGURE 2.11: Schéma de principe d'une chaîne de vélocimétrie par images de particules.

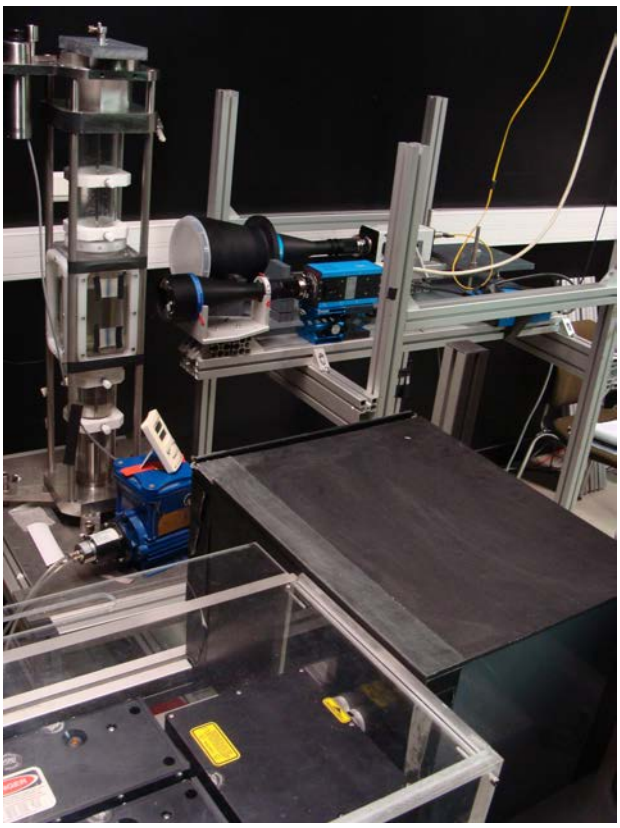


FIGURE 2.12: Photographie de la chaîne PIV complète.

Le laser

Le laser utilisé est un laser à double cavités Nd : YAG ($\lambda = 532$ nm, vert). A chaque tir, chacune des cavités délivre une énergie d'environ 200 mJ à la fréquence de 10 Hz. La durée de chaque impulsion est de 10 ns. Ceci nous assure que, à notre échelle d'observation, les traceurs apparaîtront figés sur les prises de vue. Le décalage de temps Δt entre les deux tirs est contrôlé par une synchronisation externe. La nappe laser est formée grâce à un système de deux lentilles : la première est une lentille sphérique convergente, qui focalise le faisceau, la seconde, une lentille cylindrique divergente qui étire le faisceau en nappe dans la zone de mesure. La nappe obtenue aura une épaisseur d'environ 1,5 mm, pour une hauteur d'environ 10 cm.

La caméra

La caméra utilisée est une caméra PCO.2000 avec son capteur CCD de 2048×2048 pixels. Cette caméra bénéficie à la fois d'une bonne discrétisation spatiale et d'une bonne sensibilité optique. Par ailleurs, elle est capable d'acquérir deux images consécutives avec un temps inter-image pouvant descendre jusqu'à 1 μs. Avec la caméra on a utilisé un objectif télécentrique de distance focale égale à 18 cm. On a également utilisé un filtre passe haut

($\lambda > 532$ nm) en mode diphasique, où des traceurs à base de rhodamine sont utilisés.

L'ensemencement

L'ensemencement est un élément particulièrement important de la chaîne PIV. En effet, comme on détermine la vitesse de l'écoulement à partir de celle des traceurs, ces derniers doivent avoir une faible inertie, une petite taille et une masse volumique proche de celle du fluide porteur. Pour le fonctionnement monophasique, des sphères en verre revêtues d'une couche mince argentée ont été utilisées (voir figure 2.13). En mode diphasique, on a utilisé de la rhodamine en poudre mélangée avec la phase dispersée et de la rhodamine encapsulée. Les caractéristiques des traceurs sont résumées dans le tableau 2.6 .

FIGURE 2.13: Traceurs PIV : Sphères en verre à gauche et particules en rhodamine à droite .

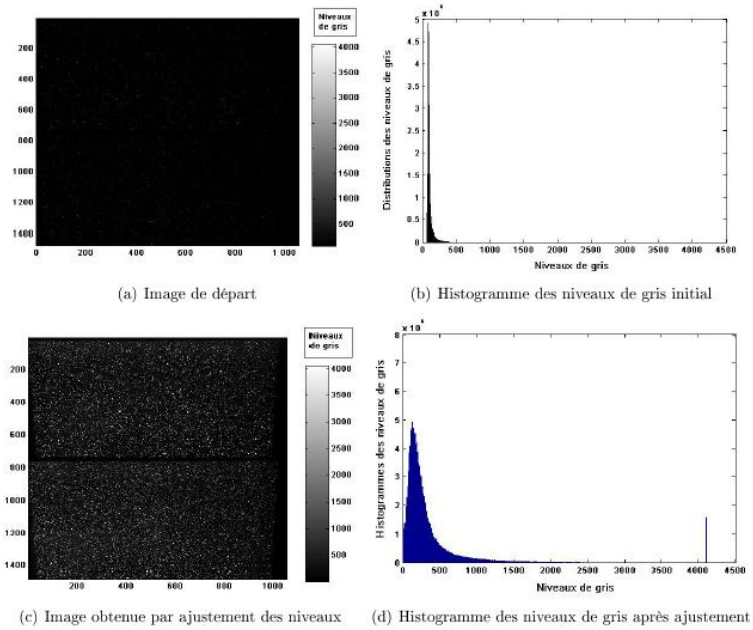
Traceurs	Taille(μm)	ρ (g.cm^{-3})	Matériaux	n_D
Sphères en verre (S-HGS)	10	1,4	Borosilicate	1,52
Particules fluorescentes (FPP)	10	1,2	Methacrylate de methyl + rhodamine B	1,48

Tableau 2.6: Propriétés des traceurs PIV (d'après DANTEC).

L'algorithme de traitement

Le calcul des champs de vecteurs vitesse est effectué avec le logiciel PIVIS développé à l'IMFT (Gardelle *et al.*, 2000). Il se décompose en deux phases combinant plusieurs algorithmes présentés en annexe A. Les différents modes de calcul utilisent l'algorithme de la Transformée Rapide de Fourier 2D (FFT Oura). On procède ensuite à une étape préliminaire de filtrage des vecteurs et de recadrage des niveaux de gris. Très souvent en PIV, la répartition des niveaux de gris des particules ne couvre pas la dynamique complète du capteur. En effet, afin d'éviter la saturation des pixels

de la caméra CCD par des réflexions parasites sur les parois ou des gouttelettes trop grosses, on est obligé de limiter l'éclairement global, ce qui se traduit par un histogramme des niveaux de gris étroit et décalé vers les faibles niveaux. Les images sont donc faiblement contrastées. Pour pallier à ce problème et augmenter le contraste des images, on utilise une procédure d'ajustement décrite par Kim (2005).
Le principe consiste à placer deux seuils, l'un pour les valeurs minimales et l'autre pour les valeurs maximales de la distribution initiale des niveaux de gris. Toute valeur inférieure au seuil minimal est forcée à la valeur nulle, tandis que les valeurs supérieures au seuil maximal sont forcées au niveau de saturation. Les niveaux intermédiaires sont interpolés linéairement entre ces deux valeurs. Le résultat est une augmentation visible du contraste, une diminution du poids relatif des particules les plus éclairées et un seuillage du bruit de fond de la caméra. La figure 2.14 illustre cette procédure en montrant une image et l'histogramme des niveaux de gris associé avant et après ajustement.



(a) Image de départ (b) Histogramme des niveaux de gris initial

(c) Image obtenue par ajustement des niveaux (d) Histogramme des niveaux de gris après ajustement

FIGURE 2.14: Comparaison d'une image avant et après ajustement.

L'analyse PIV engendre souvent des vecteurs faux. Après la première étape (première passe) de calcul rapide d'inter-corrélation, le champ de vecteurs est filtré par un filtre aux résidus normalisés (Cochet, 2007). Ensuite, on passe à la deuxième étape de calcul de déformation itérative de mailles. Pour les calculs des grandeurs statistiques, on se contentera donc des filtrages sur la norme et le rapport signal sur bruit, et du filtrage médian relaxé. Pour les grandeurs statistiques, les vecteurs faux sont tout simplement supprimés du calcul des moyennes. Un champ de

vecteurs dont plus de 15% des vecteurs se révèlent faux est également rejeté.

La vélocimétrie par images de particules a été utilisée pour caractériser l'écoulement (mesure des composantes de vitesse axiale et radiale) dans les différents régimes atteints et identifiés par la technique de visualisation.

3.2 Fluorescence Induite par Plan Laser (PLIF)

La fluorescence induite par plan laser (Planar Laser Induced Fluorescence ou PLIF) est également une méthode d'imagerie non intrusive qui permet d'obtenir une cartographie 2D de la concentration d'une molécule fluorescente. Cette technique est utilisée dans plusieurs domaines : en chimie (identification d'espèces), en biologie (interactions moléculaires, séquençage de l'ADN) et en physique (phénomènes de mélange et de dispersion).

3.2.1 Principe physique

Le phénomène de fluorescence consiste en une émission lumineuse provoquée par l'excitation d'une molécule par un rayonnement électromagnétique, immédiatement suivie d'une émission spontanée. Le processus de fluorescence est illustré par le diagramme de Jablonski (Figure 2.15) en deux étapes :

- L'excitation : une onde incidente d'énergie $h\nu$, fournie par une source extérieure telle qu'un laser ou une lampe, permet à la molécule de passer d'un état fondamental S_0 à un état singulet excité S_1. La durée de vie de cet état est de 1 à 10 ns. Pendant ce temps, la molécule subit des changements de conformation (phénomène d'absorption).

- Émission de fluorescence : le système atteint le niveau le plus bas d'énergie et cède un photon, renvoyant le fluorophore à son état fondamental S_0. Ce photon possède une énergie $h\nu_{em}$ plus faible que l'énergie du photon d'excitation $h\nu_{ex}$, à cause de l'énergie dissipée au cours de la phase d'excitation. La longueur d'onde d'émission est donc plus grande que la longueur d'onde d'excitation. La différence d'énergie est appelée déplacement de Stokes. Le déplacement de Stokes est fondamental en fluorescence car il permet aux photons d'émission d'être isolés des photons d'excitation. Dans certains cas, le retour à l'état fondamental est interdit par les règles de la mécanique quantique. La molécule passe de l'état excité singulet S_1 à un état excité triplet T_1 , l'émission est alors très lente, de l'ordre de quelque ms : on parle de phosphorescence.

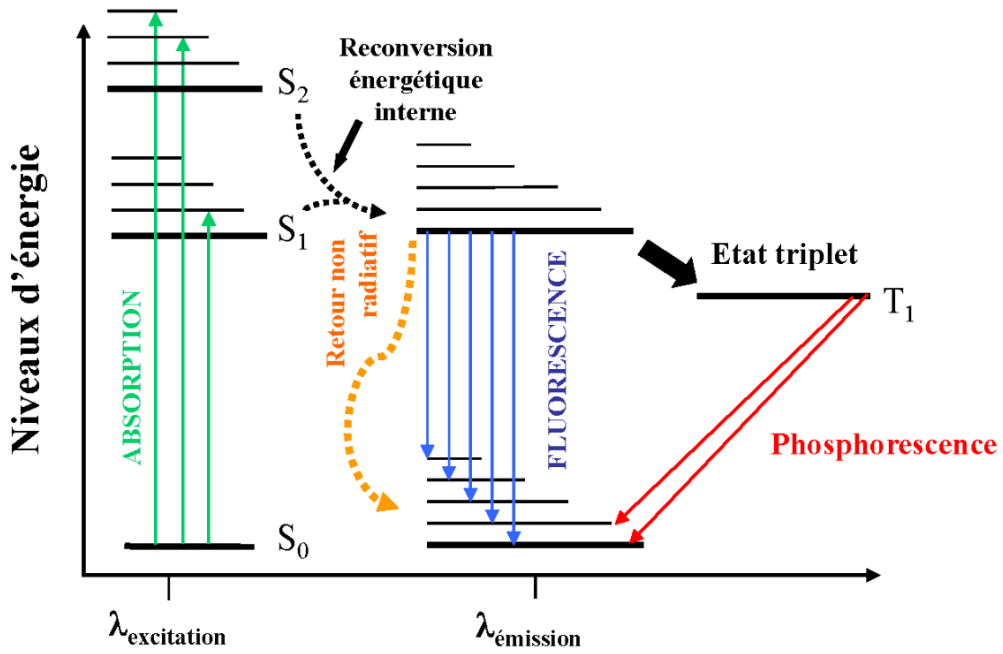


FIGURE 2.15: Schéma de principe de la fluorescence : diagramme de Jablonski.

3.2.2 Description d'une chaine PLIF

La PLIF utilise un laser comme source d'excitation de la molécule. De ce fait, le principe d'une chaine PLIF est identique à celui d'une chaine PIV. Le principe du dispositif expérimental est représenté sur la figure 2.16.

Le laser

Le laser utilisé est un laser à double cavité Nd : YAG ($\lambda = 532$ nm, vert). La puissance délivrée par le laser est de 2×200 mJ. Un choix d'énergie de travail a été effectué afin d'obtenir une bonne dynamique de signal dans la plage de concentration considérée. Le laser est associé à un système optique qui génère une nappe laser divergente de 2 mm d'épaisseur à partir du faisceau incident.

La caméra

La caméra utilisée est une caméra sCMOS 16 bits munie d'un capteur CCD de taille 2560 × 2160 pixels. L'objectif utilisé est un Nikon de focale 55 mm, d'ouverture $f/D = 1{,}2$. Il est muni d'un filtre passe-haut avec une longueur d'onde de coupure de 540 nm, filtrant la longueur d'onde du laser (532 nm) et séparant ainsi le signal fluorescé du signal émis.

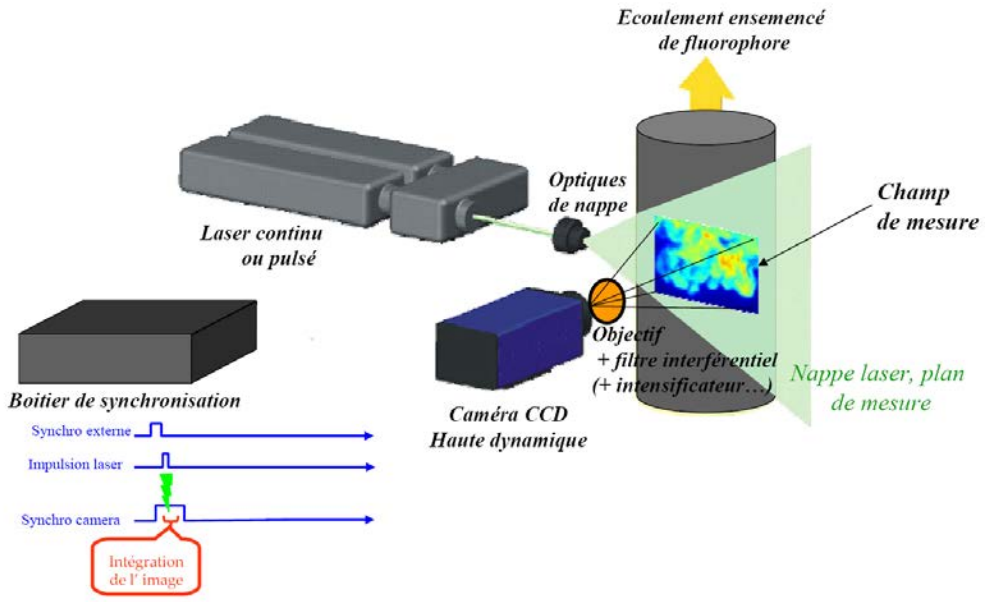


FIGURE 2.16: Schéma de principe d'une chaîne PLIF.

L'ensemencement

Le choix du traceur fluorescent est très important pour les mesures PLIF. En effet, il doit satisfaire plusieurs critères : présenter un spectre d'absorption compatible avec la source d'excitation (le laser), un rendement quantique élevé pour augmenter l'intensité de la réponse et une différence entre les longueurs d'onde d'excitation et d'émission assez large. Par ailleurs, il faut prendre en considération également la sensibilité du traceur à la température, au pH et à la concentration (Crimaldi, 1997). La Rhodamine (WT, B, 6G) et la fluorescéine sont les traceurs les plus utilisés dans la littérature. Ils sont solubles dans notre solution de KSCN et dans l'eau et ils ont un rendement quantique de l'ordre de 95 %.

Nous avons choisi d'utiliser la Rhodamine WT. Ce traceur présente un pic d'absorption à 555 nm (voir figure 2.17), mais son spectre d'absorption est assez large permettant ainsi d'être excité avec un laser à 532 nm. Il est insensible aux variations de pH, mais présente une légère sensibilité à la température : on peut perdre 1,2 % de fluorescence par degré (Sakakibara *et al.*, 1993). En conséquence, la température du local a été maintenue à 20^{o}C pendant toute la durée des expérimentations.

L'ensemble des propriétés de la Rhodamine WT est résumé dans le tableau 2.7

Afin d'améliorer la qualité des résultats, notamment pour obtenir des mesures quantitatives, plusieurs précautions doivent être prises. On a ainsi effectué des analyses préliminaires qui ont conduit à faire certains choix (concentration du traceur fluorescent, méthode d'injection, énergie du laser,

λ_{abs} (nm)	λ_{em} (nm)	ϵ (mol^{-1}.l.cm^{-1})	D(cm^2.s^{-1})	pH
565	585	8,6 10^4 (514,5 nm)	3,7 10^{-6}	< 6

Tableau 2.7: Propriétés du traceur fluorescent utilisé : Rhodamine WT (20^{o}C).

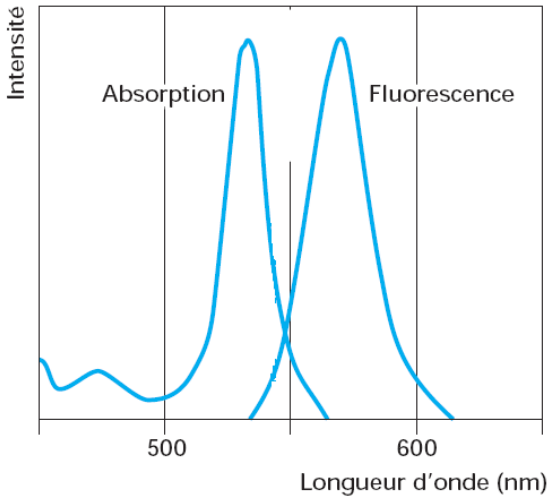


FIGURE 2.17: Spectre d'absorption et d'émission de la rhodamine.

etc.) et à identifier les sources d'erreur potentielles (phénomènes d'absorption, hétérogénéité de la nappe laser, etc.) et les méthodes pour les corriger.

Choix de la concentration du traceur

Avant de commencer les mesures dans la colonne avec la solution de KSCN, on a effectué des mesures préliminaires avec de l'eau dans des petites éprouvettes. Des solutions étalons de Rhodamine, à différentes concentrations, ont été préparées (voir figure 2.18 (a)) afin de déterminer la plage de linéarité de l'évolution de la fluorescence en fonction de la concentration. Les mêmes mesures ont été ensuite réalisées dans la colonne remplie d'eau, par ajouts successifs de traceur, et en prenant soin de bien mélanger après chaque injection afin d'assurer une bonne homogénéité de la concentration dans le fût. Les résultats ont montré qu'à partir d'une valeur limite C_{lim} on sort du domaine de linéarité. Ceci est dû à un phénomène de saturation (voir figure 2.19).

En passant à la solution de KSCN on a observé, à concentration en traceur identique, une teinte différente de celle de la solution aqueuse (voir figure 2.18 (b)). On a ainsi réalisé les mêmes mesures d'étalonnage avec la solution de KSCN pour déterminer la zone de linéarité. La courbe d'étalonnage est représentée sur la figure 2.20. Pour la suite, la concentration

(a) (b)

FIGURE 2.18: (a) Éprouvettes d'étalonnage, (b) Solutions de Rhodamine dans l'eau (à gauche) et dans le KSCN (à droite).

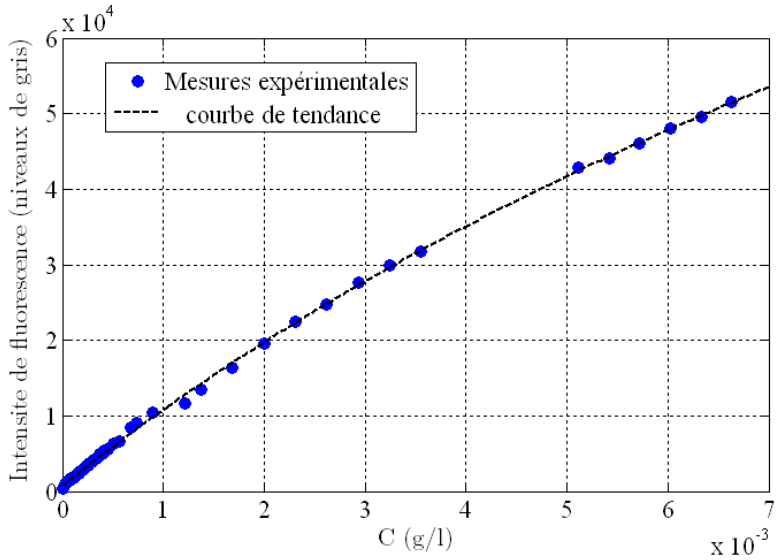


FIGURE 2.19: Évolution de l'intensité de de fluorescence en fonction de la concentration (cas de l'eau).

en traceur est contrôlée afin de toujours se situer dans la zone de linéarité. Lorsque ce seuil est dépassé, la colonne est vidangée et remplie du liquide initial (i.e. sans colorant).

Le problème d'absorption

Le phénomène d'absorption de l'énergie incidente du laser par le traceur constitue le principal problème rencontré lors des mesures PLIF. Il a été abordé dans différentes études dont de celles de Crimaldi (1997). D'après Crimaldi (1997), le signal de fluorescence F peut s'écrire :

$$F(y) = \Phi(\lambda, T)\epsilon(\lambda, T)C(y) \times I_1(y) \tag{2.1}$$

Avec :

- y : la coordonnée dans la direction radiale.
- Φ : le rendement quantique de fluorescence en fonction de la température T et la longueur d'onde λ.
- ϵ : le coefficient d'extinction molaire ($\text{mol}^{-1}.\text{l}.\text{cm}^{-1}$)
- C : la concentration de l'espèce fluorescente.
- I_1 : l'intensité de l'énergie lumineuse du faisceau à la position y.

Au cours du processus d'absorption, I_1 diminue avec y et C selon l'équation :

$$I_1(y) = I_0 e^{-\epsilon \int C(y)dy} \tag{2.2}$$

où I_0 est l'intensité d'énergie incidente du laser. On constate que l'absorption entraîne la diminution du signal d'excitation en fonction de la distance parcourue par le faisceau laser. Dans notre configuration de nappe laser, la distance parcourue est petite (entrefer = 11mm). On peut ainsi considérer que l'atténuation de I_1 en fonction de y est négligeable.

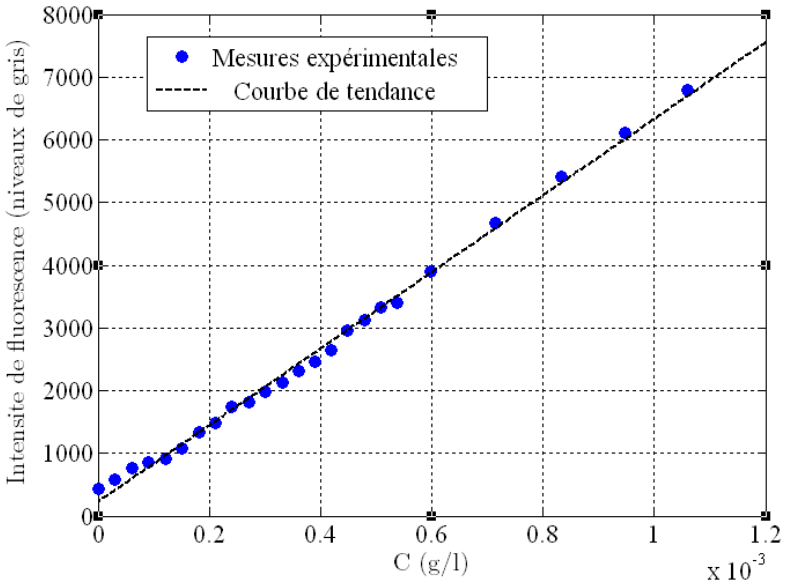


FIGURE 2.20: Évolution de l'intensité de fluorescence en fonction de la concentration (cas KSCN).

3.2.3 Corrections du signal de fluorescence

Les sources de perturbations et les choix de correction

Les mesures PLIF sont généralement accompagnées de plusieurs perturbations associées à chaque étape de la technique. Les différentes sources ont été identifiées et corrigées lors du calcul de la concentration instantanée :

- Les perturbations liées aux fluctuations de la puissance du laser qui peuvent modifier l'énergie incidente I_0 et donc affecter le signal de fluorescence. Des tests préliminaires ont permis de montrer que ces fluctuations sont rares. Cependant on a fait le choix de supprimer les images qui correspondent à des fluctuations supérieures à 2 % de la valeur moyenne. Sur les 5000 images par cas le nombre d'images supprimées demeure négligeable.

- Les perturbations liées au bruit propre à la caméra qui sont dues à l'échauffement de la caméra. L'acquisition des images de noir ont permis d'estimer la valeur de ce bruit. Pour calculer le signal de fluorescence réel, il faut soustraire de chaque image instantanée le bruit de fond et le bruit de la caméra. En effet le signal instantané se décompose comme suit :

$$F_{instantané} = F_{fluorescence} + F_{bruitfond} + F_{bruitcaméra} \tag{2.3}$$

  Avant chaque injection, on a considéré une centaine d'images pour calculer a posteriori l'image moyenne, notée $\overline{F_{bruit}}$, et qui sera soustraite à toutes les images instantanées lors du calcul des champs de concentration. Un exemple de calcul est illustré sur la figure 2.21.

- Les perturbations liées à l'hétérogénéité spatiale de la nappe laser. Ainsi, le traceur fluorescent n'est pas excité avec la même intensité incidente en tout point de la nappe. Une image de référence associée à la concentration homogène de référence C_{ref}, notée $\overline{F_{ref}}$, sera utilisée par la suite pour convertir en concentration les images instantanées.

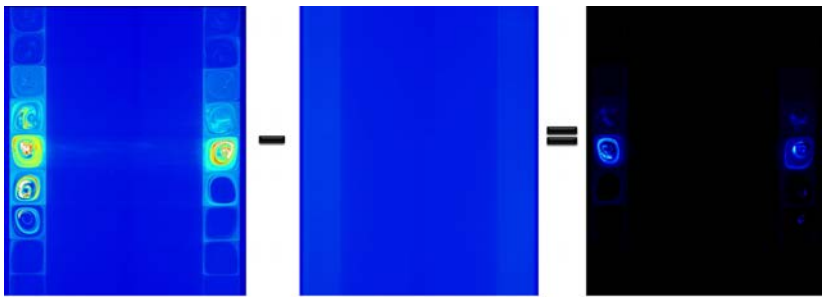


FIGURE 2.21: Principe de la correction du bruit de fond et du bruit de la caméra.

Calcul des champs de concentration instantanée

En se plaçant dans le domaine de linéarité associé à la concentration de référence C_{ref} connue, et en tenant compte des différentes précautions adoptées, on peut calculer le champs de concentration suivant la procédure

suivante :

$$C_{instantané} = \frac{F_{instantané} - \overline{F_{bruit}}}{\overline{F_{ref}} - \overline{F_{bruit}}} \cdot C_{ref} \tag{2.4}$$

Le calcul est assuré grâce au logiciel $DAVIS$®.

3.3 Problèmatique des régimes « wavy » : couplage PIV - PLIF

Les mesures PIV et PLIF ont été réalisées simultanément grâce à un boitier de synchronisation Lavision. Le champ d'observation de la PLIF correspond à $8{,}16 \times e$ alors que le champ PIV correspond à $5{,}7 \times e$. Afin de découpler les deux mesures, la caméra PIV était équipée d'un filtre passe bande et la caméra PLIF était munie d'un filtre passe-haut avec une longueur d'onde de coupure de 540 nm, filtrant la longueur d'onde du laser (532 nm) et séparant ainsi le signal fluorescé du signal émis. La chaine PIV-PLIF est présentée sur la figure 2.22. Les champs PIV permettent, principalement, de caractériser l'écoulement dans ses différents régimes. Pour les régimes « wavy », ils permettent de suivre le mouvement périodique des lignes de séparation entre les vortex. Les résultats de suivi seront exploités par la suite pour la partie PLIF. Le couplage sera expliqué en détails dans le chapitre 3.2.

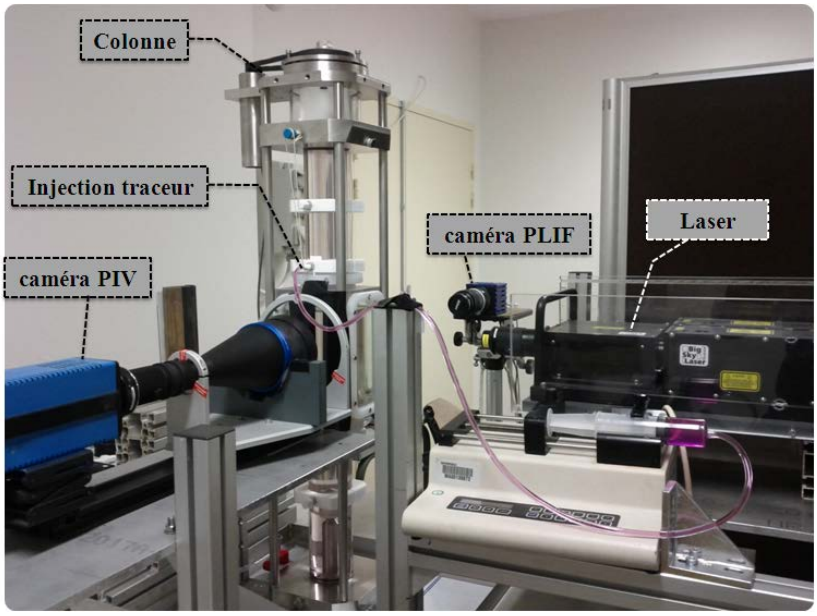


FIGURE 2.22: Photographie du banc d'expérimentation PIV-PLIF.

4 Synthèse

Dans ce chapitre on a présenté les différents techniques de mesures utilisées au cours de ces travaux.
La première technique de mesure, la visualisation, permet de visualiser la topologie de l'écoulement grâce à des particules de « Kalliroscope » qui ont la particularité de s'aligner suivant les lignes de courant.
La seconde technique de mesure, la PIV, permet d'établir des champs de vitesse instantanée 2D. On a présenté une description détaillée de la technique ainsi que les choix et les réglages adoptés pour améliorer la qualité des résultats.
La troisième technique de mesure, la PLIF, permet d'établir de façon instantanée des cartographies 2D d'un champ de concentration. Les principales difficultés de mise en œuvre de cette méthode de mesure ainsi que les traitements apportés aux images brutes ont été détaillés dans ce chapitre.
L'utilisation des ces deux techniques de mesures va nous permettre d'étudier avec précisions les mécanismes de mélanges d'un traceur à travers notre écoulement. La PLIF sera utilisée pour une analyse qualitative et quantitative (chapitre 4) des mécanismes de mélange axial. La PIV servira pour la caractérisation du champ de vitesse (chapitre 3) et dans l'algorithme du traitement des champs de concentration pour garantir une meilleur qualité des résultats quantitatifs (chapitre 4).

5 Références

Akonur, A. et Lueptow, R. (2003). Three-dimensional velocity field for wavy Taylor-Couette flow. *Physics of fluids*, 15.

Andereck, C., Liu, S. et Swinney, H. (1986). Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics*, 165:155–183.

Budwig, R. (1994). Refractive index matching methods for liquid flow investigations. *Experiments in Fluids*, 17:350–355.

Cochet, M. (2007). *Évaporation de gouttelettes polydispersées dans un écoulement de canal fortement turbulent. Analyse de la formation du mélange diphasique par imagerie de fluorescence*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.

Coles, D. (1965). Transitions in circular Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 21:385–425.

Crimaldi, J. (1997). Planar laser induced fluorescence in aqueous flows. *Experiments in Fluids*, 44:851 – 863.

Gardelle, F., Cid, E. et Maurel, S. (2000). Manuel utilisateur PIVIS. Rapport technique, IMFT.

Gollub, J. et Freilich, M. (1974). Optical heterodyne study of the Taylor instability in a rotating fluid. *Physical Review letters*, 33:1465–1468.

Heinrichs, R., Cannell, D., Ahlers, G. et Jefferson, M. (1988). Experimental test of the perturbation expansion for the Taylor instability at various wavenumbers. *Physics of fluids*, 31:250–258.

Kim, N. (2005). *Analyse expérimentale d'un jet turbulent impactant sur une plaque plane et sur un obstacle de section carrée*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.

Lanoe, J. (2002). Performances d'une colonne d'extraction liquide-liquide miniature basée sur un écoulement de Taylor-Couette. Rapport technique, CEA Marcoule ATALANTE.

Narrow, T., Yoda, M. et Abdel, K. (2000). A simple model for the refractive index of sodium iodide aqueous solutions. *Experiments in Fluids*, 28:282–283.

Nguyen, T., Biadillah, Y., Mongrain, R., Brunette, J., Tardif, J. et Bertrand, O. (2004). A method for matching the refractive index and kinematic viscosity of blood analog for flow visualization in hydraulic cardiovascular models. *J. Biomech. Eng.*, 126:529–535.

Sakakibara, J., Hishida, K. et Maeda, M. (1993). Measurements of thermally stratified pipe flow using image-processing techniques. *Experiments in Fluids*, 16:82–96.

Wereley, S. et Lueptow, R. (1999). Velocity field for Taylor-Couette flow with an axial flow. *Physics of Fluids*, 11(12):3637–3649.

Caractérisation de l'écoulement de Taylor Couette monophasique

3

Sommaire

1 L'écoulement de Taylor-Couette : revue de la littérature 45
1.1 Instabilités successives de l'écoulement de Taylor-Couette . . . 46
1.2 Cas particulier des régimes ondulants (WVF et MWVF) . . . 49
2 Caractérisation de l'écoulement dans les configurations étudiées . . . 50
2.1 Le régime de Taylor (TVF) . . . 51
2.2 Le régime ondulatoire (WVF) . . . 52
2.3 Le régime ondulatoire modulé (MWVF) . . . 53
2.4 Le régime de Taylor turbulent (TTVF) . . . 54
2.5 Récapitulatif des différents régimes . . . 56
3 Simulation des différents régimes d'écoulement . . . 59
3.1 Présentation du modèle . . . 59
3.1.1 Le code JADIM . . . 59
3.1.2 Domaine de calcul et maillage . . . 59
3.1.3 Conditions aux limites . . . 60
3.1.4 Définition des grandeurs statistiques . . . 62
3.2 Validation du maillage . . . 62
3.2.1 Couple hydrodynamique . . . 62
3.2.2 Comparaison avec la PIV . . . 64
4 Caractérisation de l'écoulement de Taylor-Couette : PIV & DNS . . . 67
4.1 Visualisation de la structure de l'écoulement . . . 67
4.2 Caractérisation du champ de vitesse . . . 70
4.2.1 Le régime TVF . . . 70
4.2.2 Le régime WVF . . . 74
4.2.3 Le régime MWVF . . . 79
4.2.4 Le régime TTVF . . . 79
5 Synthèse . . . 80
6 Références . . . 81

Ce chapitre a pour but de présenter l'écoulement de Taylor-Couette monophasique dans ses différents configurations. Après une introduction, dressant notamment l'inventaire des régimes mis en évidence dans la littérature, les différents états d'onde atteints sur les deux appareils étudiés (colonne Couette pour les essais procédés et prototype PIV) sont décrits, sur la base des résultats de nos expériences de visualisation et de PIV. Chaque régime identifié a ensuite été reproduit par simulation numérique directe (DNS), dont la validation est discutée à partir des résultats des mesures PIV.

1 L'écoulement de Taylor-Couette : revue de la littérature

L'écoulement de Taylor-Couette est un écoulement académique qui se produit dans l'espace annulaire entre deux cylindres coaxiaux (de rayon R_i pour le cylindre intérieur et R_e pour le cylindre extérieur) en rotation. Il a fait l'objet de nombreuses recherches depuis les travaux de Taylor (1923), et demeure un sujet d'étude majeur pour de nombreux mécaniciens des fluides.

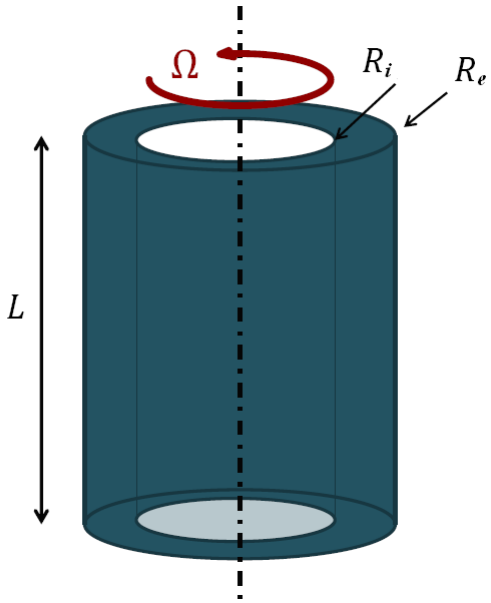


FIGURE 3.1: Schéma d'une configuration Taylor-Couette.

Les paramètres géométriques principaux utilisés pour caractériser les dispositifs d'étude sont le rapport entre les rayons :

$$\eta = \frac{R_i}{R_e} \tag{3.1}$$

et le rapport d'aspect :

$$\Gamma = \frac{L}{(R_e - R_i)} = \frac{L}{e} \tag{3.2}$$

η permet alors de quantifier l'importance de la courbure de la géométrie, tandis que Γ quantifie la hauteur relative du dispositif et caractérise l'influence des effets de bord.

L'écoulement de Taylor-Couette présente la particularité d'évoluer vers la turbulence par apparition successive d'instabilités. Les différentes instabilités sont généralement recensées par ordre croissant de la vitesse de rotation pour lesquelles elles sont observées. Pour caractériser l'écoulement, on définit un nombre de Reynolds basé sur l'entrefer e comme longueur caractéristique et la vitesse de rotation du cylindre Ω_i (où $i = 1$ pour le cylindre intérieur, $i = 2$ pour le cylindre extérieur si celui-ci est mobile) :

$$Re_i = \frac{\Omega_i R_i e}{\nu} \tag{3.3}$$

Dans la littérature, le nombre de Taylor est également utilisé :

$$Ta = \sqrt{\frac{e}{R_i}} Re_i \tag{3.4}$$

A noter que plusieurs expressions modifiées des nombres de Reynolds et de Taylor sont proposées dans la littérature, mais nous conserverons les expressions ci-dessus dans tout le document, afin de pouvoir comparer les résultats obtenus avec des corrélations existantes.

Notre étude est limitée au cas où le cylindre extérieur est fixe ($Re_2 = 0$).

1.1 Instabilités successives de l'écoulement de Taylor-Couette

Depuis les travaux de Taylor en 1923, de nombreuses études ont été dédiées au recensement et à la cartographie des instabilités de l'écoulement de Taylor-Couette. Ce diagramme de phase est complexe et peut dépendre des caractéristiques géométriques.

A faible vitesse, l'écoulement de Couette est simplement caractérisé par la vitesse angulaire $U_\theta(r)$. La résolution des équations de Navier-Stokes en tenant compte des conditions aux limites sur chacun des cylindres conduit à la solution analytique suivante :

$$U_\theta(r) = Ar + \frac{B}{r} \tag{3.5}$$

Avec :

$$\begin{cases} A = \dfrac{\Omega_2 R_2^2 - \Omega_1 R_1^2}{R_2^2 - R_1^2} \\ \\ B = \dfrac{(\Omega_1 - \Omega_2) R_1^2 R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \end{cases} \tag{3.6}$$

Selon le critère de Rayleigh, la stabilité de cet écoulement, vis-à-vis de l'équilibre entre la force centrifuge et le gradient de pression radial, n'est conservé que si $\Omega_1 R_1^2 < \Omega_2 R_2^2$. Ainsi, dans notre cas d'étude (cylindre extérieur fixe) on a systématiquement apparition d'instabilités si on augmente la vitesse de rotation du cylindre intérieur.

En 1923, Taylor a mis en évidence à l'aide de traceurs colorés, l'existence d'un écoulement secondaire axisymétrique, constitué de cellules stationnaires (ou vortex) de forme torique, contrarotatives et régulièrement disposées dans la direction axiale (voir figure 3.2). On parle de régime des tourbillons de Taylor ou de Taylor Vortex Flow (TVF). La théorie développée par Taylor permet de déterminer précisément le nombre de Taylor critique Ta_c pour pour le cas limite $\eta \mapsto 1$ et $\Gamma \mapsto \infty$. Depuis de nombreuses corrélations empiriques ou analytiques ont été proposées pour déterminer ce seuil. La plus utilisée était proposée par Esser et Grossmann (1996) définie par :

$$Re_c = \frac{1}{\alpha^2} \frac{(1+\eta)^2}{2\eta\sqrt{(1-\eta)(3+\eta)}}, \quad avec \;\; \alpha = 0{,}1556 \tag{3.7}$$

Plus tard, Dutcher et Muller (2009) ont proposé une estimation du nombre de Reynolds critique d'apparition de cette première instabilité, Re_{c1}, en fonction du rapport η (voir figure 3.3).

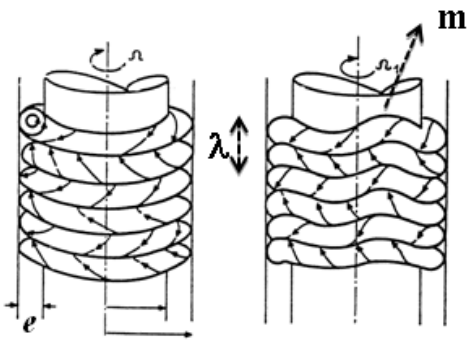


FIGURE 3.2: Écoulement de Taylor-Couette : régime TVF à gauche et régime WVF à droite.

Lorsque on augmente davantage la vitesse de rotation, cet écoulement devient lui aussi instable. Ainsi, en 1965, une nouvelle instabilité est mise en évidence par Coles. A l'aide d'expériences de visualisation, il observe qu'au delà d'un second seuil, Re_{c2}, les lignes de séparation des cellules de Taylor présentent des ondulations. Ces ondulations affectent l'ensemble des vortex et progressent dans le sens de rotation du cylindre. L'écoulement axisymétrique de Taylor devient à son tour instable et instationnaire. Le mouvement du fluide dans l'espace annulaire possède alors une double périodicité, caractérisée par un couple de nombres d'onde axiale et azimutale (n,m). Ce type d'écoulement est souvent appelé Wavy Vortex Flow (WVF). Il a été étudié par Davey (1962), qui a notamment montré que cet écoulement ne comporte qu'une seule fréquence fondamentale. Il l'a nommé « Singly Periodic Wavy Vortex Flow » (SPWVF).

Lorsque le nombre de Reynolds dépasse un troisième seuil Re_{c3}, l'écoulement devient plus complexe et l'amplitude des vagues varie périodiquement. On atteint alors le régime d'ondes modulées ou Modulated Wavy Vortex Flow (MWVF). Il se distingue du précédent par le fait que l'écoulement possède deux fréquences temporelles ; on le nomme parfois « Doubly Periodic Wavy Vortex Flow » (DPWVF).

Au delà, l'augmentation du nombre de Reynolds s'accompagne d'un étalement du spectre d'énergie cinétique autour des fréquences caractéristiques. L'écoulement se transforme en un écoulement tourbillonnaire ondulatoire, faiblement turbulent mais chaotique, on parle de « Chaotic Wavy Vortex Flow » (CWVF).

En augmentant encore la vitesse, l'onde azimutale disparait mais les structures tourbillonnaires persistent. On parle de régime de Taylor-Couette turbulent, ou « Turbulent Taylor Vortex Flow » (TTVF).

Une carte synthétisant les différents régimes d'écoulement accessibles en fonction des nombres de Reynolds des deux cylindres a été élaborée par Andereck *et al.* (1986) (figure 3.4).

Bien que l'écoulement de Taylor-Couette ait fait l'objet de nombreux travaux (un siècle d'étude) de nombreuses questions restent encore sans réponse et le problème demeure complexe. En effet, la structure de l'écoulement dépend de plusieurs paramètres (η, Γ, Re) auxquels s'ajoute en outre un caractère de non unicité selon la manière dont on atteint la vitesse de rotation étudiée. Pour une géométrie donnée ($\eta = 0{,}874$), Coles (1965) a mis en évidence un grand nombre d'états (n,m) accessibles selon l'historique antérieur de l'écoulement, c'est-à-dire selon les conditions particulières de mise en régime, tel un phénomène d'hystérésis.

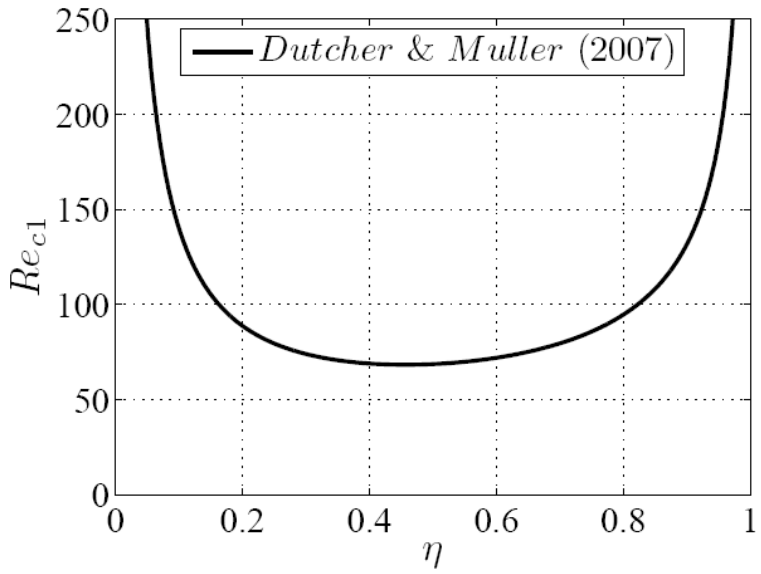


FIGURE 3.3: Évolution du nombre de Reynolds d'apparition des cellules de Taylor Re_{c1} en fonction de η (Dutcher et Muller, 2009).

1.2 Cas particulier des régimes ondulants (WVF et MWVF)

Dans le cas des régimes ondulants, l'ensemble des vortex ondule suivant la direction axiale avec une phase identique. Le centre des vortex est alors animé de mouvements axial et radial. Comme précédemment évoqué, de multiples états (n,m) sont possibles et peuvent être atteints. Certains paramètres comme la rampe d'accélération utilisée pour mettre le fluide en mouvement, $\frac{dRe}{dt}$, ou la géométrie, peuvent influencer l'état de l'écoulement.

Les travaux de Burkhalter et Koschmieder (1973) et Burkhalter et Koschmieder (1974) ont mis en évidence la sensibilité de la longueur d'onde axiale λ_x à la rampe d'accélération employée pour accéder au nombre de Reynolds voulu. En utilisant une accélération constante, Koschmieder (1979) a pu faire croitre la longueur d'onde axiale λ_x jusqu'à 3,4 fois la valeur de l'entrefer à la transition vers la turbulence, seuil au-delà duquel elle n'augmentait plus. En procédant par accélération brusque en revanche, il a observé des longueurs d'onde plus faibles que dans le cas des accélérations constantes, ne dépassant pas 2,4 fois l'entrefer à la turbulence.

Pour des régimes de nombres de Reynolds plus faibles, Coles (1965) a observé une variation de la longueur d'onde selon qu'il suivait une transition à Re croissant ou décroissant.

La géométrie influence également l'écoulement :

- avec un grand entrefer, une faible dépendance de la longueur d'onde λ_x au protocole opératoire est observée, dont la valeur est relativement proche de la longueur d'onde critique. Les configurations à

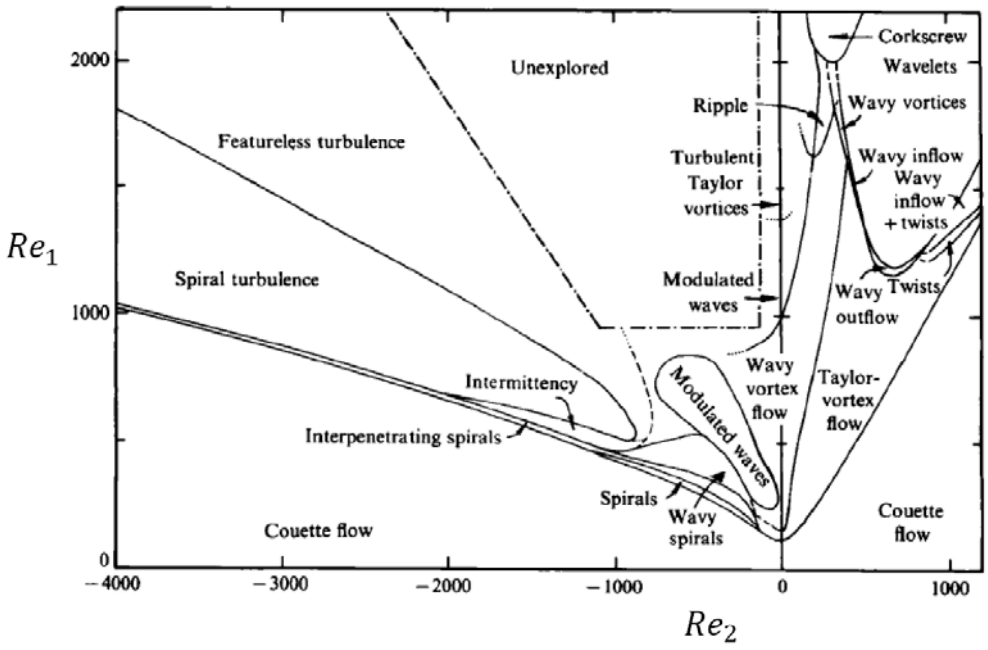


FIGURE 3.4: Cartographie des différents régimes d'écoulement de Taylor Couette, en fonction des nombres de Reynolds (Andereck *et al.*, 1986).

grand entrefer peuvent ainsi être considérées comme relativement robustes de ce point de vue ;

- pour un entrefer plus faible (ou un η plus grand), une multiplicité de longueurs d'ondes est observée en fonction du protocole opératoire et du nombre de Reynolds, etc.

Enfin, les effets liés à la hauteur finie de la colonne peuvent également donner lieu à des effets d'hystérésis : les cellules situées aux bords du dispositif pouvant avoir une taille différente des autres.

Une cartographie de synthèse, réalisée par Chouippe (2012) à partir de plusieurs études dans la littérature, est représentée sur la figure 3.5.

2 Caractérisation de l'écoulement dans les configurations étudiées

La détermination et la caractérisation des écoulements accessibles dans les deux configurations étudiées ont été menées grâce à une campagne de visualisation, selon la méthode décrite au chapitre 2.2. Dans chaque cas, tous les régimes de l'écoulement ont été analysés : $1^{ère}$ instabilité (TVF), $2^{éme}$ instabilité (WVF), $3^{éme}$ instabilité (MWVF), jusqu'à l'écoulement turbulent (TTVF). Pour les deux géométries étudiées les Re de transition ont

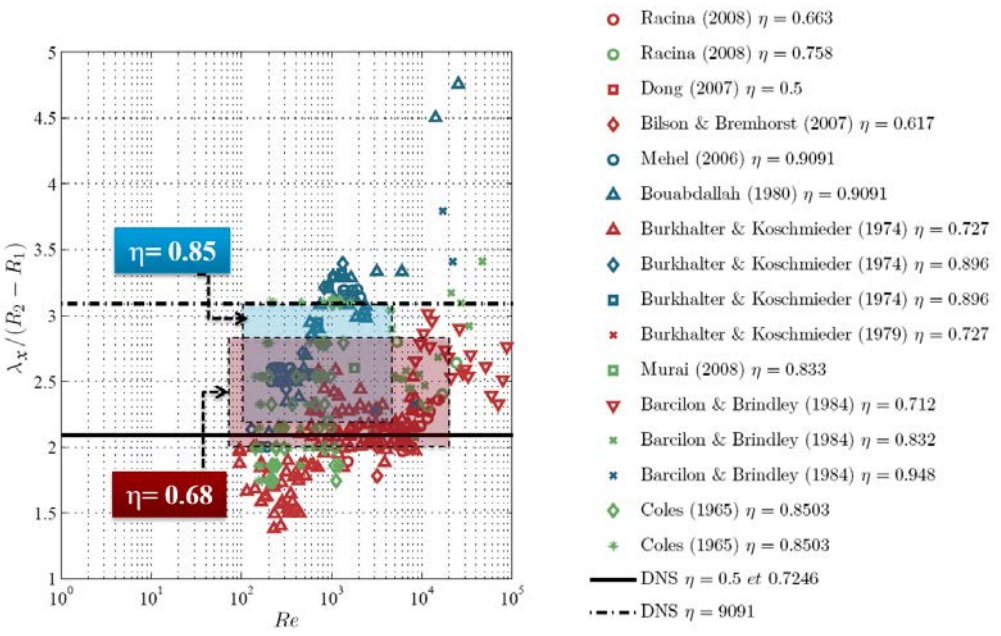


FIGURE 3.5: Cartographie de l'évolution de la longueur d'onde axiale en fonction du nombre de Reynolds et du rapport λ_x/e (Chouippe, 2012).

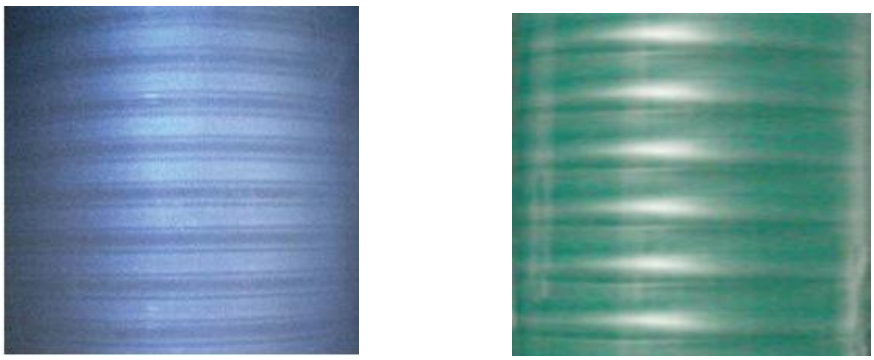
ainsi été déterminés et on a caractérisé l'onde azimutale (fréquence, nombre d'onde et vitesse de phase) par analyse spectrale. Le protocole expérimental permettant d'atteindre ces différents régimes est également consigné et validé dans un souci de reproductibilité.

2.1 Le régime de Taylor (TVF)

La première instabilité est caractérisée par l'apparition des vortex toroïdaux contrarotatifs. Ces rouleaux ont une section approximativement carrée correspondant à la mesure de l'entrefer e. Ils apparaissent à partir d'une valeur critique du nombre de Reynolds Re_c. Par la suite, on caractérisera l'ensemble des régimes d'instabilité par un nombre de Reynolds réduit définit par $Re' = Re/Re_c$. La visualisation avec les particules de Kalliroscope a permis de mettre en évidence les rouleaux de Taylor et de déterminer ainsi les valeurs de Re_c pour chaque configuration.

Pour la colonne d'extraction, les résultats obtenus indiquent : $Re_c = 125$. On a ainsi un bon accord avec les valeurs obtenues par Coles (1965) et Fenstermacher *et al.* (1979), pour une géométrie proche de la nôtre ($\eta = 0{,}877$) : $Re_c = 119$. La corrélation de Esser et Grossmann donne une valeur de $Re_c = 119{,}3$ et celle de Dutcher et Muller une valeur de $Re_c = 122$.

Pour le prototype PIV ($\eta = 0{,}68$), le nombre de Reynolds critique identifié par l'apparition des rouleaux est égal à $Re_c = 79$. Cette valeur est



Colonne 1 ($\eta = 0{,}85$), $Re_c = 125$ Colonne 2 ($\eta = 0{,}68$), $Re_c = 79$

FIGURE 3.6: Visualisation des cellules de Taylor.

également en bon accord avec celle de la littérature : La corrélation de Esser et Grossmann donne une valeur de $Re_c = 79{,}6$ et celle de Dutcher et Muller une valeur de $Re_c = 80$. Takeda *et al.* (1990) ayant déterminé, pour une configuration $\eta = 0{,}65$, un $Re_c = 75$.

Dans les deux cas, l'écart observé entre les valeurs mesurées et celles publiées dans la littérature est faible ($\approx$ 5%), et dû aux incertitudes expérimentales (mesures de la vitesse de rotation, des propriétés du fluide : viscosité, densité, etc.). La figure 3.6 montre une visualisation de ces cellules pour les deux types de géométrie.

En complément de Re_c, la longueur d'onde axiale a été déterminée : $\lambda_x = 2{,}02 \times e$ pour la colonne d'extraction et $\lambda_x = 2{,}09 \times e$ pour la colonne PIV, également en accord avec la littérature ($\lambda_x \approx 2 \times e$).

2.2 Le régime ondulatoire (WVF)

Au delà d'un second seuil, les lignes de séparation des cellules présentent des ondulations qui affectent l'ensemble des vortex et progressent dans le sens de rotation du cylindre. Le mouvement possède alors une double périodicité, identifiée par un couple de nombres d'ondes axiale et azimutale (n,m). A partir des visualisations de l'écoulement, le nombre Reynolds critique d'apparition de cette deuxième instabilité Re_{c2} a été déterminé. Les données mesurées sont une fois encore en bon accord avec celles de la littérature Rudman (1998) :

- pour la colonne d'extraction ($\eta = 0{,}85$) $Re'_{c2} = 1{,}32$;
- pour la colonne PIV ($\eta = 0{,}687$) $Re'_{c2} = 4{,}9$

Une visualisation de ce régime est présentée en figure 3.7.

Sur la plage de Reynolds correspondant au régime WVF, le nombre d'onde azimutal m augmente avec le Re. Il apparaît en outre un caractère de non unicité de l'écoulement selon la manière dont on atteint la vitesse de rotation étudiée. Différents états d'onde (n,m) ont été observés. Ce phénomène s'accompagne d'un effet d'hystérésis : la succession d'états étant généralement différente pour des valeurs croissantes puis décroissantes de la vitesse. Pour les faibles accélérations (t_{acc} [1] $> 100s$), on obtient souvent un nombre d'onde azimutal faible ($1 < m < 3$). Par contre pour les fortes accélérations, m augmente avec le nombre de Reynolds.

Ainsi, pour un même Re deux états d'onde différents $m = 2$ et $m = 6$ ont été obtenus pour $Re = 267$ (voir figure 3.7). Le changement du nombre d'onde azimutal m peut s'accompagner d'un changement de longueur d'onde axiale λ_x.
Les observations ont également montré que pour certains nombres de Reynolds, l'amplitude de la vague peut être plus importante dans la zone inflow qu'en outflow. De même pour le nombre d'onde azimutal m. Ce type d'état d'onde a été seulement observé sur la configuration ($\eta = 0{,}687$) caractérisée par un grand entrefer ($e = 11mm$). Andereck *et al.* (1986) étaient les premiers à identifier ce type de régimes. Ils les appellent « Wavy Inflow boundary » (WIB) et « Wavy Outflow boundary » (WOB).

L'analyse spectrale a permis d'identifier la fréquence caractéristique de chaque état d'écoulement observé, pour les deux types de géométrie. La figure 3.8 montre un exemple de spectre obtenu pour un écoulement WVF dans la colonne PIV (Re =1192, $\lambda_x = 2{,}3 \times e$ et $m = 6$). Sur ce spectre, le pic principal, qui correspond à la fréquence caractéristique f du régime, est bien visible, ainsi que ses harmoniques.

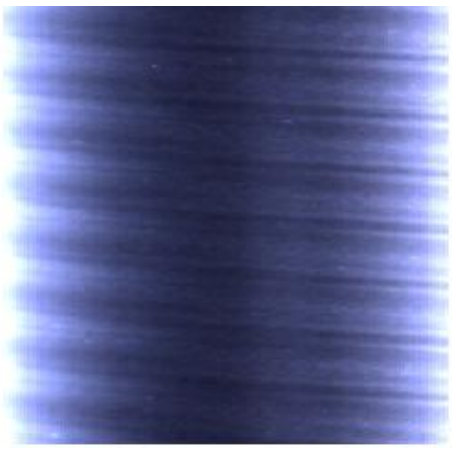
L'ensemble des résultats est présenté dans les tableaux récapitulatifs 3.1 et 3.2 à la fin de ce chapitre.

2.3 Le régime ondulatoire modulé (MWVF)

Lorsqu'on augmente la vitesse de rotation du cylindre interne, une dissymétrie dans le train d'onde azimutale, initialement parfaitement régulier, apparaît et l'écoulement devient plus complexe. L'amplitude des vagues varie périodiquement et on observe une modulation d'amplitude de la vague azimutale (Takeda et Fischer, 1993).

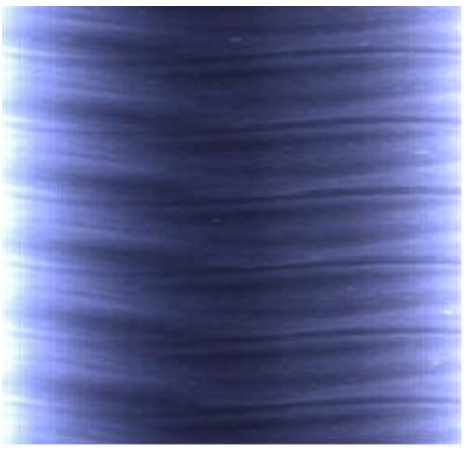
La figure 3.10 montre un spectre représentatif du régime MWVF pour la colonne d'extraction (à $Re = 600$, $\lambda_x = 2{,}41 \times e$ et $m = 4$). Le régime MWVF est caractérisé par l'apparition dans le spectre d'une nouvelle fréquence f' en plus de la fréquence principale f. Les harmoniques de cette nouvelle fréquence, ainsi que des combinaisons linéaires des deux fréquences, sont également observées.

1. t_{acc} temps pour atteindre le Re cible avec une accélération constante



Re=2,14Re_c, t_{acc}=300s, m=2

Re=12Re_c, t_{acc}=300s, m=2



Re=2,14Re_c, t_{acc}=1s, m=6

Re=12Re_c, t_{acc}=1s, m=7

FIGURE 3.7: Visualisation du régime WVF : à gauche la colonne d'extraction et à droite la colonne PIV.

2.4 Le régime de Taylor turbulent (TTVF)

Le régime turbulent commence avec l'apparition de structures chaotiques, de fréquences caractéristiques autour de la fréquence de modulation f'. Cette première phase est parfois définie par un *régime de turbulence naissante*. Elle apparaît vers $Re'_{c4} = 25$.

A l'inverse, le régime *fortement turbulent* est caractérisé par une homogénéisation de l'écoulement en présence des structures turbulentes de petite échelle et par un spectre continu, sans émergence d'aucune fréquence caractéristique. On observe néanmoins, malgré le caractère chaotique, que les cellules de Taylor perdurent encore (figure 3.11).

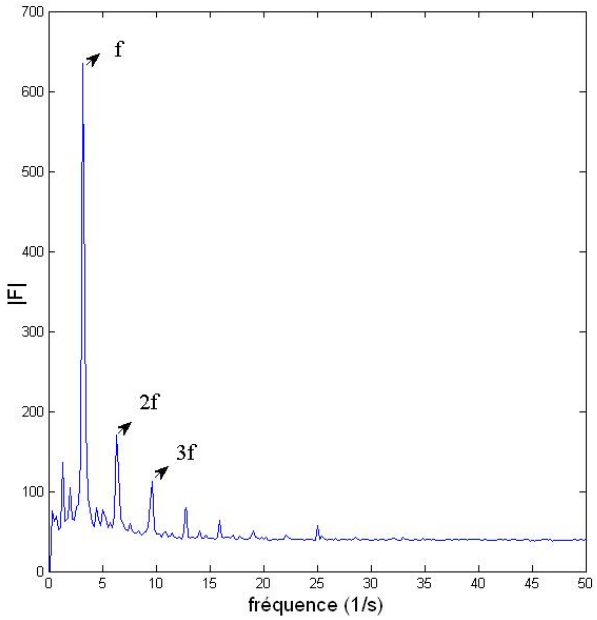
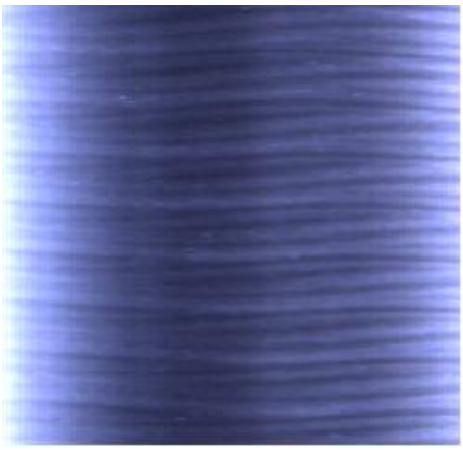


FIGURE 3.8: Spectre caractéristique du régime WVF : Re =1192 (Colonne PIV).

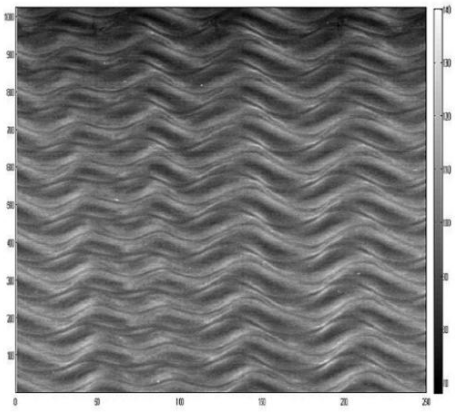


Colonne d'extraction (e =1,5mm), Re =460

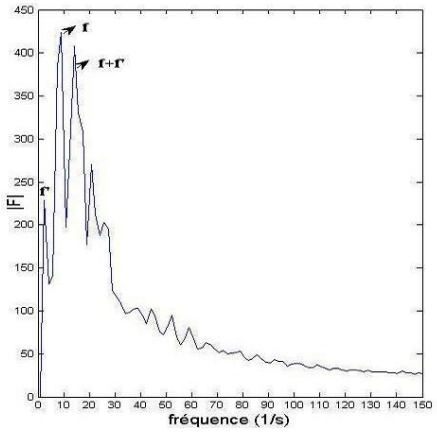
Colonne PIV (e =11mm), Re =1836

FIGURE 3.9: Visualisation du régime MWVF.

Comme le passage au régime turbulent se fait progressivement, on observe toujours sur le spectre la fréquence caractéristique de la modulation qui devient aussi énergétique que l'onde principale (voir figure 3.12). En augmentant davantage le Re, le spectre devient continu.



Visualisation de l'onde



Spectre caractéristique correspondant

FIGURE 3.10: Spectre caractéristique du régime MWVF : Re =600 (Colonne d'extraction).

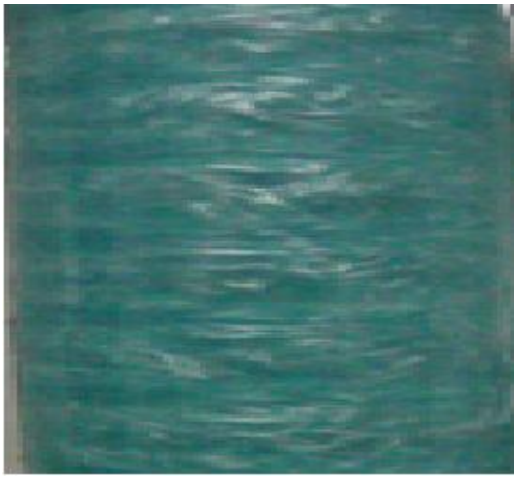
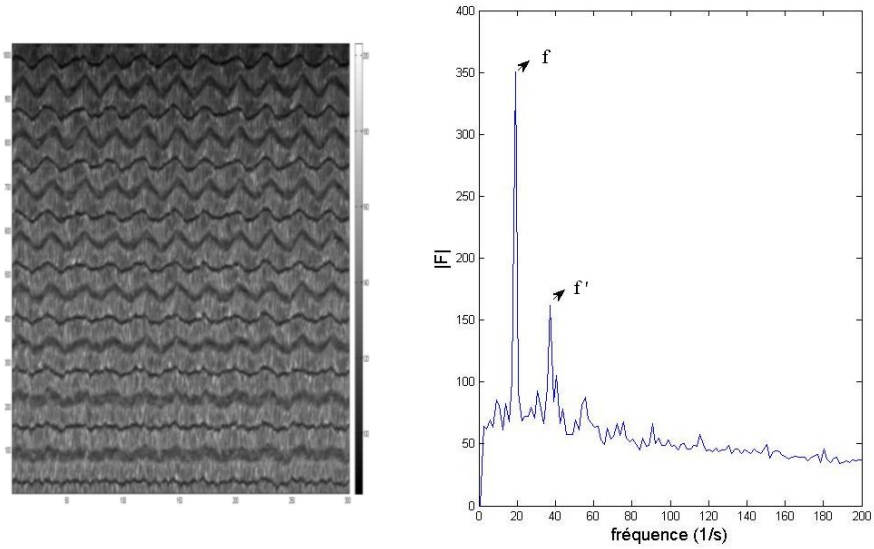


FIGURE 3.11: Visualisation du régime turbulent : $Re = 6000$.

2.5 Récapitulatif des différents régimes

Les différents régimes d'écoulement rencontrés dans nos deux dispositifs sont récapitulés dans les tableaux 3.1 et 3.2. Les conclusions que l'on peut en tirer sont les suivantes :

- L'accélération du rotor influence fortement les différents régimes d'écoulement. Cette influence se traduit par un état d'onde différent (nombre d'onde azimutale et longueur d'onde axiale). Nous avons défini des protocoles expérimentaux pour garantir une bonne reproductibilité des états d'écoulement.



Visualisation de l'écoulement spectre correspondant ($Re = 1700$)

FIGURE 3.12: Spectre caractéristique du régime turbulent.

- Pour une même accélération, le nombre d'onde azimutale et la longueur d'onde axiale augmentent avec le nombre de Reynolds.

- Le régime MWVF est caractérisé par la superposition d'une modulation de fréquence f' à la fréquence principale f.

- Le régime de turbulence est caractérisé par un étalement du spectre autour de la fréquence de modulation f' et la persistance des cellules de Taylor de longueur d'onde axiale $\lambda_x > 3 \times e$. L'onde azimutale persiste un peu au début du régime de la turbulence naissante mais elle finit par disparaître en augmentant le nombre de Reynolds.

- L'écart entre nos mesures et les données issues de la littérature (Re, λ_x, m, f) est en moyenne égal à 5%. Il est dû aux incertitudes de mesures : vitesse de rotation, propriétés physiques des fluides (viscosité, densité), etc.

Régimes d'écoulement	***Re* de transition**	**Caractéristiques**
Cellules de Taylor (TVF)	$Re_c = 125$	$\lambda_x = 2{,}02e$
Régime d'onde (WVF)	$1{,}32Re_c < Re < 5{,}44Re_c$	$\lambda_x = 2{,}19e$ à $2{,}61e$ $m = 2$ à 8
Régime de modulation d'onde (MWVF)	$4{,}8Re_c < Re < 9{,}2Re_c$	$\lambda_x = 2{,}63e$ à $3{,}1e$ $m = 4$ à 7
Turbulent	$Re_c > 9{,}2Re_c$	$\lambda_x > 3{,}05e$

Tableau 3.1: Récapitulatif des régimes d'écoulement pour la colonne « extracteur » ($\eta = 0{,}85$).

Régimes d'écoulement	***Re* de transition**	**Caractéristiques**
Cellules de Taylor (TVF)	$Re_c = 79$	$\lambda_x = 2{,}01e$
Régime d'onde (WVF)	$4{,}9Re_c < Re < 22{,}7Re_c$	$\lambda_x = 2{,}21e$ à $2{,}53e$ $m = 1$ à 7
Régime de modulation d'onde (MWVF)	$22{,}7Re_c < Re < 27Re_c$	$\lambda_x = 2{,}33e$ à $3{,}3e$ $m = 3$ à 9
Turbulent	$Re_c > 27Re_c$	$\lambda_x > 3{,}01e$

Tableau 3.2: Récapitulatif des régimes d'écoulement pour le colonne « PIV » ($\eta = 0{,}687$).

3 Simulation des différents régimes d'écoulement

3.1 Présentation du modèle

3.1.1 Le code JADIM

JADIM est un code de simulation numérique développé depuis une quinzaine d'années au sein du groupe INTERFACE de l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse. JADIM permet la résolution directe des équations de Navier-Stokes (Eq. 3.9 et 3.9) incompressibles, instationnaires et tridimensionnelles sur un maillage curviligne orthogonal. Les équations sont écrites en variables primitives vitesse-pression et sont intégrées à l'aide de la méthode des volumes finis. Les schémas utilisés confèrent au code une précision d'ordre 2 en temps et en espace.

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \tag{3.8}$$

$$(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{uu}) = -\frac{1}{\rho}\nabla P + \nabla \cdot (\mu(\nabla \mathbf{u} + \nabla^t \mathbf{u})) \tag{3.9}$$

Ce code est constitué d'un noyau central permettant la résolution directe des équations de continuité et de bilan de quantité de mouvement. Ce noyau a été utilisé pour traiter par résolution numérique directe de nombreux problèmes d'hydrodynamique locale. A ce noyau central se sont greffés plusieurs modules : le module "Simulation des grandes échelles de la turbulence" (Calmet 1995, Calmet et Magnaudet 1997, Calmet et Magnaudet 2003, Merle 2004, Merle et al. 2005), le module "Suivi Lagrangien de particules et couplage inverse" (Climent 1996, Climent et Magnaudet 1999), le module "Transport d'un scalaire" (Legendre 1996, Legendre et al. 1998), et le module "Suivi d'interfaces mobiles" (Benkenida 1999, Cranga 2002).

3.1.2 Domaine de calcul et maillage

Deux géométries différentes ont fait l'objet de notre étude ($\eta = 0{,}85$ et $\eta = 0{,}687$). Elles ont été simulées sur un système totalement adimensionné où la viscosité est modulée pour ajuster le nombre de Reynolds à la valeur souhaitée. Les simulations sont effectuées en adimensionnant les longueurs par le rayon externe. Ainsi les différentes géométries ont le même rayon extérieur, et c'est la taille du rayon intérieur qui varie d'une géométrie à l'autre. Les vitesses sont normées par la vitesse à la paroi du cylindre intérieur, et c'est la viscosité qui est adaptée pour passer d'un nombre de Reynolds à l'autre. Nous avons choisi de visualiser une à trois paires de tourbillons.

On a utilisé un maillage cylindrique 3D comportant 128 mailles dans la direction axiale et 64 mailles dans les directions radiale et azimutale. La discrétisation est uniforme dans les directions axiale x et azimutale θ et

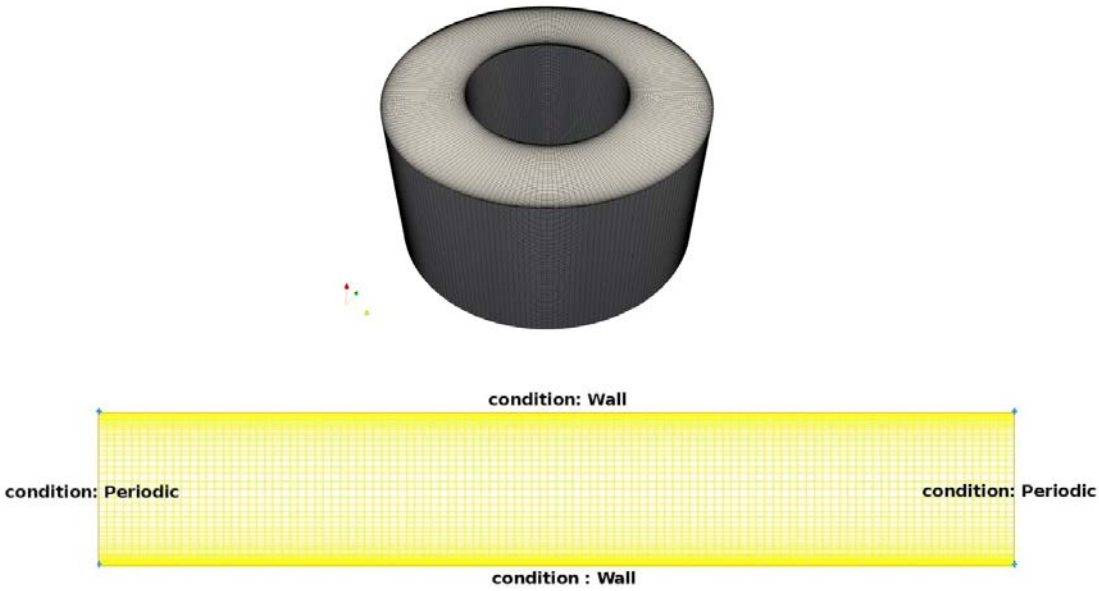


FIGURE 3.13: Maillage et conditions aux limites.

est affinée prés des parois des cylindres dans la direction radiale r comme l'illustre la figure 3.13.

3.1.3 Conditions aux limites

On impose des conditions aux limites périodiques dans les directions axiale x et azimutale θ, et on impose une condition de Dirichlet avec vitesse imposée au niveau des cylindres interne et externe. Le fait de choisir des conditions périodiques dans la direction axiale a pour conséquence d'imposer un nombre discret de longueurs d'ondes axiales réalisables pour les cellules de Taylor. Le choix de la taille du domaine dans la direction axiale est donc important car il imposera la taille et le nombre des structures simulées. Le champ de vitesse est initialisé par un champ nul. La première partie de la simulation a donc pour but de permettre à l'écoulement de se développer (apparition des structures de Taylor, des structures turbulentes de petite échelle, ...). Le couple visqueux s'exerçant sur les deux cylindres a servi d'indicateur sur le développement temporel de l'écoulement.
La sélection du nombre d'onde azimutal m est assuré par l'ajout d'une perturbation sinusoïdale à la composante instantanée u_x de la vitesse dans l'écoulement, lors de la première itération au milieu de l'entrefer sur quelques mailles. La perturbation s'écrit sous la forme :

$$u_x = U_x + A \cdot cos(m\theta) \tag{3.10}$$

l'amplitude A est de l'ordre de $U_{max}/10$ et m correspond au nombre d'onde azimutale souhaité. Ainsi, en se plaçant dans le régime WVF (choix du nombre de Reynolds) la perturbation commence à croître et si la solution est stable on atteint le régime et l'état d'onde souhaités.

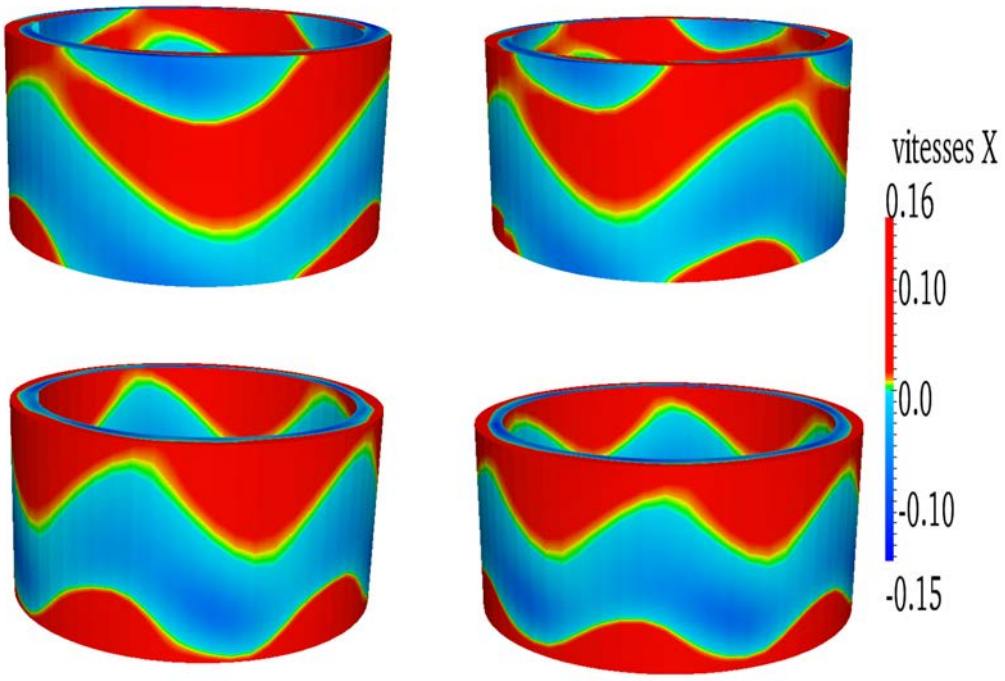


FIGURE 3.14: Sélection de l'état d'onde ($Re = 200$ $\eta = 0{,}85$) : respectivement (de gauche à droite et de haut en bas) m=3, m=4, m=5 et m=6.

3.1.4 Définition des grandeurs statistiques

Afin d'avoir une idée globale sur l'écoulement et de pouvoir comparer les résultats de simulation aux résultats obtenus par mesures PIV, une analyse statistique des résultats est nécessaire. La DNS permet le calcul précis de toutes les échelles d'un écoulement turbulent et restitue donc des champs de vitesse et de pression instantanés. L'analyse statistique consiste à calculer sur la base d'un certain nombre de champs instantanés, qu'on appellera désormais « échantillons », un champ moyen en temps et en espace :

- Moyenne temporelle : la moyenne temporelle notée $< U >_t$ est une moyenne arithmétique sur le nombre d'échantillons considérés

- Moyenne spatiale : la moyenne spatiale est effectuée sur l'une ou sur les deux directions d'homogénéité des tourbillons de Taylor, à savoir la direction axiale et la direction azimutale : $< U >_x, < U >_\theta, < U >_{x,\theta}$.

Pour caractériser la turbulence dans la colonne, une séparation des différentes échelles de l'écoulement est nécessaire. On distingue ainsi les structures à grandes échelles, à savoir les tourbillons de Taylor, et les structures dues à la turbulence à petites échelles.

Dans ce contexte, on définit deux types de fluctuations sur la base des moyennes définies précédemment :

- Fluctuations de vitesses tenant compte des tourbillons de Taylor ainsi que de la turbulence à petite échelle : $u' = U - < U >_{x,\theta,t}$.

- Fluctuations de vitesses dues au seul effet des petites échelles de turbulence, c'est à dire en retranchant aux champs instantanés la contribution moyenne des tourbillons de Taylor : $u" = U - < U >_{\theta,t}$.

3.2 Validation du maillage

On présente dans cette partie les éléments qui ont permis de valider nos simulations. Tout d'abord une validation à partir d'une grandeur globale : le couple de frottement visqueux adimensionnel. Puis une comparaison avec les profils de vitesse moyenne et fluctuante obtenus à partir des mesures PIV.

3.2.1 Couple hydrodynamique

On s'intéresse ici au couple global T_i de frottement visqueux global moyenné temporellement sur le cylindre intérieur. On définit pour cela une

grandeur adimensionnelle G :

$$G = \frac{T_i}{\rho \nu^2 L} \tag{3.11}$$

Wendt (1993) a mesuré le couple de frottement global T_i pour caractériser le frottement à la paroi en fonction de Re et η et a proposé la corrélation ci-dessous :

$$G = 1{,}45 \frac{\eta^{3/2}}{(1-\eta)^{7/4}} Re^{1,5} \quad pour\, 4.10^2 \leq Re \leq 10^4 \tag{3.12}$$

$$G = 0{,}23 \frac{\eta^{3/2}}{(1-\eta)^{7/4}} Re^{1,7} \quad pour\, 10^4 \leq Re \leq 10^5 \tag{3.13}$$

La figure 3.15 donne l'évolution de G avec le nombre de Reynolds pour les deux géométries considérées dans notre étude. On a représenté à la fois l'évolution donnée par les corrélations de Wendt (1933), et les données issues de nos simulations. Les tests effectués sur le maillage $N_x = 128$ - $N_r = 64$ - $N_\theta = 64$ ont montré un bon accord avec les corrélations de Wendt (1993).

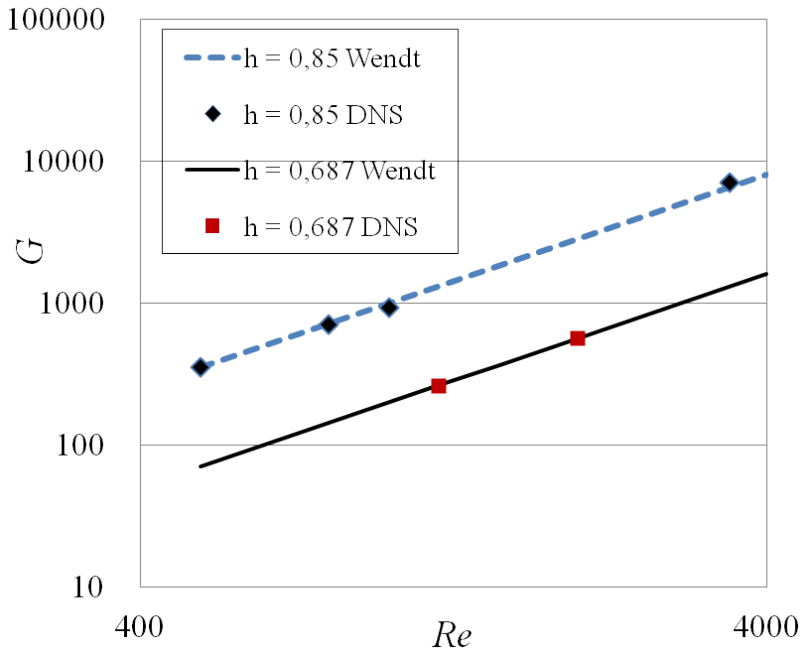


FIGURE 3.15: Evolution du couple moyen adimensionné G avec le nombre de Reynolds. Comparaison avec la corrélation de Wendt.

3.2.2 Comparaison avec la PIV

i/ Notations

Les mesures PIV sont réalisées dans le plan méridien (r_x), avec x la direction axiale x et r l'axe radial. Pour la comparaison avec les simulations, la composante axiale de la vitesse est notée U et la composante radiale V. Afin de réaliser les statistiques nécessaires à l'analyse de l'écoulement, les composantes de la vitesse sont considérées comme des fonctions de l'espace et du temps dont les valeurs instantanées peuvent être décomposées en valeurs moyennes et fluctuantes :

$$U(x,r,t) = \bar{U}(x,r,t) + u(x,r,t) \tag{3.14}$$

et

$$V(x,r,t) = \bar{V}(x,r,t) + v(x,r,t) \tag{3.15}$$

Toutes les grandeurs caractéristiques de l'écoulement (positions et vitesses) ont été adimensionnalisées. La taille de l'entrefer e a été choisie pour adimensionnaliser les positions radiales r et axiales x. Les deux composantes de vitesse (radiale et axiale) ont été adimensionnalisées par la vitesse du cylindre interne ΩR_i.

ii/ Comparaison

Pour la géométrie $\eta = 0{,}687$ on a comparé les profils de vitesse moyenne issus des simulations avec ceux des mesures PIV. On constate que les profils coïncident très bien même dans les zones proches parois (voir figures 3.16 et 3.17). Ce qui confirme que le couple obtenu grâce aux simulations est proche de la valeur réelle. On constate cependant un écart notable pour les profils de valeurs RMS (u^2 et v^2) en proche paroi qui peut être dû à des problèmes de mesure.

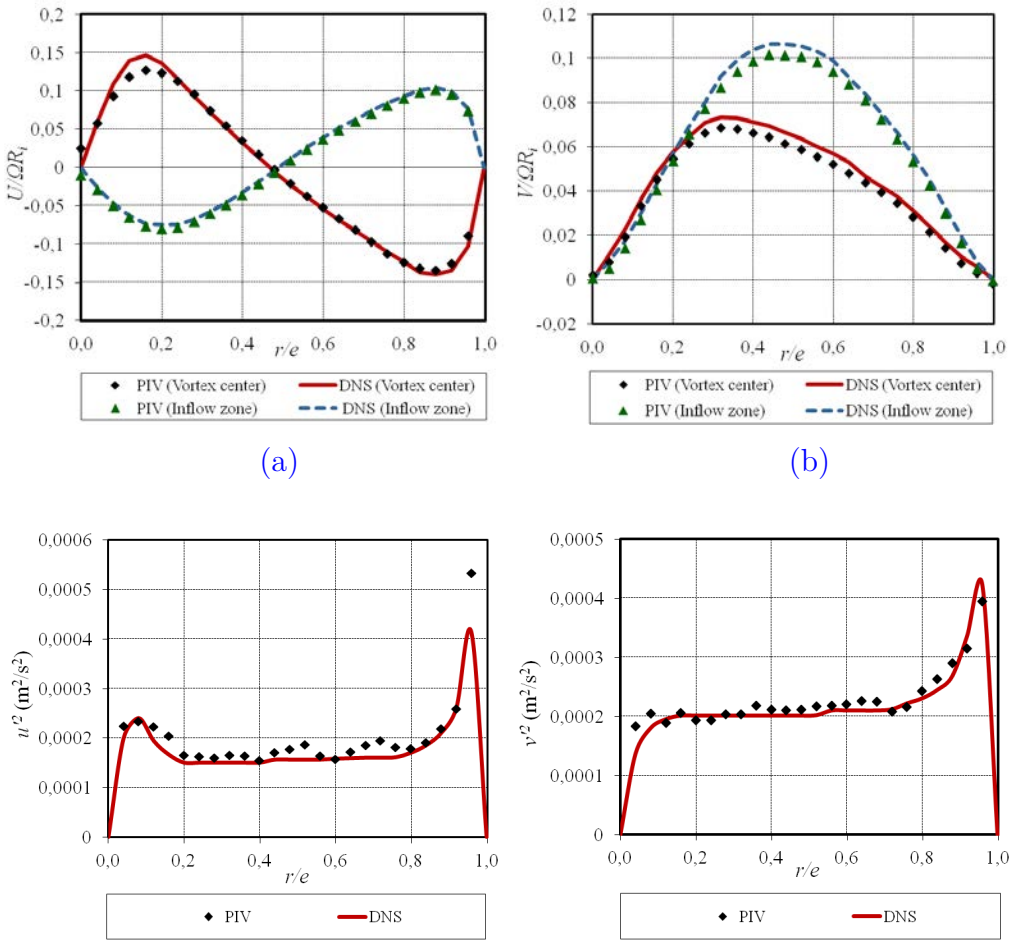
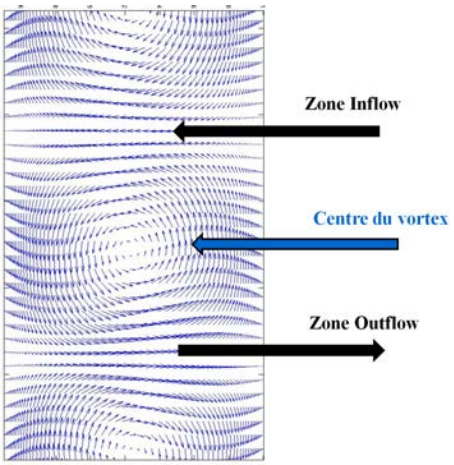


FIGURE 3.16: Comparaison entre les profils de vitesse moyenne issus des simulations et les mesures PIV ($Re = 318$ et $\eta = 0{,}687$).



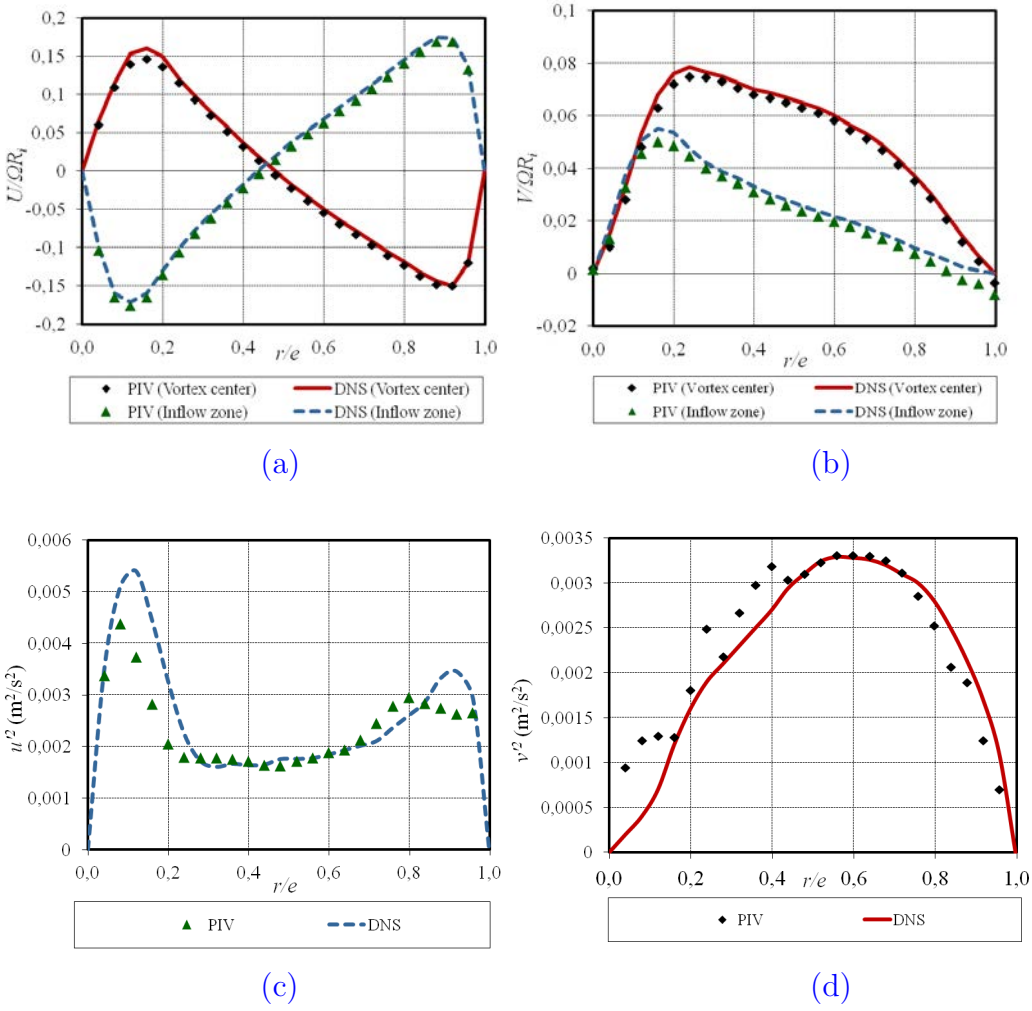


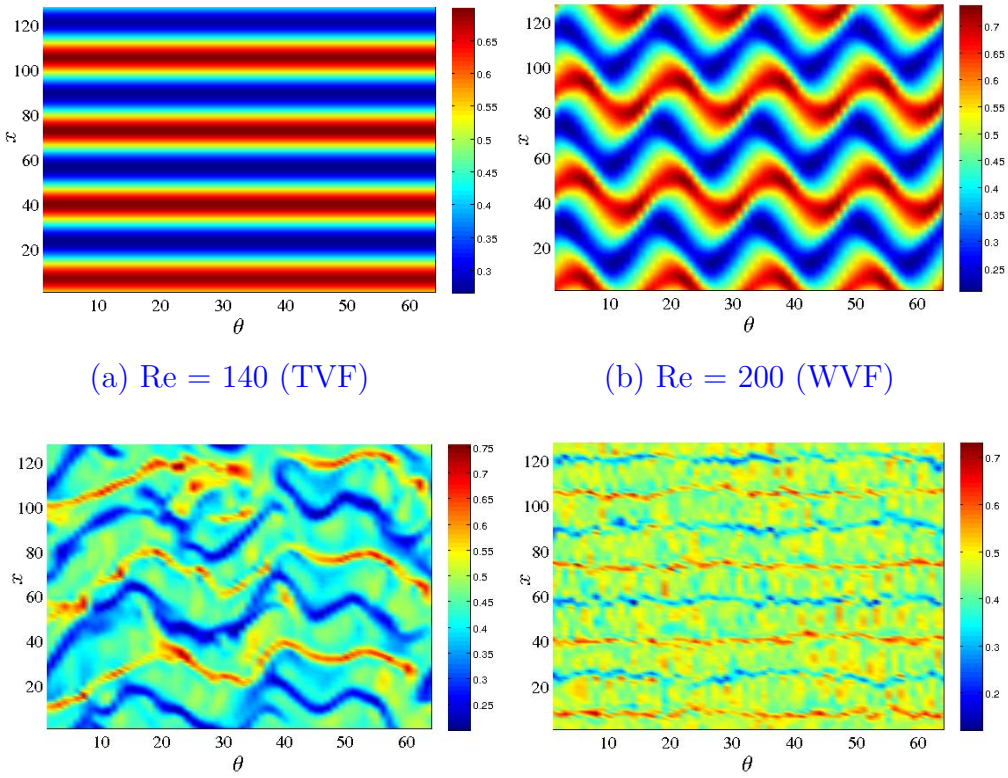
FIGURE 3.17: Comparaison entre les profils de vitesse moyenne issus des simulations et les mesures PIV ($Re = 953$ et $\eta = 0{,}687$).

4 Caractérisation de l'écoulement de Taylor-Couette : PIV & DNS

Dans cette partie, on se propose de caractériser les régimes d'écoulements accessibles dans les deux configurations étudiées grâce aux résultats PIV et DNS pour la configuration $\eta = 0{,}687$ et aux résultats DNS pour la configuration $\eta = 0{,}85$. Pour tous les régimes nous procédons tout d'abord à une visualisation de la structure de l'écoulement, en s'appuyant sur les résultats DNS, pour les comparer avec les résultats de visualisation expérimentale présentés précédemment en section 2. Ensuite nous procédons à une description du champ de vitesse en s'appuyant sur les résultats PIV et DNS. Nous nous intéressons particulièrement aux régimes ondulatoires (WVF et MWVF).

4.1 Visualisation de la structure de l'écoulement

Pour visualiser la structure de l'écoulement on trace le contour de la composante azimutale de vitesse au centre de l'entrefer ($r = e/2$). La cartographie des différents régimes est représentée sur les figures 3.18 et 3.19 respectivement pour les géométries $\eta = 0{,}85$ et $\eta = 0{,}687$.
Les figures montrent la succession d'instabilités, soit dans l'ordre croissant du nombre de Reynolds Re : les régimes TVF, WVF, MWVF et TTVF. On retrouve les structures contrarotatives de grande échelle correspondant aux rouleaux de Taylor de forme torique régulièrement disposées dans la direction axiale. La transition vers le régime des vagues (WVF) se traduit par l'apparition d'une onde azimutale. Les lignes de séparations des cellules ne sont plus dans des plans perpendiculaires à l'axe, mais présentent des ondulations qui affectent l'ensemble des vortex (voir figures 3.18 (b) et 3.19 (b)). Le mouvement possède alors une double périodicité identifiée par un couple de nombre d'onde axiale et azimutale (n,m). A l'apparition de la troisième instabilité (MWVF), on observe une modulation d'amplitude de l'onde. Une dissymétrie dans le train d'ondes, initialement parfaitement régulier, apparaît et l'écoulement devient plus complexe (figures 3.18 (c) et 3.19 (c)). La transition vers le régime turbulent s'accompagne de l'apparition de structures turbulentes qui viennent contaminer les rouleaux de Taylor.
Les nombres de Reynolds de transition prédits par les simulations DNS sont en bon accord avec ceux qu'ont été identifiés par les expériences de visualisation en particulier pour la première transition (TVF) et la deuxième (WVF). Par contre pour les autres transitions on a observé quelques écarts qui ne dépassent pas les 5 % (l'écart observé varie en fonction de la longueur du domaine choisi).



(a) Re = 140 (TVF) (b) Re = 200 (WVF)

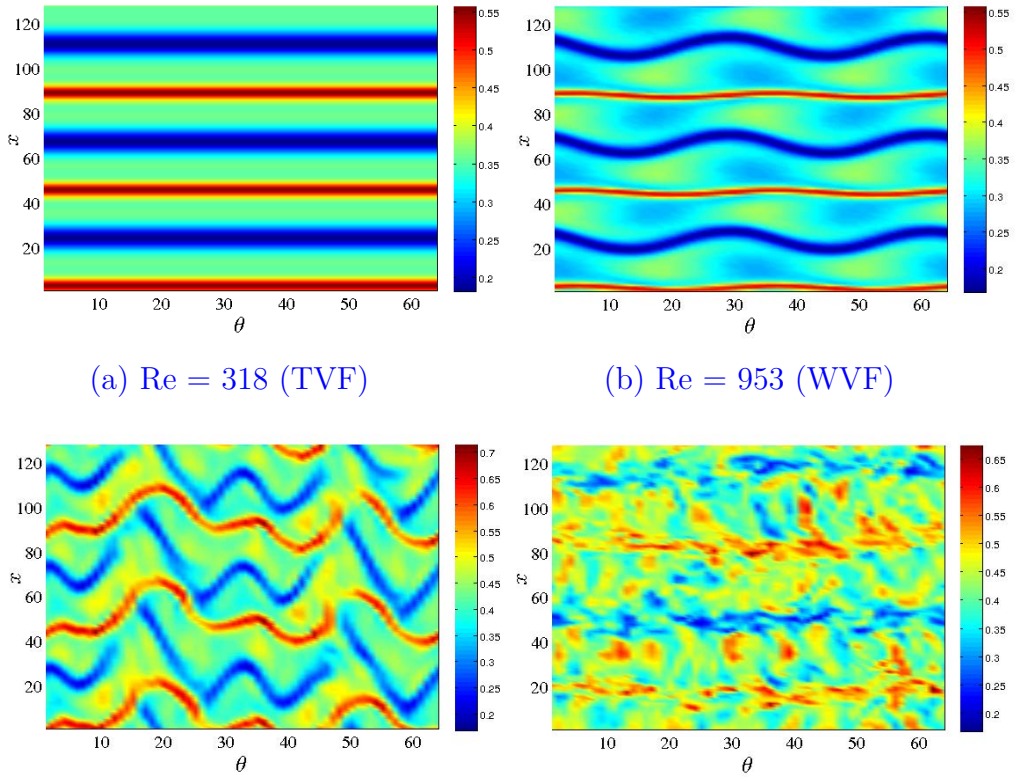
(c) Re = 800 (MWVF) (d) Re = 3500 (TTVF)

FIGURE 3.18: Visualisation des différents régimes d'écoulement : champ de vitesse azimutale au centre de l'entrefer ($\eta = 0{,}85$).

La visualisation de la structure de l'écoulement peut également être illustrée grâce aux résultats PIV. La figure 3.20 montre une visualisation instantanée des rouleaux de Taylor pour trois nombres de Reynolds différents pour la géométrie $\eta = 0{,}687$. Les trois cas appartiennent à des régimes différents :

- pour $Re = 80$, on retrouve les rouleaux de Taylor régulièrement disposés dans la direction axiale ;
- à $Re = 636$, il y a apparition des vagues (régime WVF) ;
- les résultats à $Re = 6000$ montrent les rouleaux de Taylor contaminés par la turbulence.

Les champs de vitesse obtenus par les mesures PIV correspondent au même hauteur du domaine ($\approx 5 \times e$). On retrouve les paires de rouleaux contrarotatifs caractérisées par une alternance positive et négative de la composante axiale. Cette périodicité est caractérisée par une longueur d'onde axiale λ_x. On observe une augmentation de λ_x en fonction du nombre de Reynolds, qui a permis de valider les résultats obtenus lors



(a) Re = 318 (TVF) (b) Re = 953 (WVF)

(c) Re = 1980 (MWVF) (d) Re = 4000 (TTVF)

FIGURE 3.19: Visualisation des différents régimes d'écoulement : champ de vitesse azimutale au centre de l'entrefer ($\eta = 0{,}687$).

des expériences de visualisation ($2{,}09e < \lambda_x < 2{,}7e$). Nous rappelons que le choix des dimensions du domaine pour les simulations DNS a été fait en fonction des valeurs recueillies lors des mesures expérimentales (visualisations et PIV).

En complément des visualisations instantanées, la moyenne du champ de vitesse dans la direction azimutale rend bien compte de la structure de l'écoulement et de la présence des rouleaux de Taylor même pour les régimes turbulents, où les rouleaux constituent les structures à grandes échelles de l'écoulement.

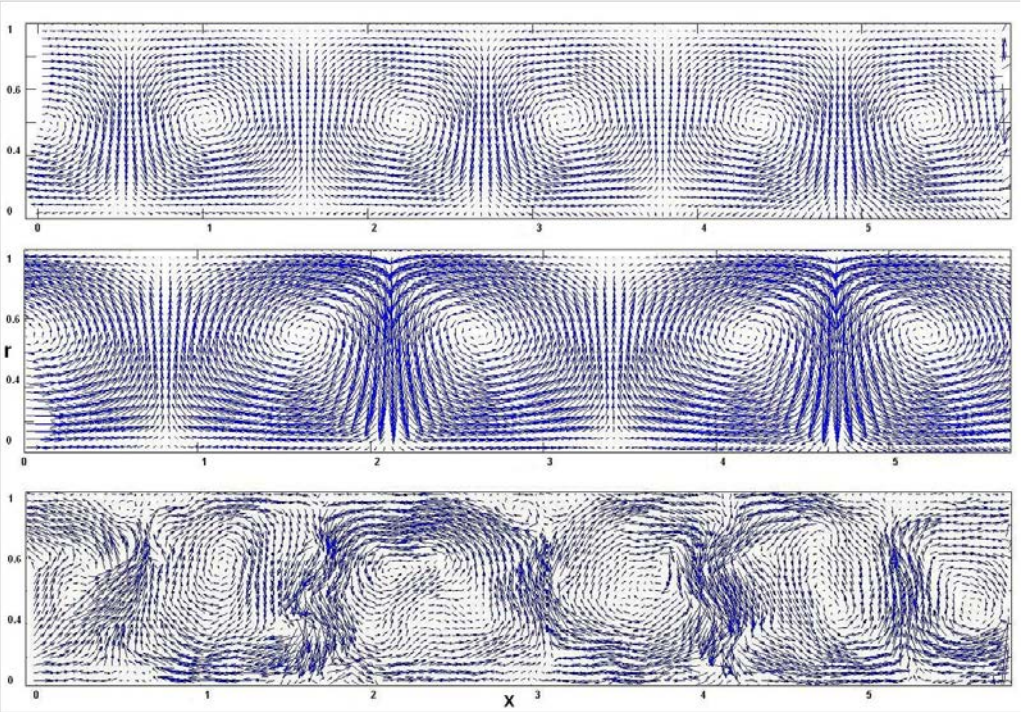


FIGURE 3.20: Champs de vitesse instantanée dans le plan $(r - x)$ obtenus par les mesures PIV pour la géométrie $\eta = 0{,}687$(du haut en bas : Re=80 (TVF), Re=636 (WVF) et Re=6000 (TTVF)).

4.2 Caractérisation du champ de vitesse

Cette partie a pour but d'exploiter les résultats des simulations et des mesures PIV afin de caractériser le champ de vitesse pour les différents régimes. On s'intéressera spécifiquement au comportement du champ de vitesse au centre des vortex et dans les zones entre les vortex adjacents (« inflow » et « outflow »). Cela va être présenté en termes de :

- Contours des trois composantes de vitesse instantanée et moyenne (DNS)
- Profil radial des composantes de la vitesse moyenne (PIV et DNS)
- Profil radial des fluctuations de la vitesse (PIV et DNS)
- Profil axial des composantes de la vitesse moyenne (PIV et DNS)

4.2.1 Le régime TVF

Les contours des différentes composantes de la vitesse instantanée, pour les deux géométries étudiées ($\eta = 0{,}85$ et $\eta = 0{,}687$), sont représentés respectivement sur les figures 3.21 et 3.22. Les champs instantanés montrent la présence des structures contrarotatives correspondants aux rouleaux de Taylor (alternance de vitesses positives et négatives). Les

champs permettent aussi d'identifier la présence de jets correspondants aux zones de inflow et outflow.

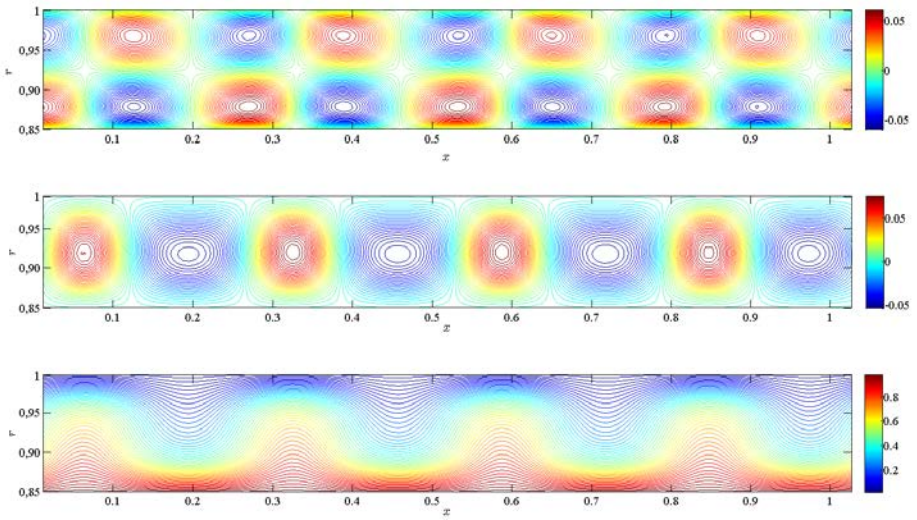


FIGURE 3.21: Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0{,}85$ à $Re = 120$ (TVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ.

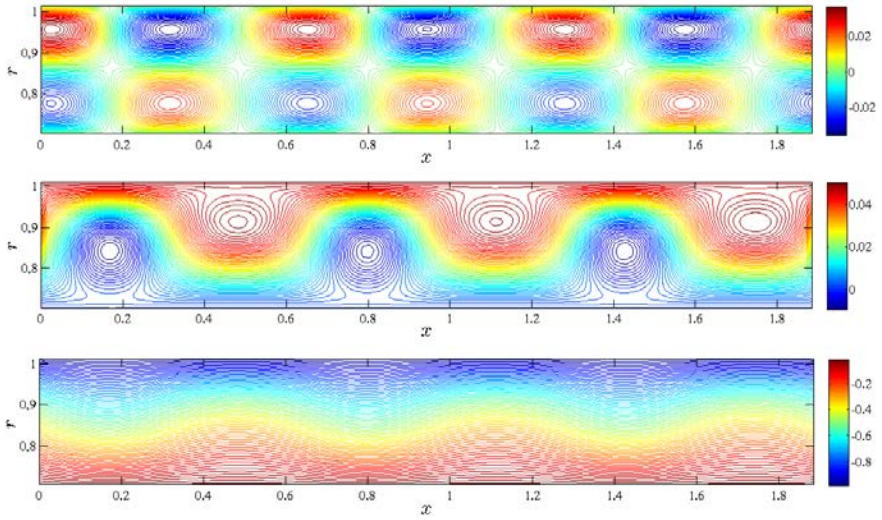
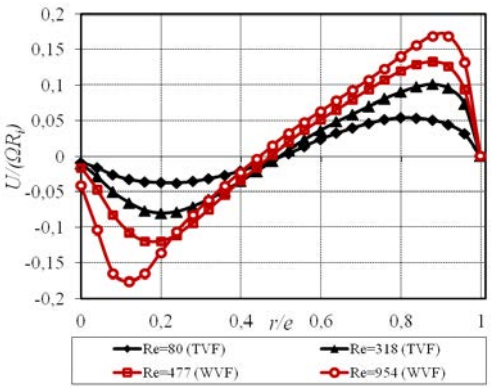
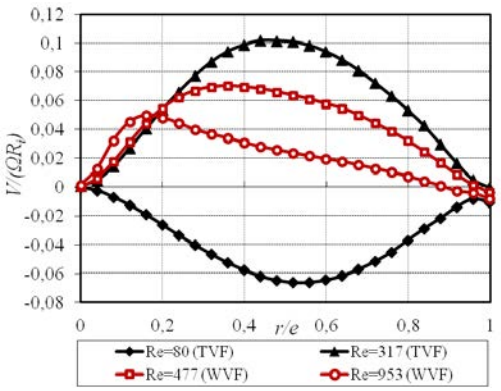


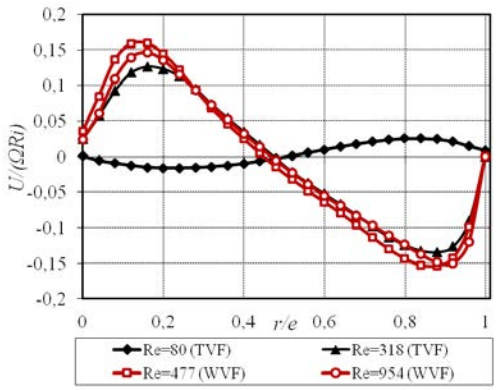
FIGURE 3.22: Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0{,}687$ à $Re = 318$ (TVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ.



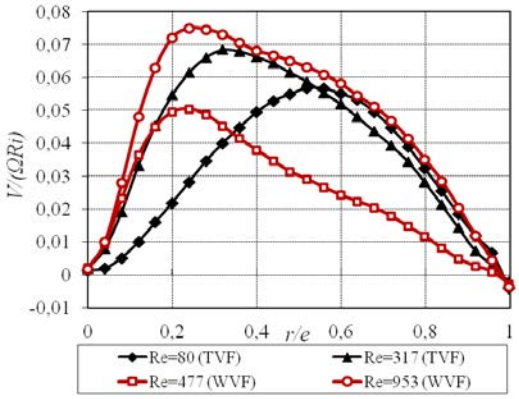
(a) $x/e = 2{,}9$ (Inflow)



(b) $x/e = 2{,}9$ (Inflow)

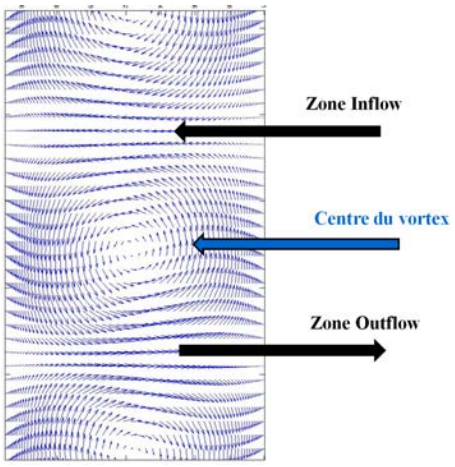


(c) $x/e = 1{,}5$ (Vortex center)



(d) $x/e = 1{,}5$ (Vortex center)

FIGURE 3.23: Profils radiaux des composantes radiales et axiales de la vitesse moyenne ($\eta = 0{,}687$).



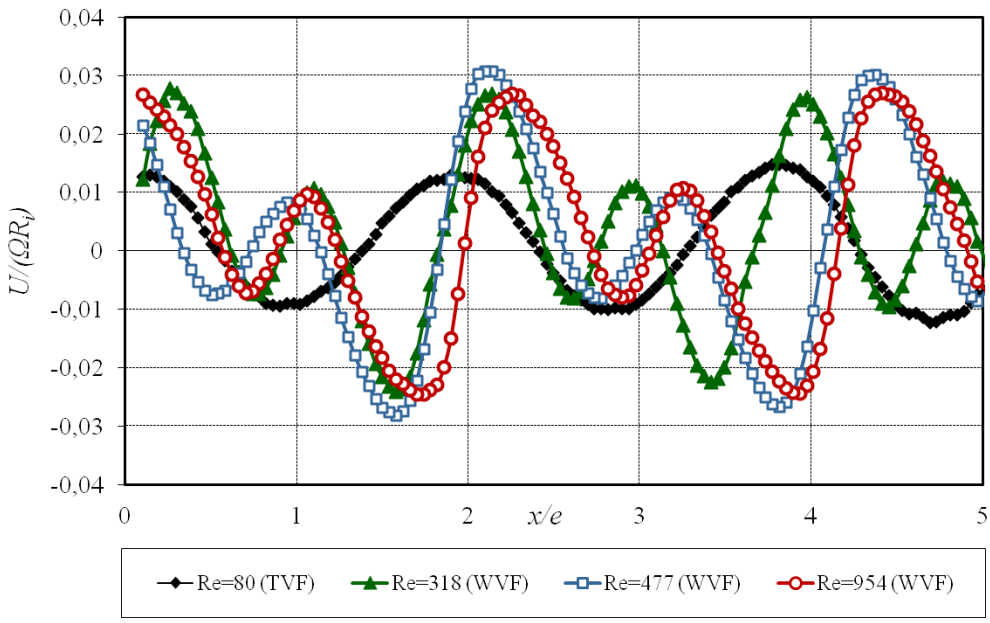


FIGURE 3.24: Profil axial de la composante radiale de la vitesse moyenne au milieu de l'entrefer ($r = e/2$) pour plusieurs nombres de Reynolds (PIV $\eta = 0{,}687$).

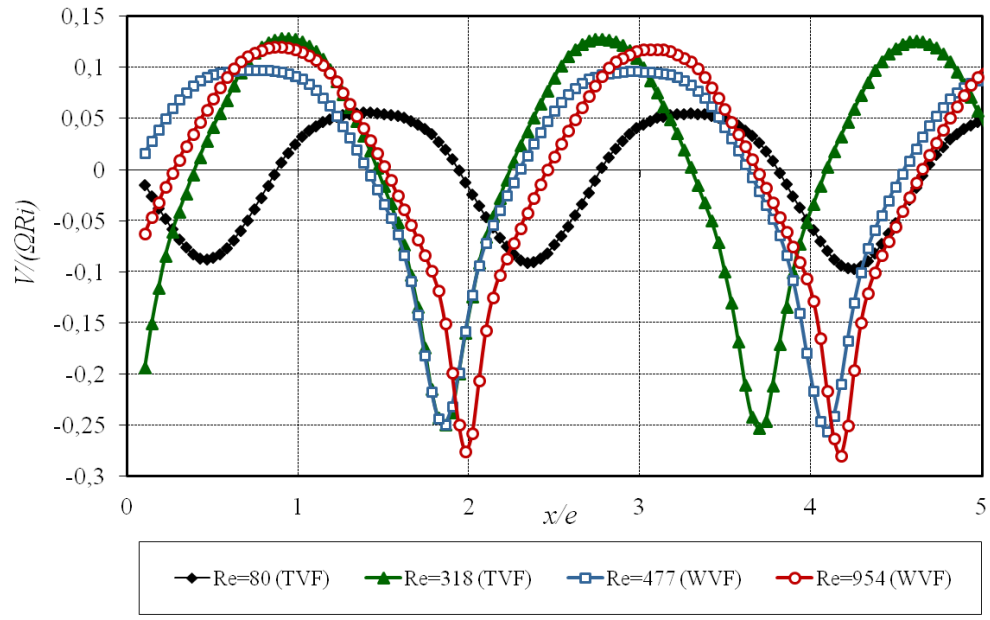


FIGURE 3.25: Profil axial de la composante axiale de la vitesse moyenne au milieu de l'entrefer ($r = e/2$) pour plusieurs nombres de Reynolds (PIV $\eta = 0{,}687$).

4.2.2 Le régime WVF

Les contours des champs de vitesse instantanée pour le régime WVF sont représentés sur les figures 3.26 et 3.27 respectivement pour les deux géométries étudiées ($\eta = 0{,}85$ et $\eta = 0{,}687$). L'alternance positive et négative de la composante axiale montre que l'écoulement garde sa périodicité axiale malgré l'apparition des vagues. On note cependant un resserrement des lignes iso-valeurs dans la zone outflow et un étirement dans la zone inflow. Cela est dû à l'échange de quantité de mouvement entre les vortex, qui est en effet plus important dans les régions inflow qu'en outflow. Cette observation sera confirmée dans la suite (Chapitre 4) en terme de mélange intervortex à l'aide des champs de concentration. Marcus (1984) a également mis en évidence ce phénomène grâce à des simulations numériques en WVF.
Le contour de la composante azimutale montre l'importance des jets radiaux dans les zones inflow et outflow. On note également l'importance des gradients de vitesses dans les régions outflow en proche paroi.
La figure 3.23 montre l'évolution avec le nombre de Re des profils radiaux de la vitesse moyenne axiale et radiale issus des mesures PIV en deux positions, une au centre d'un vortex et l'autre à l'extrémité d'un vortex (zone inflow). Les vitesses radiales et axiales sont beaucoup plus faibles que la vitesse azimutale (principale direction de l'écoulement). La composante radiale est maximale au milieu de l'entrefer. Les profils dépendent fortement de la position du plan de mesure par rapport aux tourbillons de Taylor. En effet, la composante radiale est maximale aux extrémités des vortex et elle est importante près du cylindre interne. Par contre, la composante axiale est faible aux centres des vortex. Elle change de signe au milieu de l'entrefer. On observe que les maxima de vitesse axiale se situent à environ $x = 0{,}25$ et $x = 1 - 0{,}25$. Ces maxima augmentent avec le nombre de Re et leurs positions se décalent vers les parois. Les mêmes tendances ont été observées expérimentalement par Wereley et Lueptow (1999) et (Akonur et Lueptow, 2003).
Le profil axial de la vitesse axiale moyenne mesurée (PIV) au centre d'un vortex est présenté sur la figure 3.24 pour plusieurs nombres de Reynolds. L'alternante positive et négative met en évidence l'évolution de la longueur d'onde axiale λ_x en fonction du Re. On retrouve les valeurs identifiées à l'aide des visualisations : $\lambda_x \approx 2 \times e$ pour le régime TVF et λ_x qui varie entre $2{,}21 \times e$ et $2{,}53 \times e$ pour le régime WVF.

Pour le régime WVF, les champs de vitesse instantanée montrent que les vortex oscillent à la fois axialement et radialement. Sur une période, le volume d'un vortex croît d'abord (flux ascendant) puis se rétrécit (flux descendant). En effet, la taille des vortex varie suivant la direction azimutale (position de la vague) et dans le temps. Cela se traduit par un mouvement périodique des centres des vortex et des frontières entre les vortex. La

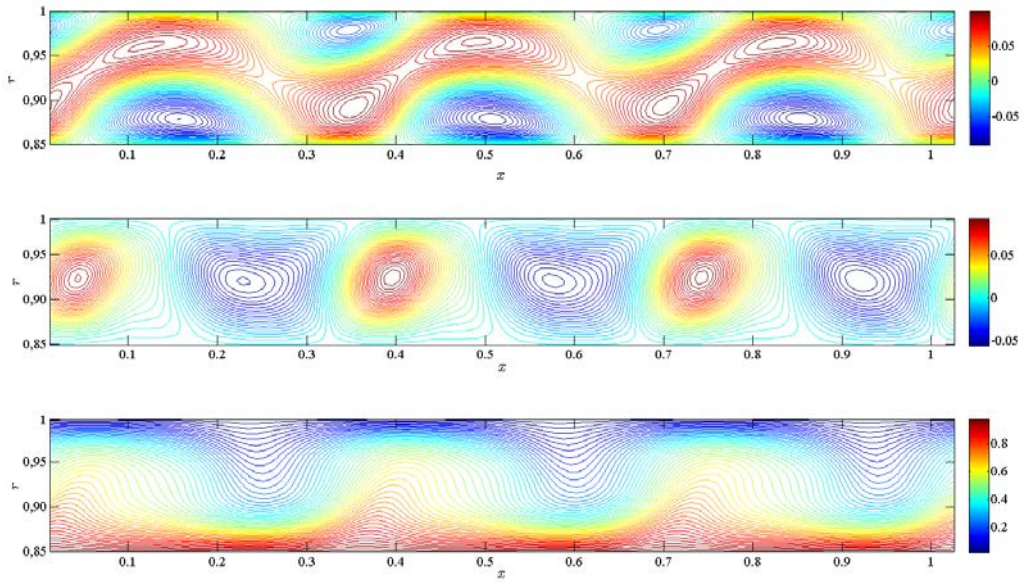


FIGURE 3.26: Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0{,}85$ à $Re = 200$ (WVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ.

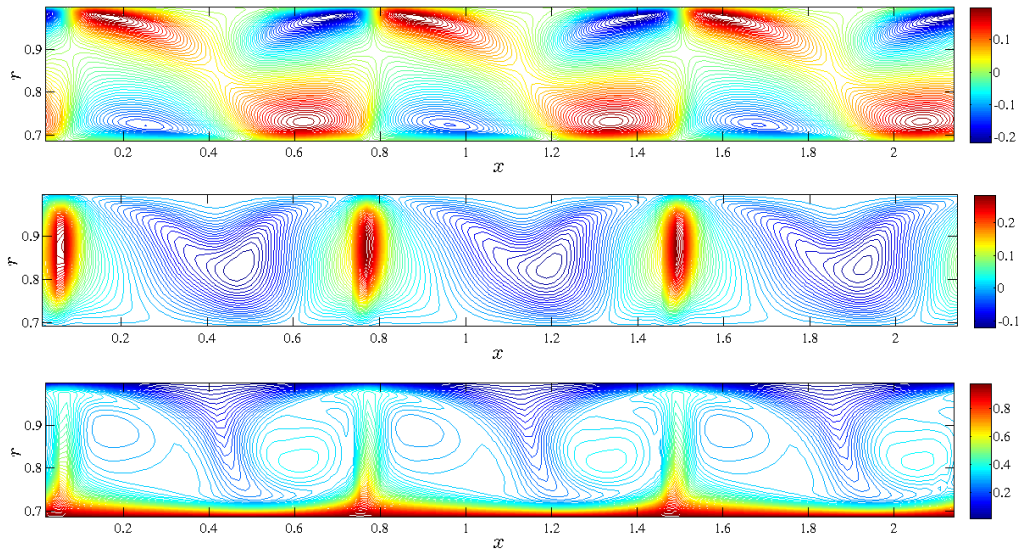


FIGURE 3.27: Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0{,}687$ à $Re = 477$ (WVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ.

figure 3.28 montre bien ce mouvement périodique. Sur cette figure on trace le champ de vitesse pour cinq valeurs de la phase qui constituent une période de la vague. Les résultats montrent que chaque vortex subit une déformation périodique de croissance et de rétrécissement. A certains moments le vortex augmente de taille comme il se remplit de fluide issu des vortex adjacents, tandis qu'à d'autres il rétrécit car il cède du fluide à ses vortex adjacents. Les contours de vitesse instantanée issus des simulations DNS (3.26 et 3.27) montrent également la déformation des vortex induite par le mouvement de la vague azimutale.

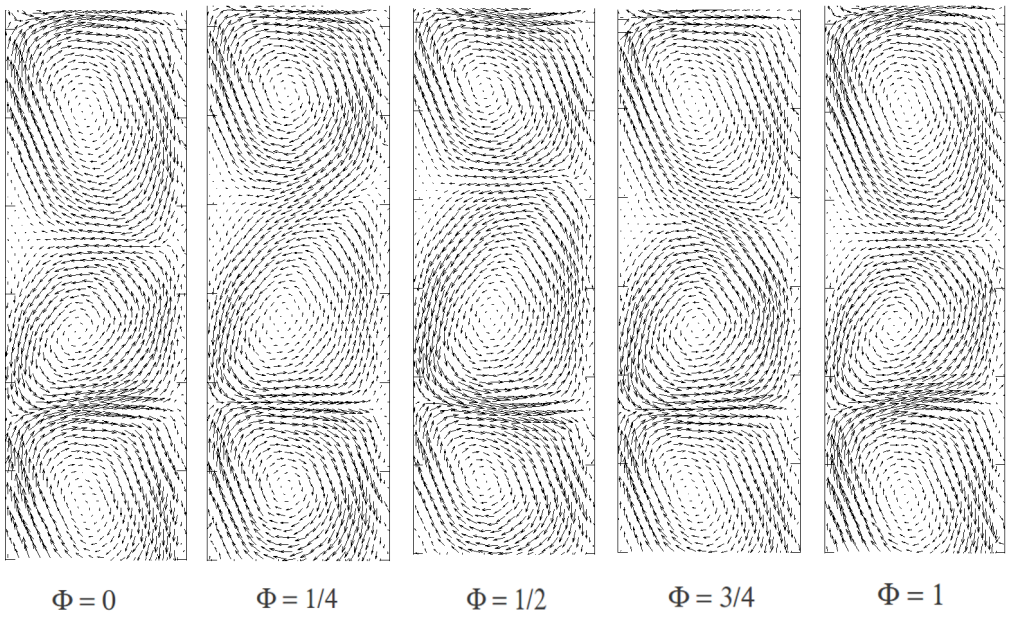


FIGURE 3.28: Champs de vecteurs vitesse instantanée (PIV) dans le plan $(r - x)$ sur une période, pour la géométrie $\eta = 0{,}687$ à $Re = 795$ (WVF) : de gauche à droite : $\Phi = 0$, $\Phi = 1/4$, $\Phi = 1/2$, $\Phi = 3/4$ et $\Phi = 1$. La phase est adimensionnée par 2π.

Pour suivre ce mouvement on s'est appuyé sur les champs de vitesse issus des mesures PIV, pour la configuration ($\eta = 0{,}687$). Ce suivi est assuré sur la base de l'évolution de la norme de la composante axiale de vitesse en proche paroi (voir figure 3.29). En effet, la norme est minimale dans les régions inflow et outflow ce qui permet de suivre la frontière séparant deux vortex adjacents. Le résultat du suivi est présenté dans la figure 3.30.
Le mouvement des lignes séparant les vortex est plus important dans la zone inflow qu'en outflow. Par exemple pour $Re = 795$ le déplacement est 8 fois plus grand ($\approx 5mm$ pour la zone inflow et seulement $\approx 0{,}6mm$ pour la zone outflow). Cela est dû à l'importance de l'amplitude de la vague dans les régions inflow par rapport à celles en outflow. Ce type d'état d'onde a

été seulement observé sur la configuration ($\eta = 0{,}687$) caractérisée par un grand entrefer ($e = 11mm$) (voir la section 2 de ce chapitre). En effet, pour certains Re, on a observé deux états d'onde différents dans les zones inflow et outflow. Andereck *et al.* (1986) étaient les premiers à identifier ce type de régime. Ils les appellent « Wavy Inflow boundary » (WIB) et « Wavy Outflow boundary » (WOB).

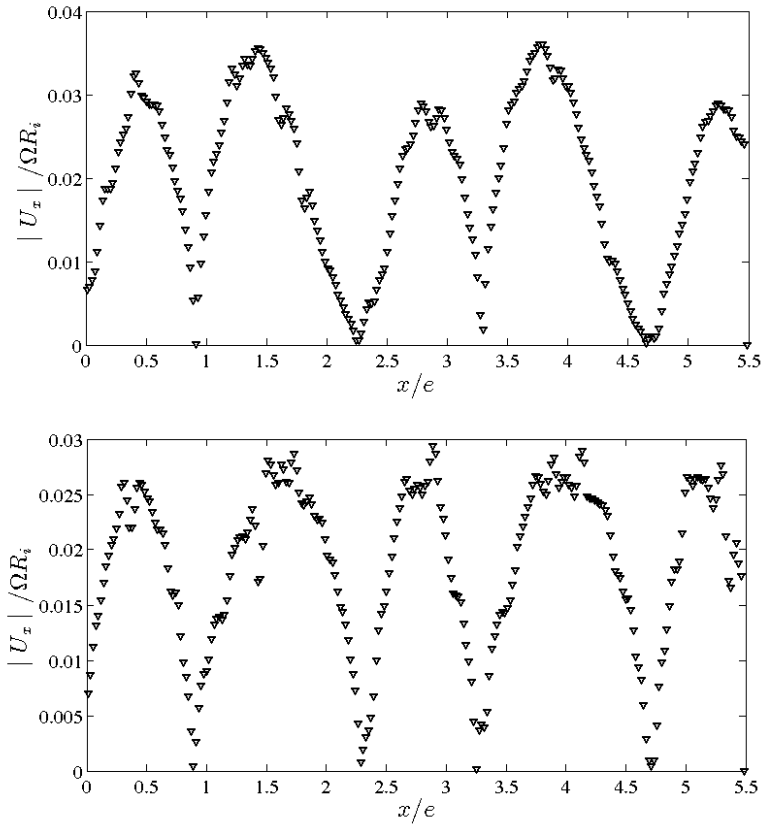


FIGURE 3.29: Évolution de la norme de la composante axiale de la vitesse en proche paroi $|U_x|$, pour la géométrie $\eta = 0{,}687$ à $Re = 795$ (WVF) : du haut en bas : $|U_x|$ coté cylindre extérieur et $|U_x|$ coté cylindre intérieur.

Afin d'estimer l'évolution de la taille d'un vortex avec le mouvement de la vague azimutale, on s'est appuyé sur la méthode de suivi de la frontière qui sépare les vortex adjacents à partir des champs de vitesse expliquée précédemment. Connaissant ainsi à chaque instant les positions des extrémités des vortex, noté P_i, on peut calculer la surface occupée à chaque instant par chaque vortex , notée s_i. La surface calculée est ensuite normalisée par la surface d'une « cellule de Taylor » (formée par deux vortex adjacents contrarotatifs qui correspondent à une longueur d'onde axiale λ_x) de taille constante, notée S. Un exemple de résultat de suivi est représenté sur la figure 3.31. Les résultats montrent que la taille d'un vortex peut varier entre

35% et 65% de la taille de la cellule de Taylor ($S \approx cte$). Le degré de variation est directement lié à l'état d'onde de la vague azimutale et en particulier son amplitude.

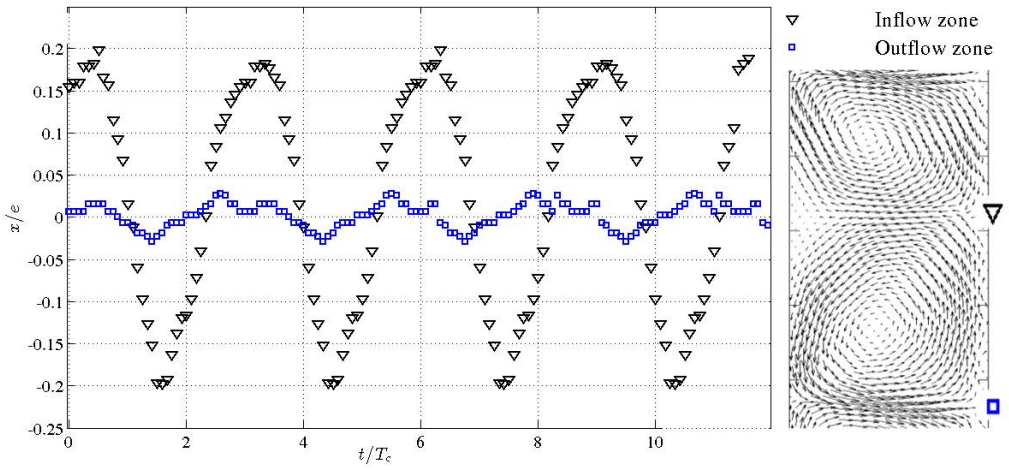


FIGURE 3.30: Évolution de la position des frontières séparant deux vortex adjacents pour la géométrie $\eta = 0{,}687$ à $Re = 795$ (WVF).

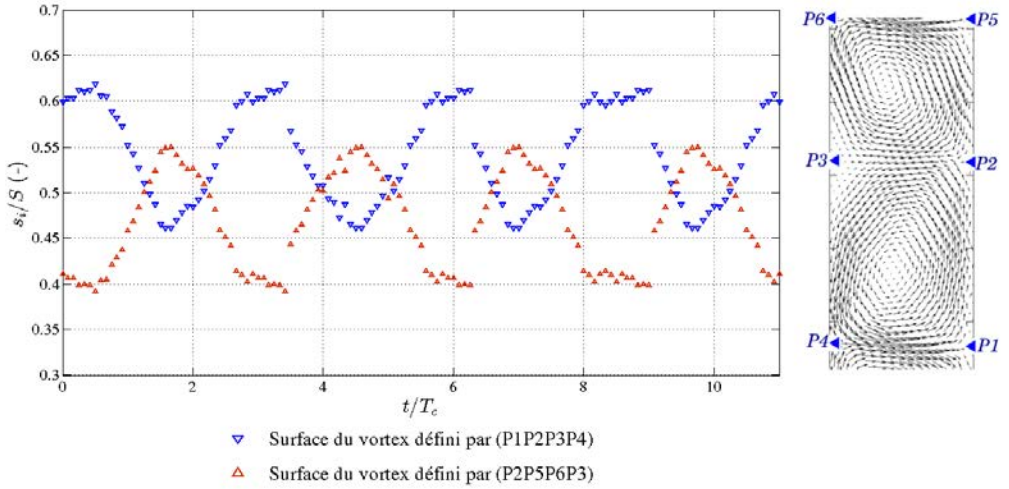


FIGURE 3.31: Évolution de la surface de deux vortex adjacents sur plusieurs périodes de la vague azimutale pour la géométrie $\eta = 0{,}687$ à $Re = 795$ (WVF).

4.2.3 Le régime MWVF

La figure 3.32 présente une cartographie des isocontours des trois composantes de la vitesse instantanée dans un plan $(r - x)$. La figure montre bien l'augmentation des gradients de vitesse près des parois des cylindres par rapport au régime WVF. On observe également une déformation plus importante des rouleaux ce qui complique le suivi du mouvement des frontières entre les vortex adjacents.

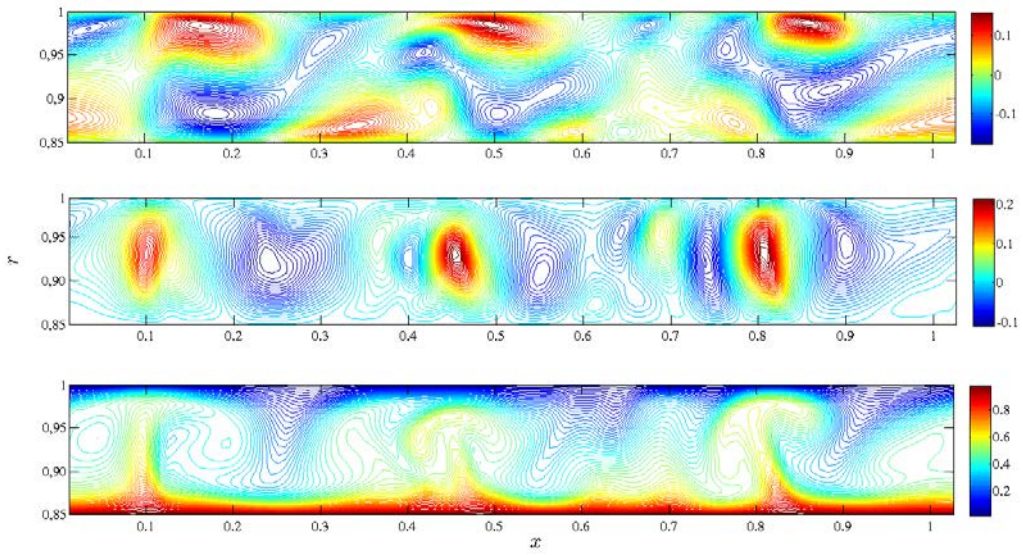


FIGURE 3.32: Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0{,}85$ à $Re = 800$ (MWVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ.

4.2.4 Le régime TTVF

Le contour des différentes composantes de la vitesse instantanée dans un plan $(r - x)$ est présenté sur la figure 3.33. On observe un amincissement de la couche limite et une déformation très marquée de cette dernière sous l'effet du cisaillement. Les gradients de vitesse sont plus importants dans les zones outflow, coté cylindre extérieur et dans les zones inflow, coté cylindre intérieur. Les résultats montrent également l'apparition de petites structures turbulentes. Cependant, le champ moyen confirme la persistance des structures à grandes échelles (rouleaux de Taylor).

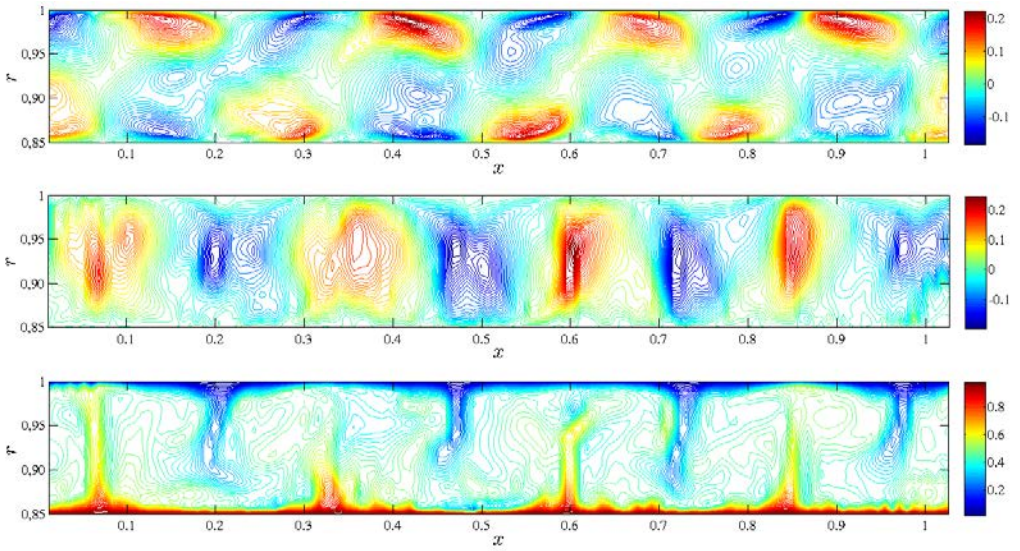


FIGURE 3.33: Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0{,}85$ à $Re = 3500$ (TTVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ.

5 Synthèse

Ce chapitre nous permet de disposer d'un ensemble de données de référence sur l'écoulement monophasique de Taylor-Couette dans ses différentes configurations. L'écoulement a été qualifié grâce à des visualisations et à des mesures PIV. Nous avons exploré les différents régimes : TVF, WVF, MWVF et TTVF. Chaque régime identifié a ensuite été reproduit par simulation numérique directe (DNS). Des comparaisons avec les mesures PIV ont permis de valider les résultats numériques.
Les visualisations couplées avec l'analyse spectrale ont permis de mettre en évidence le caractère de non-unicité d'états d'onde. En effet, les résultats ont montré que l'accélération du rotor influence notablement les différents régimes d'écoulement. Cette influence se traduit par un état d'onde différent (nombre d'onde azimutale m et longueur d'onde axiale λ_x). Nous avons ainsi défini des protocoles expérimentaux pour garantir une bonne reproductibilité du régime d'écoulement.

6 Références

Akonur, A. et Lueptow, R. (2003). Chaotic mixing and transport in wavy Taylor-Couette flow. *Physica D*, 167:183–196.

Andereck, C., Liu, S. et Swinney, H. (1986). Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics*, 165:155–183.

Burkhalter, J. et Koschmieder, E. (1973). Steady supercritical Taylor-vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 58:547 – 560.

Burkhalter, J. et Koschmieder, E. (1974). Steady supercritical Taylor vortices after sudden starts. *Physics of fluids*, 17:1929–1935.

Chouippe, A. (2012). *Étude numérique de la réduction de traînée par injection de bulles en écoulement de Taylor-Couette*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.

Coles, D. (1965). Transitions in circular Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 21:385–425.

Davey, A. (1962). The growth of Taylor vortices between rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics*, 14:336.

Dutcher, C. et Muller, S. J. (2009). Spatio-temporel mode dynamics and higher order transitions in high aspect ratio newtonian Taylor-Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 641:85–113.

Esser, A. et Grossmann, R. (1996). Analytic expression for taylor-couette stability boundary. *Physics of fluids*, 8:1814.

Fenstermacher, P., Swinney, H. et Gollub, J. (1979). Dynamical instabilities and the transition to chaotic Taylor vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 94:103–127.

Koschmieder, E. (1979). Turbulent Taylor vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 93:515–527.

Marcus, P. (1984). Simulation of Taylor-Couette flow. numerical results for wavy-vortex flow with one travelling wave. *Journal of Fluid Mechanics*, 146:65–113.

Rudman, M. (1998). Mixing and particle dispersion in the wavy vortex regime of Taylor-Couette flow. *AIChE Journal*.

Takeda, Y. et Fischer, W. (1993). Experimental observation of the quasi-periodic modes in a rotating Couette system. *Physical Revew E*, 47:4130–4134.

Takeda, Y., Kobashi, K. et Fischer, W. (1990). Observation of the transient behaviour of Taylor vortex flow. *Experiments in Fluids*, 9:103–127.

Taylor, G. (1923). Stability of a viscous liquid contained between two rotating cylinders. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 223:289–343.

Wendt, F. (1993). Turbulente Strömungen zwischen zwei rotierenden konaxialen Zylindern. *Ingenieur Archiv*.

Wereley, S. et Lueptow, R. (1999). Velocity field for Taylor-Couette flow with an axial flow. *Physics of Fluids*, 11(12):3637–3649.

Mixing mechanisms in Taylor-Couette flow : local approach

4

Sommaire

1 Experimental study : « Experimental investigation of mixing in Taylor-Couette flow patterns » 85
1.1 Introduction 85
1.2 Methodology 87
1.2.1 Description of the apparatus 87
1.2.2 Measurement techniques 89
1.3 Velocity and concentration fields 91
1.3.1 Flow characterization 91
1.3.2 Concentration field : Observation 93
1.4 Properties of mixing 96
1.4.1 Mixing in TVF regime 98
1.4.2 Mixing in wavy regime 100
2 Numerical study 106
2.1 Introduction 106
2.2 Particle tracking results 106
2.3 Stretching and mixing 111
3 Summary 114
4 Références 115

This chapter is dedicated to the investigation of the different mechanisms of mixing in TVF et WVF regimes. Both intravortex mixing and intervortex mixing were studied experimentally and numerically. This chapter consists of two main parts :

- The first part is based on an article submitted in Physics of Fluids. It focus on investigating mixing by means of simultaneous PIV and PLIF measurements.
- The second part is dedicated to the study of mixing based on computational fluid particles tracking .

1 Experimental study : « Experimental investigation of mixing in Taylor-Couette flow patterns »

1.1 Introduction

Annular centrifugal contactors based on Taylor-Couette flow geometry have a great potential in chemistry, metallurgy and, since the prior works of Davis et Weber (1960), in the nuclear industry where they are particularly suitable for small-scale studies of solvent extraction processes. Since the pioneering work of Taylor (1923), Taylor-Couette flow has been extensively studied due to its non-linear dynamics. It is an academic flow known to evolve towards turbulence through a sequence of successive hydrodynamic instabilities as the inner cylinder rotation rate increases. Beyond a critical speed of the rotating cylinder, pure azimuthal Couette flow results in the formation of toroidal vortices, called Taylor Vortex Flow (TVF). This critical condition is expressed by the Taylor number or equivalently by the Reynolds number (Re_c) based on the gap width e, the inner cylinder linear velocity ΩR_i and the fluid viscosity ν. At higher Reynolds numbers a secondary instability causes the flow to become time-dependent due to the appearance of an azimuthal wave (deformation of the vortices). This flow state, known as Wavy Vortex Flow (WVF), is characterized by : an axial wavelength λ_x and an azimuthal wavenumber noted m. As Re further increases, the wavy flow becomes increasingly modulated by additional frequencies (MWVF) and eventually becomes turbulent (TTVF).

These flow instabilities have been the topic of many studies (Coles (1965), Fenstermacher *et al.* (1979), Andereck *et al.* (1986)). Such flow patterns provide high values of heat and mass transfer coefficients, which explains why some important industrial operations, such as emulsion polymerization (Kataoka *et al.*, 1995), heterogeneous catalytic reactions (Legrand et Coeuret, 1986), bioreactor applications (Haut *et al.* (2003), Hill *et al.* (2006), Dusting et Balabani (2009)) and liquid-liquid extraction (Davis et Weber, 1960), can take advantage of Taylor-Vortex equipment.

Mass transport in Taylor-Couette flow has been the subject of numerous experimental and numerical studies (Campero et Vigil (1997), Desmet *et al.*

(1996), Desmet *et al.* (996b), Kataoka *et al.* (1975), Tam et Swinney (1987), Rudman (1998)). Two main mechanisms are responsible for mixing : the intravortex mixing related to the velocity field within each vortex and the intervortex mixing related to the characteristics and topology of the flow connecting each flow circulation. Intravortex mixing consists in circumferential mixing and meridional mixing. For TVF flow, Kataoka et Takigawa (1981) highlighted the existence of a weak inter-cell exchange which justify the assumption of considering each vortex as a disconnected cell. That is why, in order to model axial dispersion, most studies have used either the one dimensional diffusion model or the multi-stirred tanks in series model (Kataoka *et al.* (1975), Tam et Swinney (1987), Moore et Cooney (1995)). Later, Legrand et Coeuret (1986) have discussed the absence of intervortex transport which was contradicted by several authors (Pudijioni *et al.* (1992), ...). As the rotation speed of the inner cylinder increases, the apparition of waves enhances intravortex mixing noticeably (Desmet *et al.* (1996), Desmet *et al.* (996b)) as well as the intervortex mixing (Akonur et Lueptow, 2003b). The wavy perturbation breaks the stream surface separating neighbouring vortices which results in an enhancement of intervortex mixing and consequently axial dispersion. Desmet *et al.* (1996) combined the plug flow and mixing tank models into a single two zone model. In their model, the outer zone stands for the well-mixed fluid near boundaries and the inner zone corresponds to the vortex core. More recently, Campero et Vigil (1997) used the same approach as Desmet *et al.* (1996) and proposed a 3-parameter model that takes into account non-ideal mixing in the inner region. When a weak axial flow is superimposed to the Taylor-Couette flow (PTC, Poiseuille Taylor Couette), the cellular vortices, wherein toroidal motion of fluid elements yields efficient mixing, are transported by the axial motion of the Taylor vortices. Such a flow system can be considered as a near-ideal plug-flow reactor (PFR).

In the present study, mixing in Taylor-Couette flow patterns is investigated. We focus on the mixing mechanisms controlling the axial dispersion in wavy regimes. A global dispersion coefficient is generally used to represent the mixing phenomena. Both numerical (Rudman (1998), Nemri *et al.* (2012)) and experimental (Nemri *et al.*, 2012) studies have revealed a significant effect of the flow state on the mixing properties. Indeed, in the wavy flow regimes (WVF and MWVF) where a multiplicity of wavy states can be achieved, D_x may vary significantly for the same Reynolds number. Our objective is to investigate the relationship between the physics of the flow and the axial mixing, using simultaneous PIV-PLIF measurements. We intended to quantify the respective role of intravortex and intervortex mixing on axial dispersion in both TVF and WVF regimes.
The influence of the flow bifurcations as well as the multiplicity of wave states were also studied in order to understand the non-monotonically behaviour of the axial dispersion coefficient observed in our previous study (Nemri *et al.*, 2012).

1.2 Methodology

1.2.1 Description of the apparatus

The experimental device consists in two concentric cylinders with the inner one rotating and the outer cylinder fixed. A prototype, with gap width, $e = 11$ mm, was specially designed for specific optical investigations (PIV, PLIF). The geometry is characterized by the radius ratio η and the aspect ratio Γ (see Table 1).
The main features of the experimental device are shown in Fig. 4.1.

Parameters	Dimensions
Inner cylinder radius (R_i)	24 mm
Outer cylinder radius (R_e)	35 mm
Gap width ($e = R_e - R_i$)	11 mm
Radius ratio ($\eta = R_i/R_e$)	0.687
Length (L)	640 mm
Aspect ratio ($\Gamma = L/e$)	50
Inner cylinder rotation speed (Ω)	4-1000 rpm

Tableau 4.1: Apparatus geometry and operating conditions.

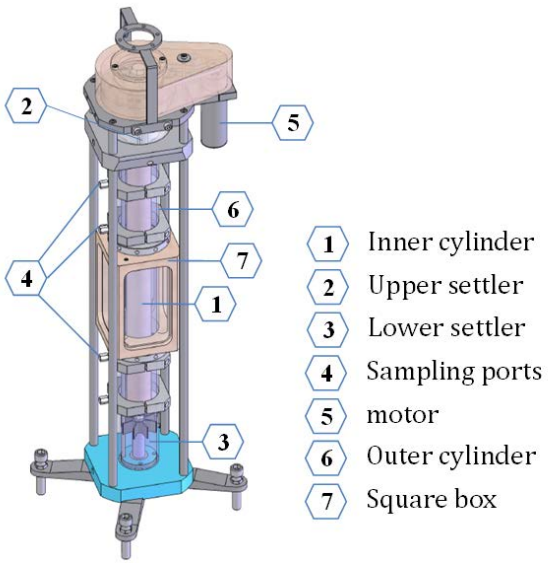


FIGURE 4.1: Schematic presentation of the apparatus ($\eta = 0.687$).

The inner cylinder is driven by a reduction motor guided by a speed regulator system. A ramp generator controls the rotor acceleration during transient evolution to the desired Reynolds number. Indeed, for the same Reynolds number, Re, using different acceleration ramps provides various

flow states (Dutcher et Muller, 2009). Therefore, a given wave state is selected by following a prescribed start-up protocol.

- An impulsive start from rest to the target rotation speed.
- A gradual acceleration from rest to the desired rotation speed at a constant rate during 300 seconds.
- A gradual deceleration from a specified rotation speed Re_0 in turbulent regime to the desired rotation speed at a constant rate during 5 seconds.

These procedures ensure reproducibility of our measurements. For each case, the flow pattern was visualized in an aqueous solution seeded with Kalliroscope AQ-1000 flakes. These particles consist in small light-reflecting slabs which align themselves along streamlines. Using a high-speed camera, the different transitions can been identified (Fig 4.2 (a)-(b)). In order to fully characterize the different wavy regimes, a spectral analysis of the data was performed to determine the wave state (axial and azimuthal wave numbers). The different cases studied in this paper are summarized in Table 4.2. A visualization of two different wave states is shown in Fig. 4.2 with their respective power spectra.

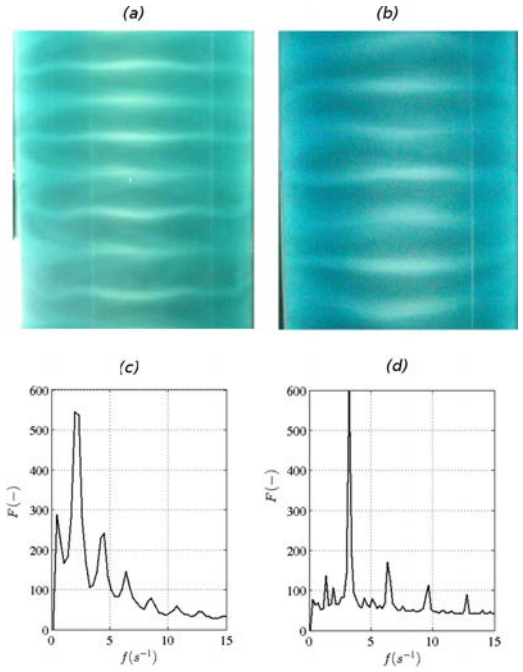


FIGURE 4.2: Multiplicity of wave states for $Re = 1082$: (a) Visualization of the $m = 5$ wave state ($\lambda_x = 3.40e$), (b) Visualization of the $m = 3$ wave state ($\lambda_x = 3.47e$), (c) and (d) power spectra of the scattered light intensity for the two wave states corresponding respectively to (a) and (b).

For the PIV and PLIF measurements, a square chamber was placed outside the glass cylinder and filled with the working fluid to reduce the refraction effects caused by the curved surface of the cylinder. The working

Re	Re_0	t_{acc}	λ_x	m (Inflow)	m (Outflow)	T_c
382	0	1s	2.05e	TVF	TVF	6s
795	6000	5s	2.31e	4	no wave	1.2s
795	0	1s	2.11e	2	no wave	1.2s
1082	0	1s	2.40e	4	1	0.9s
1082	0	300s	2.47e	3	3	0.9s
1082	6000	5s	2.35e	5	1	0.9s

Tableau 4.2: Characteristics of the studied cases (Re, λ_x, m).

fluid was a mixture of water and potassium thiocyanate KSCN (weight concentration 64%, $\rho = 1400$ kg.m^{-3}, $\mu = 2.4 \cdot 10^{-3}$ Pa.s, $n_D = 1.472$) which has the same refractive index as the outer cylinder's glass. The temperature of the working fluid (i.e. room temperature 20° C), varied by no more than 0.5° C over the course of the experiments. A variation of $1°C$ results in a variation of 10% of one digits on the third decimal of the refractive index n_D of KSCN solution and 1.2% of fluorescence Sakakibara *et al.* (1993).

1.2.2 Measurement techniques

The flow and mixing in the Taylor-Couette device were quantified by particle image velocimetry (PIV) and planar laser induced fluorescence(PLIF). PIV and PLIF systems were synchronized. The experimental set-up is shown schematically in Fig. 4.3.

A PLIF system was used to measure the concentration across the meridional plane $(r-x)$ of the gap. We used a dual ND : YAG laser (2×200mJ, $\lambda = 532$ nm) to illuminate the measurement plane. LIF images were recorded using an sCMOS camera with 2560×2160 pixels and a high-band optical filter ($\lambda > 540$ nm) suited to the dye emission spectrum. A fluorescent tracer consisting of Rhodamine WT was carefully injected, over approximately 10 s, into the flow through an orifice at the center of the test rig. Rhodamine WT has a maximum absorption wavelength at 565 nm, a maximum emission wavelength at 585 nm and a low temperature and pH sensitivity. So it is particularly suitable for this application. A software and a timing box were used to synchronise the laser with the camera and the PIV system.

Before running the experiments, many preliminary tests were performed in order to guaranty results of high quality. For calibration, images of fully mixed dye solution of various concentrations were recorded and then a calibration curve was established. A suitable injection quantity was chosen to provide adequate dynamic resolution without exceeding the limits for linearity ($0 < C < 5 \cdot 10^{-3}$ g.l^{-1}). Then an appropriate injection rate was determined to avoid any flow perturbation. Finally, a small amount of dye was mixed with the solution in the quiescent outer chamber and imaged

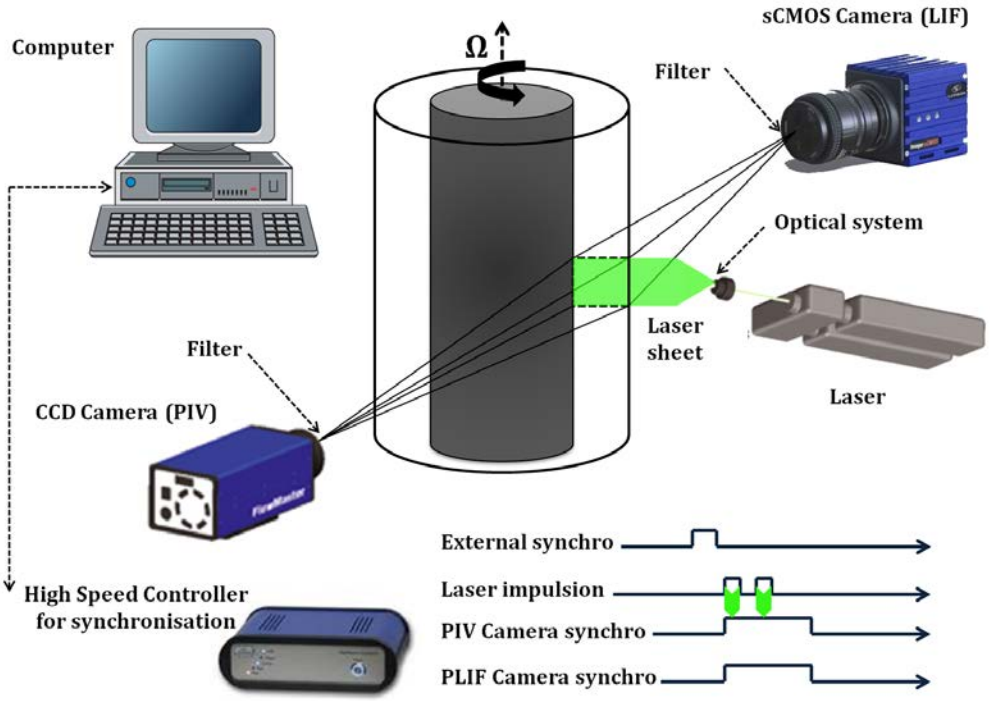


FIGURE 4.3: Schematic of the experimental setup, PIV and PLIF systems. Telecentric lenses were mounted on both cameras.

with the flow to verify the consistency of the laser pulse intensity. LIF measurements were recorded across a section of the meridional $(r - x)$ plane at 10Hz for different Re. The measurement region was restricted to an axial range of $8.16 \times e$ and a radial range equal to e, in the middle of the rig. For each case, 5000 concentration fields were acquired.

For PIV measurements, particle field images were acquired using a PCO.2000 camera with a CCD captor of 2048×2048 pixels and a narrow band-pass optical filter. A telecentric lens was mounted on the camera to avoid parallax distortion along the narrow annulus. The working fluid was seeded with silver-coated hollow glass spheres with density 1.4 kg.m^{-3} and an average diameter of 10 μm. Those particles are inert in the KSCN and the concentration we used for index matching. For each Reynolds number at which velocity measurements were made, the annulus was filled with fluid, and the inner cylinder was run at high speed for a few minutes to mix the fluid and the tracer particles. Then the inner cylinder speed was ramped to the desired speed using a specified start-up protocol. After the inner cylinder had reached the desired speed, the flow was allowed to develop for at least 10 to 15 min to ensure fully developed flow before the measurements began. Holding the inner cylinder speed constant and repeating the measurements some time later showed that this procedure

generated repeatable results. Because of the limited focal length of the telecentric lens, the illuminated measurement plane was set to about $5.7 \times e$ in the axial direction to make sure that at least two full vortices are captured. Typically, 500 to 800 image pairs were acquired at 10 Hz, corresponding to the passage of 8 to 18 azimuthal waves. Velocity vectors were calculated on a square grid (16×16) with sub-pixel inter-correlation.
The uncertainty on the Reynolds number due to the variation in the inner cylinder speed, fluid viscosity, and other factors was at most 5%. The uncertainty on the velocity measurements depends on the ability of hollow glass particles to follow the flow and the accurate measurement of the particle average displacement between PIV images. These particles were assumed to follow the flow very accurately. Moreover, PIV measurements of the stable circular Couette flow were perfomed to check accuracy. The maximum observed departures were of the order of 1% of the inner cylinder speed regarding axial component ; and 2% for the radial component.

1.3 Velocity and concentration fields

1.3.1 Flow characterization

Flow fields have been measured to characterize each regime (in our case TVF and WVF flows). It provides information on the shape of the vortices and the wave state (λ_x and m). Preliminary flow patterns visualizations indicate that the transition to TVF flow occurs at a critical Reynolds number $Re_c = 80$. For this regime, instantaneous velocity fields show no significant motion of the boundaries between vortices, and negligible deformation of the shape of each vortex. The average axial wavelength is approximately $\lambda_x = 2.01 \times e$. Since the shapes of the vortex do not change and the boundaries between them are fixed, the task of quantifying the transport within a vortex or between adjacent vortices is easier than for WVF, as shown by Dusting et Balabani (2009).

In contrast, for WVF flow the velocity field changes significantly and the relative shape and position of each vortex also vary in time. The flow became three-dimensional. It is characterized by an axial motion responsible for the deformation of vortices, and a significant dye transport in the axial direction. Wereley et Lueptow (1999) have described in details the characteristics of this flow, especially axial transport.

When the wavy vortex flow is reached, the vortices oscillate both axially and radially. During one period, the vortex volume first grows, as a significant portion of fluid from neighbouring vortex is transferred due to an upward stream, and then shrinks, as the cell loses fluid to the benefit of its adjacent vortex (downward stream). The boundaries between vortices are animated by a periodic motion. In our configuration ($\eta = 0.687$), the wave motion appears to be more important in the inflow zone than in the outflow one (inflow, respectively outflow, stands for fluid motion towards the inner,

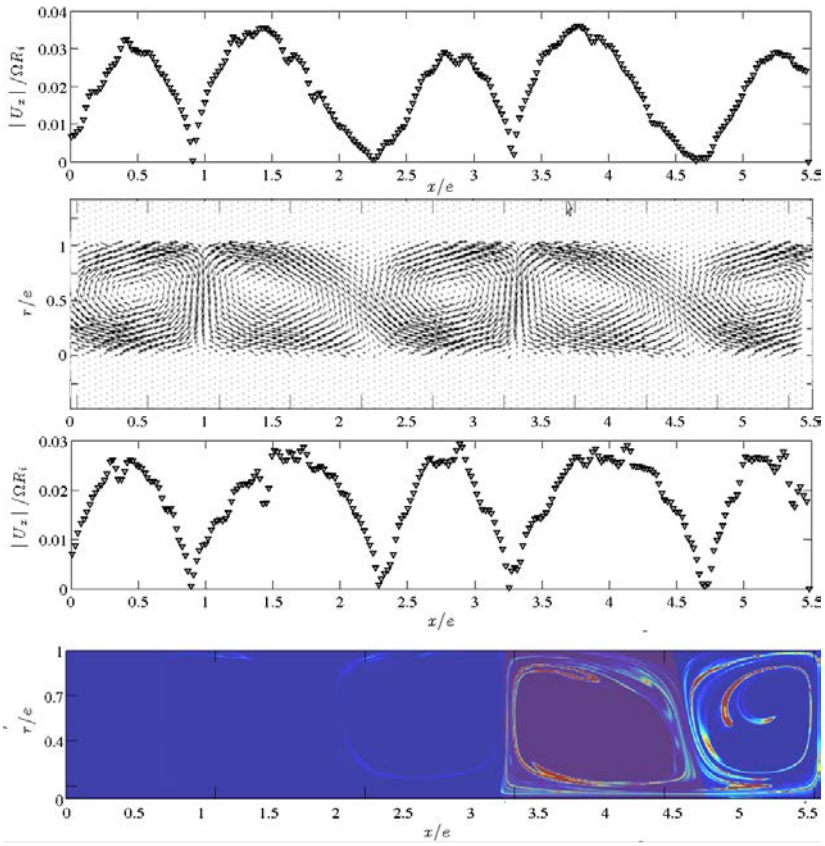


FIGURE 4.4: Tracking of boundaries between adjacent vortices tracking (WVF : $Re = 795$), from top to bottom : Axial component of velocity $|U_x|$ near the outer cylinder ($r/e = 1$), instantaneous velocity vector field, Axial component of velocity $|U_x|$ near the inner cylinder ($r/e = 0$) and instantaneous concentration field..

respectively outer, cylinder). In fact, as can be seen in Fig. 4.4, there is a significant difference in wave motion (amplitude and wave number) between the two near wall regions. In inflow zone, the inclination of the boundary (also called "jet-like") could reach 45° in the two directions. Andereck *et al.* (1986) refer to these flows as the wavy inflow- and outflow-boundary flows (WIB and WOB, respectively). WIB and WOB are respectively exhibiting a flat and a wavy boundary, or, at least, wavy boundaries with different angular speed and azimuthal wavenumber m, as confirmed by our observations (Fig. 4.2 and Table 4.2). In order to track this motion, we followed the evolution of the velocity magnitude for the axial component. The minimum magnitude, occurring near walls, corresponds to the position of a boundary. The result of the tracking is presented in Fig. 4.4. The variation of the position of inflow and outflow boundaries is shown in Fig 4.5.

The results confirm that the displacement is more important in inflow than in outflow zones. The magnitude can reach 5 mm, while it is less than 0.6 mm for the outflow side. The positions of the boundaries between

adjacent vortices, thus determined from velocity field, were used to monitor the vortex oscillation with time, in order to achieve accurate calculation of the concentration field in wavy regimes. It was also used to measure the period of the travelling wave T_d scaled by the inner cylinder rotation period T_c.

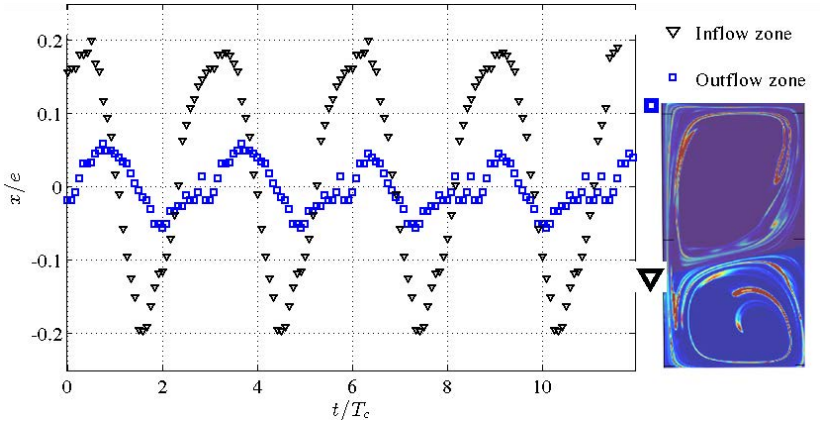


FIGURE 4.5: Position evolution of the boundaries between adjacent vortices ($Re = 795$), (black) inflow zone and (blue) outflow zone..

The non-uniqueness of flow (Coles (1965), Rudman (1998), Dutcher et Muller (2009)) was also observed through the existence of hysteresis phenomena. Multiple stable flow states could be reached for a given Reynolds number. These various states were distinguished by the axial wavelength λ_x, ranging from $2.01 \times e$ to $2.5 \times e$ and the azimuthal wave number m, ranging from 2 to 8. Different wave states (λ_x, m) were produced by approaching the target Reynolds number Re with specific start-up protocols, as presented in section 1.2.1.

1.3.2 Concentration field : Observation

After dye injection, the evolution of the fluorescent tracer mixing with time was recorded and analysed. The distribution of instantaneous concentration, at different phase shift Φ over one period T_d, are presented in Fig. 4.6 and 4.7. Fig. 4.6 shows the distribution for the TVF regime ($Re = 382$) and Fig. 4.7 for WVF regime ($Re = 1082$). The period T_d is determined by the velocity field as explained in section 1.3.1. It was estimated to be $T_d = 3.6 \times T_c$. This value could also be verified by following the average concentration in the center of a vortex (where the concentration vary weakly) in time. The dye phase shift, Φ, is normalised by 2π and the concentration is normalised by the injection concentration C_0.

For the TVF regime, observations showed the formation of an intense narrow tracer layer close to vortex interfaces, just after the injection. Tracer remains confined in outer layers before being convected towards the next interface where it can again be transported to the neighbouring vortices.

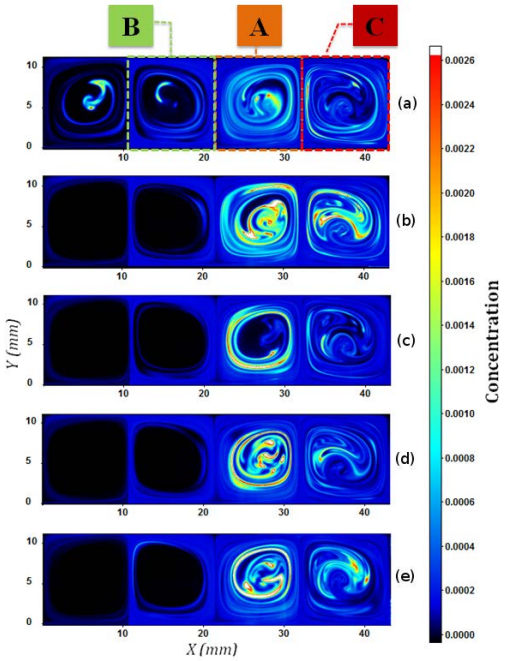


FIGURE 4.6: Instantaneous concentration field over one period at $Re = 382$ (TVF) : from top to bottom ; (a) $\Phi = 0$, (b) $\Phi = 0.25$, (c) $\Phi = 0.5$, (d) $\Phi = 0.75$, (e) $\Phi = 1$..

Although the boundaries between adjacent vortices stay straight, evidence of tracer transport between neighbouring vortices was observed, more specifically in near-wall regions (Campero et Vigil (1997), Desmet *et al.* (1996)). These observations contradict the usual assumption of non-intermixing in TVF flow, made in many studies (Kataoka *et al.* (1975),Tam et Swinney (1987), Moore et Cooney (1995)). However, the inner regions represent the poorly mixed vortex core, also called "KAM tori", where the concentration is low and towards which tracer is transported very slowly. In Fig. 4.6, the vortex cores correspond to the dark zones where $C \approx 0$. Mixing in these regions is basically achieved by molecular diffusion. The 2-zone model, proposed by Desmet *et al.* (1996), is therefore more representative of the transport in TVF regime, where the outer zone would represent the well-mixed region, and the inner one would correspond to the vortex core.

As the rotation rate is increased, the TVF flow symmetry is broken and wavy regimes are emerging. The apparition of travelling wave breaks the boundaries between adjacent vortices and enhances fluid exchange between them. The snapshots of the concentration field presented in Fig. 4.7 show that tracer transport between vortices is more efficient. In fact, the velocity field became three dimensional, leading the flow to be more chaotic, increasing significantly its capacity to advect, stretch and diffuse the tracer concentration.

However, Fig 4.7 exhibits also the persistence of the poorly mixed vortex

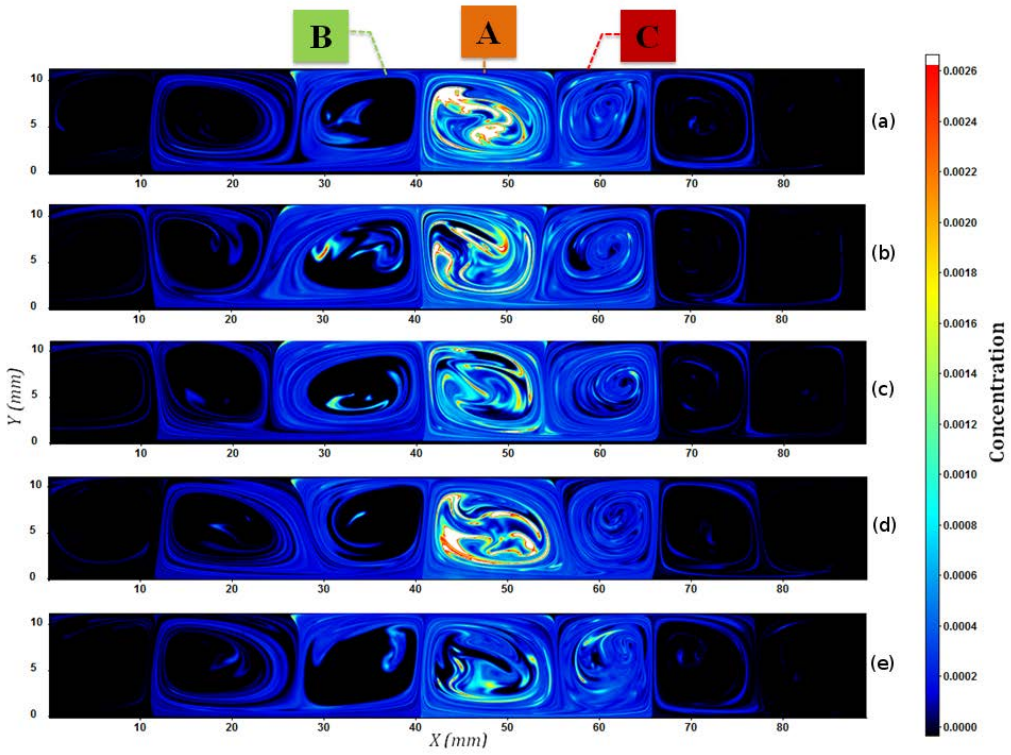


FIGURE 4.7: Instantaneous concentration field over one period at $Re = 1082$ (WVF) : from top to bottom ; (a) $\Phi = 0$, (b) $\Phi = 0.25$, (c) $\Phi = 0.5$, (d) $\Phi = 0.75$, (e) $\Phi = 1$..

cores where tracer can be trapped. Their presence in WVF regime was first observed numerically by Rudman (1998) using Poincaré sections, derived from fluid particle trajectories, and visualized experimentally afterwards using a bichromatic acid-base chemical reaction technique (Rudman *et al.*, 2008). The vortex core volume was estimated to approximately 40 % of the total vortex volume by Campero et Vigil (1997) for TVF flow.

On the other hand, the estimation of the unmixed core volume in WVF regime is not straightforward, since its boundaries are evolving due to the travelling wave : its position and its apparent size vary over time with the passage of the azimuthal wave. Rudman (1998) has estimated the core volume by performing numerical tracking of many fluid particles. Variation between 5% and 20%, depending on the wave state, were revealed, thus influencing axial dispersion and mixing properties.

Although poorly mixed cores are still observed in WVF regime, the wave induced motion contributes strongly to their volume reduction and partially cancels their contribution. The wave pushes the fluid into the poorly mixed zones where molecular diffusion will neutralize the cores as well.

Observations also show that tracer transport at inflow boundaries is different from transport at outflow boundaries. This could be explained by the velocity field previously discussed. The deformation related to wave state (wave amplitude and wave number m) is more intense in inflow zones. We further quantify the intervortex mixing in these two zones in the following section.

1.4 Properties of mixing

Following the work of Dusting et Balabani (2009) for the TVF regime, we have considered three adjacent vortices A, B and C to investigate intra and inter vortex mixing in the TVF and WVF flow patterns (see Fig. 4.6 and 4.7). A stands for the vortex where the dye is injected, B for the outflow-adjacent vortex to A, and C is the inflow-adjacent vortex to A. The segregation intensity parameter I was used to quantify the inter and intra vortex mixing. It is defined by equation (4.1) :

$$I = \frac{\sigma_c^2}{\sigma_0^2} \tag{4.1}$$

with :

$$\begin{cases} \overline{C} = \dfrac{\sum C_i}{N} \\ \sigma_c^2 = \dfrac{1}{N-1}\sum (C_i - \overline{C})^2 \\ \sigma_0^2 = \overline{C}(1-\overline{C}) \end{cases} \tag{4.2}$$

where $\overline{C}$ is the average concentration formed over N time frames, σ_c the concentration's standard deviation and σ_0 the maximum mean concentration. I tends to zero when the perfectly-mixed state is reached.

In order to investigate mixing over the different directions, different definitions of the mean concentration and the variance have been considered :

- I_v describes the intervortex mixing between respectively vortices A-B and A-C, by considering the average concentration over the spatial region occupied by each vortex.
- I_{rz} describes the intravortex mixing in the meridional plane, by considering the average concentration over one period of the azimuthal wave (removing the phase dependence).
- I_θ describes the intravortex mixing in the azimuthal direction, by considering the average concentration over the $r-z$ plane (removing the local dependence in r and z).

Another parameter used to determine the mixing efficiency is the rate at which neighbouring fluid elements are stretched apart. Following Ottino (1989), the rate of stretching is based on the deformation of a surface, from its reference area dA to its actual state, da. The area stretch, noted s, is defined by :

$$s = \frac{da}{dA} \tag{4.3}$$

The rate of stretching is then defined as :

$$S_a = \frac{dln(s)}{dt} \tag{4.4}$$

In order to evaluate S_a from the PLIF instantaneous concentration fields, an appropriate threshold was chosen for image binarization. Then, the relevant surface area a was defined as the area of pixels with value 1, and its deformation and growth over time were measured.

The average concentration in each vortex is presented in Fig. 4.8. The small blue dots stand for the $r-x$ average concentration, and depict the concentration variation over each period T_d. The larger black dots represent

the average concentration over the entire period. The plot shows that each vortex concentration converges to the final concentration. For WVF regime ($Re = 1082$), 300 revolutions of the inner cylinder are sufficient to reach the final concentration. In contrast, in TVF regime ($Re = 380$), more than 1500 revolutions are required.

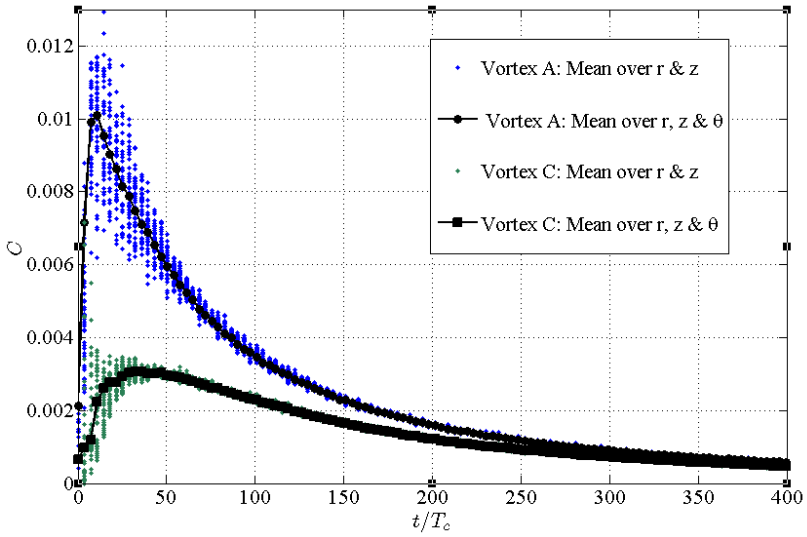


FIGURE 4.8: Temporal evolution of the average concentration in vortex A and C ($Re = 1082$)..

1.4.1 Mixing in TVF regime

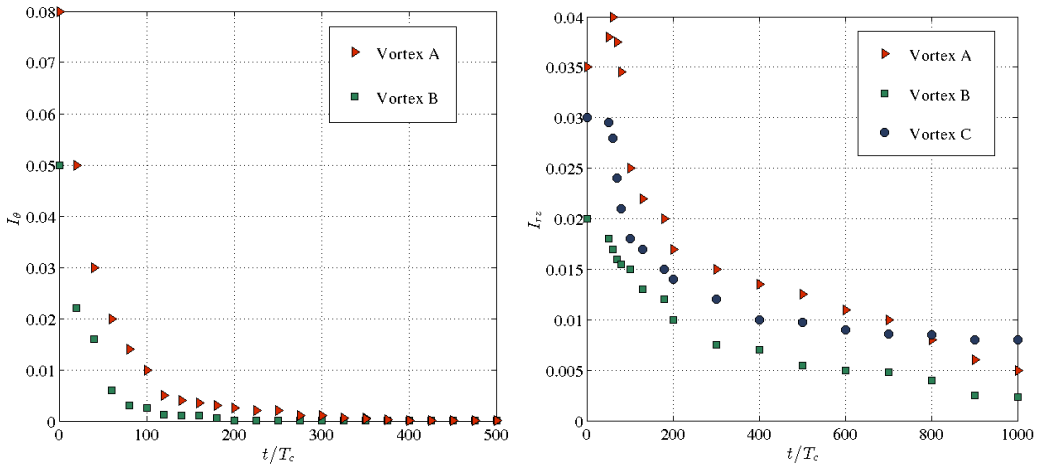
Intravortex mixing

Mixing within a vortex results from the combination of mixing in the azimuthal direction and mixing in the meridional plane. The intensity of segregation in the azimuthal direction and across the meridional plane are plotted in Fig. 4.9 for the three vortices under consideration : A, B and C.

Mixing in the azimuthal direction is very efficient. The time-scale of mixing in $(r - x)$ plane is approximately four time the mixing over θ. This is not surprising, since the azimuthal component of the velocity field, and its gradient, are high compared to the $(r - x)$-plane values. Mixing in the meridional plane is very weak compared to other directions and even compared to intervortex mixing. This could be explained by the presence of many zones in the $(r - x)$ plane where the mixing efficiency is very weak, and especially the vortex core where only diffusion is effective as shown in section 1.3.2 (Rudman *et al.*, 2008). This explains why the mixing process in the meridional plane is not uniform along the different locations.

The mixing time-scale in the outer zone is significantly shorter than in the vortex core. Dusting et Balabani (2009) have confirmed this feature by dividing the vortex into different subregions. Their results showed that in the

vortex core, where the axial and radial components of the velocity field are nearly zero, a longer time is required to achieve uniform dye concentration. This result demonstrates again that mixing in the vortex core occurs by pure molecular diffusion.



(a) (b)

FIGURE 4.9: Intravortex mixing ($Re = 382$) : (a) Intravortex mixing in the azimuthal direction for vortex A and B, I_θ and (b) Intravortex mixing in the meridional plane for vortex A, B and C, I_{rz}.

The degree of intravortex mixing can also be estimated by analysing the temporal growth rate of the surface area a (see Fig. 4.11) in terms of its rate of stretching. At each investigated Reynolds number, Re, the stretching was calculated for every images then period-averaged to remove the phase dependence. Results show that s grows exponentially with time and increases with Re.

Intervortex mixing

To investigate intervortex mixing, we consider the three adjacent vortices, A, B and C. A is separated from C by an inflow zone and from B by an outflow zone. The intensity of segregation I_v between A-B and A-C is plotted in Fig 4.11. The respective temporal decay indicates the dye dispersion between the vortices. The time-scale of this inter-cell mixing is shorter than intravortex mixing across the meridional plane. So the mean concentration in neighbouring vortices converges to the final concentration in a shorter time than the concentration in a single vortex. Again, this result contradicts the common assumption that mass-transport in TVF flow can be modeled as a serie of well-mixed tanks (Kataoka *et al.* (1975), Tam et Swinney (1987), Moore et Cooney (1995)).

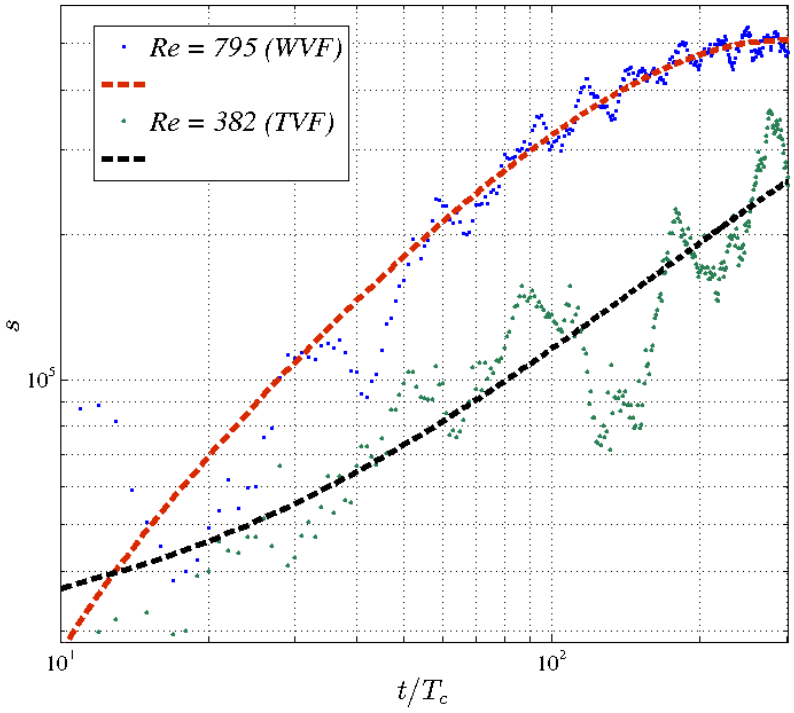


FIGURE 4.10: Intravortex mixing : area stretch as function of time.

Indeed, intervortex mixing in TVF regime, which is basically due to molecular diffusion, is supplemented by advection in the near-wall regions where hyperbolic flows can transfer concentration to the adjacent vortex. These two mechanisms are both responsible for the existing mass transfers between adjacent vortices, which were respectively evidenced in regions near the inner layers and at the inflow boundaries.

Thus, in TVF flow, the slow intravortex diffusion imposes the tracer to remain in these regions before it is rapidly transmitted by convection to the adjacent vortex and so on. Finally, our results do not show noticeable differences between intermixing over the inflow and outflow cell boundaries.

1.4.2 Mixing in wavy regime

In TVF regime, where the velocity field is axisymmetric, mixing is slow. As the Reynolds number is further increased (beyond $Re = 400$), the velocity field becomes dependent on all three spatial coordinates and the flow symmetry is broken. This results in an enhancement of the two main mechanisms of mixing. First, the KAM tori structure is destroyed leading to chaotic advection and consequently increasing intravortex mixing. Then, the wavy perturbation breaks the boundaries separating adjacent vortices leading to intervortex mixing.

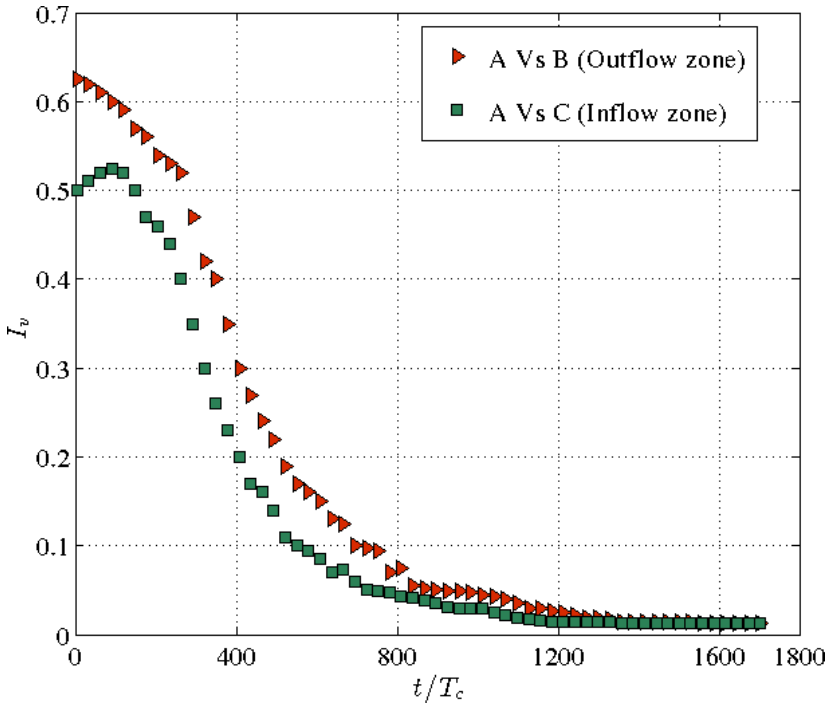


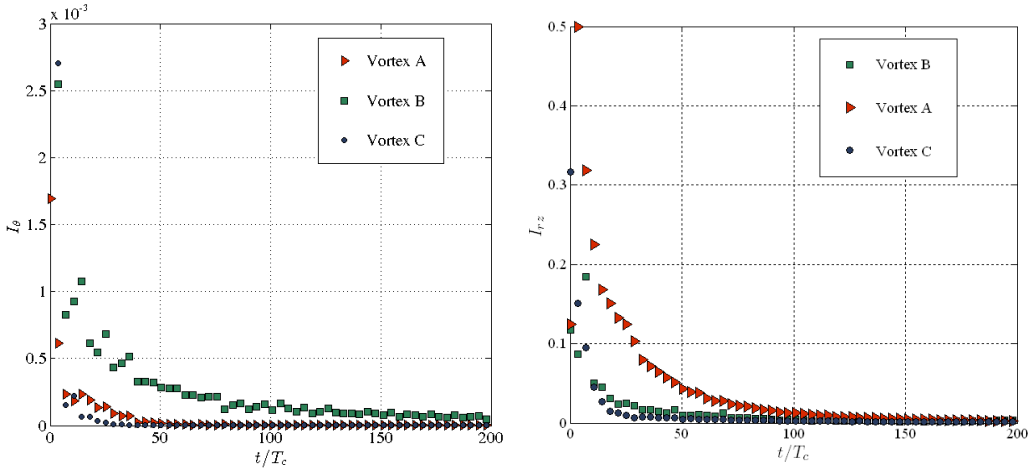
FIGURE 4.11: Intervortex mixing between vortex A and B, A and C, I_v ($Re = 382$).

Intravortex mixing

The index of segregation in the azimuthal direction I_θ and across the meridional plane I_{rz} are plotted on Fig. 4.12 and 4.14 for $Re = 795$ and $Re = 1082$ respectively. The plots show that mixing in tangential and meridional directions increase significantly in WVF regime. Only 50 rotations of the inner cylinder are necessary to achieve homogeneity of the concentration in the azimuthal direction. Hence the mixing time-scale is significantly reduced compared to TVF regime : it is approximately 6 times ($Re = 795$) and 10 times ($Re = 1082$) shorter than at $Re = 382$ (the time is normalized by the inner cylinder rotation period). This is directly linked to the velocity field characteristics that increase the vortex capacity to stretch and advect passive tracers.

The appearance of the waviness also causes the "disintegration" of KAM tori, resulting in an increase of the degree of vortex distortion. The wave is able to convect fluid deeper into the unmixed vortex cores, thus decreasing the volume of the unmixed core and increasing the volume of the well mixed outer layers. This results in an enhanced intravortex-mixing. The difference of mixing in azimuthal and meridional plane is reduced, compared to TVF regime. However, unlike Dusting et Balabani (2009), we found that mixing over the azimuthal direction remains more important due to the high azimuthal velocity and its gradients. This could be also related to the existence of

the unmixed cores, which weaken the mixing across the meridional plane. This has been identified in section 1.3.2 and observed by Rudman *et al.* (2008).



(a) (b)

FIGURE 4.12: Intravortex mixing for vortex A, B and C ($Re = 795$) : (a) Intravortex mixing in the azimuthal direction, I_θ and (b) Intravortex mixing in the meridional plane C, I_{rz}.

Intervortex mixing

The waviness of WVF regimes breaks the stream surfaces between neighbouring vortices, which increases fluid fluxes between them. The waves indeed increase the rate of fluid exchange between the outer layers of adjacent vortices. The vortex shape modifications observed during the cycle are due to the significant portion of fluid transferred from one vortex to another. Desmet *et al.* (1996) have estimated this amount to be equal to 50 %. This results of course in a decrease of the intercell mixing time-scale. The latter appeared to be approximately 2 to 3 times higher than the intravortex mixing time, and 10 to 20 times shorter than intervortex mixing under TVF regime. The intercell mixing time-scale is depending on both the Reynolds number and the wave state. It should be noted, as shown in Fig. 4.13 exhibiting the decay of the intensity of segregation curves (I_v), that the intercell mixing timescale is a decreasing function of the Re number.
However, a significant difference is prevailing between transport in inflow and outflow regions. Fig. 4.13 indicates that intervortex mixing is more intense in inflow zones than in outflow zones if the wave state in the two regions is different ($Re = 795$) . This could be explained by velocity field characteristics in these two zones, as discussed in section 1.3.1 and detailed by Akonur et Lueptow (2003a). The wave amplitude is more intense at the

inflow surfaces compared to the outflow ones.
The significant enhancement of mass transport between vortices results in an increase in axial dispersion. Moreover, when the wave perturbation in the inflow zone reaches the level of the outflow zone, the intervortex mixing difference between the outflow and inflow boundaries vanishes (case at $Re = 1082$, Fig. 4.13). A non-monotonic behaviour was also observed regarding the wave state, which is discussed in the next section.

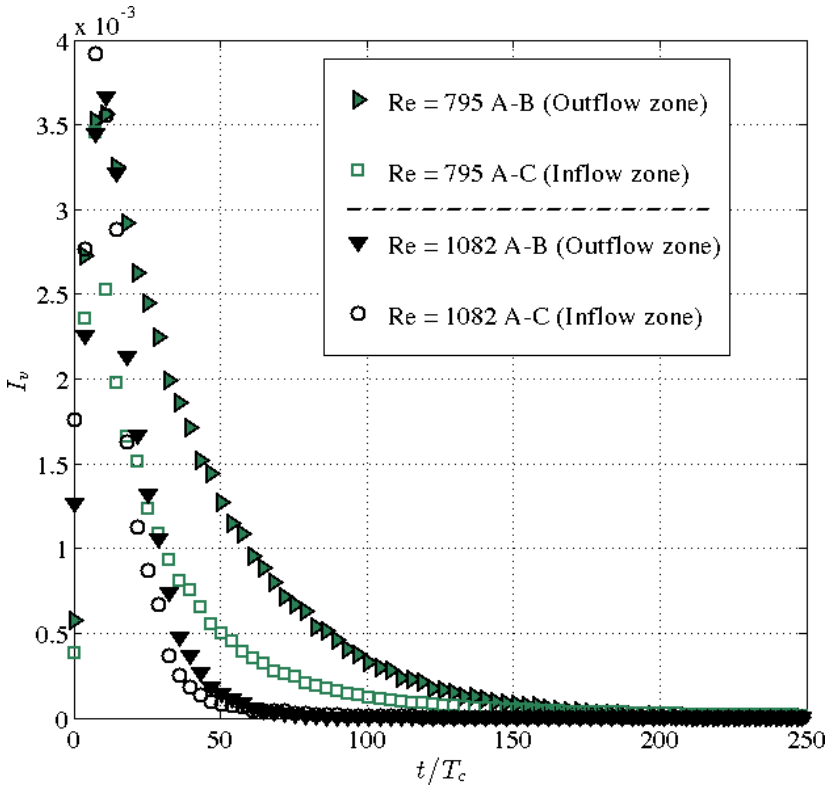
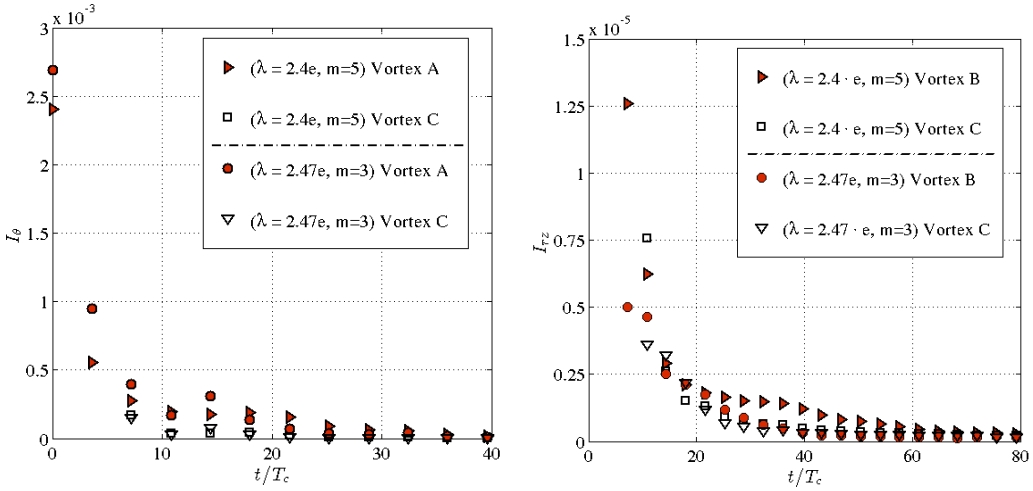


FIGURE 4.13: Intervortex mixing between vortex A and B, A an d C I_v ($Re = 795$ and $Re = 1082$).

Effect of wave state

In order to study the effect of the wave state on intra and intervortex mixing, different wave states were considered, for two Reynolds numbers : $Re = 795$ and $Re = 1082$. These particular flow regimes were achieved using various acceleration protocols, as detailed in section 1.2.1. The characteristics of the different wave states are summarized in table 4.2.
Previous studies (Rudman (1998), Nemri *et al.* (2012), ...) showed that the property of non-uniqueness of Taylor-Couette flow could significantly influence axial dispersion. In our previous work (Nemri *et al.*, 2012), we showed that the axial dispersion coefficient can vary from simple to double for the same Reynolds number and for various wave states. Rudman (1998)

had also reported a factor 1.4. This non-monotonic behaviour is directly related to the mixing properties, which are quite different depending on the flow states.
The results we obtained are plotted in terms of the intensity of the segregation, I_v, I_{rz} and I_θ for $Re = 1082$ and three different wave states. I_{rz} and I_θ correspond to intravortex mixing (Fig. 4.14), while I_v illustrates the intervortex exchange between A and B and between A and C (Fig. 4.15).



(a) (b)

FIGURE 4.14: Wave state effect on Intravortex mixing at $Re = 1082$: (a) Intravortex mixing in the azimuthal direction, (b) Intravortex mixing in the meridional plane.

The plots on figure 4.15 show that intervortex mixing is significantly influenced by the wave state (the axial wavelength λ_x and the wave amplitude and number m). We can note that the mixing time-scale is a decreasing function of (and is very sensitive to) λ_x. For instance, for $\lambda_x = 2.35 \times e$, the time-scale over the outflow boundaries is estimated to be twice the one corresponding to $\lambda_x = 2.4 \times e$ and three times larger than for $\lambda_x = 2.47 \times e$. Indeed, longer axial wavelength leads to greater distance travelled by the fluid in each vortex.

In the inflow zone, the mass transport appears to be more important in configurations where the amplitude of the travelling wave is large. When the outflow boundaries are modulated by the wavy perturbation ($\lambda_x = 2.47 \times e$), the rate of mass transfer increases dramatically compared to the cases of weakly rippling outflow zones ($\lambda_x = 2.35 \times e$ and $\lambda_x = 2.4 \times e$). In the case $\lambda_x = 2.47 \times e$, the wave number and amplitude were the same, thus resulting in an enhanced exchange between neighbouring vortices and consequently an enhanced axial dispersion. On the other hand, our results do not reveal a specefic tendency of the effect of the wavenumber m.

Finally, the results did not show obvious influence of intravortex mixing across the meridional plane and over the azimuthal direction. As can be seen in Fig. 4.14, the maximum difference among different cases did not exceed 5 %, in terms of intravortex mixing time-scale (I_θ and I_{rz}). Hence, the degree of intravortex mixing increases monotonically with Re regardless of the wave state. This result is in agreement with the study of Ohmura *et al.* (1997), who observed a weak influence of the wave state on intravortex mixing. As evidenced by our observations, they also showed that back-mixing was depending on the axial wavelenght λ_x.

In summary, the weak effect of wave state on intravortex mixing could be explained by the nature of the velocity field in WVF regime, which counter balances or at least reduces the influence of other factors. Although it was not evidenced experimentally, the wave state effect on intravortex mixing was highlighted by the numerical studies performed by Rudman (1998) and more recently by King *et al.* (2001). This effect was attributed to the existence of non-mixing cores, which volume depends on wave state and consequently could influence axial dispersion (Rudman *et al.*, 2008).

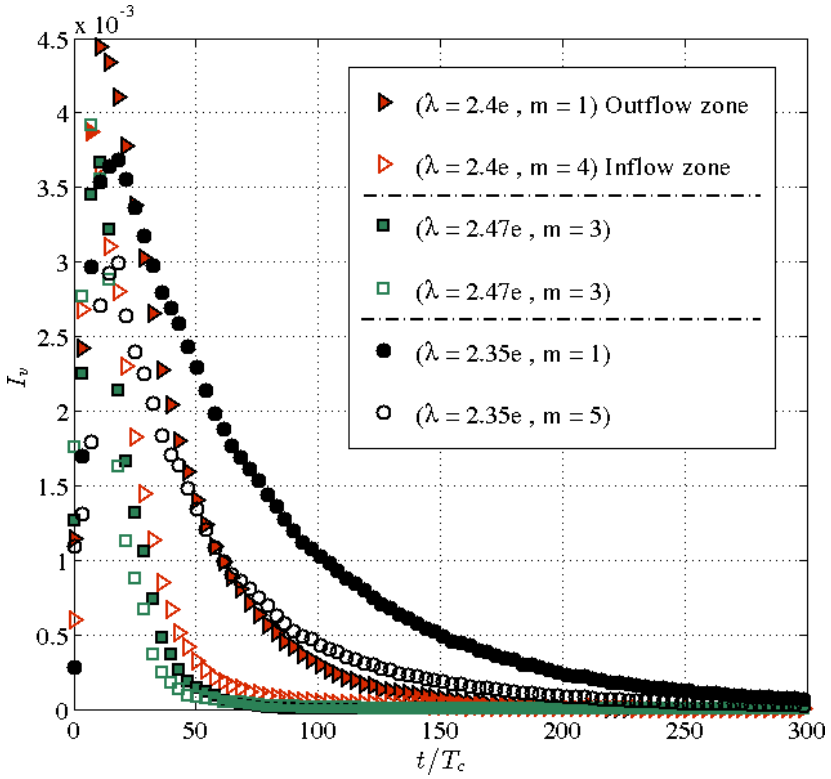


FIGURE 4.15: Intervortex mixing between vortex A-C (Inflow zone) and A-B (Outflow zone), I_v : wave state effect ($Re = 1082$).

2 Numerical study

2.1 Introduction

In this section, we investigate mixing computationally by tracking fluid particles trajectories. First, the evolution of the fluid flow field is computed. Then, solution is used to integrate particle trajectories forward in time. This approach was used by many authors : King *et al.* (2001); Rudman (1998). However, Akonur et Lueptow (2003a) have used measured velocity fields (by PIV) as the background Eulerian data to calculate particle trajectories. Our objective was to identify the mixing mechanisms that have been described in the previous section 1.
We have considered many particles (about 5000 to 10000) injected at a fixed axial position. Then we tracked the Lagrangian deformation of the particle line in time. Calculations were carried out for two different Reynolds numbers ranging from TVF to WVF regimes. For each Re, we injected particles at three different zones ; respectively : the vortex center, inflow zone and outflow zone.

2.2 Particle tracking results

For TVF regime ($Re = 318$), the deformation of particle lines is presented in figures 4.16, 4.17, 4.18 and 4.19. Results show that particles are trapped into vortices especially if the were initially seeded at the vortex center. Both 2D and 3D views show a spiral structure of particles trajectories. Particles near the vortex cores, where the velocity field and its gradients are weak, continue to move in the azimuthal direction, though they are still trapped in the same vortex. This confirms that mixing in TVF is slow (see PLIF measurements). Intervortex transport is basically controlled by molecular diffusion across the boundaries between adjacent vortices. In contrast, snapshots of particle paths exhibit that particles initially located between vortices boundaries (inflow and outflow zones) seem to have different trajectories structures. They have more chance to be transported between adjacent vortices. However intervortex mixing remains weak.

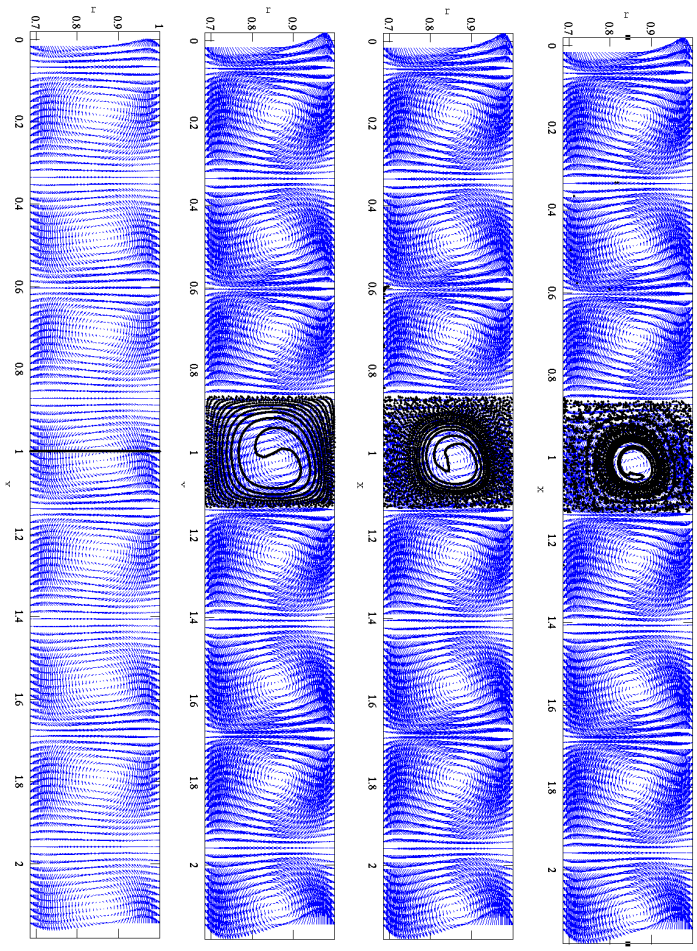


FIGURE 4.16: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 2D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 4T_c$, $t = 8T_c$.

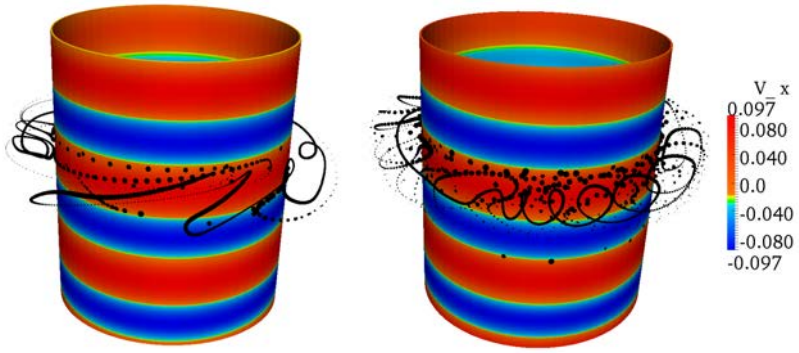


FIGURE 4.17: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 3D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = 2T_c$, $t = 8T_c$.

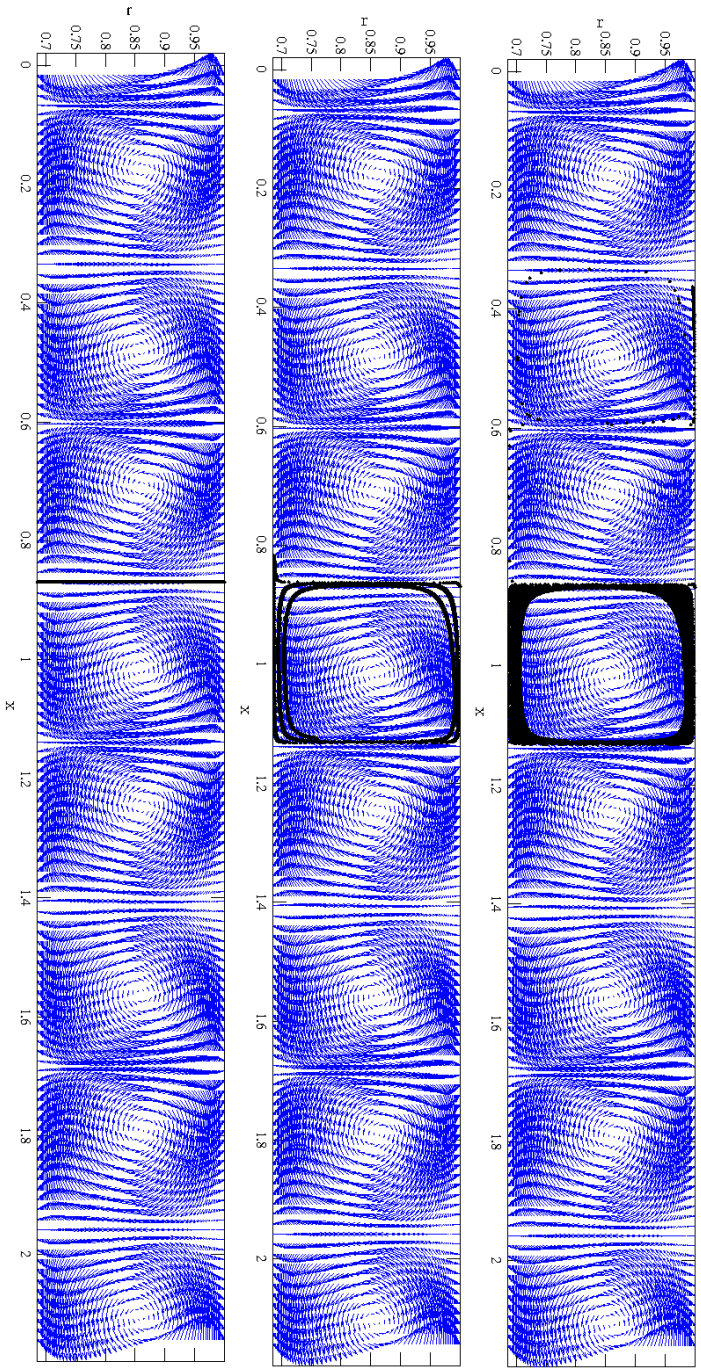


FIGURE 4.18: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 2D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$.

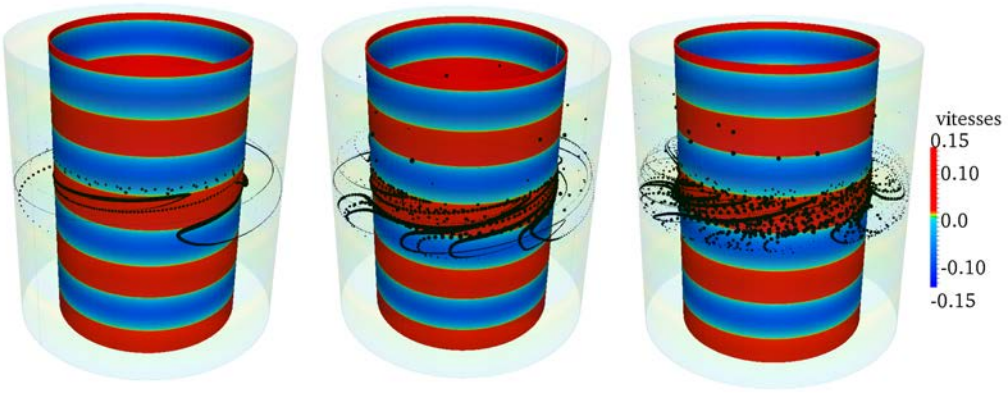


FIGURE 4.19: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 3D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = T_c$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$.

As the rotation rate is increased, the symmetry of TVF flow is broken and wavy regimes emerge. The appearance of the travelling wave breaks the boundaries between vortices and exchange between them can occur. Snapshots of particle trajectories presented in Fig. 4.20 and 4.21 show that the transport of particle tracer between vortices becomes more effective. In fact, the velocity field becomes three dimensional leading the flow to become more chaotic and increases significantly its capacity to advect, stretch and diffuse the passive tracer. This is in good agreement with experimental results (PLIF). The plots exhibit also the persistence of the non-mixing vortex cores where tracer could be trapped. Rudman (1998) has estimated this core volume numerically by following a large amount of fluid particles. It was estimated to be between 5% and 20% of the vortex volume, depending on wave state. It was claimed that the properties of these cores influence the axial dispersion and the properties of mixing. Rudman (1998) has also linked vortex cores to symmetry measures, called Eulerian symmetry (introduced in the work of King *et al.* (2001)). Though non-mixing cores reappear in WVF regime, the appearance of the wave participates significantly in reducing their volume and cancels their effect. In fact, the wave pushes the fluid into the poorly mixed zones where molecular diffusion will neutralize the cores as well.

Results showed also that for WVF regime as well, the initial distribution of particles influences significantly the final distribution. Particles seeded at the vortex boundaries are more likely to be transported along the axial direction through vortices. This could be explained by the velocity field characteristics in these two zones (see section 1.3.1 and details by Akonur et Lueptow (2003a)), and by the substantial amplitude of the wave in inflow surfaces compared to outflow surfaces. This mass-transport enhancement

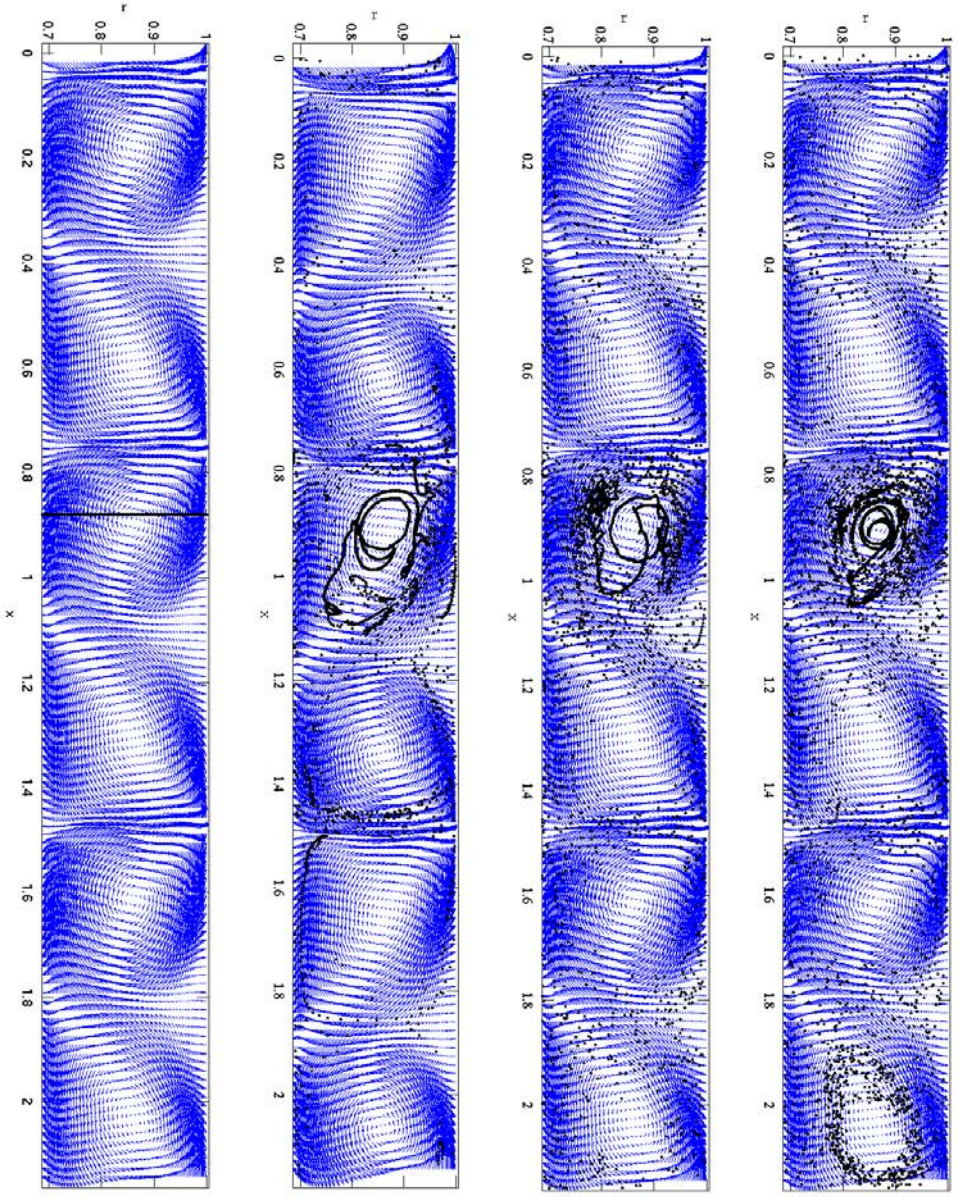


FIGURE 4.20: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 2D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 4T_c$, $t = 8T_c$.

between vortices results in an increase of axial dispersion.

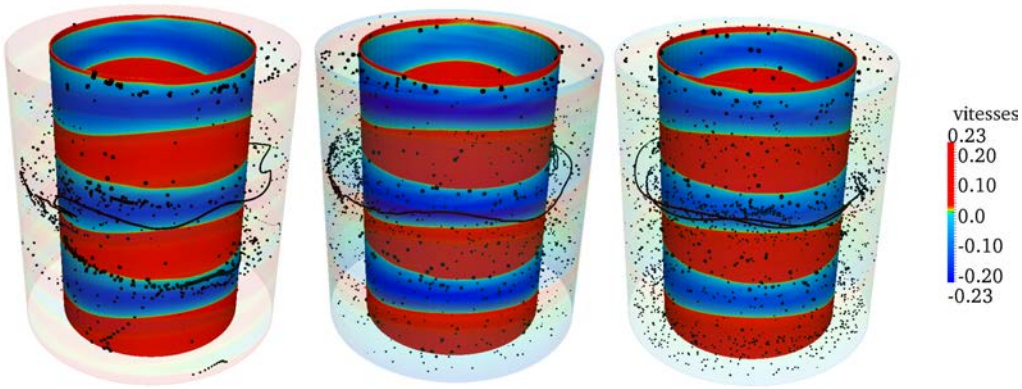


FIGURE 4.21: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 3D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = T_c$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$.

2.3 Stretching and mixing

In order to determine the mixing efficiency, we have estimated the rate at which neighbouring fluid elements are stretched apart. To quantify this parameter we have used the mathematical theory proposed in the work of Ottino (1989). The method is based on comparing the length of a line of fluid particles at time t with the initial length of the same line at t_0. Thus we could calculate the stretch at time increment j as :

$$S(j) = \frac{\sum \mid X(j) \mid}{\sum \mid X(0) \mid} \tag{4.5}$$

where $X(j)$ is the distance between two adjacent particles i and $i-1$, calculated as :

$$\mid X(j) \mid = [(r_i(j) - r_{i-1}(j))^2 + (r_i(j)\theta_i(j) - r_{i-1}(j)\theta_{i-1}(j))^2 + (x_i(j) - x_{i-1}(j))^2]^{1/2} \tag{4.6}$$

The degree of stretching is presented in figure 4.24 for two flow regimes (TVF et WVF). The stretching grows exponentially with time after an initial slower growth, as found in the previous section 1 for surface stretching. The exponential increase in WVF regime indicates that neighbouring points in the flow are being rapidly stretched apart. This results in improving intravortex mixing.

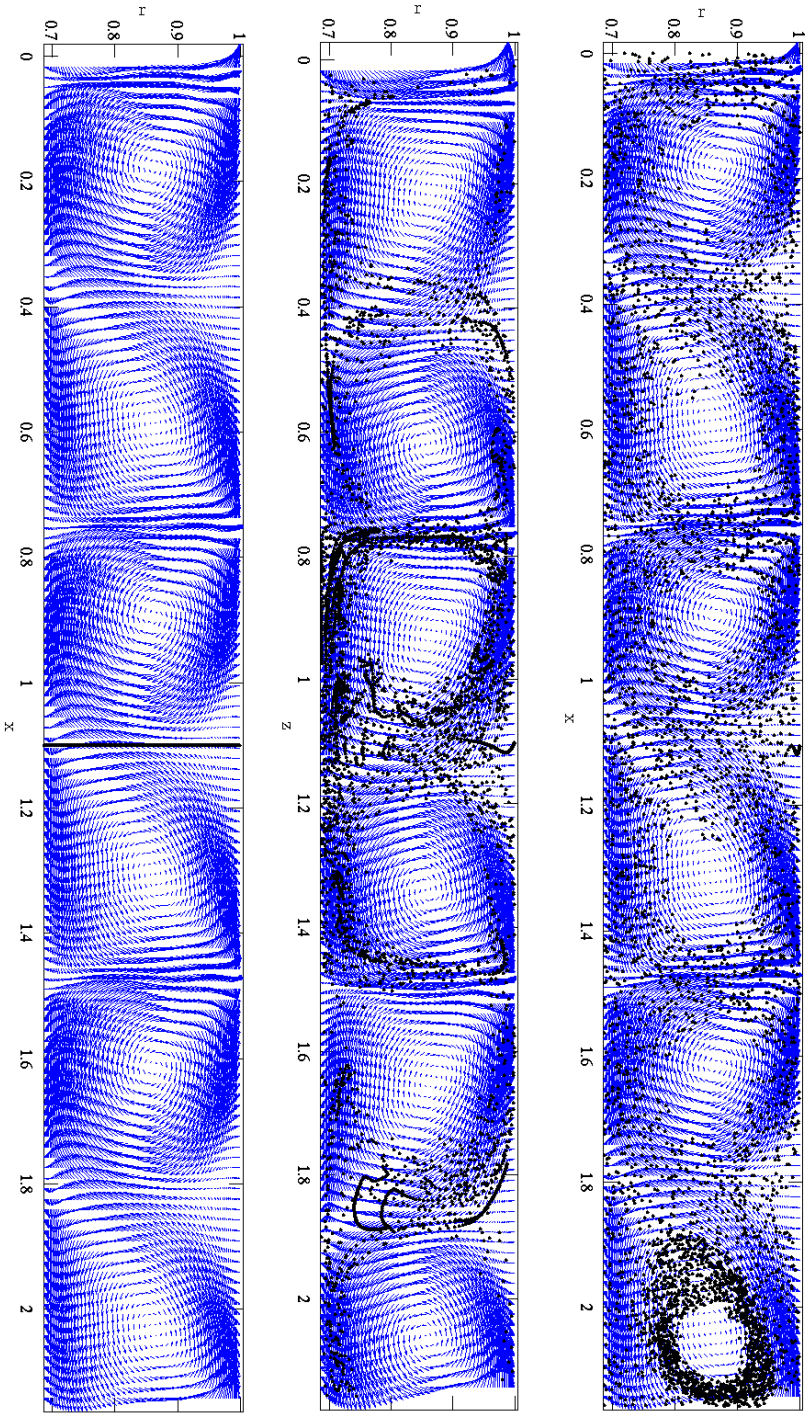


FIGURE 4.22: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 2D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$.

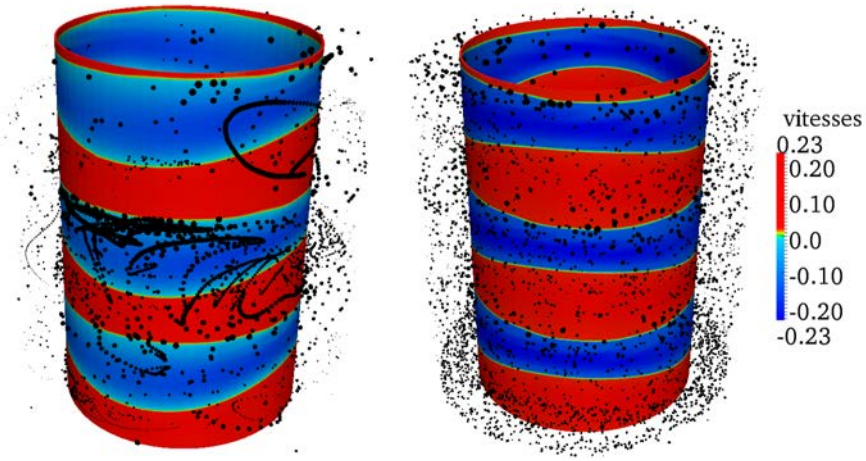


FIGURE 4.23: Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 3D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = 2T_c$, $t = 20T_c$.

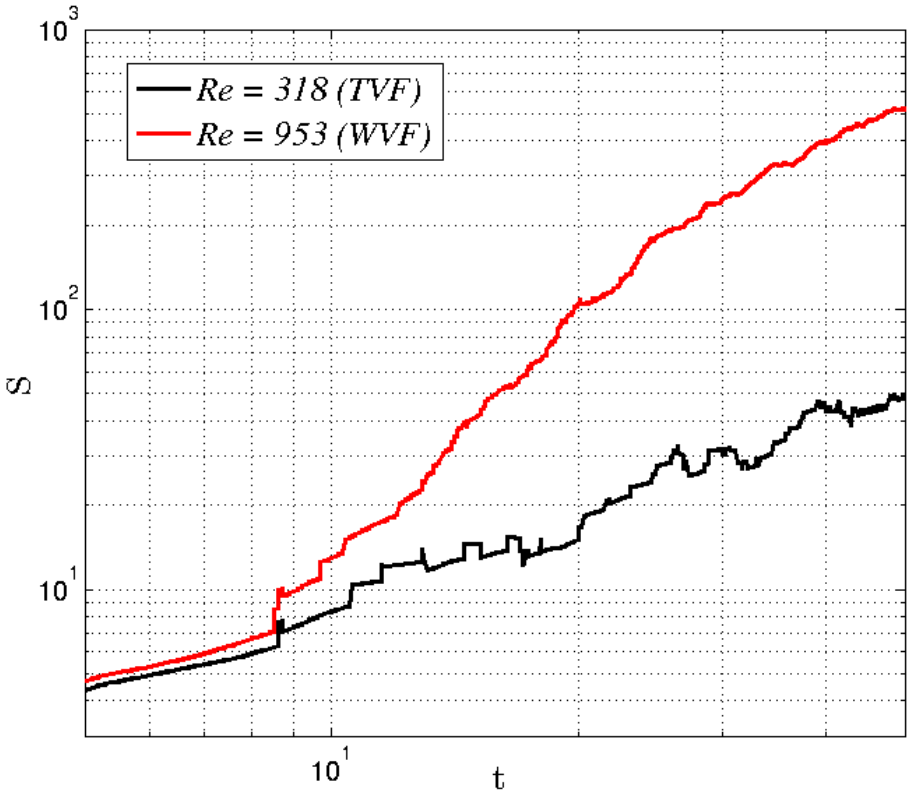


FIGURE 4.24: Stretching as a function of time for $Re = 318$ (TVF) et $Re = 953$ (WVF).

3 Summary

In this chapter, we focused on the dynamics of Wavy Vortex Flow in Taylor-Couette geometry and its relation with axial mixing. Thanks to simultaneous PIV-PLIF measurements and Lagrangian tracking calculation, the influence of the successive flow bifurcations and wave states on intravortex and intervortex mixing was investigated experimentally and numerically. Based on PIV measurements, velocity fields have been used to characterize the flow patterns in each regime and to record the vortex temporal oscillations in order to achieve accurate calculation of the concentration fields especially in wavy regimes. Unlike TVF regime, for WVF regime the relative shape and position of each vortex vary in time causing the deformation of vortices and jet-like boundaries oscillate both axially and radially. The mixing properties were quantified using the intensity of segregation over the different directions and between adjacent vortices.

PLIF results have confirmed the occurrence of intervortex mixing in TVF regime, especially in near-wall regions and across inflow boundaries. The commonly used "well-mixed stirred tanks in serie" assumption is therefore invalid for the modeling of Taylor-Couette reactors. A 2-zones model appeared to be more representative of the transport phenomena in TVF regime. When the WVF regime emerges, the appearance of the waviness breaks the cell boundaries, which increases drastically the rate of exchange between the outer layers of neighboring vortices. This additional mode of transport enhances the axial dispersion. Since the particular velocity field prevailing in wavy regimes enhances greatly the vortex capacity to stretch and advect passive tracers, the intravortex mixing time-scale is significantly reduced compared to the TVF regime. However, the persistence of unmixed cores in WVF regime limits the level of mixing across the meridional plane.

On the other hand, the decay of the intensity of segregation I_v highlighted that the transition to wavy regimes increases significantly intervortex mixing, although it remains weaker than intravortex mixing. It was also observed that intervortex mixing across inflow boundaries is often more important than outflow boundaries. Inter-cell mixing timescale decreases with the Re number.

Finally, we have also reported a non-monotonic behaviour of the mixing properties with the wave state. The data illustrated that intervortex mixing is significantly influenced by the wave state, and particularly the axial wavelength λ_x and the wave amplitude. However, the results did not reveal a significant effect of the state multiplicity on intravortex mixing. The latter appeared to increase monotonically with the Reynolds number, Re, regardless of the flow state.

4 Références

Akonur, A. et Lueptow, R. (2003a). Chaotic mixing and transport in wavy Taylor-Couette flow. *Physica D*, 167:183–196.

Akonur, A. et Lueptow, R. (2003b). Three-dimensional velocity field for wavy Taylor-Couette flow. *Physics of fluids*, 15.

Andereck, C., Liu, S. et Swinney, H. (1986). Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics*, 165:155–183.

Campero, R. et Vigil, R. (1997). Axial dispersion during low Reynolds number Taylor-Couette flow : intra vortex mixing effect. *Chemical Engineering Journal*, 52(19):3305–3310.

Coles, D. (1965). Transitions in circular Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 21:385–425.

Davis, M. et Weber, E. (1960). Liquid-liquid extraction between rotating concentric cylinders. *Industrial and Engineering Chemistry*, 52(11).

Desmet, G., Verelst, H. et Baron, G. (1996). Local and global dispersion effect in Couette-Taylor flow-i. description and modeling of the dispersion effects. *Chemical Engineering Journal*, 51(8):1287–1298.

Desmet, G., Verelst, H. et Baron, G. (1996b). Local and global dispersion effect in Couette-Taylor flow-ii. quantative measurements and discussion of the reactor performance. *Chemical Engineering Journal*, 51(8):1299–1309.

Dusting, J. et Balabani, S. (2009). Mixing in Taylor-Couette reactor in the non wavy flow regime. *Chemical Engineering Science*, 64(64):3103–3111.

Dutcher, C. et Muller, S. J. (2009). Spatio-temporel mode dynamics and higher order transitions in high aspect ratio newtonian Taylor-Couette flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 641:85–113.

Fenstermacher, P., Swinney, H. et Gollub, J. (1979). Dynamical instabilities and the transition to chaotic Taylor vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 94:103–127.

Haut, B., Amor, H., Coulon, L., Jacquet, A. et Halloin, V. (2003). Hydrodynamics and mass transfer in a couette-taylor bioreactor for the culture of animal cells. *Chemical Engineering Journal*, 58:777–784.

Hill, E., Krebs, B., Goodall, D., Howlett, G. et Dunstan, D. (2006). Shear flow induces amyloid fibril formation. *Biomacromolecules*, 7:10–13.

Kataoka, K., Hongo, T. et Fugatawa, M. (1975). Ideal plug-flow properties of Taylor-vortex flow. *Journal of Chemical Engineering Japan*, 8(6):472–476.

Kataoka, K., Ohmura, N., Kouzu, M., Simamura, Y. et Okubu, M. (1995). Emulsion plymerization of styrene in a continuous Taylor vortex flow reactor. *Chemical Engineering Science*, 50:1409–1416.

Kataoka, K. et Takigawa, T. (1981). Intermixing over cell boundary between Taylor vortices. *AIChE Journal*, 27:504–508.

King, G., Rowlands, G., Rudman, M. et Yannacopoulos, A. (2001). Predicting chaotic dispersion with eulerian measures : Wavy taylor vortex flow. *Physics of fluids*, 13.

Legrand, J. et Coeuret, F. (1986). Circumferentional mixing in one-phase and two-phase Taylor vortex flow. *Chemical Engineering Science*, 41:47–53.

Moore, C. et Cooney, C. (1995). Axial dispersion in Taylor-Couette flow. *AIChE Journal*, 41(3):723–727.

Nemri, M., Charton, S. et Climent, E. (2012). Experimental and numerical investigation on mixing and axial dispersion in taylor-couette flow patterns. *Chemical Engineering Research and Design*.

Ohmura, N., Kataoka, K., Shibata, Y. et Makino, T. (1997). Effective mass diffusion over cell boundaries in Taylor-Couette flow system. *Chemical Engineering Journal*, 52(11):1757–1765.

Ohmura, N., Makino, T., Motomura, A., Shibata, Y., Kataoka, K. et Makino, T. (1997b). Intercellular mass transfer in waving/turbulent taylor vortex flow. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 19:159–166.

Ottino, J. (1989). *The kinematics of mixing : Stretching, chaos and transport*. The press syndicate of the university of Cambridge.

Pudijioni, P., Tavare, N., Garside, J. et Nigam, K. (1992). Residence time distribution from a continuous Couette flow device. *Chemical Engineering Journal*, 48:101–110.

Rudman, M. (1998). Mixing and particle dispersion in the wavy vortex regime of Taylor-Couette flow. *AIChE Journal*.

Rudman, M., Metcalfe, G., Lachlan, J. et Graham, W. (2008). Non-mixing vortex cores in wavy taylor vortex flow. *Physics of fluids*, 20.

Sakakibara, J., Hishida, K. et Maeda, M. (1993). Measurements of thermally stratified pipe flow using image-processing techniques. *Experiments in Fluids*, 16:82–96.

Tam, W. et Swinney, H. (1987). Mass transport in turbulent Taylor-Couette flow. *Physical Review A*, 36(3):1374–1381.

Taylor, G. (1923). Stability of a viscous liquid contained between two rotating cylinders. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 223:289–343.

Wereley, S. et Lueptow, R. (1999). Velocity field for Taylor-Couette flow with an axial flow. *Physics of Fluids*, 11(12):3637–3649.

Approche globale du mélange : la dispersion axiale

5

Sommaire

1 Modélisation du transport de matière : État de l'art . 121
2 Problématique de notre étude 128
3 Étude du mélange axial basée sur l'approche statistique 128
3.1 Étude expérimentale : Traçage colorimétrique . . 129
3.1.1 Principe des traçages par spectrophotométrie 129
3.1.2 Mise en œuvre de la méthode 130
3.1.3 Résultats préliminaires 134
3.2 Étude numérique : Traçage Lagrangien 136
3.2.1 Principe de la méthode par suivi Lagrangien 137
3.2.2 Discussion 138
4 Étude du mélange axial basée sur les propriétés intrinsèques de l'écoulement 145
4.1 Description de l'approche Eulérienne 145
4.2 Discussion des résultats 147
4.2.1 Observations 147
4.2.2 Discussion 149
5 Synthèse 158
6 Références 159

Le phénomène de dispersion axiale est une fonction complexe de deux mécanismes couplés :

- un mélange « inter-vortex » représentant l'échange de matière entre les rouleaux de Taylor adjacents ;
- un mélange « intra-vortex » représentant l'homogénéisation au sein d'un même vortex ;

En outre, comme nous l'avons vu dans les précédents chapitres, la structure des rouleaux le long de l'axe de la colonne n'est pas unique pour une vitesse de rotation donnée.

Dans le contexte du programme SEPOU qui a financé cette thèse, l'une des finalités de l'étude est de prédire et maîtriser le comportement hydrodynamique de la colonne Couette (*i.e.* la reproductibilité des conditions opératoires), et en particulier de caractériser la dispersion axiale au sein de l'appareil car c'est le paramètre hydrodynamique principal du code de simulation PAREX (cf. chapitre 1).

Ainsi, après avoir étudié et compris les mécanismes de mélange dans les écoulements de Taylor-Couette, nous nous attachons dans ce dernier chapitre à transposer les connaissances acquises à l'échelle locale des structures tourbillonnaires, à la colonne Couette dans son ensemble et aux besoins de la R&D en Génie des Procédés.

1 Modélisation du transport de matière : État de l'art

Le transfert de matière dans des écoulements de type Taylor-Couette a fait l'objet de plusieurs études pour des applications très variées et pour différents régimes d'écoulement. La plupart de ces études est basée sur un modèle à un seul paramètre, le coefficient de transfert global dans la direction axiale, pour décrire le transport d'une espèce dans l'appareil. Kataoka *et al.* (1975) ont été les premiers à proposer ce genre de modèle pour le régime TVF. A l'aide de mesures de distribution de temps de séjour (DTS), ils ont conclu que chaque tourbillon (vortex) se comportait comme un réacteur parfaitement agité, ne communiquant pas avec les tourbillons adjacents. Ils supposent donc qu'il n'y pas de transfert de matière entre les rouleaux, ce qui les a conduit à décrire le système avec un modèle « piston parfait ».

Cette publication de 1975 a constitué une référence clé pour les études suivantes (Legrand *et al.* (1983), Legrand et Coeuret (1986) et Guihard *et al.* (1989)).

L'hypothèse de l'absence d'échange « inter-vortex » dans le régime TVF a été par la suite invalidée par les mêmes auteurs, après avoir mis en évidence l'existence d'un faible flux d'échange entre les vortex. Kataoka et Takigawa (1981) ont ainsi proposé un modèle de réacteurs parfaitement

agités en série pour représenter le transport (modèle à n RPA).

En présence d'un débit axial, Kataoka *et al.* (1977) ont montré que la dispersion axiale devient indépendante du coefficient de diffusion moléculaire et qu'elle augmente avec le débit axial imposé ; ce qui a été ensuite confirmé par Enkoida *et al.* (1989). Ces nouveaux résultats expérimentaux ont été modélisés à l'aide d'un modèle de réacteur piston avec dispersion axiale :

- par Moore et Cooney (1995) et Pudjioni et Tavare (1993) dans le régime TVF ;
- par Tam et Swinney (1987), Moore et Cooney (1995) et Enkoida *et al.* (1989) en régime turbulent ;
- et par Ohmura *et al.* (1997) pour l'ensemble des régimes.

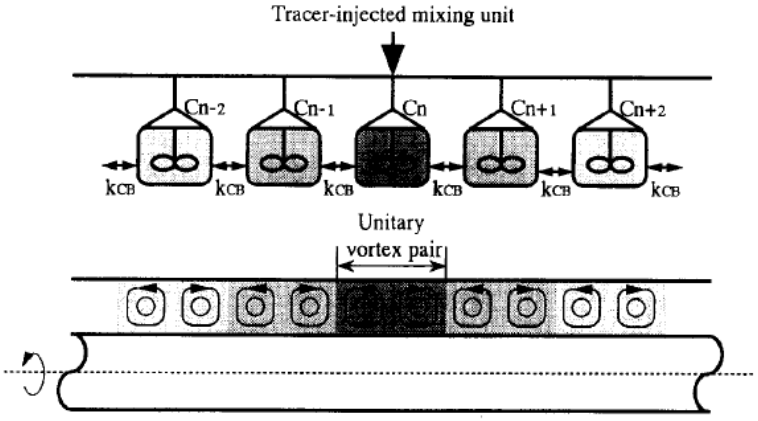


FIGURE 5.1: Représentation schématique du modèle 1D de mélange inter-vortex.

Ce modèle consiste à déterminer un coefficient de diffusion en utilisant la méthode de Tam et Swinney (1987). Tout comme le modèle à N RPA, c'est donc un modèle à 1 paramètre. Il permet en outre une représentation en 1D de l'écoulement. Dans le cas général, l'équation de transport d'un traceur de concentration $C(\mathbf{r},t)$ s'écrit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{grad} C = D\Delta C \tag{5.1}$$

Avec $\vec{v}$ la vitesse du fluide et D le coefficient de diffusion moléculaire.

En supposant que :

- l'échelle de temps du mélange dans la direction radiale et azimutale est très petite par rapport à celle dans la direction axiale ;
- le transport se fait sur un domaine assez long, suivant la direction axiale, par rapport à la taille des vortex,

l'équation (5.1) peut être approximée par une simple équation de diffusion en 1D :

$$\frac{\partial}{\partial t}C(x,t) + v_x\frac{\partial C}{\partial x} = D_{eff}\frac{\partial^2}{\partial x^2}C(x,t) \tag{5.2}$$

Avec x la coordonnée suivant l'axe de rotation, $C(x,t)$ la concentration moyennée suivant la direction radiale et azimutale, v_x la vitesse du fluide suivant la direction axiale et D_{eff} le coefficient de diffusion effective, supposé très supérieur à D_{mol}.

Ce modèle a servi de référence pour établir plusieurs corrélations de D_x en fonction des nombres de Reynolds axial (Re_{ax}) et tangentiel (Re_θ) (Souvent ces corrélations sont propres à chaque configuration géométrique). L'ensemble de ces corrélations est résumé dans le tableau 5.1.

Par ailleurs, les modèles à un paramètre ne prennent pas en compte les caractéristiques spécifiques aux régimes ondulatoires (WVF et MWVF) dans lesquels le transfert de matière entre tourbillons est non nul. En effet, l'apparition des vagues, se propageant suivant la direction azimutale, brise les lignes de séparation entre les vortex. Dans ces régimes, le mélange inter-vortex devient aussi important que le mélange intra-vortex, ce que les modèles à 1 paramètre négligent souvent.

Desmet *et al.* (1996) ont proposé un autre point de vue. Leurs mesures de distribution de temps de séjour (DTS) ont montré qu'un tourbillon (vortex) ne peut pas être représenté par un réacteur parfaitement agité (RPA) surtout dans la zone laminaire. En déplaçant le point d'injection du traceur, ils ont pu montrer que la convection domine dans les zones de séparation entre les vortex, et que par contre, la diffusion domine au cœur des vortex. Ils ont ainsi proposé un modèle à deux zones : une zone interne contenant les particules fluides au centre d'un tourbillon, et une zone externe constituée des particules fluides aux bords du tourbillon, susceptibles d'être échangées avec un tourbillon adjacent. Le transport de matière intra-vortex est alors régit par un coefficient local K_c et les échanges de matière entre tourbillons (transport inter-vortex) par un coefficient d'échange K_i (voir figure 5.2), donnant ainsi lieu à un modèle à deux paramètres. En variant K_c, on peut transposer le modèle aux régimes turbulents.
Le transport de matière est décrit par les équations 5.3 et 5.4 représentant respectivement la zone centrale ($C_{c,j}$) et la zone externe ($C_{o,j}$).

- Pour la zone centrale :

$$\frac{\partial C_{c,j}}{\partial t} = \Psi \cdot (C_{o,j} - C_{c,j}) \qquad (j = 1, N) \tag{5.3a}$$

Avec :

$$\Psi = \frac{K_c S_c}{V_c} = \frac{4K_c}{(d-2\delta)} \tag{5.3b}$$

- Pour la zone externe :

$$\frac{\partial C_{o,1}}{\partial t} = \Phi \cdot (C_{o,2} - C_{o,1}) + \varphi \cdot (C_{c,1} - C_{o,1}) \tag{5.4a}$$

$$\frac{\partial C_{o,j}}{\partial t} = \Phi \cdot (C_{o,j-1} - 2C_{o,j} + C_{o,j+1}) + \varphi \cdot (C_{c,j} - C_{o,j}) \quad (j = 2,N-1) \tag{5.4b}$$

$$\frac{\partial C_{o,N}}{\partial t} = \Phi \cdot (C_{o,N-1} - C_{o,N}) + \varphi \cdot (C_{c,N} - C_{o,N}) \tag{5.4c}$$

Avec :

$$\begin{cases} \Phi = \dfrac{K_i S_i}{V_o} = \dfrac{K_i d}{4\delta(d-\delta)} \\ \varphi = \dfrac{K_c S_c}{V_o} = \dfrac{K_c (d-2\delta)}{\delta(d-\delta)} \end{cases} \tag{5.5}$$

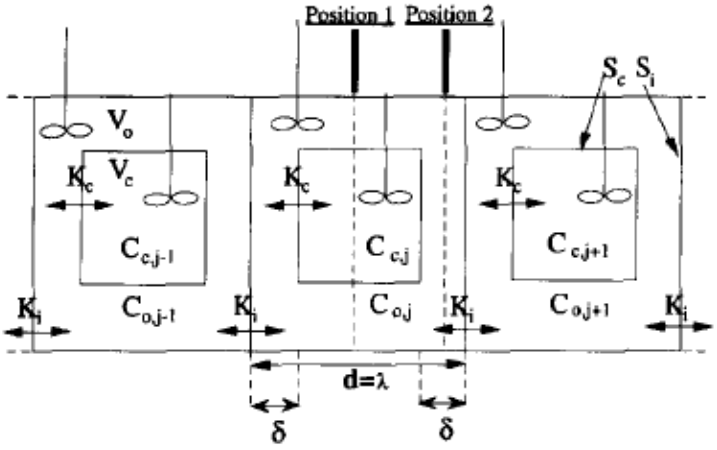


FIGURE 5.2: Représentation schématique du modèle 2D de mélange.

Pour la validation du modèle, les auteurs ont utilisé trois type d'injection : au centre du vortex, dans les zones de « inflow » et dans les zones de « outflow ». Les résultats ont montré que le transport de matière entre tourbillons se fait uniquement par diffusion moléculaire en régime laminaire (TVF), mais que ce n'est pas le cas pour les autres régimes. De plus, du fait que le coefficient de transport entre tourbillons est largement supérieur au coefficient de transport interne, le traceur coloré peut transiter de tourbillon

en tourbillon sans passer par les zones centrales. Il faut toutefois noter que l'étude de Desmet *et al.* (1996) a été menée pour les écoulements de Taylor-Couette sans débit axial et il est nécessaire de vérifier leurs résultats dans le cas où un débit axial est imposé. Cependant, on peut supposer que le modèle reste valable pour des faibles valeurs du nombre de Reynolds axial où la structure des tourbillons est simplement convectée par l'écoulement moyen.

Plus récemment, Campero et Vigil (1997) ont utilisé une approche similaire qui a conduit à un modèle à 3 paramètres (voir Figure 5.3b). Ce modèle plus complexe permet de tenir compte de la non-idéalité du mélange dans la zone centrale du vortex, comme suggéré par Desmet *et al.* (1996). En effet, toujours à l'aide d'expériences de traçage, ces auteurs ont montré que le mélange intra-vortex est faible pour les régimes TVF et WVF. Ils ont ainsi développé un modèle à 3 paramètres, inspiré de celui de Desmet *et al.* (1996), dont il constitue une généralisation. Dans ce modèle, les vortex sont représentés par un réseau de RPA avec des volumes d'échange en série. L'entité "RPA plus volume d'échange" correspond à un vortex dont le volume d'échange désigne le cœur du vortex. Les paramètres de ce modèle sont respectivement : le coefficient de dispersion effective (D_{eff}), le temps de séjour dans le volume d'échange (τ_d) et la fraction volumique du volume d'échange par rapport au volume total (φ). Ce modèle a été également utilisé par Zhu *et al.* (2000) pour montrer les limites du modèle classique à N RPA (voir Figure 5.3).

Les différents modèles recensés dans la littérature, ainsi que leurs domaines d'application et les résultats obtenus en terme de dispersion axiale sont résumés dans le tableau de synthèse 5.1.

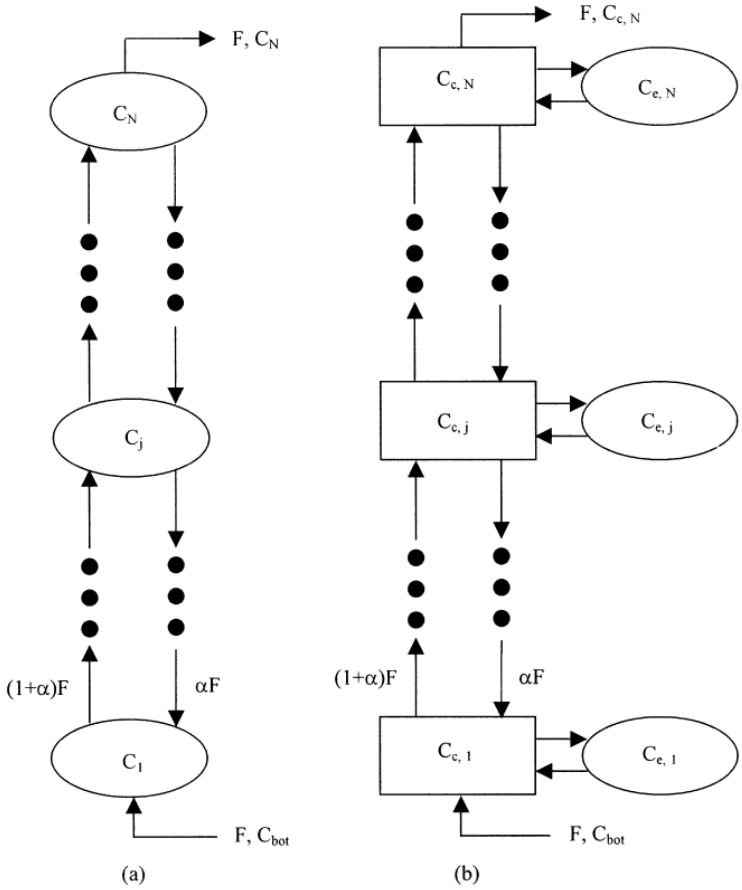


FIGURE 5.3: Représentation schématique de deux modèles de transport : (a) N RPA et (b) N RPA avec volume d'échange.

La plupart de ces corrélations a été établie sur la base de mesures expérimentales et relient le D_x au nombre de Reynolds tangentiel Re_θ, au nombre de Reynolds axial Re_{ax} ou au nombre de Taylor Ta. Elles reposent généralement sur des lois puissance de type :

$$D \propto c \cdot Re_\theta^\alpha \tag{5.6}$$

$$D \propto c \cdot Re_\theta^{\alpha_1} Re_{ax}^{\alpha_2} \tag{5.7}$$

ou une combinaison linéaire des deux.

Dans la littérature, les valeurs des exposants α, α_1 et α_2 diffèrent d'un auteur à un autre en fonction de la géométrie étudiée (η, Γ). Pour le régime turbulent, et pour $0{,}494 \leq \eta \leq 0{,}875$, Tam et Swinney (1987) ont proposé un loi de type (5.6), avec un exposant α qui varie entre 0,7 et 0,85 en fonction de la géométrie. Ohmura *et al.* (1997) ont proposé le même type de loi mais où α varie en fonction du régime d'écoulement, prenant respectivement la valeur 2,8 ; 1,5 ou 0,9 pour les régimes TVF, WVF ou TTVF.

Auteurs	$\eta = \frac{R_i}{R_e}$	e (mm)	Re_{ax}	Corrélations	Modèles
Kataoka et al. *(1975)*	0,75	10	0 - 90	—	Réacteur Piston (PR) (régime TVF)
Kataoka et al. *(1977)*	2	20	0 - 35	$D \propto Re_{ax}^{1,7}$	Réacteurs parfaitement agités en série (N RPA)
Tam et Swinney (1987)	0,494 - 0,875	3,2 - 12,85	0	$D_x \propto Re_\theta^\alpha$	1D dispersion-convection (régime turbulent)
Enkoida et al. *(1989)*	0,593 - 0,76	18 - 30,5	60 - 250	$D_x \propto c_1 Re_\theta^{0,81} + c_2 Re_\theta Re_{ax}$	1D dispersion-convection
Pudijioni et al. *(1992)*	0,15	1,5	0,03 - 5,5	—	1D dispersion-convection
Moore et Cooney (1995)	0,73 - 0,96	0,4 - 3,8	0,5 - 30	$D_x \propto Re_\theta^{1,05} Re_{ax}^{0,17}$	1D dispersion-convection
Desmet et al. *(1996)*	2,4	24	0	—	2D modèle : PD et N RPA
Ohmura et al. *(1997)*	1,84	18,4	0	$D_x \propto Re_\theta^{2,8}$ (régime TVF) $D_x \propto Re_\theta^{1,5}$ (régime WVF) $D_x \propto Re_\theta^{0,9}$ (régime turbulent)	1D dispersion-convection
Campero et Vigil (1997)	0,875	1,6	0,5	—	2D N RPA avec volume d'échange (régime TVF et WVF)
Zhu et al. *(2000)*	0,875	1,6	0,5	—	2D N RPA avec volume d'échange
Racina et al. *(2010)*	0,68 - 0,758	18,5 - 12,1	1	$D_x \propto c_1 \eta^{-1,75} Re_\theta^{1,25}$ (régime WVF) $D_x \propto c_2 \eta^{-1} Re_\theta^{0,57} Re_{ax}^{0,25}$ (régime turbulent)	2D nRPA avec volume d'échange

Tableau 5.1: Revues des corrélations expérimentales pour D_x.

Moore et Cooney (1995) ont en revanche utilisé un loi de type (5.7) avec α_1 égal à 0,17 et α_2 proche de 1,05 indépendamment du rapport d'aspect, dans la gamme de géométrie qu'ils ont étudiées ($0{,}73 < \eta < 0{,}96$).

Récemment, Racina *et al.* (2010) ont proposé une loi analogue pour le régime turbulent (TTVF) avec respectivement des exposants de 0,57 et 0,25 pour α_1 et α_2. Enfin, Enkoida *et al.* (1989) ont proposé une combinaison linéaire des deux équations avec un $\alpha = 0{,}81$ et $\alpha_1 = \alpha_2 = 1$.

2 Problématique de notre étude

A travers l'étude bibliographique sur le mélange axial dans un écoulement de Taylor-Couette, il apparaît que, malgré le nombre important d'études, il n'y a pas consensus entre les différents modèles proposés. En effet, comme les différentes corrélations pour le calcul du coefficient de dispersion axiale ont été obtenues pour des régimes d'écoulement variés et sur des configurations géométriques différentes, elles ne peuvent pas être utilisées pour prédire le comportement d'autres configurations et d'autres régimes. En outre, les modèles simples à un seul paramètre ont montré plusieurs failles dès qu'on s'éloigne du régime laminaire. Pourtant, le fonctionnement souhaité de la majorité des contacteurs Taylor-Couette est souvent loin de ce régime (ce qui est notre cas). De même, les modèles à plusieurs paramètres ne sont pas transposables d'un régime à un autre et d'un appareil à un autre.

A la lumière des résultats de l'étude locale (cf. chapitre précédent), nous nous attacherons donc à caractériser le mélange axial dans la géométrie spécifique du contacteur Couette ($\eta = 0,85$). Deux approches sont considérées à cet effet :

- une approche qualifiée de *statistique* où on s'intéressera à la DTS de molécules fluides (colorimétrie expérimentale ou simulation numérique Lagrangienne).
- et une approche qualifiée de *Eulérienne* permettant d'après King *et al.* (2001) et King *et al.* (2008) de dégager une loi générale pour la dispersion axiale en utilisant une mesure de la distorsion de l'écoulement.

3 Étude du mélange axial basée sur l'approche statistique

Dans cette partie on se propose de caractériser la dispersion axiale dans notre colonne en déterminant expérimentalement et numériquement le paramètre global « coefficient de dispersion axiale D_x ». Deux approches ont été utilisées : une approche expérimentale, basée sur une mesure de la distribution des temps de séjour des molécules de la phase utilisée, et une approche

numérique basée sur un suivi lagrangien d'une grande quantité de particules fluides lâchées initialement de façon aléatoire dans le domaine de calcul.

3.1 Étude expérimentale : Traçage colorimétrique

Pour la caractérisation de la dispersion axiale dans des contacteurs de type Taylor-Couette, plusieurs méthodes ont été utilisées. Raguin *et al.* (2001) ont utilisé une méthode électrochimique, Desmet *et al.* (1996) ont utilisé une méthode de traçage colorimétrique en injectant un colorant dans deux zones de l'écoulement : la zone centrale et la zone de séparation entre les rouleaux.
Dans notre étude, on a choisi la méthode de traçage colorimétrique pour déterminer la distribution de temps séjour (DTS). Cette méthode a en effet plusieurs avantages. Elle évite notamment d'introduire au sein de la colonne des sondes qui peuvent perturber l'écoulement et elle offre la possibilité d'effectuer des mesures à différentes positions de la colonne ce qui permet facilement de s'éloigner des zones de perturbation de l'écoulement (bords de la colonne au niveau des décanteurs).

3.1.1 Principe des traçages par spectrophotométrie

La spectrophotométrie est une méthode d'analyse optique qui permet d'identifier et de déterminer les concentrations des ions ou des molécules présentes dans une solution, sans la modifier ou l'altérer. Cette technique est basée sur l'excitation de ces ions ou molécules par absorption d'un rayonnement optique de longueur d'onde adéquate.
En effet, chaque milieu possède son propre spectre d'absorption de la lumière. Si on éclaire à l'aide d'une source neutre (spectre plat) un colorant à dominante rouge par exemple, ce dernier aura tendance à absorber les longueurs d'onde courtes (correspondant aux couleurs froides : le vert, le bleu), et laisser passer les longueurs d'onde plus longues (autour du rouge). Ce déficit d'intensité lumineuse pour certaines longueurs d'onde est traduit en intensité électrique par capteur photométrique, puis relié à la concentration du colorant dans le milieu considéré par la densité optique (calibration). Connaissant le spectre d'absorption d'une espèce chimique, on peut mesurer, pour une longueur d'onde fixée (généralement pour le maximum d'absorption), les variations de densité optique au cours du temps de façon à remonter à la variation de concentration de l'espèce en question.
La technique de spectrophotométrie par colorimétrie a été mise en place au CEA/Marcoule, dans le but initial de suivre en ligne des concentrations d'uranium et de plutonium dans certains flux lors des essais de procédé. Elle est aujourd'hui utilisée pour étudier le mélange axial dans les appareils d'extraction de laboratoire.

En notant I_0 l'intensité du faisceau de lumière blanche envoyé par une source lumineuse polychromatique et I_λ l'intensité du faisceau monochromatique de longueur d'onde λ émergeant de la solution considérée, la loi de Beer-Lambert permet de relier la densité optique aux concentrations des différentes espèces présentes comme suit :

$$DO(\lambda) = log\frac{I_0}{I_\lambda} = \sum_i \epsilon_i(\lambda) l C_i \tag{5.8}$$

où $\epsilon_i(\lambda)$ est le coefficient d'extinction molaire de l'espèce i à la longueur d'onde λ, C_i sa concentration en mol/l et λ la longueur optique de solution traversée exprimée en général en cm. $\epsilon_i(\lambda)$ s'exprime donc généralement en $l.mol^{-1}.cm^{-1}$, et dépend de la longueur d'onde, de l'espèce chimique considérée et de la température.
Dans cette étude, on se place dans le cas où une seule des espèces en solution, à savoir le colorant, absorbe de façon notable à la longueur d'onde utilisée. Dans ce cas de figure, la loi de Beer-Lambert se réécrit alors :

$$DO(\lambda) = \varepsilon L C = -log\frac{I_\lambda}{I_0^\lambda} \tag{5.9}$$

Avec,

- ε le coefficient d'extinction molaire du traceur
- L le trajet optique du faisceau lumineux dans la solution
- C la concentration du traceur
- I_0^λ l'intensité du signal correspondant au milieu sans traceur
- I^λ l'intensité du signal brut obtenu dans le milieu avec le traceur

Ainsi, il apparaît que le suivi de l'évolution de la densité optique au niveau du pic d'absorption permet de rendre compte de l'évolution de la concentration en colorant, pourvu qu'on se place dans le domaine de linéarité de la loi de Beer Lambert. La courbe de l'évolution de la DO donne donc directement accès, une fois normée, à la concentration du colorant.

3.1.2 Mise en œuvre de la méthode

La mise en oeuvre de cette technique de traçage colorimétrique en colonne Couette impose l'utilisation d'un rotor en inox. En effet, avec le système de sonde intégrée utilisée, composée d'une fibre amenant le faisceau lumineux, entourés de 4 fibres collectrices connectées au spectrophotomètre, le signal lumineux traverse l'entrefer, et est réfléchi par le rotor avant d'être collecté par les quatres fibres optiques.

Les mesures ont été réalisées en monophasique, principalement en phase aqueuse (eau ou acide nitrique 0,5 M). Le colorant (traceur passif) doit être

parfaitement soluble dans la phase qu'on veut tracer sans être extractible par les autres phases susceptibles d'être présentes (cas du traçage en milieu polyphasique). En monophasique, et en phase aqueuse, le bleu de méthylène a été retenu. Ce colorant présente deux pics situés respectivement à $\lambda = 638$ et 687 nm. On retient donc 500-800 nm pour la bande passante en vue de la mesure de densité optique le long de la colonne. L'évolution de la hauteur des pics d'absorption au cours du temps permet de déterminer la DTS. Enfin, la ligne de base doit être enregistrée à une longueur d'onde où la densité optique du fluide porteur (sans colorant) ne varie pas, ou peu, au cours du temps, ceci afin d'éviter d'avoir des signaux très bruités une fois le colorant introduit. Afin de rester dans le domaine de validité de la loi de Beer-Lambert tout au long de l'expérience, et tout en conservant une sensibilité suffisante, des injections de 1 ml de bleu de méthylène dilué à 1 g/l ont été choisies.

L'expérience consiste à injecter le colorant à l'entrée du décanteur haut et à suivre et à enregistrer l'évolution de la concentration en deux points distants dans la direction axiale. Pour réaliser l'injection, un système de vanne en "T" sur lequel nous avons installé un septum est inséré dans le circuit fluide en amont de la colonne. L'injection au niveau du décanteur haut permet de s'affranchir de la dispersion du colorant à contre-courant de l'écoulement, parfois significative (quelques cm), lorsque l'injection est effectuée directement au niveau du fût. La sonde 1 est positionnée directement en aval de l'injection, la sonde 2 est positionnée à une distance L en aval de la sonde 1 (Figure 5.5). Les deux sondes 1 et 2 sont identiques.

Les signaux d'entrée captés par la sonde optique ne correspondent généralement pas à une impulsion parfaite ce qui est dû à la dispersion entre la zone d'injection de colorant et la sonde. Il est possible dans ce cas de calculer le signal de sortie sur la base des modèles hydrodynamiques, décrits en annexes, en considérant un temps de séjour moyen entre les deux sondes. Ce temps de séjour moyen, $\bar{t_s}$, est défini comme étant la différence entre les moments d'ordre 1 du signal de sortie (sonde 2) et celui d'entrée (sonde 1). Un programme de convolution de signaux permet de calculer, sur la base de l'évolution de concentration mesurée sur la sonde 1, le signal prédit sur la sonde 2 dans le cadre du modèle « piston-dispersion ». Puis, le nombre de Peclet Pe caractéristique de l'écoulement est déterminé par identification numérique, en utilisant une méthode des moindres carrés pour la minimisation de l'écart entre le signal ainsi modélisé et celui réellement enregistré sur la sonde 2.
L'ensemble des essais réalisés a pu être correctement décrit par le modèle « piston dispersion ». Cependant, on a également testé le modèle N RPA, utilisé dans la littérature. Un exemple de traitement est présenté sur la figure 5.6. En notant L la distance en mètres entre les deux sondes, le coef-

FIGURE 5.4: Photo du montage DTS : colonne extracteur ($\eta = 0{,}85$).

ficient de dispersion peut être ainsi calculé comme suit :

$$D_x = \frac{L^2}{Pe \cdot \bar{t_s}} \tag{5.10}$$

Afin de tester la reproductibilité des expériences et d'estimer l'erreur expérimentale, certains essais ont été reproduits 15 fois. Les résultats (Figure 5.7) indiquent une excellente reproductibilité du résultat en terme de D_x, quel que soit le protocole de mise en mouvement du rotor (rampe d'accélération lente de 300 s ou rapide de 1 s ou rampe de décélération) et quel que soit le Re final (400 à 800). Ainsi, pour l'ensemble des régimes étudiés (TVF, WVF, MWVF), la déviation observée lors des essais de reproductibilité est en moyenne de 8 % et de 13 % au maximum.

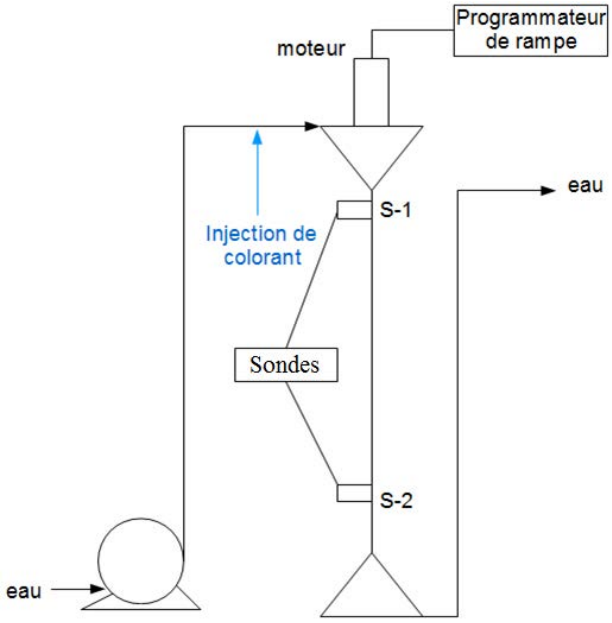


FIGURE 5.5: Schéma du montage DTS : positions des sondes et d'injection du colorant.

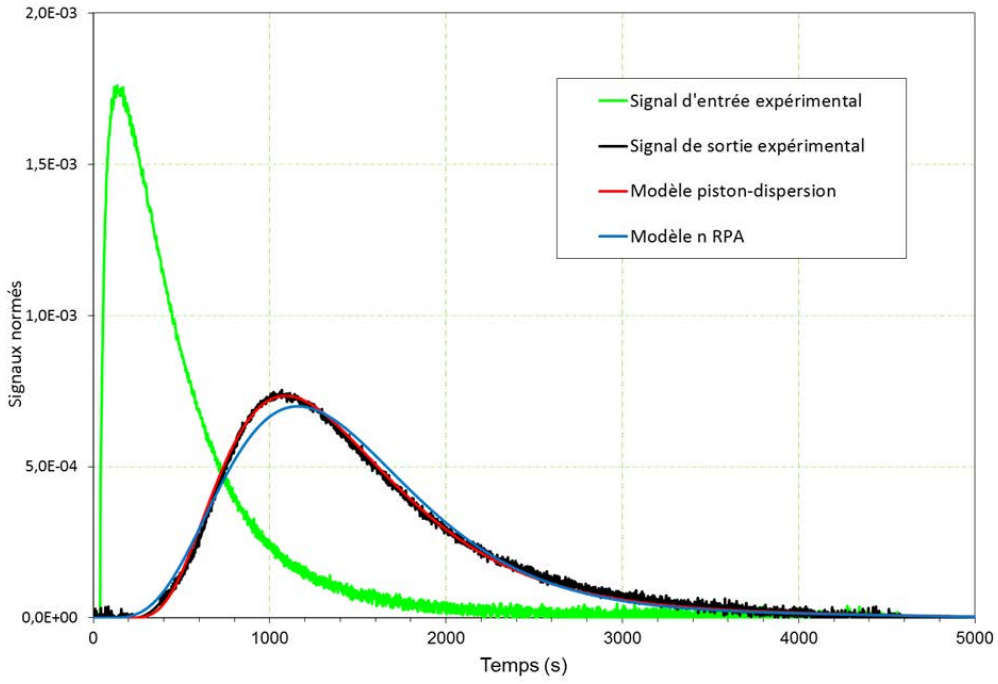


FIGURE 5.6: Signaux normés obtenus par spectrométrie et modèles piston-dipersion et N RPA.

Remarque

L'ensemble des expériences de traçage a été réalisé dans la configuration "colonne Couette", utilisée en extraction liquide-liquide ($\eta = 0{,}85$). Des essais ont été menés récemment sur la colonne utilisée pour la PIV et la PLIF ($\eta = 0{,}687$), mais les résultats obtenus étaient non exploitables et/ou non reproductibles. En effet, avec cette géométrie caractérisée par un gros entrefer ($e = 11$ mm), le chemin optique parcouru par les faisceaux incident et transmis est plus important que dans la colonne usuelle ($e = 1{,}5$ mm), ce qui ce traduit par des pertes plus importantes par diffusion. D'autres part, la durée des expériences est significativement plus longue, ce qui a également induit une surchauffe de la lampe, et en conséquence une dérive progressive de la ligne de base des enregistrements.

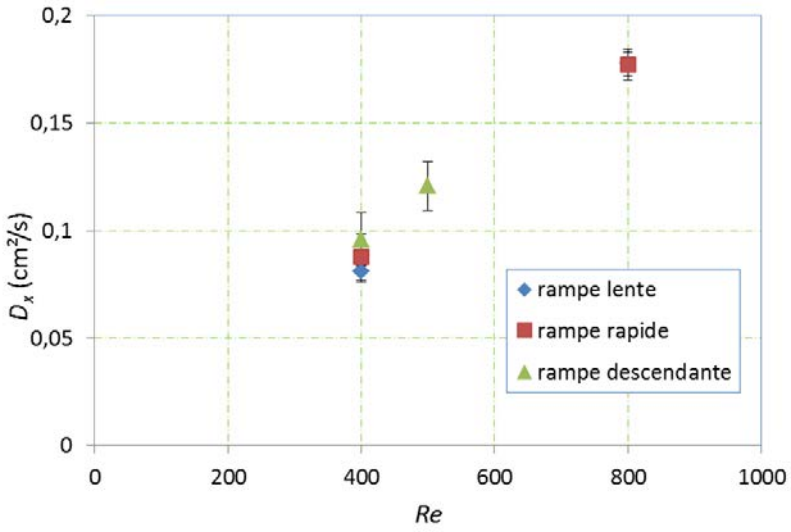


FIGURE 5.7: Estimation de l'erreur relative sur les mesures du coefficient de dispersion axiale D_x ($\eta = 0{,}85$).

3.1.3 Résultats préliminaires

Influence du débit axial

Pour les traçages expérimentaux, la colonne fonctionne en régime ouvert. Elle est alimentée en fluide par un débit de 100 ml/h, ce qui correspond à un nombre de Reynolds axial de $Re_{ax} \approx 0{,}5$. Afin de regarder l'influence de cet écoulement axial, superposé à l'écoulement de Taylor-Couette, sur la dispersion, nous avons comparé sur la Figure 5.8 les évolutions mesurées de D_x pour deux débits de respectivement 100 et 200 ml/h. Les résultats montrent bien que D_x varie peu en fonction du Re_{ax}, conformément aux

conclusions de Moore et Cooney (1995), qui n'ont pas observé d'influence du débit sur la dispersion en deçà de $Re_{ax} = 0{,}5$. Par ailleurs, nos résultats de simulations numériques n'indiquent pas de déviation significative du champs de vitesse pour des débits axiaux inférieurs à 300 ml/h.

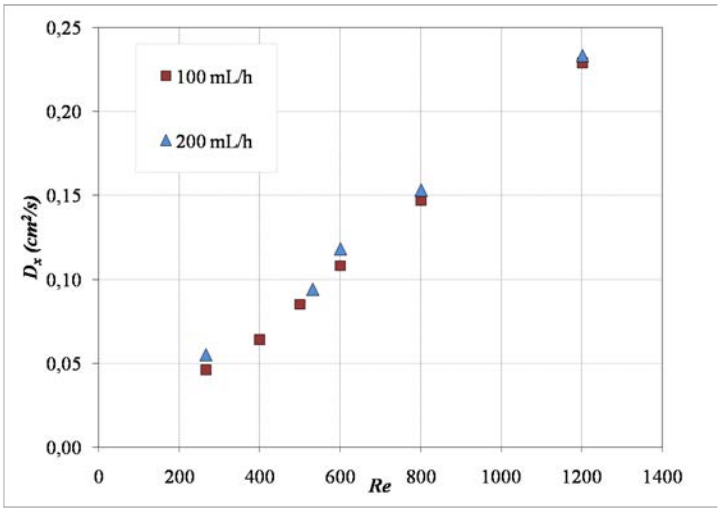


FIGURE 5.8: Influence du débit axial sur le coefficient de dispersion axiale ($\eta = 0{,}85$).

Coefficient de dispersion axiale

L'ensemble des résultats expérimentaux disponibles est compilé sur la Figure 5.9. Des résultats antérieurs à la thèse ont été obtenus sans précaution particulière pour la mise en rotation du rotor. Une incertitude subsiste donc quant au régime d'écoulement réellement atteint. En revanche, pour les traçages réalisés au cours de la thèse, les protocoles de démarrage établis et décrits au chapitre 2 ont été appliqués afin de choisir le régime d'écoulement.

On observe tout d'abord une grande dispersion des valeurs du coefficient de dispersion axiale D_x. De plus, celui-ci ne varie pas de façon monotone avec le nombre de Reynolds Re, comme observé par plusieurs auteurs dans la littérature (Kataoka *et al.*, 1977; Tam et Swinney, 1987; Enkoida *et al.*, 1989; Pudijioni *et al.*, 1992; Moore et Cooney, 1995).

Ayant montré que Re_{ax} avait peu d'influence sur D_x, nous avions pensé corréler les résultats expérimentaux obtenus sur la colonne Couette, à une loi de type (5.6). Or, comme l'illustre la Figure 5.9 les valeurs de D_x mesurées sont très dispersées, surtout dans la plage des régimes ondulatoires ($160 < Re < 1600$). Le modèle décrit par l'équation (5.6) ne peut donc pas décrire le comportement observé sur notre colonne. Cet écart, par rapport aux modèles souvent utilisés dans la littérature, est plus marqué pour les régimes « wavy » susceptibles de présenter une multiplicité d'états d'onde

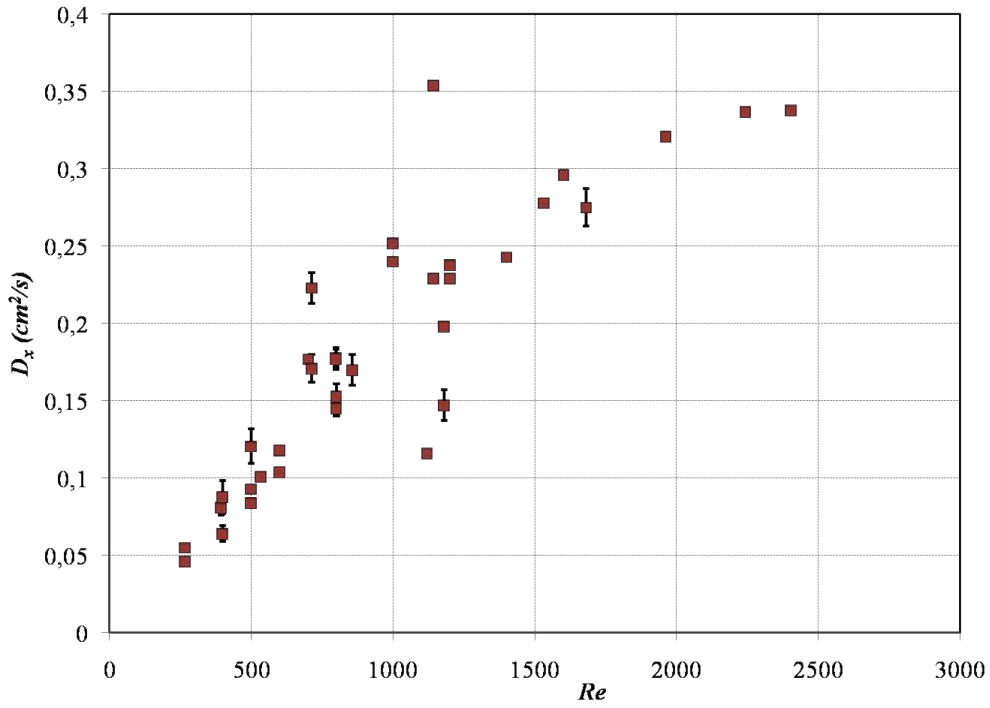


FIGURE 5.9: Evolution du coefficient de dispersion axiale en fonction du nombre de Reynolds : mise en évidence de la multiplicité d'états d'onde ($\eta = 0{,}85$).

pour un même Re. L'influence de la multiplicité d'état d'onde est étudiée en détails dans la suite.

3.2 Étude numérique : Traçage Lagrangien

Pour déterminer le coefficient de dispersion axiale par simulation numérique, une première méthode consiste à reproduire les expériences de traçage en injectant un scalaire passif dans l'écoulement. Associée avec un modèle piston-dispersion, cette méthode permet, à partir des DTS simulées, de remonter au coefficient de dispersion axiale D_x. Elle a par exemple été utilisée pour étudier le mélange axial en colonne pulsée (Charton *et al.* (2012)). Pour notre étude, nous avons choisi une approche Lagrangienne, cette méthode ayant été utilisée en configuration Taylor-Couette par plusieurs auteurs dans la littérature (Broomhead and Ryrie (1998), Rudman (1998), King *et al.* (2001), Akonur et Lueptow (2003), ...).

Dans ce paragraphe, on présente dans un premier temps la méthode utilisée pour calculer le coefficient de dispersion axiale. Les résultats obtenus sont ensuite comparés à ceux de la littérature et à nos résultats expérimentaux.

3.2.1 Principe de la méthode par suivi Lagrangien

Le calcul du coefficient de dispersion axiale repose sur le suivi des trajectoires de particules fluides, initialement lâchées de façon aléatoire dans l'entrefer, une fois le régime hydrodynamique établi. Le nombre de particules, de même densité que le fluide, est compris entre 2000 et 10000 selon les cas. La dispersion des particules le long du domaine étant régie par un processus de diffusion, le déplacement moyen des particules varie linéairement avec le temps. La dispersion axiale est quantifiée par un coefficient de diffusion effectif adimensionnel défini par Broomhead et Ryrie (1988) :

$$D_x^* = \lim_{t\to\infty} D_x^*(t) = \lim_{t\to\infty} \frac{1}{N} \sum \frac{\langle (x_i(t) - x_i(t_0))^2 \rangle}{2t} \tag{5.11}$$

Où :

- D_x^* est le coefficient de dispersion effectif (adimensionnel)
- N le nombre de particules
- $x_i(t)$ est la position axiale de la $i^{ème}$ particule à l'instant t
- $x_i(t_0)$ est la position initiale de la $i^{ème}$ particule

D_x^* est adimensionnel car les simulations JADIM sont réalisées en variables x et t adimentionnelles (voir chap. 3).

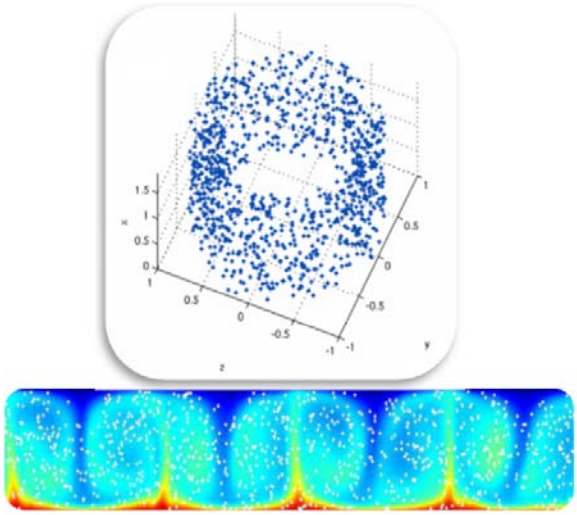


FIGURE 5.10: Ensemencement du domaine avec des particules fluides à l'instant initial de la dispersion.

Après un court régime transitoire, le coefficient de dispersion adimensionnel atteint une valeur asymptotique, soit après quelques rotations du cylindre intérieur. Lorsque le plateau est atteint, le régime de diffusion aux

temps longs est caractérisé par le coefficient D_x^*. On peut alors remonter au coefficient de dispersion axiale « réel » en utilisant l'expression suivante :

$$D_x(m^2/s) = \frac{Re}{1-\eta}\nu D_x^* \tag{5.12}$$

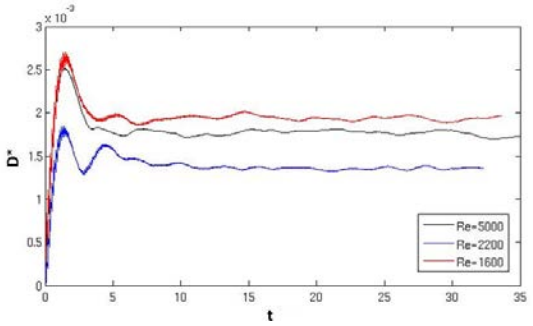


FIGURE 5.11: Evolution du coefficient de diffusion adimensionnel.

Les résultats peuvent aussi être interprétés en définissant un nombre de Schmidt effectif résultant du transport chaotique :

$$Sc = \frac{\nu}{D_x} = \frac{1-\eta}{ReD_x^*} \tag{5.13}$$

L'objectif de ces simulations étant de comprendre l'évolution du coefficient de dispersion axiale dans les différents régimes d'écoulement, et en particulier dans les régimes ondulatoires (WVF et MWVF), il est nécessaire de pouvoir reproduire numériquement les différents états d'onde identifiés expérimentalement (via les protocoles de mise en rotation). Pour cela, nous avons fait varier la hauteur du domaine de calcul pour contrôler la longueur d'onde axiale λ_x, et nous avons initié l'écoulement avec une perturbation sinusoïdale aux bornes du domaine afin de favoriser l'émergence du nombre d'onde azimutale m désiré (voir chapitre 2).

3.2.2 Discussion

Influence du Re

Les résultats de simulations DNS sont comparés aux résultats des traçages colorimétriques (DTS) sur la Figure 5.12. Un bon accord est observé. On observe à nouveau que l'évolution vers les régimes WVF (notamment à partir de $Re = 600$) augmente considérablement la dispersion axiale. En effet, comme observé lors de l'étude à l'échelle locale au chapitre 4, l'apparition des vagues influence beaucoup le mouvement des particules. D'une part, les ondulations brisent la symétrie de rotation ce qui rend le champ de vitesse dépendant de l'ensemble des trois coordonnées spatiales, et conduit à

un mouvement chaotique des particules qui favorise le mélange intravortex. D'autre part, la perturbation brise les frontières séparant les tourbillons adjacents, ce qui ouvre des passages aux particules, augmentant ainsi le mélange intervortex. Le poids de ces deux mécanismes dans le processus de mélange axial a été quantifié au chapitre 4.

Par-ailleurs, on observe une forte influence des phénomènes d'histoire discutés précédemment sur la dispersion. En effet, pour un même nombre de Reynolds, le coefficient de dispersion peut varier d'un facteur 2 selon le mode opératoire utilisé pour atteindre la vitesse nominale du rotor. Ce qui démontre la nécessité, pour la R&D sur l'extraction liquide-liquide, au même titre que pour notre étude hydrodynamique, de visualiser l'écoulement et de définir un protocole expérimental qui permette de reproduire la même succession d'états (λ_x, m).

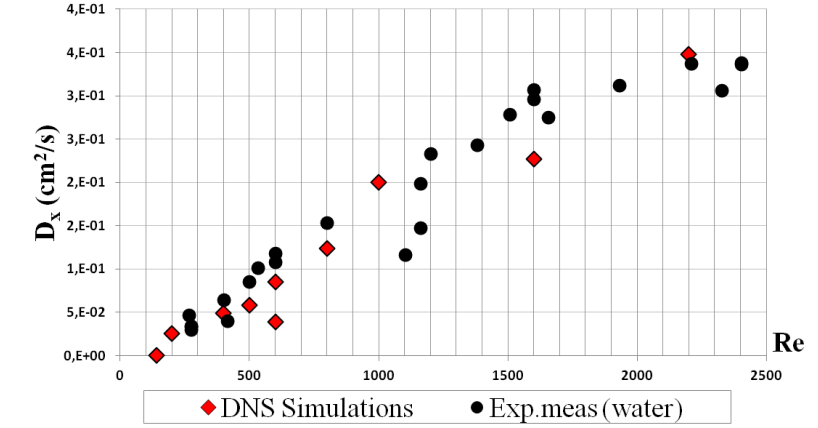


FIGURE 5.12: Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x^* : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0{,}85$).

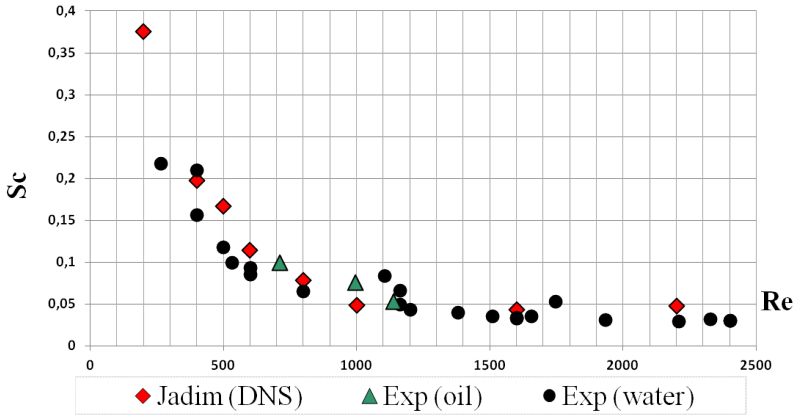


FIGURE 5.13: Évolution du nombre de Schmidt Sc : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0{,}85$).

Le transport chaotique peut être aussi représenté en terme de nombre de Schmidt (5.13). L'évolution du nombre de Schmidt est représentée sur la Figure 5.13. Contrairement au D_x, le Sc évolue de façon monotone avec le Re jusqu'à atteindre un plateau. Rudman (1998) l'a observé pour $Sc = 0{,}155$, ce que confirment Akonur et Lueptow (2003). Nos simulations, qui s'étendent au régime MWVF, montrent la même tendance mais le nombre de Schmidt tend vers une valeur plus basse $Sc = 0{,}1$. Au delà du régime WVF (cas MWVF et TTVF), on observe le plateau vers $Sc = 0{,}05$. Ce plateau indique qu'à partir d'un certain Re, on atteint un état d'onde stable dans un domaine de vitesse relativement étendu. Au delà de cette valeur limite une augmentation de vitesse n'engendre pas nécessairement une augmentation de dispersion axiale.

Néanmoins, en régime WVF, un changement de vitesse peut moduler les fréquences du régime d'onde azimutale, et ainsi la dispersion. De même, en régime MWVF, caractérisé par une dissymétrie dans le train d'ondes responsable de plus grandes interactions entre les cellules dans les directions axiale et azimutale, certaines ondes vont présenter un accroissement significatif d'amplitude alors que d'autres vont s'atténuer, en augmentant la vitesse du rotor. Dans certains cas, on peut également observer le rapprochement puis la fusion de deux ondes consécutives, ou la situation inverse où une onde se divise en deux ; l'écoulement devenant ainsi plus chaotique, et la dispersion axiale plus importante.

Influence de l'état d'onde

L'effet de l'état d'onde sur la dispersion axiale a été étudié en détails. Différents états d'onde ont été examinés pour plusieurs nombres de Reynolds expérimentalement et numériquement. L'influence de la longueur d'onde axiale λ_x et du nombre d'onde azimutale m est représentée sur les Fig. 5.14 et 5.15. Dans un premier temps, λ_x a été fixé et on a fait varier m et dans un second temps m a été fixé et on a fait varier λ_x.

Le coefficient de dispersion D_x apparaît comme une fonction croissante de λ_x. En effet, le mélange intravortex étant très rapide en régime WVF, comme montré dans le chapitre précédent, le traceur est transporté d'autant plus loin en passant d'un rouleau à l'autre que la longueur d'onde axiale λ_x est grande. En revanche, D_x semble généralement être une fonction décroissante de m. Ce résultat est en accord avec Rudman (1998). Cette observation a été aussi confirmée par Rudman (1998) et Rudman *et al.* (2008) pour les régimes ondulatoires et par Tam et Swinney (1987) pour les régimes turbulents. Tam et Swinney (1987) ont en outre proposé une corrélation de D_x en fonction de λ_x de type $D_x \sim \lambda_x$.

Afin de vérifier encore cette tendance, on présente sur les figures 5.16 et 5.17 l'évolution du D_x pour plusieurs états d'onde, telle que déduite des simulations. La DNS permet en effet d'accéder facilement à plusieurs états d'onde. Les résultats numériques confirment les observations expérimentales

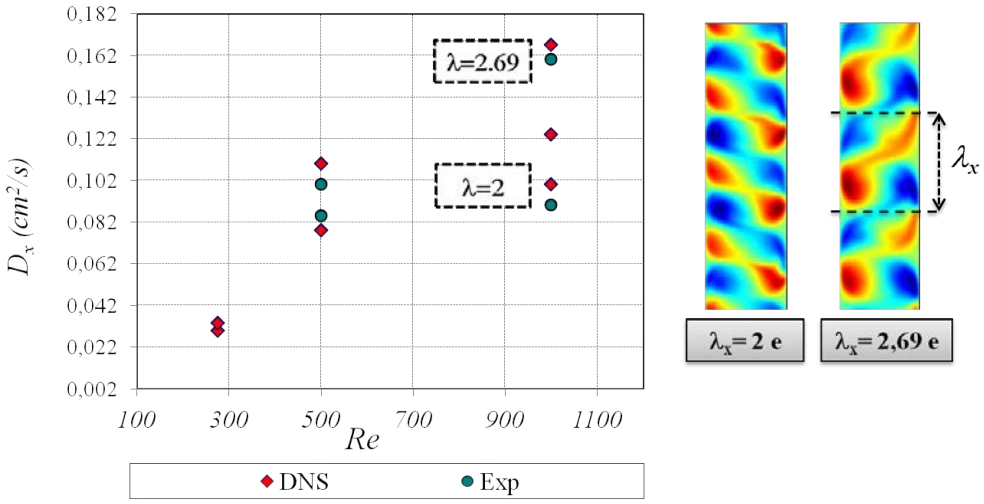


FIGURE 5.14: Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du Re et de la longueur d'onde axiale pour un nombre d'onde $m = 4$ fixé : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0{,}85$).

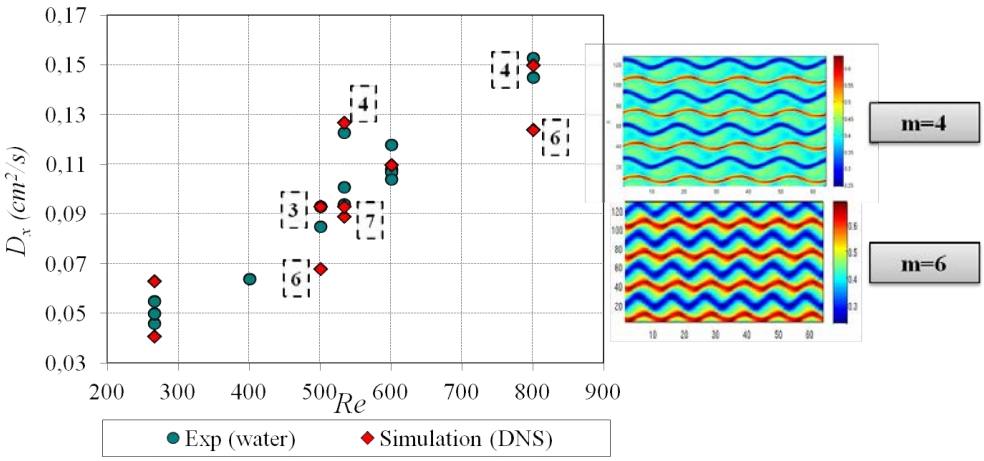
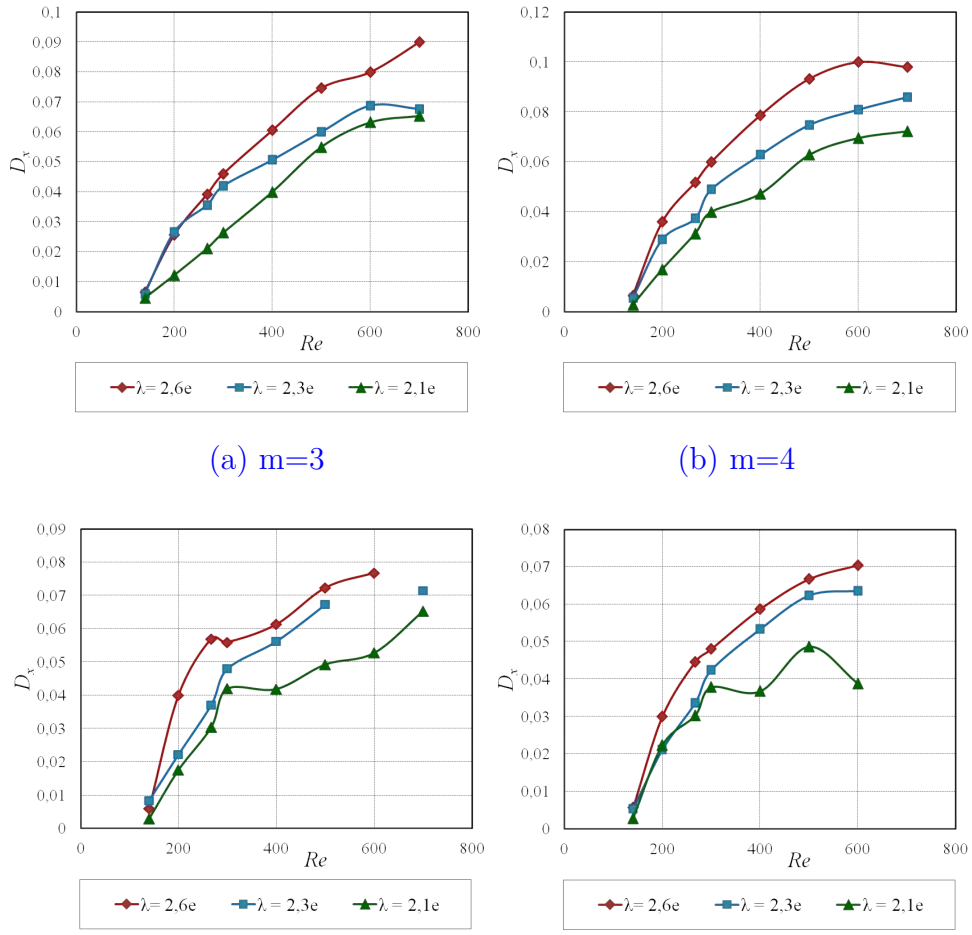


FIGURE 5.15: Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du Re et du nombre d'onde azimutal m pour une longueur d'onde axiale $\lambda_x = 2{,}69e$ fixée : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0{,}85$).

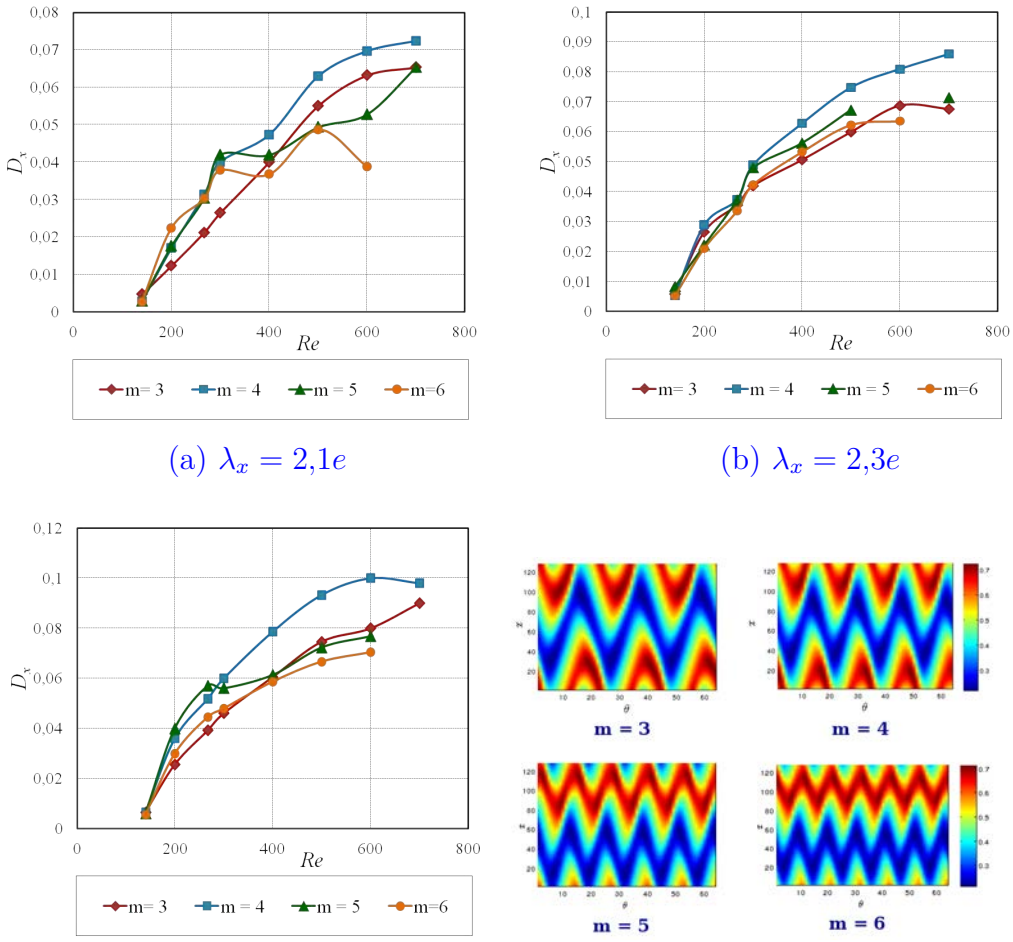
en particulier pour la dépendance avec λ_x. Par contre l'influence de m paraît moins évidente.
Dans le but de vérifier la relation entre D_x et λ_x proposée par Tam et Swinney (1987), on a tracé sur la figure 5.18 l'évolution de D_x/λ_x à iso-valeur de λ_x . On observe que les courbes se resserrent en particulier pour $m = 3$ montrant ainsi la dépendance de D_x en fonction de λ_x.



(a) m=3 (b) m=4

(c) m=5 (d) m=6

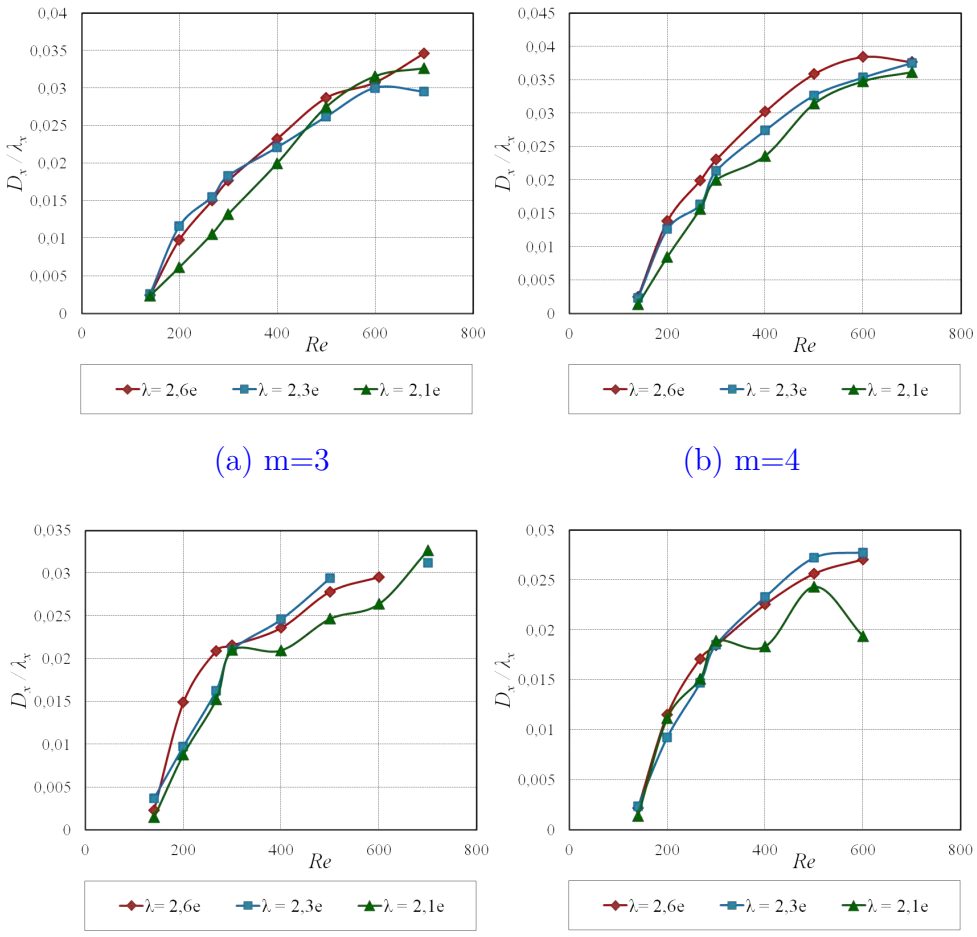
FIGURE 5.16: Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutale m fixé (DNS).



(a) $\lambda_x = 2{,}1e$ (b) $\lambda_x = 2{,}3e$

(c) $\lambda_x = 2{,}6e$ (d) Visualisations des régimes

FIGURE 5.17: Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutal m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée.



(a) m=3 (b) m=4

(c) m=5 (d) m=6

FIGURE 5.18: Évolution du D_x/λ_x en fonction du nombre de Reynolds Re pour un nombre d'onde azimutal m fixé (DNS).

4 Étude du mélange axial basée sur les propriétés intrinsèques de l'écoulement

Dans la section précédente (section 3), le mélange axial a été quantifié grâce un paramètre global « coefficient de dispersion axiale D_x » mesuré à partir des trajectoires de particules fluides. Les trajectoires des particules sont directement liées aux propriétés de l'écoulement. Ces propriétés peuvent être calculées pour un écoulement 2D stationnaire. Dès lors que le champ de vitesse devient dépendant de plus de trois dimensions, des régions de mélange chaotique apparaissent. Pour identifier ces zones, Mezic et Wiggins (1994) ont proposé une approche locale qui introduit des quantités Eulériennes relatives aux propriétés de symétrie des champs de vitesse et de ses gradients. On parle ainsi de « mesures de symétrie Eulérienne ». Yannacopoulos *et al.* (1998) se sont appuyés sur cette approche et ont montré que les zones chaotiques correspondent aux zones où les symétries de l'écoulement sont brisées.
On se propose dans cette partie d'utiliser cette approche pour étudier le mélange axial et montrer la relation entre les résultats issus de l'approche Lagrangienne (coefficient de dispersion axiale D_x) et ceux issus de l'approche Eulérienne (Mesures de symétrie Eulérienne).

4.1 Description de l'approche Eulérienne

L'écoulement de Taylor Couette présente plusieurs symétries d'écoulement. On distingue naturellement les symétries géométriques (rotation, translation), mais il existe aussi d'autres types de symétrie, moins évidentes, liées à la physique de l'écoulement. On les appelle « symétries dynamiques ».

- **Symétries géométriques**
  Les symétries géométriques sont liées à la géométrie de l'écoulement. Dans le cas de l'écoulement de Taylor-Couette (TVF), il existe une symétrie de rotation suivant la direction azimutale. Cette symétrie est rompue lorsque le champ de vitesss devient dépendant de la dimension azimutale θ. Cela advient lors de la transition vers le régime WVF qui s'accompagne de l'apparition de trajectoires chaotiques des particules.

- **Symétries dynamiques**
  Les symétries dynamiques sont liées directement aux caractéristiques de l'écoulement et générées par la vorticité. Elles sont continues dans les équations de Navier-Stokes. Pour le régime WVF et dans un référentiel tournant avec la vague, l'écoulement est stationnaire et on peut

écrire les équations incompressibles de Navier-Stokes comme suit :

$$\omega \times \mathbf{u} = -\nabla B + \nu \nabla^2 \mathbf{u} \tag{5.14}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \tag{5.15}$$

Avec ω est la vorticité , $\nu \nabla^2 u$ désigne le terme de dissipation visqueuse et B la fonction de Bernoulli définie par :

$$B = \frac{1}{2}\mathbf{u}^2 + \frac{P}{\rho} \tag{5.16}$$

Avec P est la pression et ρ est la masse volumique. B varie le long d'une trajectoire d'une particule suivant l'équation :

$$\frac{dB}{dt} = -\nu(\nabla \times \omega) \cdot \mathbf{u} = \nu(\nabla^2 \mathbf{u}) \cdot \mathbf{u} \tag{5.17}$$

B est ainsi une constante du mouvement si $\nu = 0$ (écoulement non visqueux « inviscid flow ») ou $\nabla^2 \mathbf{u} = 0$ (écoulement sans flexion « flexion-free flow »). Mais les solutions sont différentes car les conditions aux limites diffèrent d'une condition à l'autre. B est générée par le champ de vorticité, on l'appelle également symétrie dynamique King *et al.* (2001).

Le principe de l'approche est ainsi d'identifier les régions où les particules ont des trajectoires chaotiques. Ces régions correspondent aux zones où l'écoulement présente une déviation par rapport aux symétrie géométrique et dynamique. Par exemple, on sait que l'écoulement de Couette possède deux symétries géométriques (une symétrie de translation suivant la direction axiale x et une symétrie de rotation suivant la direction azimutale θ) et une symétrie dynamique ($\nabla^2 u = 0$: « flexion-free flow »). La transition vers le régime de Taylor (TVF) brise la symétrie de translation ainsi que la symétrie dynamique, par contre la symétrie de rotation persiste garantissant ainsi l'intégrabilité. Lors de la transition vers le régime WVF la symétrie de rotation sera également brisée ce qui conduit à l'apparition de régions où le mouvement des particules devient chaotique. King *et al.* (2001) ont proposé une méthode pour mesurer les déviations par rapport aux symétries du problème en définissant des quantités dites « Eulériennes » intrinsèques à l'écoulement :

- La déviation par rapport à la symétrie géométrique de rotation calculée à partir du champ de vitesse :

$$\varphi_\theta(\mathbf{x}) = |(\frac{\partial u(\mathbf{x})}{\partial \theta}, \frac{\partial v(\mathbf{x})}{\partial \theta}, \frac{\partial w(\mathbf{x})}{\partial \theta})| \tag{5.18}$$

- La déviation par rapport à la symétrie dynamique (« flexion-free flow ») qui n'est autre que la norme des forces de dissipation visqueuse :

$$\varphi_v(\mathbf{x}) = |\frac{1}{Re}\nabla^2\mathbf{u}(\mathbf{x})| \tag{5.19}$$

Dans le but d'avoir une vue plus globale de ces grandeurs, il est impératif de les intégrer sur tout le domaine et de les moyenner :

$$\bar{f} = \frac{1}{V}\int_{R_i}^{R_e}\int_0^{2\pi}\int_0^H f(r,\theta,z)rdrd\theta dz \tag{5.20}$$

Où :

- R_i est le rayon interne
- R_e est le rayon externe
- H est la hauteur du domaine de calcul
- V est le volume du domaine de calcul

Le produit de ces deux quantités, noté φ_D (eq 5.21), permet ainsi de distinguer les zones intégrables ($\varphi_D \approx 0$) des zones non-intégrables (φ_D présente une déviation importante par rapport à 0). φ_D est définit comme suit :

$$\varphi_D \equiv \varphi_\theta(\mathbf{x})\varphi_v(\mathbf{x}) \tag{5.21}$$

4.2 Discussion des résultats

4.2.1 Observations

Sur la figure 5.19 on représente, pour la configuration "colonne Couette" ($\eta = 0{,}85$), le contour des deux quantités φ_θ et φ_v de déviation par rapport à la symétrie de rotation et à la symétrie dynamique. Une série de nombres de Reynolds couvrant dans l'ordre les régimes TVF, WVF et MWVF est étudiée.
Pour le régime TVF (Re = 140), φ_θ est nulle, ce qui est évident car l'écoulement possède une symétrie de rotation suivant la direction azimutale. A $Re = 200$, l'apparition de vagues brise la symétrie de rotation et le champ de vitesse devient dépendant des trois dimensions spatiales, ce qui donne naissance à des régions où φ_θ devient important. Ces régions sont situées principalement dans les zones de « inflow » et « outflow ». Ces observations sont en accord avec les observations PLIF (section 1 du chapitre 4) et les trajectoires de particules (section 2 du chapitre 4). En effet, les champs

de concentration (PLIF) ont montré que l'apparition des vagues favorise l'échange intervortex ce qui ce traduit par des trajectoires chaotiques de particules.

D'autre part, le contour de φ_v montre l'importance de la dissipation visqueuse et du cisaillement dans les zones « inflow » et « outflow » ainsi que le développement des couches limites en proche paroi. On note également qu'en augmentant le nombre de Reynolds la dissipation se concentre dans les zones proches des zones de « jets ». Cela se traduit par une diminution de φ_v.

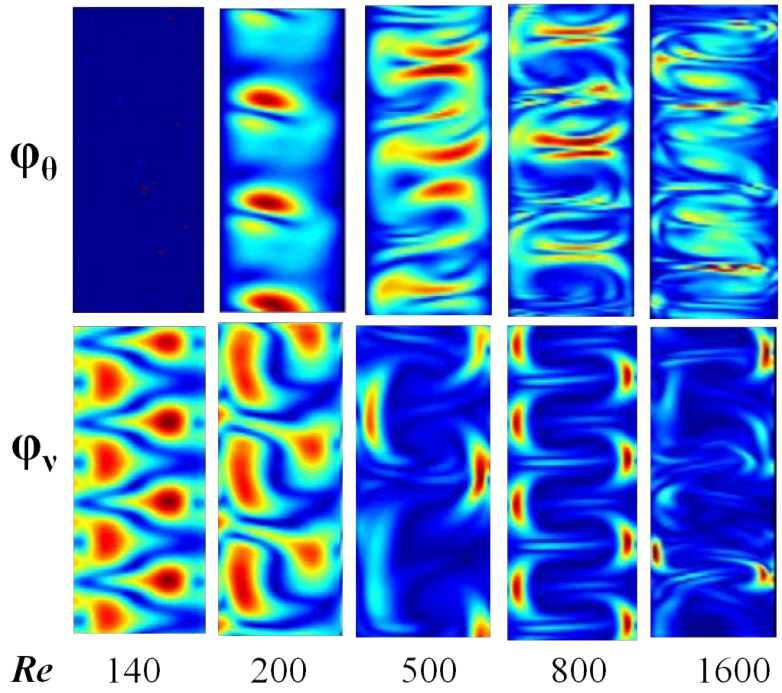


FIGURE 5.19: Contours de φ_θ et φ_v pour une série de nombres de Reynolds couvrant dans l'ordre les régimes TVF, WVF et MWVF ($\eta = 0{,}85$).

4.2.2 Discussion

Les contours de φ_θ et φ_v donnent une illustration qualitative sur le mélange et la dispersion. Pour accéder à des informations quantitatives on a intégré ces quantités Eulériennes sur tout le domaine. Les évolutions de D_x^*, $\overline{\varphi_\theta}$ et $\overline{\varphi_v}$ en fonction de Re pour un nombre d'onde azimutal m fixé sont présentées respectivement sur les figures 5.20, 5.22 et 5.24. Les évolutions de D_x^*, $\overline{\varphi_\theta}$ et $\overline{\varphi_v}$ en fonction de Re pour une longueur d'onde azimutale λ_x fixée sont présentées respectivement sur les figures 5.21, 5.23 et 5.25. En s'appuyant sur les travaux de King *et al.* (2001) et King *et al.* (2008) On s'est intéressé à l'évolution des différents paramètres en fonction du nombre de Reynolds et d'état d'onde, dans le but de montrer la relation entre les caractéristiques de l'écoulement et le mélange axial.

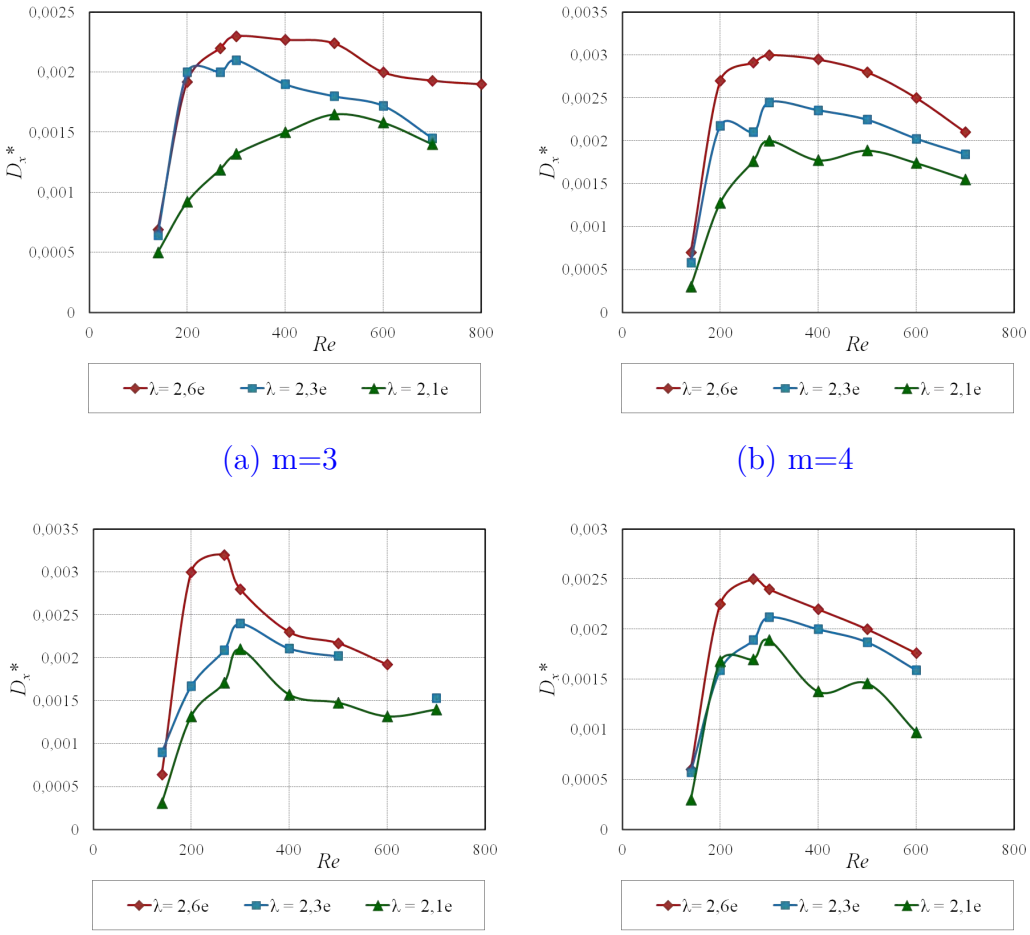
Évolution en fonction du nombre de Reynolds

Les différentes courbes ont pratiquement la même allure : les paramètres D_x^*, $\overline{\varphi_\theta}$ et $\overline{\varphi_v}$ augmentent avec le nombre de Reynolds jusqu'à atteindre un maximum puis diminuent d'une façon monotone.
$\overline{\varphi_v}$ est calculé à partir de la norme des forces de dissipation visqueuse. Les courbes de la figure 5.24 montrent que la transition vers le régime WVF est accompagnée par une augmentation du cisaillement dans les zones proches des parois ce qui se traduit par une augmentation de la déviation par rapport au « flexion-free flow ». Toutefois, on observe qu'à partir d'un certain nombre de Reynolds noté Re_v^* qui correspond au maximum de la courbe, il commence à décroître. Cela peut être expliqué par l'apparition de zones où la courbure de l'écoulement est faible (« vortex core »), au niveau des régions de faible dissipation visqueuse. En effet, avec l'augmentation de la vitesse de rotation, la dissipation devient de plus en plus concentrée dans les zones proches des parois, où des jets prennent progressivement le pas sur ce type de régions. On rappelle que l'existence des « vortex cores », identifiés grâce aux mesures PLIF (Chapitre 4), ralentit significativement l'homogénéisation de la concentration dans chaque vortex, où le mélange intravortex dans le plan méridien $r - x$ est plus lent que dans les autres directions (2 à 4 fois en fonction du Re).

King *et al.* (2001) se sont aussi penchés sur la question de l'influence de ces zones sur la dispersion axiale. Ils ont relié la décroissance de $\overline{\varphi_v}$ à la croissance des régions en question. En effet, ils ont trouvé que dans l'intervalle $324 < Re < 756$ (WVF $\eta = 0{,}875$), $\overline{\varphi_v}$ décroit en $Re^{-1/3}$. La croissance de ces zones (« vortex core ») se fait ainsi au détriment des zones où la courbure (ou distorsion) de l'écoulement est importante, ce qui conduit nécessairement à la diminution de la norme de $\overline{\varphi_v}$.

La déviation par rapport à la symétrie géométrique $\overline{\varphi_\theta}$ évolue de la même façon que $\overline{\varphi_v}$: dès la transition vers le régime WVF, $\overline{\varphi_\theta}$ augmente jusqu'à

atteindre un maximum qui correspond au nombre de Reynolds Re_θ^* ($Re_\theta^* > Re_v^*$). $\overline{\varphi_\theta}$ décroit ensuite de façon monotone (dans le régime WVF). La croissance de $\overline{\varphi_\theta}$ est due à la perturbation ondulatoire qui vient briser la symétrie de rotation de l'écoulement TVF. La phase de croissance correspond à la phase de croissance de l'amplitude de la vague qui produit du cisaillement.



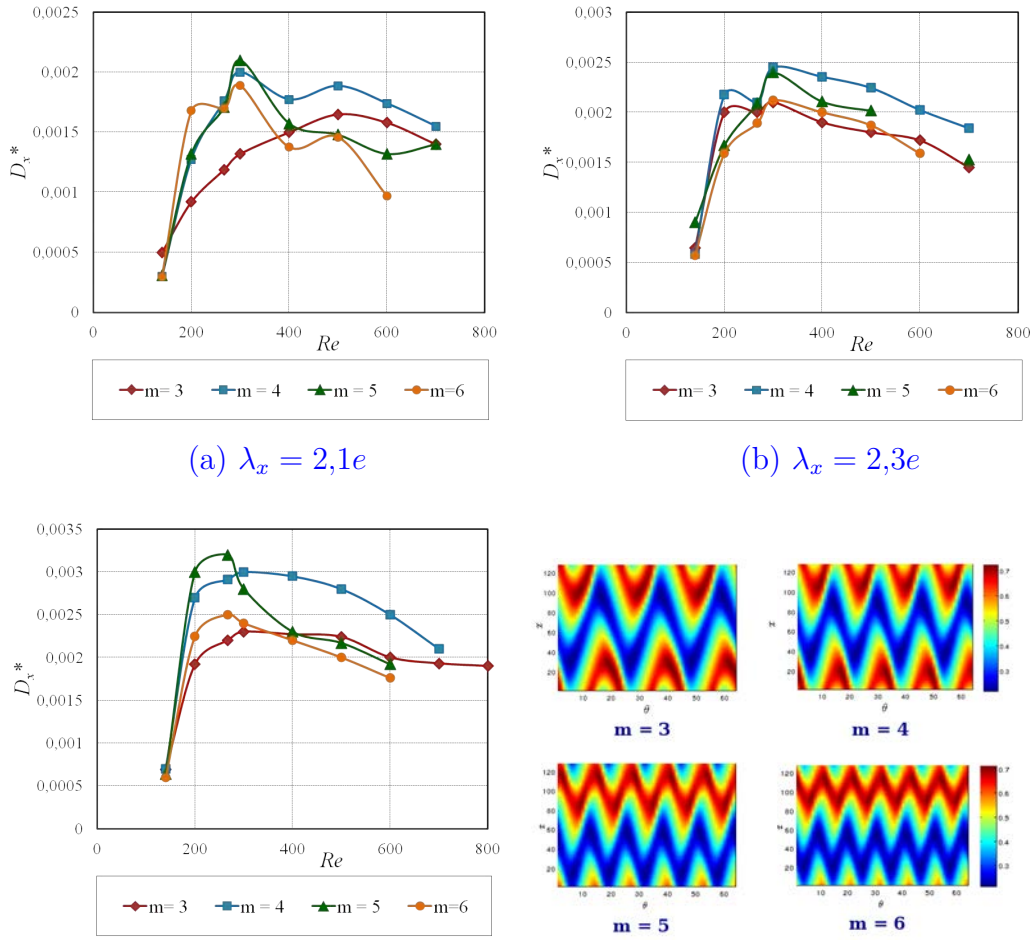
(a) m=3 (b) m=4

(c) m=5 (d) m=6

FIGURE 5.20: Évolution du coefficient de dispersion axiale adimensionnel D_x^* en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé.

Influence de l'état d'onde

Pour un nombre d'onde azimutal m fixé, les résultats montrent que $\overline{\varphi_\theta}$ et $\overline{\varphi_v}$ sont des fonctions décroissantes de λ_x. Cela peut être expliqué par la nécessite du système de dépenser plus d'énergie dans le déplacement du fluide des zones « inflow » vers les zones « outflow » ce qui laisse moins



(a) $\lambda_x = 2{,}1e$

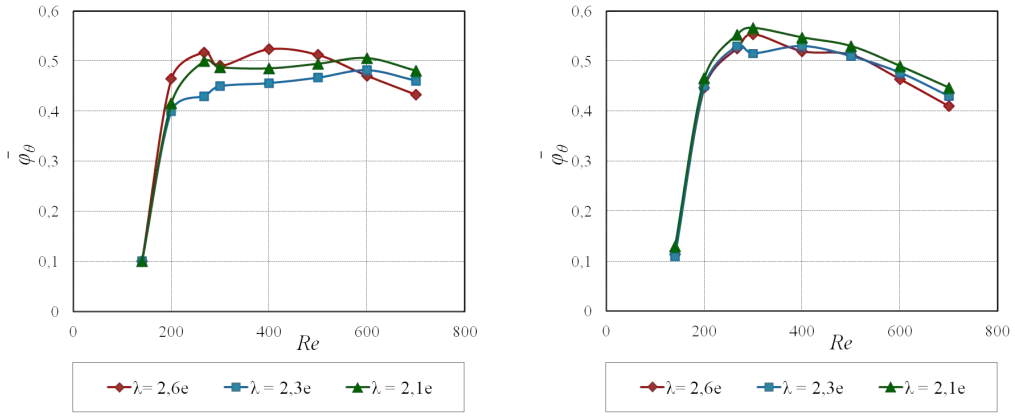
(b) $\lambda_x = 2{,}3e$

(c) $\lambda_x = 2{,}6e$

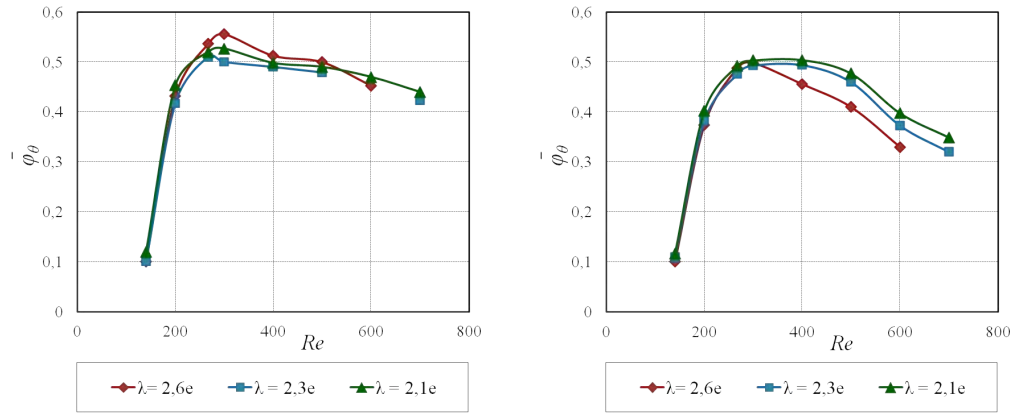
(d) Visualisations des régimes

FIGURE 5.21: Évolution du coefficient de dispersion axiale adimensionnel D_x^* en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutale m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée.

d'énergie à dissiper par la perturbation azimutale (vague), dont l'amplitude diminue, au même titre que la norme de $\overline{\varphi_\theta}$, ce que confirment les résultats de DNS.
Par contre $\overline{\varphi_\theta}$ apparaît comme une fonction décroissante de m pour la plupart des cas (sauf quelques états d'onde). Cela est dû à la diminution de l'amplitude de la vague en augmentant m. Cette tendance a été observée sur les évolutions du D_x.

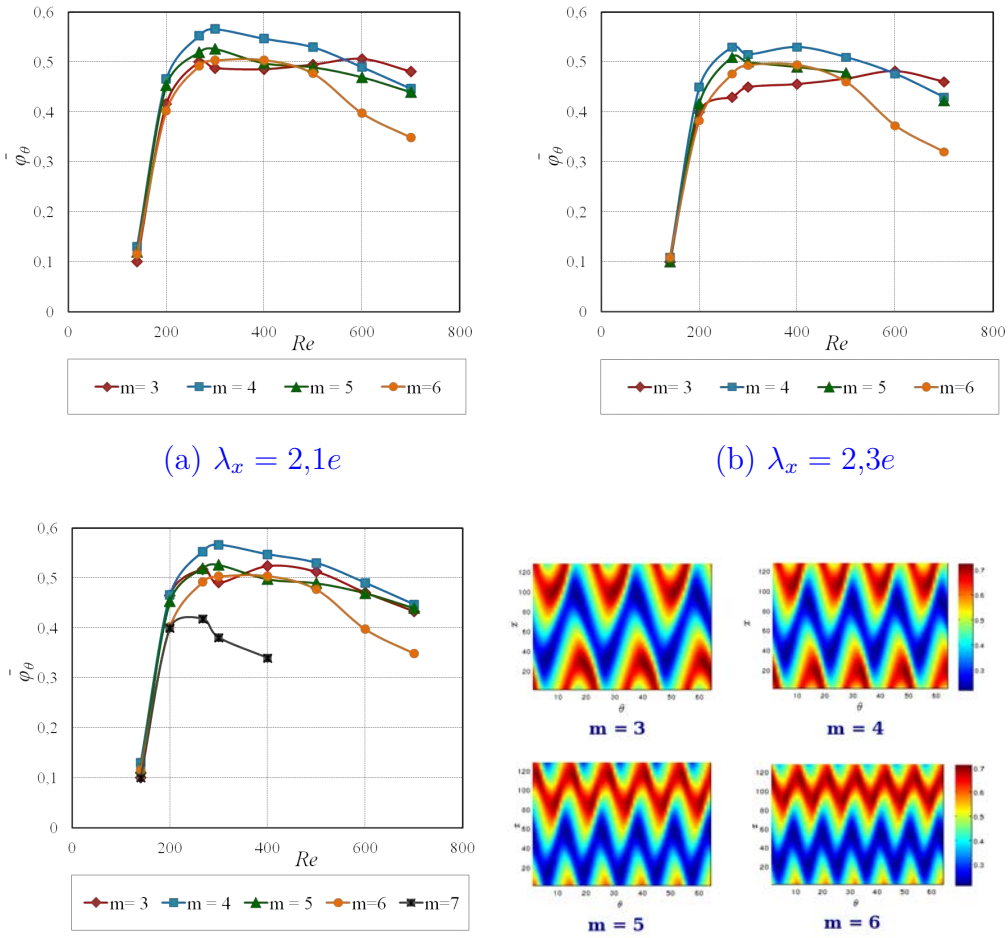


(a) m=3 (b) m=4



(c) m=5 (d) m=6

FIGURE 5.22: Évolution de $\overline{\varphi_\theta}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé.



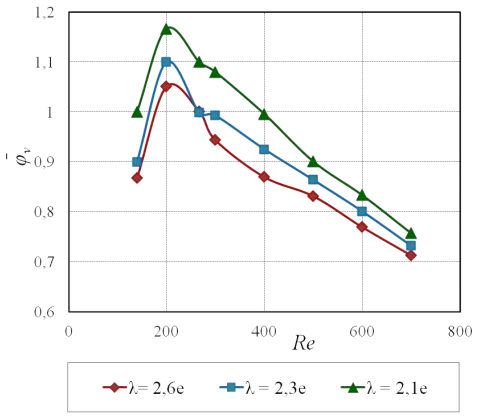
(a) $\lambda_x = 2{,}1e$

(b) $\lambda_x = 2{,}3e$

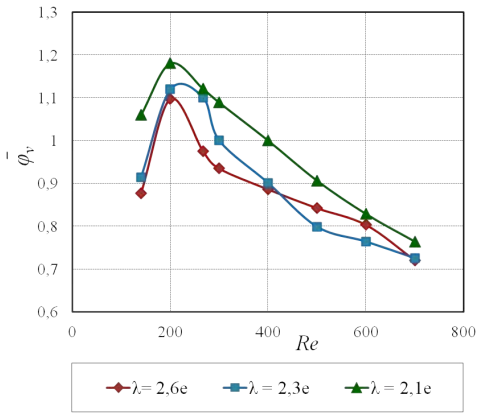
(c) $\lambda_x = 2{,}6e$

(d) Visualisations des régimes

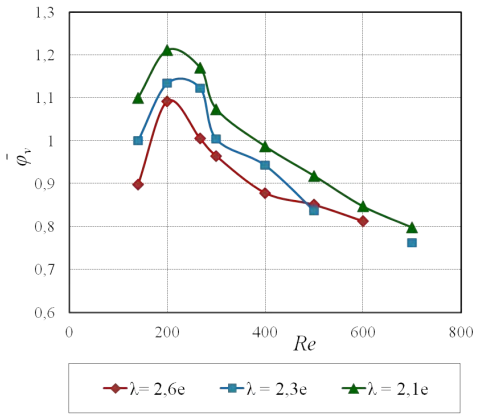
FIGURE 5.23: Évolution de $\overline{\varphi_\theta}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutale m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée.



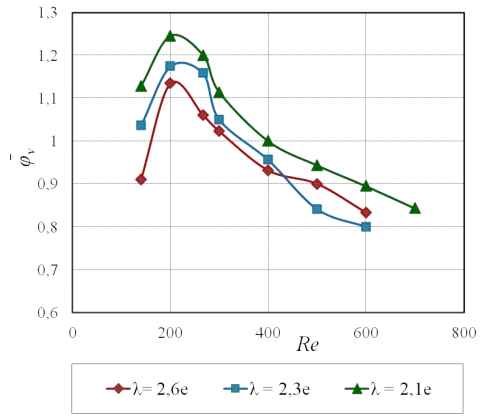
(a) m=3



(b) m=4

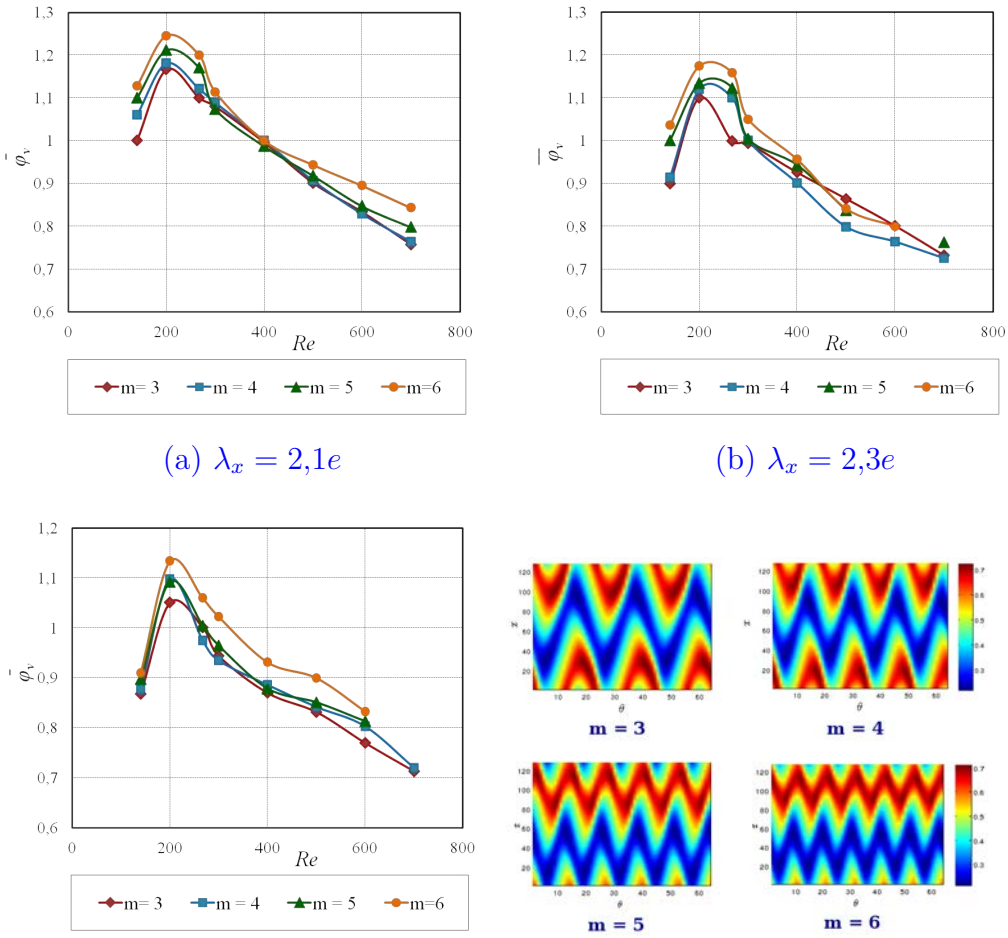


(c) m=5



(d) m=6

FIGURE 5.24: Évolution de $\overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé.



(a) $\lambda_x = 2{,}1e$ (b) $\lambda_x = 2{,}3e$

(c) $\lambda_x = 2{,}6e$ (d) Visualisations des régimes

FIGURE 5.25: Évolution de $\overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutale m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée.

Corrélation entre D_x^* et $\lambda_x \overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$

Étant donnée la similitude des courbes d'évolution de D_x^* et $\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$, on a cherché à trouver une corrélation entre ces paramètres. King *et al.* (2001) ont été les premiers à proposer une corrélation de ce type, dans le cas $\lambda_x = 2{,}33$ et $m = 6$:

$$D_x^* = C \cdot \overline{\varphi_\theta \varphi_v} \quad avec \quad C = 1{,}15 \tag{5.22}$$

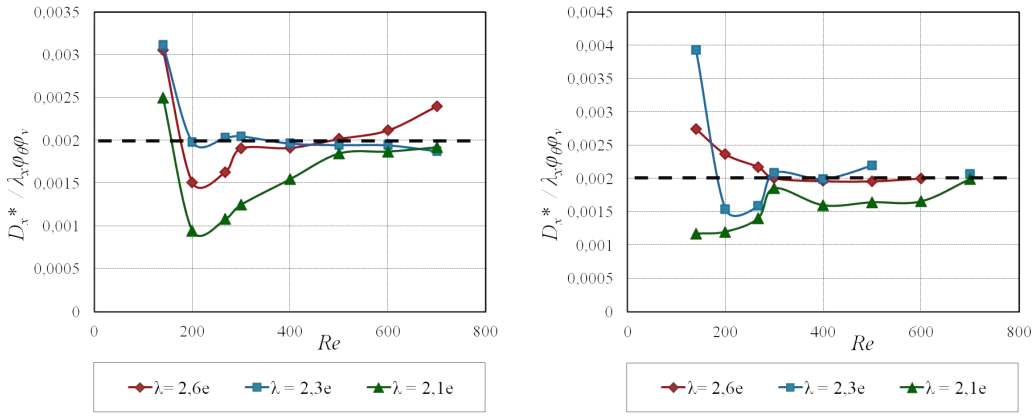
Cependant, cette relation s'est avérée non transposable à d'autres états d'onde. King *et al.* (2008) ont alors supposé que λ_x était incluse dans le terme C (de ce fait non constant), et ont alors modifié leur corrélation selon :

$$D_x^* = C \cdot \lambda_x \overline{\varphi_\theta \varphi_v} \quad avec \quad C = 2{,}1 \tag{5.23}$$

La corrélation 5.23 s'est avérée valable uniquement sur la plage des forts Re (et en régime WVF). Par contre une grande déviation a été observée pour les faibles Re.

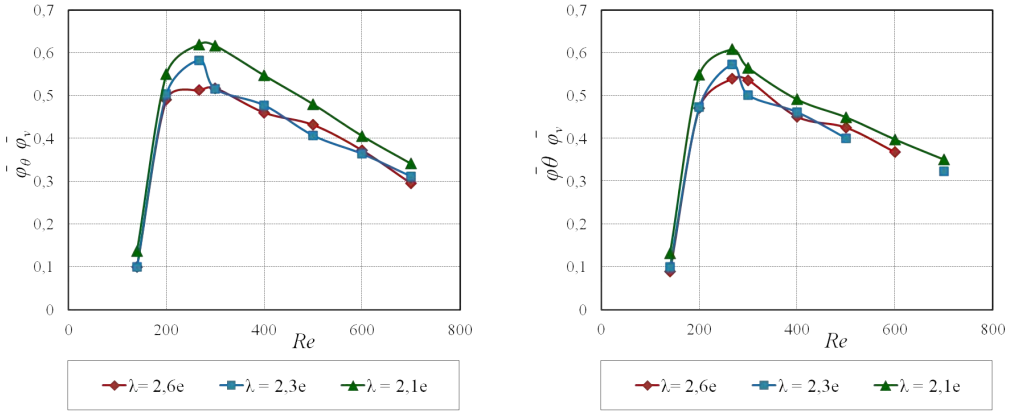
On s'est proposé de tester le même type de corrélation sur notre géométrie ($\eta = 0{,}85$).
Les courbes de la figure 5.26 représentent l'évolution de $\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ et $\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ pour les nombres d'onde azimutaux $m = 4$ et $m = 5$. On observe que pour le produit $\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ les courbes se resserrent et l'écart dû à la longueur d'onde axiale diminue. Nos résultats montrent une grande similitude avec ceux de King *et al.* (2008). La figure 5.27 permet de déterminer la constante C dans la corrélation 5.23. Pour les deux nombres d'onde considérés ($m = 4$ et 5), on a obtenu la même valeur $C = 2.10^{-3}$. Des valeurs du même ordre sont obtenus pour d'autres nombre d'onde, par $C = 2{,}2.10^{-3}$ pour $m = 6$.

$$D_x^* = C \cdot \lambda_x\overline{\varphi_\theta\varphi_v} \quad avec \quad C = 2 \cdot 10^{-3} \tag{5.24}$$



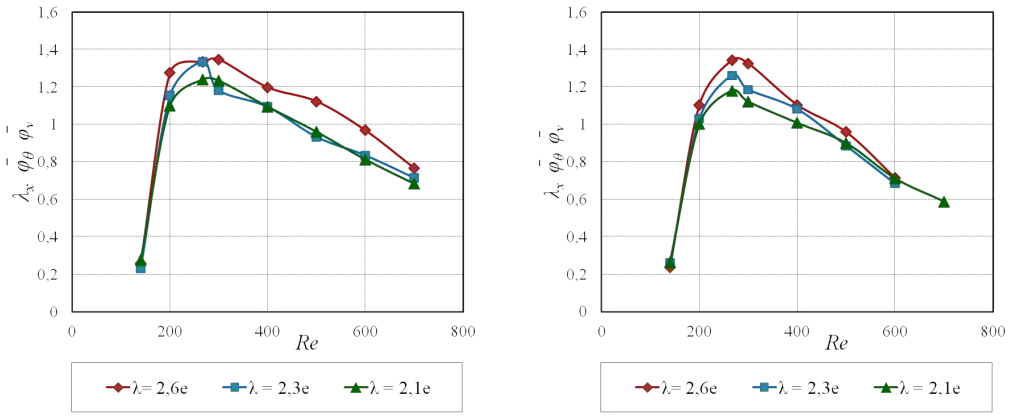
(a) m=4 (b) m=5

FIGURE 5.27: Évolution de $D_x^*/\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re pour un nombre d'onde azimutal m fixé. Identification de la relation entre D_x^* et $\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$.



(a) m=4

(b) m=5



(c) m=4

(d) m=5

FIGURE 5.26: Évolution de $\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ et $\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé.

5 Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons calculé un coefficient de dispersion axiale en utilisant deux approches différentes. Une approche qualifiée de *statistique* où nous nous sommes intéressés à la distribution de temps de séjour (DTS) de molécules fluides (colorimétrie expérimentale et simulation numérique Lagrangienne) et une approche qualifiée d'*Eulérienne* permettant de déterminer la dispersion axiale en utilisant une mesure de la distorsion de l'écoulement.

Pour l'approche statistique, le paramètre global « coefficient de dispersion axiale D_x » a été déterminé expérimentalement et numériquement. La méthode expérimentale est basée sur une mesure de la distribution des temps de séjour des molécules de la phase utilisée et la méthode numérique est basée sur un suivi Lagrangien d'une grande quantité de particules fluides lâchées initialement de façon aléatoire dans le domaine de calcul. Les résultats obtenus par simulations numériques et traçage calorimétrique ont corroboré les conclusions des observations faites à l'échelle locale. En particulier, nous avons observé que l'évolution vers le régime WVF influence significativement la dispersion axiale. Toutefois les corrélations proposées dans la littérature pour calculer D_x semblent ne pas satisfaire l'évolution que nous avons obtenue. Par ailleurs, nous avons observé une influence du protocole opératoire choisi (rampe d'accélération), c'est à dire de l'état d'onde.

Pour l'approche Eulérienne, nous avons quantifié la dispersion axiale en fonction de deux quantités intrinsèques à l'écoulement basées sur des mesures de déviation par rapport aux symétries géométriques et dynamiques de l'écoulement. Nous avons proposé une corrélation qui permet de calculer le D_x sans traceur, ni particules, en fonction du produit de la déviation par rapport à la symétrie géométrique et celle par rapport à la symétrie dynamique.

6 Références

Akonur, A. et Lueptow, R. (2003). Chaotic mixing and transport in wavy Taylor-Couette flow. *Physica D*, 167:183–196.

Broomhead, D. et Ryrie, S. (1988). Particle paths in wavy vortices. *Nonlinearity*, 1:409.

Campero, R. et Vigil, R. (1997). Axial dispersion during low Reynolds number Taylor-Couette flow : intra vortex mixing effect. *Chemical Engineering Journal*, 52(19):3305–3310.

Charton, S., Duhamet, J., Borda, G. et Ode, D. (2012). Axial dispersion in pulsed disk and doughnut columns : A unified law. *Chemical Engineering Science*, 75:468 – 477.

Desmet, G., Verelst, H. et Baron, G. (1996). Local and global dispersion effect in Couette-Taylor flow-i. description and modeling of the dispersion effects. *Chemical Engineering Journal*, 51(8):1287–1298.

Enkoida, Y., Nakata, K. et Suzuki, A. (1989). Axial turbulent diffusion in fluid between rotating coaxial cylinders. *AIChE Journal*, 35(7):1211–1214.

Guihard, I., Coeuret, F., Legrand, L., Fahidy, T. et Gu, Z. (1989). Circumferential mixing in the taylor-couette reactor. *Chem. Engeng Symp.Ser*, 112:105 – 117.

Kataoka, K., Doi, H. et Komai, T. (1977). Heat and mass transfer in Taylor vortex flow with constant axial flow-rate. *Int J Heat Mass Transfer*, 20:57.

Kataoka, K., Hongo, T. et Fugatawa, M. (1975). Ideal plug-flow properties of Taylor-vortex flow. *Journal of Chemical Engineering Japan*, 8(6):472–476.

Kataoka, K. et Takigawa, T. (1981). Intermixing over cell boundary between Taylor vortices. *AIChE Journal*, 27:504–508.

King, G., Rowlands, G., Rudman, M. et Yannacopoulos, A. (2001). Predicting chaotic dispersion with eulerian measures : Wavy taylor vortex flow. *Physics of fluids*, 13.

King, G., Rudman, M. et Rowlands, G. (2008). Chaotic diffusion in steady wavy vortex flow - dependance on wave state and correlation with eulerian symmetry measures. *Fluid Dynamic Research*, 40:45 – 67.

Legrand, J. et Coeuret, F. (1986). Circumferentional mixing in one-phase and two-phase Taylor vortex flow. *Chemical Engineering Science*, 41:47–53.

Legrand, J., Coeuret, F. et Billon, M. (1983). Structure dynamique et transfert de matière liquide-paroi dans le cas de l'écoulement laminaire tourbillonnaire de Couette Poiseuille. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2:1075–1085.

Mezic, I. et Wiggins, S. (1994). On the integrability and perturbation of three dimensional fluid flows with symmetry. *Nonlinear Sci*, 4.

Moore, C. et Cooney, C. (1995). Axial dispersion in Taylor-Couette flow. *AIChE Journal*, 41(3):723–727.

Ohmura, N., Kataoka, K., Shibata, Y. et Makino, T. (1997). Effective mass diffusion over cell boundaries in Taylor-Couette flow system. *Chemical Engineering Journal*, 52(11):1757–1765.

Pudijioni, P., Tavare, N., Garside, J. et Nigam, K. (1992). Residence time distribution from a continuous Couette flow device. *Chemical Engineering Journal*, 48:101–110.

Pudjioni, P. et Tavare, N. (1993). Residence time distribution analysis from a continuous couette flow device around critical taylor number. *Chemical Engineering Journal*, 71:312–318.

Racina, A., Liu, Z. et Kind, M. (2010). Mixing in taylor-couette flow. pages 125–139.

Raguin, L., Shannon, M. et Georgiadis, J. (2001). Dispersion radiale et axiale dans les écoulements tourbillonnaires de type taylor-couette. *International Journal of Heat and Mas transfer*, 44.

Rudman, M. (1998). Mixing and particle dispersion in the wavy vortex regime of Taylor-Couette flow. *AIChE Journal*.

Rudman, M., Metcalfe, G., Lachlan, J. et Graham, W. (2008). Non-mixing vortex cores in wavy taylor vortex flow. *Physics of fluids*, 20.

Tam, W. et Swinney, H. (1987). Mass transport in turbulent Taylor-Couette flow. *Physical Review A*, 36(3):1374–1381.

Yannacopoulos, A., Mezic, I., Rowlands, G. et King, G. (1998). Eulerian diagnostics for lagrangian chaos in three dimensional navier-stokes flows. *Physical Review E*, 57.

Zhu, X., Campero, R. et Vigil, D. (2000). Axial mass transport in liquid-liquid Taylor-Couette-Poiseuille flow. *Chemical Engineering Science*, 55: 5079–5087.

Conclusions et perspectives

6

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés aux phénomènes de mélange dans les écoulements de Taylor-Couette. Ces écoulements constituent en effet des modèles particulièrement bien adaptés à l'analyse des couplages chimie-transport dans les procédés d'extraction liquide-liquide, et en particulier pour le développement de nouveaux procédés de traitement du combustible nucléaire, dans lequel s'inscrit cette thèse.

Cette étude a eu pour but d'étudier expérimentalement et numériquement le mélange axial dans une colonne à effet « Taylor-Couette ». Deux principales configurations ont été utilisées (respectivement $\eta = 0{,}85$ et $\eta = 0{,}687$). La première est un prototype conçu dans les années 2000 pour étudier l'efficacité des procédés de séparation. Ce prototype est caractérisé par un faible entrefer ($e = 1{,}5$ mm) et un grand rapport d'aspect. La deuxième est un nouveau prototype qui a été conçu pour réaliser des mesures spécifiques (PIV / PLIF), caractérisé par un entrefer plus large ($e = 11$ mm).

Dans la première partie nous nous sommes intéressés à la caractérisation de l'écoulement monophasique par des mesures PIV et des visualisations associées à une analyse spectrale. Le but était d'identifier les différents régimes d'écoulement possibles, du régime laminaire au régime turbulent au fur et à mesure du développement des instabilités. La technique de visualisation a permis de correctement déterminer les seuils d'apparition de ces différents régimes, ainsi que les grandeurs caractéristiques propres à chaque régime : la longueur d'onde axiale λ_x, le nombre d'onde azimutal m et les fréquences caractéristiques (f, f'). Cette méthode a permis en outre la mise en évidence du caractère de non-unicité d'états d'onde (phénomène d'hystérésis). En effet, les résultats ont montré que la rampe d'accélération du rotor influence notablement les différents régimes d'écoulement. Nous avons ainsi établi des protocoles opératoires qui permettent d'atteindre le régime souhaité et d'assurer leur reproductibilité. D'autre part, les mesures PIV ont permis d'étudier la structure locale de l'écoulement (Champs de vitesse instantanée et moyenne ainsi que les fluctuations), pour les différents régimes en particulier le régime ondulatoire « wavy vortex flow » (WVF). Chaque régime identifié a ensuite été reproduit par simulation numérique directe (DNS). Des comparaisons avec les mesures PIV ont permis de valider les résultats numériques.

Dans la deuxième partie nous avons étudié le mélange axial en utilisant deux approches : une approche locale basée sur l'étude des mécanismes de mélange intra et inter-vortex grâce à des mesures PLIF et une approche globale basée sur le calcul d'un coefficient de dispersion axiale global.
Nous avons utilisé les champs de concentration issus des mesures PLIF et les champs de vitesse issus des mesures PIV pour déterminer les propriétés du mélange dans les régimes TVF et WVF. Les mécanismes de transport intra et inter-vortex ont été étudiés en considérant l'évolution de la concen-

tration du traceur dans trois vortex adjacents. L'analyse quantitative était basée sur des indices de ségrégation qui permettent de suivre l'évolution du mélange « intra-vortex » (dans le plan méridien et dans la direction azimutale) et le mélange « inter-vortex » qui caractérise l'échange entre les vortex.
Pour le régime TVF, nous avons confirmé l'existence de mélange inter-vortex, surtout en proche paroi et les zones de jets, dont l'importance est équivalente à celle du mélange intravortex. Ce qui contredit les stipulations de certains auteurs qui le négligent. En revanche pour le régime WVF, l'apparition des vagues brisent les frontières qui séparent les vortex ce qui favorise le transport intervortex. Des véritables paquets de fluide (traceur) sont échangés entre les vortex adjacents. Par ailleurs, nous avons observé une homogénéisation plus rapide de la concentration au sein d'un vortex, par rapport au cas TVF. Cette augmentation du mélange intravortex est directement liée aux caractéristiques du champ de vitesse en régime WVF, qui confère aux vortex une capacité plus importante à convecter et à étirer les filets de fluides, au détriment de la zone centrale diffusionnelle du vortex. Enfin nous avons mis en évidence le comportement non monotone des propriétés du mélange en fonction de l'état d'onde. Notamment la longueur d'onde axiale et l'amplitude de la vague.

Après avoir étudié et compris les mécanismes de mélange, nous nous sommes attachés à transposer les résultats de l'étude locale à l'échelle globale. Nous avons ainsi calculé un coefficient de dispersion axiale en utilisant deux approches différentes : une approche qualifiée de *statistique* où on s'est intéressé à la distribution de temps de séjour (DTS) de molécules fluides (colorimétrie expérimentale et simulation numérique Lagrangienne) et une approche qualifiée de *Eulérienne* permettant de déterminer la dispersion axiale utilisant une mesure de la distorsion de l'écoulement.
Pour l'approche statistique, le paramètre global « coefficient de dispersion axiale D_x » a été déterminé expérimentalement et numériquement. La méthode expérimentale est basée sur une mesure de la distribution des temps de séjour des molécules de la phase utilisée et la méthode numérique est basée sur un suivi lagrangien d'une grande quantité de particules fluides lâchées initialement de façon aléatoire dans le domaine de calcul. Les résultats obtenus par simulation numérique et traçage calorimétrique corroborent les conclusions des observations faites à l'échelle locale. Nous avons observé que l'évolution vers le régime WVF influence significativement la dispersion axiale. Toutefois les corrélations proposées dans la littérature pour calculer D_x semblent ne pas satisfaire l'évolution que nous avons obtenue. Par ailleurs, nous avons observé une influence du protocole opératoire choisi (rampe d'accélération) c'est à dire de l'état d'onde. Le coefficient de dispersion axiale apparaît être une fonction croissante de la longueur d'onde axiale λ_x, en accord avec l'augmentation du mélange intervortex observée par PLIF. En revanche, il semble être généralement

une fonction décroissante du nombre d'onde azimutal m.
Pour l'approche Eulérienne, nous avons quantifié la dispersion axiale en fonction de deux quantités intrinsèques à l'écoulement basées sur des mesures de déviation par rapport aux symétries géométriques et dynamiques de l'écoulement. Nous avons proposé une corrélation qui permet de calculer le D_x en fonction du produit de la déviation par rapport à la symétrie géométrique et celle par rapport à la symétrie dynamique en tenant compte de la longueur d'onde axiale λ_x ($D_x^* = C \cdot \lambda_x \overline{\varphi_\theta \varphi_v}$).
Enfin, les connaissances acquises à l'échelle locale, grâce à la mise en œuvre de la PLIF et de la DNS, ont mis en évidence le rôle des structures de l'écoulement, et de leurs évolutions, sur le mélange axial dans la colonne Taylor-Couette.

Bien qu'elles ne soient pas directement transposables à la colonne pulsée, les études hydrodynamiques menées sur la colonne Couette jouent un rôle majeur dans la connaissance et la compréhension des couplages entre l'écoulement (le transport) et la chimie.
L'objectif est aujourd'hui d'étendre les résultats de cette thèse à l'écoulement diphasique liquide-liquide, et en particulier à l'étude du comportement des gouttelettes et de leur influence sur l'écoulement de la phase porteuse et sur le mélange.

Table des figures

1.1 Le cycle du combustible 3
1.2 Principales étapes du procédé PUREX 5
1.3 Schéma d'un mélangeur-décanteur (à gauche), Batteries de MD dans la Chaine Blindée Procédé de l'installation ATALANTE (à droite) 6
1.4 Schéma (à gauche) et photo (à droite) d'un extracteur centrifuge 7
1.5 Schéma (à gauche) et photo (à droite) d'une colonne pulsée . 7
1.6 (a) Photo d'une colonne pulsée industrielle (La Hague), (b) Colonne pulsée miniature et (c) Colonne Couette 11

2.1 Dispositifs expérimentaux : Colonne "extracteur" à gauche et colonne "PIV" à droite 18
2.2 Boite de visualisation 19
2.3 Ensemble mire + tige 19
2.4 Relation entre l'indice de réfraction, la concentration et la température de la solution de KSCN (-) 15^{o}C,(-) 20^{o}C,(⋯) 25^{o}C 21
2.5 Ajustement de l'indice de réfraction (Solution KSCN) 21
2.6 Schéma du dispositif expérimental de visualisation 23
2.7 Visualisation de l'écoulement : détermination de λ 24
2.8 Évolution d'une onde dans le temps (Colonne d'extraction, Ω=200 rpm) 24
2.9 Spectre du niveau de gris (régime WVF) 25
2.10 Diagramme spatio-temporel (régime WVF) 25
2.11 Schéma de principe d'une chaîne de vélocimétrie par images de particules 27
2.12 Photographie de la chaîne PIV complète 28
2.13 Traceurs PIV : Sphères en verre à gauche et particules en rhodamine à droite 29
2.14 Comparaison d'une image avant et après ajustement 30

2.15 Schéma de principe de la fluorescence : diagramme de Jablonski 32
2.16 Schéma de principe d'une chaîne PLIF 33
2.17 Spectre d'absorption et d'émission de la rhodamine 34
2.18 (a) Éprouvettes d'étalonnage, (b) Solutions de Rhodamine dans l'eau (à gauche) et dans le KSCN (à droite) 35
2.19 Évolution de l'intensité de de fluorescence en fonction de la concentration (cas de l'eau) 35
2.20 Évolution de l'intensité de fluorescence en fonction de la concentration (cas KSCN) 36
2.21 Principe de la correction du bruit de fond et du bruit de la caméra 37
2.22 Photographie du banc d'expérimentation PIV-PLIF 38

3.1 Schéma d'une configuration Taylor-Couette 45
3.2 Écoulement de Taylor-Couette : régime TVF à gauche et régime WVF à droite 47
3.3 Évolution du nombre de Reynolds d'apparition des cellules de Taylor Re_{c1} en fonction de η (Dutcher et Muller, 2009) . 49
3.4 Cartographie des différents régimes d'écoulement de Taylor Couette, en fonction des nombres de Reynolds (Andereck *et al.*, 1986) 50
3.5 Cartographie de l'évolution de la longueur d'onde axiale en fonction du nombre de Reynolds et du rapport λ_x/e (Chouippe, 2012) 51
3.6 Visualisation des cellules de Taylor 52
3.7 Visualisation du régime WVF : à gauche la colonne d'extraction et à droite la colonne PIV 54
3.8 Spectre caractéristique du régime WVF : Re =1192 (Colonne PIV) 55
3.9 Visualisation du régime MWVF 55
3.10 Spectre caractéristique du régime MWVF : Re =600 (Colonne d'extraction) 56
3.11 Visualisation du régime turbulent : $Re = 6000$ 56
3.12 Spectre caractéristique du régime turbulent 57
3.13 Maillage et conditions aux limites 60
3.14 Sélection de l'état d'onde ($Re = 200$ $\eta = 0,85$) : respectivement (de gauche à droite et de haut en bas) m=3, m=4, m=5 et m=6 61
3.15 Evolution du couple moyen adimensionné G avec le nombre de Reynolds. Comparaison avec la corrélation de Wendt . . . 63
3.16 Comparaison entre les profils de vitesse moyenne issus des simulations et les mesures PIV ($Re = 318$ et $\eta = 0,687$) . . . 65
3.17 Comparaison entre les profils de vitesse moyenne issus des simulations et les mesures PIV ($Re = 953$ et $\eta = 0,687$) . . . 66

3.18 Visualisation des différents régimes d'écoulement : champ de vitesse azimutale au centre de l'entrefer ($\eta = 0,85$) 68
3.19 Visualisation des différents régimes d'écoulement : champ de vitesse azimutale au centre de l'entrefer ($\eta = 0,687$) 69
3.20 Champs de vitesse instantanée dans le plan $(r - x)$ obtenus par les mesures PIV pour la géométrie $\eta = 0,687$(du haut en bas : Re=80 (TVF), Re=636 (WVF) et Re=6000 (TTVF)) . 70
3.21 Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0,85$ à $Re = 120$ (TVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ 71
3.22 Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0,687$ à $Re = 318$ (TVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ 71
3.23 Profils radiaux des composantes radiales et axiales de la vitesse moyenne ($\eta = 0,687$) 72
3.24 Profil axial de la composante radiale de la vitesse moyenne au milieu de l'entrefer ($r = e/2$) pour plusieurs nombres de Reynolds (PIV $\eta = 0,687$) 73
3.25 Profil axial de la composante axiale de la vitesse moyenne au milieu de l'entrefer ($r = e/2$) pour plusieurs nombres de Reynolds (PIV $\eta = 0,687$) 73
3.26 Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0,85$ à $Re = 200$ (WVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ 75
3.27 Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0,687$ à $Re = 477$ (WVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ 75
3.28 Champs de vecteurs vitesse instantanée (PIV) dans le plan $(r - x)$ sur une période, pour la géométrie $\eta = 0,687$ à $Re = 795$ (WVF) : de gauche à droite : $\Phi = 0$, $\Phi = 1/4$, $\Phi = 1/2$, $\Phi = 3/4$ et $\Phi = 1$. La phase est adimensionnée par 2π 76
3.29 Évolution de la norme de la composante axiale de la vitesse en proche paroi $|U_x|$, pour la géométrie $\eta = 0,687$ à $Re = 795$ (WVF) : du haut en bas : $|U_x|$ coté cylindre extérieur et $|U_x|$ coté cylindre intérieur 77
3.30 Évolution de la position des frontières séparant deux vortex adjacents pour la géométrie $\eta = 0,687$ à $Re = 795$ (WVF) . 78
3.31 Évolution de la surface de deux vortex adjacents sur plusieurs périodes de la vague azimutale pour la géométrie $\eta = 0,687$ à $Re = 795$ (WVF) 78

3.32 Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0,85$ à $Re = 800$ (MWVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ 79
3.33 Isocontours de vitesse instantanée (DNS) dans un plan $\theta = cte$ pour la géométrie $\eta = 0,85$ à $Re = 3500$ (TTVF) : de haut en bas (1) composante axiale U_x - (2) composante radiale U_r - (3) composante azimutale U_θ 80

4.1 Schematic presentation of the apparatus ($\eta = 0.687$) 87
4.2 Multiplicity of wave states for $Re = 1082$: (a) Visualization of the $m = 5$ wave state ($\lambda_x = 3.40e$), (b) Visualization of the $m = 3$ wave state ($\lambda_x = 3.47e$), (c) and (d) power spectra of the scattered light intensity for the two wave states corresponding respectively to (a) and (b) 88
4.3 Schematic of the experimental setup, PIV and PLIF systems. Telecentric lenses were mounted on both cameras 90
4.4 Tracking of boundaries between adjacent vortices tracking (WVF : $Re = 795$), from top to bottom : Axial component of velocity $|U_x|$ near the outer cylinder ($r/e = 1$), instantaneous velocity vector field, Axial component of velocity $|U_x|$ near the inner cylinder ($r/e = 0$) and instantaneous concentration field. 92
4.5 Position evolution of the boundaries between adjacent vortices ($Re = 795$), (black) inflow zone and (blue) outflow zone. 93
4.6 Instantaneous concentration field over one period at $Re = 382$ (TVF) : from top to bottom ; (a) $\Phi = 0$, (b) $\Phi = 0.25$, (c) $\Phi = 0.5$, (d) $\Phi = 0.75$, (e) $\Phi = 1$. 94
4.7 Instantaneous concentration field over one period at $Re = 1082$ (WVF) : from top to bottom ; (a) $\Phi = 0$, (b) $\Phi = 0.25$, (c) $\Phi = 0.5$, (d) $\Phi = 0.75$, (e) $\Phi = 1$. 95
4.8 Temporal evolution of the average concentration in vortex A and C ($Re = 1082$). 98
4.9 Intravortex mixing ($Re = 382$) : (a) Intravortex mixing in the azimuthal direction for vortex A and B, I_θ and (b) Intravortex mixing in the meridional plane for vortex A, B and C, I_{rz} . . 99
4.10 Intravortex mixing : area stretch as function of time 100
4.11 Intervortex mixing between vortex A and B, A and C, I_v ($Re = 382$) 101
4.12 Intravortex mixing for vortex A, B and C ($Re = 795$) : (a) Intravortex mixing in the azimuthal direction, I_θ and (b) Intravortex mixing in the meridional plane C, I_{rz} 102
4.13 Intervortex mixing between vortex A and B, A an d C I_v ($Re = 795$ and $Re = 1082$) 103

4.14 Wave state effect on Intravortex mixing at $Re = 1082$: (a) Intravortex mixing in the azimuthal direction, (b) Intravortex mixing in the meridional plane 104
4.15 Intervortex mixing between vortex A-C (Inflow zone) and A-B (Outflow zone), I_v : wave state effect ($Re = 1082$) 105
4.16 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 2D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 4T_c$, $t = 8T_c$ 107
4.17 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 3D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = 2T_c$, $t = 8T_c$ 107
4.18 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 2D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$ 108
4.19 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 3D view ($Re = 318$). From left to right ; $t = T_c$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$ 109
4.20 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 2D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 4T_c$, $t = 8T_c$ 110
4.21 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the vortex center as a function of time : 3D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = T_c$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$ 111
4.22 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 2D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = 0$, $t = 2T_c$, $t = 8T_c$ 112
4.23 Deformation of a line of 5000 particles initially seeded at the inflow zone between two adjacent vortex as a function of time : 3D view ($Re = 1192$). From left to right ; $t = 2T_c$, $t = 20T_c$ 113
4.24 Stretching as a function of time for $Re = 318$ (TVF) et $Re = 953$ (WVF) 113

5.1 Représentation schématique du modèle 1D de mélange inter-vortex 122
5.2 Représentation schématique du modèle 2D de mélange . . . 124
5.3 Représentation schématique de deux modèles de transport : (a) N RPA et (b) N RPA avec volume d'échange 126
5.4 Photo du montage DTS : colonne extracteur ($\eta = 0,85$) . . . 132
5.5 Schéma du montage DTS : positions des sondes et d'injection du colorant 133

5.6 Signaux normés obtenus par spectrométrie et modèles piston-dipersion et N RPA 133
5.7 Estimation de l'erreur relative sur les mesures du coefficient de dispersion axiale D_x ($\eta = 0,85$) 134
5.8 Influence du débit axial sur le coefficient de dispersion axiale ($\eta = 0,85$) 135
5.9 Evolution du coefficient de dispersion axiale en fonction du nombre de Reynolds : mise en évidence de la multiplicité d'états d'onde ($\eta = 0,85$) 136
5.10 Ensemencement du domaine avec des particules fluides à l'instant initial de la dispersion 137
5.11 Evolution du coefficient de diffusion adimensionnel 138
5.12 Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x^* : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0,85$) 139
5.13 Évolution du nombre de Schmidt Sc : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0,85$) 139
5.14 Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du Re et de la longueur d'onde axiale pour un nombre d'onde $m = 4$ fixé : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0,85$) . 141
5.15 Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du Re et du nombre d'onde azimutal m pour une longueur d'onde axiale $\lambda_x = 2,69e$ fixée : Comparaison avec les mesures DTS ($\eta = 0,85$) 141
5.16 Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutale m fixé (DNS) 142
5.17 Évolution du coefficient de dispersion axiale D_x en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutal m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée 143
5.18 Évolution du D_x/λ_x en fonction du nombre de Reynolds Re pour un nombre d'onde azimutal m fixé (DNS) 144
5.19 Contours de φ_θ et φ_v pour une série de nombres de Reynolds couvrant dans l'ordre les régimes TVF, WVF et MWVF ($\eta = 0,85$) 148
5.20 Évolution du coefficient de dispersion axiale adimensionnel D_x^* en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé . . 150
5.21 Évolution du coefficient de dispersion axiale adimensionnel D_x^* en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutale m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée 151
5.22 Évolution de $\overline{\varphi_\theta}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé 152

5.23 Évolution de $\overline{\varphi_\theta}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutale m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée . . . 153
5.24 Évolution de $\overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé . . . 154
5.25 Évolution de $\overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et du nombre d'onde azimutale m pour une longueur d'onde axiale λ_x fixée . . . 155
5.27 Évolution de $D_x^*/\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re pour un nombre d'onde azimutal m fixé. Identification de la relation entre D_x^* et $\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ . . . 156
5.26 Évolution de $\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ et $\lambda_x\overline{\varphi_\theta}\ \overline{\varphi_v}$ en fonction du nombre de Reynolds Re et de la longueur d'onde axiale λ_x pour un nombre d'onde azimutal m fixé . . . 157

A.1 Pic d'intercorrélation . . . 178
A.2 Schéma du décalage subpixel . . . 179

B.1 Réponse à une injection-échelon : la courbe **F** . . . 183
B.2 Réponse à une injection-impulsion : la courbe **C** . . . 183
B.3 Existence d'un volume mort et DTS correspondante . . . 184
B.4 Existence d'un court circuit et pic non enregistré dans la DTS 184
B.5 L'écoulement piston parfait . . . 185
B.6 L'écoulement parfaitement agité . . . 185
B.7 (a) Courbe de DTS pour le modèle Piston-Dispersion et (b) Courbe de DTS pour le modèle cascade RPA . . . 187

Liste des tableaux

1.1 Propriétés des différentes colonnes 10

2.1 Caractéristiques géométriques et conditions de fonctionnement des deux dispositifs expérimentaux 18
2.2 Indice de réfraction et masse volumique de solutions salines à 20^{o}C (Budwig, 1994) 20
2.3 Propriétés des solutions utilisées en PIV 22
2.4 Propriétés des particules de Kalliroscope 22
2.5 Propriétés des solutions de visualisation 23
2.6 Propriétés des traceurs PIV (d'après DANTEC) 29
2.7 Propriétés du traceur fluorescent utilisé : Rhodamine WT (20^{o}C) 34

3.1 Récapitulatif des régimes d'écoulement pour la colonne « extracteur » ($\eta = 0,85$) 58
3.2 Récapitulatif des régimes d'écoulement pour le colonne « PIV » ($\eta = 0,687$) 58

4.1 Apparatus geometry and operating conditions 87
4.2 Characteristics of the studied cases (Re, λ_x, m) 89

5.1 Revues des corrélations expérimentales pour D_x 127

Annexes

Algorithme de Traitement : PIV

A

1 Inter-corrélation

L'application PIVIS ne permet que l'utilisation de mailles carrées de côté 2^n pixels (dans notre cas 16 pixels). Pour chaque couple de mailles, une fonction d'intercorrélation est calculée, et les corrélations discrètes résultantes sont reportées dans une matrice C (de taille 16x16). Chaque élément C_{ij} de cette matrice donne donc le niveau de corrélation entre les deux cellules pour un déplacement vectoriel (i-16, j-16). La position du pic d'intercorrélation (i_{max}, j_{max}) donne le déplacement des traceurs le plus probable dans la maille, comme le montre la figure A.1. Si le maximum de corrélation est obtenu pour une valeur entière de pixels, une précision subpixel peut être recherchée à condition d'utiliser des méthodes d'interpolation du pic de corrélation. Plusieurs méthodes d'interpolation existent : celle qui a été choisie permet une précision de l'ordre du dixième de pixel.

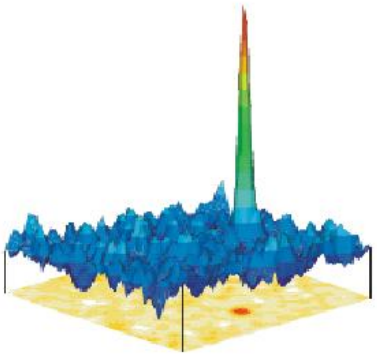


FIGURE A.1: Pic d'intercorrélation.

Cet algorithme est sensible à plusieurs types d'erreur. Tout d'abord, pour de grands déplacements, les particules présentes dans une maille de la première image peuvent ne pas entièrement correspondre à celles de la maille jumelle sur la deuxième image : en effet, certaines particules ont pu entrer dans cette zone ou au contraire la quitter pendant le petit laps de temps Δt. Le manque de doublets physiques de particules va diminuer l'amplitude du pic d'intercorrélation, qui risque alors d'être confondu avec les pics secondaires. Une autre erreur fréquente est le phénomène de "peak locking", qui se produit lorsque la représentation du traceur est trop petite (1 pixel par exemple). Dans ce cas, il ne peut y avoir d'interpolation sub-pixel de la position du centre de la particule, et, par extension, son déplacement ne peut être déterminé qu'en valeur entière de pixels.
Ces deux erreurs sont réduites en combinant cet algorithme avec des procédures permettant de décaler ou de déformer les mailles itérativement afin de recentrer le pic d'intercorrélation et d'en affiner la détection. Les algorithmes de décalage itératif et de déformation sont présentés dans les paragraphes suivants.

2 Décalage itératif sub-pixel

L'algorithme de décalage itératif sub-pixel consiste à décaler les mailles de calcul sur l'image afin de conserver le maximum de motifs communs aux deux images. La maille de la seconde image est décalée de la moitié du vecteur vitesse estimé, tandis que celle de la première image est décalée de la moitié de l'opposé de ce même vecteur. Ainsi, la zone de mesure reste à la même position, comme le montre la figure A.2. Ce procédé itératif est répété jusqu'à obtenir un déplacement infinitésimal des mailles (typiquement 0,005 pixels). L'intérêt est de centrer le pic de corrélation afin que son interpolation "sub-pixel" n'accentue pas l'effet de "peak-locking". L'interpolation des pics de corrélation est obtenue par un fit gaussien. Ce type de procédure permet d'une part de limiter la perte de particules dans le plan de mesure, et d'autre part d'éliminer l'influence du schéma d'interpolation du pic d'intercorrélation, puisque les cellules sont décalées d'une fraction de pixel.

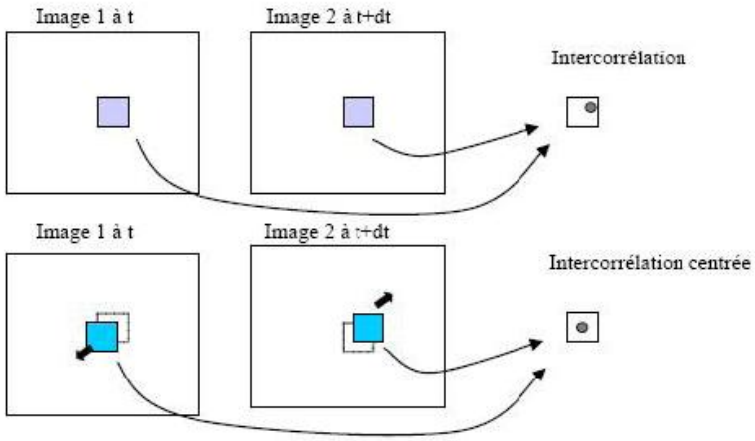


FIGURE A.2: Schéma du décalage subpixel.

3 Déformation de mailles

La procédure est identique au calcul itératif sub-pixel mais avec introduction des transformations non linéaires comme les rotations et déformations dissymétriques. En effet, parfois la procédure itérative peut diverger en raison d'un mauvais résultat du prédicteur. Pour y remédier, une déformation est appliquée sur l'image lors des différentes passes. Un premier champ de vecteurs vitesse est estimé sur des cellules larges et filtré à l'aide d'un filtrage aux résidus normalisés afin de servir de base à une procédure itérative qui déforme progressivement les mailles de calcul.
Pour chaque maille, le champ de déplacement de l'itération précédente est

interpolé aux quatre coins de la maille. Puis, les mailles carrées sont déformées. Sur la première image, chaque coin de la maille est déplacé de l'inverse de la moitié du vecteur vitesse interpolé en ce point. Sur la seconde image, chaque coin est déplacé de la moitié du même vecteur vitesse. Enfin, les images correspondantes sont interpolées linéairement de façon à remplir deux nouvelles matrices, et une nouvelle intercorrélation est calculée entre ces matrices. Le résultat est ajouté au déplacement global des mailles de calcul, et celles-ci sont à nouveau décalées et déformées itérativement jusqu'à centrage du pic de corrélation, selon un principe similaire à celui du décalage de mailles simple. Une fois le calcul convergé, le résultat pour une maille est la somme de la moyenne des vecteurs vitesses aux quatre coins et du décalage itératif final. Cette procédure permet une réduction importante du phénomène de peak-locking et des précisions de l'ordre de 0,01 pixels, par contre elle est coûteuse en temps de calcul.

DTS : Aspects théoriques

B

1 Distribution de temps de séjour

On qualifie le degré de mélange d'un réacteur en quantifiant le temps de séjour des molécules qui y séjournent. Cette méthode consiste à marquer les molécules entrant dans le réacteur et à suivre l'évolution de la concentration de ces molécules en deux points de la colonne. Nous avons utilisé un traceur coloré, mais on peut également mesurer la distribution des temps de séjour à l'aide de traceurs chimiques, radioactifs, etc. Il est très important que le traceur aie les mêmes propriétés hydrodynamiques que le fluide. La méthodologie d'application de la distribution des temps de séjour repose sur cinq hypothèses principales :

- L'écoulement est en régime permanent.
- L'écoulement est déterministe.
- Le fluide est incompressible.
- L'écoulement à travers les sections d'entrée et de sortie se fait uniquement par convection forcée.
- Les conduites d'entrée et de sortie sont de petits diamètres devant les dimensions du réacteur et l'écoulement y est de type piston.

On définit la fonction Distribution des Temps de Séjour (DTS) notée $E(t_s)$, telle que $E(t_s).dt_s$ soit la fraction de débit en sortie contenant les particules avec un temps de séjour t_s compris entre t_s et $t_s + dt_s$. Le temps de séjour moyen des particules dans le réacteur, ou moment d'ordre 1 de la distribution, est calculé par la relation suivante :

$$\bar{t} = \int_0^\infty t_s E(t_s) dt_s$$

On accède à la dispersion du traceur dans le réacteur en calculant le moment d'ordre 2 de la distribution. Ainsi la variance de la distribution σ caractérise l'étalement de la distribution E(t), donc le mélange dans le réacteur.

$$\sigma^2 = \int_0^\infty (t - \bar{t_s})^2 . E(t) dt_s$$

On peut utiliser différents types d'injection : injection "échelon" de type Heaviside ou une "injection-impulsion" de type Dirac.

✠ Injection-échelon ou purge-échelon : La courbe F

Dans le cas d'une injection-échelon, la concentration du traceur passe brusquement de 0 à C_0 au niveau de l'alimentation à l'instant t=0. Par contre dans le cas d'une purge-échelon, l'injection permanente et établie de traceur est brusquement interrompue à l'instant initial. On obtient la courbe normalisée **F** (appellation de Danckwerts) en divisant la concentra-

tion du traceur à la sortie du réacteur et la concentration initiale C_0. Sa formule mathématique est la suivante :

$$\mathbf{F} = \frac{C(t)}{C_0} = \int_0^t E(t_s)dt_s$$

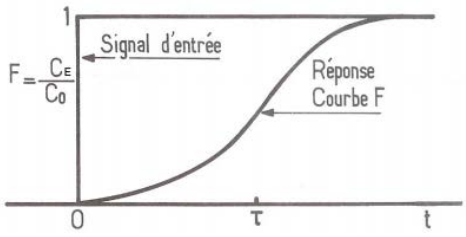


FIGURE B.1: Réponse à une injection-échelon : la courbe **F**.

✠ Injection impulsion

L'expérience consiste à injecter à l'entrée du réacteur, une quantité donnée de traceur (n moles par exemple) avec un temps d'injection très court devant le temps de passage des molécules τ (<0,01 τ) afin de mieux s'approcher de la fonction de Dirac. La concentration du traceur est mesurée à la sortie du réacteur et divisée par la concentration C_0 qu'aurait le traceur uniformément réparti dans tout le volume, $C_0 = \frac{n}{V_r}$. Cela permet d'obtenir la courbe **C**, adimentionnelle et normalisée (valeurs comprises entre 0 et 1) :

$$\mathbf{C} = \frac{C(t)}{C_0}$$

Nous obtenons alors la DTS : $E(t) = \frac{C(t)}{\int_0^\infty C(t)dt}$ où C(t) est la concentration du traceur à la sortie de l'installation.

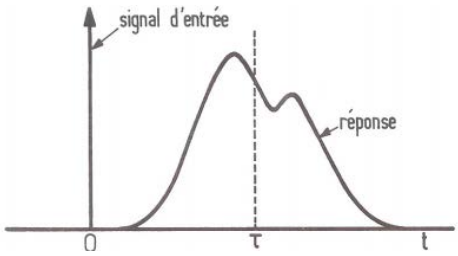


FIGURE B.2: Réponse à une injection-impulsion : la courbe **C**.

1.1 Interprétation hydrodynamique de la DTS et diagnostics de mauvais fonctionnement

Le temps de séjour moyen $\bar{t}_s$ est égal au temps de passage τ si tout le volume interne du réacteur V_R est accessible au fluide, et en absence de

phénomène recirculation. Mais il existe deux autres cas : court circuit et cas du volume mort, dont le temps de passage est différent du temps de séjour moyen.

Si $\bar{t}_s > \tau$, il peut y avoir une possibilité de court circuit. Dans ce cas, une partie du fluide traverse le réacteur par un chemin plus court que le chemin moyen où le fluide passe par toutes les zones du volume (cf. Fig.B.3), ce qui a des conséquences au niveau expérimental. Il se peut que le pic de réponse de cette fraction ne soit pas détecté lors de l'enregistrement donc il est nécessaire de refaire une injection-impulsion tout en portant son attention sur les premiers instants de la réponse.

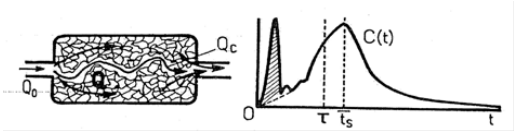


FIGURE B.3: Existence d'un volume mort et DTS correspondante.

Si $\bar{t}_s < \tau$, on peut avoir des zones de fluide stagnant. L'existence de volume mort rend le traceur inaccessible à certaines zones du réacteur (voir B.3), nous avons donc :

$V_R = V_A + V_M$, soit

$\frac{V_M}{V_R} = 1 - \frac{V_A}{V_R} = 1 - \frac{\bar{t}_s}{\tau}$ où

V_R est le volume total du réacteur, V_A est le volume accessible au traceur et V_M le volume mort. Cette pathologie se traduit sur l'enregistrement par une trainée Fig. B.4.

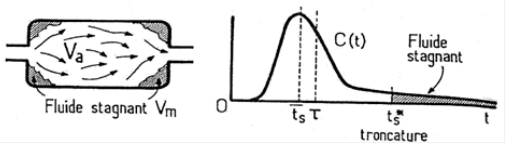


FIGURE B.4: Existence d'un court circuit et pic non enregistré dans la DTS.

2 Modèles de réacteurs idéaux

2.1 Le réacteur piston *RP*

Dans un réacteur piston, chaque tranche de fluide se déplace à une vitesse uniforme et dans un plan perpendiculaire à l'écoulement. Ce type

de réacteur se comporte comme un retard pur : toutes les molécules ont le même temps de séjour qui est égal au temps de passage τ d'où :

$\bar{t}_s = \tau = \dfrac{V_R}{Q}$, V_R est le volume du réacteur et Q le débit volumique traversant.

En réponse à une injection de type Heaviside, la DTS est un échelon décalé dans le temps du signal d'entrée, le décalage étant le temps de passage du fluide :

$$E(t_s) = H(t_s - \tau)$$

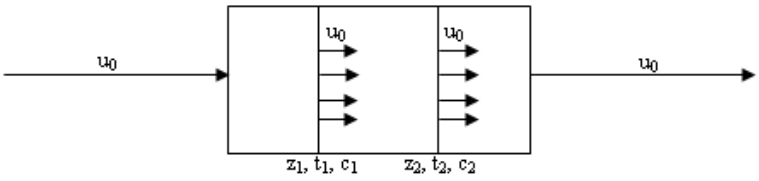


FIGURE B.5: L'écoulement piston parfait.

2.2 Le réacteur parfaitement agité *RPA*

Le réacteur parfaitement agité se caractérise par une composition et un mélange réactionnel parfaitement uniforme dans tout le volume qui lui est offert. Toute portion de fluide qui entre dans un volome V, où circule un fluide à vitesse u_0, est instantanément mélangée. En conséquence toutes les grandeurs (concentration, température) en tout point du volume sont identiques, et égales à la valeur à la sortie du réacteur.

En réponse à une injection-échelon, la DTS est de la forme :

$$E(t_s) = \frac{1}{\tau} e^{\frac{-t_s}{\tau}}$$

Én intégrant $E(t_s)$, on retrouve la réponse à une injection-échelon.

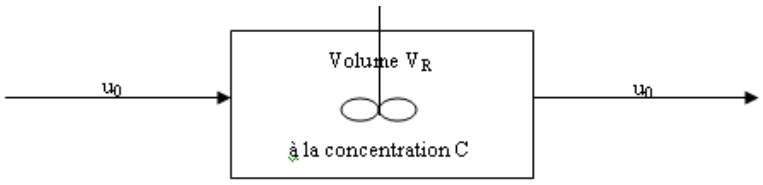


FIGURE B.6: L'écoulement parfaitement agité.

3 Modélisation des écoulements non idéaux

Dans cette partie, on détermine la DTS par la méthode des traçages classique en réalisant des injections de traceur de type injection-échelon, que l'on compare ensuite à un des deux modèles suivants :

✓le modèle piston à dispersion axiale(qui est le modèle de référence dans notre étude).

✓le modèle des mélangeurs en cascade

3.1 Écoulement Piston à dispersion axiale

Le modèle Piston-dispersion repose sur la supersposition d'un écoulement piston convectif de vitesse u et d'une dispersion aléatoire obéissant formellement à la loi de Fick. Le flux de matière axial est donné par :

$$F = uc - D\frac{\partial C}{\partial z}$$

L'utilisation de ce modèle repose sur les mêmes hypothèses que le modèle Piston, et suppose en outre que les phénomènes responsables de la non-idéalités sont linéaires.

L'équation de conservation d'un traceur en régime transitoire est mise sous forme adimensionnelle en introduisant le nombre de Péclet : $Pe = \dfrac{uL}{D_x}$, où D_x en m^2/s est le coefficient de dispersion axiale :

$$\frac{\partial C}{\partial x} - \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial C}{\partial \theta} = 0 \tag{B.1}$$

avec $\theta = \dfrac{t}{\tau}$ le temps adimensionné, et $x = \dfrac{z}{L}$ avec L la distance entre les deux sondes.

Cette équation admet, dans le cas d'une injection-impulsion, une solution analytique de forme :

$$E = \frac{1}{2}\Big(\frac{Pe}{\pi\theta^3}\Big).exp\Big(-\frac{Pe(1-\theta)^2}{4\theta}\Big)$$

L'intégration de cette équation permet d'avoir la réponse à une injection-échelon.

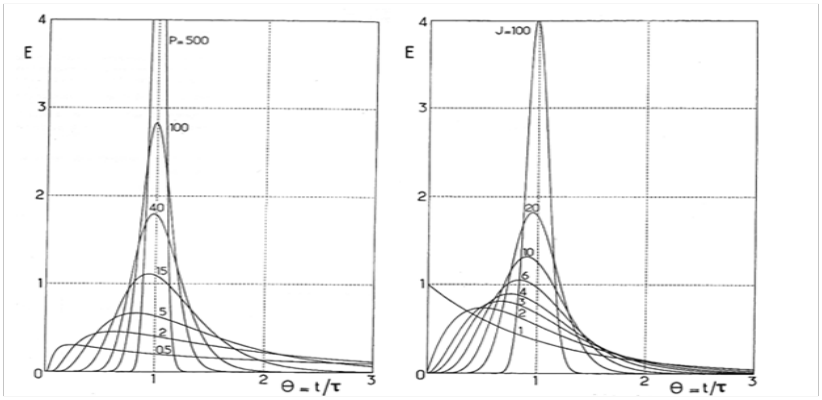


FIGURE B.7: (a) Courbe de DTS pour le modèle Piston-Dispersion et (b) Courbe de DTS pour le modèle cascade RPA.

Ainsi, la DTS d'un réacteur Piston-Dispersion dépend d'un seul paramètre : le nombre de Péclet Pe, inversement proportionnel au coefficient de dispersion axiale D_x. Le cas limite où Pe tend vers l'infini n'est autre que le réacteur piston parfait. A l'inverse, lorsque Pe diminue, la DTS s'affaisse et perd sa symétrie, et, lorsque Pe tend vers zéro, la DTS évolue vers une exponentielle décroissante caractéristique d'un réacteur parfaitement agité.

3.2 Modèle des mélangeurs en cascade

On peut également modéliser le comportement d'un réacteur réel par une cascade de J réacteurs parfaitement agités en série de même volume. Dans le cas d'une injection-impulsion, la DTS est de la forme :

$$E(t_s) = (\frac{J}{\tau})\frac{t_s^{J-1} exp(-\frac{Jt_s}{\tau})}{J-1} \tag{B.2}$$

En intégrant cette expression, on obtient la réponse à une injection-échelon. Le cas $J = 1$, correspond bien entendu à un réacteur parfaitement agité continu unique. Lorsque J tend vers l'infini, on tend vers le comportement d'un réacteur piston et les courbes de DTS sont voisines de gaussiennes symétriques.

ABSTRACT

Taylor-Couette flows between two concentric cylinders have great potential applications in chemical engineering. They are particularly convenient for two-phase small scale devices enabling solvent extraction operations. An experimental device was designed with this idea in mind. It consists of two concentric cylinders with the inner one rotating and the outer one fixed. Taylor-Couette flows take place in the annular gap between them, and are known to evolve towards turbulence through a sequence of successive instabilities. Macroscopic quantities, such as axial dispersion and mixing index, are extremely sensitive to these flow structures, which may lead to flawed modelling of the coupling between hydrodynamics and mass transfer. This particular point has been studied both experimentally and numerically.

The flow and mixing have been characterized by means of flow visualization and simultaneous PIV (Particle Imaging Velocimetry) and PLIF (Planar Laser Induced Fluorescence) measurements. PLIF visualizations showed clear evidences of different transport mechanisms including « intravortex mixing » and « inter-vortex mixing ». Under WVF and MWVF regimes, intra-vortex mixing is controlled by chaotic advection, due to the 3D nature of the flow, while inter-vortex transport occurs due to the presence of waves between neighbouring vortices. The combination of these two mechanisms results in enhanced axial dispersion. We showed that hysteresis may occur between consecutive regimes depending on flow history and this may have a significant effect on mixing for a given Reynolds number. The axial dispersion coefficient D_x evolution along the successive flow states was investigated thanks to dye Residence Time Distribution measurements (RTD) and particle tracking (DNS). Both experimental and numerical results have confirmed the significant effect of the flow structure and history on axial dispersion.

Our study confirmed that the commonly used 1-parameter chemical engineering models (e.g. the « well-mixed stirred tanks in serie » model) are not valid for Taylor-Couette reactors modelling : two parameters are at least required for an efficient description of mixing in Taylor-Couette flows.

Keywords :

Taylor-Couette flow, intravortex and intervortex mixing, PIV-PLIF, Direct numerical simulation, Axial dispersion