PolyPublie
Polytechnique Montréal

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL
UNIVERSITÉ D'INGÉNIERIE

Titre: Title:	Développement d'un modèle compartimental pour le transfert de matière dans les colonnes à bulles
Auteur: Author:	Rémi Demol
Date:	2018
Type:	Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis
Référence: Citation:	Demol, R. (2018). Développement d'un modèle compartimental pour le transfert de matière dans les colonnes à bulles [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. https://publications.polymtl.ca/3010/

Document en libre accès dans PolyPublie
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: PolyPublie URL:	https://publications.polymtl.ca/3010/
Directeurs de recherche: Advisors:	Jamal Chaouki, & François Bertrand
Programme: Program:	Génie chimique

Ce fichier a été téléchargé à partir de PolyPublie, le dépôt institutionnel de Polytechnique Montréal
This file has been downloaded from PolyPublie, the institutional repository of Polytechnique Montréal

https://publications.polymtl.ca

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉVELOPPEMENT D'UN MODÈLE COMPARTIMENTAL POUR LE TRANSFERT DE MATIÈRE DANS LES COLONNES À BULLES

RÉMI DEMOL

DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION

DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES

(GÉNIE CHIMIQUE)

MARS 2018

© Rémi Demol, 2018.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

DÉVELOPPEMENT D'UN MODÈLE COMPARTIMENTAL POUR LE TRANSFERT DE MATIÈRE DANS LES COLONNES À BULLES

présenté par : DEMOL Rémi

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. SRINIVASAN Bala, Ph. D., président

M. CHAOUKI Jamal, Ph. D., membre et directeur de recherche

M. BERTRAND François, Ph. D., membre et codirecteur de recherche

M. VIDAL David, Ph. D., membre

DÉDICACE

"Remember that all models are wrong,
the practical question is how wrong do they have to be to not be useful."

George E. P. Box, 1987

REMERCIEMENTS

Je tenais tout d'abord à remercier mes directeurs de recherche, Jamal Chaouki, et François Bertrand de m'avoir proposé cette maîtrise et la liberté offerte pour mener à bien ce projet. Cette maîtrise de recherche aura été, à plus d'un titre, très riche en enseignements.

Je veux remercier tous les membres de l'Unité de Recherche en Procédés d'Écoulements Industriels (URPEI) avec qui j'ai eu un grand plaisir à travailler. Nous avons eu de nombreux échanges, le tout dans une ambiance très positive et amicale.

Plus particulièrement, merci à David Vidal pour sa disponibilité et ses traits d'esprit. Merci à Bruno Blais qui a toujours été très disponible pour me proposer des pistes de résolutions aux problèmes auxquels j'étais confronté, et me sortir des méandres d'OpenFOAM. Merci encore à Shuli Shu pour m'avoir fait bénéficier de son expérience en modélisation d'écoulements gaz-liquide.

Je remercie également les membres du groupe *Process Engineering Advanced Research Lab* (PEARL) et tout particulièrement Amin Esmaeili qui a produit les résultats expérimentaux utilisés dans ce mémoire.

Ce projet s'inscrit dans le cadre de la chaire de recherche industrielle CRSNG/NSERC – TOTAL à Polytechnique Montréal, je tiens donc également à remercier l'organisme de recherche et l'entreprise qui financent ce projet. Les ressources de calculs nécessaires ont été fournies par Calcul Québec et Calcul Canada.

Merci enfin à mon entourage, en particulier à ma famille et Jérôme, présent dans les moments inévitables de doutes et de remise en question qu'un travail de recherche occasionne.

RÉSUMÉ

Parmi les réacteurs gaz-liquide, la colonne à bulles est largement utilisée dans les industries chimiques et biochimiques. Ce réacteur emblématique, qui est doté d'une géométrie relativement simple, offre un très bon transfert de matière et de chaleur. L'agitation du milieu réactionnel est assurée par l'ascension des bulles au sein de la phase liquide continue. Néanmoins, l'hydrodynamique s'avère complexe et bien que de nombreuses corrélations pour quantifier le transfert de matière ont été mises au point, la conception et la mise à l'échelle des colonnes à bulles demeurent des étapes ardues.

À défaut d'avoir à disposition suffisamment d'informations sur l'hydrodynamique, l'hypothèse d'un mélange parfait est souvent émise afin d'établir les règles de mises à l'échelle, ce qui est fort rudimentaire. Cette hypothèse est clairement mise en défaut en pratique et particulièrement pour de grandes échelles industrielles. Une meilleure connaissance de l'hydrodynamique locale est alors nécessaire.

Le développement de la mécanique des fluides numérique durant ces dernières décennies permet d'envisager la simulation de l'écoulement au sein de tels réacteurs afin d'accéder à l'hydrodynamique locale. Néanmoins, les capacités actuelles demeurent limitées pour tenir compte des phénomènes physiques complexes tels que la turbulence, les phénomènes de transfert et les réactions chimiques. Une option, utilisée dans ces travaux, consiste à combiner la simulation numérique (CFD) à un modèle compartimental (CM).

La boîte à outils en libre accès OpenFOAM est utilisée afin de simuler l'écoulement avec la turbulence. Ensuite, différents compartiments sont construits en fonction d'une propriété de turbulence, à savoir le taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente (ε). Finalement, dans chaque compartiment, les valeurs moyennes locales de diamètre de bulle et de coefficient de transfert de matière côté liquide sont évaluées.

Cette approche énergétique n'a pas permis d'atteindre l'objectif escompté, les compartiments déterminés n'ont pas été jugés pertinents vis-à-vis des phénomènes physiques en jeu. La principale raison réside dans la faible énergie dissipée au sein des colonnes à bulles en régime homogène. Sans grande surprise, la variation de turbulence rencontrée dans les différentes zones

de la colonne à bulles en régime homogène est faible. Par conséquent, il est difficile de définir précisément les compartiments sur le critère choisi pour ce réacteur et dans ce régime particulier.

Finalement une autre option, basée sur le patron d'écoulement, a été jugée plus pertinente afin de bâtir les différents compartiments.

Mots-clés : colonne à bulle, transfert de matière, modèle compartimental, mécanique des fluides numériques.

ABSTRACT

Among all gas-liquid reactors, the bubble column reactor is widely used in chemical and biochemical industries. This well-known reactor, whose geometry is relatively simple, offers good mass and heat transfer. The mixing of the flow is generated by the rising of bubbles into the continuous liquid phase. Yet, even though a large amount of correlations has been developed to quantify mass transfer taking place in a bubble column reactor, its hydrodynamics is complex which the design and scale-up of such reactor a difficult task.

Because of a lack of data on local hydrodynamics, a well-mixed assumption is generally considered to describe the flow for design and scale-up purpose. This hypothesis is clearly invalidated by experiments, especially for industrial scales. A better local hydrodynamics knowledge is thus required.

The development of computational fluid dynamics (CFD) during the last decades triggered the emergence of a set of new tools to model bubble columns and unveil its local hydrodynamics. Yet, actual capabilities remain limited as one needs to take into account complex coupled phenomena, such as turbulence, mass and heat transfer, and reaction kinetics. One option, used in this present work, consists in combining computational fluid dynamics with compartment modeling (CM).

The open source CFD toolbox OpenFOAM is used to model the turbulent two-phase flow taking place in the bubble column reactor. Then, different compartments are built using drastic changes in the dissipation rate of turbulent kinetic energy (ε) as a criterion. Next, in each compartment, averaged local values of bubble diameter and mass transfer coefficient in the liquid phase are estimated.

This energetic methodology was not able to reach the objective of this project. This approach has not been found to be the most accurate for building the compartments. Not so surprisingly, the variation of turbulence in the different zones of the reactor in the homogeneous regime is low. This is the reason why it is hard to define compartments for such reactor in flow regime based on the criterion chosen.

Another option, based on the flow pattern, has been found more accurate in order to build these compartments.

Keywords: bubble column reactor, mass transfer, compartmental model, computational fluid dynamics.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE III

REMERCIEMENTS IV

RÉSUMÉ V

ABSTRACT VII

TABLE DES MATIÈRES IX

LISTE DES TABLEAUX XII

LISTE DES FIGURES XIII

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS XVII

NOMENCLATURE XVIII

CHAPITRE 1 INTRODUCTION 1

CHAPITRE 2 REVUE DE LA LITTÉRATURE 4

2.1 Conception des colonnes à bulles 4

2.2 Hydrodynamique de l'écoulement 7

2.2.1 Régimes d'écoulement 7

2.2.2 Patron d'écoulement 9

2.2.3 Rétention gazeuse 10

2.3 Mise à l'échelle 12

2.4 Transfert de matière 13

2.4.1 Aire interfaciale et diamètre de bulle 13

2.4.2 Coefficient de transfert de matière côté liquide 17

2.4.3 Corrélations pour le coefficient de transfert de matière global 20

2.5 Modélisation numérique des colonnes à bulles 23

2.5.1 Méthode des volumes finis 23
2.5.2 Méthode à deux fluides 24
2.5.3 Résolution de la turbulence 26
2.5.4 Forces interfaciales 28
2.6 Modèles des colonnes à bulles 33
2.6.1 Modèles de réacteurs parfaits 34
2.6.2 Modèle de dispersion 34
2.6.3 Modèles compartimentaux 35
2.7 Synthèse de la revue de littérature et identification des problèmes 41
CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE 43
3.1 Mise au point du modèle 43
3.2 Dispositif expérimental 46
3.3 Simulation numérique 48
3.3.1 Construction de la géométrie et discrétisation spatiale 48
3.3.2 Conditions frontières et conditions initiales 53
3.3.3 Parallélisation 54
3.4 Modèle numérique retenu 54
3.4.1 Description du solveur `twoPhaseEulerFoam` 56
3.4.2 Équations fondamentales et constitutives 56
3.4.3 Forces interfaciales 61
3.4.4 Schémas de discrétisation numérique 62
3.4.5 Algorithmes de résolution 63
3.5 Post-traitement des données 66
CHAPITRE 4 RÉSULTATS ET DISCUSSION 67

4.1 Validation du modèle numérique 67
4.1.1 Temps de simulation 67
4.1.2 Analyse de sensibilité du maillage 69
4.1.3 Prédiction de la rétention de gaz globale 73
4.2 Définition énergétique des compartiments 78
4.3 Définition hydrodynamique des compartiments 81
4.4 Évaluation du modèle compartimental 81
4.4.1 Prédiction de la taille de bulle 81
4.4.2 Prédiction du transfert de matière 83
4.4.3 Effet des conditions opératoires sur le modèle compartimental 85
CHAPITRE 5 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 91
BIBLIOGRAPHIE 93

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 – Corrélations pour la taille de bulle. 14

Tableau 2.2 – Corrélations de taille de bulle initiale [mm] en fonction du type d'injecteur (Bouaifi et al., 2001). 16

Tableau 2.3 – Différentes expressions pour le calcul de la taille moyenne de bulle exprimées en fonction de l'énergie dissipée dans le système. 16

Tableau 2.4 – Corrélation pour le coefficient de transfert de matière côté liquide (Calderbank & Moo-Young, 1961). 18

Tableau 2.5 – Liste de corrélations pour le coefficient de transfert de matière et domaines de validité. 21

Tableau 2.6 – Modèles de coefficient de traînée. 30

Tableau 3.1 – Propriétés des phases continue et dispersée. 47

Tableau 3.2 – Propriétés des maillages utilisés. 49

Tableau 3.3 – Résumé des conditions frontières et conditions initiales utilisées et syntaxe correspondante dans OpenFOAM. 55

Tableau 3.4 – Constantes utilisées dans le modèle de turbulence. 61

Tableau 3.5 – Schémas de discrétisation numérique. 63

Tableau 4.1 – Liste des simulations numériques réalisées. 68

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1 – Différentes géométries d'injecteurs (A. V. Kulkarni & Joshi, 2011a)..... 5

Figure 2.2 – Différents modes d'opérations, mode semi-batch (*a*), cascade de colonnes à bulles fonctionnant en mode continu co-courant (*b*), mode contre-courant (*c*) (Bothe, 2016)..... 6

Figure 2.3 – Différents régimes d'écoulement dans une colonne à bulle (Bouaifi, Hebrard, Bastoul, & Roustan, 2001)..... 7

Figure 2.4 – Régimes d'écoulement observés pour le système air-eau (Shah et al., 1982). 8

Figure 2.5 – Différents patrons de recirculation du liquide observés : a. recirculation moyenne ; b. modèle de beignet de Joshi et Sharma ; c. modèle de beignet inversés de Van Den Akker et Rietema ; d. modèle de beignet interpénétré de Joshi et Sharma ; e. modèle de cellules asymétriques de Zehner (Esmaeili Khalil Saraei, 2015; Groen, 2004). 10

Figure 2.6 – Évolution typique de la rétention de gaz en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les régimes homogène et hétérogène pour un système air-eau (Krishna & van Baten, 2003)..... 11

Figure 2.7 – Exemples d'arrangements en colocation (*a*) ou en quinconce (*b*) (Ferziger, 2002).. 24

Figure 2.8 – Illustration du concept de continuum interpénétré (Marschall et al., 2011). 25

Figure 2.9 – Forces interfaciales principales intervenant dans les écoulements gaz-liquide (Marschall et al., 2011)..... 28

Figure 2.10 – Relation entre la complexité et les ressources nécessaires selon les différentes méthodes de modélisation utilisées (Shu et al., 2018)..... 33

Figure 2.11 – Modèle à deux compartiments (Degaleesan et al., 1997). 36

Figure 2.12 – Modélisation d'une colonne à bulle industrielle de production de bicarbonate de soude (Wylock et al., 2009). 37

Figure 2.13 – Représentation schématique de données moyennes observées expérimentalement (Gupta et al., 2001)..... 37

Figure 2.14 – a. Principe d'établissement des compartiments à partir d'une simulation CFD b. Modélisation multi-compartimentale d'après Rigopoulos (Rigopoulos & Jones, 2003). 38

Figure 2.15 – Principe de détermination des deux compartiments d'une cuve agitée (Bashiri et al., 2014). 39

Figure 2.16 – Compartiments caractéristiques dans une cuve agitée par une turbine Rushton (Bashiri et al., 2016). 40

Figure 3.1 – Taille de bulle moyenne mesurée, à deux positions, par sonde à fibre optique en fonction de la vitesse superficielle de gaz (Esmaeili et al., 2015). 44

Figure 3.2 – Algorithme pour bâtir les différents compartiments et évaluer le transfert de matière local. 45

Figure 3.3 – Schéma de la colonne à bulles (Esmaeili et al., 2015)..... 47

Figure 3.4 – Arborescence des différents fichiers nécessaires pour lancer une simulation avec OpenFOAM version 3.0.1..... 48

Figure 3.5 – Maillage vu du côté (*a*) et vu par le bas (*b*) (maillage#4 300k). 51

Figure 3.6 – Exemple en deux dimensions de défauts de maillage : *a*. non-orthogonalité, *b*. asymétrie, *c*. élongation. P et M sont les centres de deux volumes voisins, C le centre de la face qui les relie..... 52

Figure 3.7 – *a*. Géométrie de la plaque perforée (Esmaeili et al., 2015), *b*. Maillage de l'entrée, entrée du gaz en rouge, murs en bleu. 52

Figure 3.8 – Algorithme de résolution de la turbulence d'après le modèle `mixtureKEpsilon`. 60

Figure 3.9 – Algorithme de résolution PIMPLE pour le solveur `twoPhaseEulerFoam`. 64

Figure 4.1 – Profils moyens de rétention de gaz (α) et de vitesse de gaz (U_{air}) calculés pour différentes périodes de temps (100, 300 et 500 s), à deux positions (haut et milieu) pour une vitesse superficielle de gaz de 4,27 cm/s (cas A4) et comparé aux données expérimentales de Esmaeili et al. (2015, 2016). 70

Figure 4.2 – Effet du maillage sur les profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour quatre maillages de 50k, 100k, 150k et 300k pour une vitesse superficielle de gaz de 4,27 cm/s(cas A1-4) dans le cas d'un modèle de traînée de Schiller-Naumann avec modèle de correction pour le panache et comparé aux données expérimentales de Esmaeili et al. (2015, 2016). 71

Figure 4.3 – Effet du maillage sur les profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour trois maillages de 50k, 100k et 150k pour une vitesse superficielle de gaz de 7,42 cm/s (cas B1-3) dans le cas d'un modèle de traînée de Schiller-Naumann avec modèle de correction pour le panache et comparé aux données expérimentales de Esmaeili et al. (2015, 2016). 72

Figure 4.4 – Comparaison entre la rétention de gaz globale mesurée par différence de pression (Esmaeili et al., 2015) et calculée numériquement pour les modèles de traînée de Schiller-Naumann (SN) et de Tomiyama (T) avec (P) et sans (NP) correction du coefficient de traînée pour les hautes concentrations en gaz. Les quatre séries de points correspondent aux vitesses superficielles de gaz de $u_G = 2{,}82$ - 4,27 - 6,51 et 7,42 cm/s (A1-4, B1-3, C1-2, D1-2). 75

Figure 4.5 – Profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour le maillage de 50k pour une vitesse superficielle de gaz de 4,27 cm/s (cas A1). Modèles de traînée de Schiller-Naumann (SN) et de Tomiyama (T) avec (P) et sans modèle (NP) de correction pour le panache. Données expérimentales issues de Esmaeili et al. (Esmaeili et al., 2015, 2016)..... 76

Figure 4.6 – Profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour une vitesse superficielle de gaz de 7,42 cm/s (cas B1 et B3). Modèles de traînée de Schiller-Naumann (SN) et de Tomiyama (T) avec (P) et sans modèle (NP) de correction pour le panache. Données expérimentales issues de Esmaeili et al. (Esmaeili et al., 2015, 2016).... 77

Figure 4.7 – Dissipation d'énergie cinétique turbulente cumulative (E_i) pour différentes vitesses superficielles de gaz et différents maillages (cas A1-4, B1-3, C1-2, D1-2). 80

Figure 4.8 – a. Lignes de courant moyennes de la phase liquide obtenues pour $u_G = 4{,}27$ cm/s (cas A2). b. Compartiments caractéristiques déterminés et boucles de recirculation schématisées. 82

Figure 4.9 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 4{,}27$ cm/s (cas A1-4). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises. 84

Figure 4.10 – Comparaison entre les $k_L a$ globaux calculés par deux modèles (cellule de turbulence (équation 2.30) et vitesse de glissement (équation 2.36)) et obtenus par diverses corrélations (section 2.4.3) (cas A1-4). 85

Figure 4.11 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 2{,}82$ cm/s (cas C1-2). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises. 87

Figure 4.12 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 6{,}51$ cm/s (cas D1-2). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises. 88

Figure 4.13 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 7{,}42$ cm/s (cas B1-3). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises. 89

Figure 4.14 – Coefficient de transfert de matière global pour différentes vitesses superficielles de gaz et différents maillages (cas B1-3, C1-2 et D1-2). 90

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ADM	Axial Dispersion Model
BCR	Bubble Column Reactor
CFD	Computational Fluid Dynamics
CFL	Courant-Friedrichs-Lewy
CARPT	Computed-Automated Radioactive Particle Tracking
DNS	Direct Numerical Simulation
DP	Différence de Pression
E-E	Euler-Euler
E-L	Euler-Lagrange
FOP	Fiber Optic Probe
GAMG	Geometric-Algebraic Multi-Grid
LES	Large Eddy Simulation
MULES	Multi-dimensional Universal Limiter with Explicit Solution
OpenFOAM	Open Field Operation And Manipulation
PFR	Plug Flow Reactor
PBM	Population Balance Model
PMR	Perfect Mixed Reactor
RANS	Reynolds Averaged Navier-Stokes
SGE	Simulation des Grandes Échelles
SND	Simulation Numérique directe
STR	Stirred-Tank Reactor

NOMENCLATURE

Lettres latines

a	Aire interfaciale par unité de volume [$m^2.m^{-3}$]
Bo	Nombre de Bond [-]
C_A^*	Concentration à la saturation de l'espèce A [$mol.m^{-3}$]
C_A	Concentration de l'espèce A [$mol.m^{-3}$]
C_D	Coefficient de traînée [-]
C_L	Coefficient de portance latérale [-]
C_t	Coefficient de réponse à la turbulence [-]
C_{TD}	Coefficient de dispersion turbulente [-]
C_{VM}	Coefficient de masse virtuelle [-]
C_{WL}	Coefficient de lubrification des murs [-]
D_A	Coefficient de diffusion moléculaire [$m^2.s^{-1}$]
D_C	Diamètre de colonne [m]
d_b	Diamètre de bulle [m]
d_o	Diamètre d'orifice [m]
E_i	Somme pondérée cumulative du taux d'énergie de dissipation [$m^2.s^{-3}$]
Eo	Nombre d'Eötvos [-]
Fr	Nombre de Froude [-]
g	Accélération de la pesanteur [$m.s^{-2}$]
Ga	Nombre de Galilée [-]
H	Hauteur de colonne [m]
k	Énergie cinétique turbulente [$m^2.s^{-2}$]

k_L	Coefficient de transfert de matière côté liquide [m.s^{-1}]
N_A	Taux transfert de matière [mol.m^{-3}.s^{-1}]
p	Pression [Pa]
P	Puissance [W]
Q	Débit de gaz par orifice [m^3.s^{-1}]
Re	Nombre de Reynolds [-]
Re_b	Nombre de Reynolds de bulle [-]
Re_b	Nombre de Reynolds d'orifice [-]
Sc	Nombre de Schmidt [-]
Sh	Nombre de Sherwood [-]
$\boldsymbol{u}$	Vitesse [m.s^{-1}]
u_{sl}	Vitesse de glissement [m.s^{-1}]
V_b	Volume de bulle [m^3]
V_L	Volume de liquide [m^3]
We	Nombre de Weber [-]

Lettres grecques

α_g	Rétention de gaz [-]
δ_f	Épaisseur du film de fluide [m]
ε	Taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente [m^2.s^{-3}]
ρ	Masse volumique [kg.m^{-3}]
σ	Tension superficielle [N.m^{-1}]
μ	Viscosité dynamique [Pa.s]
ν	Viscosité cinématique [m^2.s^{-1}]

τ	Taux de cisaillement turbulent [Pa]
$\boldsymbol{\tau}$	Tenseur de contrainte [Pa]
$\overline{\boldsymbol{\tau}}_{eff}$	Tenseur moyen de contrainte effective de Reynolds [Pa]

Indices

g	Gaz
l	Liquide
m	Mélange

Exposants

t	Turbulent

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

Parmi les réacteurs multiphasiques utilisés dans les procédés chimiques et les bioprocédés, les colonnes à bulles (BCR) occupent une place de choix. Plus de 30 millions de tonnes d'intermédiaires et de produits finis sont produits chaque année (Bothe, 2016). Ce réacteur permet la mise en contact directe entre une phase continue liquide et une phase dispersée gazeuse, sous forme de bulles. C'est pourquoi les colonnes à bulles offrent un excellent transfert de matière et de chaleur (Shaikh & Al-Dahhan, 2013). Une troisième phase, solide, suspendue dans le liquide peut être ajoutée afin de promouvoir par exemple la réaction. D'autres avantages comme un faible cisaillement, de grandes capacités en particulier pour le traitement des eaux usées, une distribution homogène de la température, un faible coût de maintenance et de construction d'autant plus qu'il ne dispose pas de pièce mobile, font de ce réacteur gaz-liquide ou gaz-solide-liquide un excellent candidat (Kantarci, Borak, & Ulgen, 2005; Wang, Wang, & Jin, 2007).

Cependant, la transposition de la petite à la grande échelle demeure un enjeu majeur, des effets d'échelle affectant significativement les propriétés de mélange et par conséquent les transferts de masse et de chaleur ainsi que la cinétique de réaction (Wang et al., 2007). En particulier, le régime d'écoulement est déterminant pour la qualité du transfert de matière selon que le régime soit homogène, c'est-à-dire qu'il soit caractérisé par des bulles uniformes en taille et en forme, ou le régime hétérogène qui possède une distribution de tailles et de formes de bulles très vaste. Ces réacteurs sont également sujets au re-mélange : en raison de la forte turbulence, les produits formés peuvent être renvoyés vers l'entrée du réacteur au lieu d'être dirigés vers la sortie (Shaikh & Al-Dahhan, 2007).

Afin de réaliser une mise à l'échelle des colonnes à bulles, de nombreuses études expérimentales et numériques ont été menées afin d'évaluer les paramètres hydrodynamiques déterminants et de mettre au point des corrélations pour réaliser cette mise à l'échelle (Nedeltchev, Nigam, & Schumpe, 2014; Shaikh & Al-Dahhan, 2013). Ces paramètres dépendent notamment d'un paramètre d'intérêt qui est le coefficient volumique de transfert de masse $k_L a$. En réalité, il s'agit du produit de deux paramètres, k_L le coefficient de transfert de masse côté liquide et a l'aire

spécifique d'échange. Ce coefficient est relié aux propriétés physiques des deux phases ainsi que des conditions opératoires (Kantarci et al., 2005). Le produit du coefficient volumique de transfert de masse et du gradient de concentration d'une espèce entre les phases liquide et gazeuse permet d'obtenir la cinétique de diffusion dans le film liquide (Harriott, 2002). Les modèles d'ingénierie maison, semi-empiriques et les règles du pouce demeurent largement utilisés pour la mise à l'échelle des colonnes à bulles par manque de connaissances précises de ces écoulements très complexes (Shaikh & Al-Dahhan, 2013).

Dans de nombreuses études, les chercheurs se sont attachés à déterminer des paramètres moyens sur l'ensemble de la colonne. Cependant, les caractéristiques hydrodynamiques ne sont pas uniformes dans l'ensemble du réacteur. En particulier, la rétention de gaz dans le liquide n'est pas uniforme dans l'axe de la colonne (Botton, 1979). Pour rendre la mise à l'échelle plus efficace, une meilleure connaissance des propriétés locales hydrodynamiques et de transfert de matière est nécessaire.

De nombreux groupes de chercheurs se sont affairés à concevoir des modèles numériques afin de reproduire l'écoulement que l'on retrouve dans les colonnes à bulles et notamment avec l'essor de la mécanique des fluides numérique (CFD) depuis les années 1990 (Bothe, 2016). Néanmoins la modélisation de ces écoulements demeure encore aujourd'hui un enjeu majeur. Afin de pallier ces difficultés, plusieurs approches ont été utilisées pour développer des modèles mathématiques pour ces réacteurs avec des modèles idéaux simples ou combinés. En particulier les modèles multi-compartimentaux offrent des possibilités pour estimer les propriétés de l'écoulement (Degaleesan, Dudukovic, Toseland, & Bhatt, 1997; Gupta, Ong, Al-Dahhan, Dudukovic, & Toseland, 2001; Rigopoulos & Jones, 2003). Ces modèles, combinés aux outils de simulation numériques de mécanique des fluides, peuvent être des outils de choix pour déterminer ces propriétés hydrodynamiques et de transfert de matière. Une méthodologie basée sur l'énergie dissipée dans le système a été mise au point pour un réacteur similaire, à savoir la cuve agitée avec injection de gaz (Bashiri, Bertrand, & Chaouki, 2016). Ce réacteur est similaire aux colonnes à bulles car il met en jeu des réactions gaz-liquide et qu'il est sujet à différents régimes d'écoulement. Ce travail a consisté en la mise en place d'un modèle multicompartimental dans lequel la construction des compartiments est basée sur l'énergie dissipée par l'agitateur ainsi que par les bulles de gaz. Dans chacune de ces zones, des paramètres hydrodynamiques locaux ont été déterminés. L'étude a permis de déterminer la contribution relative de chacune de ces zones au

transfert de matière global du réacteur. D'autres simulations ont permis de déterminer l'influence des conditions opératoires sur la qualité du mélange.

Les colonnes à bulles posent un certain nombre de difficultés et notamment concernant les bulles qu'il est difficile de caractériser car elles subissent des phénomènes de coalescence et de rupture (Shimizu, Takada, Minekawa, & Kawase, 2000), en plus d'avoir une géométrie non parfaitement sphérique et qui varie dans la colonne (Haut & Cartage, 2005). Afin de reproduire numériquement ce type de phénomènes, des modèles potentiellement très complexes peuvent être mis en jeu et requièrent des capacités de calcul très importantes.

L'objectif principal de cette maîtrise est de bâtir un modèle multicompartimental afin de déterminer la contribution de différentes zones du réacteur au transfert de matière global dans une colonne à bulle en régime homogène.

CHAPITRE 2 REVUE DE LA LITTÉRATURE

Les colonnes à bulles sont très largement utilisées dans les procédés chimiques et biologiques impliquant des réactions gaz-liquide ou gaz-solide-liquide. On peut citer, par exemple, les procédés d'hydrogénation, d'oxydation, d'ozonolyse, de chloration, d'hydroformylation, de Fisher-Tropsch, de culture de cellules, de fermentation, de bioremédiation, de traitement des eaux usées, etc (Dudukovic, Larachi, & Mills, 1999; Kantarci et al., 2005). Ce type de réacteur permet la production d'environ 30 millions de tonnes de produits finaux et d'intermédiaires chaque année (Bothe, 2016).

Après un rappel de quelques principes généraux sur les colonnes à bulles, leur conception et l'hydrodynamique, les modèles de transfert de matière ainsi que sur les outils numériques permettant de réaliser la simulation de l'écoulement dans ce type de réacteurs sont évoqués.

2.1 Conception des colonnes à bulles

Il existe de nombreuses géométries de colonnes à bulles, chacune répondant aux besoins spécifiques du procédé visé. De manière générale, la conception d'une colonne à bulle est relativement simple et peu onéreuse. Dans sa version basique, ce réacteur est constitué d'une colonne remplie de liquide dans lequel du gaz est dispersé à l'aide d'un injecteur. La hauteur de la colonne est supérieure à son diamètre afin de maximiser le temps de rétention de la phase gazeuse dispersée dans la phase continue (liquide ou slurry). Le ratio hauteur sur diamètre est habituellement supérieur à 5 (Kantarci et al., 2005).

Le gaz est le plus souvent injecté par le bas de la colonne. L'injecteur de gaz joue un rôle important dans l'écoulement, en particulier dans la zone basse de la colonne, car il détermine la distribution initiale de tailles de bulles, la distribution des vitesses initiales d'ascension des bulles dans la phase liquide ainsi que la répartition du panache de gaz. L'influence de l'injecteur sur l'hydrodynamique globale est d'autant plus grande que le ratio hauteur sur diamètre est faible (A. V. Kulkarni & Joshi, 2011a, 2011b). Kulkarni et al. ont réalisé un état de l'art à propos des

différentes technologies d'injecteurs dans les colonnes à bulles. Parmi les designs d'injecteurs, on distingue :

- Les distributeurs de type plaque dont la surface est proche de la section de la colonne. Dans cette configuration, une chambre de gaz, disposée sous la plaque, doit être prévue. Le volume nécessaire peut être calculé à partir de relations disponibles dans la littérature. La plaque peut-être de deux types :
    - Une plaque perforée de trous (Figure 2.1 *a*)
    - Une membrane poreuse
- Les distributeurs de type conduite (*pipe*) sont eux directement disposés dans le bas de la zone contenant la phase continue liquide. Différentes géométries peuvent être utilisées :
    - Des conduites formant une araignée (Figure 2.1 *b*)
    - Des conduites en parallèles (Figure 2.1 *c*)
    - Des conduites formant des anneaux concentriques (Figure 2.1 *d*)

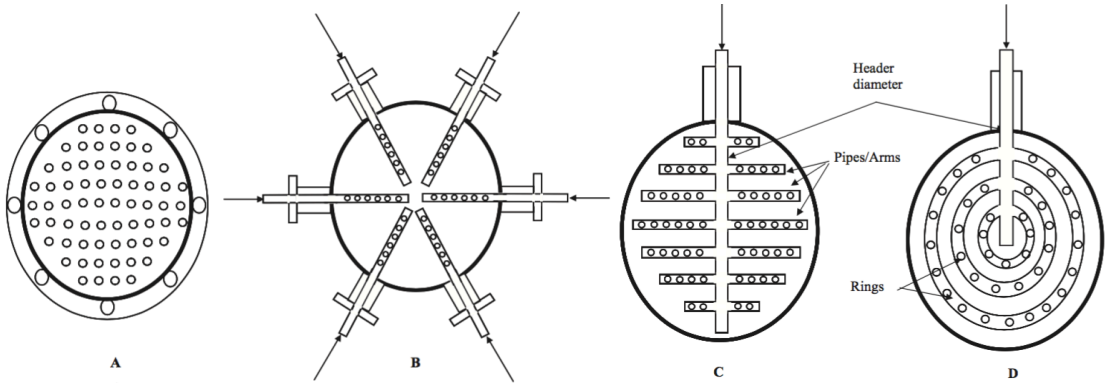


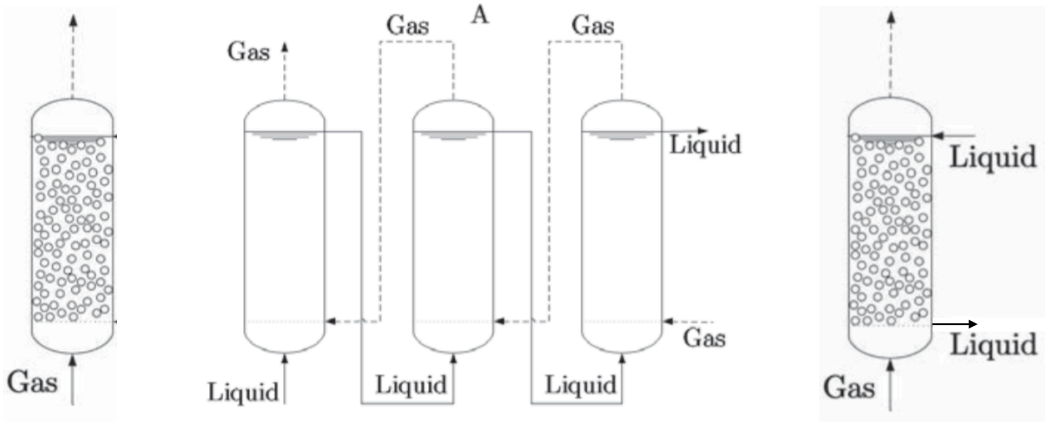
Figure 2.1 – Différentes géométries d'injecteurs (A. V. Kulkarni & Joshi, 2011a).

Par ailleurs, différents modes d'opérations peuvent modifier la géométrie du réacteur :

- Dans le mode semi-batch, la phase continue demeure dans la colonne, il n'y a ni entrée ni sortie du liquide tandis que le gaz est injecté par le bas et ressort par le haut de la colonne. La phase continue effectue une recirculation dans la colonne. Ce mode est préféré pour des réactions gaz-liquide très lentes (Figure 2.2 *a*).

- Dans le mode continue, le liquide entre et sort au même titre que le gaz. L'alimentation du liquide peut se faire en mode co-courant – les entrées du gaz et du liquide sont situées en bas (Figure 2.2 *b*), ou à contre-courant – l'entrée du liquide est située en haut (Figure 2.2 *c*), selon les besoins et les spécificités du procédé. La configuration co-courant permet d'atteindre des vitesses superficielles du gaz et du liquide plus importantes qu'en configuration contre-courant qui est limitée par l'engorgement. La phase continue n'effectue pas ou peu de recirculation dans ce mode qui est davantage utilisé pour des réactions gaz-liquide plus rapides.

En outre, la colonne à bulle peut jouer le rôle de réacteur, de stripeur ou d'absorbeur (Coker, 2015).



a *b* *c*

Figure 2.2 – Différents modes d'opérations, mode semi-batch (*a*), cascade de colonnes à bulles fonctionnant en mode continu co-courant (*b*), mode contre-courant (*c*) (Bothe, 2016).

Néanmoins, la géométrie des colonnes à bulles peut s'avérer plus complexe. En effet, il est souvent judicieux d'ajouter des éléments internes afin de promouvoir un rôle particulier. Par exemple, favoriser le transfert de chaleur dans le cas de réactions endothermiques ou exothermiques, augmenter la dispersion ou encore augmenter le temps de rétention du gaz. En outre l'un des rôles des internes peut être de diminuer le rétro-mélange qui provoque une dilution des réactifs et par conséquent une diminution de la conversion de la réaction. L'ajout de garnissage, de plateaux ou de chicanes peut permettre d'atténuer ce phénomène. À l'inverse, cet effet de rétro-mélange peut également être recherché dans le cadre de réactions fortement

exothermiques, par exemple. Dans un tel cas, le contrôle de la température est plus complexe avec des éléments internes (Coker, 2015; Youssef, Al-Dahhan, & Dudukovic, 2013).

2.2 Hydrodynamique de l'écoulement

La dynamique de l'écoulement au sein d'une colonne à bulle est très complexe. La détermination d'un certain nombre de propriétés hydrodynamiques est cruciale puisqu'elles sont intimement liées à d'autres phénomènes physiques tels que le transfert de matière et la cinétique de réaction. Parmi les propriétés d'intérêt se trouvent la rétention de gaz, la vitesse des phases liquides et gazeuses, la distribution de tailles de bulle ou encore le taux de dissipation d'énergie turbulente. Il est aussi important d'identifier et de pouvoir prédire les différents régimes d'opérations.

2.2.1 Régimes d'écoulement

L'injection du gaz par le bas de la colonne provoque l'expansion du liquide et différents régimes d'écoulement peuvent être observés ; ceux-ci sont représentés à la Figure 2.3 (Shaikh & Al-Dahhan, 2007).

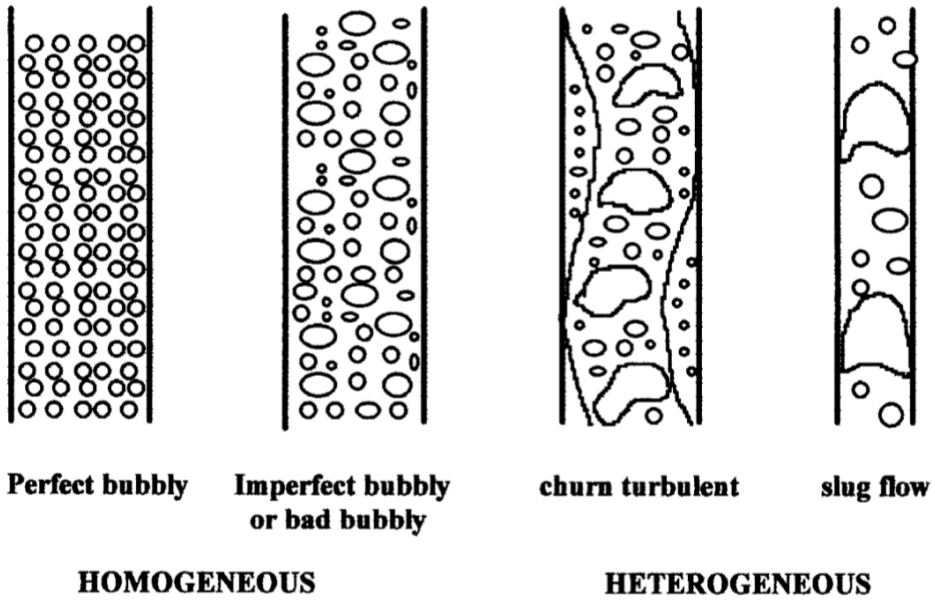


Figure 2.3 – Différents régimes d'écoulement dans une colonne à bulle (Bouaifi, Hebrard, Bastoul, & Roustan, 2001).

Le régime homogène est caractérisé par une distribution étroite de taille de bulles relativement sphériques et de petite taille. Ce régime est rencontré pour de faibles valeurs de vitesse superficielle du gaz. Le régime hétérogène survient au-delà d'une vitesse superficielle de gaz critique. Dans ce régime les phénomènes de coalescence et de rupture des bulles engendrent une distribution de tailles de bulles beaucoup plus large. Le régime « slug » est observé lorsque le diamètre de la colonne est faible et la vitesse superficielle du gaz élevée. De grosses bulles dont la taille est proche de celle du diamètre se forment périodiquement. La Figure 2.4 présente les différents régimes observés en fonction de la dimension de la colonne et de la vitesse superficielle de gaz pour le système air-eau (Shah, Kelkar, Godbole, & Deckwer, 1982).

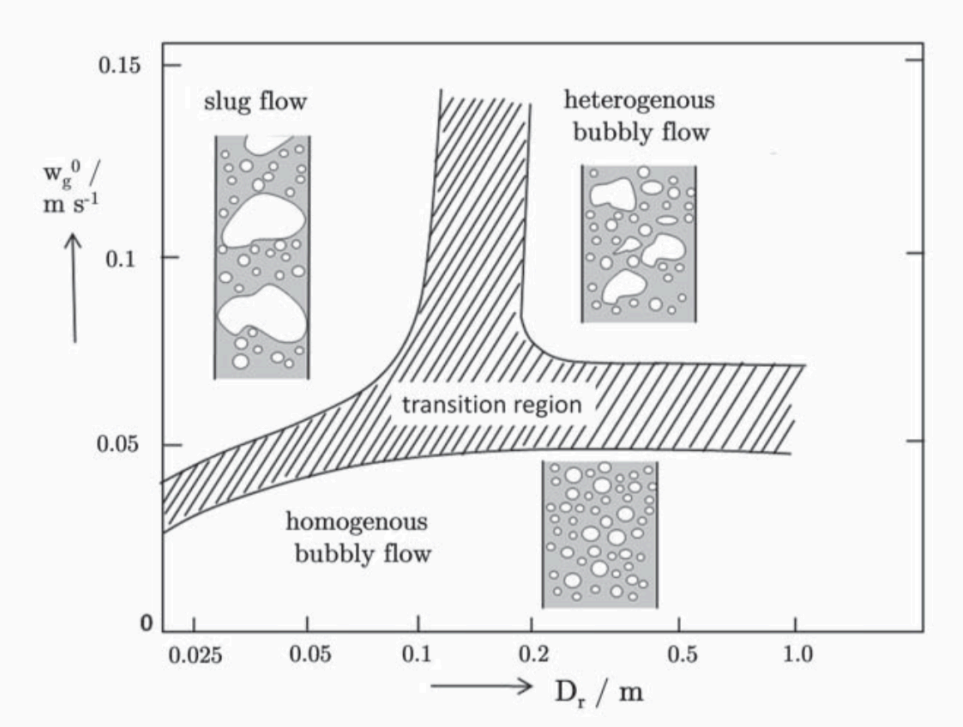


Figure 2.4 – Régimes d'écoulement observés pour le système air-eau (Shah et al., 1982).

2.2.2 Patron d'écoulement

Suivant les conditions opératoires, différents patrons d'écoulement peuvent être observés en fonction de la présence d'éléments internes, du mode d'opération et dans une moindre mesure du type d'injecteurs. En particulier pour le mode semi-batch, le patron d'écoulement du liquide est induit par l'ascension des bulles de gaz. Le gaz quitte l'injecteur avec une vitesse élevée pour former un panache de bulles qui s'élève dans la phase continue liquide sous l'action de la poussée d'Archimède à proximité de l'axe de la colonne. Les bulles sont cependant ralenties par la force de traînée dont la direction est opposée au mouvement de la bulle. Le liquide entourant les bulles est entraîné avec elles vers le haut. Arrivé à l'interface gaz/liquide, le gaz s'extrait du liquide tandis que le liquide redescend à proximité des parois de la colonne entrainant avec lui les plus petites bulles dont la force d'Archimède n'est pas assez forte pour leur permettre de s'extraire du liquide.

Différents patrons d'écoulement ont été observés expérimentalement pour la recirculation du liquide. Ces profils, dont quelques-uns sont représentés à la Figure 2.5, vont du plus simple avec une unique boucle de recirculation dans lequel le liquide monte par le centre et redescend à proximité des parois (Figure 2.5 *a*), à des modèles plus complexes, tels qu'une succession de cellules de recirculations (Figure 2.5 *b,c*) ou même à une combinaison de ces deux modèles (Figure 2.5 *d*). Enfin le modèle de Zehner propose un patron d'écoulement du liquide asymétrique (Figure 2.5 *e*), à l'inverse des précédents modèles dont l'axe de la colonne est un axe de symétrie (Groen, 2004).

De par la nature turbulente de l'écoulement, il n'est pas possible de prédire de patron d'écoulement instantané. Il est néanmoins possible de déterminer un patron moyen calculé sur de long temps d'écoulements. Il convient alors de bien faire la distinction entre l'écoulement instantané et l'écoulement moyen. En particulier, le patron à la Figure 2.5 *a* représente le patron de recirculation moyen le plus couramment observé dans la littérature et notamment par CARPT (*Computed-Automated Radioactive Particle Tracking*) (Degaleesan, Dudukovic, & Pan, 2001).

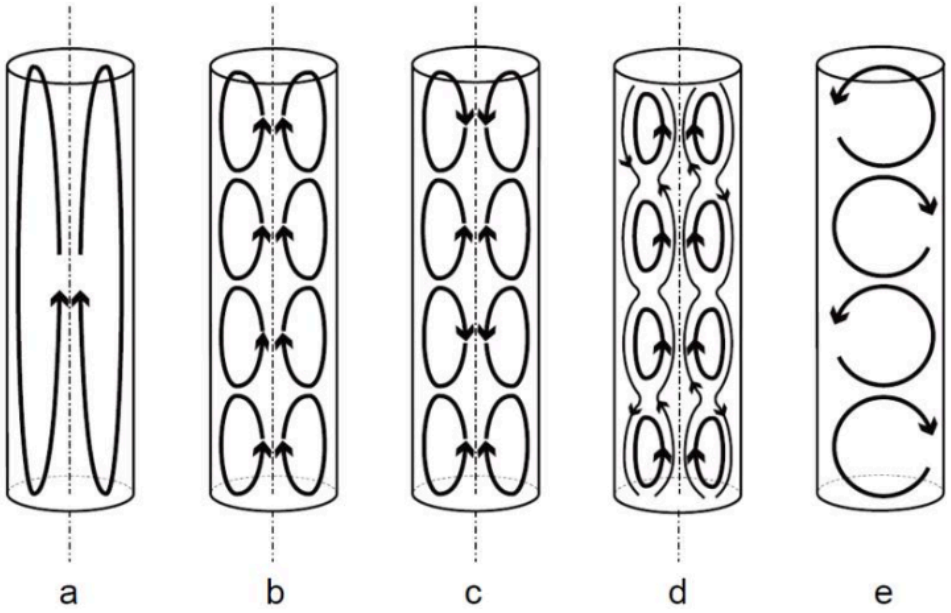


Figure 2.5 – Différents patrons de recirculation du liquide observés : a. recirculation moyenne ; b. modèle de beignet de Joshi et Sharma ; c. modèle de beignet inversés de Van Den Akker et Rietema ; d. modèle de beignet interpénétré de Joshi et Sharma ; e. modèle de cellules asymétriques de Zehner (Esmaeili Khalil Saraei, 2015; Groen, 2004).

2.2.3 Rétention gazeuse

La rétention gazeuse α_G est définie comme le ratio des volumes de gaz (V_G) et de liquide (V_L).

$$\alpha_G = \frac{V_G}{V_G + V_L} \tag{2.1}$$

Botton a observé trois zones pour la rétention de gaz, du bas vers le haut : 1) une zone d'émulsion vraie où la rétention du gaz est constante, 2) une zone intermédiaire de vésiculage où l'on observe une augmentation progressive de la rétention du gaz jusqu'à une valeur constante, 3) une zone d'entraînement dans laquelle la rétention du gaz demeure constante en haut de la colonne, (Botton, 1979).

De manière générale la rétention de gaz dans le liquide augmente avec le débit de gaz injecté ou autrement dit avec la vitesse superficielle du gaz (Figure 2.6). Une augmentation de la pression d'opération permet également d'augmenter la quantité de phase dispersée. À l'inverse, une

augmentation de la viscosité de la phase liquide favorise la formation de plus grosses bulles qui possèdent des vitesses d'ascension plus élevées, et par conséquent diminue la rétention de gaz. De même, une augmentation de la concentration en solide diminue la rétention gazeuse. L'ajout d'un surfactant augmente la rétention car les bulles de gaz sont alors plus petites (stabilisées). L'effet du diamètre de la colonne est négligeable s'il est supérieur à 10-15 cm et sa hauteur supérieure à 1-3 m ou encore si le ratio hauteur sur diamètre est supérieur à 5. La rétention de gaz dépend pour de faibles vitesses de gaz du nombre, du pas et du diamètre d'orifices de l'injecteur. Si l'orifice a un diamètre supérieur à 1 mm, l'effet du diamètre d'orifice n'est plus significatif (Kantarci et al., 2005). La rétention de gaz est en outre fonction de la taille des bulles. Plus les bulles sont petites, moins leur vitesse d'ascension est élevée et plus la rétention de gaz est importante.

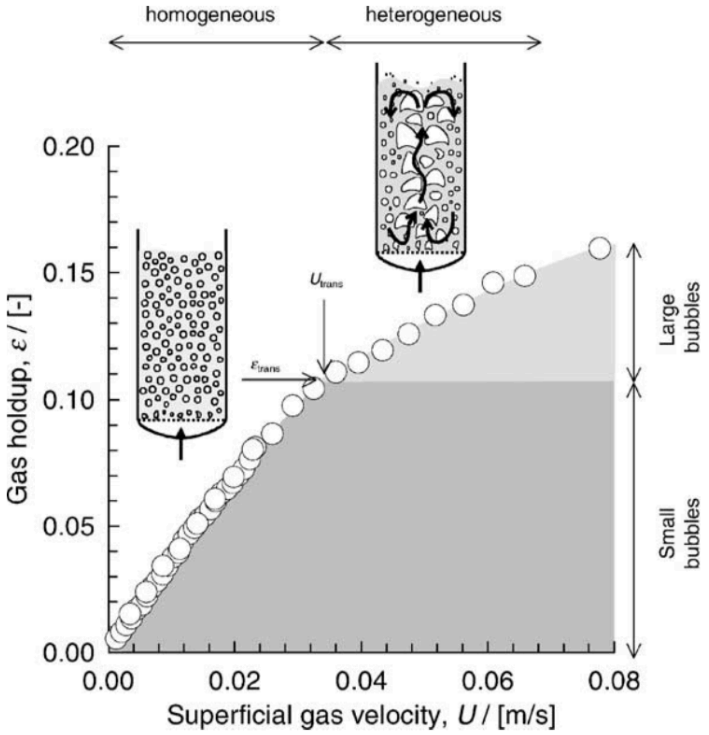


Figure 2.6 – Évolution typique de la rétention de gaz en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les régimes homogène et hétérogène pour un système air-eau (Krishna & van Baten, 2003).

Il n'existe pas de relation analytique qui relie la rétention de gaz avec les paramètres d'opération. Plusieurs groupes se sont attachés à établir des corrélations empiriques, à ce propos Kantarci et al. ont répertorié plusieurs corrélations disponibles dans la littérature (Kantarci et al., 2005). Bien qu'il existe de nombreuses formulations pour calculer la rétention de gaz, l'ensemble des corrélations s'accorde sur la dépendance de la rétention de gaz à la vitesse superficielle du gaz. A minima, la relation suivante peut être utilisée où C_2 et x sont deux paramètres dépendant du système considéré, des conditions opératoires et de la géométrie.

$$\alpha_G = C_2 U_G^x \tag{2.2}$$

Pour le régime homogène x est compris entre 0,83 et 1,19 (Bouaifi et al., 2001).

2.3 Mise à l'échelle

Les unités industrielles peuvent avoir différentes tailles allant de 100-300 m^3 (procédé d'oxydation de Hock), en passant par les procédés de fermentation avec 3 000 m^3 jusqu'aux plus grandes installations utilisées pour le traitement des eaux usées jusqu'à 20 000 m^3 (Bothe, 2016).

La mise à l'échelle et la conception de colonnes à bulles sont habituellement réalisées à l'aide d'heuristiques et modèles semi-empiriques qui tiennent compte des différents phénomènes (Kantarci et al., 2005) :

- les transferts de masse et de chaleur ;
- la qualité du mélange ;
- les réactions chimiques ;
- la cinétique de réaction.

En particulier, un rétro-mélange important caractérise ce type de réacteurs. Il convient alors de prendre en compte ce phénomène pour mener une mise à l'échelle effective (Levenspiel & Bischoff, 1959). Les méthodes de mise à l'échelle de colonnes à bulles retenues dans l'industrie sont rarement publiées pour des questions évidentes de secret industriel. La connaissance des paramètres hydrodynamiques est cruciale afin de réaliser une mise à l'échelle satisfaisante. La procédure généralement employée demeure la construction de plusieurs pilotes de plus en plus

grands jusqu'à la taille industrielle. La conception de ces pilotes permet de s'assurer du maintien de propriétés recherchées aux différentes échelles telles que la qualité du mélange, les caractéristiques hydrodynamiques et les performances du réacteur (Shaikh & Al-Dahhan, 2013).

2.4 Transfert de matière

Les colonnes à bulles offrent un excellent transfert de matière puisque les phases liquide et gazeuse sont en contact direct. Pouvoir déterminer le transfert de masse dans un réacteur chimique est crucial car il permet de déterminer la conversion de l'opération d'intérêt quand la réaction est limitée par le transfert de matière. Ce transfert peut être quantifié par le produit du coefficient global de transfert de matière ($k_L a$) et de sa force motrice, la différence de concentration de l'espèce considérée à la saturation (C_A^*) dans le gaz et la concentration présente dans le milieu continu liquide (C_A) (équation 2.3).

$$N_A = k_L a (C_A^* - C_A) \tag{2.3}$$

Le transfert de masse global est donc déterminé par le coefficient global de transfert de masse côté liquide $k_L a$ dans l'hypothèse où la résistance du côté du gaz est négligeable. En réalité, ce coefficient est lui-même le produit de deux quantités, à savoir le coefficient de transfert de masse côté liquide k_L et l'aire de contact gaz-liquide aussi appelée aire interfaciale a. L'enjeu est de maximiser le $k_L a$ dans le cas où la réaction gaz-liquide est lente ou très lente (Coker, 2015).

2.4.1 Aire interfaciale et diamètre de bulle

Dans l'hypothèse de bulles sphériques et de diamètre de Sauter d_{32} généralement assimilé au diamètre moyen, l'interface gaz-liquide totale par unité de volume de colonne peut être obtenue par la relation suivante qui fait intervenir la rétention de gaz α_G.

$$a = \frac{6\alpha_G}{d_{32}} \tag{2.4}$$

Tableau 2.1 – Corrélations pour la taille de bulle.

Groupe	Corrélation	
(Miller, 1974)	$d_b = \left[\frac{6\sigma d_o}{g(\rho_L - \rho_G)}\right]^{1/3}$	(2.5)
(Davies, 1985)	$d_b = 0{,}19 d_o^{0,48} Re_o^{0,32}, \qquad Re_0 = \frac{4Q\rho_G}{\pi d_o \mu_G}$	(2.6)
(Leibson, Holcomb, Cacoso, & Jacmic, 1956)	$d_b = 0{,}18 d_o^{1/2} Re_o^{1/3}, \qquad Re_0 < 2000$	(2.7)
(Kumar & Kuloor, 1970)	$V_b = \left(\frac{4\pi}{3}\right)^{1/3} \left(\frac{15\mu_l Q}{2\rho_L g}\right)^{3/4}$	(2.8)
(Bhavaraju, Mashelkar, & Blanch, 1978)	$\frac{d_b}{d_o} = 3{,}23 \left(\frac{4\rho_L Q}{\pi \mu_L d_o}\right)^{-0,1} \left(\frac{Q^2}{d_o^5 g}\right)^{0,21}$	(2.9)

La taille de bulle peut être déterminée à partir de corrélations empiriques, à ce sujet Kantarci et al. ont listé quelques-unes de ces corrélations rassemblées dans le Tableau 2.1 dans lequel d_o est le diamètre d'orifice et Q le débit de gaz par orifice. De manière générale, la taille des bulles augmente avec la vitesse superficielle de gaz, la concentration de solide (jusqu'à une concentration limite), la viscosité du liquide et la tension de surface. Par contre le diamètre moyen des bulles diminue quand la concentration en surfactant augmente (Kantarci et al., 2005). De même, la taille de bulle initiale, c'est-à-dire la taille observée au moment de la formation des bulles, est également fonction du type d'injecteur. Quelques exemples de corrélations sont présentés au Tableau 2.2 dans lesquelles P est la puissance injectée dans le système et V_L le volume du réacteur (Bouaifi et al., 2001). L'énergie dissipée (ε), générée par l'ascension des bulles dans la phase continue, peut être estimée par (Bouaifi et al., 2001) :

$$\varepsilon = \left(\frac{P}{V_L}\right)_{tot} = \rho_L g U_g \tag{2.10}$$

D'après la théorie de Hinze (1955) développée pour des écoulements liquide-liquide, la taille des bulles est déterminée par la magnitude de deux forces : la force de cisaillement due à la turbulence de l'écoulement et la force de tension de surface (Hinze, 1955). Le ratio de ces deux forces – inertielle et de tension de surface, forme le nombre de Weber (We), dans lequel v

représente la vitesse et L_c la longueur caractéristique de l'écoulement, ρ et σ sont la masse volumique et la tension de surface respectivement.

$$We = \frac{\rho v^2 L_c}{\sigma} \tag{2.11}$$

Par hypothèse, ce nombre adimensionnel adopte, à l'équilibre, une valeur critique ($We_{critique}$) pour laquelle un diamètre de goutte (ou bulle) stable maximum est atteint. Si le nombre de Weber est supérieur à cette valeur critique, la bulle se rompt pour former plusieurs bulles filles. Hinze a proposé comme valeur critique du nombre de Weber $We_{critique} = 0{,}725$.

$$We_{critique} = \frac{\tau d_{b,max}}{\sigma} \tag{2.12}$$

La relation (2.12) fait intervenir le taux de cisaillement turbulent τ et la tension de surface σ.

Dans le cadre de la théorie de turbulence isotropique de Kolmogorov, le taux de cisaillement est relié au carré de la vitesse de fluctuation turbulente u' générée par un vortex de taille l à l'équilibre. ε est le taux de dissipation d'énergie par unité de masse.

$$\tau = \rho_L u'^2 \tag{2.13}$$

$$u' = (\varepsilon l)^{1/3} \equiv (\varepsilon d_b)^{1/3} \tag{2.14}$$

Finalement la taille de bulle maximale stable peut être déterminée par la relation suivante :

$$d_{b,max} = C_2 \frac{\sigma^{3/5}}{{\rho_L}^{3/5} \varepsilon^{2/5}} \tag{2.15}$$

Plusieurs valeurs ont été rapportées pour la constante C_2 : 1,15 (Lehr & Mewes, 2001), 1,10 (Hinze, 1955).

D'autres formulations, rassemblées dans le Tableau 2.3, ont été dérivées afin de tenir compte de la différence de viscosité entre les phases continue μ_l et dispersée μ_g (Bhavaraju, Russell, & Blanch, 1978), de la rétention de gaz α_g (Calderbank, 1958) ou encore de la différence de masse volumique entre le liquide ρ_l et le gaz ρ_g (Levich, 1962).

Tableau 2.2 – Corrélations de taille de bulle initiale [mm] en fonction du type d'injecteur (Bouaifi et al., 2001).

Type d'injecteur	Corrélation	
Plaque perforée	$d_b = 16 \cdot 10^{-3} \left(\frac{P}{V_L}\right)_{tot}^{-0,23}, \quad 4,5 < d_b < 7,5\ mm$	(2.16)
Plaque poreuse	$d_b = 2,15 \cdot 10^{-3} \left(\frac{P}{V_L}\right)_{tot}^{0,16}, \quad 3,7 < d_b < 5\ mm$	(2.17)
Membrane	$d_b = 2,79 \cdot 10^{-3} \left(\frac{P}{V_L}\right)_{tot}^{0,08}, \quad 3,7 < d_b < 4,2\ mm$	(2.18)

Tableau 2.3 – Différentes expressions pour le calcul de la taille moyenne de bulle exprimées en fonction de l'énergie dissipée dans le système.

Groupe	Corrélation	
(Hinze, 1955) (Lehr & Mewes, 2001)	$d_{b,max} = C_2 \frac{\sigma^{3/5}}{{\rho_L}^{3/5} \varepsilon^{2/5}}$	(2.19)
(Davies, 1985)	$d_{b,max} = C_5 \left(\frac{\sigma}{\rho_L} + \frac{\sqrt{2}}{4} \frac{\mu_G \left(\varepsilon d_{b,max}\right)^{\frac{1}{3}}}{\rho_L} \right)^{3/5} \frac{1}{\varepsilon^{2/5}}$	(2.20)
(Levich, 1962)	$d_{b,max} = 1,1 \frac{\sigma^{3/5}}{{\rho_L}^{2/5} {\rho_G}^{1/5} \varepsilon^{2/5}}$	(2.21)
(Pereyra & Shoham, 2015)	$d_{b,max} = C_4 \frac{\left[\sigma + 2^{-3/2} \mu_G \left(\varepsilon d_{b,max}\right)^{1/3}\right]^{3/5}}{{\rho_L}^{2/5} {\rho_G}^{1/5} \varepsilon^{2/5}}$	(2.22)
(Bhavaraju, Russell, et al., 1978)	$d_b = 0,7 \frac{\sigma^{3/5}}{{\rho_L}^{1/5} \varepsilon^{2/5}} \left(\frac{\mu_L}{\mu_G}\right)^{0,1}$	(2.23)
(Calderbank, 1958)	$d_b = 4,15 \frac{\sigma^{3/5}}{{\rho_L}^{3/5} \varepsilon^{2/5}} \alpha_G^{0,25} + 0,0009$	(2.24)
(Lee & Meyrick, 1970)	$d_b = 4,25 \frac{\sigma^{3/5}}{{\rho_L}^{3/5} \varepsilon^{2/5}} \alpha_G^{0,25}$	(2.25)

2.4.2 Coefficient de transfert de matière côté liquide

Le coefficient de transfert de matière côté liquide k_L représente la résistance au transfert de matière dans le film liquide. Plusieurs approches ont été mises au point afin de déterminer ce coefficient k_L. À ce propos, Kulkarni a résumé différentes formulations disponibles dans la littérature (Kulkarni, 2007).

Le modèle à deux films de Whitman (1924) suppose que le transfert de matière à l'interface de deux fluides est un processus indépendant du temps. De part et d'autre de l'interface existent des films stagnants de fluide, gaz et liquide. En supposant un gradient de concentration constant et d'après la première loi de Fick, le coefficient de transfert côté liquide est :

$$k_L = \frac{\mathrm{D_A}}{\delta_f} \tag{2.26}$$

dans lequel, $\mathrm{D_A}$ est le coefficient de diffusion moléculaire d'une espèce A et δ_f l'épaisseur du film. Bien que cette formulation soit simple, l'évaluation de l'épaisseur de film ne l'est pas, d'autant plus dans un écoulement turbulent. Néanmoins, ce modèle est à la base de nombreux autres (Bird, Stewart, & Lightfoot, 2002).

Le modèle de pénétration d'Higbie (1935) considère quant à lui, que le transfert de matière est un processus instationnaire dicté par les tourbillons de fluide. Ce modèle suppose que les bulles de gaz sont exposées aux tourbillons pendant des périodes de temps t égales, ou en d'autres termes que le temps de contact entre l'interface et chaque élément de fluide est constant. De plus, d'après la seconde loi de Fick pour tenir compte de la nature instationnaire du phénomène :

$$k_L = 2\sqrt{\frac{\mathrm{D_A}}{\pi t}} \tag{2.27}$$

Dans le cadre de modèles de cellule de turbulence, le temps d'exposition au tourbillon peut être exprimé de différentes façons. Il peut être estimé par la théorie de turbulence isotropique de Kolmogorov comme :

$$t = \left(\frac{\nu}{\varepsilon}\right)^{1/2} \tag{2.28}$$

où ν est la viscosité cinématique et ε le taux d'énergie dissipée.

Finalement,

$$k_L = 2\sqrt{\frac{\mathrm{D_A}}{\pi}}\left(\frac{\varepsilon}{\nu}\right)^{1/4} = 1{,}13\sqrt{\mathrm{D_A}}\left(\frac{\varepsilon}{\nu}\right)^{1/4} \tag{2.29}$$

Lamont et Scott (1970) ont dérivé cette expression en faisant l'hypothèse que le renouvellement de la surface était dicté par les petits tourbillons (Lamont & Scott, 1970) :

$$k_L = \mathrm{C_1}\sqrt{\mathrm{D_A}}\left(\frac{\varepsilon}{\nu}\right)^{1/4} \tag{2.30}$$

Différentes valeurs pour $\mathrm{C_1}$ ont été rapportées 0,301 – 0,4 – 0,5 – 0,523 – 0,531 – 0,592 – 1,13 (Bashiri et al., 2016; Linek, Kordač, & Moucha, 2005).

Calderbank et Moo-Young ont également proposé des relations regroupées dans le

Tableau 2.4, permettant de calculer k_L en fonction du système et en particulier pour un système dans lequel les bulles sont soumises à la turbulence (Calderbank & Moo-Young, 1961). Elles font intervenir le nombre adimensionnel de Schmidt Sc défini comme le rapport entre la diffusivité de quantité de mouvement et la diffusivité massique :

$$Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D_{AB}} \tag{2.31}$$

Tableau 2.4 – Corrélation pour le coefficient de transfert de matière côté liquide (Calderbank & Moo-Young, 1961).

Conditions d'application	Corrélation	
$d_b > 2{,}5\ mm$	$k_L Sc^{1/2} = 0{,}42\left[\frac{\Delta\rho\mu_L g}{\rho_L^2}\right]^{1/3}$	(2.32)
$d_b < 2{,}5\ mm$	$k_L Sc^{1/2} = 0{,}31\left[\frac{\Delta\rho\mu_L g}{\rho_L^2}\right]^{1/3}$	(2.33)
Bulles non-libres de se déplacer sous l'effet de la pesanteur contrainte par la turbulence	$k_L Sc^{2/3} = 0{,}13\left[\frac{\varepsilon\mu_L}{\rho_L^2}\right]$	(2.34)

Une autre formulation du temps d'exposition à l'équation (2.35) fait intervenir la vitesse de glissement à l'interface v_{sl}, il s'agit alors d'un modèle dit de vitesse de glissement. Dans ce modèle, le temps d'exposition s'écrit plutôt :

$$t = \frac{d_b}{u_{sl}} \tag{2.35}$$

dans lequel u_{sl} est la vitesse de glissement à l'interface gaz-liquide. Le coefficient de transfert de matière côté liquide s'écrit alors (Alves, Maia, & Vasconcelos, 2004) :

$$k_L = \sqrt{\frac{4u_{sl}\mathrm{D_A}}{\pi d_b}} \tag{2.36}$$

Frössling a proposé un modèle similaire pour des bulles rigides inférieures à 1 mm de diamètre (Frossling, 1938) :

$$k_L = \mathrm{C_3}\sqrt{\frac{u_{sl}}{d_b}}\mathrm{D_A^{2/3}}\nu^{-1/6} \tag{2.37}$$

Linek et al. (2005) ont montré que pour une cuve agitée, le coefficient k_L était régi par l'énergie dissipée dans le liquide plutôt que la taille de bulle ou la vitesse de glissement. Ce modèle de cellule de turbulence est plus adéquat et la constante a été ajustée à $\mathrm{C_1} = 0{,}448$ pour de faibles énergies dissipées (inférieure à 100 W/m^3) pour un liquide newtonien sans agent de surface (Linek et al., 2005).

À l'inverse des cuves agitées où la majeure partie de l'énergie dissipée provient de l'agitation mécanique, dans une colonne à bulle, la dissipation d'énergie est produite par l'expansion du liquide résultant de l'injection de gaz.

Il n'y a pas d'unanimité dans le choix du modèle à privilégier ; certains groupes de recherche trouvent une dépendance de k_L avec la vitesse de glissement, tandis que d'autres trouvent au contraire une indépendance (Linek et al., 2005). Ainsi, il semble que les deux modèles (de cellule de turbulence et de vitesse de glissement) sont à même de prédire le coefficient de transfert de matière côté liquide (Linek et al., 2005).

2.4.3 Corrélations pour le coefficient de transfert de matière global

De nombreux efforts ont été portés à établir des corrélations faisant intervenir des nombres adimensionnels pour évaluer le coefficient de transfert de matière global moyen dans l'ensemble de la colonne à bulle. Le Tableau 2.5 dresse la liste d'un certain nombre de ces corrélations. Ces corrélations ne s'accordent cependant pas sur les mêmes nombres adimensionnels (Sh, Sc, Bo, Ga, Fr, Re…). De même qu'il n'existe pas d'accord sur certaines grandeurs caractéristiques telles que la longueur caractéristique qui est tantôt le diamètre de la colonne, tantôt le diamètre moyen des bulles de gaz (Dudley, 1995; Kantarci et al., 2005).

Tableau 2.5 – Liste de corrélations pour le coefficient de transfert de matière et domaines de validité.

Groupe	Corrélation	
(Ozturk, Schumpe, & Deckwer, 1987)	$Sh = 0{,}62 Sc^{0{,}5} Bo^{0{,}33} Ga^{0{,}29} Fr^{0{,}68} \left(\frac{\rho_g}{\rho_l}\right)^{0{,}04}$ $1{,}6 \cdot 10^1 < Sh = \frac{k_L a d_b^2}{D_A} < 9{,}7 \cdot 10^2$ $\quad 8{,}3 \cdot 10^2 < Ga = \frac{g \rho_L^2 d_b^3}{\mu_L^2} < 1{,}5 \cdot 10^6$ $3{,}2 \cdot 10^1 < Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D_A} < 1{,}5 \cdot 10^5$ $\quad 4{,}3 \cdot 10^{-2} < Fr = \frac{u_G}{\sqrt{g d_b}} < 6{,}0 \cdot 10^{-1}$ $1{,}2 < Bo = \frac{g \rho_L d_b^2}{\sigma} < 5{,}4$ $\quad 9{,}3 \cdot 10^{-5} < \frac{\rho_G}{\rho_L} < 2{,}0 \cdot 10^{-3}$	(2.38)
(Akita, 1973)	$Sh = 0{,}6 Sc^{0{,}5} Bo^{0{,}62} \ Ga^{0{,}31} \varepsilon_g^{1{,}1}$ $3{,}05 \cdot 10^3 < Bo = \frac{g \rho_L D_C^2}{\sigma} < 1{,}24 \cdot 10^4$ $\quad 1{,}92 \cdot 10^2 < Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D_A} < 8{,}33 \cdot 10^2$ $2{,}01 \cdot 10^{10} < Ga = \frac{g \rho_L^2 D_C^3}{\mu_L^2} < 4{,}13 \cdot 10^{11}$ $\quad Sh = \frac{k_L a D_C^2}{D_A}$	(2.39)
(Shah et al., 1982)	$k_L a = b u_G^n$ Pour une colonne remplie d'eau : - Injecteur en croix (orifices de 1 mm) avec $D_C = 0{,}2\ m$ et $H = 2 - 7{,}2m$: $\begin{cases} b = 0{,}467 \\ n = 0{,}82 \end{cases}$ - Injecteur plaque frittée avec $D_C = 0{,}1 - 0{,}15\ m$ et $H = 2{,}5 - 4{,}4m$: $\begin{cases} b = 1{,}174 \\ n = 0{,}82 \end{cases}$	(2.40)
(Kawase, Halard, & Moo-Young, 1987)	Pour un fluide newtonien : $Sh = 0{,}452 Sc^{1/2} Re^{3/4} Fr^{7/60} Bo^{3/5}$ $\frac{k_L a D_C^2}{D_A} = 0{,}452 \left(\frac{\mu_L}{\rho_L D_A}\right)^{1/2} \left(\frac{D_C u_G \rho_L}{\mu_L}\right)^{3/4} \left(\frac{u_G^2}{D_C g}\right)^{7/60} \left(\frac{g \rho_L D_C^2}{\sigma}\right)^{3/5}$ $0{,}14 < D_c < 7{,}62\ m$ $\quad 8{,}1 \cdot 10^{-4} < \mu_L < 1{,}303 \cdot 10^{-2}\ Pa.s$	(2.41)

(Hikita, Asai, Tanigawa, Segawa, & Kitao, 1981)	$\frac{k_L a u_G}{g} = 14{,}9\left(\frac{u_G \mu_L}{\sigma}\right)^{1{,}76}\left(\frac{\mu_L^4 g}{\rho_L \sigma^3}\right)^{-0{,}248}\left(\frac{\mu_G}{\mu_L}\right)^{0{,}243}\left(\frac{\mu_L}{\rho_L D_A}\right)^{-0{,}604}$ $5{,}0 \cdot 10^{-4} < \frac{u_G \mu_L}{\sigma} < 3{,}3 \cdot 10^{-2}$ $\quad 1{,}6 \cdot 10^{-3} < \frac{\mu_G}{\mu_L} < 2{,}5 \cdot 10^{-2}$ $1{,}3 \cdot 10^{-11} < \frac{\mu_L^4 g}{\rho_L \sigma^3} < 3{,}2 \cdot 10^{-7}$ $\quad 1{,}2 \cdot 10^{2} < \frac{\mu_L}{\rho_L D_A} < 2{,}0 \cdot 10^{4}$	(2.42)
(Higbie, 1935)	$k_L = 2\sqrt{\frac{D_{AB}}{\pi t}}, \qquad t = \frac{d_b \alpha_G}{u_G}$	(2.43)
(Calderbank & Moo-Young, 1961)	Pour de petites bulles de gaz, assimilées à des sphères rigides ($d_b < 2{,}5\ mm$) : $k_L Sc^{1/2} = 0{,}42\left(\frac{\Delta\rho \mu_L g}{\rho_L^2}\right)^{1/3}$ $Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D_A}$	(2.44)
(Hughmark, 1967)	$Sh = 2 + a\left[Re^{0{,}484} Sc^{0{,}339}\left(\frac{d_b g^{1/3}}{D_A^{2/3}}\right)^{0{,}072}\right]^b$ $Sh = \frac{k_L d_b}{D_A}, \qquad Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D_A}, \qquad Re = \frac{d_b u_G \rho_L}{\mu_L}$	(2.45)

2.5 Modélisation numérique des colonnes à bulles

L'écoulement diphasique que l'on rencontre dans les colonnes à bulles est très complexe à modéliser en raison notamment des phénomènes non-linéaires et généralement couplés (hydrodynamique, turbulence, transfert de matière et de chaleur, cinétique de réaction). Depuis les années 1990, des efforts importants ont été mis en œuvre afin de développer des modèles de mécanique des fluides numérique (CFD) efficients. Cependant, encore aujourd'hui, des limitations de puissance de calcul demeurent. Les résolutions spatiale et temporelle demeurent insuffisantes pour simuler de manière fidèle un écoulement turbulent couplé au transfert de matière et aux réactions (Bothe, 2016).

Plusieurs approches sont possibles :

- La simulation numérique directe (DNS) permet de résoudre l'écoulement tout en prenant en compte les phénomènes de tension de surface entre le liquide et le gaz. Néanmoins, cette approche nécessite une discrétisation très fine du domaine étudié et n'est pas envisageable pour des réacteurs industriels à l'heure actuelle.
- L'approche Euler-Lagrange (E-L) est une résolution hybride de l'écoulement où la phase continue est résolue avec une méthode eulérienne tandis que la phase dispersée est résolue avec une méthode lagrangienne. Dans ce cadre, la position et la vitesse de chacune des bulles constituant l'écoulement sont enregistrées. Cette approche est encore trop exigeante en termes de capacités de calcul à l'heure actuelle.
- L'approche Euler-Euler (E-E) quant à elle résout les deux phases avec des méthodes eulériennes. C'est l'approche préférée actuellement car elle ne nécessite pas d'aussi importantes capacités de calcul, particulièrement pour les réacteurs de taille industrielle. Néanmoins, cette approche nécessite de nombreux modèles.

2.5.1 Méthode des volumes finis

La méthode des volumes finis (FVM) est une méthode de discrétisation permettant de résoudre des équations aux dérivées partielles similaires aux méthodes de différences finies (FDM) et d'éléments finis (FEM). Elle est très largement utilisée pour résoudre les écoulements de

mécanique des fluides mono ou multiphasiques car elle s'adapte facilement aux géométries complexes et est sans doute la méthode la plus simple à conceptualiser et à programmer (Ferziger, 2002). Cette méthode est, par ailleurs, bien adaptée aux phénomènes pour lesquels le transport domine sur la diffusion. Elle est implémentée dans de nombreux logiciels de mécanique des fluides tels que Fluent ou OpenFOAM.

Cette méthode permet de résoudre la forme conservative des équations de Navier-Stokes. Le domaine spatial est divisé en un nombre finis de volumes de contrôles sur lesquels des bilans de flux de quantité de mouvement sont réalisées pour ainsi résoudre les équations définies. Les variables peuvent être évaluées aux centres des volumes de contrôle (grille en collocation Figure 2.1 *a*). Une autre possibilité est d'évaluer les propriétés scalaires aux centres des volumes tandis que les propriétés vectorielles sont évaluées aux centres des faces (grille en quinconce Figure 2.7 *b*). Cette dernière option est privilégiée pour la résolution d'écoulements compressibles ou non sur des maillages structurés. Ensuite les champs de variables sont évalués aux autres points du domaine par interpolation (Ferziger, 2002).

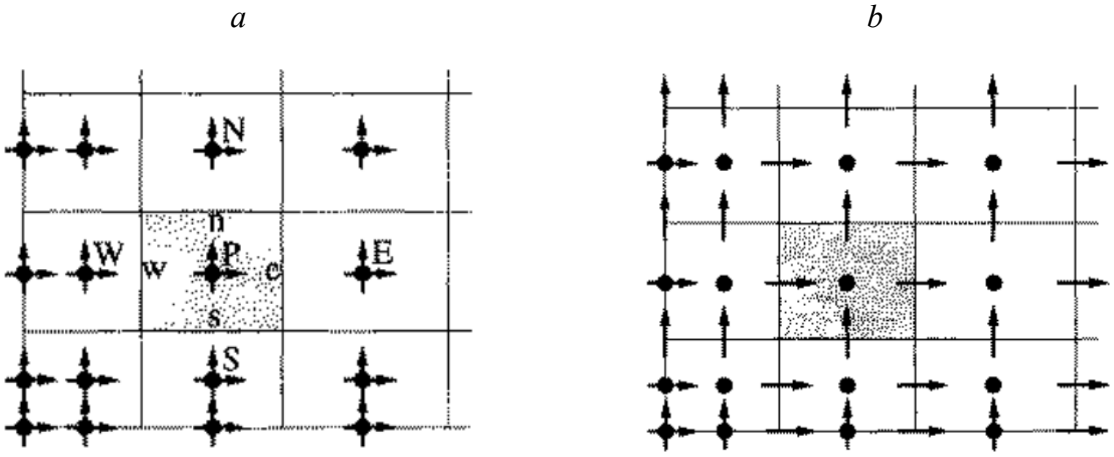


Figure 2.7 – Exemples d'arrangements en colocation (*a*) ou en quinconce (*b*) (Ferziger, 2002).

2.5.2 Méthode à deux fluides

La méthode à deux fluides est une approche Euler-Euler très largement utilisée pour la modélisation des colonnes à bulles. Cette méthode considère que les deux phases comme un continuum interpénétré. Dans ce concept, illustré à la Figure 2.8, la propriété d'intérêt, par

exemple la fraction de gaz α_G, est calculée pour chaque volume de contrôle. La valeur calculée peut alors être interprétée comme une moyenne volumique des éléments discrets de fluides. Cette méthode ne nécessite pas de maillages très fins comme pour la DNS car l'interface gaz-liquide n'est pas capturée. Cela permet de réaliser le calcul sur des mailles bien plus larges que la taille des bulles. Les capacités de calcul nécessaires sont alors largement moins importantes.

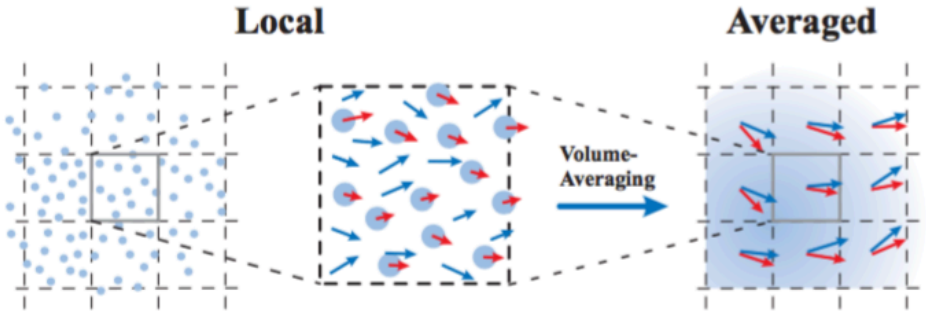


Figure 2.8 – Illustration du concept de continuum interpénétré (Marschall et al., 2011).

L'écoulement est dicté par les équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement sans changement de phase, pour chaque phase i :

$$\frac{\partial \rho_i \alpha_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_i \rho_i \boldsymbol{u}_i) = 0 \tag{2.46}$$

$$\frac{\partial \alpha_i \rho_i \boldsymbol{u}_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_i \rho_i \boldsymbol{u}_i \boldsymbol{u}_i) = -\boldsymbol{\nabla}(\alpha_i p) + \nabla \cdot (\alpha_i \boldsymbol{\tau}_i) + \alpha_i \rho_i \boldsymbol{g} \pm \boldsymbol{F}_i \tag{2.47}$$

$$\alpha_L + \alpha_G = 1 \tag{2.48}$$

dans lesquelles α_G est la rétention de gaz, $\boldsymbol{u}_i$ le champ de vitesse de la phase i, $\boldsymbol{\tau}$ le tenseur de contrainte de cisaillement, p la pression partagée par les deux phases, $\boldsymbol{F}_i$ les forces interfaciales agissant sur la phase dispersée.

La résolution de l'écoulement doit se faire en régime instationnaire et 3D afin capturer au mieux les phénomènes de turbulence (Jakobsen, Lindborg, & Dorao, 2005).

2.5.3 Résolution de la turbulence

Les écoulements rencontrés dans les colonnes à bulles, qui plus est industriels, sont systématiquement turbulents. Il convient donc de modéliser adéquatement ces phénomènes, ce qui ajoute un degré de difficulté non négligeable. Afin de résoudre ce problème, plusieurs options sont disponibles (Ferziger, 2002) :

- La simulation numérique directe (DNS) ne nécessite aucun modèle supplémentaire, la résolution des équations de Navier-Stockes se fait sans approximation ni moyenne. Dans ce genre de simulations, l'échelle de résolution est de l'ordre de grandeur des plus petits tourbillons, appelée échelle de Kolmogorov. Bien que les capacités de calcul et l'efficacité des algorithmes se sont considérablement accrues durant les dernières décennies, la résolution directe (DNS) d'écoulements diphasiques tels que ceux présent dans les colonnes à bulles ne peut s'effectuer à l'heure actuelle qu'à de petites échelles (Shu & Yang, 2013).
- La simulation des grandes structures de turbulence pour *Large Eddy Simulation* en anglais (LES) résout les grands tourbillons de l'écoulement (mésoscopiques) tandis que les petites tourbillons (microscopiques) sont modélisées au moyen d'une pseudo-viscosité générée par la dissipation de quantité de mouvement résultante à ces échelles. La turbulence générée par les petites échelles est par hypothèse isotropique. Cette méthode requiert également des capacités de calcul importantes.
- Enfin les simulations moyennées en Reynolds (RANS) permettent de résoudre un écoulement moyen tandis que les fluctuations sont modélisées à l'aide d'une viscosité dite turbulente calculée à l'aide de modèles de fermeture de type k-ε, k-ω ou encore SST. C'est l'approche privilégiée pour les réacteurs de taille industrielle.

En outre, plusieurs stratégies peuvent être adoptées pour modéliser la turbulence. Elles consistent à la modéliser pour :

- la phase continue seulement, la viscosité turbulente de la phase dispersée étant alors égale à la viscosité du gaz,
- les deux phases simultanément,

- ou encore le mélange. Dans ce cas des propriétés moyennes de l'écoulement sont évaluées localement en fonction des quantités de chacune des phases.

Dans l'approche RANS, les équations de conservation de la masse et de quantité de mouvement doivent être résolues pour l'écoulement moyen. Pour un système compressible sans changement de phase (évaporation ou condensation), les équations sont :

$$\frac{\partial \rho_k \alpha_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \boldsymbol{u}_k) = 0 \tag{2.49}$$

$$\frac{\partial \alpha_k \rho_k \overline{\boldsymbol{u}}_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \overline{\boldsymbol{u}}_k \overline{\boldsymbol{u}}_k) = -\alpha_k \boldsymbol{\nabla} p + \nabla \cdot \left(\alpha_k \bar{\boldsymbol{\tau}}_{eff,k}\right) + \alpha_k \rho_k \boldsymbol{g} \pm \boldsymbol{F}_k \tag{2.50}$$

$$\alpha_l + \alpha_g = 1 \tag{2.51}$$

dans lesquelles, $\overline{\boldsymbol{u}}_k$ est le champ moyen de vitesse de la phase k, $\boldsymbol{F}_k$ est le termes source de quantité de mouvements dû aux forces interfaciales, $\bar{\boldsymbol{\tau}}_{eff,k} = -\rho_k \overline{u_i' u_j'}$ est le tenseur moyen de contrainte effective de Reynolds.

Ce dernier peut être évalué, d'après l'hypothèse de Boussinesq comme :

$$\bar{\boldsymbol{\tau}}_{eff,k} = \mu_{eff,k}(\nabla \overline{\boldsymbol{u}}_k + \nabla \overline{\boldsymbol{u}}_k^T) - \frac{2}{3}\left(\rho_k k_k + \mu_{eff,k}(\nabla \cdot \overline{\boldsymbol{u}}_{\boldsymbol{i}})\right)\bar{\bar{\boldsymbol{I}}} \tag{2.52}$$

Cette expression fait apparaître la viscosité effective de la phase k, $\mu_{eff,k}$:

$$\mu_{eff,k} = \mu_k + \mu_k^t \tag{2.53}$$

Afin d'évaluer le tenseur de contrainte effective de Reynolds et en particulier la viscosité turbulente μ_k^t, il est nécessaire de fermer le modèle. Pour ce faire, les modèles de turbulence de type k-ε sont largement utilisés (Pourtousi, Sahu, & Ganesan, 2014). Il convient de résoudre deux équations de conservations, à savoir l'une pour l'énergie cinétique turbulente k et l'autre pour la dissipation d'énergie cinétique turbulente ε.

2.5.4 Forces interfaciales

Les forces interfaciales jouent un rôle déterminant dans la dynamique de l'écoulement gaz-liquide. Jakobsen et al. ont listé l'ensemble des forces agissant sur la phase discontinue gazeuse. Néanmoins, seul quelques-unes de ces forces ont un effet significatif dans le cadre d'un écoulement gaz-liquide vertical (Jakobsen et al., 2005; Jakobsen, Sannæs, Grevskott, & Svendsen, 1997).

Pourtousi et al. ont publié une revue de la littérature concernant les forces interfaciales utilisées pour la simulation de colonnes à bulles (Pourtousi et al., 2014). Parmi l'ensemble des forces identifiées, il en ressort que les principales forces utilisées sont les forces de traînée, de portance (lift), de dispersion turbulente et de masse virtuelle (Figure 2.9). Dans une moindre mesure, la force de lubrification des murs peut être ajoutée.

$$\sum \boldsymbol{F}_i = \boldsymbol{F}_D + \boldsymbol{F}_L + \boldsymbol{F}_{VM} + \boldsymbol{F}_{TD} + \boldsymbol{F}_{WL} \tag{2.54}$$

Dans la suite, les principales forces utilisées sont discutées succinctement.

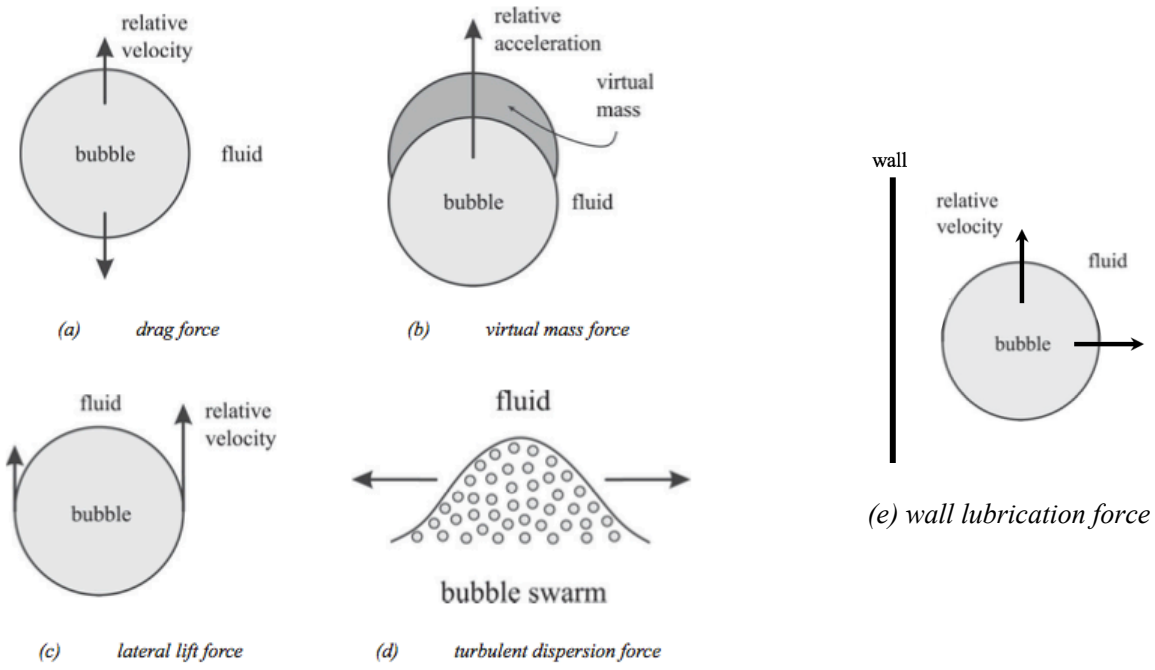


Figure 2.9 – Forces interfaciales principales intervenant dans les écoulements gaz-liquide (Marschall et al., 2011).

2.5.4.1 Force de traînée

La force de traînée est une force de même direction que la trajectoire de la bulle, mais de sens opposé au mouvement. C'est la principale force interfaciale ; sa magnitude peut être plus de cent fois supérieure à celles des autres forces interfaciales (Laborde-Boutet, Larachi, Dromard, Delsart, & Schweich, 2009). Elle peut être écrite sous la forme :

$$\boldsymbol{F}_D = \frac{3}{4}\alpha_G C_D \frac{\rho_l}{d_b}|\boldsymbol{u}_G - \boldsymbol{u}_L|(\boldsymbol{u}_G - \boldsymbol{u}_L) \tag{2.55}$$

Cette expression fait clairement apparaître un choix judicieux de diamètre de bulle ainsi que du coefficient de traînée C_D. De nombreux modèles sont disponibles dans la littérature pour calculer ce coefficient, parmi lesquels on peut citer ceux de Schiller-Naumann (Schiller & Naumann, 1935), d'Ishii-Zuber qui prend en compte la forme de la bulle (Ishii & Zuber, 1979) ou encore de Tomiyama qui tient compte de la contamination de la phase continue (Tomiyama, Tamai, Zun, & Hosokawa, 2002), pour n'en citer que trois. Ces trois modèles sont rassemblés au Tableau 2.6.

Ces différents modèles sont généralement validés pour des écoulements de bulles à faible concentration de phase dispersée. En conséquence de quoi, la force de traînée peut être sous-estimée. Moins la force de traînée est importante et plus la vitesse des bulles est élevée. En réalité des effets combinés de l'ensemble des bulles composant le panache peuvent affecter la force de traînée. Afin de prendre en compte ces effets de panache de bulles, des modèles permettent de corriger le coefficient de traînée local dans l'écoulement en tenant compte de la concentration locale de phase dispersée. Par exemple, la correction apportée d'après le modèle de Tomiyama (Tomiyama, Kataoka, Fukuda, & Sakaguchi, 1995) est donnée par l'équation :

$$\frac{C_D}{C_{D,0}} = (1 - \alpha_G)^{3-2l} \tag{2.56}$$

où $C_{D,0}$ est le coefficient de traînée calculé par l'un des modèles précédemment cités et l est un paramètre compris entre 1,5 et 2.

Tableau 2.6 – Modèles de coefficient de traînée.

Groupe	Corrélation	
(Schiller & Naumann, 1935)	Pour de petites bulles sphériques : $$C_D = \begin{cases} \frac{24}{Re_b}\left(1 + 0.15Re_b^{0,687}\right), & Re_b \leq 1000 \\ 0{,}44, & Re_b > 1000 \end{cases}$$ $$Re_b = \frac{\rho_L \lvert \boldsymbol{u}_G - \boldsymbol{u}_L \rvert d_b}{\mu_L}$$	(2.57)
(Ishii & Zuber, 1979)	Prise en compte de la forme de la bulle : $$C_D = \begin{cases} \frac{24}{Re_m}, & régime\ de\ Stokes \\ \frac{24}{Re_m}\left(1 + 0{,}1Re_m^{0,75}\right), & régime\ visqueux \\ \frac{2}{3}\sqrt{Eo}\left(\frac{1 + 17{,}67f(\alpha_G)^{6/7}}{18{,}67f(\alpha_G)}\right)^2, & régime\ déformé \\ \frac{8}{3}(1 - \alpha_G^2), & régime\ de\ calotte\ sphérique \end{cases}$$ $$Re_m = \frac{\rho_L \lvert \boldsymbol{u}_G - \boldsymbol{u}_L \rvert d_b}{\mu_m}$$ $$\frac{\mu_m}{\mu_L} = \left(1 - \frac{\alpha_G}{\alpha_{Gm}}\right)^{-2{,}5\alpha_{Gm}(\mu_G + 0{,}4\mu_L)/(\mu_G + \mu_L)} \qquad f(\alpha_G) = \frac{\mu_L}{\mu_m}\sqrt{1 - \alpha_G}$$	(2.58)
(Tomiyama et al., 2002)	Prise en compte de la forme de la bulle et de la contamination de la phase liquide ($A = 24$ pour un système eau-air peu contaminé) : $$C_D = max\left[min\left(\frac{A}{Re}(1 + 0{,}15Re^{0,687}, \frac{3A}{Re}\right), \frac{8}{3}\frac{Eo}{Eo + 4}\right]$$ $$Eo = \frac{(\rho_L - \rho_G)gd_b^2}{\sigma}$$	(2.59)

Outre le coefficient de traînée, le diamètre de bulle a un gros impact sur la force de traînée. Le choix d'un seul diamètre constant peut se justifier lorsque le régime est homogène. En effet, dans ce régime, la distribution de tailles de bulles est resserrée. Il convient alors de choisir un diamètre de bulle représentatif. À contrario, cette hypothèse n'est plus du tout valable pour le régime hétérogène caractérisé par une distribution de tailles de bulles beaucoup plus large. Une approche consiste à considérer deux tailles de bulles : une petite, de même taille que dans le régime homogène, et une taille plus élevée (Krishna & van Baten, 2003). Il est possible de raffiner davantage le modèle en incluant un modèle de bilan de population pour les tailles de bulles afin de tenir compte des phénomènes de rupture et de coalescence des bulles. Ce modèle ajoute néanmoins un degré de complexité important à la simulation (Jakobsen et al., 2005).

2.5.4.2 Force de portance latérale

La force de portance latérale est une force perpendiculaire à la force de traînée. Elle est générée par une différence de contrainte locale de la phase continue sur la phase dispersée. C'est la deuxième force en termes d'importance après la traînée. La force de portance latérale peut s'écrire sous la forme suivante, dans laquelle C_L est le coefficient de portance :

$$\boldsymbol{F}_L = -\alpha_G \rho_L C_L \cdot (\boldsymbol{u}_G - \boldsymbol{u}_L) \times \boldsymbol{\nabla} \wedge \boldsymbol{u}_L \tag{2.60}$$

Afin de déterminer la valeur du coefficient C_L, plusieurs modèles ont été développés, en particulier celui de Tomiyama (Tomiyama et al., 2002). Cette force permet en outre de reproduire les oscillations du panache de bulles autour de l'axe central (Jakobsen et al., 2005).

2.5.4.3 Force de dispersion turbulente

Cette force modélise l'action de la fluctuation de la turbulence de la phase continue sur la phase dispersée. Cette force est proportionnelle à l'énergie cinétique turbulente de la phase continue et au gradient de la rétention de gaz. Elle s'écrit, d'après Moraga et al., sous la forme (Moraga, Larreteguy, Drew, & Lahey, 2003) :

$$\boldsymbol{F}_{TD} = -C_{TD} \rho_L k_L \boldsymbol{\nabla} \alpha_G \tag{2.61}$$

Le paramètre C_{TD} est habituellement pris constant entre 0,1 et 1,0 (Marschall et al., 2011).

2.5.4.4 Force de masse virtuelle

Lors de l'ascension d'une bulle de gaz dans la phase liquide, une partie du liquide est entraînée avec la bulle, ce qui ralentit la bulle. Afin de tenir compte de ce phénomène, la masse de la bulle peut être corrigée pour tenir compte de l'entraînement de liquide à l'aide de la force de masse virtuelle :

$$\boldsymbol{F}_{VM} = C_{VM}\alpha_G\rho_L\left(\frac{D_G\boldsymbol{u}_G}{Dt} - \frac{D_L\boldsymbol{u}_L}{Dt}\right) \tag{2.62}$$

$$\frac{D_i}{Dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \boldsymbol{u}_i\boldsymbol{\nabla} \tag{2.63}$$

Pour une bulle sphérique, le coefficient de masse virtuel est $C_{VM} = 0{,}5$, pour d'autres formes, ce coefficient est plus faible (Marschall et al., 2011).

2.5.4.5 Force de lubrification des murs

Cette force a été introduite par Antal et al. afin de modéliser l'effet répulsif exercé par les murs sur la phase dispersée (Antal, Lahey, & Flaherty, 1991). Cependant, il n'existe pas de consensus sur sa formulation qui est soumise à un certain nombre de contraintes et des restrictions d'utilisation. Elle est donc rarement utilisée.

$$\boldsymbol{F}_{WL} = -C_{WL}\frac{d_b}{2}\rho_L\boldsymbol{u}_r^2\boldsymbol{n}_{wall} \tag{2.64}$$

dans lequel $C_{W1} = -0{,}104 - 0{,}06\boldsymbol{u}_{rel}$ et $C_{W2} = 0{,}147$.

2.6 Modèles des colonnes à bulles

En raison de la complexité des phénomènes rencontrés dans les colonnes à bulles, et en particulier du rétro-mélange, la nécessité de modéliser ces réacteurs a depuis longtemps été éprouvée. L'approche la plus simple consiste à modéliser la colonne à bulle comme un réacteur parfait : le modèle du réacteur parfaitement mélangé (0D), le modèle du réacteur piston (1D) avec ou sans dispersion axiale, les modèles compartimentaux constitués d'assemblage de réacteurs idéaux ou non (pseudo 2D), jusqu'à l'utilisation d'outils numériques de mécanique des fluides numérique (2D ou 3D). La mécanique des fluides numérique connaît un essor très important depuis plusieurs dizaines d'années, néanmoins des limitations persistent en terme de temps de calcul pour des réacteurs de taille industrielle (Bothe, 2016). La relation entre la complexité du modèle et la puissance de calcul nécessaire est illustrée à la Figure 2.10.

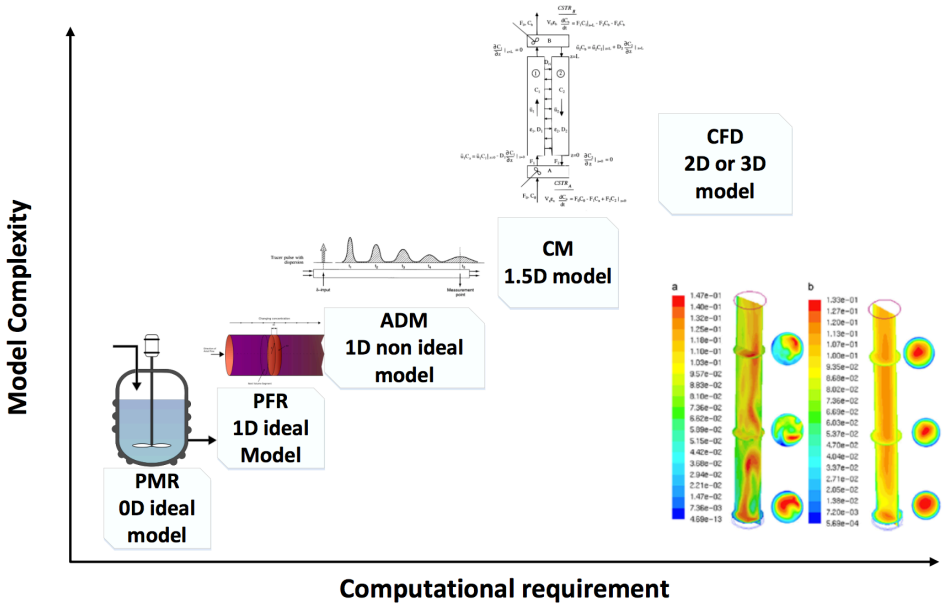


Figure 2.10 – Relation entre la complexité et les ressources nécessaires selon les différentes méthodes de modélisation utilisées (Shu et al., 2018).

2.6.1 Modèles de réacteurs parfaits

Un premier modèle consiste à faire l'hypothèse que la phase liquide est parfaitement mélangée (PMR) grâce aux bulles. Dit autrement, cette hypothèse suppose un rétro-mélange total. Ainsi l'équation de conservation associée à la phase liquide est donné par :

$$-\frac{d}{dz}(U_G C_G) = k_L a(C_L^* - C_L) \tag{2.65}$$

Dans la phase gazeuse, la concentration évolue de manière continue suivant la hauteur, la phase dispersée peut alors être modélisée comme un réacteur piston (PFR), et dans le cadre de ce modèle, le rétro-mélange est inexistant pour la phase gazeuse. Le modèle de réacteur piston est justifié lorsque le transport convectif est dominant par rapport au transport diffusif. L'équation de conservation pour cette phase est l'équation (2.66) (Bukur, 1983; Lohse, Alper, & Deckwer, 1983).

$$A_c \int_0^L k_L a(C_L^* - C_L) dz = V_L k_i \varepsilon_L C_L \tag{2.66}$$

où U_G est la vitesse superficielle de gaz, C_G la concentration non-constante suivant la hauteur dans la phase gazeuse, C_L la concentration dans la phase liquide supposée constante dans l'ensemble du réacteur, V_L est le volume de liquide, A_c la section de la colonne et k_i une constante cinétique pour une réaction d'ordre 1 dans la phase liquide dans cet exemple.

2.6.2 Modèle de dispersion

Le modèle de dispersion axiale (ADM) améliore le modèle du réacteur piston en tenant compte de la dispersion selon l'axe central de la colonne. L'équation de conservation d'une espèce pour la phase liquide s'écrit sous la forme suivante, dans laquelle $D_{z,L}$ est un coefficient de dispersion axiale qu'il convient de déterminer (Deckwer, Nguyen-Tien, Kelkar, & Shah, 1983; Jakobsen et al., 2005) :

$$\varepsilon_L D_{z,L} \frac{d^2 C_L}{dz^2} \pm \frac{dC_L}{dz} + \frac{k_L a L}{U_L}(C_L^* - C_L) = 0 \tag{2.67}$$

Une équation similaire peut être écrite pour la phase gazeuse.

D'autres modèles prennent également en compte la dispersion radiale, ce qui rajoute un paramètre supplémentaire pour l'établissement du modèle (Calderón & Ancheyta, 2016).

Néanmoins, ces approches ne permettent pas de reproduire la distribution radiale de la rétention de gaz et des vitesses qui est loin d'être uniforme au sein d'une colonne à bulle.

2.6.3 Modèles compartimentaux

Des efforts ont été mis en œuvre pour bâtir des modèles compartimentaux (CM) en couplant plusieurs réacteurs idéaux ou non dans le but de reproduire l'écoulement complexe dans une colonne à bulle. Ces modèles sont généralement couplés à des simulations numériques plus ou moins sophistiquées.

Plusieurs approches ont été développées afin de construire de tels modèles que l'on peut regrouper en deux catégories : les modèles basés sur l'hydrodynamique ou phénoménologiques (Degaleesan et al., 1997; Gupta et al., 2001; Rigopoulos & Jones, 2003; Wylock, Larcy, Cartage, & Haut, 2009) et un nouveau modèle basé sur la turbulence qui a été développé pour les cuves agitées (Bashiri et al., 2016; Bashiri, Heniche, Bertrand, & Chaouki, 2014).

2.6.3.1 Modèle hydrodynamique

Cette première famille de modèles s'inspire de l'hydrodynamique et en particulier du patron d'écoulement moyen observé dans les colonnes à bulles.

Degaleesan et Dudukovic ont bâti un modèle compartimental en deux dimensions afin de prévoir le temps de résidence dans la phase liquide pour une colonne à bulle de type slurry. Seule la phase liquide est considérée. Ce modèle comporte quatre compartiments : un premier au bas de la colonne est assimilé à une zone parfaitement agitée, de même qu'en haut de la colonne dans la zone de désengagement du gaz. Entre les deux extrémités l'écoulement est établi, deux zones sont définies, l'une pour l'écoulement du liquide vers le haut et l'autre vers le bas, assimilées à deux réacteurs pistons non-idéaux tenant compte de dispersion axiale et radiale. Ce modèle est schématisé à la Figure 2.11 (Degaleesan et al., 1997).

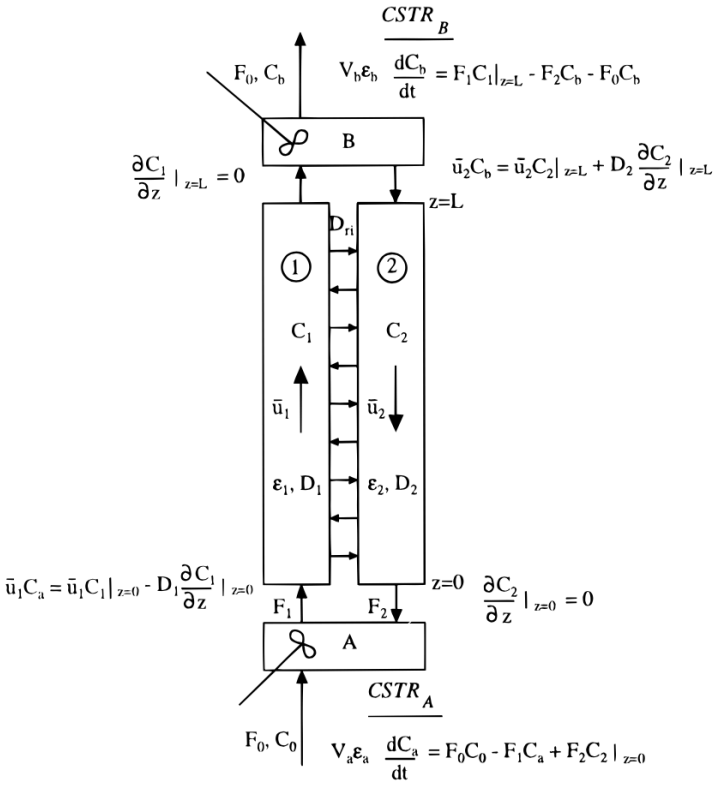


Figure 2.11 – Modèle à deux compartiments (Degaleesan et al., 1997).

Wylock a proposé un autre modèle (Figure 2.12) pour de larges colonnes industrielles de production de bicarbonate de sodium. La phase liquide est modélisée comme une suite de réacteurs parfaitement mélangés tandis que l'écoulement de la phase gazeuse est modélisé pour deux tailles de bulles avec des réacteurs pistons. Dans ce procédé particulier, ce modèle doit également tenir compte de phénomènes de cristallisation (Wylock et al., 2009).

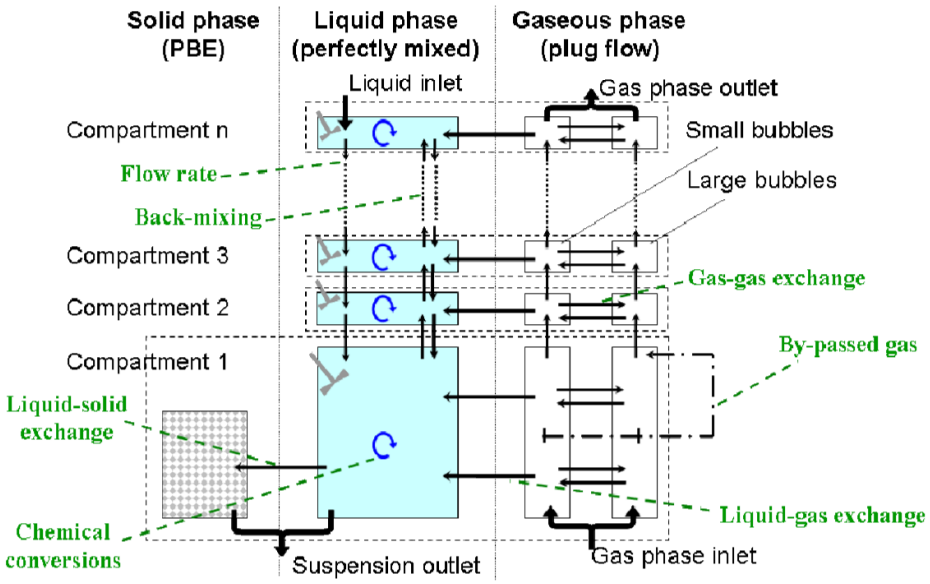


Figure 2.12 – Modélisation d'une colonne à bulle industrielle de production de bicarbonate de soude (Wylock et al., 2009).

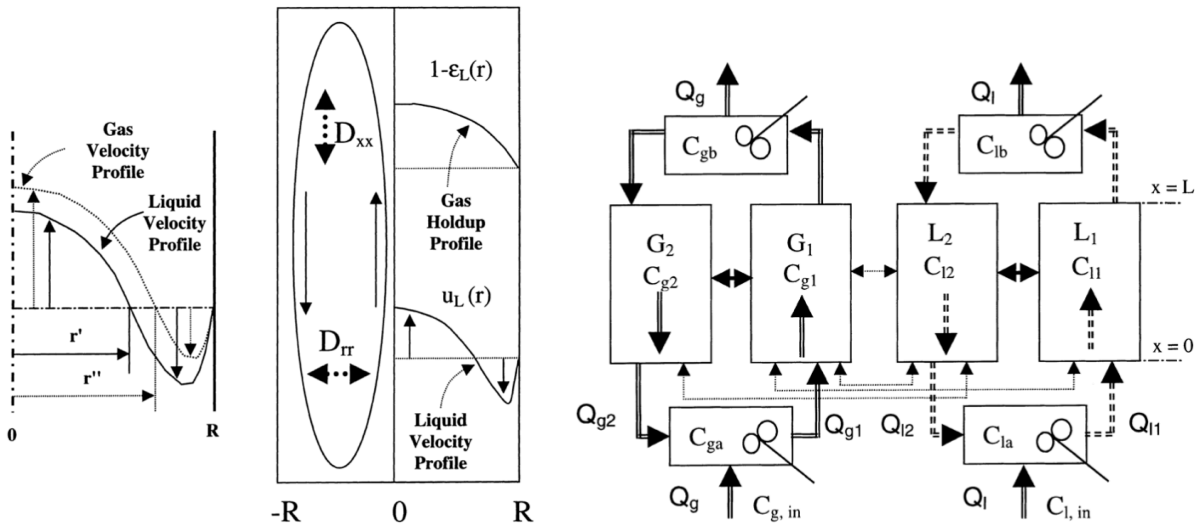


Figure 2.13 – Représentation schématique de données moyennes observées expérimentalement (Gupta et al., 2001).

Gupta et al. (2001) ont développé un modèle phénoménologique pour décrire le mélange gaz – liquide/slurry en régime turbulent. Quatre compartiments sont identifiés pour chaque phase conformément aux observations expérimentales, un premier au bas de la colonne dans lequel

l'hypothèse d'un mélange parfait est faite (PMR) tout comme au haut de la colonne (Figure 2.13). Au milieu, il y a deux modèles de dispersion axiale et radiale. Les débits de recirculations, nécessaire à ce modèle, sont évalués à l'aide d'un modèle numérique à deux fluides simplifié (Gupta et al., 2001).

Rigopoulos (2003) a développé une autre méthodologie pour bâtir les différents compartiments. Les résultats d'une simulation CFD avec un maillage relativement fin permettent de découper le réacteur en plusieurs compartiments dans lesquels le mélange est considéré uniforme. La forme de ces compartiments en soi n'est d'aucune importance, par contre les connectivités (flux de matière échangés entre compartiments) sont cruciales. Le concept est clairement résumé par la Figure 2.14. Cette méthode nécessite un maillage suffisamment fin et donc des ressources numériques importantes (Rigopoulos & Jones, 2003).

L'établissement des compartiments est similaire à une approche de zoning automatique. Les différentes zones sont discriminées à l'aide d'une propriété d'intérêt (par exemple la rétention de gaz), enfin il est possible de déterminer les débits échangés entre chaque zone (Bezzo & Macchietto, 2004).

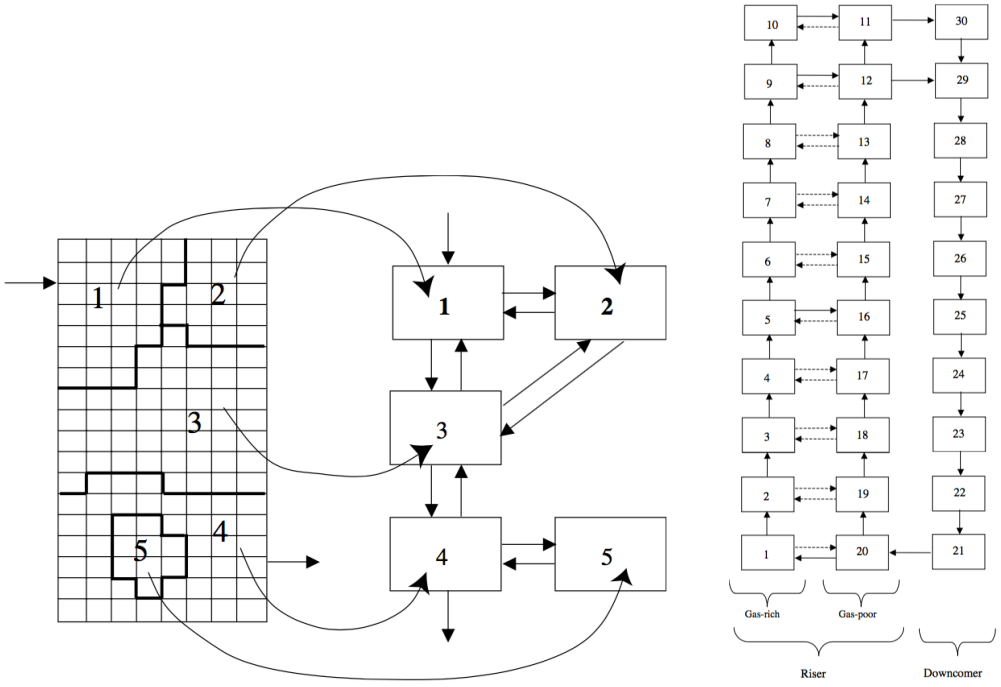


Figure 2.14 – a. Principe d'établissement des compartiments à partir d'une simulation CFD b. Modélisation multi-compartimentale d'après Rigopoulos (Rigopoulos & Jones, 2003).

2.6.3.2 Modèle énergétique

Bashiri a mis au point un modèle multicompartimental pour une cuve remplie d'eau et agitée par une turbine de type Rushton. Deux domaines ont été déterminés, le premier autour du mobile d'agitation, tandis que le reste de la cuve constitue le second domaine dans lequel le fluide recircule. Dans cette nouvelle approche, les frontières des différents compartiments sont déterminées à l'aide du taux de dissipation d'énergie turbulente issus d'une simulation numérique. La répartition de la fraction de volume en fonction du taux de dissipation d'énergie turbulente permet de déterminer la valeur à la frontière des deux domaines de cette propriété. En effet l'enveloppe de cette courbe présente des changements de pente, ce qui permet de déterminer la valeur frontière de façon unique pour un système donné (Figure 2.15). Une comparaison des méthodes standard de mises à l'échelle est réalisée en étudiant leur influence sur les paramètres du modèle multicompartimental. En particulier le ratio des volumes des deux compartiments et le ratio des taux de dissipation d'énergie turbulente moyens de chacun des compartiments (Bashiri et al., 2014).

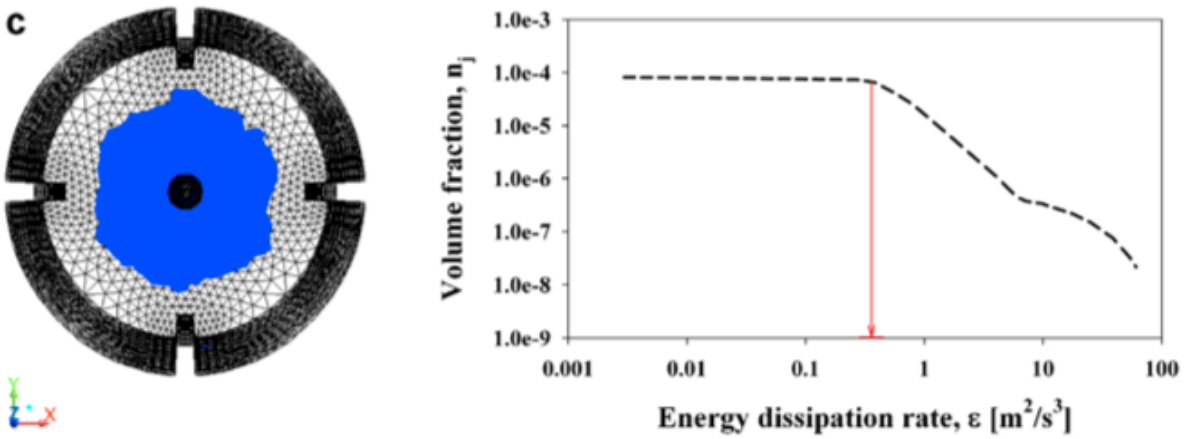


Figure 2.15 – Principe de détermination des deux compartiments d'une cuve agitée (Bashiri et al., 2014).

Dans une autre publication, Bashiri a adapté le précédent modèle à une cuve d'eau agitée dans laquelle de l'air est injecté au niveau de l'agitateur. En tenant compte en plus de la rétention du gaz, cinq zones caractéristiques sont déterminées : une première située autour de l'agitateur, une

seconde proche de la paroi latérale, une troisième située au fond de la cuve en dessous du premier compartiment et enfin les deux derniers dans les espaces restants (Figure 2.16). Avec ce modèle, il est possible de déterminer les coefficients de transfert de masse ($k_L a$) global sur l'ensemble de la cuve et locaux dans chacun des compartiments. La première étape consiste à réaliser une simulation numérique gaz/liquide de la cuve agitée. Cette simulation permet d'obtenir la rétention du gaz et l'énergie turbulente dissipée. Une fois validée par des données expérimentales et les frontières des différents compartiments déterminées, la simulation CFD donne accès à la rétention du gaz dans chacun des compartiments. Ensuite, le diamètre moyen des bulles dans chaque compartiment est calculé à l'aide de différentes équations de la littérature. Finalement, l'aire interfaciale moyenne est déterminée dans chacune des zones ainsi que le coefficient de transfert de masse k_L. Le produit des deux propriétés donne accès au $k_L a$ dans chaque compartiment. La règle de mise à l'échelle basée sur la conservation du ratio de la puissance consommée sur le volume de liquide est alors étudiée, en particulier son effet sur la contribution de chaque compartiment au transfert de masse global (Bashiri et al., 2016).

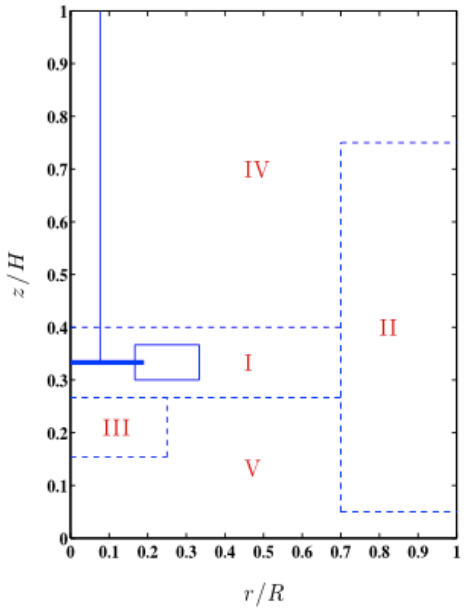


Figure 2.16 – Compartiments caractéristiques dans une cuve agitée par une turbine Rushton (Bashiri et al., 2016).

2.7 Synthèse de la revue de littérature et identification des problèmes

Bien que la conception des colonnes à bulles soit relativement sommaire, le régime d'écoulement, le patron d'écoulement ainsi que les champs de vitesse locaux et de rétention de gaz sont difficiles à prévoir. En conséquence, les phénomènes de transfert de matière sont eux-aussi difficilement prédictibles bien que de nombreux modèles et corrélations ont été mis au point. C'est pourquoi, la modélisation numérique apparaît être un outil de choix pour le calcul de propriétés locales d'écoulement au sein du réacteur rendue possible par le calcul scientifique de pointe.

Pour pallier les limites des techniques de mesures expérimentales de propriétés locales, la modélisation numérique apparaît comme une alternative intéressante. Néanmoins, les capacités de calcul demeurent fortement limitées pour la simulation numérique directe des réacteurs de taille laboratoire et, *a fortiori*, pour les réacteurs industriels.

Afin de se soustraire de cette problématique, le présent projet propose de combiner différents modèles phénoménologiques à la mécanique des fluides numériques diphasique. Plusieurs tentatives de développement d'approches compartimentales ont déjà été menées jusqu'à présent. Cependant leur construction repose sur des considérations hydrodynamiques de l'écoulement et l'énergie dissipée au sein du système n'a pas été considérée.

L'objectif de ce projet est de développer une nouvelle méthodologie utilisant une approche compartimentale énergétique afin de mieux comprendre les phénomènes complexes dans ce réacteur. L'intérêt de cette approche est de pouvoir déterminer la contribution relative des différentes zones du réacteur au transfert de matière.

La méthodologie retenue dans la suite est celle de Bashiri et al. développée initialement pour les cuves agitées (Bashiri et al., 2016). Cette approche qui attache davantage d'importance à l'énergie dissipée dans le système plutôt qu'à l'hydrodynamique semble plus adéquate dans le cadre de réactions limitées par le transfert de matière. En effet, dans ce modèle, le diamètre moyen local de bulle et le coefficient de transfert de matière côté liquide sont calculés dans chaque compartiment. Ces deux paramètres dictent le transfert de matière.

Dans le détail, les objectifs spécifiques sont les suivants :

- établir un modèle de simulation de colonnes à bulles à l'aide du logiciel de simulation numérique libre de droits OpenFOAM (*Open Field Operation And Manipulation*), pour reproduire l'écoulement au sein d'une colonne à bulle en régime homogène à l'aide d'un modèle à deux fluides.
- identifier les différentes zones du réacteur à partir de la dissipation d'énergie turbulente,
- déterminer les paramètres hydrodynamiques et de transfert de matière locaux dans chacun des compartiments,
- valider et améliorer le modèle à partir de résultats expérimentaux de la littérature et des données fournies par d'autres chercheurs du laboratoire PEARL (*Process Engineering Advanced Research Lab*).

Au contraire des cuves agitées, l'énergie dissipée au sein du réacteur est uniquement due à l'ascension des bulles pour les colonnes à bulles qui ne disposent pas d'agitateur mécanique. Ce projet doit répondre à l'opportunité d'utiliser une même méthodologie pour ces deux réacteurs.

Par ailleurs l'écoulement au sein des colonnes à bulles n'étant pas forcé par un agitateur mécanique, il est davantage soumis aux oscillations du panache de bulles autour de l'axe central de la colonne à bulle. Il convient de moyenner dans le temps afin de retrouver l'écoulement moyen classique. Ce point, en apparence anecdotique, a de lourdes conséquences sur la simulation numérique, tant au point de vue du temps de calcul que du raffinement du maillage.

CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE

Ce chapitre s'attache à décrire la méthodologie utilisée pour bâtir un modèle compartimental pour les colonnes à bulle. Le principe de ce modèle est d'abord décrit puis les étapes de prétraitement de la simulation numérique sont détaillées, telles que la construction du maillage, les conditions frontières et initiales et les solveurs choisis. Les étapes de post-traitement des données, une fois la simulation réalisée, sont également mentionnées.

3.1 Mise au point du modèle

La méthodologie utilisée dans ce projet s'inspire de celle développée par Bashiri et de son modèle compartimental pour les cuves dotées de chicanes et agitées par une turbine Rushton (Bashiri et al., 2016; Bashiri et al., 2014). La Figure 3.2 présente les différentes étapes de construction du modèle qui sont détaillées dans la suite.

La première étape consiste à réaliser la simulation numérique de l'écoulement diphasique. Le modèle retenu pour la simulation numérique ne fait intervenir qu'une seule taille de bulle constante au cours de l'ascension. Par conséquent, les phénomènes de rupture et de coalescence de bulles ne sont pas pris en compte. La taille de bulle a un impact très important sur la simulation d'un écoulement gaz-liquide, en particulier sur la rétention de gaz au sein de la colonne. Il convient alors de choisir cette taille de bulle adéquatement. Dans la suite, la taille de bulle est choisie à partir des données expérimentales de Esmaeili reproduites à la Figure 3.1 (Esmaeili, Guy, & Chaouki, 2015). Dans ces expériences, deux tailles moyennes de bulles de gaz sont mesurées à deux endroits, au milieu et dans le haut de la colonne. Il est observé que la taille de bulle augmente lors de l'ascension de la phase gazeuse au sein de la colonne. Par conséquent, une taille de bulle moyenne calculée entre les deux droites de régression présentées à la Figure 3.1 est déterminée. C'est ce diamètre de bulle qui est utilisé pour mener la simulation numérique. Il pourrait aussi être envisagé d'utiliser une corrélation de la littérature afin d'estimer le diamètre de bulle à utiliser dans la simulation tout en gardant le sens physique de cette propriété.

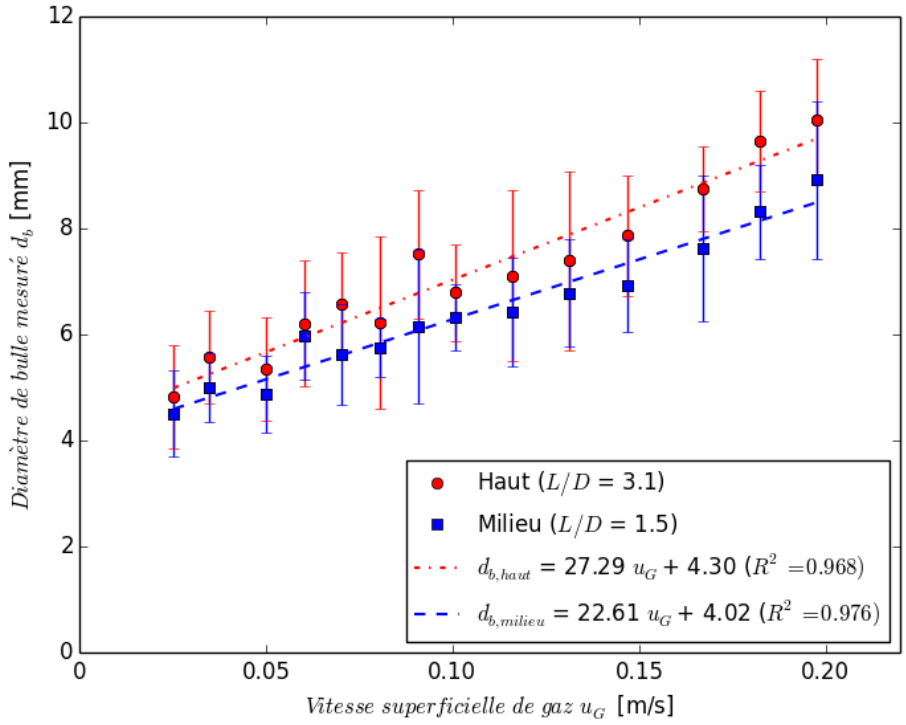
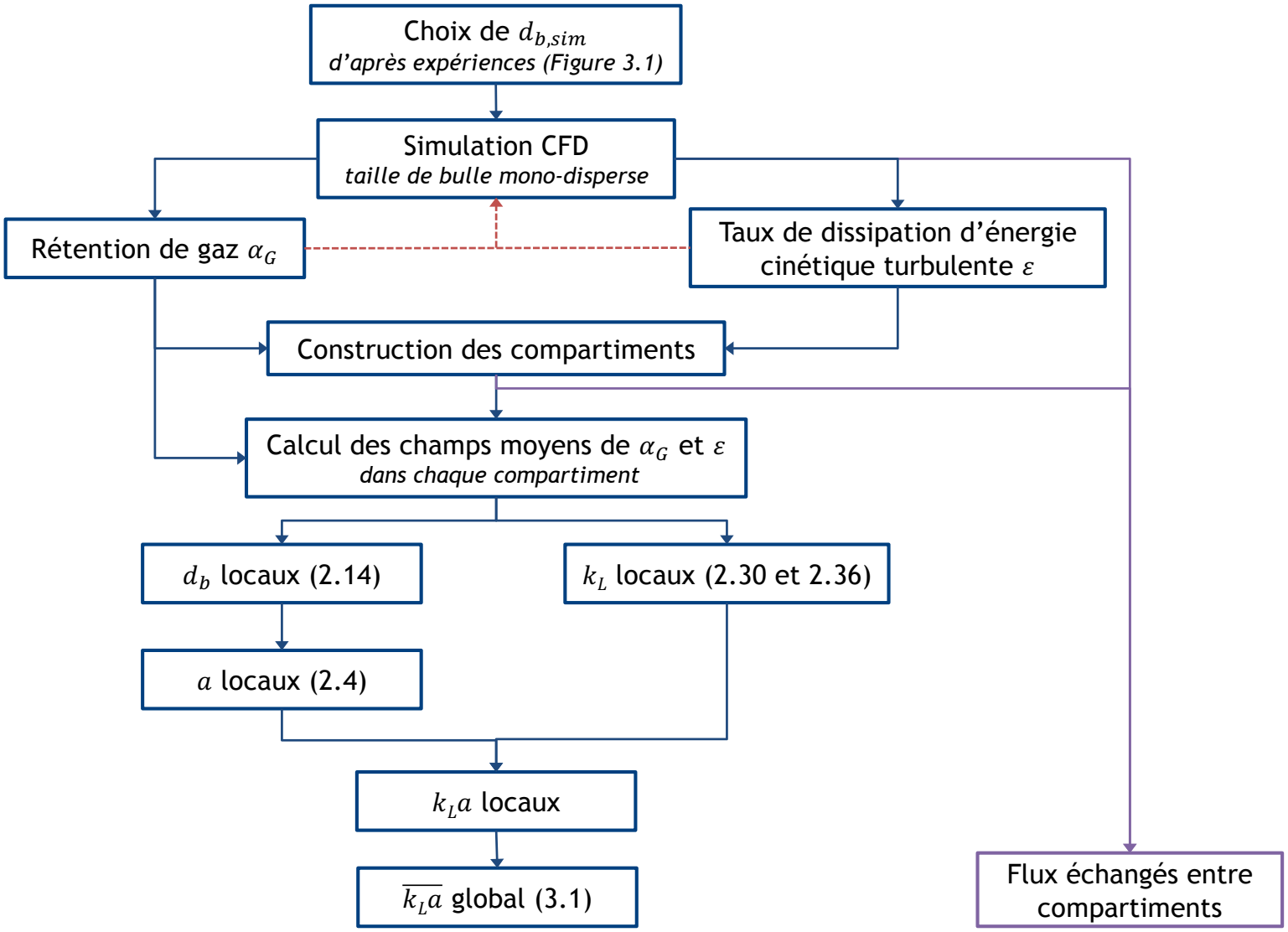


Figure 3.1 – Taille de bulle moyenne mesurée, à deux positions, par sonde à fibre optique en fonction de la vitesse superficielle de gaz (Esmaeili et al., 2015).

Dans la seconde étape, les résultats issus de la simulation numérique sont analysés afin de valider ou non ces derniers. Le cas échéant, le modèle numérique est revu, par exemple en préférant d'autres modèles pour les forces interfaciales. Plus précisément, deux propriétés de l'écoulement sont analysées et comparées aux données expérimentales de Esmaeili : la rétention de gaz (α_g) et la vitesse d'ascension des bulles (u_{air}) (Esmaeili et al., 2015).

La troisième étape consiste à construire les différents compartiments d'après le taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente (ε). Les frontières de ces compartiments sont identifiées par un changement drastique de cette propriété.

Figure 3.2 – Algorithme pour bâtir les différents compartiments et évaluer le transfert de matière local.



La quatrième étape consiste à déterminer dans chacun des compartiments déterminés précédemment, les valeurs locales de rétention de gaz et de dissipation d'énergie cinétique turbulente. Ces propriétés moyennes locales dans chaque compartiment permettent de calculer le diamètre moyen local de bulle avec l'équation (2.14) et le coefficient de transfert de matière côté liquide à l'aide des équations (2.30) et (2.36). Le diamètre de bulle et la rétention de gaz permettent d'obtenir l'aire interfaciale (équation (2.4)).

Finalement, dans la dernière étape, les coefficients de transfert de matière locaux dans chaque compartiment $(k_L a)_j$ de volume V_j et global dans l'ensemble du réacteur $\overline{k_L a}$ sont calculés au moyen d'une moyenne volumique :

$$\overline{k_L a} = \frac{\sum_{j=I}^{IV} V_j (k_L a)_j}{\sum_{j=I}^{IV} V_j} \tag{3.1}$$

3.2 Dispositif expérimental

Les données expérimentales utilisées dans ce mémoire sont issues des travaux de Esmaeili et al. (2015). Le dispositif expérimental consiste en une colonne à bulle en Plexiglas mesurant 2,7 m de haut et 0,292 m de diamètre interne. Le gaz est injecté par le dessous à travers une plaque perforée constituée de 94 trous de 1 mm de diamètre permettant une distribution uniforme du gaz (Figure 3.3). L'alimentation du gaz est réalisée à l'aide d'un compresseur et le débit est régulé à l'aide d'une vanne et est mesuré grâce à un rotamètre. La colonne est initialement remplie d'eau à une hauteur statique de 1,1 m (L/D = 3,8).

Deux séries de données sont mesurées, des données globales sur l'ensemble de la colonne et des données locales dans deux zones d'intérêts appelées par la suite milieu et haut. Comme mesure globale, la perte de charge totale est mesurée entre 0,07 et 1,04 m. Des pertes de charge locales sont, quant-à-elles mesurées dans les deux zones d'intérêt : entre 0,36 et 0,66 m (milieu) et entre 0,79 et 1,09 m (haut). Trois capteurs de pression à réponse rapide (inférieure à 1 ms) sont utilisés afin de déterminer les fluctuations de pression, le premier au bas de la colonne à 0,035 m, le deuxième dans la zone médiane à 0,54 m et le dernier dans la zone haute à 0,955 m. Deux capteurs par fibre optique permettent de déterminer les profils radiaux de rétention de gaz et de

taille de bulle à 0,45 m (L/D = 1,5) et 0,91 m (L/D = 3,1). De plus amples informations sont disponibles dans les articles cités (Esmaeili et al., 2015).

Les propriétés des phases liquide et gazeuse sont rapportées dans le Tableau 3.1.

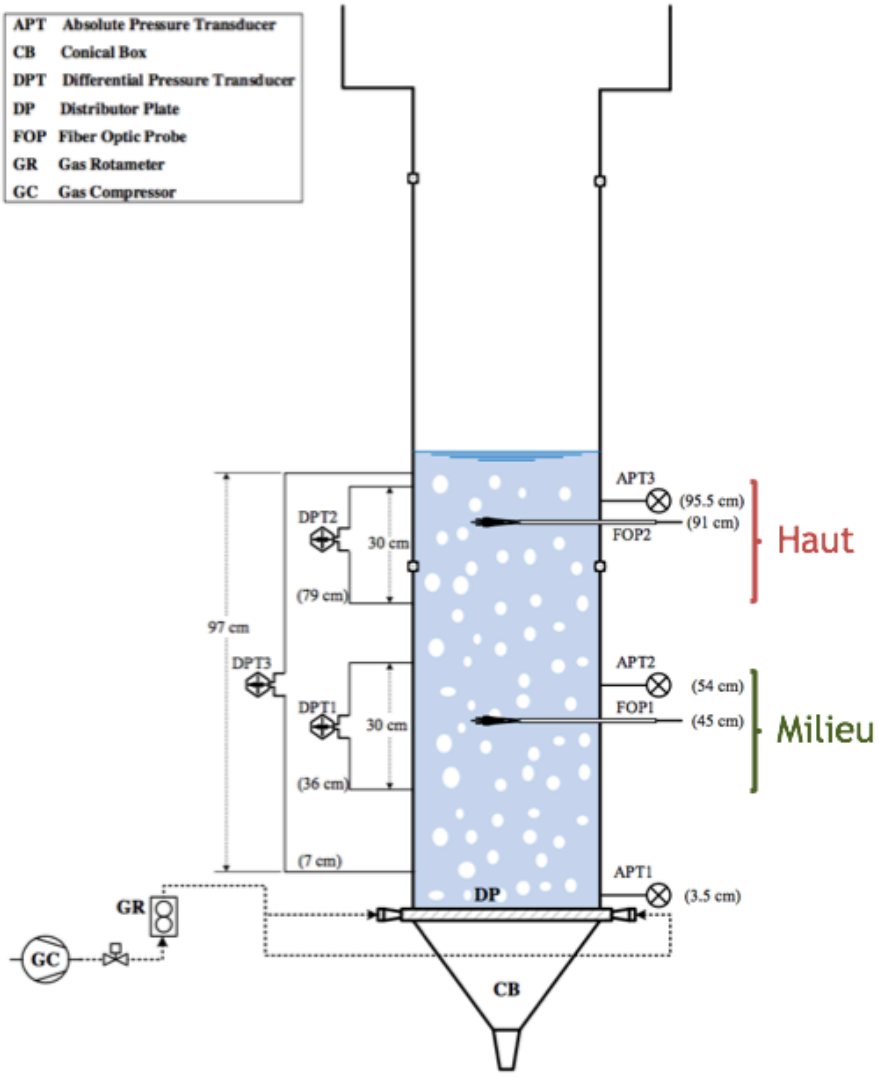


Figure 3.3 – Schéma de la colonne à bulles (Esmaeili et al., 2015).

Tableau 3.1 – Propriétés des phases continue et dispersée.

	Phase continue : eau	**Phase dispersée : air**
Viscosité [Pa.s]	$1{,}0\ 10^{-3}$	$1{,}79\ 10^{-5}$
Masse volumique [kg.m^{-3}]	997	1,22

3.3 Simulation numérique

Avant de pouvoir lancer une simulation numérique, il convient de réaliser plusieurs étapes parmi lesquelles la construction de la géométrie du système et de sa discrétisation spatiale (maillage), le choix de conditions aux frontières adéquates ainsi que de conditions initiales.

Ces différentes étapes et la simulation numérique sont réalisées à l'aide de la boîte à outils libre de droits OpenFOAM 3.0.1. La Figure 3.4 présente l'ensemble des répertoires et fichiers nécessaires au bon fonctionnement de la simulation et qui sont détaillés par la suite.

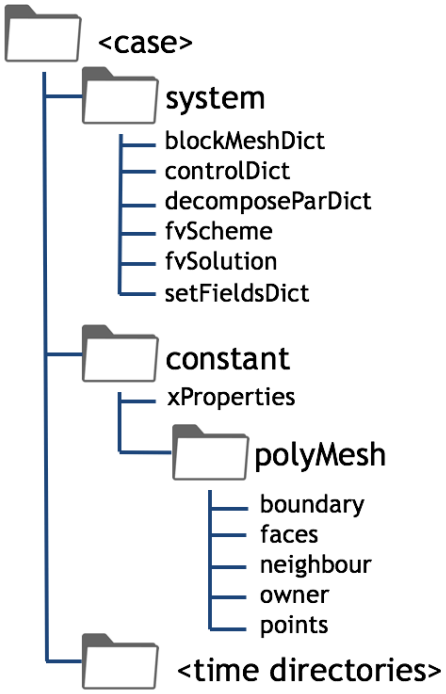


Figure 3.4 – Arborescence des différents fichiers nécessaires pour lancer une simulation avec OpenFOAM version 3.0.1.

3.3.1 Construction de la géométrie et discrétisation spatiale

La géométrie décrite précédemment est générée avec l'utilitaire `blockMesh` disponible dans OpenFOAM. Il permet de construire des géométries simples par fusion de blocs à partir d'un fichier `blockMeshDict` situé dans le répertoire `system`. La géométrie et le maillage sont par la suite générés et le répertoire `constant/polyMesh` contenant toutes les informations sur la

géométrie et le maillage est créé. Le cylindre formant la colonne est construit en fusionnant un bloc central à base carrée avec d'autres blocs latéraux dont les faces externes forment la base circulaire. La qualité du maillage a pu être améliorée en adoptant des côtés courbés pour la base centrale (Figure 3.5 *b*). Cet utilitaire permet également de discrétiser spatialement la géométrie à l'aide d'hexaèdres. Les hexaèdres permettent dans certains cas une meilleure précision que les tétraèdres car la diffusion numérique est plus faible quand l'écoulement est colinéaire aux vecteurs normaux aux surfaces. Les tétraèdres nécessitent également plus de volumes pour une taille de maille donnée. Par ailleurs, les maillages constitués de tétraèdres peuvent être plus pauvres à proximité des parois (Ferziger, 2002). Il s'agit d'un maillage structuré présenté à la Figure 3.5. La hauteur retenue pour la géométrie est de 1,50 m bien que la hauteur statique de liquide ne soit que de 1,1 m, afin de permettre l'expansion du liquide lors de l'introduction du gaz.

Tableau 3.2 – Propriétés des maillages utilisés.

	Maillage #1	**Maillage #2**	**Maillage #3**	**Maillage #4**
Nombre d'hexaèdres [-]	47 970	100 800	155 386	305 532
Non-orthogonalité [°]	Max : 22,62 Moy : 4,36	Max : 25,20 Moy : 4,56	Max : 26,36 Moy : 4,66	Max : 27,94 Moy : 4,88
Asymétrie maximale [-]	0,714	0,820	0,821	0,724
Rapport d'élongation maximum [-]	9,30	14,12	16,78	19,66
Aire des faces[m^2]	Min : 8,75e-05 Max : 1,46e-03	Min : 5,29e-05 Max : 1,10e-03	Min : 3,82e-05 Max : 9,39e-04	Min : 2,54e-5 Max : 7,08e-4
Volume [m^3]	Min : 1,20e-06 Max : 1,27e-05	Min : 5,29e-07 Max : 6,88e-06	Min : 3,48e-07 Max : 5,06e-06	Min : 1,65e-7 Max : 3,15e-6

L'utilitaire `checkMesh` permet d'évaluer les propriétés du maillage, en particulier trois propriétés d'importance que sont (Ferziger, 2002) :

- l'orthogonalité caractérisée par l'angle entre le vecteur reliant les centres de deux volumes côte à côte et la normale à la face qui sépare les deux volumes (Figure 3.6 *a*),
- l'asymétrie caractérisée par la distance séparant le centre d'une face et l'intersection avec la face du vecteur liant les centres de deux volumes côte à côte (Figure 3.6 *b*),

- le rapport d'élongation qui caractérise l'élongation ou l'uniformité des volumes de contrôle (Figure 3.6 *c*).

Le non-respect de ces propriétés peut avoir des conséquences préjudiciables sur la solution déterminée ou ralentir l'obtention de cette solution. À titre d'exemple, un maillage de mauvaise qualité peut engendre de la diffusion d'origine purement numérique et qui n'a aucune signification physique.

Dans les quatre maillages utilisés par la suite, la non-orthogonalité est plus marquée aux coins du bloc interne sans pour autant être rédhibitoire. Ces quatre maillages, de 50k, 100k, 150k et 300k volumes, présentent de bonnes propriétés qui sont résumées dans le Tableau 3.2. Le rapport d'élongation maximum est important compte tenu des volumes plus grossiers situés dans la zone au-dessus de l'interface jusqu'à la sortie, cependant ce rapport est beaucoup plus faible ailleurs.

La plaque perforée par laquelle entre le gaz est assimilée à un disque dont le diamètre équivaut à 77% du diamètre interne de la colonne (Figure 3.7). Cette zone correspond au disque formé par la distribution des orifices sur la plaque perforée du dispositif expérimental. Cette simplification peut se justifier afin de minimiser le nombre de volumes. En effet, les orifices du dispositif expérimental mesurant 1 mm, il faudrait raffiner drastiquement le maillage dans cette zone en particulier, ce qui engendrerait donc une augmentation très importante du temps de calcul. Par ailleurs, les plaques perforées permettent une distribution homogène du gaz dans la colonne. C'est l'hypothèse utilisée afin de fixer la condition de vitesse uniforme à l'entrée du domaine. D'avantages de détails sont fournis dans la section 3.3.2. Finalement, une description très fine de l'hydrodynamique n'est pas requise dans le cadre de ce travail.

Le maillage est raffiné à proximité des parois. La densité des cellules au haut de la colonne est progressivement diminuée pour minimiser le temps de calcul dans cette zone située au-dessus de l'interface et qui n'est d'aucun intérêt dans le post-traitement des données (Figure 3.5).

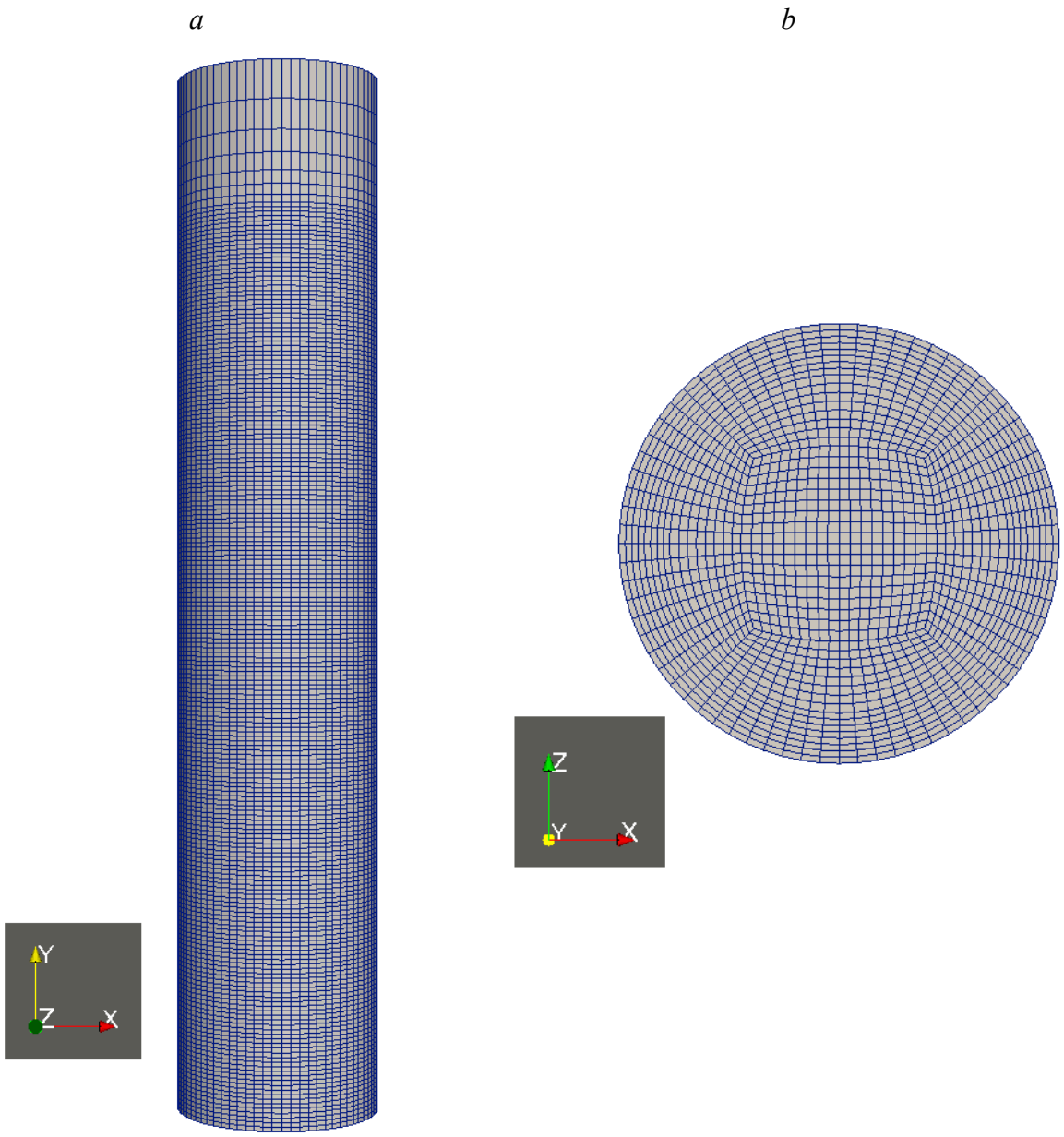


Figure 3.5 – Maillage vu du côté (*a*) et vu par le bas (*b*) (maillage#4 300k).

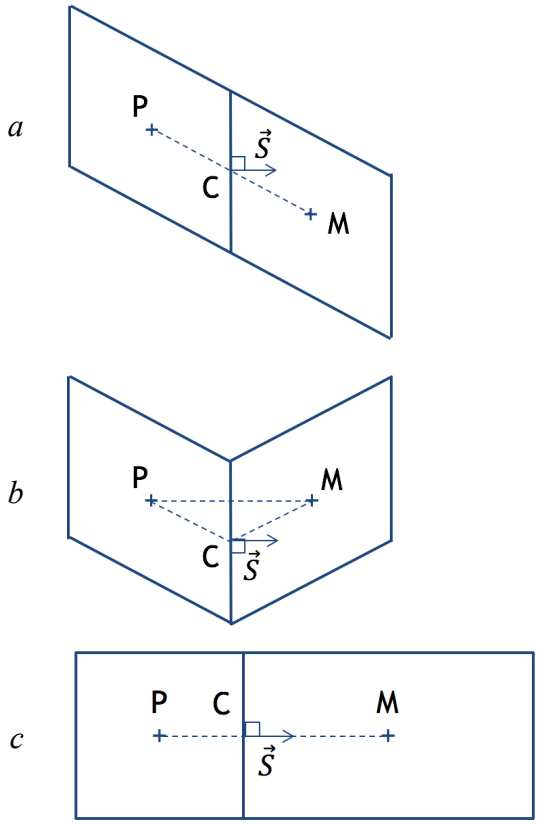


Figure 3.6 – Exemple en deux dimensions de défauts de maillage : *a*. non-orthogonalité, *b*. asymétrie, *c*. élongation. P et M sont les centres de deux volumes voisins, C le centre de la face qui les relie.

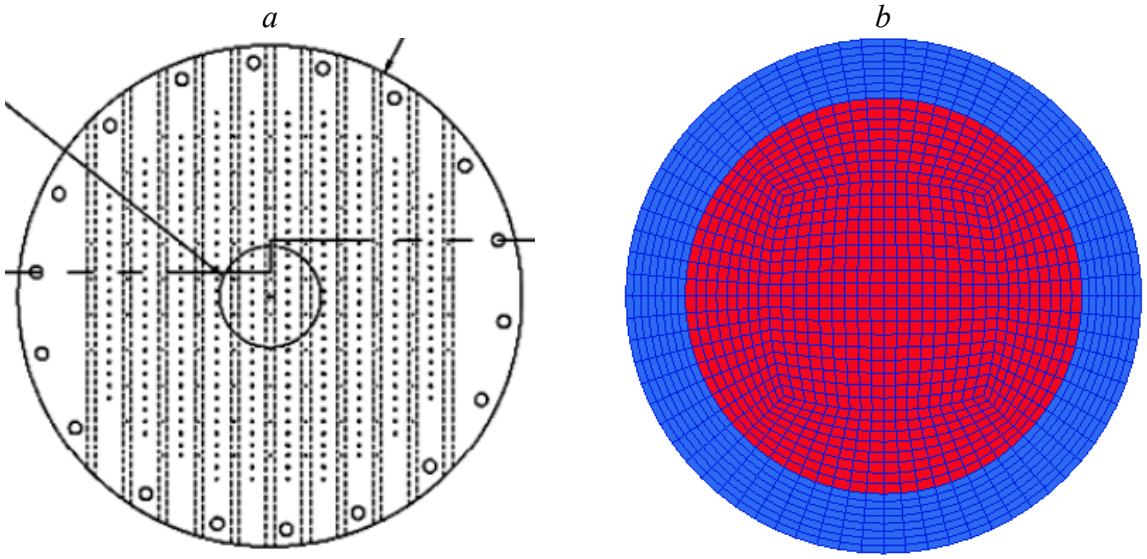


Figure 3.7 – *a*. Géométrie de la plaque perforée (Esmaeili et al., 2015), *b*. Maillage de l'entrée, entrée du gaz en rouge, murs en bleu.

3.3.2 Conditions frontières et conditions initiales

Trois types de conditions frontières doivent être imposées dans le domaine : à l'entrée, à la sortie et aux parois. Les conditions frontières sont spécifiées dans les fichiers du répertoire `0` dans lequel se trouve l'ensemble des champs au temps initial nécessaire à la simulation. Dans ces différents fichiers (`alpha.air`, `U.air`, `epsilon.air`, `p`...), un premier dictionnaire `internalField` permet de fixer les valeurs initiales des champs dans l'ensemble du domaine et un second dictionnaire `boundaryField` permet de spécifier les conditions aux frontières.

À l'entrée, une vitesse uniforme pour la phase gazeuse est imposée tandis que la vitesse de la phase liquide est nulle, la pression absolue est fixée à 10^5 Pa et la fraction de gaz est fixée à 1 (Peeters, 2016).

À la sortie du domaine, située bien au-dessus de l'interface liquide-gaz, une condition de dégazage est utilisée, la pression est fixée à la pression hydrostatique. Le débit de sortie est composé à 100% d'air (Peeters, 2016).

Aux murs, une condition de non glissement est fixée (vitesses nulles) tandis que le gradient de pression est calculé en tenant compte de la pression hydrostatique et des forces volumiques. La fraction de gaz est ajustée pour que son gradient soit nul. Finalement, pour la viscosité turbulente, une fonction pour modéliser la couche limite est utilisée (Peeters, 2016) :

$$\nu_t = \nu \left(\frac{k y^+}{\ln(E y^+)} - 1 \right) \tag{3.2}$$

$$y^+ = C_\mu^{1/4} \frac{y\sqrt{k}}{\nu} \tag{3.3}$$

où y^+ est la couche limite à proximité du mur, k l'énergie cinétique turbulente, ν et ν_t sont la viscosité cinématique et la viscosité cinématique turbulente, E et C_μ deux constantes. L'ensemble de ces variables est utilisé dans le modèle numérique détaillé à la section 3.4. L'ensemble des conditions frontières est résumé dans le Tableau 3.3.

Les différents champs sont initialement fixés uniformes dans l'ensemble de la colonne, comme indiqué au Tableau 3.3. La colonne est initialement remplie par le liquide sur une hauteur de 1,1 m, tandis que le gaz occupe la partie supérieure. Cette condition initiale peut être obtenue par

l'intermédiaire de l'utilitaire `setFields` qui permet d'attribuer à un sous-domaine une valeur, tandis qu'une autre valeur est attribuée au reste du domaine, pour un champ donné. Le fichier `setFieldsDict` permet de spécifier tout cela. C'est ainsi que la fraction de gaz est initialement ajustée.

3.3.3 Parallélisation

Afin d'accélérer le calcul, il convient de paralléliser celui-ci. OpenFOAM dispose d'un utilitaire dédié à cette tâche : `decomposePar`. Il requiert un fichier `system/decomposeParDict` dans lequel est spécifié la méthode de décomposition du domaine `scotch`. Cette méthode permet de réaliser automatiquement la décomposition tout en minimisant le nombre de frontières entre processeurs. Le nombre de sous-domaines est choisi en fonction de la taille du maillage : 24, 36 ou 48. Il s'agit de multiples de 12 car le serveur de calcul Briarée de Calcul Québec, sur lequel sont soumises les simulations, dispose de nœuds composés de 12 cœurs. Pour le plus gros maillage de 300k volumes, le serveur de calcul Graham de Calcul Canada a été utilisé avec 64 cœurs.

3.4 Modèle numérique retenu

Les simulations ont été réalisées en deux étapes. Dans une première étape, une solution est obtenue après l'établissement du régime permanent (fin de l'expansion du milieu) à 100s de temps physique avec un maillage relativement grossier (maillage #1). La solution obtenue est alors exportée vers un maillage plus raffiné sur lequel le calcul se poursuit à l'aide de l'utilitaire `mapFields`. En particulier le calcul des champs moyens débute à partir de 100s sur le maillage plus raffiné.

Tableau 3.3 – Résumé des conditions frontières et conditions initiales utilisées et syntaxe correspondante dans OpenFOAM.

	Entrée	**Murs**	**Sortie**	**Initial**
Vitesse	`fixedValue` `(0 u_air 0)` air `(0 0 0)` eau	`fixedValue (0 0 0)` Valeur nulle.	`pressureInletOutletVelocity` Condition mixte en fonction du champ de pression : - Débit entrant (`fixedValue`) - Débit sortant (`zeroGradient`)	`uniform` `(0 0 0)` air `(0 0 0)` eau
Pression	`fixedFluxPressure` Pression fixée tenant compte de la pression hydrostatique.	`fixedFluxPressure` Dérivée partielle de la pression constante pour prendre en compte la pression hydrostatique.	`prghPressure` Pression fixée à la pression hydrostatique.	`uniform` 10^5 [Pa]
Fraction de gaz	`fixedValue` Valeur fixée à 1.	`zeroGradient` Gradient nul.	`inletOutlet` Condition mixte en fonction du champ de pression : - Débit entrant (`fixedValue`) - Débit sortant (`zeroGradient`)	`nonuniform` `0` pour $h < 1{,}1$ m `1` pour $h > 1{,}1$ m
Viscosité turbulente	`calculated`	`nutkWallFunction` Voir équations (3.2) et (3.3).	`calculated`	`uniform` 10^{-8} [$m^2.s^{-1}$]

3.4.1 Description du solveur `twoPhaseEulerFoam`

La résolution de cet écoulement liquide-gaz est réalisée avec la boîte à outils libre de droits OpenFOAM version 3.0.1 qui utilise la méthode des volumes finis (FVM). Parmi les différents solveurs disponibles permettant de traiter des problèmes multiphasiques, le solveur `twoPhaseEulerFoam` est utilisé afin de simuler l'écoulement diphasique compressible. Il est en effet préconisé pour un système à deux phases compressibles avec l'une dispersée dans l'autre. L'exemple de bulles de gaz dans une phase liquide est explicitement fourni dans la description du solveur. Bien que l'on ne s'y intéresse pas dans le cadre de ce projet, ce solveur résout également le transfert de chaleur (Greenshields, 2015). Ce solveur a été initialement construit conformément aux travaux de Rusche (Rusche, 2003).

Les caractéristiques de ce solveur sont (Holzinger, 2017) :

- les différentes phases sont définies par défaut comme compressibles, cependant il est possible de spécifier l'incompressibilité d'une des phases. Ceci nécessite la résolution de l'équation d'énergie (cette option ne peut pas être désactivée, même si les phases sont traitées comme incompressibles toutes les deux).
- le transfert de chaleur est calculé.
- de nombreux modèles de turbulence sont disponibles (RANS, LES).
- plusieurs modèles pour les écoulements de bulles de gaz dans du liquide sont disponibles, en particulier pour les forces interfaciales.

3.4.2 Équations fondamentales et constitutives

Les équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement dans le cadre d'une approche de turbulence RANS, sont pour chaque phase i :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_i \alpha_i) + \nabla \cdot (\rho_i \alpha_i \overline{\boldsymbol{u}}_i) = 0 \tag{3.4}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_i \alpha_i \overline{\boldsymbol{u}}_i) + \nabla \cdot (\rho_i \alpha_i \overline{\boldsymbol{u}}_i \overline{\boldsymbol{u}}_i) = -\alpha_i \nabla p + \nabla \cdot \left(\alpha_i \overline{\boldsymbol{\tau}}_{eff,i}\right) + \rho_i \alpha_i \boldsymbol{g} \pm \boldsymbol{F}_i \tag{3.5}$$

Dans ces équations, $\overline{\boldsymbol{u}}_i$ est la vitesse moyenne et p la pression partagée par les deux phases. Les termes de gauche à droite de l'équation de conservation de la quantité de mouvement sont la variation temporelle et le transport convectif de la quantité de mouvement, le gradient de pression, le tenseur de contrainte de Reynolds $\overline{\boldsymbol{\tau}}_{eff,i}$ relatif au transport par diffusion, la force de gravité et la quantité de mouvement échangée entre les deux phases par l'intermédiaire des forces interfaciales.

Les fractions volumiques des deux phases obéissent à la relation :

$$\alpha_L + \alpha_G = 1 \tag{3.6}$$

Le tenseur de contrainte de Reynolds s'écrit d'après l'hypothèse de Boussinesq :

$$\overline{\boldsymbol{\tau}}_{eff,i} = \mu_{eff,i}\left(\nabla\overline{\boldsymbol{u}}_i + \nabla\overline{\boldsymbol{u}}_i^{\boldsymbol{T}}\right) - \frac{2}{3}\left(\rho_i k_i + \mu_{eff,i}(\nabla\cdot\overline{\boldsymbol{u}}_i)\right)\overline{\overline{\boldsymbol{I}}} \tag{3.7}$$

dans lequel k_i est l'énergie cinétique turbulente et $\mu_{eff,i}$ la viscosité dynamique effective :

$$\mu_{eff,i} = \mu_i + \mu_i^t \tag{3.8}$$

μ_i^t est la viscosité turbulente de la phase i, elle est donnée par :

$$\mu_i^t = C_\mu \rho_i \frac{k_i^2}{\varepsilon_i} \tag{3.9}$$

C_μ est une constante, k_i et ε_i sont respectivement l'énergie cinétique turbulente et le taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente.

$$k_i = \frac{3}{2}(I|u|)^2 \tag{3.10}$$

$$\varepsilon_i = C_\mu^{3/4} k_i^{3/2} \tag{3.11}$$

I est l'intensité de la turbulence. k_i et ε_i sont obtenues par le modèle k-ε pour le mélange, développé par Behzadi et al. (Behzadi, Issa, & Rusche, 2004). Ce modèle est déjà disponible dans OpenFOAM. Il fait intervenir des grandeurs de mélanges (indicées m) définies plus loin.

La densité du mélange a été modifiée par rapport au modèle original en considérant une densité effective du gaz au lieu de la densité réelle de la phase gazeuse (Lahey, 2005) :

$$\rho_m = \alpha_L \rho_L + \alpha_G \rho_{eff,G} \tag{3.12}$$

$$\rho_{eff,G} = \rho_G + C_{VM} \rho_L \tag{3.13}$$

le paramètre C_{VM} est le coefficient de masse virtuelle défini avec la force interfaciale de masse virtuelle.

Les taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente et l'énergie cinétique turbulente sont reliés par les relations suivantes, dans lesquelles le coefficient de réponse à la turbulente C_t est défini plus bas :

$$\varepsilon_G = C_t^2 \varepsilon_L \tag{3.14}$$

$$k_G = C_t^2 k_L \tag{3.15}$$

L'énergie cinétique turbulente de mélange k_m est :

$$k_m = \left(\bar{\alpha}_L \frac{\rho_L}{\rho_m} + \bar{\alpha}_G \frac{\rho_G}{\rho_m} C_t^2 \right) k_L \tag{3.16}$$

Le taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente de mélange ε_m s'écrit comme :

$$\varepsilon_m = \left(\bar{\alpha}_L \frac{\rho_L}{\rho_m} + \bar{\alpha}_G \frac{\rho_G}{\rho_m} C_t^2 \right) \varepsilon_L \tag{3.17}$$

La viscosité de mélange est définie par :

$$\mu_m^t = \frac{\bar{\alpha}_L \mu_L^t + \bar{\alpha}_G \mu_G^t C_t^2}{\bar{\alpha}_L \rho_L + \bar{\alpha}_G \rho_{eff,G} C_t^2} \rho_m \tag{3.18}$$

Enfin, la vitesse de mélange est :

$$\overline{\boldsymbol{u}}_m = \frac{\bar{\alpha}_L \rho_L \overline{\boldsymbol{u}}_L + \bar{\alpha}_G \rho_{eff,G} \overline{\boldsymbol{u}}_G C_t^2}{\bar{\alpha}_L \rho_L + \bar{\alpha}_G \rho_{eff,G} C_t^2} \tag{3.19}$$

Le coefficient de réponse à la turbulence C_t est calculé d'après Issa and Hill (Hill, Wang, Gosman, & Issa, 1994; Issa, 1992) par la relation :

$$C_t(\alpha_G) = 1 + (C_{t0} - 1)e^{-f(\alpha_G)} \tag{3.20}$$

dans lequel C_t est égal à C_{t0} en absence de gaz, où :

$$C_{t0} = C_t(\alpha_G = 0) = \frac{3 + \beta}{1 + \beta + 2\rho_G/\rho_L} \tag{3.21}$$

La relation (3.21) fait intervenir β qui est un paramètre du modèle calculé par :

$$\beta = \frac{2A_d L_e^2}{\rho_L \nu_L Re_t} \tag{3.22}$$

A_d est un coefficient relatif à la traînée, L_e la longueur caractéristique d'un vortex, Re_t le nombre de Reynolds turbulent et U_c' la vitesse caractéristique :

$$A_d = \frac{3\alpha_G \rho_L C_D}{4d_b} \tag{3.23}$$

$$L_e = C_\mu \frac{k_L^{3/2}}{\varepsilon_L} \tag{3.24}$$

$$Re_t = \frac{U_L' L_e}{\nu_L} \tag{3.25}$$

$$U_L' = \sqrt{\frac{2k_L}{3}} \tag{3.26}$$

Finalement, le terme $f(\alpha_G)$ est fonction de la concentration de phase dispersée :

$$f(\alpha_G) = 180\alpha_G - 4{,}71 \cdot 10^3 \alpha_G^2 + 4{,}26 \cdot 10^4 \alpha_G^3 \tag{3.27}$$

Les équations de conservation de l'énergie cinétique turbulente de mélange (k_m) et la dissipation d'énergie cinétique turbulente de mélange (ε_m) sont :

$$\frac{\partial(\rho_m k_m)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_m \overline{\boldsymbol{u}}_m k_m) = \nabla \cdot \frac{\mu_m^t}{\sigma_k} \nabla k_m + P_k^m - \rho_m \varepsilon_m + S_k^m \tag{3.28}$$

$$\frac{\partial(\rho_m \varepsilon_m)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_m \overline{\boldsymbol{u}}_m \varepsilon_m) = \nabla \cdot \frac{\mu_m^t}{\sigma_\varepsilon} \nabla \varepsilon_m + \frac{\varepsilon_m}{k_m} (C_{\varepsilon 1} P_k^m - C_{\varepsilon 2} \rho_m \varepsilon_m) + C_{\varepsilon 3} \frac{\varepsilon_m}{k_m} S_k^m \tag{3.29}$$

où P_k^m représente la production d'énergie cinétique turbulente de mélange. $C_{\varepsilon 1}$, $C_{\varepsilon 2}$ et $C_{\varepsilon 3}$ sont trois constantes.

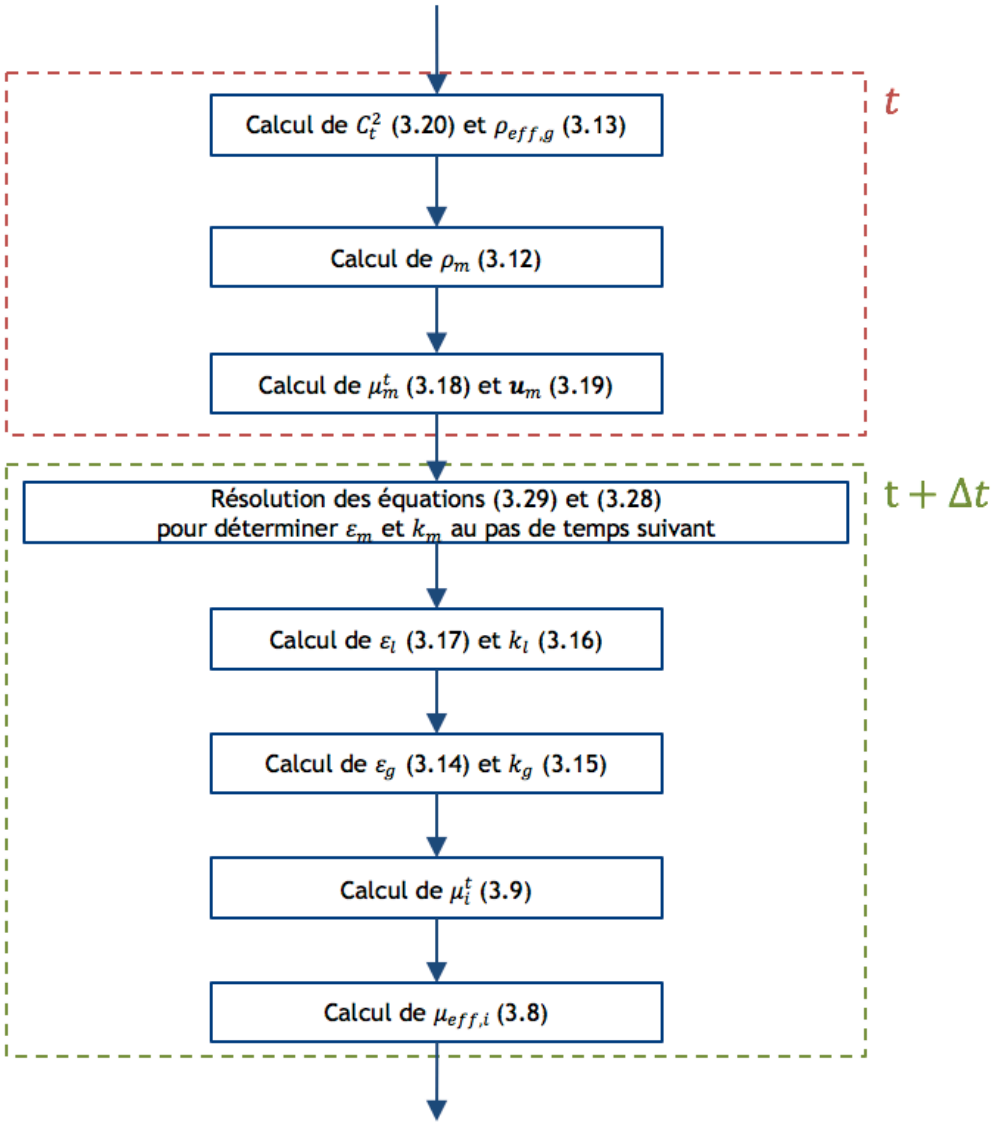


Figure 3.8 – Algorithme de résolution de la turbulence d'après le modèle `mixtureKEpsilon`.

La Figure 3.8 présente l'ordre de résolution des équations pour modéliser la turbulence. Les différentes constantes utilisées sont rassemblées au Tableau 3.4.

Tableau 3.4 – Constantes utilisées dans le modèle de turbulence.

Constante	C_μ	$C_{\varepsilon 1}$	$C_{\varepsilon 2}$	$C_{\varepsilon 3}$	C_p	σ_k	σ_ε
Valeur	0,09	1,44	1,92	1,92	0,25	1,0	1,3

3.4.3 Forces interfaciales

Les différentes forces interfaciales ont été décrites dans la section 2.5.4. Les forces interfaciales retenues dans le cadre de ce projet sont la force de traînée, la force de portance latérale et la force de masse virtuelle.

Pour rappel, la force de traînée s'écrit :

$$\boldsymbol{F}_D = \frac{3}{4}\alpha_g C_D \frac{\rho_l}{d_b}\left|\overline{\boldsymbol{u}}_g - \overline{\boldsymbol{u}}_l\right|\left(\overline{\boldsymbol{u}}_g - \overline{\boldsymbol{u}}_l\right) \tag{3.30}$$

dans lequel le coefficient de traîné C_D est calculé par le modèle de Schiller-Naumann (Schiller & Naumann, 1935) :

$$C_{D,0} = \begin{cases} \dfrac{24}{Re}\left(1 + 0{,}15Re^{0{,}687}\right) & Re_b \leq 1000 \\ 0{,}44 & Re_b > 1000 \end{cases} \tag{3.31}$$

Le nombre de Reynolds de bulle est :

$$Re_b = \frac{\rho_l\left|\overline{\boldsymbol{u}}_g - \overline{\boldsymbol{u}}_l\right| d_b}{\mu_l} \tag{3.32}$$

Pour tenir compte des hautes concentrations de phase dispersée, le coefficient de traînée est corrigé par le modèle de panache de Tomiyama (Tomiyama et al., 1995) :

$$C_S = \frac{C_D}{C_{D,0}} = (1-\alpha)^{3-2l} \tag{3.33}$$

où $C_{D,0}$ est le coefficient de traînée calculé par le modèle de Schiller-Naumann et l est un paramètre ($l = 2$).

La force de portance latérale, nécessaire pour reproduire le profil de rétention de gaz, en particulier proche des parois, est :

$$\boldsymbol{F}_L = \alpha_g \rho_l C_L \cdot \left(\overline{\boldsymbol{u}}_g - \overline{\boldsymbol{u}}_l\right) \times \boldsymbol{\nabla} \wedge \overline{\boldsymbol{u}}_l \tag{3.34}$$

dans lequel le coefficient de portance latérale C_L est déterminé par le modèle de portance latérale de Tomiyama (Tomiyama et al., 2002) :

$$C_L = \begin{cases} \min\begin{cases} 0{,}288\tanh(0{,}121Re) \\ 0{,}00105Eo^3 - 0{,}0159Eo^2 - 0{,}0204Eo + 0{,}474 \end{cases}, & Eo < 4 \\ 0{,}00105Eo^3 - 0{,}0159Eo^2 - 0{,}0204Eo + 0{,}474, & 4 \leq Eo \leq 10 \\ -0{,}29 & Eo > 10 \end{cases} \tag{3.35}$$

Le nombre adimensionnel d'Eötvos caractérise la forme des bulles, il est défini comme :

$$Eo = \frac{g\left(\rho_l - \rho_g\right) d_b^2}{\sigma} \tag{3.36}$$

où σ est la tension de surface.

Finalement la force de masse virtuelle est défini comme :

$$\boldsymbol{F}_{VM} = C_{VM} \alpha_g \rho_l \left(\frac{D_g \overline{\boldsymbol{u}}_g}{Dt} - \frac{D_l \overline{\boldsymbol{u}}_l}{Dt}\right) \tag{3.37}$$

Une valeur constante est utilisée pour le coefficient de masse virtuelle $C_{VM} = 0{,}5$.

3.4.4 Schémas de discrétisation numérique

Afin de résoudre les équations de conservation de la masse (3.4) et de quantité de mouvement (3.5), il convient de discrétiser les différents opérateurs mathématiques. L'utilisation de schémas de discrétisation d'ordres élevés est recommandé pour les écoulements turbulents multiphasiques afin de limiter la diffusion numérique (Laborde-Boutet et al., 2009). Les différents schémas utilisés sont regroupés au Tableau 3.5 et doivent être spécifiés dans le fichier

`system/fvScheme`. Ces schémas de discrétisation utilisent des interpolations linéaires pour déterminer les valeurs des différents champs aux centres des faces.

Tableau 3.5 – Schémas de discrétisation numérique.

Dérivée partielle	**Schéma de discrétisation**
Temporelle	Euler implicite (ordre 1)
Gradient	Gauss (ordre 2)
Divergence (convection)	Gauss (ordre 2) avec un limiteur van Leer
Laplacien (diffusion)	Gauss (ordre 2) avec une correction pour la non-orthogonalité

3.4.5 Algorithmes de résolution

Le solveur `twoPhaseEulerFoam` utilise l'algorithme de résolution PIMPLE pour le couplage pression-vitesse. Cet algorithme est la combinaison des algorithmes PISO (*Pressure Implicit with Splitting Operators*), utilisé pour des simulations transitoires, et SIMPLE (*Semi-Implicit Method for Pressure-Linked Equations*), utilisé pour des simulations stationnaires. L'algorithme PIMPLE, illustré à la Figure 3.9, est utilisé pour les simulations instationnaires tout en offrant la possibilité de sous-relaxer la solution, ce qui est une caractéristique de l'algorithme stationnaire SIMPLE.

Au début d'un pas de temps, une première boucle, appelée boucle PIMPLE est formée avec l'indice `nOuterCorrectors`. Si cet indice est fixé à 1, nous retrouvons l'algorithme PISO classique. Dans cette première boucle l'équation de continuité des deux phases est résolue puis les coefficients de traînée, de portance latérale et de masse virtuelle sont calculés. Ensuite, l'équation de quantité de mouvement et l'équation de conservation d'énergie sont résolues avant d'entrer dans une nouvelle boucle, appelée boucle PISO, contrôlée par l'indice `nCorrectors`. Dans un souci de concision, l'équation de conservation d'énergie n'est pas mentionnée dans ce mémoire, sa présence est due à la nature intrinsèquement compressible du solveur twoPhaseEulerFoam, toutefois, les phases sont considérées incompressibles dans ce modèle.

L'équation de la pression est alors résolue puis une correction au champ de vitesse est appliquée avec la nouvelle pression déterminée et finalement le nouveau champ de fraction des phases est calculé. Au terme de cette boucle PISO, les équations de transport pour la turbulence sont résolues et la boucle PIMPLE est alors éventuellement relancée. Finalement le résultat est sauvegardé et la simulation se dirige au pas de temps suivant (Holzinger, 2017).

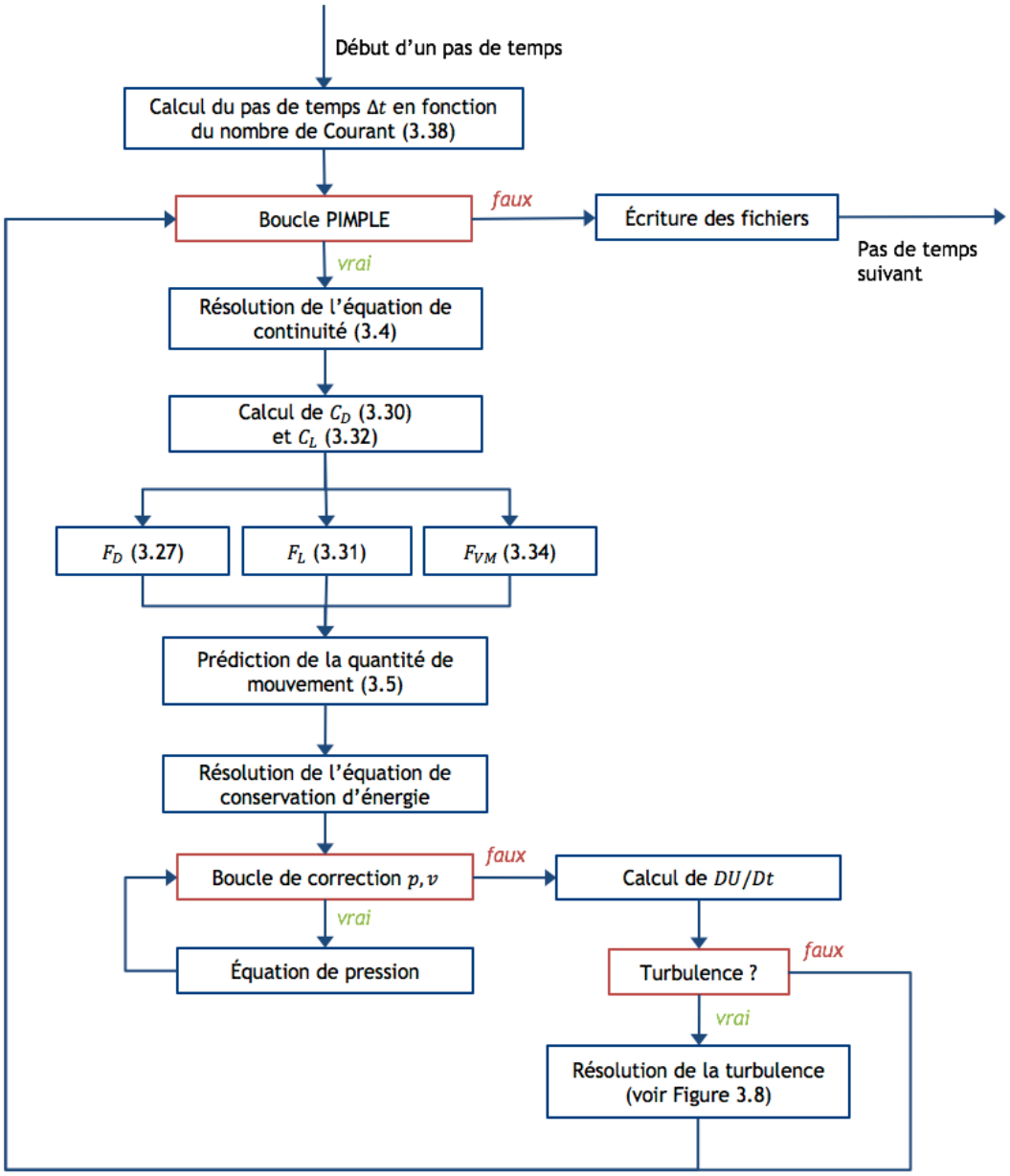


Figure 3.9 – Algorithme de résolution PIMPLE pour le solveur `twoPhaseEulerFoam`.

L'équation de la pression est résolue par un solveur multi-échelle GAMG (*Geometric-Algebraic Multi-Grid*). Ce solveur détermine dans un premier temps une solution à l'équation pour un maillage grossier utilisée par la suite comme solution initiale pour la résolution sur le maillage plus fin. La taille du maillage grossier est définie par `nCellsInCoarsestLevel`.

Le calcul de la fraction de gaz est réalisé itérativement à l'aide de l'algorithme MULES (*Multi-dimensional Universal Limiter with Explicit Solution*) afin de s'assurer que la solution obtenue pour la fraction de gaz est bornée. Le nombre d'itérations est défini par l'indice `nAlphaSubCycles`.

Finalement le pas de temps est calculé et contrôlé par la condition CFL (Courant-Friedrichs-Lewy) qui préconise que le nombre de Courant convectif Co, défini en (3.38), doit être maintenu inférieur à une certaine valeur afin d'assurer la convergence de la résolution. Le pas de temps est ensuite déterminé en conséquence. Pour les écoulements multiphasiques, la valeur généralement admise est $Co_{max} = 0{,}25$ (Peeters, 2016).

$$Co = \frac{|\boldsymbol{u}|\Delta t}{\Delta x} \tag{3.38}$$

Le nombre de Courant est évalué dans l'ensemble du domaine et seule la valeur maximale est utilisée pour déterminer le pas de temps. Dans la suite, la valeur $Co_{max} = 0{,}5$ a été jugée satisfaisante car uniquement les zones où le champ de vitesse est le plus intense peuvent être affectées par cette valeur critique de 0,5 ; dans le reste du domaine le nombre de Courant est nettement inférieur, en témoigne le nombre de Courant moyen dans l'ensemble du domaine qui est de l'ordre de 0,01.

L'ensemble de ces options sont définies dans les fichiers `system/fvSolution` et `system/controlDict` pour le nombre de Courant.

Le temps typique de simulation correspond à environ 6 à 10 min de temps réel. Les champs nécessitent d'être moyennés sur de relatives longues périodes afin d'obtenir des résultats indépendants de la position instantanée du panache de bulles.

3.5 Post-traitement des données

Les résultats peuvent être directement visualisés par l'intermédiaire du logiciel libre paraview fourni avec OpenFOAM. Le couplage de ces deux logiciels est direct, il suffit pour cela d'exécuter la commande `paraFoam` dans le répertoire du cas. Alternativement, l'accès aux résultats peut aussi se faire directement à partir du logiciel paraview.

De nombreux filtres sont disponibles pour récupérer les données d'intérêt tels que les profils radiaux de rétention de gaz et de vitesse. Il est également possible d'extraire des données statistiques dans les domaines voulus.

Le découpage de la géométrie en plusieurs sous-domaines est également effectué avec le logiciel paraview afin d'évaluer les propriétés locales moyennes dans chaque sous-domaine.

CHAPITRE 4 RÉSULTATS ET DISCUSSION

Dans ce chapitre, les résultats obtenus par l'approche détaillée dans le Chapitre 3 sont présentés. Les résultats sont validés avec les données expérimentales de Esmaeili et al. (Esmaeili et al., 2015; Esmaeili, Guy, & Chaouki, 2016). Les principales spécifications des différentes simulations sont détaillées dans le Tableau 4.1 ; plus d'informations sont fournies dans le Chapitre 3. Les différentes techniques expérimentales utilisées, détaillées dans la section 3.2, sont des mesures de différences de pression (DP) pour la rétention de gaz et de taille de bulle. Des sondes à fibres optiques (FOP) sont également utilisées pour déterminer des profils radiaux de rétention de gaz ou de vitesse du gaz.

Dans un premier temps, le modèle numérique est étudié, plus précisément, le temps de simulation, la dépendance au maillage et les profils radiaux de rétention de gaz et de vitesse du gaz obtenus sont discutés. Ensuite, le processus de construction des compartiments basé sur l'énergie dissipée dans le système est détaillé. Les résultats du modèle sont présentés et discutés. Finalement, une méthode alternative de construction des compartiments est proposée et les résultats de ce nouveau découpage sont présentés.

4.1 Validation du modèle numérique

4.1.1 Temps de simulation

La principale difficulté que posent les colonnes à bulles est que l'hydrodynamique et en particulier le patron d'écoulement sont dictés par l'ascension des bulles dans la phase continue. Par conséquent, la turbulence générée est relativement faible d'une part, et d'autre part le panache de bulles oscille autour de l'axe de la colonne. Tout comme pour les mesures expérimentales, il convient de calculer un champ d'écoulement moyen dans le temps. Les champs instantanés doivent alors être enregistrés sur des temps longs pour atténuer l'effet de ces oscillations. Il convient alors de déterminer le temps nécessaire pour atteindre un profil moyen symétrique pour les vitesses et la rétention de gaz. La Figure 4.1 présente les profils obtenus pour différentes durées utilisées pour déterminer le champ moyen ainsi que les profils mesurés

expérimentalement par Esmaeili et al. à l'aide d'une sonde à fibre optique (Esmaeili et al., 2015). Il est constaté que le profil moyen se stabilise au-delà de 300 s pour calculer la moyenne.

Le calcul numérique est exécuté sur les grappes de calcul Briarée de Calcul Québec et Graham de Calcul Canada. À titre d'exemple, pour un maillage de 50k volumes et un temps physique de 600 s (100 s de mise en régime suivis de 500 s pour le calcul des champs moyens) il faut environ 60 h ou 2,5 jours de calcul sur 36 cœurs sur Briarée. Pour un maillage de 150k volumes, le temps de calcul pour la même durée physique monte à 250 h ou 10,4 jours sur 48 cœurs, toujours sur Briarée. Pour le maillage de 300k volumes, il faut compter 16 jours de calcul avec 64 cœurs sur Graham.

Tableau 4.1 – Liste des simulations numériques réalisées.

Cas	Maillage	u_G (cm/s)	d_b (mm)[1]	Paramètres étudiés	Techniques expérimentales
A1	1 (50k)	4,27	5,23	- Modèle de traînée (Tomiyama, Schiller-Naumann) - Modèle de correction de panache - Maillage	FOP[2], DPT[3]
A2	2 (100k)	4,27	5,23	- Maillage	FOP, DPT
A3	3 (150k)	4,27	5,23	- Maillage	FOP, DPT
A4	4 (300k)	4,27	5,23	- Modèle de correction de panache - Maillage	FOP, DPT
B1	1	7,42	6,00	- Modèle de traînée (Tomiyama, Schiller-Naumann) - Modèle de correction de panache - Maillage	FOP, DPT
B2	2	7,42	6,00	- Maillage	FOP, DPT
B3	3	7,42	6,00	- Maillage	FOP, DPT
C1	1	2,82	4,86	- Vitesse superficielle de gaz - Maillage	DPT
C2	2	2,82	4,86	- Vitesse superficielle de gaz - Maillage	DPT
D1	1	5,85	5,78	- Vitesse superficielle de gaz - Maillage	DPT
D2	2	5,85	5,78	- Vitesse superficielle de gaz - Maillage	DPT

[1]Diamètre constant utilisé pour la simulation CFD.

[2]FOP *: Fiber Optic Probe*

[3]DPT *: Differential Pressure Transducer*

Ce long temps de simulation constitue une contrainte majeure. Par ailleurs, un raffinement du maillage provoque une augmentation du nombre de volumes finis ; la taille des volumes diminue ce qui implique une augmentation du nombre de Courant (équation 3.38). Or, pour maintenir le nombre de Courant inférieur à la valeur souhaitée (0,5), le pas de temps doit également être diminué. D'autre part, le nombre de calculs par pas de temps est également augmenté. C'est pourquoi le temps de calcul est augmenté significativement en raffinant le maillage. Afin de maintenir une durée de calcul raisonnable, il convient alors de déterminer un maillage optimum qui permet une prédiction fidèle de l'hydrodynamique sans être trop chronophage.

4.1.2 Analyse de sensibilité du maillage

Une analyse de sensibilité a été réalisée afin de déterminer l'influence du maillage. La Figure 4.2 et la Figure 4.3 présentent les profils radiaux de rétention de gaz et de vitesse de gaz moyens pour des vitesses superficielles de 4,27 et 7,42 cm/s respectivement. Les solutions présentées sont obtenues pour trois ou quatre maillages différents de 50k, 100k, 150k et 300k volumes. Ces profils sont, de nouveau, comparés aux données de Esmaeili et al. ; les auteurs n'ont cependant pas indiqué les incertitudes expérimentales associées à leurs mesures. Ils mentionnent que les mesures ont été répétées à trois reprises et qu'une valeur moyenne est calculée sur ces trois séries de mesures, sans plus d'information sur la variabilité expérimentale constatée (Esmaeili et al., 2015). Après quelques échanges avec l'auteur et compte tenu de la technique utilisée, l'incertitude a été estimée à ±5% pour la rétention de gaz et ±30% pour la vitesse d'ascension du gaz. Pour le débit de gaz le plus faible (Figure 4.2), les quatre maillages utilisés ne montrent pas de variations significatives des profils radiaux obtenus. Il est tout de même à noter que les profils sont davantage symétriques quand le nombre de volumes augmente. L'influence de ces maillages sur les profils moyennés dans le temps demeure néanmoins faible. Ce résultat surprenant illustre une des limites de l'approche Euler-Euler. Pour le débit de gaz plus important (Figure 4.3), les profils de rétention de gaz obtenus à la position haute (L/D = 3,1) sont bien au-dessus des points expérimentaux que ceux obtenus au milieu de la colonne (L/D = 1,5) par rapport au profil expérimental. Une possible raison est que la surface libre est proche de cette position haute. Cependant ce comportement n'est pas observé expérimentalement. En outre, l'influence du maillage est beaucoup plus marquée pour une vitesse superficielle de 7,42 cm/s.

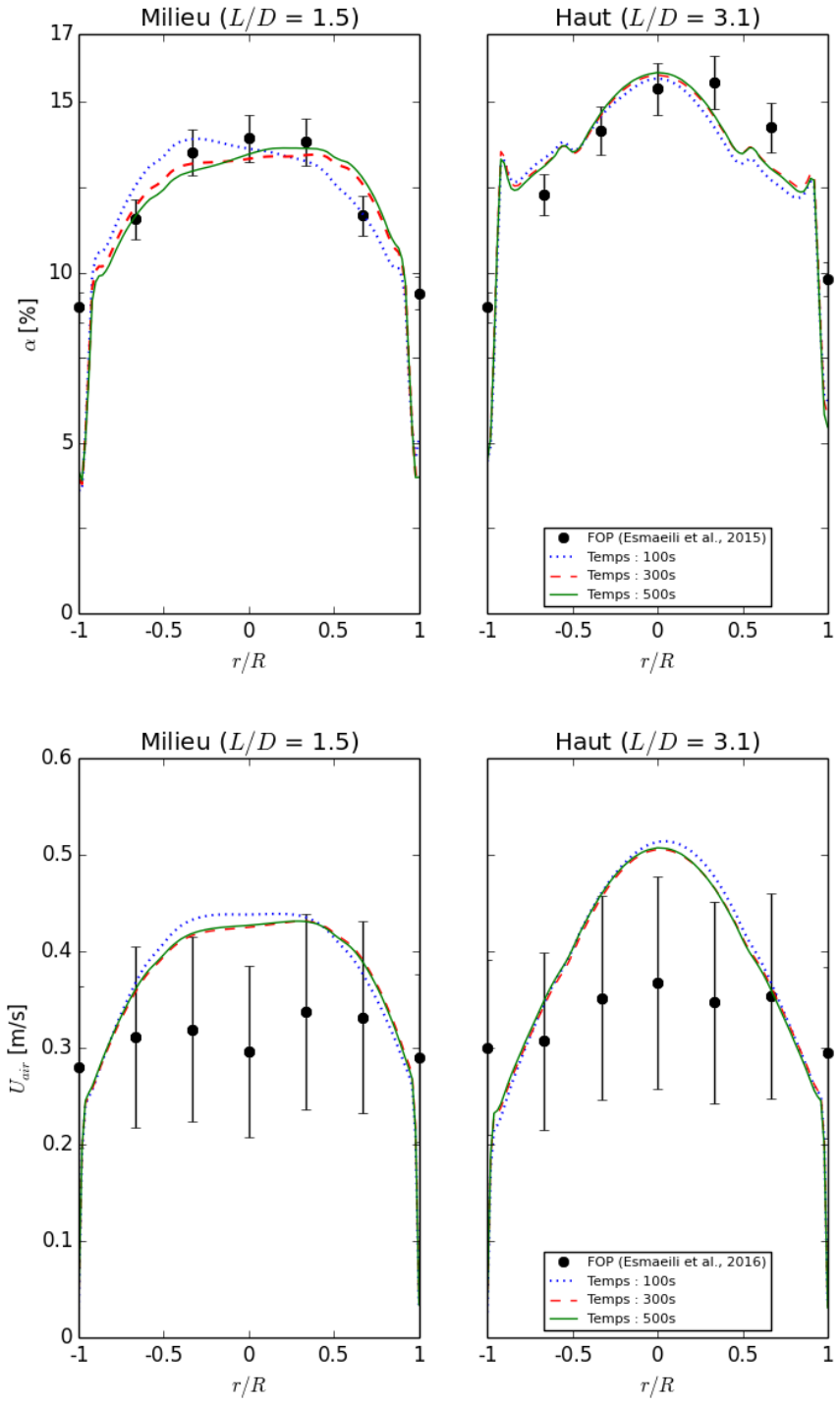


Figure 4.1 – Profils moyens de rétention de gaz (α) et de vitesse de gaz (U_{air}) calculés pour différentes périodes de temps (100, 300 et 500 s), à deux positions (haut et milieu) pour une vitesse superficielle de gaz de 4,27 cm/s (cas A4) et comparé aux données expérimentales de Esmaeili et al. (2015, 2016).

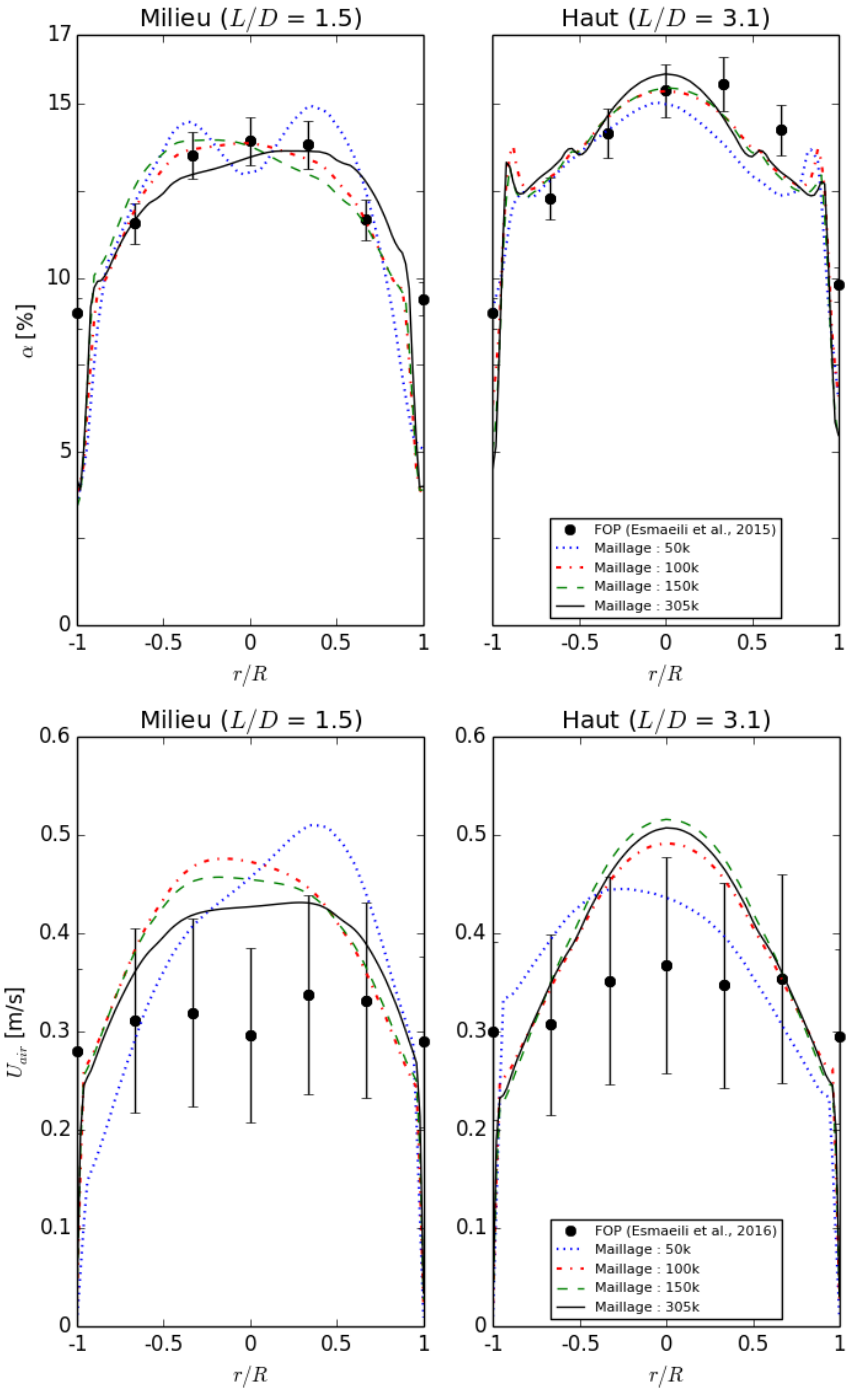


Figure 4.2 – Effet du maillage sur les profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour quatre maillages de 50k, 100k, 150k et 300k pour une vitesse superficielle de gaz de 4,27 cm/s(cas A1-4) dans le cas d'un modèle de traînée de Schiller-Naumann avec modèle de correction pour le panache et comparé aux données expérimentales de Esmaeili et al. (2015, 2016).

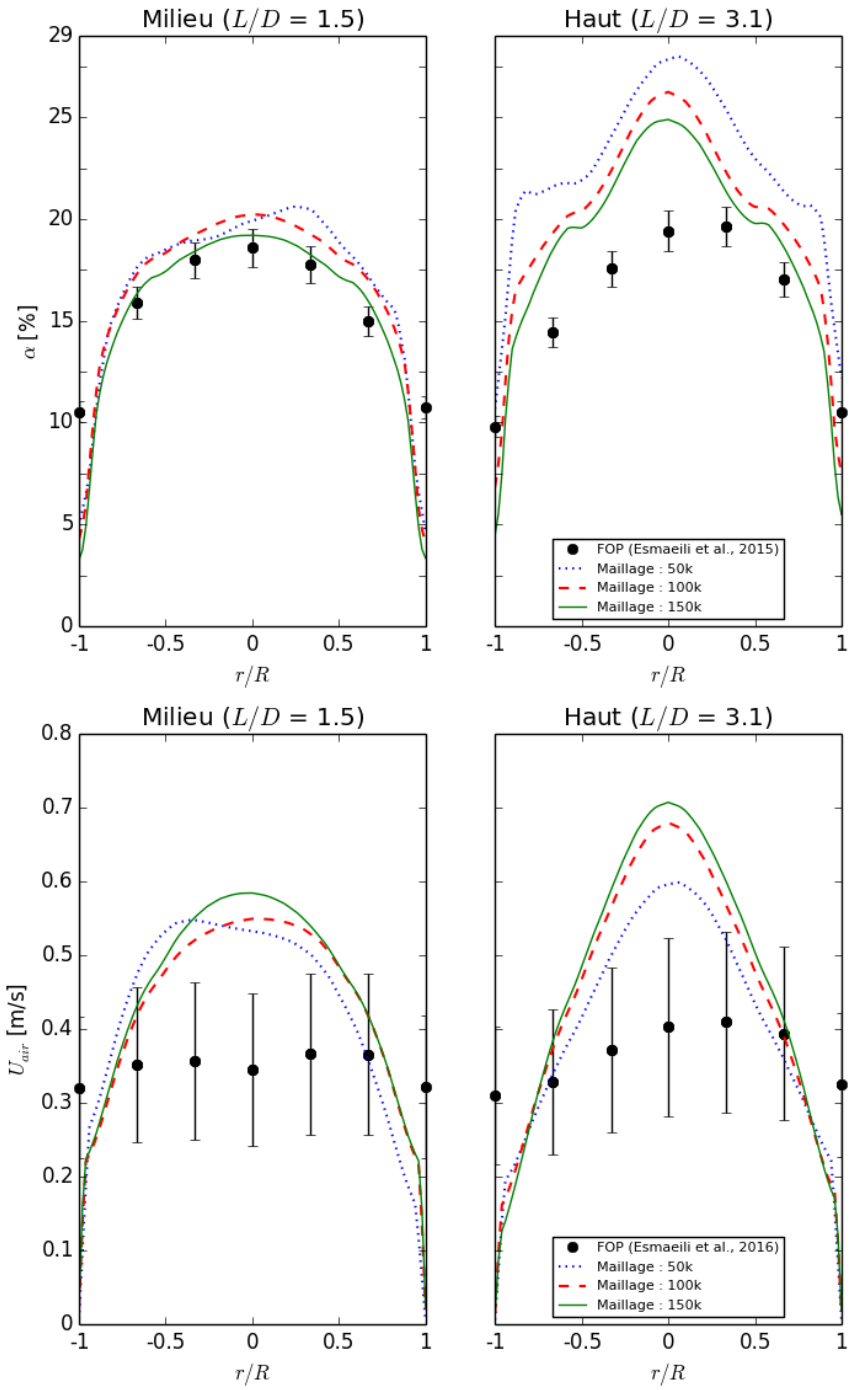


Figure 4.3 – Effet du maillage sur les profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour trois maillages de 50k, 100k et 150k pour une vitesse superficielle de gaz de 7,42 cm/s (cas B1-3) dans le cas d'un modèle de traînée de Schiller-Naumann avec modèle de correction pour le panache et comparé aux données expérimentales de Esmaeili et al. (2015, 2016).

En ce qui concerne la vitesse de la phase gazeuse, les profils obtenus numériquement surestiment les profils mesurés. L'écart est d'autant plus important pour le débit de gaz le plus élevé à la position haute (L/D = 3,1). La simulation n'avait déjà pas permis d'obtenir une bonne prédiction de la rétention de gaz radiale pour ce cas-là. Étonnamment, le modèle numérique n'est pas à même de fournir une aussi bonne prédiction de la rétention de gaz et de la vitesse de gaz simultanément. Un bilan macroscopique a été réalisé et a permis de confirmer que la vitesse relative numérique ($U_r = U_{air} - U_{eau}$) était bien consistante avec les données numériques. Il semblerait donc que les vitesses des deux phases soient surestimées dans la simulation. Néanmoins, nous ne disposons pas d'informations sur la vitesse expérimentale de la phase liquide.

4.1.3 Prédiction de la rétention de gaz globale

La rétention globale de gaz est définie, pour une cuve de section constante par :

$$\alpha_G = \frac{H_D - H}{H_D} \tag{4.1}$$

où H et H_D sont les hauteurs de liquide respectivement sans injection de gaz (hauteur statique) et avec (hauteur dynamique).

Compte tenu de la définition précédente, il suffirait donc de déterminer la position de l'interface. Cette méthode visuelle, bien que soumise aux fluctuations de la surface de liquide, est envisageable expérimentalement, cependant elle n'est pas pertinente pour une simulation numérique. En effet, dans le modèle numérique retenu, l'interface gaz-liquide n'est pas capturée, la concentration en gaz évoluant de manière continue dans l'espace. Par conséquent, il convient de mesurer la rétention de gaz dans une zone immergée de la colonne à l'aide de capteurs de pression.

$$\alpha_G = 1 - \frac{1}{\rho_L g}\frac{\Delta P}{\Delta z} \tag{4.2}$$

où ΔP est la perte de charge mesurée entre deux hauteurs séparées par la longueur Δz.

Dans le cadre de la mécanique des fluides numérique, la prédiction de la rétention de gaz est intimement liée à la taille de bulle et à la force de traînée. Le diamètre de bulle est choisi d'après

les données expérimentales de Esmaeili et al. (Esmaeili et al., 2015). Les détails de ce choix sont évoqués à la section 3.1. Deux modèles pour le calcul du coefficient de traînée sont testés, celui de Schiller-Naumann et celui de Tomiyama (section **Erreur ! Nous n'avons pas trouvé la s ource du renvoi.**). Les modèles de traînée sont généralement mis au point pour de faibles concentrations de gaz (Schiller & Naumann, 1935). D'où l'intérêt d'étudier l'effet d'un modèle de correction du coefficient de traînée pour tenir compte du panache de bulle, dans lequel la concentration en gaz est plus élevée. En particulier, l'influence du modèle de correction de la traînée de Tomiyama (équation 3.30), introduit dans la section **Erreur ! Nous n'avons pas t rouvé la source du renvoi.**, est considéré (Tomiyama et al., 1995).

La Figure 4.4 présente les rétentions de gaz globales déterminées numériquement pour les quatre conditions opératoires étudiées dans la suite de ce mémoire, à savoir pour des vitesses superficielles de gaz de 2,82 – 4,27 – 6,51 et 7,42 cm/s, pour les modèles de traînée de Schiller-Naumann et de Tomiyama, avec et sans correction du coefficient de traînée pour les hautes concentrations en gaz. Les effets des différents maillages sont aussi présentés.

Quelque soient les cas, on peut observer une large surestimation de la rétention globale de gaz avec le modèle traînée de Tomiyama et une sous-estimation de la rétention globale de gaz avec le modèle de Schiller-Naumann. Le modèle de Schiller-Naumann fournit néanmoins une meilleure estimation de la rétention de gaz par rapport au modèle de Tomiyama. C'est donc ce modèle qui est retenu dans la suite.

Par ailleurs, la prédiction de la rétention globale de gaz est améliorée avec la correction du coefficient de traînée par le modèle de Tomiyama. En effet, d'après l'équation (3.30), une concentration élevée en gaz occasionne une augmentation du coefficient de traînée et donc de la force de traînée. Ceci a pour effet de ralentir l'ascension de la phase gazeuse et par conséquent d'augmenter le temps de rétention dans la phase liquide. Finalement la rétention de gaz calculée est plus importante. Par ailleurs, les profils radiaux de rétention de gaz et de vitesse de gaz présentés à la Figure 4.5 et à la Figure 4.6 confirment le choix du modèle de Schiller-Naumann avec une correction pour les hautes concentration de gaz, afin d'obtenir une meilleure prédiction locale. En particulier, la prédiction de la vitesse à proximité des parois est notablement améliorée avec le modèle de Schiller-Naumann

Peu d'effet du maillage est observé pour les faibles vitesses superficielles de gaz. À l'inverse pour les plus hautes vitesses (7,42 cm/s), l'effet du maillage n'est plus négligeable. Les maillages les plus grossiers mènent à une rétention de gaz plus importante que les maillages plus raffinés. Ceci est également observé sur les profils radiaux (Figure 4.6).

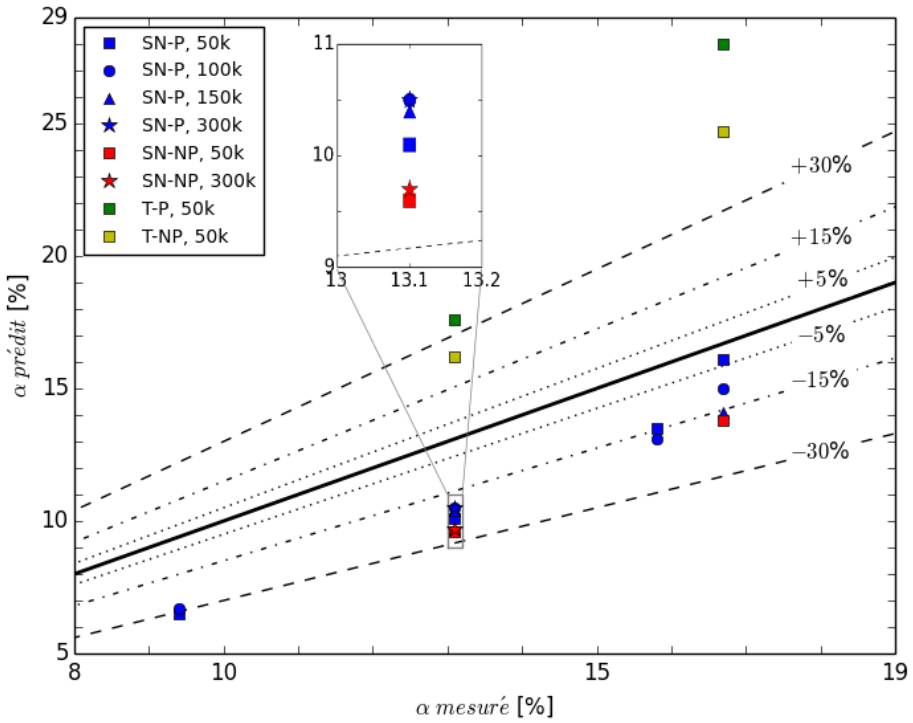


Figure 4.4 – Comparaison entre la rétention de gaz globale mesurée par différence de pression (Esmaeili et al., 2015) et calculée numériquement pour les modèles de traînée de Schiller-Naumann (SN) et de Tomiyama (T) avec (P) et sans (NP) correction du coefficient de traînée pour les hautes concentrations en gaz. Les quatre séries de points correspondent aux vitesses superficielles de gaz de u_G = 2,82 - 4,27 - 6,51 et 7,42 cm/s (A1-4, B1-3, C1-2, D1-2).

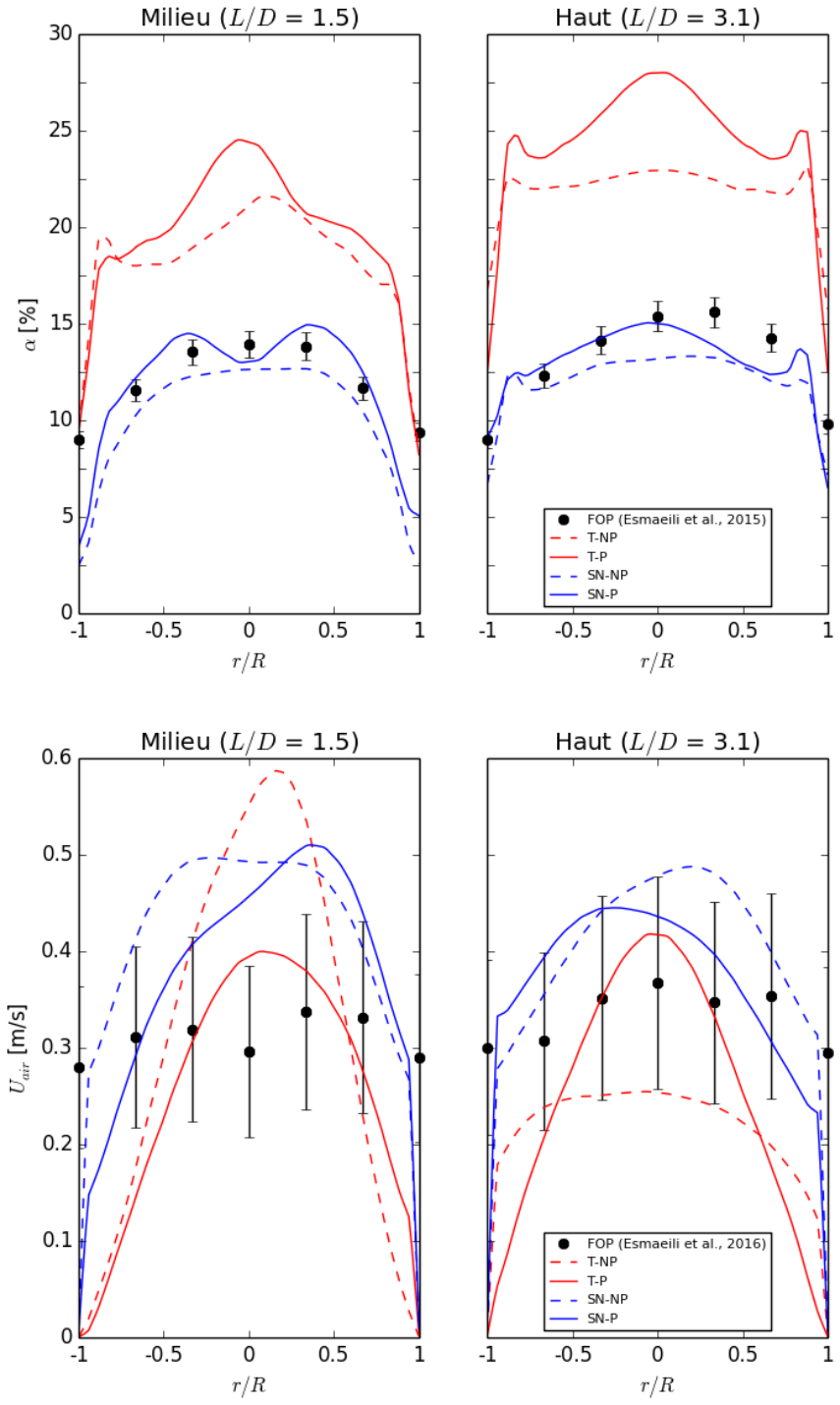


Figure 4.5 – Profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour le maillage de 50k pour une vitesse superficielle de gaz de 4,27 cm/s (cas A1). Modèles de traînée de Schiller-Naumann (SN) et de Tomiyama (T) avec (P) et sans modèle (NP) de correction pour le panache. Données expérimentales issues de Esmaeili et al. (Esmaeili et al., 2015, 2016).

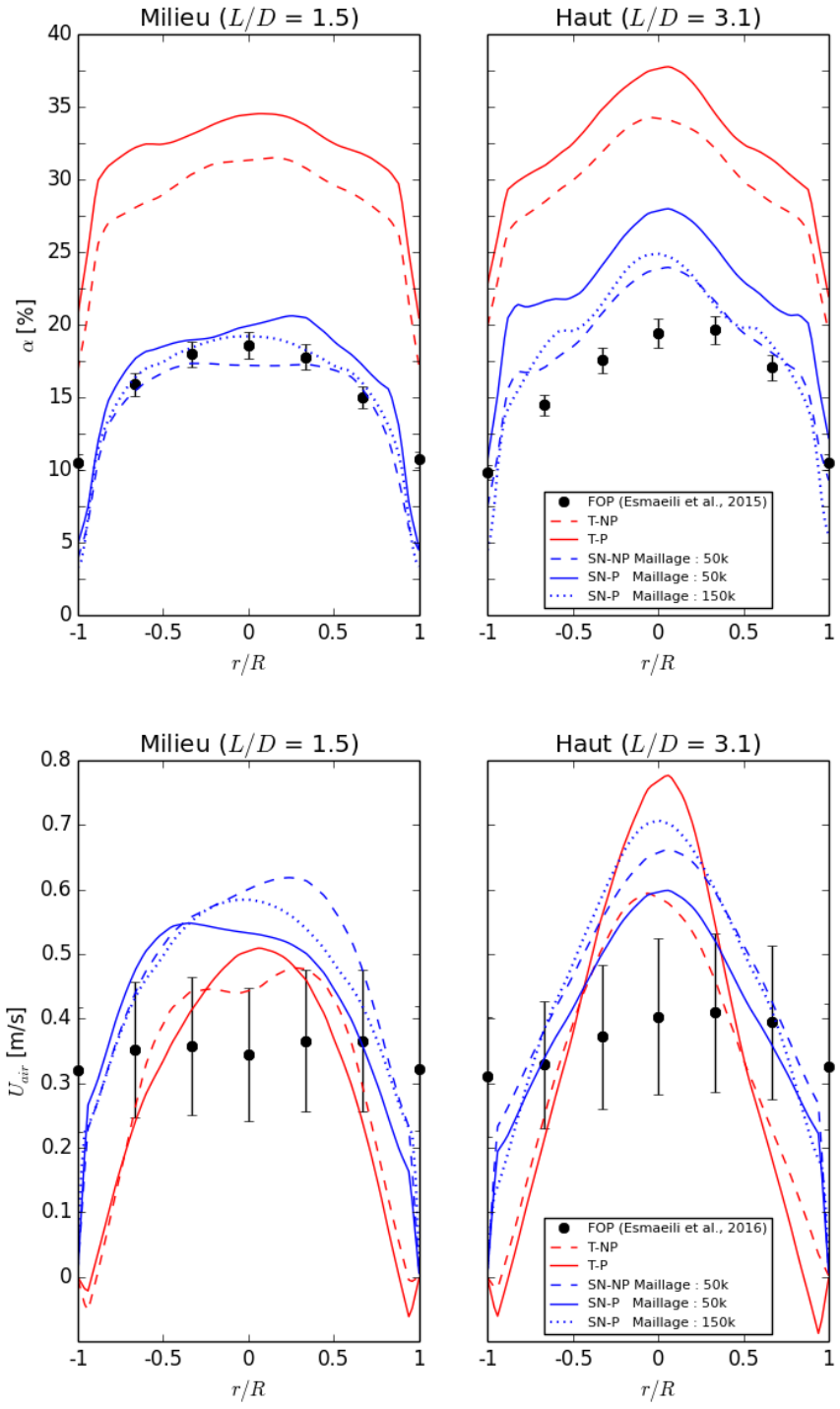


Figure 4.6 – Profils radiaux moyens (500 s) de rétention de gaz et de vitesse de gaz pour une vitesse superficielle de gaz de 7,42 cm/s (cas B1 et B3). Modèles de traînée de Schiller-Naumann (SN) et de Tomiyama (T) avec (P) et sans modèle (NP) de correction pour le panache. Données expérimentales issues de Esmaeili et al. (Esmaeili et al., 2015, 2016).

4.2 Définition énergétique des compartiments

L'établissement du critère pour construire les différents compartiments est une étape fondamentale inhérente à ce modèle. La méthodologie s'inspire de celle employée par Bashiri pour les cuves agitées (Bashiri et al., 2014). À partir du calcul du taux de dissipation d'énergie turbulente du mélange ε_m (équation 3.17), les frontières des compartiments sont déterminées. Plus précisément, en numérotant les éléments de volume par ordre croissant (indice j) de dissipation d'énergie turbulente pour le mélange ε_m, la fraction volumique occupée par un volume fini est définie par la relation :

$$n_j = \frac{v_j}{V_{tot}} \tag{4.3}$$

dans lequel v_j est le volume de le la cellule j et V_{tot} le volume total du réacteur.

Ensuite, la somme pondérée cumulative du taux d'énergie de dissipation (E_i) peut-être déterminée par :

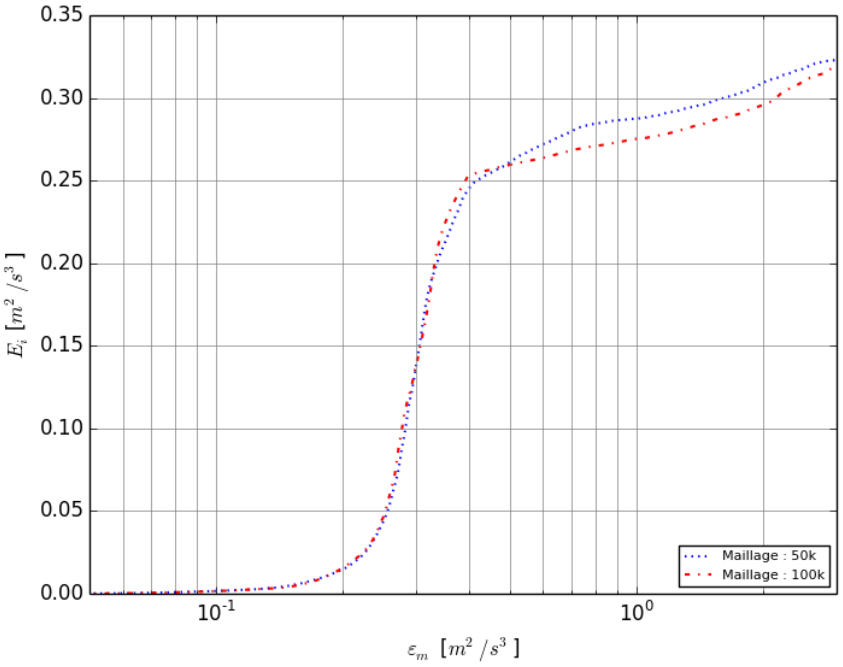
$$E_i = \sum_{j=1}^{i} e_j = \sum_{j=1}^{i} \varepsilon_{m,j} n_j \tag{4.4}$$

où $\varepsilon_{m,j}$ est le taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente pour la cellule j. Cette fonction est tracée à la Figure 4.7 pour différentes vitesses superficielles de gaz : 2,82 – 4,27 – 6,51 et 7,42 cm/s (cas A1-4, B1-3, C1-2, D1-2).

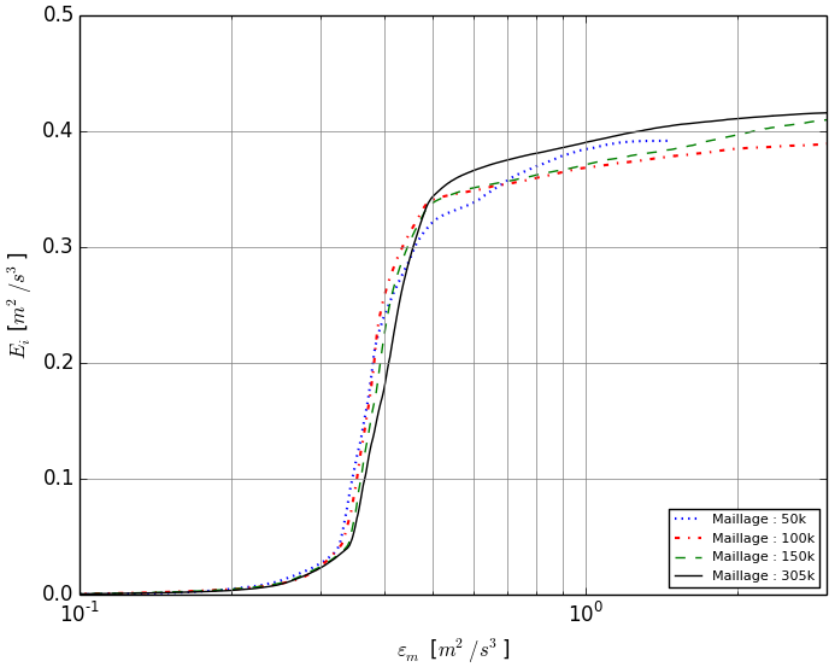
La turbulence étant générée uniquement par l'ascension des bulles, l'amplitude des taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente mesurées est fortement resserrée. La majorité de la colonne est soumise à des amplitudes de turbulences similaires. Contrairement aux cuves agitées, dans lesquelles la turbulence est principalement causée par l'agitation mécanique, il est plus difficile d'identifier un changement drastique tels que ceux identifiés par Bashiri pour les cuves agitées (Bashiri et al., 2014).

Compte tenu des variations faibles de la somme pondérée cumulative du taux d'énergie de dissipation dans la colonne à bulles, il n'est pas possible de déterminer de changements drastiques de l'énergie dissipée au sein du réacteur. Par conséquent, il s'avère difficile de déterminer des compartiments significatifs du point de vue phénoménologique. De plus, aux

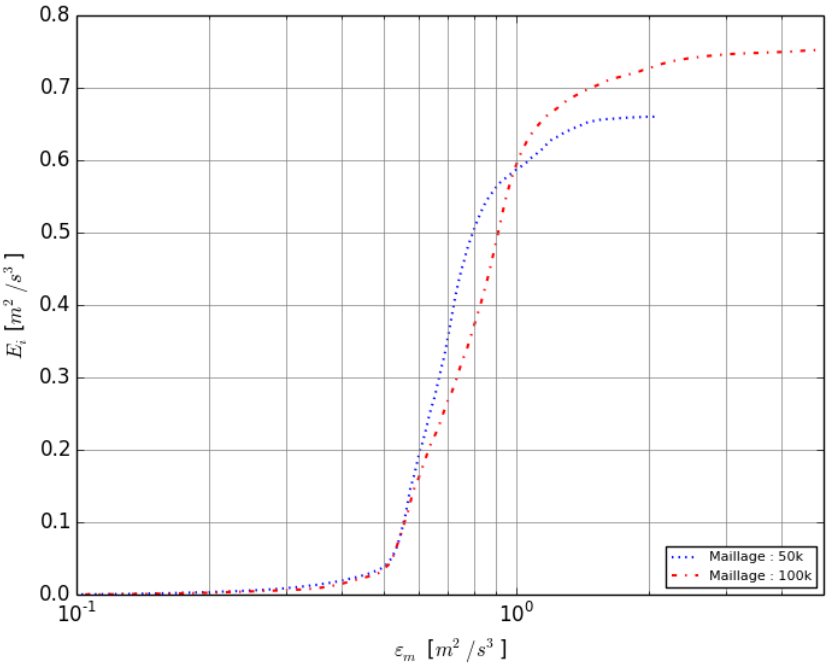
vitesses les plus élevées, l'énergie dissipée n'est plus indépendante du maillage comme l'illustre la Figure 4.7-d.



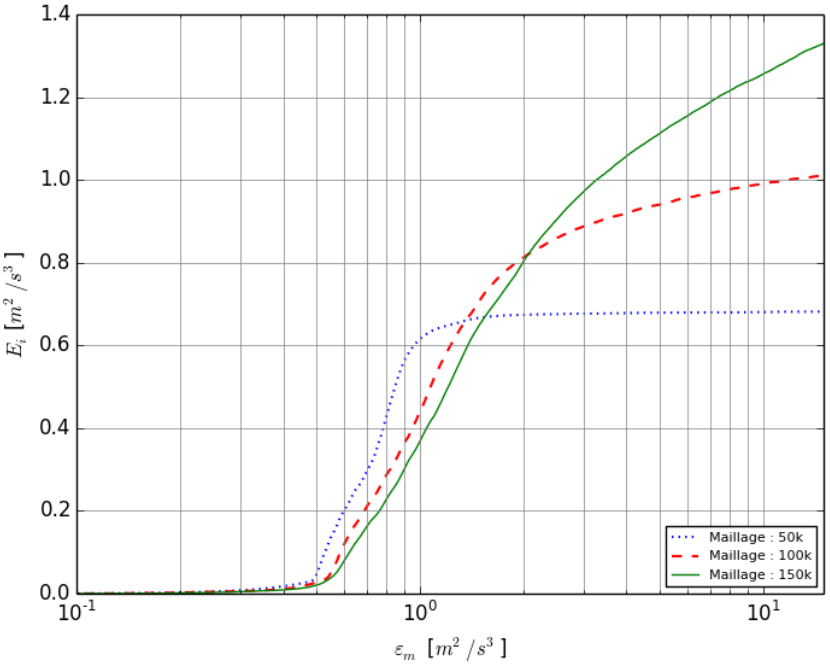
a. Vitesse superficielle de gaz $u_G = 2{,}82$ cm/s.



b. Vitesse superficielle de gaz $u_G = 4{,}27$ cm/s.



c. Vitesse superficielle de gaz $u_G = 6{,}51$ cm/s.



d. Vitesse superficielle de gaz $u_G = 7{,}42$ cm/s.

Figure 4.7 – Dissipation d'énergie cinétique turbulente cumulative (E_i) pour différentes vitesses superficielles de gaz et différents maillages (cas A1-4, B1-3, C1-2, D1-2).

4.3 Définition hydrodynamique des compartiments

Une autre option pour construire les compartiments consiste à les définir à partir du patron d'écoulement observé au sein de la colonne. Le patron d'écoulement moyen de la phase continue liquide est représenté à la Figure 4.8. Il fait apparaître une boucle de recirculation principale qui parcourt l'ensemble de la colonne. L'eau entraînée par les bulles monte par le centre de la colonne puis redescend à proximité des parois une fois le gaz libéré. Une seconde boucle de recirculation plus petite se forme au bas de la colonne. Ces observations permettent de définir deux compartiments, un premier pour la partie basse, contenant la plus petite boucle de recirculation, et un second pour la partie haute occupant le reste de la colonne. En raison de la méthode de simulation utilisée qui ne capture pas l'interface, il est difficile d'évaluer précisément l'interface supérieure.

4.4 Évaluation du modèle compartimental

Dans cette section nous évaluons la pertinence de cette approche hydrodynamique pour bâtir les compartiments. Tout d'abord, nous déterminons la taille de bulle moyenne locale puis nous analysons la prédiction du transfert de matière dans les différents compartiments. Finalement, nous examinons l'influence des conditions opératoires.

4.4.1 Prédiction de la taille de bulle

Dans chacun des compartiments, un diamètre de bulle moyen est évalué grâce à la relation (2.14). La Figure 4.9-a présente les résultats obtenus pour les deux compartiments déterminés dans la partie précédente pour une vitesse superficielle de gaz de 4,27 cm/s et le maillage de 100k volumes (cas A2). Les autres maillages testés conduisent à des résultats très semblables. À titre de comparaison, le diamètre de bulle est également calculé dans le cas où l'on ne considère qu'un seul compartiment.

Afin de valider les résultats du modèle, deux diamètres moyens ont été mesurés expérimentalement par analyse fréquentielle du signal de pression, 5,0 mm et 5,5 mm pour les positions L/D = 1,5 et L/D = 3,1 respectivement (Esmaeili et al., 2015). Les diamètres obtenus

par le modèle, à savoir 5,6 mm pour L/D = 1,5 et 5,3 mm pour L/D = 3,1, sont en bon accord avec ces valeurs mesurées expérimentalement .

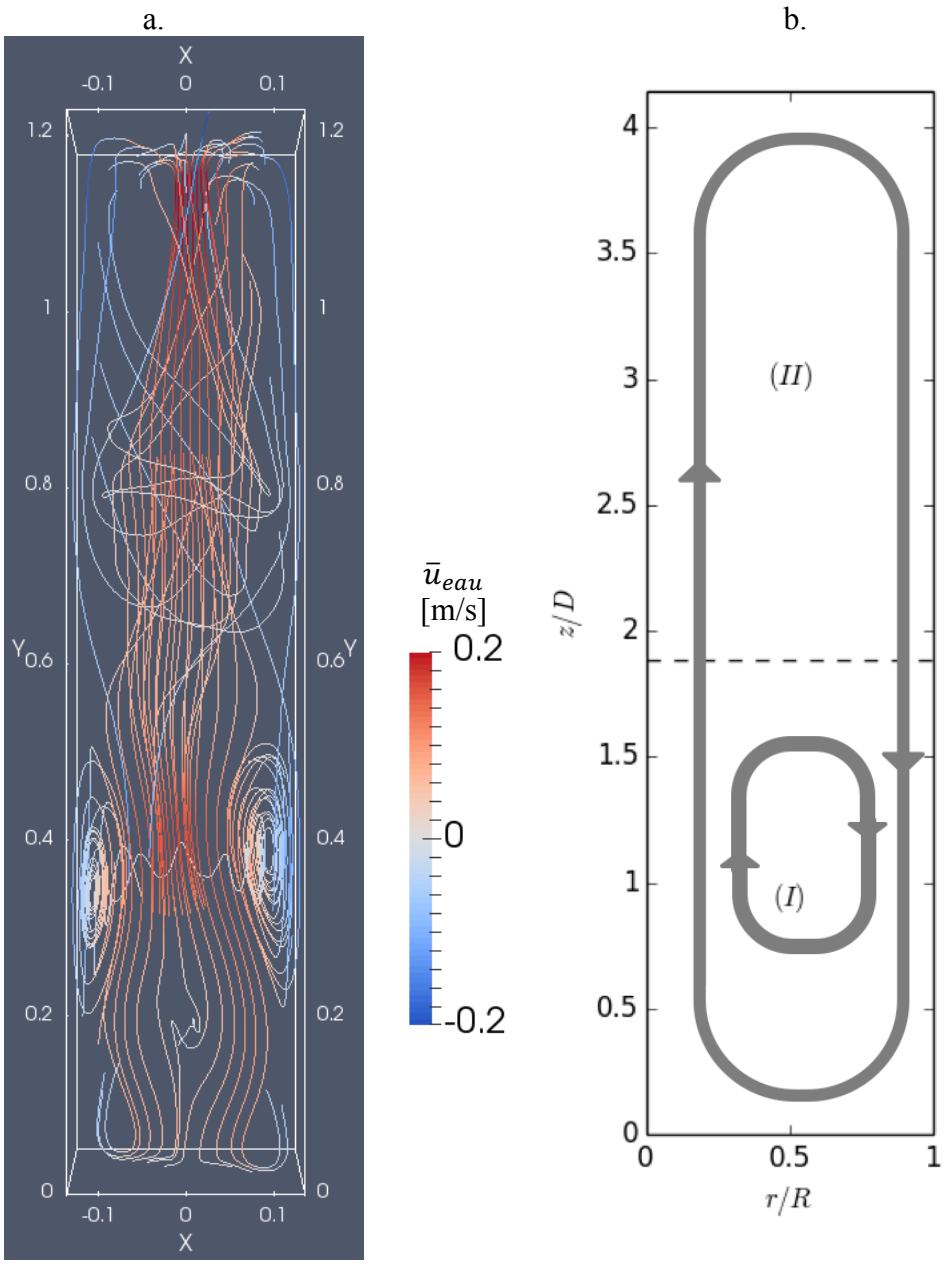


Figure 4.8 – a. Lignes de courant moyennes de la phase liquide obtenues pour $u_G = 4{,}27$ cm/s (cas A2). b. Compartiments caractéristiques déterminés et boucles de recirculation schématisées.

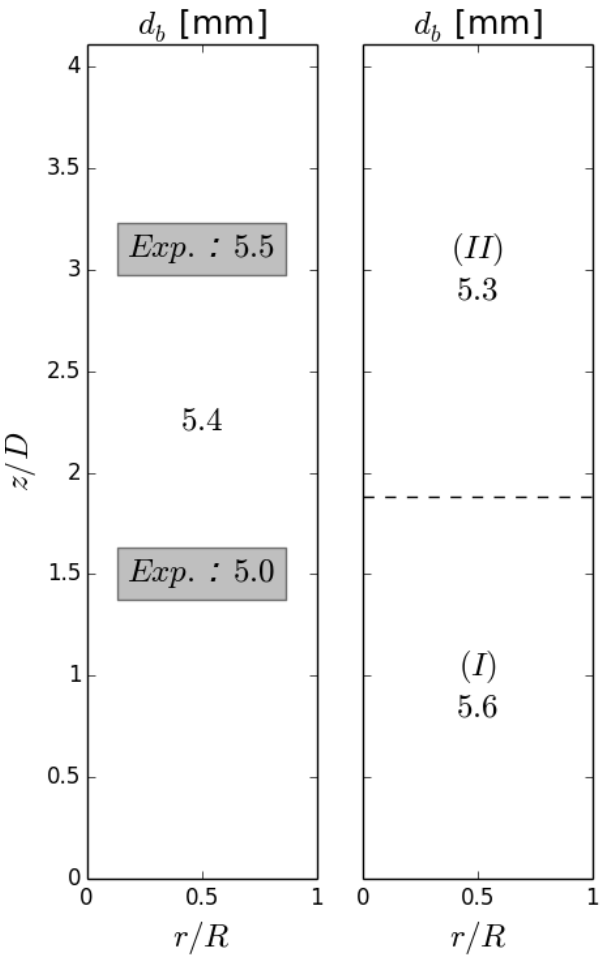
4.4.2 Prédiction du transfert de matière

Des coefficients de transfert de matière ($k_L a$) locaux sont calculés dans chacun des compartiments d'après le modèle de cellule de turbulence et le modèle de vitesse de glissement définis aux équations (2.30) et (2.36) respectivement. Les résultats sont présentés à la Figure 4.9-b. Comme précédemment pour le diamètre de bulle, le $k_L a$ est également évalué pour un seul compartiment. Enfin, toujours sur la Figure 4.9-b, la contribution relative au transfert de matière de chacun des compartiments est fournie accompagnée de la fraction de volume occupée par le compartiment.

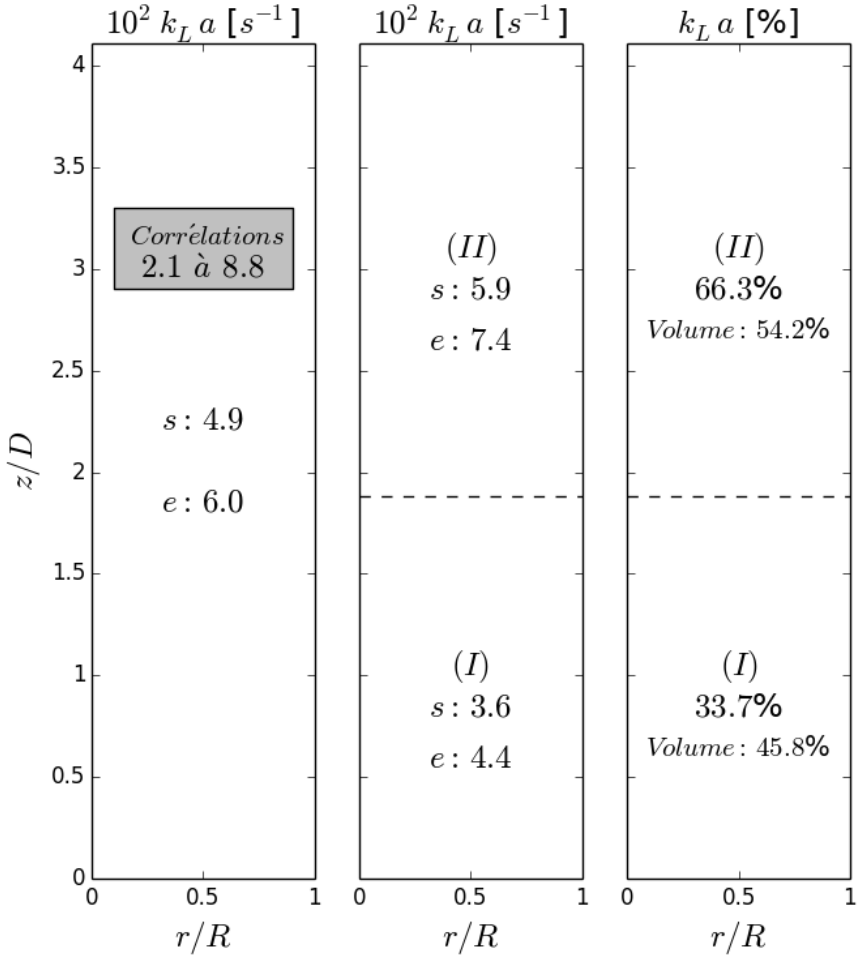
On constate que le compartiment du haut contribue davantage au transfert de matière que le compartiment du bas en raison de la relative plus forte dissipation d'énergie en haut de la colonne. Par ailleurs, la rétention de gaz est plus importante et le diamètre de bulle est plus petit, ce qui maximise l'aire interfaciale a (équation 2.4).

Ne disposant pas de données expérimentales sur le transfert de matière, seul le coefficient de transfert global dans l'ensemble de la colonne est comparé à diverses corrélations disponibles dans la littérature (section 2.4.3). Les $k_L a$ globaux calculés par diverses corrélations conduisent à des valeurs comprises entre $2{,}1$ et $8{,}8 \times 10^{-2}\ s^{-1}$. Il existe une forte disparité entre ces corrélations.

Dans le modèle compartimental, le coefficient de transfert de matière du côté liquide k_L est calculé d'après le modèle de cellule de turbulence (équation 2.30) et d'après le modèle de vitesse de glissement (équation 2.36). De manière général le $k_L a$ global obtenu par le modèle compartimental est compris entre les valeurs extrêmes fournies par les corrélations tel qu'illustré à la Figure 4.10. On remarque toutefois un meilleur accord avec les corrélations de Higbie, Shah et al. et Calderbank et Moo-Young. Par ailleurs, le modèle de vitesse de glissement semble fournir un meilleur estimé du $k_L a$ global ($4{,}9 \times 10^{-2}\ s^{-1}$) que le modèle de cellule de turbulence ($6{,}0 \times 10^{-2}\ s^{-1}$), si on le compare à toutes les corrélations. L'écart maximal, est d'environ +200% avec le modèle de cellule de turbulence et la corrélation d'Ozturk et al. et +150% avec le modèle de vitesse de glissement.



a. Diamètres de bulle moyen (2.14).



b. $k_L a$ d'après le modèle de vitesse de glissement (s) (2.36) et le modèle de cellule de turbulence (e) (2.30). Valeurs absolues (gauche) et contribution au transfert de matière global (droite).

Figure 4.9 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 4{,}27$ cm/s (cas A1-4). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises.

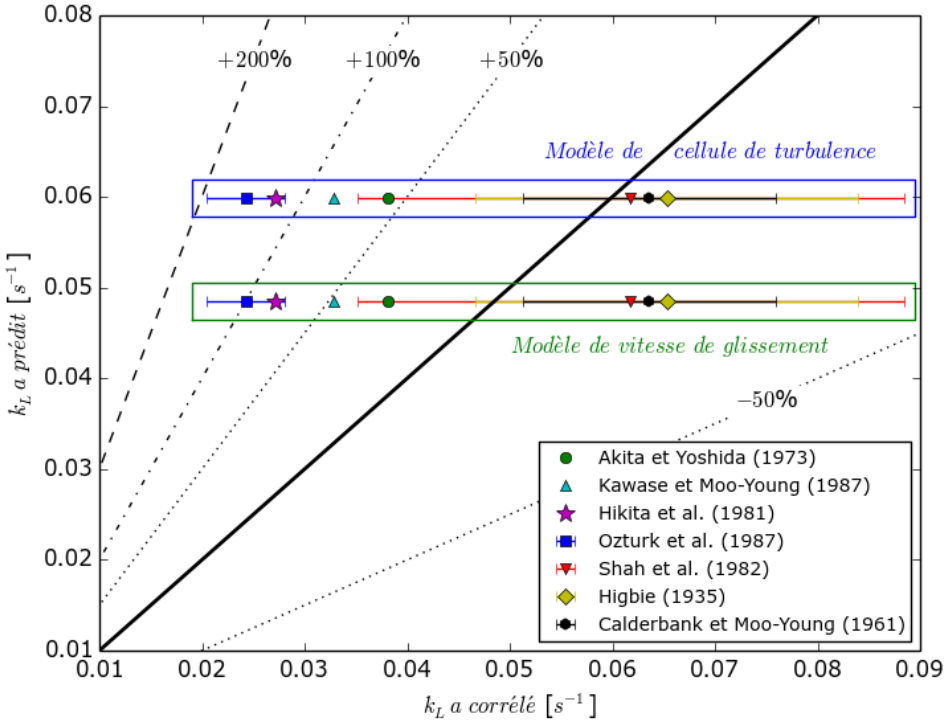


Figure 4.10 – Comparaison entre les $k_L a$ globaux calculés par deux modèles (cellule de turbulence (équation 2.30) et vitesse de glissement (équation 2.36)) et obtenus par diverses corrélations (section 2.4.3) (cas A1-4).

4.4.3 Effet des conditions opératoires sur le modèle compartimental

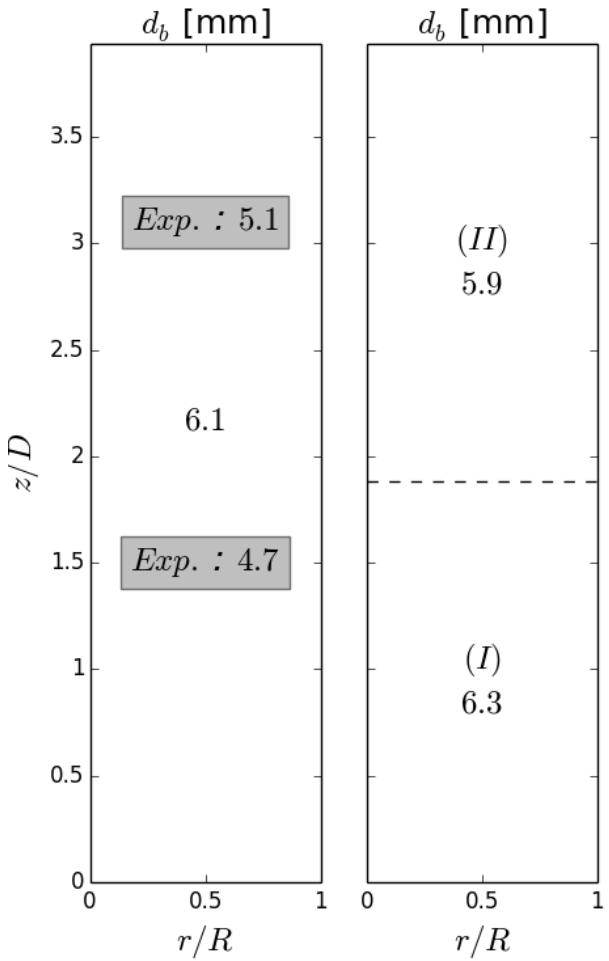
Dans cette section, nous examinons l'influence d'autres conditions opératoires sur le modèle compartimental. Trois autres vitesses superficielles du gaz sont utilisées : 2,82 – 6,51 et 7,42 cm/s (cas B1-3, C1-2 et D1-2). Le diamètre de bulle constant utilisé pour réaliser ces nouvelles simulations doit être choisi en accord avec les données expérimentale de Esmaeili et al. (Esmaeili et al., 2015). À partir de la Figure 3.1, les diamètres constants de bulle retenus sont pour les trois nouvelles vitesses superficielles de gaz respectivement de 4,9 – 5,8 et 6,0 mm.

Suivant la méthodologie précédente reposant sur les patrons d'écoulements moyens, il faut de nouveau construire les différents compartiments. Quelles que soient les conditions opératoires, elles mènent à la formation des deux mêmes compartiments ; la frontière qui sépare les deux compartiments est approximativement à la même hauteur. Les résultats pour ces trois cas sont

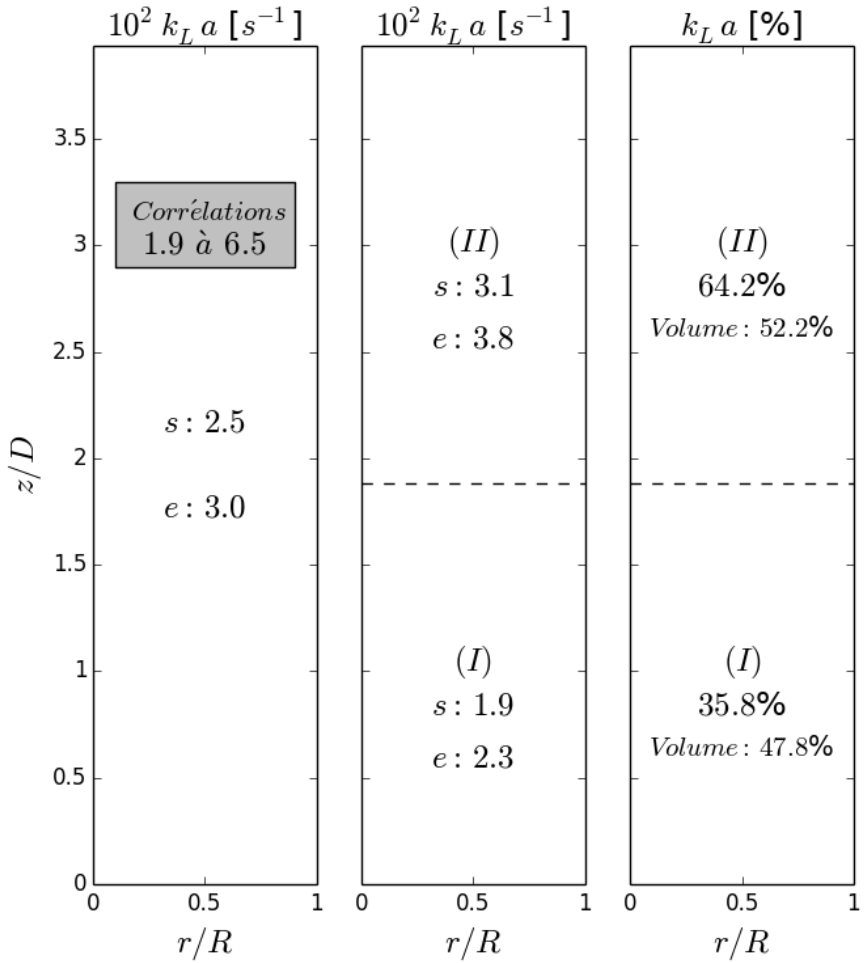
présentés à la Figure 4.11 pour $u_G = 2{,}82$ cm/s, à la Figure 4.12 pour $u_G = 6{,}51$ cm/s et à la Figure 4.13 pour $u_G = 7{,}42$ cm/s. De plus, le coefficient de transfert de matière global sur l'ensemble du réacteur est de nouveau calculé en fonction des conditions opératoires. Les comparaisons des résultats pour chacune des conditions aux corrélations sont rassemblées à la Figure 4.14.

Pour la vitesse superficielle la plus faible ($u_G = 2{,}82$ cm/s), le diamètre de bulle obtenu par le modèle à deux compartiments est surestimé dans le compartiment du bas (4,7 mm expérimentalement contre 6,3 mm d'après le modèle). Par contre, l'estimation du diamètre en haut est plus proche de la valeur expérimentale (5,1 mm expérimentalement contre 5,9 mm pour le modèle). Pour les vitesses superficielles de gaz de 6,51 et 7,42 cm/s, une sous-estimation systématique du diamètre de bulle est observée pour l'ensemble des compartiments. La surestimation du modèle est supérieure à 1 mm et augmente encore quand la vitesse superficielle de gaz augmente.

En ce qui concerne le coefficient de transfert de matière global, une bonne prédiction est obtenue pour 2,82 cm/s. Pour les deux modèles testés, le $k_L a$ global déterminé par le modèle est compris à plus ou moins 50% de la quasi-totalité des corrélations de la littérature. Néanmoins, une surestimation de ce $k_L a$ global est observée pour les vitesses superficielles de gaz plus élevées. La raison de cette mauvaise estimation découle des diamètres trop faibles calculés précédemment aux vitesses les plus élevées. La mauvaise estimation des paramètres (d_b et $k_L a$) est due en partie à une surestimation de l'énergie dissipée dans le système par la simulation numérique. Il conviendrait donc d'améliorer le modèle numérique et plus particulièrement le modèle de turbulence qui ne semble ici pas adapté pour les plus hautes vitesses. Qui plus est, cette mauvaise estimation nous laisse entrevoir les limites de l'approche Euler-Euler.

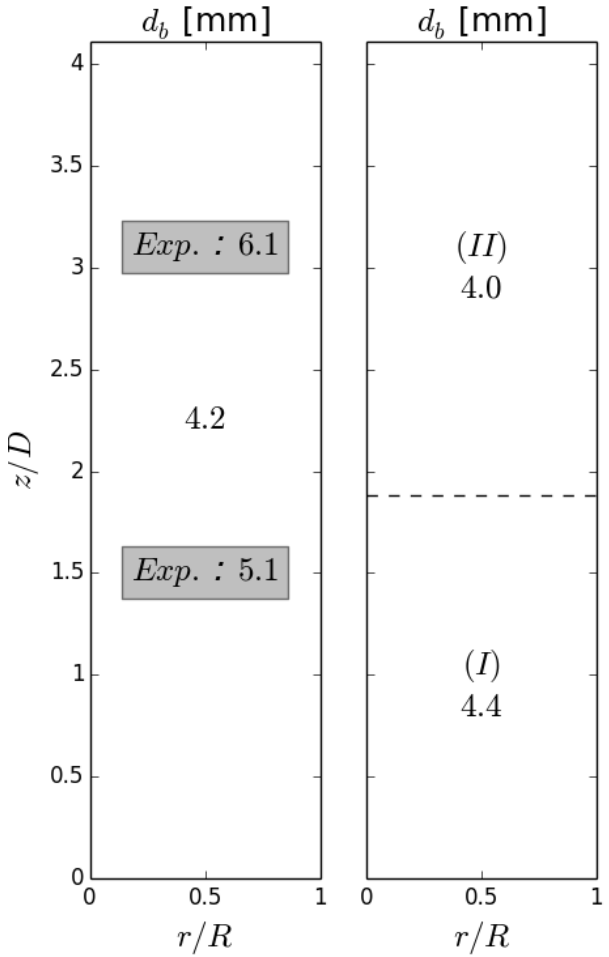


a. Diamètres de bulle moyen (2.14).

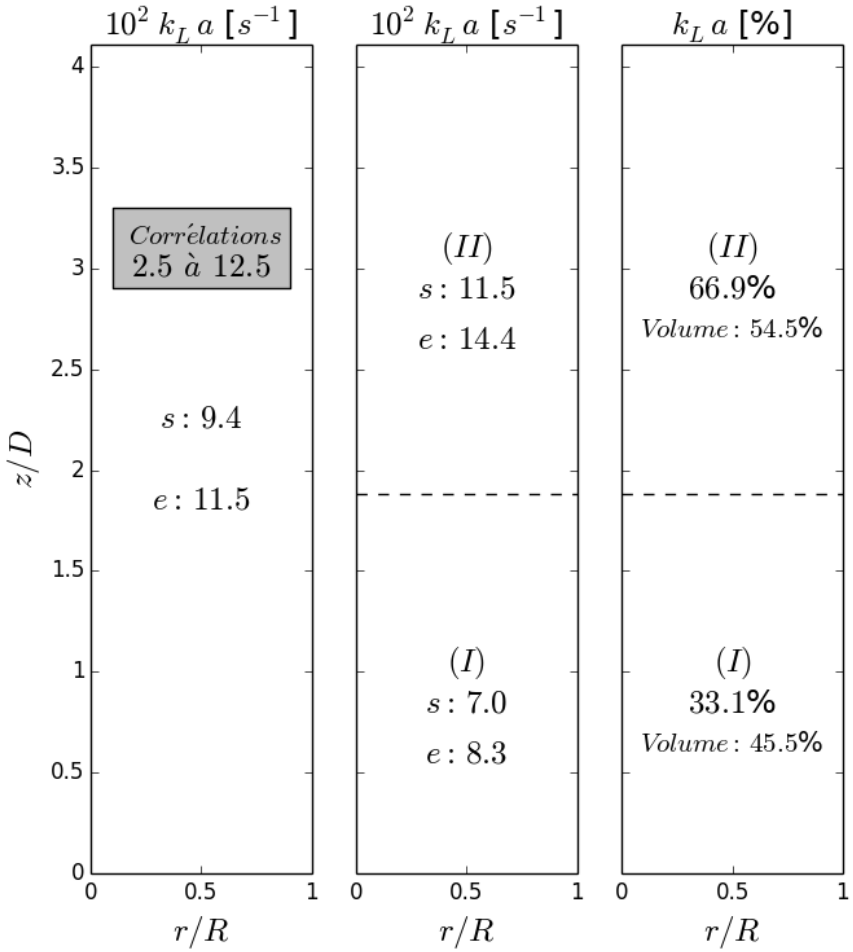


b. $k_L a$ d'après le modèle de vitesse de glissement (s) (2.36) et le modèle de cellule de turbulence (e) (2.30). Valeurs absolues (gauche) et contribution au transfert de matière global (droite).

Figure 4.11 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 2{,}82$ cm/s (cas C1-2). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises.

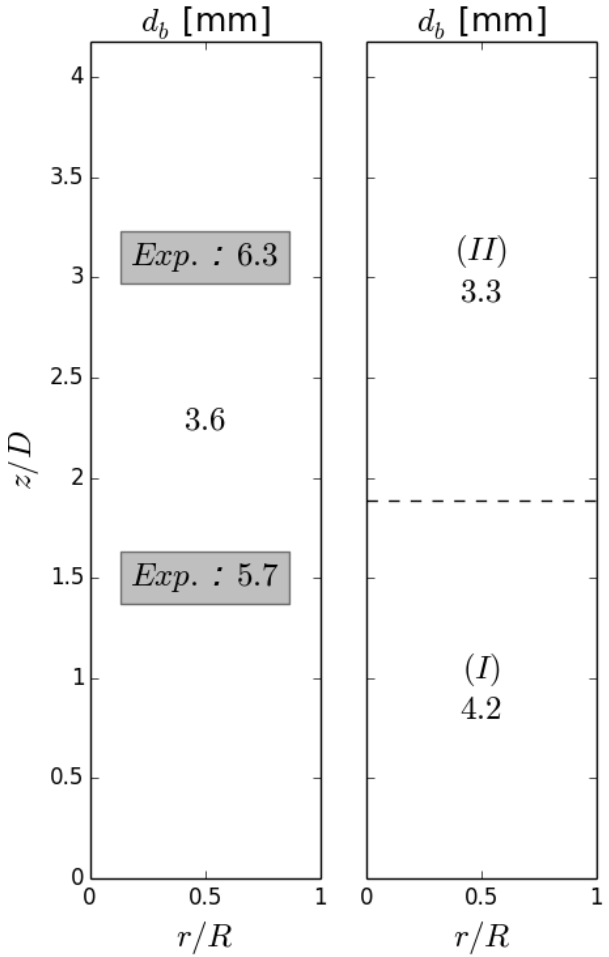


a. Diamètres de bulle moyen (2.14).

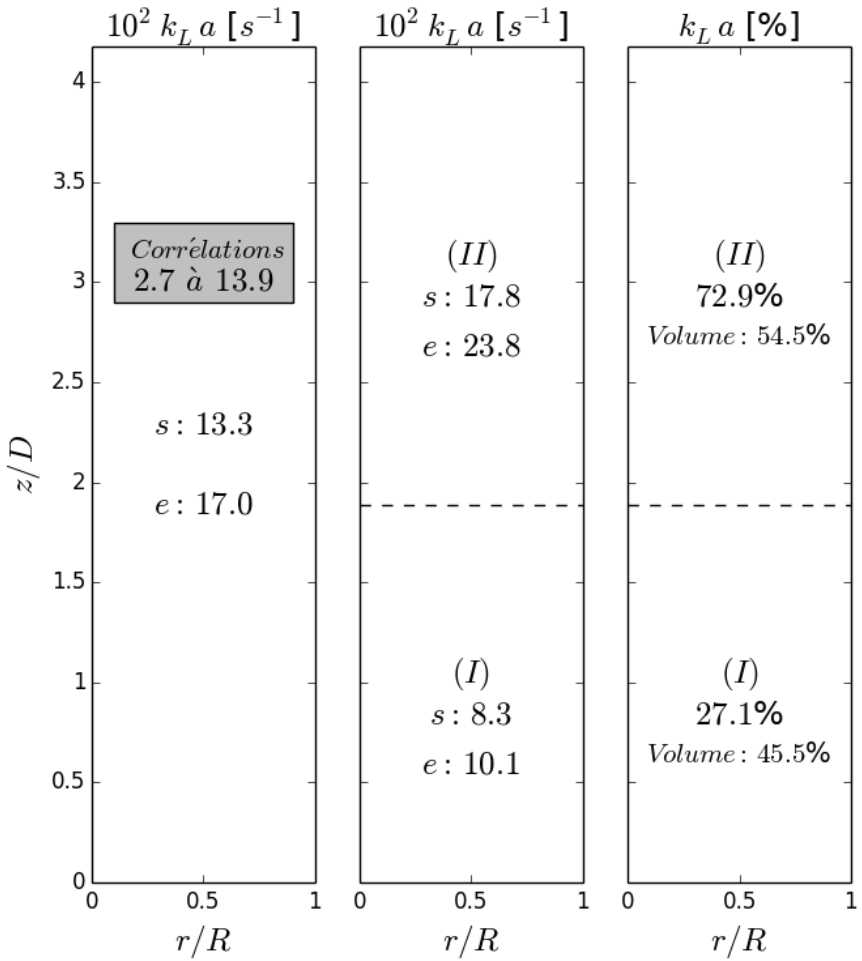


b. $k_L a$ d'après le modèle de vitesse de glissement (s) (2.36) et le modèle de cellule de turbulence (e) (2.30). Valeurs absolues (gauche) et contribution au transfert de matière global (droite).

Figure 4.12 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 6{,}51$ cm/s (cas D1-2). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises.

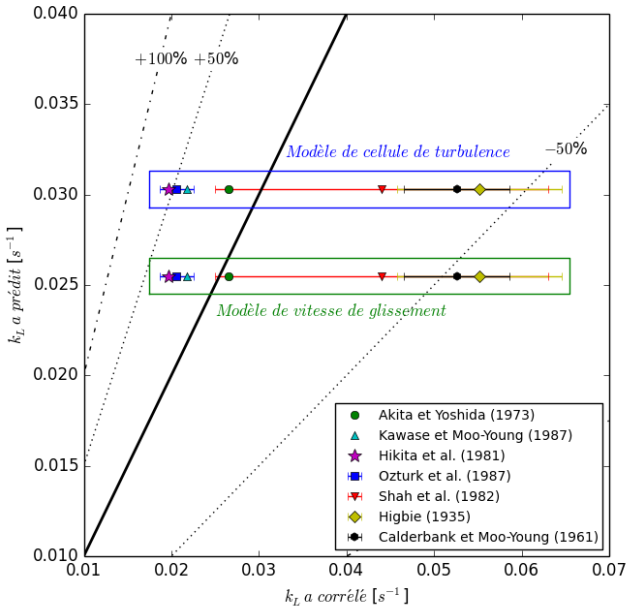


a. Diamètres de bulle moyen (2.14).

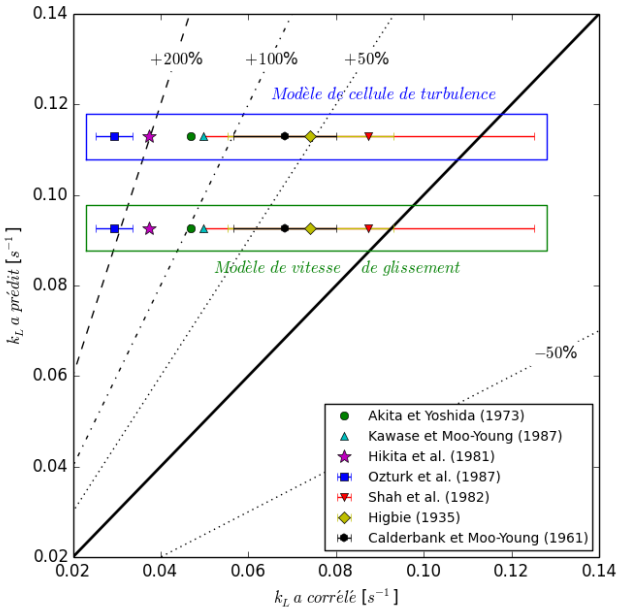


b. $k_L a$ d'après le modèle de vitesse de glissement (s) (2.36) et le modèle de cellule de turbulence (e) (2.30). Valeurs absolues (gauche) et contribution au transfert de matière global (droite).

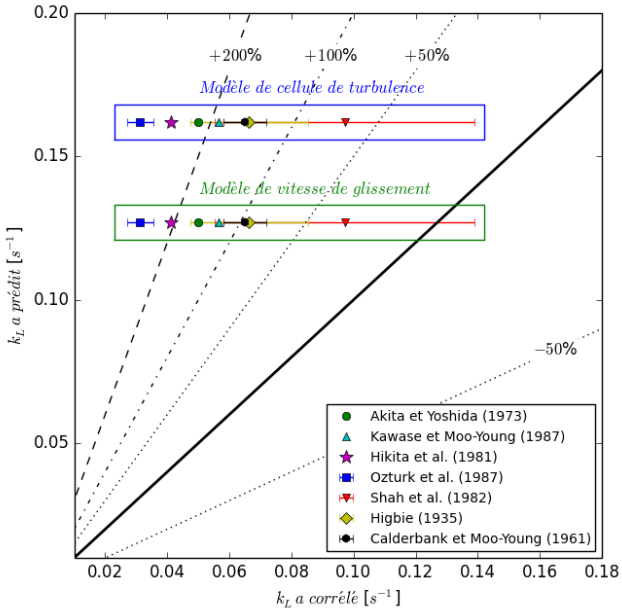
Figure 4.13 – Diamètres de bulle moyens d_b (a) et coefficients de transfert de matière $k_L a$ locaux (b) calculés d'après le modèle compartimental, pour un et deux compartiments et une vitesse superficielle de gaz $u_G = 7{,}42$ cm/s (cas B1-3). Les valeurs expérimentales (Esmaeili et al., 2015) ou issues de corrélations (section 2.4.3) sont indiquées dans les boîtes grises.



a. $u_G = 2{,}82$ cm/s



b. $u_G = 6{,}51$ cm/s



c. $u_G = 7{,}42$ cm/s

Figure 4.14 – Coefficient de transfert de matière global pour différentes vitesses superficielles de gaz et différents maillages (cas B1-3, C1-2 et D1-2).

CHAPITRE 5 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

Ce projet a consisté à développer un modèle compartimental pour les colonnes à bulles bâti sur l'énergie cinétique turbulente dissipée dans le milieu réactionnel. Ce modèle combiné à la simulation numérique de mécanique des fluides devait permettre l'estimation de propriétés hydrodynamiques locales telles que le diamètre moyen local de bulle ainsi que la contribution au transfert de matière des différentes zones du réacteur. Cette approche s'intéresse particulièrement aux réactions chimiques limitées par le transfert de matière puisque les réactions chimiques ne sont pas prises en compte dans ce modèle.

Toutefois, le système étudié n'est pas soumis à des changements aussi drastiques en ce qui concerne l'énergie dissipée que les cuves agitées desquelles s'inspire ce présent modèle. Les différences de turbulence entre les différentes zones sont en effet bien moins fortes dans les colonnes à bulles et *a fortiori* en régime homogène. Comme le nom de ce régime l'indique, les propriétés locales sont relativement homogènes dans l'ensemble du réacteur. Les modèles de turbulence de type RANS ont tendance à surestimer la turbulence. Cette approche énergétique n'a pas été jugée la plus pertinente compte tenu des faibles variations de turbulence observées au sein de la colonne à bulle.

Une autre approche basée sur le patron d'écoulement de la phase liquide a néanmoins été proposée. Ce modèle à deux compartiments offre une bonne prédiction des paramètres hydrodynamiques et de transfert de matière pour une vitesse superficielle de gaz faible ($u_G = 2{,}82$ et $4{,}27$ m/s) vis-à-vis des données expérimentales. Pour le coefficient de transfert de matière $k_L a$, à défaut de données expérimentales, seule le coefficient global a pu être comparé à diverses corrélations. Une étape suivante pourrait être de valider expérimentalement les coefficients locaux déterminés à l'aide d'une sonde à fibre optique.

Néanmoins, le modèle numérique proposé s'avère beaucoup plus limité pour obtenir des estimations des paramètres locaux pour une vitesse superficielle de gaz plus élevée ($u_G = 6{,}51$ et $7{,}42$ cm/s), toujours en régime homogène. Une attention particulière devrait être portée pour améliorer la pertinence du modèle numérique. Plus précisément, de nombreux modèles sont utilisés : le modèle à deux fluides, le diamètre de bulle constant, les forces interfaciales, la turbulence, sans oublier le calcul du diamètre de bulle local et celui de coefficient de transfert de matière côté liquide. De multiples hypothèses sont sous-jacentes à ces différents modèles et bien qu'ils soient individuellement validés expérimentalement, rien ne garantit que l'association de tous ces modèles demeure valide. Cependant, ce modèle proposé peut constituer un outil utile pour fournir une première estimation de la contribution relative au transfert de matière de chacun des compartiments au sein de la colonne à bulle.

En outre, le modèle actuel semble davantage approprié pour le régime homogène à faible concentration de gaz. En effet, plus le débit de gaz est important, moins le modèle numérique est fidèle aux observations expérimentales. Qui plus est, plus le débit de gaz est important, plus la distribution de tailles de bulles est large. Ainsi, l'utilisation d'un seul diamètre constant de bulle ne s'avère pas judicieux pour les fortes concentrations de gaz, pour lesquelles les phénomènes de coalescence et de rupture de bulles sont loin d'être négligeables.

Une fois le modèle numérique amélioré pour résoudre les limites constatées, il pourrait être intéressant de compléter ce travail avec l'étude du régime hétérogène car les modèles de simulation actuels sont encore inadéquats pour ce régime. Par ailleurs ce modèle pourrait être utilisé pour des colonnes à bulles avec des éléments interne afin de déterminer l'influence des inserts sur le transfert de matière et optimiser l'usage de ces inserts. Les réacteurs sous haute pression et haute température sont également mal connus, ce qui pourrait être une autre piste de développement de ce modèle compartimental. Finalement, l'influence de l'addition d'une phase solide pourrait aussi être étudiée.

BIBLIOGRAPHIE

Akita, K. Y., F. (1973). Gas Holdup and Volumetric Mass Transfer Coefficient in Bubble Columns. Effects of Liquid Properties. *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 12 (1)*, 76-80. doi:10.1021/i260045a015

Alves, S., Maia, C., & Vasconcelos, J. (2004). Gas-liquid mass transfer coefficient in stirred tanks interpreted through bubble contamination kinetics. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 43*(7), 823-830.

Antal, S., Lahey, R., & Flaherty, J. (1991). Analysis of phase distribution in fully developed laminar bubbly two-phase flow. *International Journal of Multiphase Flow, 17*(5), 635-652.

Bashiri, H., Bertrand, F., & Chaouki, J. (2016). Development of a multiscale model for the design and scale-up of gas/liquid stirred tank reactors. *Chemical Engineering Journal, 297*, 277-294. doi:10.1016/j.cej.2016.03.102

Bashiri, H., Heniche, M., Bertrand, F., & Chaouki, J. (2014). Compartmental modelling of turbulent fluid flow for the scale-up of stirred tanks. *Canadian Journal of Chemical Engineering, 92*(6), 1070-1081. doi:10.1002/cjce.21955

Behzadi, A., Issa, R. I., & Rusche, H. (2004). Modelling of dispersed bubble and droplet flow at high phase fractions. *Chemical Engineering Science, 59*(4), 759-770. doi:10.1016/j.ces.2003.11.018

Bezzo, F., & Macchietto, S. (2004). A general methodology for hybrid multizonal/CFD models: Part II. Automatic zoning. *Computers & Chemical Engineering, 28*(4), 513-525. doi:http://dx.doi.org/10.1016/j.compchemeng.2003.08.010

Bhavaraju, Mashelkar, R., & Blanch, H. (1978). Bubble motion and mass transfer in non-Newtonian fluids: Part I. Single bubble in power law and Bingham fluids. *Aiche Journal, 24*(6), 1063-1070.

Bhavaraju, Russell, T., & Blanch, H. (1978). The design of gas sparged devices for viscous liquid systems. *Aiche Journal, 24*(3), 454-466.

Bird, R. B., Stewart, W. E., & Lightfoot, E. N. (2002). Transport phenomena. 2nd. *New York*.

Bothe, M. (2016). *Experimental Analysis and Modeling of Industrial Two-Phase Flows in Bubble Column Reactors*. TU Hamburg-Harburg: Göttingen: Institute of Multiphase Flows.

Botton, R. C., Dominique; Charpentier, Jean-Claude (1979). Régimes d'écoulement et transfert de masse dans des colonnes à bulles de différents diamètres. *La Houille Blanche, 6-7*, 427-433. doi:10.1051/lhb/1979041

Bouaifi, M., Hebrard, G., Bastoul, D., & Roustan, M. (2001). A comparative study of gas hold-up, bubble size, interfacial area and mass transfer coefficients in stirred gas-liquid reactors and bubble columns. *Chemical Engineering and Processing, 40*(2), 97-111. doi:10.1016/s0255-2701(00)00129-x

Box, G. E., & Draper, N. R. (1987). *Empirical model-building and response surfaces* (Vol. 424): Wiley New York.

Bukur, D. B. (1983). Some comments on models for Fischer-Tropsch reaction in slurry bubble column reactors. *Chemical Engineering Science, 38*(3), 440-446.

Calderbank. (1958). Physical rate processes in industrial fermentation, Part I: The interfacial area in gas-liquid contacting with mechanical agitation. *Trans. Instn. Chem. Engrs., 36*, 443-463.

Calderbank, & Moo-Young, M. B. (1961). The continuous phase heat and mass-transfer properties of dispersions. *Chemical Engineering Science, 16*(1), 39-54. doi:http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509(61)87005-X

Calderón, C. J., & Ancheyta, J. (2016). Modeling of Slurry-Phase Reactors for Hydrocracking of Heavy Oils. *Energy & Fuels, 30*(4), 2525-2543.

Coker, A. K. (2015). Ludwig's Applied Process Design for Chemical and Petrochemical Plants, Volume 3 (4th Edition): Elsevier.

Davies, J. (1985). Drop sizes of emulsions related to turbulent energy dissipation rates. *Chemical Engineering Science, 40*(5), 839-842.

Deckwer, W. D., Nguyen-Tien, K., Kelkar, B., & Shah, Y. (1983). Applicability of axial dispersion model to analyze mass transfer measurements in bubble columns. *Aiche Journal, 29*(6), 915-922.

Degaleesan, S., Dudukovic, M., & Pan, Y. (2001). Experimental study of gas-induced liquid-flow structures in bubble columns. *Aiche Journal, 47*(9), 1913-1931. doi:10.1002/aic.690470904

Degaleesan, S., Dudukovic, M. P., Toseland, B. A., & Bhatt, B. L. (1997). A two-compartment convective-diffusion model for slurry bubble column reactors. *Industrial & Engineering Chemistry Research, 36*(11), 4670-4680.

Dudley, J. (1995). MASS-TRANSFER IN BUBBLE-COLUMNS - A COMPARISON OF CORRELATIONS. *Water Research, 29*(4), 1129-1138. doi:10.1016/0043-1354(94)00253-4

Dudukovic, M. P., Larachi, F., & Mills, P. L. (1999). Multiphase reactors–revisited. *Chemical Engineering Science, 54*(13-14), 1975-1995.

Esmaeili, A., Guy, C., & Chaouki, J. (2015). The effects of liquid phase rheology on the hydrodynamics of a gas–liquid bubble column reactor. *Chemical Engineering Science, 129*, 193-207.

Esmaeili, A., Guy, C., & Chaouki, J. (2016). Local hydrodynamic parameters of bubble column reactors operating with non-Newtonian liquids: Experiments and models development. *Aiche Journal, 62*(4), 1382-1396.

Esmaeili Khalil Saraei, A. (2015). *Hydrodynamics of Bubble Column Reactors Operating with Non-Newtonian Liquids.* École Polytechnique de Montréal.

Ferziger, J. H. P., Milovan. (2002). *Computational Methods for Fluid Dynamics* (3 ed.): Springer-Verlag Berlin Heidelberg.

Frossling, N. (1938). Uber die verdunstung fallender tropfen. *Beitr. Geophys. Gerlands, 52*, 170-216.

Greenshields, C. (2015). OpenFOAM v3 User Guide: 3.5 Standard solvers. Retrieved from https://cfd.direct/openfoam/user-guide/v3-standard-solvers/

Groen, J. (2004). Scales and structures in bubbly flows. *Technische Universiteit Delft*.

Gupta, P., Ong, B., Al-Dahhan, M. H., Dudukovic, M. P., & Toseland, B. A. (2001). Hydrodynamics of churn turbulent bubble columns: gas–liquid recirculation and mechanistic modeling. *Catalysis Today, 64*(3), 253-269.

Harriott, P. (2002). Chemical Reactor Design. In I. Marcel Dekker (Ed.), (pp. 263-320). New York.

Haut, B., & Cartage, T. (2005). Mathematical modeling of gas-liquid mass transfer rate in bubble columns operated in the heterogeneous regime. *Chemical Engineering Science, 60*(22), 5937-5944. doi:10.1016/j.ces.2005.04.022

Higbie, R. (1935). The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure. *Trans. AIChE, 31*, 365-389.

Hikita, H., Asai, S., Tanigawa, K., Segawa, K., & Kitao, M. (1981). The volumetric liquid-phase mass transfer coefficient in bubble columns. *The Chemical Engineering Journal, 22*(1), 61-69.

Hill, D., Wang, D., Gosman, A., & Issa, R. (1994). *Numerical prediction of bubble dispersion in shear layers.* Paper presented at the Third International Symposium on Multiphase Flow and Heat Transfer, Xian, China.

Hinze, J. (1955). Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion processes. *Aiche Journal, 1*(3), 289-295.

Holzinger, G. (2017). OpenFOAM: A little User-Manual: Johannes Kepler University, Linz, Austria.

Hughmark, G. (1967). Holdup and mass transfer in bubble columns. *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 6*(2), 218-220.

Ishii, M., & Zuber, N. (1979). Drag coefficient and relative velocity in bubbly, droplet or particulate flows. *Aiche Journal, 25*(5), 843-855.

Issa, R. (1992). A simple model for Ct. *Private Communication, December*.

Jakobsen, Lindborg, H., & Dorao, C. A. (2005). Modeling of bubble column reactors: Progress and limitations. *Industrial & Engineering Chemistry Research, 44*(14), 5107-5151. doi:10.1021/ie049447x

Jakobsen, Sannæs, B. H., Grevskott, S., & Svendsen, H. F. (1997). Modeling of vertical bubble-driven flows. *Industrial & Engineering Chemistry Research, 36*(10), 4052-4074.

Kantarci, N., Borak, F., & Ulgen, K. O. (2005). Bubble column reactors. *Process Biochemistry, 40*(7), 2263-2283. doi:10.1016/j.procbio.2004.10.004

Kawase, Y., Halard, B., & Moo-Young, M. (1987). Theoretical prediction of volumetric mass transfer coefficients in bubble columns for Newtonian and non-Newtonian fluids. *Chemical Engineering Science, 42*(7), 1609-1617.

Krishna, R., & van Baten, J. M. (2003). Mass transfer in bubble columns. *Catalysis Today, 79*(1-4), 67-75. doi:10.1016/s0920-5861(03)00046-4

Kulkarni. (2007). Mass transfer in bubble column reactors: Effect of bubble size distribution. *Industrial & Engineering Chemistry Research, 46*(7), 2205-2211. doi:10.1021/ie061015u

Kulkarni, A. V., & Joshi, J. B. (2011a). Design and selection of sparger for bubble column reactor. Part I: Performance of different spargers. *Chemical Engineering Research and Design, 89*(10), 1972-1985. doi:http://dx.doi.org/10.1016/j.cherd.2011.01.004

Kulkarni, A. V., & Joshi, J. B. (2011b). Design and selection of sparger for bubble column reactor. Part II: Optimum sparger type and design. *Chemical Engineering Research and Design, 89*(10), 1986-1995. doi:http://dx.doi.org/10.1016/j.cherd.2011.01.014

Kumar, R., & Kuloor, N. (1970). The formation of bubbles and drops. *Advances in chemical engineering, 8*, 255-368.

Laborde-Boutet, C., Larachi, F., Dromard, N., Delsart, O., & Schweich, D. (2009). CFD simulation of bubble column flows: Investigations on turbulence models in RANS approach. *Chemical Engineering Science, 64*(21), 4399-4413. doi:10.1016/j.ces.2009.07.009

Lahey, R. T. (2005). The simulation of multidimensional multiphase flows. *Nuclear Engineering and Design, 235*(10-12), 1043-1060. doi:10.1016/j.nucengdes.2005.02.020

Lamont, J. C., & Scott, D. (1970). An eddy cell model of mass transfer into the surface of a turbulent liquid. *Aiche Journal, 16*(4), 513-519.

Lee, J., & Meyrick, D. (1970). Gas-liquid interfacial areas in salt solutions in an agitated tank. *TRANSACTIONS OF THE INSTITUTION OF CHEMICAL ENGINEERS AND THE CHEMICAL ENGINEER, 48*(2), T37-&.

Lehr, F., & Mewes, D. (2001). A transport equation for the interfacial area density applied to bubble columns. *Chemical Engineering Science, 56*(3), 1159-1166.

Leibson, I., Holcomb, E. G., Cacoso, A. G., & Jacmic, J. J. (1956). Rate of flow and mechanics of bubble formation from single submerged orifices. II. Mechanics of bubble formation. *Aiche Journal, 2*(3), 300-306.

Levenspiel, O., & Bischoff, K. B. (1959). Backmixing in the design of chemical reactors. *Industrial & Engineering Chemistry, 51*(12), 1431-1434.

Levich, V. G. (1962). *Physicochemical hydrodynamics*: Prentice hall.

Linek, V., Kordač, M., & Moucha, T. (2005). Mechanism of mass transfer from bubbles in dispersions: part II: mass transfer coefficients in stirred gas–liquid reactor and bubble column. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 44*(1), 121-130.

Lohse, M., Alper, E., & Deckwer, W.-D. (1983). Modeling of batch catalytic chlorination of toluene in a bubble column. *Chemical Engineering Science, 38*(9), 1399-1409.

Marschall, H., Mornhinweg, R., Kossmann, A., Oberhauser, S., Langbein, K., & Hinrichsen, O. (2011). Numerical simulation of dispersed gas/liquid flows in bubble columns at high phase fractions using OpenFOAM®. Part I–Modeling basics. *Chemical Engineering & Technology, 34*(8), 1311-1320.

Miller, D. N. (1974). Scale-up of agitated vessels gas-liquid mass transfer. *Aiche Journal, 20*(3), 445-453.

Moraga, F., Larreteguy, A., Drew, D., & Lahey, R. (2003). Assessment of turbulent dispersion models for bubbly flows in the low Stokes number limit. *International Journal of Multiphase Flow, 29*(4), 655-673.

Nedeltchev, S., Nigam, K. D. P., & Schumpe, A. (2014). Prediction of mass transfer coefficients in a slurry bubble column based on the geometrical characteristics of bubbles. *Chemical Engineering Science, 106*, 119-125. doi:10.1016/j.ces.2013.11.030

Ozturk, S., Schumpe, A., & Deckwer, W.-D. (1987). Organic liquids in a bubble column: holdups and mass transfer coefficients. *Aiche Journal, 33*(9), 1473-1480.

Peeters, P. T. (2016). CFD of multiphase pipe flow: A comparison of solvers.

Pereyra, E., & Shoham, O. (2015). Unified maximum particle size prediction for turbulent dilute dispersions. *Journal of Petroleum Science and Engineering, 127*, 190-195.

Pourtousi, M., Sahu, J., & Ganesan, P. (2014). Effect of interfacial forces and turbulence models on predicting flow pattern inside the bubble column. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 75*, 38-47.

Rigopoulos, S., & Jones, A. (2003). A hybrid CFD - reaction engineering framework for multiphase reactor modelling: basic concept and application to bubble column reactors. *Chemical Engineering Science, 58*(14), 3077-3089. doi:10.1016/s0009-2509(03)00179-9

Rusche, H. (2003). *Computational fluid dynamics of dispersed two-phase flows at high phase fractions.* Imperial College London (University of London).

Schiller, L., & Naumann, A. (1935). Uber die grundlegenden Berechnungen bei der Schwerkraftaufbereitung. *Z. Vereines Ingenieure, 77*, 318-320.

Shah, Y., Kelkar, B. G., Godbole, S., & Deckwer, W. D. (1982). Design parameters estimations for bubble column reactors. *Aiche Journal, 28*(3), 353-379.

Shaikh, A., & Al-Dahhan, M. (2013). Scale-up of Bubble Column Reactors: A Review of Current State-of-the-Art. *Industrial & Engineering Chemistry Research, 52*(24), 8091-8108. doi:10.1021/ie302080m

Shaikh, A., & Al-Dahhan, M. H. (2007). A review on flow regime transition in bubble columns. *International Journal of Chemical Reactor Engineering, 5*.

Shimizu, K., Takada, S., Minekawa, K., & Kawase, Y. (2000). Phenomenological model for bubble column reactors: prediction of gas hold-ups and volumetric mass transfer coefficients. *Chemical Engineering Journal, 78*(1), 21-28. doi:10.1016/s1385-8947(99)00165-5

Shu, S., Esmaeili, A., Demol, R., Samih, S., Lakhdissi, E. M., Larachi, F., & Chaouki, J. (2018). Numerical simulation of bubble column reactors. *To be submitted*.

Shu, S., & Yang, N. (2013). Direct numerical simulation of bubble dynamics using phase-field model and lattice boltzmann method. *Industrial & Engineering Chemistry Research, 52*(33), 11391-11403.

Tomiyama, Kataoka, I., Fukuda, T., & Sakaguchi, T. (1995). Drag coefficients of bubbles (2nd Report, drag coefficient for a swarm of bubbles and its applicability to transient flow). *Kikai Gakkai Ronbunshuu, 61*, 588.

Tomiyama, Tamai, H., Zun, I., & Hosokawa, S. (2002). Transverse migration of single bubbles in simple shear flows. *Chemical Engineering Science, 57*(11), 1849-1858.

Wang, T., Wang, J., & Jin, Y. (2007). Slurry Reactors for Gas-to-Liquid Processes: A Review. *Industrial & Engineering Chemistry Research, 46*(18), 5824-5847. doi:10.1021/ie070330t

Wylock, C., Larcy, A., Cartage, T., & Haut, B. (2009). *Compartmental modelling of an industrial bubble column.* Paper presented at the Proceedings of the 8th World Congress of Chemical Engineering.

Youssef, A. A., Al-Dahhan, M. H., & Dudukovic, M. P. (2013). Bubble Columns with Internals: A Review. *International Journal of Chemical Reactor Engineering, 11*, 55. doi:10.1515/ijcre-2012-0023