POLYPUBLIE

Hydrodynamique et transfert de matière gaz-liquide dans un mélangeur muni de deux arbres excentrés

François Cabaret

Document en libre accès dans PolyPublie
Open Access document in PolyPublie

Date	2007
Type	Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis Thèse de doctorat/Ph.D. thesis
URL de PolyPublie PolyPublie URL	https://publications.polymtl.ca/8055/
Conditions d'utilisation Terms of use	© Tous droits réservés / All rights reserved
Référence Citation	Cabaret, F. (2007). Hydrodynamique et transfert de matière gaz-liquide dans un mélangeur muni de deux arbres excentrés [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. https://publications.polymtl.ca/8055/

Détails de la thèse
Thesis details

Directeurs de recherche Advisors	Philippe A. Tanguy
Programme Program	Non spécifié

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

HYDRODYNAMIQUE ET TRANSFERT DE MATIÈRE GAZ-LIQUIDE DANS UN MÉLANGEUR MUNI DE DEUX ARBRES EXCENTRÉS

FRANÇOIS CABARET

DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION

DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR

(GÉNIE CHIMIQUE)

AOUT 2007

© François Cabaret, 2007.

Library and Archives Canada

Published Heritage Branch

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque et Archives Canada

Direction du Patrimoine de l'édition

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence
ISBN: 978-0-494-35508-4
Our file Notre référence
ISBN: 978-0-494-35508-4

NOTICE:
The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:
L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

HYDRODYNAMIQUE ET TRANSFERT DE MATIÈRE GAZ-LIQUIDE DANS UN MÉLANGEUR MUNI DE DEUX ARBRES EXCENTRÉS

présentée par : CABARET François

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

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

M. CHAOUKI Jamal, Ph.D., président

M. TANGUY Philippe, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. BERTRAND François, Ph.D., membre

M. AL TAWEEL Adel M., Ph.D., membre

A ma bien-aimée Andréane qui, à travers sa patience inestimable, m'a démontré une très belle preuve d'amour.

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de recherche, le Professeur Philippe Tanguy, pour la confiance et l'aide financière qu'il m'a accordées en m'accueillant au sein de son unité de recherche. Sa capacité à motiver et encadrer mes travaux a été grandement appréciée.

J'adresse des remerciements tout aussi forts à Louis Fradette pour ses conseils pertinents, sa disponibilité et ses innombrables relectures.

Je suis également très reconnaissant envers l'équipe des techniciens du département de génie chimique qui ont su faire un travail de qualité tout au long du projet.

Je tiens à remercier Mélina Hamdine pour sa patience et sa disponibilité lors des formations au laboratoire de rhéologie.

Je n'oublie pas l'aide précieuse que j'ai reçue de Saïd Bikhir et de Stéfanie Vo lors des manipulations.

Je pense aussi bien évidemment aux secrétaires de l'URPEI pour leur gaieté et leur aide quotidienne.

Enfin, je remercie naturellement l'ensemble des étudiants que j'ai pu rencontrer à l'URPEI pour leurs discussions chaleureuses, stimulantes et constructives.

RÉSUMÉ

En raison de ces capacités de dispersion gaz-liquide, le mélangeur agité mécaniquement est un réacteur clef dans les procédés physico-chimiques. Suivant la viscosité du liquide mélangé, deux configurations de mélangeur sont couramment employées. D'une part, lorsque le liquide est peu visqueux, on emploie habituellement un mobile disperseur générant un grand cisaillement dans une cuve munie de chicanes. D'autre part, lorsque le liquide à mélanger est rhéologiquement complexe (visqueux ou non newtonien), un mobile râclant apparaît indispensable pour permettre une bonne distribution du gaz dans l'ensemble de la cuve et l'emploi de chicanes est à proscrire en raison du mauvais mélange derrière celles-ci.

Dans de nombreux procédés de mélange gaz-liquide les propriétés rhéologiques du milieu évoluent au cours du mélange, il apparaît ainsi nécessaire de développer des réacteurs flexibles permettant de disperser efficacement un gaz dans un liquide présentant une large gamme de viscosités. Les solutions développées jusqu'à maintenant étant relativement complexes au niveau mécanique, l'utilisation d'une cuve non chicanée munie de deux agitateurs excentrés est étudiée dans cette thèse.

L'objectif général de cette thèse est de caractériser la consommation de puissance, l'hydrodynamique ainsi que le transfert de matière gaz-liquide d'un mélangeur muni de deux arbres excentrés.

La première partie de ce travail porte sur le développement d'une nouvelle technique de mesure du temps de mélange par analyse d'images permettant d'étudier efficacement le mélangeur proposé. L'intérêt de cette technique est de rendre reproductible la mesure du temps de mélange par coloration-décoloration, tout en donnant davantage d'informations sur l'évolution du mélange dans la cuve en fonction du temps. Il est ainsi montré que les courbes de mélange générées par cette technique permettent de caractériser les phénomènes de zones mortes et de compartimentation de l'écoulement.

La deuxième partie étudie les effets de l'excentrage d'un mobile d'agitation opérant en régime laminaire sur sa consommation de puissance et son efficacité de mélange. En utilisant la technique de détermination du temps de mélange par analyse d'images développée en première partie, il a été montré que le nombre de Reynolds et l'excentrage ont tous les deux des effets importants sur la destruction des zones ségrégées entourant une turbine Rushton en régime laminaire. Concernant la consommation de puissance de l'agitateur, il a été découvert que l'excentrage n'a aucun effet sur celle-ci, d'où l'intérêt d'excentrer un mobile en régime laminaire. Les résultats concluent qu'une turbine Rushton peut mélanger l'ensemble d'une cuve de mélange en régime laminaire seulement si le nombre de Reynolds et l'excentrage de l'agitateur sont au-dessus de certaines valeurs critiques.

La troisième partie de ce travail concerne l'étude de l'hydrodynamique du mélangeur à deux arbres excentrés en régime laminaire. En comparant le mélangeur proposé à

d'autres configurations de mélangeur non chicanées, il apparaît que l'emploi de deux arbres excentrés empêche la formation d'une compartimentation de l'écoulement et favorise ainsi le mélange axial. Les deux modes de rotation des agitateurs ont été comparés et il apparaît que le mode contre-rotatif permet une meilleure collaboration entre les deux agitateurs. Concernant la consommation de puissance, il apparaît que les deux mobiles d'agitation n'interagissent pas du fait de leur éloignement.

Enfin, la dernière partie du travail évalue les performances de transfert de matière gaz-liquide du mélangeur à deux arbres de rotation excentrés. Lorsque des liquides newtoniens de faible à haute viscosité sont employés, il apparaît que le mélangeur à deux arbres de rotations excentrés opérant en mode contre-rotatif permet d'éviter la formation d'un vortex. Ainsi, dans le cas des fluides newtoniens, le mélangeur proposé permet d'avoir un bon transfert de matière sur une large gamme de viscosités. De plus, cette configuration apparaît très flexible pour contrôler l'homogénéisation du transfert de matière dans la cuve. Cependant, la configuration à arbre excentré proposée doit être évitée pour disperser un gaz dans un liquide non newtonien rhéofluidifiant. En effet, il apparaît que les configurations utilisant un arbre de rotation centré donne de bien meilleurs transferts de matière.

ABSTRACT

Because the mechanically agitated tanks are efficient gas-liquid contactors, they are widely used in the process industry. According to the liquid viscosity processed, two types of mixer are commonly used. On the one hand, with low viscosity liquids, we use small open impellers with high shearing action in a baffled tank. On the other hand, when rheologically complex liquids are mixed (viscous or non-Newtonian), close clearance impellers appear necessary to efficiently distribute a gas in the liquid and baffles have to be avoided due to the poor mixing behind them.

In some processes, the rheological properties of the media being mixed evolve during the process. It appears therefore that flexible gas-liquid reactors have to be developed to deal with a large range of viscosities. As flexible reactors developed in the past were mechanically complex, the solution tested in this thesis is to simply use an unbaffled dual off-centered shaft mixer.

The main objective of this thesis is to characterize the power consumption, the hydrodynamics and the gas-liquid mass transfer performances of the unbaffled dual off-centered shaft mixer.

The first part of this work deals with the improvement of the color-discoloration technique to determine the mixing time. By using digital image analysis, the new

technique appears reproducible and gives information on mixing kinetics. Thus, phenomena like flow compartmentalization or segregated region can be quantify.

The second part studies the effects of shaft eccentricity on power consumption and mixing efficiency in laminar flow. By using the digital image analysis technique, it was shown that Reynolds number and shaft eccentricity have both important effects on the segregated region breakage in laminar flow. Concerning the power consumption, shaft eccentricity has shown to have no effect in laminar flow. Results conclude that a complete mixing can be obtained in laminar flow when Reynolds number and shaft eccentricity are above critical values.

The third part is focused on hydrodynamics performances of the dual shaft mixer in laminar flow. By comparing this reactor with some others unbaffled configurations, it appears that the use of two off-centered shafts prevent the formation of compartmentalization and improve axial mixing. The two rotating modes of the dual shaft mixer have been compared and it appears that the counter-rotating mode of the impellers improves the interaction between them. For the power consumption, it appears that the two impellers do not interact due to their distance.

Finally, the last part deals with the mass transfer performances of the dual shaft mixer. When low to high viscosity Newtonian liquids are used, it appears that the dual shaft mixer operating in counter-rotating mode prevents the vortex formation. Thus, with

Newtonian liquids, good mass transfer can be obtained on a wide range of viscosity. Moreover, this configuration appears flexible to control the mass transfer axial homogeneisation in the tank. However, the use of eccentric shaft must be avoided to disperse gas in non-Newtonian shear-thinning fluids. Indeed, it appears that a centered shaft gives far better mass transfer.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE IV

REMERCIEMENTS V

RÉSUMÉ VI

ABSTRACT IX

TABLE DES MATIÈRES XII

LISTE DES TABLEAUX XVI

LISTE DES FIGURES XVIII

LISTE DES ANNEXES XXVI

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS XXVII

CHAPITRE 1: INTRODUCTION 1

1.1 Le mélange gaz-liquide 1
1.2 Technologie des mélangeurs gaz-liquide 5
1.2.1 Mélange de liquides peu visqueux 5
1.2.2 Mélange de liquides rhéologiquement complexes 8
1.3 Problématique et solutions actuelles 10
1.4 Nouvelle approche : excentrage de l'arbre de rotation 15
1.5 Objectif général 19
1.6 Contenu de la thèse 21

CHAPITRE 2: REVUE DE LITTÉRATURE 22

2.1 Puissance d'agitation 22
2.1.1 Rappel sur la consommation de puissance 22
2.1.2 Effets de l'excentrage sur la consommation de puissance 30
2.1.3 Puissance d'agitation dans un mélangeur à plusieurs agitateurs indépendants 36

2.1.4 Synthèse 41
2.2 Temps de mélange 43
2.2.1 Techniques de mesure du temps de mélange 45
2.2.2 Effets de l'excentrage sur le temps de mélange 53
2.2.3 Temps de mélange pour les systèmes à plusieurs agitateurs indépendants 58
2.2.4 Synthèse 61
2.3 Écoulement gaz-liquide et transfert de matière 63
2.3.1 Régimes hydrodynamiques d'écoulement 64
2.3.2 Puissance consommée en milieu aéré 70
2.3.3 Transfert de matière gaz-liquide 74
2.3.4 Agitateurs excentrés et systèmes de mélange à plusieurs arbres indépendants 83
2.3.5 Synthèse 85
2.4 Bilan et objectifs spécifiques 86

CHAPITRE 3: PRÉSENTATION DES ÉTAPES DE TRAVAIL 89

CHAPITRE 4: MÉTHODOLOGIE 91

4.1 Présentation du montage pilote 91
4.2 Rhéologie des liquides utilisés 94
4.3 Mesure de la puissance d'agitation 95
4.4 Mesure du temps de mélange 96
4.5 Mesure du coefficient volumique de transfert de matière (k_la) 98

CHAPITRE 5: ARTICLE 1 : MIXING TIME ANALYSIS USING COLORIMETRIC METHODS AND IMAGE PROCESSING 100

5.1 Abstract 101
5.2 Introduction 102
5.3 Materials and methods 108
5.3.1 Equipment 108
5.3.2 Decolorization method 111
5.3.3 Image analysis 114
5.4 Results and Discussion 118
5.4.1 Validation of the method 118
5.4.2 Applications 130
5.4.3 Limitations of the method 136

5.5 Summary and conclusions....139
5.6 Acknowledgments....140
5.7 Notation....140
5.8 Literature Cited....142

CHAPITRE 6: ARTICLE 2 : EFFECT OF SHAFT ECCENTRICITY ON THE LAMINAR MIXING PERFORMANCE OF A RADIAL IMPELLER....144

6.1 Abstract....145
6.2 Introduction....146
6.3 Materials and methods....148
6.3.1 Equipment....148
6.3.2 Methods....150
6.4 Results and discussion....154
6.4.1 Effect of Reynolds number on mixing....154
6.4.2 Effect of shaft eccentricity on mixing....156
6.4.3 Power consumption....160
6.5 Conclusion....161
6.6 Acknowledgements....162
6.7 Nomenclature....162
6.8 References....164

CHAPITRE 7: ARTICLE 3 : HYDRODYNAMICS PERFORMANCE OF A DUAL SHAFT MIXER WITH VISCOUS NEWTONIAN LIQUIDS....166

7.1 Abstract....167
7.2 Introduction....168
7.3 Materials and methods....171
7.3.1 Equipment....171
7.3.2 Methods....174
7.4 Results and discussion....176
7.4.1 Comparison between the single shaft and the dual shaft configuration....176
7.4.2 Dual shaft configuration: comparison between the co-rotating mode and the counter-rotating mode....180
7.5 Summary and conclusions....189
7.6 Acknowledgment....190
7.7 Nomenclature....190
7.8 References....191

CHAPITRE 8: ARTICLE 4 : GAS-LIQUID MASS TRANSFER IN UNBAFFLED DUAL-IMPELLER MIXERS 194

8.1 Abstract 195
8.2 Introduction 196
8.3 Materials and methods 201
8.3.1 Apparatus 201
8.3.2 Fluids and rheology 202
8.3.3 Gas-liquid mass transfer 204
8.4 Results and discussion 205
8.4.1 Water 205
8.4.2 Viscous Newtonian fluids 216
8.4.3 Non-Newtonian fluids 220
8.5 Conclusions 223
8.6 Nomenclature 223
8.7 References 225

CHAPITRE 9: DISCUSSION GÉNÉRALE 229

CHAPITRE 10: CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 231

RÉFÉRENCES 232

ANNEXES 242

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 : Comparaison des divers contacteurs gaz-liquide pour un système air-eau (MIDDLETON et SMITH, 2004) 4

Tableau 2-1 : Effet de l'excentrage sur la consommation de puissance (liquides newtoniens) 32

Tableau 2-2 : Puissance d'agitation des systèmes à plusieurs agitateurs indépendants... 39

Tableau 2-3 : Comparaison des méthodes locales et globales pour la mesure du temps de mélange 47

Tableau 2-4 : Effet de l'excentrage sur le mélange en régime turbulent (liquides newtoniens) 55

Tableau 2-5 : Effet de l'excentrage sur le mélange en régime laminaire 57

Tableau 2-6 : Temps de mélange dans des systèmes à plusieurs agitateurs indépendants 60

Tableau 2-7 : Consommation de puissance d'une turbine Rushton en fonction du régime d'écoulement (SMITH et al., 1987) 72

Table 5-1 : Comparison of local and global measurement methods 103

Table 5-2 : Vessels and impeller dimensions of the three mixing systems 109

Table 5-3 : Composition of the acidic solutions added in the mixing systems 113

Table 5-4 : Indicators used in the experiments 114

Table 5-5 : Color separation with different indicators 129

Table 5-6 : Comparison of equation (5-5) model parameters for a centered and an off-centered impeller 133

Table 5-7 : Comparison of equation (5-4) model parameters for different image resolutions 138

Table 7-1 : Vessel and impellers dimensions 172

Table 7-2 : Comparison of the interaction parameter 185

Table 8-1 : Experimental set-up dimensions 201

Table 8-2 : Physical properties of Newtonian liquids at 21°C 203

Table 8-3 : Physical properties of non-Newtonian liquids at 21°C (for $\dot{\gamma} \in [50\text{-}300 s^{-1}]$) 203

Table 8-4 : Agitation – No agitation comparison for the single shaft configuration without baffles 211

Table 8-5 : Equations (8-10) and (8-11) model parameters for the different mixing systems 213

Table 8-6 : Homogenisation criteria values in water 214

Table 8-7 : Eq. 13 model parameters for the different mixing systems. 218

Table 8-8 : Effect of non-Newtonian apparent viscosity on the different configurations 222

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1 : Composition du réacteur gaz-liquide agité mécaniquement 2

Figure 1-2 : Cuve de mélange gaz-liquide équipée de turbines Rushton à 6 pales (SHULER et KARGI, 2002) 6

Figure 1-3 : Turbine à pales concaves (Documentation Chemineer, Inc.) 7

Figure 1-4 : Mélangeurs gaz-liquide à agitateurs multiples; a) turbines radiales, b) combinaison mobile radial – mobile axial (Documentation société Robin) 8

Figure 1-5 : Mobiles raclants utilisés pour disperser un gaz dans un liquide visqueux; a) ancre, b) Paravisc (Ekato), c) ruban hélicoïdal, d) Maxblend (Sumitomo) 9

Figure 1-6 : Configuration du réacteur gaz-liquide à deux agitateurs indépendants (SOLOMONS et LEGRYS, 1981) 12

Figure 1-7 : Agitateur coaxial turbine Rushton – ruban hélicoïdal (ESPINOSA-SOLARES et al., 1997) 13

Figure 1-8 : Exemples de mélangeurs coaxiaux industriels (à gauche un mélangeur de la compagnie Ekato et à droite deux mélangeurs de la compagnie VMI-Rayneri) 13

Figure 1-9 : Mélangeurs à arbre de rotation alternant périodiquement son sens de rotation (YOSHIDA et al., 2001) 14

Figure 1-10 : Excentrage de l'arbre de rotation 15

Figure 1-11 : Zones ségrégées se développant lors du mélange d'un liquide newtonien visqueux en régime laminaire (à gauche dans le cas d'une turbine Rushton et à droite dans le cas d'un mobile axial Intermig) 17

Figure 1-12 : Mélangeur composé de deux mobiles excentré proposé par Ascanio et al. (2002a, b) 18

Figure 1-13 : Dispositif DAT (Doppel-Axiale Turbulenz) - Documentation de la société Pfaudler 19

Figure 1-14 : Mélangeur gaz-liquide à deux arbres de rotation excentrés 20

Figure 2-1 : Allure de la courbe de puissance d'un mobile d'agitation 29

Figure 2-2 : Notation des dimensions caractéristiques du système de mélange 30

Figure 2-3 : Évolution de la puissance consommée en fonction de l'excentrage (NAGATA, 1975d) 33

Figure 2-4 : Évolution de la consommation de puissance en fonction de l'excentrage (turbine à 4 pales droites) (NISHIKAWA et al., 1979) 34

Figure 2-5 : Influence de l'excentrage sur la consommation de puissance (cercles pleins : PBT à 6 pales, cercles creux : PBT à 3 pales) (NOVAK et al., 1982) 34

Figure 2-6 : Évolution linéaire de N_P avec l'excentrage (KARCZ et al., 2005) 34

Figure 2-7 : Évolution du temps de mélange adimensionnel en fonction du nombre de Reynolds (EDWARDS et al., 1992) 44

Figure 2-8 : Méthode locale de détermination du temps de mélange 46

Figure 2-9 : Évolution du temps de mélange en fonction de l'excentrage (turbine à 4 pales droites) (NISHIKAWA et al., 1979) 56

Figure 2-10 : Turbine Rushton 63

Figure 2-11 : Différents types de turbine à pales concaves 64

Figure 2-12 : Dispersion d'un gaz dans un liquide 65

Figure 2-13 : Régimes d'écoulement des bulles de gaz dans le liquide 67

Figure 2-14: Cartes d'écoulement 69

Figure 2-15 : Allure de la puissance en milieu aéré en fonction du nombre d'aération (débit gazeux constant) 73

Figure 2-16 : Position du distributeur de gaz dans les études de HALL et al. (2005b,c) : a) Position α, b) Position β 84

Figure 4-1 : Montage pilote 92

Figure 4-2 : Distributeur de gaz torique 93

Figure 4-3 : Turbines Rushton 94

Figure 4-4 : Sonde polarographique pour doser l'oxygène 98

Figure 5-1 : Mixing systems: (a) single shaft configuration; (b) dual shaft configuration; (c) Maxblend configuration 109

Figure 5-2 : Impellers geometries: (a) Rushon turbine; (b) pitched blade turbine; (c) turbine α 109

Figure 5-3 : Image analysis flow chart 117

Figure 5-4 : Examples of video frames and area of interest (red rectangle) for the three configurations: single shaft (a), dual shaft (b) and Maxblend (c) 118

Figure 5-5 : Evolution of the RGB components: (a) pixel a, (b) pixel b as presented on Figure 5-6 119

Figure 5-6 : Pixel positions on the area of interest (frame at t=336.03s)..... 120

Figure 5-7 : Mixing efficiency over time using a separation based on the red light level..... 120

Figure 5-8 : Mixing efficiency as a function of the fraction of separation X at different times for the red component separation 121

Figure 5-9 : Mixing curves for red and green light level separation..... 122

Figure 5-10 : Evolution of the "mixed" pixel color for different X separations 123

Figure 5-11 : Mixing curves obtained in the reproducibility test..... 124

Figure 5-12 : Illuminations used in the robustness test..... 125

Figure 5-13 : Mixing curves with the red component separation (a) and the green component separation (b) for the illuminations presented in Figure 5-12..... 126

Figure 5-14 : Population curve of experiment 2 (a) and experiment 4 (b) presented in Figure 5-12..... 126

Figure 5-15 : Effect on mixing curves of the quantity of the acidic solution added (percent of the tank volume) 128

Figure 5-16 : Effect on mixing curves of the injection position: (a) mixing curves; (b) position in the tank 128

Figure 5-17 : Effect on mixing curves of the indicator used..... 130

Figure 5-18 : Mixing curves and models for a centered and an off-centered impeller.. 132

Figure 5-19 : Comparison of co and counter-rotating modes of a dual impeller system..... 134

Figure 5-20 : Pictures of mixing experiments using three different impellers 135

Figure 5-21 : Mixing efficiency of three different impellers illustrated by means of their mixing curves 136

Figure 5-22 : Effect of the camera resolution on the mixing curves 137

Figure 6-1 : Segregated regions (in dark) for radial (a) and axial (b) flow impellers 147

Figure 6-2 : Mixing system 149

Figure 6-3 : Schematic representation of the experimental device 149

Figure 6-4 : Example of video frame and area of interest (dark rectangle) 152

Figure 6-5 : Standard mixing curves 153

Figure 6-6 : Dimensionless mixing curves for different Reynolds numbers at E=34.3% 155

Figure 6-7 : Variation of M vs. Re for 7 shaft eccentricities at a constant number of impeller revolutions (N_R=2000) 156

Figure 6-8 : Dimensionless mixing curves for 7 shaft eccentricities at Re=7.5 157

Figure 6-9 : Pictures of the segregated regions for different shaft eccentricities at N_R=1500 for Re=7.5 (a) E=0, b) E=14.3%, c) E=25.7%, d) E=34.3%, e) E=40.9% and f) E=56.2%) 158

Figure 6-10 : Variation of M vs. the shaft eccentricity for different Reynolds number at a constant number of impeller revolutions (N_R=2000) 159

Figure 6-11 : Variation of M vs. Re and shaft eccentricity at a constant number of impeller revolutions (N_R=2000) 160

Figure 6-12 : Rushton turbine power curves for different shaft eccentricities 161

Figure 7-1 : Segregated regions and flow compartmentalization observed with a viscous Newtonian liquid 169

Figure 7-2 : Mixing systems: a) single shaft configuration (SS), b) dual shaft configuration (DS) 171

Figure 7-3 : Mixing curve comparison between the single shaft and the dual shaft configurations 177

Figure 7-4 : Video frames at different times for the different shaft configurations 178

Figure 7-5 : *M* against impellers energy consumption (absorbed mechanical energy) .. 180

Figure 7-6 : Dimensionless mixing time against Reynolds number in co- and counter-rotating modes 181

Figure 7-7 : Presentation of the different mixing zones in the dual shaft configuration 183

Figure 7-8 : Dimensionless mixing time versus Reynolds number for a single off-centered Rushton turbine 184

Figure 7-9 : Comparison between correlation and experimental results for the two rotating modes 186

Figure 7-10 : Velocity profiles for the dual shaft configuration at Re=50.7. a) XZ plane b) XY plane at C_2=T/3 (left: co-rotating, right: counter-rotating). Impeller A (on left) is added for reference only 187

Figure 7-11 : Evolution of tracer dispersion for the dual shaft configuration 188

Figure 7-12 : Pressure profiles for the dual shaft configuration at Re=50.7 in the XY plane at C_2=T/3: a) co-rotating, b) counter-rotating 189

Figure 8-1 : Dual impeller mixing systems: (a) single shaft centered with baffles, (b) single shaft centered without baffles, (c) single shaft off-centered, (d) dual shaft 200

Figure 8-2 : Gas-liquid mass transfer experimental setup 204

Figure 8-3 : Presentation of mass transfer experiments on the flow map (D/T=0.31) ..206

Figure 8-4 : Mass transfer coefficient in water against gas flow rate for the different configurations: (N=750 RPM, Fr=1.04) 207

Figure 8-5 : Dual shaft configuration operating in Co-rotating mode (on the left) and Counter-rotating mode (on the right) (Fr=0.17 (N=5 s^{-1}) and Fl=0.018 (Q=0.11 vvm)) 208

Figure 8-6 : Comparison of the flow patterns in the dual shaft configurations: A: co-rotating, B: counter-rotating 208

Figure 8-7 : Vortex formation observed in the off-centered shaft configuration: (a) Fr=0.46 (N=8.33 s^{-1}) and Fl=0.011 (Q=0.11 vvm), (b) Fr=1.04 (N=12.5 s^{-1}) and Fl=0.015 (Q=0.21 vvm) 209

Figure 8-8 : Surface vortex formation in centered shaft without baffles configuration (Fr=1.04 (N=12.5 s^{-1}) and Fl=0.072 (Q=1.03 vvm)) 210

Figure 8-9 : Agitation effect on mass transfer coefficients in water with the centered shaft configuration without baffles 211

Figure 8-10 : Experimental $k_l a$ in water compared with predicted values by equation (8-10) 213

Figure 8-11 : Mass transfer homogenisation when the upper impeller rotational speed was varied in the dual shaft configuration operating in counter-rotating mode (Q=4.45 L/min (0.3 vvm) and N_{Bottom}=450 RPM) 215

Figure 8-12 : Mass transfer coefficient in glucose solution (μ=15 mPa.s) against gas flow rate for the different configurations at Fr=1.04 216

Figure 8-13 : Agitation effect on mass transfer coefficients with the centered shaft configuration without baffles (μ=15 mPa.s) 217

Figure 8-14 : Effect of Newtonian viscosity on the mass transfer coefficients for the different configurations (Fr=1.04 (N=12.5 s^{-1}) and Fl=0.072 (Q=1.03 vvm)) 219

Figure 8-15 : Evolution of the homogenisation criteria with liquid viscosity 220

Figure 8-16 : Mass transfer coefficient in CMC solutions against gas flow rate for the different configurations (a) CMC 0.1%, N=16.67 s^{-1}, Fr=1.85; b) CMC 0.5%, N=16.67 s^{-1}, Fr=1.85, c) CMC 1%, N=25 s^{-1}, Fr=4.16) 221

Figure A1-1 : Détermination de la constante K_S 246

LISTE DES ANNEXES

Annexe 1 : Puissance d'agitation pour les fluides non newtoniens 242

Annexe 2 : Programme de traitement d'images 248

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

Symbole	Description	Unité
a	Surface interfaciale spécifique par unité de volume de liquide	(m^2/m^3)
a	Exposant	(-)
a	Paramètre du modèle de Moo-Young	(-)
a_0	Surface spécifique du gaz dans l'eau	(m^2/m^3)
A	Constante	(-)
A	Surface de la pale	(m^2)
A	Paramètre du modèle de Moo-Young	(-)
A	Surface mélangée dans le plan laser	(m^2)
A_{max}	Surface maximale de mélange dans le plan laser	(m^2)
c	Concentration d'une espèce dans le liquide	(mol/m^3)
c^0	Concentration d'une espèce dans le liquide à t=0	(mol/m^3)
c^*	Concentration d'une espèce dans le liquide lorsqu'on est à l'équilibre thermodynamique	(mol/m^3)
c_1	Constante	(-)
c_2	Constante	(-)
C	Distance entre le fond de la cuve et l'agitateur	(m)
C	Couple	(N.m)

C_D	Coefficient de traînée	(-)
d_{32}	Diamètre de Sauter des bulles de gaz	(m)
d_b	Diamètre des bulles de gaz	(m)
D	Diamètre du mobile d'agitation	(m)
e	Excentrage	(m)
f_α	Fonction de α	(-)
F	Force de traînée	(Newton)
Fr	Nombre de Froude	(-)
g	Accélération gravitationnelle	(m/s^2)
H	Hauteur du fluide dans la cuve de mélange	(m)
I	Intensité du courant électrique	(Ampère)
k_l	Coefficient de transfert de matière côté liquide	(m/s)
k_la	Coefficient volumique de transfert de matière gaz-liquide côté liquide	(s^{-1})
K	« Vitesse » de mélange adimensionnelle dans le plan laser	(-)
K_P	Constante de puissance d'agitation (fluide newtonien)	(-)
$K_P(m,n)$	Constante de puissance d'agitation (fluide non newtonien)	(-)
K_S	Constante de Metzner et Otto (ou constante de cisaillement)	(-)

K_ϕ	Rapport de constantes de puissance	(-)
m	Indice de consistance de la loi de puissance	($Pa \cdot s^n$)
m	« Vitesse » du mélange dans le plan laser	(s^{-1})
M	Paramètre	(-)
n	Indice d'écoulement de la loi de puissance	(-)
n	Nombre de mobiles d'agitation	(-)
n_B	Nombre de chicanes	(-)
N	Vitesse d'agitation	(tr/s)
N_A	Nombre d'aération	(-)
N_{CD}	Vitesse de rotation de l'agitateur permettant la dispersion complète du gaz dans la cuve de mélange	(tr/s)
N_F	Vitesse de rotation nécessaire au chargement de l'agitateur (transition : engorgé – chargé)	(tr/s)
N_P	Nombre de puissance	(-)
N_P'	Nombre de puissance pour un fluide non newtonien	(-)
N_{P0}	Nombre de puissance lorsque l'arbre est centré	(-)
N_{Pe}	Nombre de puissance lorsque l'arbre est excentré	(-)
N_{Pg}	Nombre de puissance en milieu aéré	(-)
$N_{P\,gen}$	Nombre de puissance généralisé	(-)
N_{Pmax}	Nombre de puissance pour la configuration « standard »	(-)

$N_{P\alpha}$	Nombre de puissance de l'agiateur α	(-)
$N_{P\alpha\,seul}$	Nombre de puissance de l'agiateur α lorsque les autres agitateurs sont arrêtés	(-)
N_Q	Nombre de pompage de l'agitateur	(-)
N_R	Vitesse de rotation permettant la recirculation complète du gaz (transition : chargé – recirculation)	(tr/s)
N_R	Nombre de révolutions de l'agitateur	(-)
P	Puissance d'agitation	(W)
P_0	Puissance d'agitation en milieu non aéré	(W)
$P_{chargé}$	Puissance du moteur lorsque la cuve est remplie	(W)
$P_{chicané}$	Puissance d'agitation pour la configuration « standard »	(W)
P_g	Puissance d'agitation en milieu aéré	(W)
P_{max}	Puissance d'agitation pour la configuration « standard »	(W)
P_T	Puissance totale reçue par le liquide	(W)
P_{vide}	Puissance du moteur lorsque la cuve de mélange est vide	(W)
Q_{GD}	Débit volumique de gaz injecté par le distributeur de gaz	(m^3/s)
Q_P	Débit volumique pompé par l'agitateur	(m^3/s)

r	Rapport entre la puissance consommée par un agitateur excentré dans une cuve non chicanée et la puissance consommée par le même agitateur en position centrée dans une cuve équipée de 4 chicanes ($w=T/10$)	(-)
R	Rayon de la cuve ($R=T/2$)	(m)
Re	Nombre de Reynolds	(-)
Re_{gen}	Nombre de Reynolds généralisé	(-)
Re_{MO}	Nombre de Reynolds suivant Metzner et Otto	(-)
Re_{Pl}	Nombre de Reynolds loi de puissance	(-)
Re_{α}	Nombre de Reynolds de l'agitateur α	(-)
S_{bulle}	Surface d'une bulle de gaz	(m^2)
t	Temps	(s)
t_m	Temps de mélange	(s)
t_{m0}	Temps de mélange lorsque l'arbre est centré	(s)
$t_{m\ Chicanes}$	Temps de mélange dans la configuration « standard »	(s)
t_{me}	Temps de mélange lorsque l'arbre est excentré	(s)
T	Diamètre de la cuve de mélange	(m)
T	Température	(Kelvin)
U	Vitesse de la pale	(m/s)
U	Tension électrique	(Volt)
v_s	Vitesse superficielle du gaz ($Q_{GD}/(\pi T^2/4)$)	(m/s)

v_t	Vitesse terminale de montée d'une bulle	(m/s)
V	Volume de liquide dans la cuve	(m^3)
V_{bulle}	Volume d'une bulle de gaz	(m^3)
v_s	Vitesse superficielle du gaz ($Q_{GD}/(\pi T^2/4)$)	(m/s)
We	Nombre de Weber	(-)

SYMBOLES GRECS :

Symbole	**Description**	**Unité**
α	Rétention gazeuse par volume de liquide	(%)
ϕ	Rapport de vitesse d'agitation	(-)
ϕ_i	Rapport de vitesse d'agitation entre l'agitateur i et l'agitateur α	(-)
Φ	Taux de transfert de matière par unité de volume de liquide	($mol/m^3.s$)
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement	(s^{-1})
$\dot{\gamma}_a$	Taux de cisaillement apparent	(s^{-1})
η	Viscosité dynamique non newtonienne	(kg/m.s)
η	Rendement du moteur électrique	(%)
η_0	Rendement du moteur électrique à vide	(%)
η_a	Viscosité dynamique apparente	(kg/m.s)

μ	Viscosité dynamique newtonienne	(kg/m.s)
μ_G	Viscosité dynamique du gaz	(kg/m.s)
μ_L	Viscosité dynamique du liquide	(kg/m.s)
Π_i	Nombre sans dimension	(-)
ρ	Masse volumique	(kg/m^3)
ρ_{air}	Masse volumique de l'air	(kg/m^3)
ρ_c	Masse volumique de la phase continue	(kg/m^3)
ρ_L	Masse volumique du liquide	(kg/m^3)
σ	Tension superficielle	($N.m^{-1}$)

NOMBRES ADIMENSIONNELS :

Symbole	**Description**
Fr	Nombre de Froude ($Fr=N^2D/g$)
K_P	Constante de puissance ($K_P=N_P.\mathrm{Re}$)
N_P	Nombre de puissance ou nombre de Newton ($N_P=P/\rho N^3D^5$)
N_Q	Nombre de pompage ($N_Q=Q_P/ND^3$)
Re	Nombre de Reynolds ($\mathrm{Re}=\rho ND^2/\mu$)
We	Nombre de Weber ($We=\rho N^2D^3/\sigma$)
N_A	Nombre d'aération ($N_A=Q_{GD}/ND^3$)

ABRÉVIATIONS :

CCD	Charge-Coupled Device
CFD	Computational Fluid Dynamics
CMC	Carboxyméthylcellulose
HSV	Modèle de couleur « Hue, Saturation, Value »
PBT	Turbine à pales inclinées (Pitched Blade Turbine)
PIV	Particle Image Velocimetry
pLIF	planar Laser-Induced Fluorescence
RPA	Réacteur Parfaitement Agité
RVB	Modèle de couleur Rouge-Vert-Bleu
RT	Turbine Rushton
TRE	Tomographie à Résistance Électrique
UV	Ultra Violet

CHAPITRE 1: INTRODUCTION

1.1 Le mélange gaz-liquide

Le mélange est une opération unitaire très répandue dans les procédés physico-chimiques industriels permettant de mener à bien les opérations suivantes (ZLOKARNIK, 2001b) :

- Homogénéisation de la concentration et de la température dans une cuve
- Intensification du transfert de chaleur entre un liquide agité et une surface d'échange
- Suspension (avec ou sans dissolution) d'un solide dans un liquide
- Dispersion (ou émulsification) de deux liquides immiscibles
- Dispersion d'un gaz dans un liquide (contact gaz-liquide)

Parmi l'ensemble de ces opérations de mélange, la dispersion d'un gaz dans un liquide est souvent réalisée grâce au réacteur gaz-liquide mécaniquement agité tel que présenté à la Figure 1-1. Pour réaliser la dispersion du gaz qui est injecté à travers un distributeur, un mobile d'agitation dit dispersant est mis en mouvement grâce à un arbre de rotation. L'objectif principal de ce réacteur est d'accroître la surface de contact entre la phase gazeuse et la phase liquide afin de favoriser le transfert de matière entre ces deux phases.

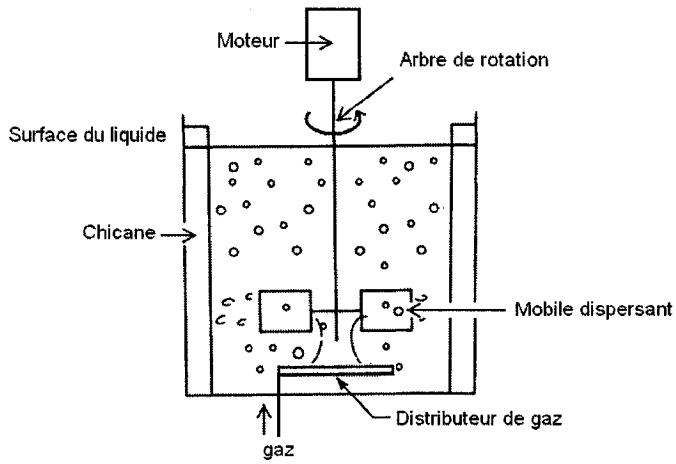


Figure 1-1 : Composition du réacteur gaz-liquide agité mécaniquement

Le Tableau 1-1 compare les performances du réacteur gaz-liquide agité mécaniquement avec les autres technologies de contacteurs gaz-liquide. Pour un procédé donné, le choix du réacteur dépend principalement des paramètres de réaction tels que l'enthalpie et la cinétique. Les divers contacteurs diffèrent ainsi par leurs débits de gaz et de liquide utilisés, la distribution des temps de séjour des phases, l'homogénéité des phases dans le réacteur ainsi que le transfert de matière réalisable.

Lorsque la réaction est limitée par le transfert de matière et que le liquide est la phase continue, le réacteur agité mécaniquement apparaît particulièrement intéressant car il permet d'avoir :

- une très bonne homogénéité des concentrations et des températures dans la cuve de mélange,
- un très bon transfert de chaleur aux parois,

- une très bonne surface spécifique entre les deux phases mélangées ce qui permet d'avoir un très bon transfert de matière même si le débit de gaz utilisé est faible,
- et enfin une flexibilité d'emploi assez grande car l'agitation est variable.

Notons que le mélangeur statique est le seul contacteur gaz-liquide ayant des avantages comparables à celui du réacteur agité mécaniquement. Cependant le faible temps de séjour des phases dans le mélangeur statique est le principal inconvénient qui limite son application.

Grâce à ces divers avantages, le mélangeur gaz-liquide agité mécaniquement est le réacteur le plus utilisé parmi l'ensemble des contacteurs gaz-liquide. De plus, sachant qu'environ 25 pour cent des réactions chimiques ont lieu entre un gaz et un liquide et que ces réactions sont majoritairement limitées par le transfert de matière (TATTERSON, 1991b), on comprend vite l'intérêt du réacteur agité.

On retrouve des réacteurs gaz-liquide agités mécaniquement dans divers secteurs de l'industrie tels que les industries chimiques (hydrogénation, chloration, oxydation, etc.), biochimiques (fermenteurs aérobiques), minières (cellules de flottation) ainsi que pour le traitement des eaux résiduaires.

Tableau 1-1 : Comparaison des divers contacteurs gaz-liquide pour un système air-eau (MIDDLETON et SMITH, 2004)

Type d'absorbeur	Vitesse superficielle typique du gaz $\times 10^2$ (m/s)	Distribution des temps de séjour		Temps de séjour du liquide	Rétention gazeuse	$k_l \times 10^4$ (m/s)	a (m^2/m^3)	$k_la \times 10^2$ (s^{-1})
		Gaz	Liquide					
Film liquide :								
Colonnes à garnissage et réacteurs gaz-liquide catalytiques à lit fixe	10 - 100	Piston	Piston	Très faible	0,05 – 0,1	0,3 - 2	2 - 35	0,06 - 7
Gaz dispersé sous forme de bulles dans le liquide :								
Colonnes à bulles	1 – 30	Piston	RPA	Infini	0,6 – 0,8	1 - 4	2,5 - 100	0,25 - 40
Colonnes à bulles garnies	1 – 20	Piston	RPA	Infini	0,5 – 0,7	1 - 4	10 -30	1 - 12
Colonnes à plateaux munies de calottes de barbotage	50 - 200	Piston	RPA	Infini	0,7	1 - 4	10 - 40	1 - 16
Colonne à plateaux sans goulottes	50 - 300	Piston	RPA	Variation limitée	0,5	1 - 4	10 - 20	1 - 8
Contacteurs agités mécaniquement	0,1 – 2	RPA	RPA	Infini	0,5 – 0,8	1 - 5	20 - 100	2 - 50
Contacteurs à conduite horizontale	5 - 300	Piston	Piston	Faible	0,1 – 0,8	2 - 6	10 - 40	2 - 24
Mélangeurs statiques	0,05 - 20	Piston	Piston	Faible	0,01 – 0,99	1 - 20	10 - 100	10 - 200
Liquide dispersé sous forme de gouttes dans un gaz :								
Colonnes à jet	5 - 300	RPA	Piston	Très faible	-	0,5 – 1,5	2 - 15	0,1 – 2,25
Colonnes à plateaux perforés en régime jet	100 - 300	Piston	RPA	Infini	-	1 - 3	5 - 20	0,5 - 6

Présentement, le mélange en cuve agitée est perçu comme une technologie mature ayant cependant un coût d'opération relativement important en raison du manque d'optimisation des systèmes de mélange. Il a ainsi été estimé en 1989 que le manque de connaissances approfondies dans le domaine du mélange était responsable d'une perte de 1 à 10 milliards de dollars américains par année pour les États-Unis d'Amérique (NIENOW et al., 1992). En effet, le réacteur est le cœur d'un procédé et tout écart par rapport au comportement idéal nuit au rendement et à la qualité du produit désiré. Ainsi, l'opération de mélange doit être en accord avec les exigences industrielles, qui sont : un temps de mélange minimum, une uniformité du mélange, une stabilité du procédé et une faible consommation énergétique.

1.2 Technologie des mélangeurs gaz-liquide

1.2.1 Mélange de liquides peu visqueux

Présentement, la plupart des mélangeurs gaz-liquide opérant en régime turbulent sont équipés d'une cuve munie de chicanes et possèdent plusieurs mobiles d'agitations de type turbulent placés le long de l'arbre de rotation comme il est illustré à la Figure 1-2. Pour information, on appelle « mobiles d'agitation de type turbulent » les agitateurs à faible diamètre habituellement opérés en régime turbulent.

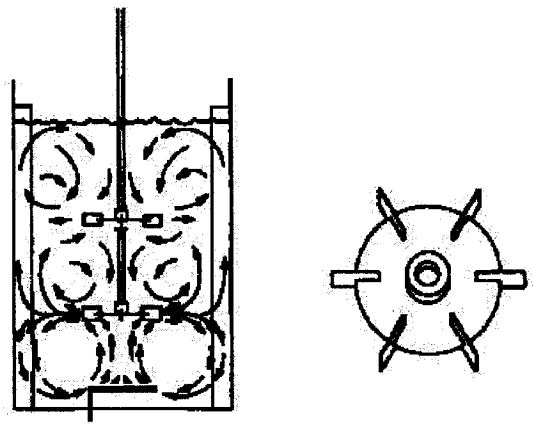


Figure 1-2 : Cuve de mélange gaz-liquide équipée de turbines Rushton à 6 pales (SHULER et KARGI, 2002)

Comparés aux réacteurs gaz-liquide avec un seul mobile d'agitation (c.f. Figure 1-1), les réacteurs à mobiles multiples ont de nombreux avantages tels que (FUJASOVA et al., 2007):

- une meilleure distribution du gaz dans le volume considéré,
- une augmentation du temps de séjour du gaz dans la cuve de mélange,
- une meilleure circulation du liquide dans le volume mélangé,
- et une meilleure distribution de la dissipation énergétique produite par les agitateurs (c'est-à-dire une meilleure distribution des contraintes de cisaillement dans la cuve).

Tous ces avantages conduisent en résumé à une utilisation plus rentable de la phase gazeuse, caractérisée par une diminution de la puissance consommée par unité de volume pour l'obtention d'un transfert de matière donné.

Pour disperser un gaz dans un liquide de faible viscosité, on utilise généralement des turbines radiales de petite taille et tournant à grande vitesse. La rotation de ces turbines génère un grand cisaillement, ce qui permet de casser les bulles de gaz pour en produire de plus petites. La turbine radiale la plus connue et la plus employée est la turbine Rushton (RT) (voir Figure 1-2). Cependant, de nouvelles turbines telles que les turbines à pales concaves sont bien plus efficaces d'un point de vue énergétique (voir Figure 1-3).

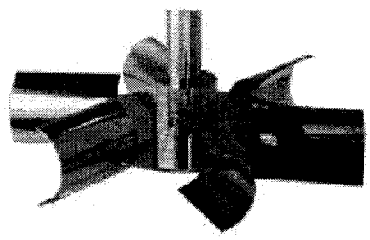


Figure 1-3 : Turbine à pales concaves (Documentation Chemineer, Inc.)

Les mélangeurs gaz-liquide à mobiles multiples peuvent être utilisés uniquement avec des turbines radiales placées le long de l'arbre de rotation (voir Figure 1-4a) ou, pour améliorer l'homogénéisation axiale dans le réacteur, une combinaison d'agitateurs radiaux et axiaux peut être envisagée (voir Figure 1-4b). Dans ce cas, un mobile radial est souvent placé à l'extrémité basse de l'arbre de rotation pour disperser le gaz et des mobiles axiaux sont placés le long de l'arbre pour créer une circulation axiale et éviter ainsi une compartimentation de l'écoulement.

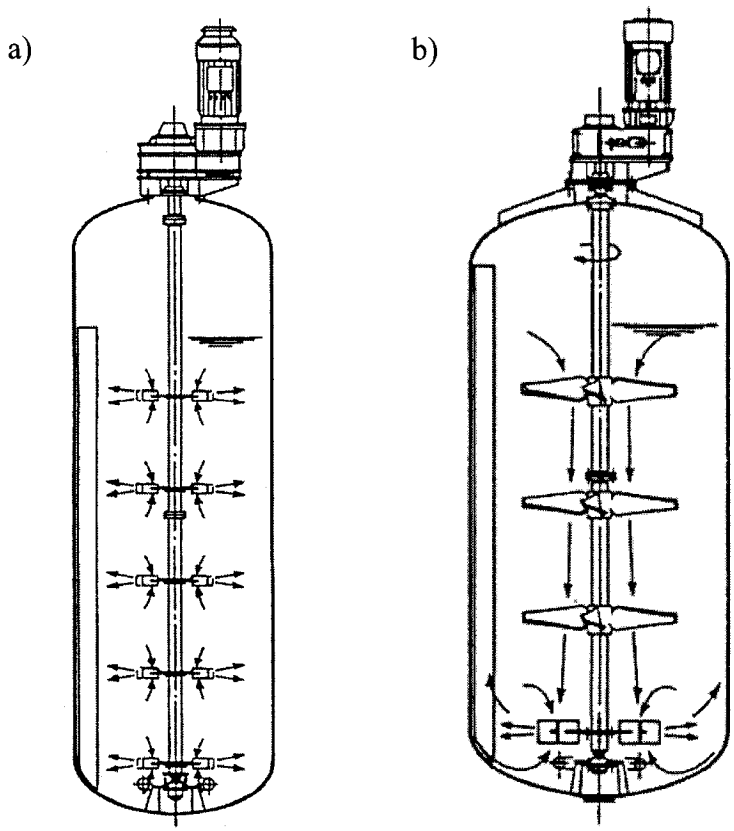


Figure 1-4 : Mélangeurs gaz-liquide à agitateurs multiples; a) turbines radiales, b) combinaison mobile radial – mobile axial (Documentation société Robin)

1.2.2 Mélange de liquides rhéologiquement complexes

Lorsqu'on doit disperser un gaz dans un liquide de haute viscosité montrant parfois un caractère non newtonien, on utilise habituellement une cuve non chicanée avec un mobile raclant tournant lentement et générant de faibles cisaillements (voir Figure 1-5). Ces mobiles raclants sont davantage des mobiles distributeurs que des mobiles disperseurs. En effet, ces agitateurs permettent de brasser l'ensemble du liquide mais

dispersent peu le gaz. Les principaux problèmes rencontrés avec ces réacteurs gaz-liquide visqueux sont donc (YOSHIDA et al., 2001):

- la présence de grandes cavités gazeuses derrière les pales de l'agitateur,
- la nécessité d'utiliser de faibles débits de gaz pour éviter l'engorgement de l'agitateur,
- la génération insuffisante de petites bulles de gaz due au faible cisaillement généré par l'agitateur,
- et l'absence de turbulence à l'interface gaz-liquide réduisant ainsi le transfert de matière.

De plus, les chicanes sont à proscrire lorsqu'un liquide visqueux ou non newtonien est mélangé. En effet, l'insuffisance du mélange derrière les chicanes conduit à développer la présence d'un dépôt de matière sur celles-ci, ce qui nécessite un besoin de nettoyage supplémentaire.

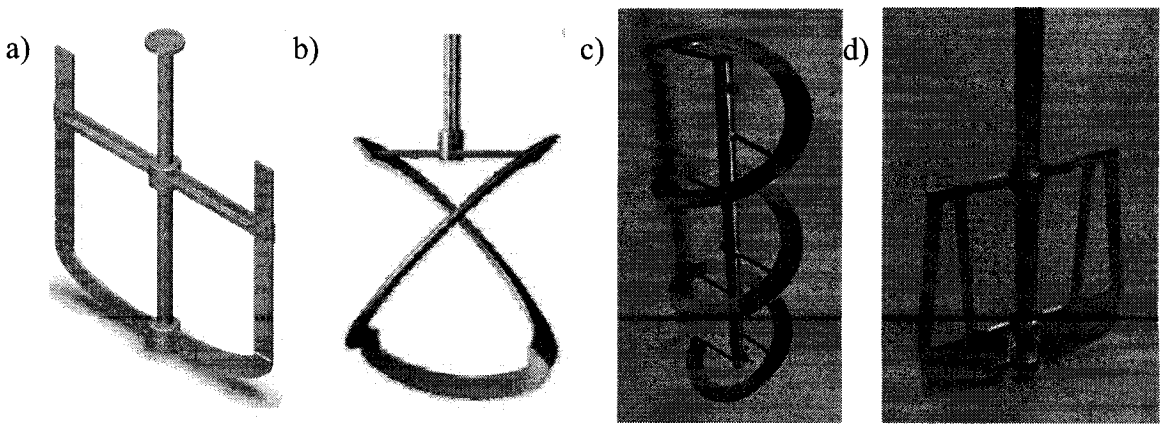


Figure 1-5 : Mobiles raclants utilisés pour disperser un gaz dans un liquide visqueux; a) ancre, b) Paravisc (Ekato), c) ruban hélicoïdal, d) Maxblend (Sumitomo)

1.3 Problématique et solutions actuelles

Dans de nombreux procédés de mélange gaz-liquide, les propriétés rhéologiques du milieu évoluent au cours du mélange (NOËL et al., 1984; TATTERSON, 1991a). La modification de la rhéologie du milieu mélangé s'explique souvent par une réaction chimique ou biochimique engendrant un changement physique dans la structure de la solution (accumulation de produits/déchets). La viscosité du produit final peut ainsi être bien plus élevée que celle du produit de départ et des propriétés non newtoniennes peuvent apparaître. Les procédés concernés se rencontrent souvent par exemple en polymérisation et en fermentation aérobique. Il apparaît alors qu'un type spécifique d'agitateur (mobiles turbulents ou mobiles raclants) ne peut pas convenir pour ce type de procédés. En effet, le réacteur gaz-liquide à agitateurs multiples est très efficace au début du procédé, lorsque le liquide est peu visqueux; mais les performances de ce réacteur diminuent fortement lorsque la viscosité et les caractères non newtoniens s'amplifient. De même, les réacteurs utilisés pour les liquides rhéologiquement complexes se montrent inadaptés aux fluides peu visqueux.

Considérant qu'il est rarement aisé de remplacer un agitateur en cours de réaction, les spécialistes du mélange ont récemment développé des agitateurs polyvalents qui pourraient répondre aux exigences de ces procédés aux propriétés rhéologiques évolutives. La voie couramment empruntée pour répondre à ce type de demandes consiste à associer deux types de mobiles : l'un reconnu pour ses capacités dispersives (turbine) et l'autre pour ses capacités distributives ou de pompage (mobiles raclants).

Tout d'abord, afin d'améliorer davantage la flexibilité des réacteurs gaz-liquide à agitateurs multiples, SOLOMONS et LEGRYS (1981) ont proposé d'utiliser un système de mélange chicané utilisant deux arbres de rotation. Dans ce réacteur présenté à la Figure 1-6, un arbre est introduit par le fond de la cuve pour entraîner un agitateur radial (disperseur), et un autre arbre de rotation est introduit par le haut de la cuve pour faire tourner un agitateur axial (principalement distributeur). Il a été montré que la flexibilité de ce réacteur, résultant du fait que les deux agitateurs peuvent tourner à des vitesses différentes, aide à améliorer le mélange et ceci particulièrement lorsque le liquide est légèrement visqueux et non newtonien (ANDERSON et al., 1982; JOHN et al., 1995; JOHN et al., 1997; JOHN et al., 1998). Ce réacteur a cependant quelques désavantages :

- la présence de chicanes est fortement déconseillée en milieux visqueux et non newtoniens à cause des zones mortes se développant derrière celles-ci,
- et le système de jointure de l'arbre de rotation situé en bas de cuve est coûteux en technologie et en maintenance.

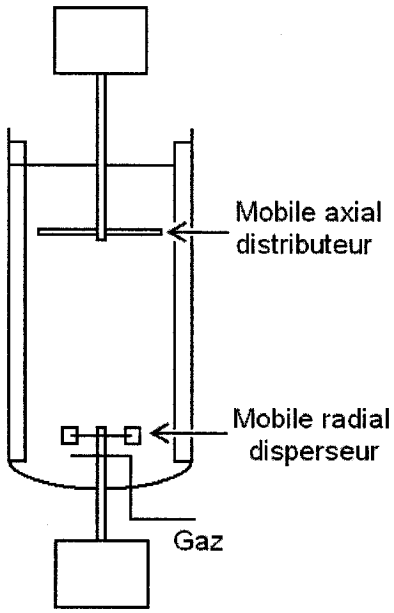


Figure 1-6 : Configuration du réacteur gaz-liquide à deux agitateurs indépendants (SOLOMONS et LEGRYS, 1981)

Une autre solution consiste à utiliser un système coaxial comme il a été proposé par le groupe de Tanguy (TANGUY et al., 1997; ESPINOSA-SOLARES et al., 1997; ESPINOSA-SOLARES et al., 2001; ESPINOSA-SOLARES et al., 2002). Comme présenté à la Figure 1-7, ce mélangeur coaxial est composé d'une turbine Rushton pour disperser le gaz dans le liquide et d'un ruban hélicoïdal pour homogénéiser le volume de mélange. L'intérêt de ce mélangeur réside dans son absence de chicanes ainsi que dans sa flexibilité qui permet de mélanger une grande gamme de viscosité. En raison de la qualité du mélange et de la flexibilité du mélangeur coaxial, la plupart des grandes compagnies de mélange l'on maintenant adopté comme en témoigne la Figure 1-8.

Notons cependant que le mélangeur coaxial présente tout de même certains désavantages qui sont :

- un coût élevé lié à la technologie permettant de placer deux agitateurs indépendants sur le même axe de rotation,
- et une perte d'énergie due à la friction entre les deux arbres de transmission concentriques.

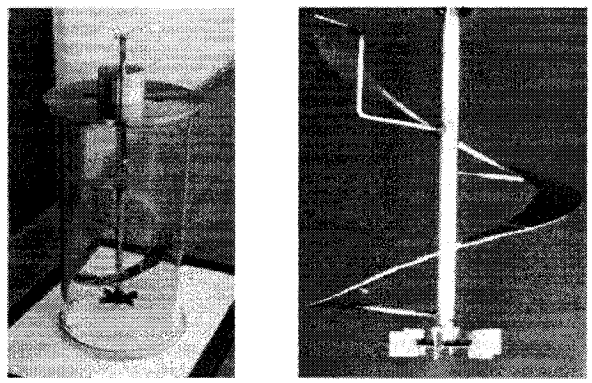


Figure 1-7 : Agitateur coaxial turbine Rushton – ruban hélicoïdal (ESPINOSA-SOLARES et al., 1997)

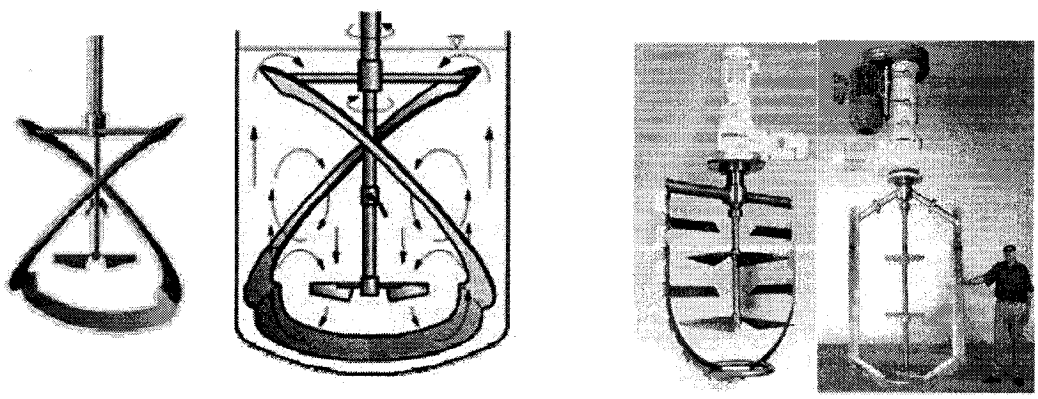


Figure 1-8 : Exemples de mélangeurs coaxiaux industriels (à gauche un mélangeur de la compagnie Ekato et à droite deux mélangeurs de la compagnie VMI-Rayneri)

Enfin, la dernière idée de mélangeur gaz-liquide opérant sur une large gamme de viscosité a été proposée par YOSHIDA et al. (2001). Ces auteurs ont proposé d'utiliser une cuve sans chicanes et agitée par un arbre de rotation qui alterne périodiquement son sens de rotation. Ce mélangeur, présenté à la Figure 1-9, permet de disperser efficacement le gaz tout en évitant un écoulement rotationnel et la formation d'un vortex que l'on rencontre habituellement dans les réacteurs à arbre centré ne disposant pas de chicanes. Le seul grand désavantage de ce mélangeur réside dans la technologie coûteuse et peu fiable (à cause des contraintes mécaniques) qui permet d'alterner le sens de rotation de l'arbre.

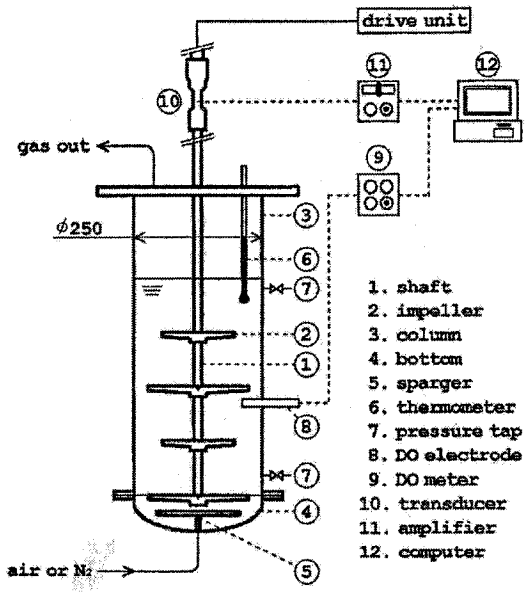


Figure 1-9 : Mélangeurs à arbre de rotation alternant périodiquement son sens de rotation (YOSHIDA et al., 2001)

Pour finir, le mélangeur planétaire possède de grandes qualités de mélange en régime laminaire. Même si aucune étude ne montre ses capacités de dispersion gaz-liquide, ce mélangeur demeure néanmoins très intéressant. Le grand désavantage de ce mélangeur réside principalement dans sa complexité mécanique qui engendre des coûts et une maintenance importants, c'est pourquoi son utilisation est réservée aux cas « extrêmes ».

1.4 Nouvelle approche : excentrage de l'arbre de rotation

Les réacteurs gaz-liquide actuellement utilisés pour mélanger les milieux à rhéologie évolutive, sont des systèmes symétriques d'un point de vue géométrique. En effet, les arbres d'agitation sont toujours placés au centre de la cuve de mélange. Des travaux récents portant sur le chaos ont cependant montré que l'homogénéisation dans une cuve de mélange peut être améliorée si on rompt la symétrie du système en utilisant un agitateur excentré (par exemple : AREF, 1984; OTTINO et al., 1992; ALVAREZ, 2000).

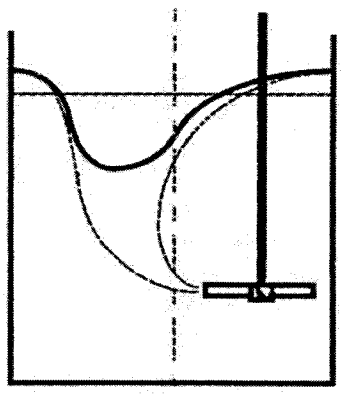


Figure 1-10 : Excentrage de l'arbre de rotation

Pour le mélange d'un liquide en régime turbulent, différents auteurs ont montré que l'excentrage permettait de réduire la formation de vortex dans une cuve non chicanée et était donc une bonne solution pour éviter l'utilisation des chicanes (voir Figure 1-10) (JOOSTEN et al., 1977; NISHIKAWA et al., 1979; NOVAK et al., 1982; KING et MUSKETT, 1985; HALL et al., 2004; KARCZ et SZOPLIK, 2004; HALL et al., 2005a; KARCZ et al., 2005; MONTANTE et al., 2006). Il a même été conclu par HALL et al. (2005a), lorsqu'on opère à une puissance d'agitation par unité de volume donnée, que le mélangeur non chicané avec un agitateur excentré donnaient des temps de mélange légèrement inférieurs à ceux obtenus avec un agitateur centré dans une cuve chicanée. Pour le mélange gaz-liquide en régime turbulent, HALL et al. (2005b,c) a montré que l'excentrage de l'agitateur permettait de produire dans une cuve non chicanée des bulles de gaz plus petites que celles obtenues avec un mobile centré dans une cuve chicanée.

En ce qui concerne le régime laminaire, différentes études portant sur des systèmes non chicanés ont conclu que les perturbations dynamiques engendrées par l'excentrage de l'arbre de rotation permettaient de casser les régions ségrégées non mélangées qui entourent l'agitateur lors du mélange de liquides newtoniens visqueux (voir Figure 1-11) (EDWARDS et al., 1992; ALVAREZ, 2000; ASCANIO et al., 2002b; HALL et al., 2005b). De plus, l'excentrage conduit à améliorer l'efficacité du mélange en augmentant la circulation axiale dans la cuve et ceci même si l'agitateur est de type radial (ALVAREZ et al., 2002).

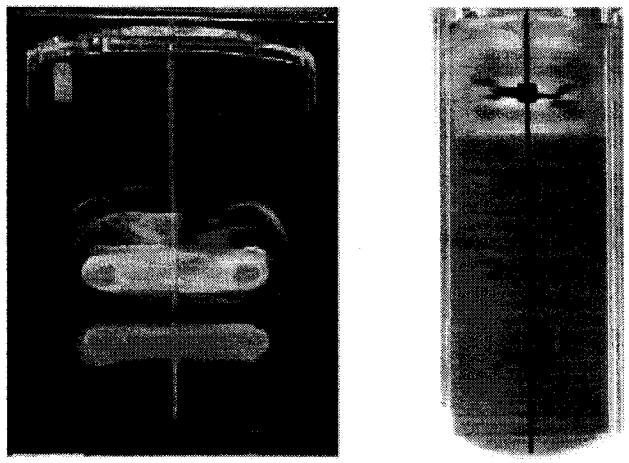


Figure 1-11 : Zones ségrégées se développant lors du mélange d'un liquide newtonien visqueux en régime laminaire (à gauche dans le cas d'une turbine Rushton et à droite dans le cas d'un mobile axial Intermig)

L'excentrage de l'arbre de rotation est donc une très bonne solution à la fois pour remplacer les chicanes qui sont néfastes en milieu visqueux ainsi que pour améliorer la circulation axiale et donc la distribution dans la cuve. De plus, l'excentrage de l'arbre de rotation à l'intérêt d'être peu coûteux à implanter sur un mélangeur déjà existant.

L'utilisation de l'excentrage pour développer de nouveaux mélangeurs non chicanés a été récemment mise à profit par ASCANIO et al. (ASCANIO et al., 2002a,b; ASCANIO et TANGUY, 2005). Ces auteurs ont grandement utilisé le concept de l'excentrage en étudiant un mélangeur sans chicanes agité par deux agitateurs excentrés et placés sur deux arbres de rotation différents, tel que présenté à la Figure 1-12. Les travaux réalisés ont conclu que ce réacteur est plus efficace qu'un simple agitateur excentré pour le mélange des liquides visqueux et non newtoniens rhéofluidifiants. Notons que ce

système de mélange est « flexible» car il est muni de deux agitateurs indépendants et a les avantages de ne pas avoir de chicanes et d'être peu coûteux technologiquement.

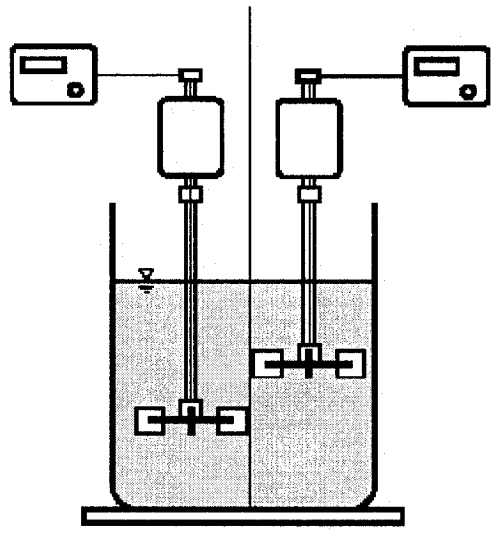


Figure 1-12 : Mélangeur composé de deux mobiles excentré proposé par Ascanio et al. (2002a, b)

Un autre système de mélange muni de deux arbres excentrés similaires à celui proposé par ASCANIO et al. (2002a,b; 2005) a aussi été envisagé par la compagnie Pfaudler. Cette compagnie propose actuellement le dispositif DAT (Doppel-Axiale Turbulenz) présenté à la Figure 1-13. Ce système de mélange comprend deux mobiles axiaux excentrés et verticalement décalés. L'un des mobiles est en pompage bas, l'autre en pompage haut de sorte qu'il se crée au croisement des deux flux une zone interférentielle de turbulence libre. Cette zone interférentielle est la caractéristique principale du dispositif qui apparaît comme un système polyvalent utilisable aussi bien dans les opérations de mélange simples que dans les dispersions polyphasiques.

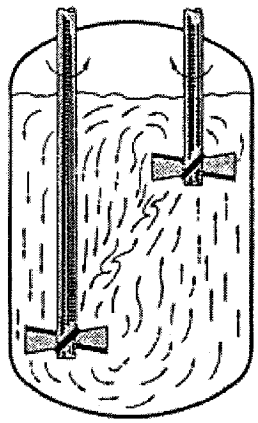


Figure 1-13 : Dispositif DAT (Doppel-Axiale Turbulenz) - Documentation de la société Pfaudler

1.5 Objectif général

Le présent travail, qui fait partie de la stratégie de recherche sur les technologies innovantes pour le mélange des fluides visqueux et non newtoniens, vise à améliorer le mélange de ces fluides en milieu aéré.

La solution qui est envisagée est d'utiliser un réacteur gaz-liquide muni de deux agitateurs excentrés comparable à celui proposé par ASCANIO et al. (2002a,b). Cependant, afin de maximiser le contact entre les deux phases, nous avons choisi d'utiliser un réacteur ayant une hauteur de liquide bien plus importante que celle utilisée par ASCANIO et al. (2002a,b). La Figure 1-14 est une illustration du mélangeur gaz-liquide proposé dans cette thèse. Les avantages d'un tel réacteur sont a priori nombreux :

- Possibilité d'agiter efficacement une large gamme de rhéologies allant des fluides peu visqueux jusqu'aux milieux montrant un caractère visqueux et non

newtonien rhéofluidifiant (notons que les fluides rhéofluidifiants sont les fluides complexes les plus couramment rencontrés dans l'industrie).

- « Flexibilité » de la configuration due aux deux agitateurs indépendants.
- Système de mélange sans chicanes.
- Configuration pouvant être implantée facilement et à faible coût.
- Bonne distribution axiale due à l'excentrage permettant d'éviter la compartimentation des profils d'écoulement.

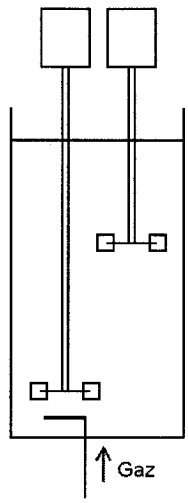


Figure 1-14 : Mélangeur gaz-liquide à deux arbres de rotation excentrés

Présentement, les caractéristiques du mélangeur gaz-liquide muni de deux arbres de rotation excentrés et verticalement décalés n'ont pas été étudiées. En conclusion, l'objectif général de ce travail est de caractériser la consommation de puissance, l'hydrodynamique ainsi que le transfert de matière gaz-liquide de ce mélangeur.

1.6 Contenu de la thèse

Cette thèse se divise en quatre parties :

- Le chapitre 2 contient une revue de littérature concernant :
    - La puissance d'agitation
    - Le temps de mélange
    - L'écoulement gaz-liquide et le transfert de matière
- Les chapitres 3 et 4 présentent les étapes de travail et la méthodologie utilisée.
- Les chapitres 5 à 8 présentent sous forme d'articles les travaux réalisés ainsi que les résultats obtenus.
- Et enfin, les chapitres 9 et 10 présentent une discussion générale des résultats et concluent les travaux.

CHAPITRE 2: REVUE DE LITTÉRATURE

2.1 Puissance d'agitation

La puissance d'agitation est l'énergie par unité de temps qui est transférée au fluide par l'intermédiaire du mobile d'agitation. Cette consommation d'énergie est une des principales quantités utilisées pour décrire les performances d'un mélangeur. La consommation de puissance d'un mobile d'agitation dépend du :

- régime d'écoulement (donc du nombre de Reynolds),
- des géométries de l'agitateur et de la cuve d'agitation,
- et des propriétés rhéologiques du fluide mélangé.

2.1.1 Rappel sur la consommation de puissance

Cette partie rappelle brièvement les points importants permettant de caractériser la consommation de puissance d'un agitateur dans le cas du mélange de fluides newtoniens. Pour information, le cas des fluides non newtoniens est traité en Annexe 1.

2.1.1.1 Analyse dimensionnelle

Le principe de l'analyse dimensionnelle repose sur le fait que chaque équation ou relation entre variables issues d'expérimentations sur des systèmes physiques doit être consistante d'un point de vue dimensionnel. Ainsi, en mélange et plus généralement en génie chimique, on manipule les variables qui conditionnent le système étudié de

manière à créer des rapports adimensionnels. Le théorème de Π-Buckingham énoncé ci-dessous permet de connaître le nombre de rapports adimensionnels permettant de décrire un système physique.

Théorème de Π-Buckingham (BUCKINGHAM, 1914) :

« *Toute relation physique entre n grandeurs physiques (variables et/ou constantes dimensionnelles) peut se mettre sous la forme d'une relation entre un ensemble complet de rapports Π_i adimensionnels de ces variables. L'ensemble est complet s'il permet d'expliciter la relation physique comme une fonction nulle des Π_i.*

Si l'équation contient n variables et constantes dimensionnelles séparées, et si ces variables sont dimensionnellement dépendantes de q grandeurs fondamentales, le nombre de rapports Π_i constituant un ensemble complet est : p=n-q. »

En appliquant le théorème de Π-Buckingham, il est possible d'écrire toutes équations physiques homogènes sous la forme adimensionnelle suivante :

$$f\left(\Pi_1^{a_1}, \Pi_2^{a_2}, \Pi_3^{a_3} \ldots\right) = 0 \qquad \textbf{(2-1)}$$

où les Π_i représentent tous les nombres sans dimension et toutes les constantes adimensionnelles. Dans le domaine du mélange, les nombres adimensionnels prennent en compte la géométrie du système d'agitation, les caractéristiques physiques du fluide agité et la dynamique de l'écoulement (HOLLAND et CHAPMAN, 1966).

Si on analyse la puissance d'agitation P, on voit qu'elle a fondamentalement les mêmes unités que le produit de ρ, N^3, et D^5 ou le produit de μ, N^2, et D^3. Ainsi, des nombres adimensionnels tels que $P/\rho N^3D^5$ ou $P/\mu N^2D^3$ peuvent être formés. Pour étudier la puissance d'agitation, on utilise généralement le nombre adimensionnel $P/\rho N^3D^5$ qui est appelé nombre de puissance et qui est noté N_P.

Pour un système de mélange en cuve agitée simple, la relation typique de consommation de puissance obtenue à partir de l'analyse dimensionnelle s'écrit :

$$N_P = \frac{P}{\rho N^3 D^5} = A \cdot \left(\frac{\rho N D^2}{\mu}\right)^a \left(\frac{N^2 D}{g}\right)^b \left(\frac{\rho N^2 D^3}{\sigma}\right)^c \left(\frac{T}{D}\right)^d \left(\frac{C}{D}\right)^e \left(\frac{H}{D}\right)^f .... \qquad \textbf{(2-2)}$$

Dans le terme de droite de cette équation adimensionnelle, le premier groupe sans dimension est le nombre de Reynolds ($\mathrm{Re}=\rho ND^2/\mu$) qui caractérise le rapport entre les forces d'inertie et les forces visqueuses appliquées au fluide. Le second groupe est le nombre de Froude ($Fr=N^2D/g$) qui représente le rapport entre les forces d'inertie et les forces de gravité. Le troisième terme est le nombre de Weber qui représente le rapport des forces d'inertie sur les forces de tension superficielle ($We=\rho N^2D^3/\sigma$). Les autres termes représentent l'ensemble des rapports de longueur pouvant être formés avec les dimensions de la cuve de mélange et du système d'agitation.

Sachant que dans un système de mélange en cuve agitée la tension superficielle est négligeable devant les autres forces misent en jeu, on omet généralement le nombre de

Weber dans la relation de consommation de puissance. Notons que le nombre de Weber est davantage employé pour étudier la rupture des bulles de gaz dans un liquide.

Dans la majorité des cas, lorsqu'on est en similitude géométrique et que les rapports de longueur formés avec les dimensions du système de mélange ne varient pas, l'équation (2-2) se réduit à :

$$N_P = A \cdot \mathrm{Re}^a \, Fr^b \qquad \textbf{(2-3)}$$

Dans le cas d'une cuve munie de chicanes ou d'un agitateur excentré, il y a absence de vortex et les effets des forces de gravité sont alors négligeables (NAGATA, 1975c; NOVAK et al., 1982). On considère donc que le nombre de puissance est indépendant du nombre de Froude dans l'équation (2-3), ce qui donne :

$$N_P = A \cdot \mathrm{Re}^a \qquad \textbf{(2-4)}$$

Si au contraire, on a un système pouvant être soumis au vortex (cuve non chicanée), deux cas sont à envisager (RUSHTON et al., 1955):

- Si Re<300, on a $N_P = A \cdot \mathrm{Re}^a$, ce qui signifie que le vortex n'est pas développé à ce régime d'écoulement.
- Si Re>300, on a $N_P = A \cdot (\mathrm{Re}.Fr)^a$ avec $a = \dfrac{c_1 - \ln(\mathrm{Re})}{c_2}$, les constantes c_1 et c_2 étant tabulées pour différents agitateurs.

Cependant, les études menées par NOVAK et al. (1982) et NAGATA (1975c) ont conclu que le nombre de Froude n'a pas d'effet sur le nombre de puissance lorsqu'on utilise une cuve non chicanée. Ainsi, selon ces auteurs, on peut toujours utiliser l'équation (2-4) pour une cuve non chicanée, ceci quelque soit la valeur du nombre de Reynolds.

2.1.1.2 Régimes d'écoulement

Régime dominé par les forces d'inertie

Lorsque l'écoulement dans la cuve de mélange est dominé par les forces d'inertie, c'est-à-dire pour les grands nombres de Reynolds, l'écoulement est qualifié de turbulent. Dans ce régime d'écoulement, les pales de l'agitateur subissent deux types de forces qu'on appelle forces de traînée. La première est reliée à la friction et la seconde est attribuée à la pression (TATTERSON, 1991d). En introduisant un coefficient de traînée (C_D), la force totale de traînée que subit la pale devient :

$$F = \frac{1}{2} C_D \rho U^2 A \qquad \textbf{(2-5)}$$

où A est la surface de la pale, U la vitesse de la pale et ρ la masse volumique du fluide mélangé.

A une vitesse donnée de la pale, le coefficient de traînée est constant, on a donc :

$$F \propto \rho U^2 A \qquad \textbf{(2-6)}$$

Puisque la puissance est une force multipliée par une vitesse, la puissance d'agitation peut être exprimée comme suit :

$$P = F.U \tag{2-7}$$

En insérant l'équation (2-6) dans l'équation (2-7), nous obtenons :

$$P \propto \rho U^3 A \tag{2-8}$$

Pour un système d'agitation, on définit les dimensions caractéristiques comme suit :

$$A \propto D^2 \qquad \text{et} \qquad U \propto \pi ND \tag{2-9}$$

où D est le diamètre de l'agitateur et N la vitesse de rotation de l'agitateur. Remarquons que la vitesse caractéristique choisie correspond à la vitesse en bout de pale.

Finalement, en insérant les deux relations (2-9) dans l'équation (2-8) on obtient :

$$P \propto \rho N^3 D^5 \tag{2-10}$$

On peut donc en déduire qu'en régime turbulent, le nombre de puissance ($N_P=P/\rho N^3 D^5$) est constant.

Régime dominé par les forces visqueuses

Lorsque l'écoulement dans la cuve de mélange est dominé par les forces visqueuses, c'est-à-dire pour les petits nombres de Reynolds, l'écoulement est qualifié de laminaire. Dans ce régime d'écoulement laminaire une approche similaire à celle du régime

turbulent peut être utilisée. Dans ce cas, la force de traînée que subit la pale est proportionnelle à la viscosité du fluide ainsi qu'à la vitesse et au diamètre de l'agitateur (TATTERSON, 1991d) :

$$F \propto \mu UD \tag{2-11}$$

En utilisant une fois de plus les deux relations (2-9) mais cette fois-ci dans l'équation (2-11), on obtient :

$$P \propto \mu N^2 D^3 \tag{2-12}$$

Ainsi, en régime laminaire, le rapport adimensionnel $P/\mu N^2 D^3$ est constant. Cette constante adimensionnelle qui caractérise la consommation de puissance d'un agitateur en régime laminaire est couramment appelée constante de puissance et est notée K_P.

Notons qu'en régime laminaire nous avons :

$$K_P = \frac{P}{\mu N^2 D^3} = \frac{P}{\rho N^3 D^5} \frac{\rho N D^2}{\mu} = N_P.\mathrm{Re} \tag{2-13}$$

Ainsi, en régime laminaire, le nombre de puissance est inversement proportionnel au nombre de Reynolds :

$$N_P = \frac{K_P}{\mathrm{Re}} \tag{2-14}$$

2.1.1.3 Courbes de puissance

Afin d'étudier et de comparer la puissance consommée par les différents mobiles d'agitation, on utilise couramment un graphique appelé courbe de puissance. Ce graphique donne l'allure du nombre de puissance (N_P) en fonction du nombre de Reynolds (Re) sur un diagramme log-log (coordonnées bilogarithmiques). Une illustration de ce type de graphique est donnée à la Figure 2-1.

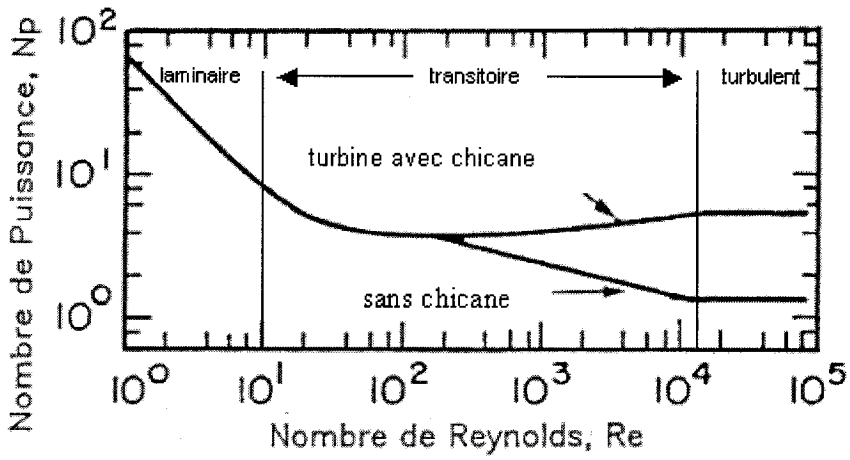


Figure 2-1 : Allure de la courbe de puissance d'un mobile d'agitation

La Figure 2-1 met en évidence les régions d'écoulement laminaire et turbulent soulignées précédemment :

- En régime laminaire, nous avons vu que $N_P=K_P/\mathrm{Re}$, d'où la pente (–1) de la courbe de puissance dans ce régime.

- En régime turbulent, nous avons vu que le nombre de puissance était constant. La région turbulente est donc définie comme étant la portion de courbe de puissance pour laquelle nous avons une pente nulle.
- Notons que la région d'écoulement comprise entre les régions laminaire et turbulente est appelée région transitoire.

2.1.2 Effets de l'excentrage sur la consommation de puissance

La nomenclature utilisée dans cette thèse pour représenter les dimensions d'une cuve de mélange à arbre excentré est présentée à la Figure 2-2. L'excentrage *e* est défini comme la distance entre le centre de l'arbre de rotation et l'axe central de révolution de la cuve.

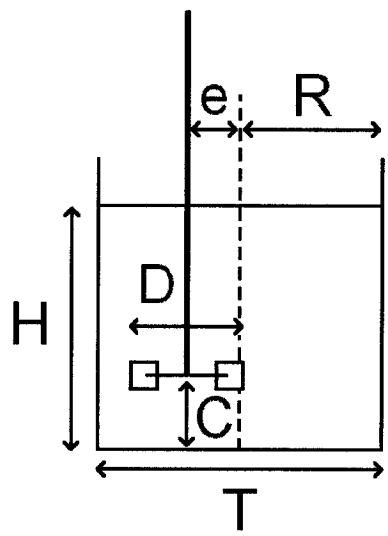


Figure 2-2 : Notation des dimensions caractéristiques du système de mélange

L'ensemble des études traitant de l'effet de l'excentrage d'un agitateur sur sa consommation de puissance est récapitulé au Tableau 2-1. La nomenclature utilisée dans ce tableau est la suivante :

- N_{Pe} et N_{P0} sont respectivement les nombres de puissance dans les cas où l'arbre est excentré et centré.
- r représente le rapport entre la puissance consommée par un agitateur excentré dans une cuve non chicanée et la puissance consommée par le même agitateur en position centrée dans cuve équipée de 4 chicanes ($w=T/10$). Cette configuration centrée avec 4 chicanes ($w=T/10$) est appelée dans la suite de cette thèse configuration « standard ».
- N_{Pmax} correspond au nombre de puissance pour la configuration « standard ».

Notons que dans toutes les études réalisées, seulement des fluides newtoniens ont été utilisés.

Tableau 2-1 : Effet de l'excentrage sur la consommation de puissance (liquides newtoniens)

Auteurs	Agitateurs utilisés	Domaine de validité	Résultats
(NAGATA, 1975d)	Turbines à 4 pales droites	Sans chicanes Régimes : laminaire - transitoire - turbulent	P augmente quand e augmente. P atteint son maximum à partir de $e=D/2$. Si $e \geq D/2$ on a $P=P_{max}$=cste (voir Figure 2-3) avec r=0,84. Quand la viscosité augmente P se rapproche de P_{max} pour $e<D/2$ (voir Figure 2-3).
(NISHIKAWA et al., 1979)	Turbines à 4 et 6 pales droites	Sans chicanes Régime turbulent $e/D \in [0; 0,8]$	N_P augmente avec l'excentrage e suivant (voir Figure 2-4) : $N_{Pe} = (N_{P\max} - N_{P0})\, e^{-0,11\left(\frac{e}{D}\right)^{1,8}} + N_{P0}$ **(2-15)**
(NOVAK et al., 1982)	PBT à 3 et 6 pales (45°) (pompage bas)	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [1,0\times10^4; 4,0\times10^5]$ $e/T \in [0; 0,3]$	N_P augmente avec l'excentrage e (voir Figure 2-5). Pour e/T=0,3 : r=0,85 pour PBT à 3 pales r=0,96 pour PBT à 6 pales
(KING et MUSKETT, 1985)	PBT à 4 pales (45°) (pompage bas)	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [1,6\times10^5; 1,0\times10^6]$	Quand $e=T/4$ et $C=T/3$ on a r=0,93. Cependant le moment de flexion de l'arbre est multiplié par 4,5 par rapport à la configuration « standard ».
(MEDEK et FORT, 1985)	PBT à 6 pales (45°) (pompage bas)	1 à 4 chicanes Régime turbulent $Re > 1\times10^4$, $e \in [0; T/3]$	N_P diminue quand e augmente car une boucle de circulation se créée.
(KARCZ et al., 2005)	Hélice marine (pompage haut) Mobile axial HE 3 (pompage bas)	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [10^4; 3,3\times10^4]$ $e/R \in [0; 0,53]$	N_P augmente linéairement avec l'excentrage de l'arbre (voir Figure 2-6) : Hélice marine : $N_{Pe} = 0,270\left[0,697\left(\frac{e}{R}\right)+1\right]$ **(2-16)** Mobile axial HE 3 : $N_{Pe} = 0,314\left[0,455\left(\frac{e}{R}\right)+1\right]$ **(2-17)**

2.1.2.1 Régime turbulent

Les différentes études en régime turbulent répertoriées au Tableau 2-1 montrent, dans le cas d'une cuve non chicanée, que la consommation de puissance augmente avec l'excentrage. Il apparaît cependant que l'évolution de la consommation de puissance avec l'excentrage est différente suivant le type de mobile utilisé. KARCZ et al. (2005) ont montré une évolution linéaire de la consommation de puissance avec l'excentrage lorsqu'un mobile purement axial (hélice marine ou HE 3) est utilisé (voir Figure 2-6 et les équations (2-16) et (2-17)). D'autres auteurs (NAGATA, 1975d; NISHIKAWA et al., 1979; NOVAK et al., 1982) ont montré, dans le cas de mobiles purement radiaux (turbines à pales droites) ou mixtes (PBT), que la consommation de puissance augmente grandement pour un faible excentrage et que cette puissance tend vers un maximum quand l'excentrage augmente davantage (voir Figure 2-3, Figure 2-4 et Figure 2-5).

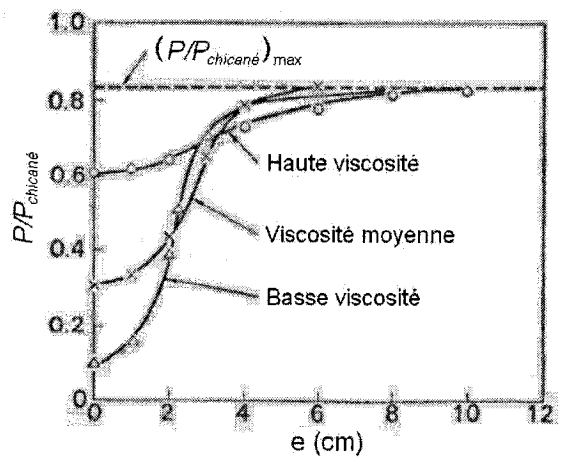


Figure 2-3 : Évolution de la puissance consommée en fonction de l'excentrage (NAGATA, 1975d)

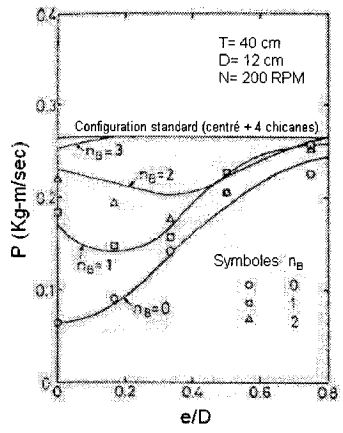


Figure 2-4 : Évolution de la consommation de puissance en fonction de l'excentrage (turbine à 4 pales droites) (NISHIKAWA et al., 1979)

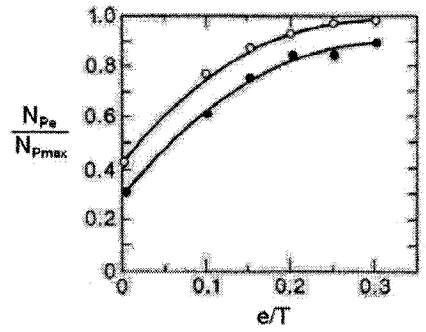


Figure 2-5 : Influence de l'excentrage sur la consommation de puissance (cercles pleins : PBT à 6 pales, cercles creux : PBT à 3 pales) (NOVAK et al., 1982)

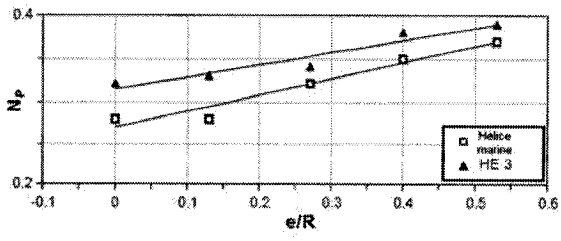


Figure 2-6 : Évolution linéaire de N_P avec l'excentrage (KARCZ et al., 2005)

Lorsque l'excentrage est important, il apparaît que la consommation de puissance d'un mobile radial ou mixte excentré dans une cuve non chicanée est légèrement inférieure à la consommation de puissance de ce mobile en configuration « standard » (centré + 4 chicanes). En effet, nous pouvons voir à la Figure 2-3 et à la Figure 2-5 que r est très proche de 1 lorsque l'excentrage est important.

La seule étude décrivant une diminution de la consommation puissance avec l'excentrage a été présentée lorsqu'on excentre un mobile axial dans une cuve munie de chicanes (MEDEK et FORT, 1985). Dans ce cas, il se créé une boucle de circulation qui engendre une diminution de la consommation de puissance.

Notons que KING et MUSKETT (1985) ont étudié, dans le cas d'un mobile mixte, l'influence de la distance entre le mobile d'agitation et le fond de la cuve (C, voir Figure 2-2) sur la consommation de puissance de l'agitateur dans une cuve non chicanée avec $e=T/4$. Aucune tendance n'a été notée et N_P n'apparaît pas être une fonction monotone avec C. De plus, ces auteurs ont souligné que l'excentrage augmente grandement le moment de flexion que subit l'arbre de rotation. Dans la suite de cette thèse, nous n'approfondirons pas ce problème lié à la non-symétrie des forces que subit un arbre excentré. Cependant, il est important de souligner que ce problème mécanique nécessitant des études sur la résonance du système est la cause principale de la faible utilisation des cuves à arbres excentrés dans l'industrie.

2.1.2.2 Régime laminaire

La seule étude concernant l'effet de l'excentrage sur la consommation de puissance en régime laminaire a été réalisée par NAGATA (1975d). Comme nous pouvons le voir à la Figure 2-3, plus la viscosité augmente et plus la consommation de puissance est proche de son maximum qui correspond à 84% de la puissance consommée par la configuration « standard » (r=0,84).

2.1.3 Puissance d'agitation dans un mélangeur à plusieurs agitateurs indépendants

Contrairement aux systèmes d'agitation classiques munis d'un agitateur, l'étude de la consommation de puissance dans des cuves munies de plusieurs agitateurs indépendants est bien plus difficile à mener. En effet, dans un tel système, le choix de la longueur et de la vitesse caractéristique nécessaires au calcul du nombre de puissance N_P et du nombre de Reynolds Re devient problématique.

Le Tableau 2-2 récapitule l'ensemble des études réalisées sur la puissance d'agitation d'un système à plusieurs indépendants. Dans ce tableau, les notations suivantes on été utilisées :

- $N_{P\alpha}$ est le nombre de puissance du mobile α lorsque les autres mobiles tournent et $N_{P\alpha\ seul}$ est le nombre de puissance du mobile α lorsque les autres mobiles sont arrêtés.

- Re_{MO} est le nombre de Reynolds suivant le concept de METZNER et OTTO (1957) (voir Annexe 1 pour le concept de Metzner et Otto).
- K_S est la constante de Metzner et Otto (voir Annexe 1).
- K_ϕ est défini par : $K_\phi(\phi) = \frac{K_P(\phi)}{K_P(\phi = 0)}$, ϕ étant un rapport de vitesse d'agitation.

Mis à part l'étude de PAHL et al. (1996) où un agitateur centré et 2 agitateurs excentrés sont utilisés, l'ensemble des études réalisées portent sur un système coaxial à 2 agitateurs centrés. De plus, notons que dans toutes les études menées un mobile raclant (principalement une ancre) est utilisé.

Deux types d'approche ont été utilisés pour traiter la consommation de puissance des systèmes à plusieurs agitateurs :

- L'approche proposée dans les études de VANHOVE et BIAY (1993), PAHL et al. (1996) et KOHLER et HEMMERLE (2003) consiste à développer un nombre de puissance d'un des mobiles, comme s'il était seul, et de rajouter ensuite des termes d'interaction entre ce mobile et les autres mobiles. Nous appellerons par la suite cette approche : approche « interaction ».
- La deuxième approche proposée par TANGUY et THIBAULT (2002), THIBAULT et TANGUY (2002), FOUCAULT et al. (2004, 2005) et KOHLER et al. (2006) consiste à développer un nombre de puissance généralisé dans lequel la puissance d'agitation est l'ensemble des puissances consommées par les

mobiles. Cette approche sera appelée par la suite approche « généralisée ». L'intérêt de cette approche est de développer une unique courbe de puissance pour tout le système de mélange. Cependant, l'interaction pouvant exister entre les mobiles n'est pas caractérisée explicitement comme dans l'approche interaction.

Tableau 2-2 : Puissance d'agitation des systèmes à plusieurs agitateurs indépendants

Auteurs	Système de mélange	Régime et limitations	Corrélations
(VANHOVE et BIAY, 1993)	Coaxial : turbine (1) – ancre (2)	- Tous les régimes d'écoulement - Liquide newtonien ou non newtonien - Mode contre-rotatif	$P_1 = 2\pi N_1 C_1$ avec $C_1 = A.N_1^2 + B.N_2^2$ **(2-18)**
(PAHL et al., 1996)	1 arbre centré (ancre) + 2 arbres excentrés (turbine + hélice) (Nombre d'agitateurs total : n=3)	- Tous les régimes d'écoulement - Liquide newtonien - Mode de rotation fixe	$N_{P\alpha} = \frac{P_\alpha}{\rho N_\alpha^3 D_\alpha^5} = f(\mathrm{Re}_\alpha, \phi_i)$ avec $\mathrm{Re}_\alpha = \frac{\rho N_\alpha D_\alpha^2}{\mu}$ et $\phi_i = \frac{N_i}{N_\alpha}$ $i \in \{1, 2, \ldots, \alpha\text{-}1, \alpha\text{+}1, \ldots, n\}$, α représente un des agitateurs $N_{P\alpha} - N_{P\alpha\ seul} = -\frac{\sum_{i=1, i\neq\alpha}^{n} \phi_i^{a_i}}{\mathrm{Re}_\alpha}$ **(2-19)**
(TANGUY et THIBAULT, 2002)	Coaxial : ancre (1) – tiges (2)	- Régime turbulent - Liquide newtonien - Mode contre-rotatif - $\phi = N_2/N_1 > 4$	$(N_{P\ gen})_\alpha = \frac{P_1 + P_2}{\rho N_\alpha^3 D_\alpha^5} = f(\phi)$ avec $\phi = \frac{N_2}{N_1}$ et α=1 ou 2 **(2-20)**
(THIBAULT et TANGUY, 2002)	Coaxial : ancre (1) – tiges (2)	- Régime laminaire - Liquide newtonien ou non newtonien - Mode contre-rotatif	$(N_{P\ gen})_\alpha = \frac{P_1 + P_2}{\rho N_\alpha^3 D_\alpha^5}$ $\phi = \frac{N_2}{N_1}$ α=1 ou 2 newtonien : $(\mathrm{Re}_{gen})_\alpha = \frac{\rho N_\alpha D_\alpha^2}{\mu}$ **(2-21)** Courbe de puissance : droite de pente (-1) dépendante de ϕ non newtonien : $(\mathrm{Re}_{MO})_\alpha = \frac{\rho N_\alpha^{2-n} D_\alpha^2}{m(K_{S\alpha}(\phi))^{n-1}}$ **(2-22)** Courbe de puissance : droite de pente (-1) dépendante de ϕ

				Pour tous les fluides : $\left(\mathrm{Re}_{gen}\right)_\alpha = \frac{\left(\mathrm{Re}_{MO}\right)_\alpha}{K_{\phi\alpha}(\phi)} = \frac{\rho N_\alpha^{2-n} D_\alpha^2}{m\left(K_{S\alpha}(\phi)\right)^{n-1} K_{\phi\alpha}(\phi)}$ **(2-23)** Courbe de puissance : droite de pente (-1) unique pour tous les fluides et indépendante de ϕ
(KÖHLER et HEMMERLE, 2003)	Coaxial : Ancre - turbine	- Tous les régimes d'écoulement - Liquide newtonien - $\phi=N_2/N_1 \in [1,10]$ - Mode contre-rotatif	$N_{P\alpha} = \frac{P_\alpha}{\rho N_\alpha^3 D_\alpha^5} = f(\mathrm{Re}_\alpha, \phi_i)$ avec $\mathrm{Re}_\alpha = \frac{\rho N_\alpha D_\alpha^2}{\mu}$ et $\phi_i = \frac{N_i}{N_\alpha}$ α représente un des agitateurs $N_{P\alpha} - N_{P\alpha\ seul} = A\phi_i^a$ **(2-24)**	
(FOUCAULT et al., 2004; FOUCAULT, 2004; FOUCAULT et al., 2005)	Coaxial : Ancre (1) – turbine (2)	- Tous les régimes d'écoulement - Liquide newtonien ou non newtonien - $\phi=N_2/N_1>10$ (la turbine consomme majoritairement la puissance)	Mode co-rotatif : $N = N_2 - N_1$ Mode contre-rotatif : $N = N_2 + N_1$ $D=D_2$	$\mathrm{Re}_{gen} = \frac{\rho N^{2-n} D^2}{m \cdot K_S^{n-1}}$ et $N_{P\,gen} = \frac{P_1 + P_2}{\rho N^3 D^5}$ **(2-25)** Une seule courbe de puissance $N_{P\,gen}$ vs Re_{gen} pour les 2 modes de rotation.
(KÖHLER et al., 2006)	Coaxial : Ruban hélicoidal (1) – Vis (2)	- Tous les régimes d'écoulement - Liquide newtonien - $\phi=N_2/N_1=3$	$N_{P\,gen} = \frac{P_1 + P_2}{\rho N_1^3 D_1^5} = f(\mathrm{Re}_1)$ avec $\mathrm{Re}_1 = \frac{\rho N_1 D_1^2}{\mu}$ **(2-26)** Une seule courbe de puissance $N_{P\,gen}$ vs Re_1 pour les 2 modes de rotation.	

2.1.4 Synthèse

L'étude sur la consommation de puissance des systèmes d'agitation excentrés et des systèmes munis de plusieurs agitateurs indépendants nous montre que des lacunes persistent pour caractériser la consommation de puissance du mélangeur à deux arbres de rotation excentrés proposé dans cette thèse.

Concernant l'excentrage, il apparaît que l'évolution de la consommation de puissance avec l'excentrage est assez bien connue en régime turbulent (6 études réalisées). Cependant, concernant le régime laminaire, l'influence de l'excentrage sur la consommation de puissance n'est pas connue avec certitude. Seule une étude succincte a été réalisée par NAGATA (1975d) semblant montrer que l'excentrage a de moins en moins d'influence sur la consommation de puissance au fur et à mesure que la viscosité augmente (voir Figure 2-3). Des travaux complémentaires sont donc nécessaires pour confirmer ses résultats.

Concernant la consommation de puissance des mélangeurs à plusieurs agitateurs indépendants, il apparaît qu'aucun des systèmes présentés dans la revue de littérature n'est comparable au système étudié dans cette thèse. En effet, dans toutes les études menées jusqu'à maintenant, un mobile raclant a toujours été utilisé et ainsi on ne connaît pas l'interaction pouvant exister entre deux mobiles voisins de type turbulent. De plus,

on ne sait pas comment évolue l'interaction entre ces deux agitateurs en fonction du type d'agitateur utilisé (axial ou radial), et de leurs sens et vitesse de rotation.

2.2 Temps de mélange

Le temps de mélange est une quantité macroscopique utilisée pour caractériser les performances de mélange d'un mobile d'agitation en cuve agitée. Si on considère une cuve agitée contenant une phase liquide unique, le temps de mélange de ce système est défini comme l'intervalle de temps entre le début de l'ajout d'un volume de traceur et le moment d'obtention d'un degré spécifié d'homogénéité de ce traceur au sein du fluide agité (EDWARDS et al., 1992). Notons cependant que le terme d'homogénéité sous-entend une échelle de mélange qui peut être difficile à déterminer dans bien des cas (CHAVAN et MASHELKAR, 1980). D'un point de vue théorique, la notion d'intensité de ségrégation définie par DANCKWERTS (1958) permet de différencier les différentes échelles de mélange (du micromélange au macromélange).

En général, les expériences de temps de mélange effectuées pour caractériser les performances d'un agitateur en cuve agitée concernent le macromélange (NAGATA, 1975b). C'est-à-dire qu'on ne tient pas compte de l'homogénéisation au niveau moléculaire où la diffusion joue un rôle important. Le temps de macromélange correspond simplement au temps nécessaire pour distribuer un traceur dans l'ensemble du volume mélangé sans tenir compte nécessairement du degré d'homogénéité atteint localement (PATTERSON et al., 2004). Sachant que cette échelle de mélange étudie la distribution de blocs ou agrégats de molécules de fluides dans un volume, on conçoit que le macromélange dépend principalement du profil d'écoulement dans la cuve

(LEVENSPIEL, 1999). Pour simplifier l'écriture de la thèse, nous écrirons par la suite temps de mélange pour évoquer le temps de macromélange.

Il est établi dans la littérature que le temps de mélange adimensionnel ($N.t_m$), qui représente le nombre de rotations de l'agitateur nécessaire au mélange, est une constante pour les régimes d'écoulement laminaire et turbulent (voir par exemple NAGATA, 1975b; TATTERSON, 1991c; EDWARDS et al., 1992). L'allure générale du temps de mélange adimensionnel en fonction du nombre de Reynolds est ainsi souvent représentée comme à la Figure 2-7.

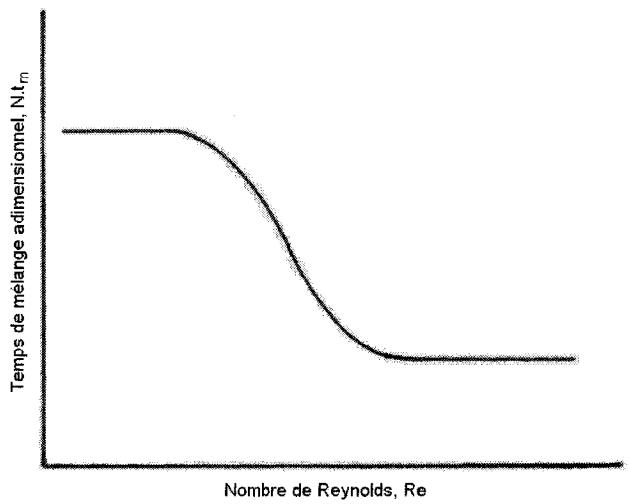


Figure 2-7 : Évolution du temps de mélange adimensionnel en fonction du nombre de Reynolds (EDWARDS et al., 1992)

La corrélation de MOO-YOUNG et al. (1972), présentée à l'équation (2-27), est couramment utilisée pour corréler le temps de mélange sur une plage de Re donnée.

Notons tout de même que d'autres corrélations moins courantes peuvent être rencontrées dans la littérature (voir par exemple la corrélation de NIENOW (1997) où Nt_m dépend de N_P).

$$N.t_m = A.\mathrm{Re}^a \qquad \textbf{(2-27)}$$

2.2.1 Techniques de mesure du temps de mélange

2.2.1.1 Méthodes de mesure locales et globales

L'importance du temps de mélange pour caractériser les performances d'un mélangeur en cuve agitée est telle que beaucoup de méthodes physiques et chimiques ont été développées avec différents niveaux de succès. En se basant sur le volume de fluide impliqué dans la mesure du temps de mélange, les méthodes développées peuvent être divisées en deux groupes : les méthodes locales et les méthodes globales.

D'une part, les méthodes de mesure locales reposent sur des mesures physiques réalisées grâce à des sondes intrusives. Ces méthodes fournissent un temps de mélange local qui représente le temps nécessaire pour atteindre un degré d'homogénéité donné à un endroit fixe dans la cuve de mélange (voir Figure 2-8). Les principaux exemples de méthodes locales sont les méthodes thermique, conductimétrique, fluorimétrique (PINEAULT et CLOUTIER, 1972) et pHmétrique. Afin d'atténuer le problème de la mesure locale, notons qu'il est possible d'utiliser plusieurs sondes dans le volume de mélange étudié (voir par exemple KASAT et PANDIT (2004)).

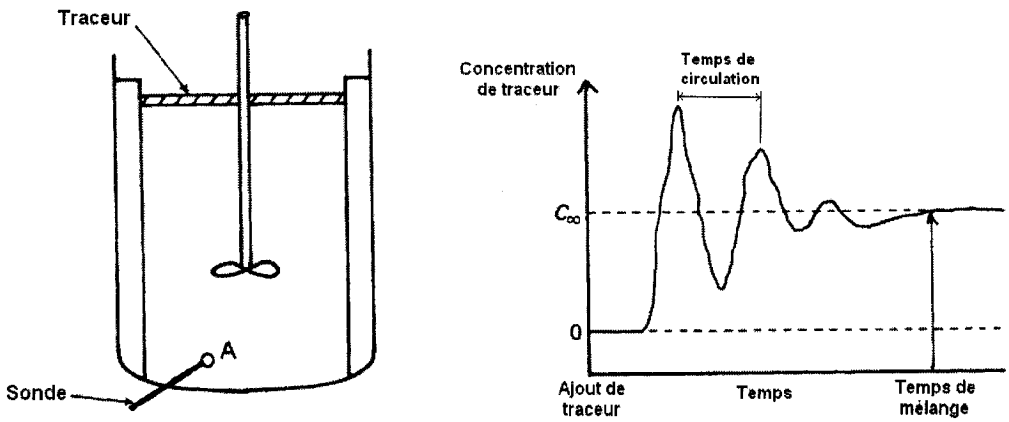


Figure 2-8 : Méthode locale de détermination du temps de mélange

D'autre part, les méthodes de mesure globales considèrent l'ensemble du volume de fluide pour déterminer le temps de mélange. Ces méthodes peuvent être basées sur une réaction chimique rapide (par exemple les méthodes de changement de couleur impliquant une réaction acide-base ou rédox), ou bien elle peuvent être basées sur une mesure optique telle que la méthode de Schlieren (VAN DE VUSSE, 1955).

Le Tableau 2-3 compare les avantages et les inconvénients des méthodes locales et globales pour la détermination du temps de mélange. Contrairement aux méthodes locales, les méthodes globales présentent des caractères pratiques intéressants tels que la capacité d'identifier et très souvent quantifier les zones non mélangées. De plus, les méthodes globales permettent de détecter la fin du mélange dans l'ensemble de la cuve (ZLOKARNIK, 2001a) tout en étant non intrusives, ce qui permet de ne pas perturber l'écoulement. Cependant, les méthodes de mesure globales nécessitent une cuve de laboratoire transparente et ont le grand désavantage de fournir des mesures subjectives.

En effet, le temps de mélange est typiquement déterminé à l'œil nu, ce qui peut engendrer des résultats différents si la même expérience est réalisée par différents expérimentateurs.

Tableau 2-3 : Comparaison des méthodes locales et globales pour la mesure du temps de mélange

	Méthodes locales	**Méthodes globales**
Exemples	Méthode thermique Méthode conductimétrique Méthode pH-métrique Méthode fluorimétrique	Méthodes de décoloration Méthode de Schlieren
Avantages	Méthodes précises Possibilité de mesure dans une cuve industrielle	Méthodes non intrusives Identification des zones non mélangées Donne le point final du mélange dans l'ensemble de la cuve
Inconvénients	Sondes intrusives Ne peut pas détecter les régions ségrégées et les zones mortes Ne donne pas le point final du mélange dans la cuve.	Méthodes non précises (subjectives) Cuve transparente nécessaire

Comme chaque technique de détermination du temps de mélange présente sa propre limitation, il n'y a pas de méthode universellement admise. Notons cependant que la méthode de décoloration est une méthode globale qui est particulièrement intéressante pour l'étude du système de mélange proposé dans cette thèse. En effet, la visualisation de la décoloration nous permet de détecter les zones non mélangées et de voir s'il se produit une compartimentation de l'écoulement entre les mobiles. Cependant, la méthode de décoloration nuit par sa subjectivité et nécessite des améliorations afin de transcrire de façon objective les phénomènes observés lors des manipulations.

2.2.1.2 Amélioration des méthodes globales par analyse d'images

La revue de littérature montre que l'analyse d'image peut être employée pour éviter le problème de subjectivité des méthodes globales. MÜLLER (1985) a ainsi suivi un procédé d'homogénéisation de bleu de méthylène dans un liquide clair grâce à des photos en noir et blanc prises à différents instants après l'injection du traceur. La distribution des teintes de gris a été analysée sur 60 000 points localisés sur chaque photo afin de déterminer le temps de mélange. L'idée de MÜLLER qui consiste à utiliser l'analyse d'image n'a pas été développée par la suite dans les années 1980 en raison du temps que nécessite l'analyse manuelle des images.

En suivant le même concept, LEE et YIANNESKIS (1997) ont proposé de déterminer le temps de mélange en utilisant une technique thermographique basée sur le changement de couleur de cristaux liquides avec la température. Dans cette méthode, une petite quantité de liquide à haute température est injectée au début de l'expérience. Il se produit alors un changement de température du liquide mélangé, qui se caractérise par un changement de couleur des cristaux liquides. Le temps de mélange est déterminé par analyse d'images en suivant l'évolution et la distribution des couleurs du liquide mélangé. La tonalité chromatique (Hue) du modèle de couleur HSV (Hue Saturation Value) est suivie sur les images pour déterminer le temps de mélange. La cuve est considérée entièrement mélangée lorsque les images possèdent 95% de leurs pixels avec la même valeur de tonalité chromatique. Il a été montré que cette méthode fonctionne assez bien en régime turbulent avec de l'eau. Cependant, le liquide utilisé doit avoir la

même densité que les microcapsules de cristaux liquides afin de limiter la flottation de celles-ci.

Une autre méthode de détermination du temps de mélange par analyse d'images, principalement développée pour les fluides visqueux, a été présentée par DELAPLACE et al. (2004). La méthode proposée consiste à suivre le changement de couleur d'un indicateur coloré à la suite d'une réaction acide-base. Ce changement de couleur est suivi en analysant d'éclat global de la couleur verte (modèle de couleur RVB) sur les images extraites de la vidéo de l'expérience de mélange. Le temps de mélange (degré d'homogénéité de 90%) est ainsi défini comme le temps à partir duquel le niveau d'éclat global de la couleur verte est constant.

Finalement, les travaux de LE COËNT et al. (2005) présentent le mélange de deux poudres dans un liquide visqueux grâce à un suivi par analyse d'images. La position de la poudre est déterminée par une procédure de comptage par compartimentation qui utilise un procédé d'érosion pour séparer les particules. Le temps de mélange a été défini comme le temps nécessaire pour obtenir une distribution homogène des particules grâce à un procédé de dimension fractale. Notons que cette méthode n'implique pas le mélange d'une simple phase liquide mais mérite néanmoins d'être mentionnée en raison de l'analyse d'image utilisée.

En dehors des méthodes exposées, nous pouvons mentionner que le temps de mélange peut être déterminé par analyse d'images sur un plan laser induit par fluorescence (pLIF : planar Laser-Induced Fluorescence method) (voir par exemple HOUCINE et al., 1996; ALVAREZ, 2000; HALL et al., 2005a). Cette méthode n'est pas globale, car la mesure est effectuée dans un plan laser et doit donc être assimilée à une mesure locale. De plus, la technique pLIF est difficile à mettre en place et est limitée aux petites cuves à cause de la puissance du laser nécessaire. C'est pourquoi la technique pLIF est davantage employée pour étudier la structure spatiale du mélange que pour déterminer le temps de mélange (ARRATIA et MUZZIO, 2004; KLING et MEWES, 2004).

2.2.1.3 Amélioration du concept de temps de mélange

Bien que le concept de temps de mélange soit largement utilisé pour comparer l'efficacité des agitateurs, il apparaît néanmoins que ce concept n'est pas sans défaut. En effet, deux agitateurs peuvent donner le même temps de mélange tout en présentant une différence dans l'évolution globale de l'homogénéité en fonction du temps. Ainsi, il est intéressant de développer un concept de « cinétique de mélange » qui traduit l'évolution du mélange en fonction du temps.

Dans la littérature seulement deux études font référence à une évolution de la dynamique de mélange en fonction du temps. Tout d'abord l'étude de VAN PUYVELDE et al. (1999) traite de la cinétique de mélange de deux poudres dans un cylindre en rotation. Pour caractériser cette cinétique de mélange, les auteurs ont suivi dans un plan de coupe

l'évolution temporelle de la longueur de contact entre les deux poudres. L'autre étude, réalisée par ALVAREZ (2000), nous intéresse davantage car elle concerne la cinétique de mélange d'un liquide. Dans cette étude, l'auteur a utilisé la technique pLIF couplée à une technique de neutralisation acide-base afin de suivre l'évolution du mélange dans un plan laser. Les courbes obtenues donnent l'évolution de la surface mélangée en fonction du temps et sont de la forme :

$$A = A_{\max}\left(1 - e^{-mt}\right) \tag{2-28}$$

où A est la surface mélangée, A_{max} est la surface mélangée maximale (obtenue à la fin du mélange), m représente la « vitesse » du mélange et t est le temps. ALVAREZ et al. (2002) ont montré que cette équation (2-28) pouvait être réécrite de manière adimensionnelle :

$$A = A_{\max}\left(1 - e^{-KN_R}\right) \tag{2-29}$$

afin de faire intervenir une « vitesse » de mélange adimensionnelle (K) et un temps adimensionnel N_R (nombre de révolutions de l'agitateur). Notons que les principaux problèmes de cette méthode sont liés à la technique pLIF qui est difficile à mettre en place et qui limite l'étude à un plan. De plus, notons que l'analyse d'image permettant de séparer les pixels mélangés des pixels non mélangés n'a pas été présentée par les auteurs.

Concernant l'évolution du mélange en fonction du temps, ajoutons que les techniques tomographiques peuvent être un très bon outil d'analyse. Par exemple, la tomographie à

résistance électrique (TRE) est une technique non intrusive permettant de mesurer l'évolution d'un champ de concentration en 3D. Cette méthode permet de suivre l'évolution du mélange dans une cuve avec une résolution spatiale de 10^4 éléments de volume (HOLDEN et al., 1998). Cependant, en raison de la complexité du dispositif nécessaire à cette technique, la TRE est davantage employée pour valider les prédictions de mélange obtenues par CFD (Computational Fluid Dynamics) que pour déterminer le temps de mélange. Notons que les mesures tomographiques utilisant la photométrie à deux longueurs d'onde développée par BUCHMANN et MEWES (2000) sont comparables à celles de la TRE, excepté qu'elles permettent d'étudier à la fois le macro et le micromélange.

Enfin, le suivi du macromélange en fonction temps a été récemment déterminé numériquement par CFD (FARHAT et al., 2007). Dans cette méthode un volume contenant un grand nombre de traceurs sans masse et non diffusifs est injecté localement à t=0 et le déplacement de ces particules est ensuite suivi en fonction du temps. Un maillage est positionné sur le volume de mélange et dès qu'une particule est présente dans un des éléments de volume de ce maillage, on considère alors cet élément mélangé. Il suffit alors de tracer le pourcentage de volume mélangé en fonction du temps pour avoir la cinétique du macromélange.

2.2.2 Effets de l'excentrage sur le temps de mélange

2.2.2.1 Régime turbulent

Les études traitant de l'effet de l'excentrage de l'arbre de rotation sur le mélange en régime turbulent sont récapitulées au Tableau 2-4. Dans ce tableau, les notations suivantes ont été utilisées :

- t_{me} et t_{m0} sont respectivement les temps de mélange dans les cas où l'arbre est excentré et centré
- $t_{m\ \text{Chicanes}}$ est le temps de mélange obtenu pour la configuration « standard » (mobile centré avec 4 chicanes de largeur $w=T/10$)

La revue de littérature montre clairement que le temps de mélange adimensionnel ($N.t_m$) diminue lorsque l'excentrage augmente dans une cuve non chicanée et ceci est indépendant de la décharge du mobile d'agitation (axial ou radial) (NISHIKAWA et al., 1979; KARCZ et SZOPLIK, 2004; KARCZ et al., 2005). Pour illustrer cet effet de l'excentrage, la Figure 2-9 montre l'allure de la décroissance du temps mélange en fonction de l'excentrage. De plus, il apparaît qu'en excentrant une hélice marine, le temps de mélange adimensionnel ($N.t_m$) n'est plus une constante en régime turbulent mais croît avec le nombre de Reynolds (voir équation (2-31)) (KARCZ et SZOPLIK, 2001; KARCZ et SZOPLIK, 2004).

La configuration excentrée sans chicanes apparaît tellement performante qu'elle donne des temps de mélange égaux, voire inférieurs à la configuration « standard » pour une

même puissance d'agitation (HALL et al., 2004; HALL et al., 2005a). Ce résultat s'explique par le fait que l'excentrage diminue l'écoulement tangentiel généré par l'agitateur au profit d'une augmentation des vitesses axiales et radiales qui favorisent le mélange (HALL et al., 2005a).

En utilisant un mobile mixte (turbine à pales inclinées - PBT) dans une cuve chicanée, MEDEK et FORT (1985) ont montré que le débit pompé par l'agitateur diminuait lorsque l'excentrage augmentait. Selon ces auteurs, cette baisse de la capacité de pompage de l'agitateur est due à la proximité de la paroi. Ainsi, ces auteurs concluent sur l'existence d'un optimum pour l'excentrage de l'agitateur permettant de maximiser l'efficacité de l'agitateur (l'efficacité de l'agitateur dépend, dans cette étude, du débit pompé et de la puissance consommée par l'agitateur).

Tableau 2-4 : Effet de l'excentrage sur le mélange en régime turbulent (liquides newtoniens)

Auteurs	Agitateurs et méthodes utilisées	Domaine de validité	Résultats
(NISHIKAWA et al., 1979)	- Turbines à 4 et 6 pales droites - Méthode de décoloration acide-base (ratio 1,2/1)	Sans chicanes Régime turbulent $e/D \in [0; 0,8]$	$N.t_m$ diminue quand e/D augmente (voir Figure 2-9). $N.t_{me} = \left(N.t_{m\,Chicanes} - N.t_{m0}\right) e^{-0,04\left(\frac{e}{D}\right)^2} + N.t_{m0}$ **(2-30)**
(MEDEK et FORT, 1985)	- PBT à 6 pales (45°) (pompage bas) - suivi visuel de particules (pompage)	1 à 4 chicanes Régime turbulent $Re > 1\times10^4$ $e \in [0; T/3]$	Le nombre de pompage de l'agitateur (N_Q) diminue lorsque e augmente à cause de l'influence de la paroi.
(KARCZ et SZOPLIK, 2001)	- Hélice marine - Méthode thermique	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [2,1\times10^4; 9,6\times10^4]$ $e/R \in [0,43; 0,57]$	Quand on excentre $N.t_m$ n'est plus une constante en régime tubulent mais augmente avec Re. $N.t_m = C\,\mathrm{Re}^A$ (A et C positifs) **(2-31)** t_m équivalents ceux de la configuration « standard »
(HALL et al., 2004)	- PBT à 6 pales (45°) (pompage haut) - pLIF, PIV	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [8237; 13500]$ $e=0$ ou $0,2T$	À P/V=cste, la configuration excentrée donne des t_m et une distribution de l'énergie cinétique comparable à la configuration « standard ».
(KARCZ et SZOPLIK, 2004)	- 1 ou 2 Hélices marines (pompage haut et bas) - Méthode thermique	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [2\times10^4; 1\times10^5]$ $e/R \in [0; 0,57]$	$N.t_m$ diminue quand e/R augmente. Quand on excentre $N.t_m$ n'est plus une constante en régime turbulent, mais augmente avec Re. $N.t_m = C\,\mathrm{Re}^A$ (A et C positifs)
(HALL et al., 2005a)	- PBT à 6 pales (45°) (pompage haut) - pLIF, PIV	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [4073; 8237]$ $e=0$ ou $0,2T$	L'excentrage diminue l'écoulement tangentiel du liquide sans l'éliminer. Vitesses radiales et axiales comparables à celles de la configuration « standard ». À P/V=cste, t_m plus faible pour la configuration excentrée comparée à la configuration « standard ».
(KARCZ et al., 2005)	- Hélice marine (pompage haut et bas) - Méthode thermique	Sans chicanes Régime turbulent $Re \in [2\times10^4; 8\times10^4]$ $e/R \in [0; 0,57]$	$N.t_m$ diminue quand e/R augmente. $N.t_m = 48,5 + \frac{1}{M}\exp\left[-1,89\frac{1}{M}\left(\frac{e}{R}\right)\right]\exp[8,18M]$ **(2-32)** Pompage haut : M=0,32 Pompage bas : M=-0,32

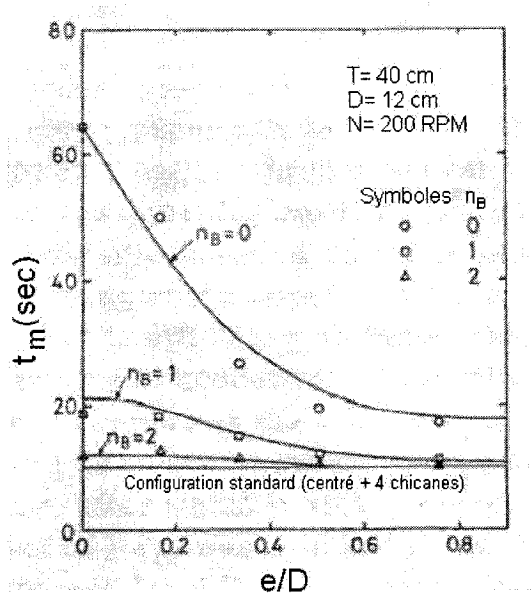


Figure 2-9 : Évolution du temps de mélange en fonction de l'excentrage (turbine à 4 pales droites) (NISHIKAWA et al., 1979)

2.2.2.2 Régime laminaire

Le Tableau 2-5 récapitule l'ensemble des études portant sur l'effet de l'excentrage sur le mélange en régime laminaire. Il apparaît clairement que l'excentrage permet de détruire les zones ségrégées qui entourent l'agitateur en régime laminaire (voir Figure 1-11) (ALVAREZ et al., 2002; ASCANIO et al., 2002a,b). De plus, l'excentrage permet d'améliorer la circulation axiale et ainsi d'éviter la formation de compartimentation au niveau du plan horizontal où est localisé l'agitateur (ALVAREZ et al., 2002; SANCHEZ CERVANTES et al., 2006).

Tableau 2-5 : Effet de l'excentrage sur le mélange en régime laminaire

Auteurs	Agitateurs et méthodes utilisées	Domaine de validité	Résultats
(ALVAREZ et al., 2002)	- Disque, PBT à 4 pales, turbine Rushton à 6 pales - PIV, méthode visuelle avec fluorescence UV, méthode de décoloration acide-base	Sans chicanes Régime laminaire Liquide newtonien Re∈[12,5; 50,0] e/R=0; 0,21; 0,42, 0,63	L'excentrage permet d'augmenter la circulation axiale dans la cuve même si le mobile utilisé est radial. Destruction des zones ségrégées et de la compartimentation au niveau de l'agitateur dès qu'on excentre un peu. Il semble exister un optimum pour la circulation axiale autour de e/R=0,42.
(ASCANIO et al., 2002b)	- Turbines Rushton à 6 pales, Mobile axial (pompage bas) - Méthode de décoloration acide-base	Sans chicanes Régime laminaire Liquide newtonien $e=T/16$ ou $T/4$	Destruction des zones ségrégées entourant l'agitateur.
(ASCANIO et al., 2002a)	- Turbines Rushton à 6 pales, PBT à 4 pales - Méthode de décoloration acide-base	Sans chicanes Régime laminaire Liquide non newtonien rhéofluidifiant e=0, $T/16$ ou $T/4$	En variant le sens de rotation de l'agitateur : - Destruction des zones ségrégées entourant l'agitateur. - Le mélange est amélioré lorsque l'agitateur est légèrement excentré.
(HALL et al., 2005b)	- PBT à 6 pales (45°) (pompage haut) - PIV	Sans chicanes Régime laminaire Liquide newtonien Re∈[11,1; 30,7] $e=0,2T$	Les amplitudes des vitesses radiales et axiales de la configuration excentrée sont comparables à celles de la configuration « standard ».
(SANCHEZ CERVANTES et al., 2006)	- Disque - Méthode visuelle avec fluorescence UV	Sans chicanes Régime laminaire Liquide newtonien Re∈[4,5; 41] e/R=0; 0,21; 0,42	Le temps de mélange diminue quand l'excentrage augmente. L'excentrage permet de détruire la compartimentation qui apparaît dans le plan horizontal où est localisé l'agitateur.

Concernant le temps de mélange, il apparaît diminuer quand l'excentrage augmente (SANCHEZ CERVANTES et al., 2006). Cependant, ALVAREZ et al. (2002) ont noté qu'il existe un optimum dans l'augmentation de la circulation axiale avec l'excentrage. Ainsi, selon ces auteurs, e/R=0,42 apparaît être le meilleur excentrage en régime laminaire.

2.2.3 Temps de mélange pour les systèmes à plusieurs agitateurs indépendants

Contrairement aux mobiles d'agitation simples, peu d'études ont été réalisées sur le temps de mélange pour des systèmes à plusieurs agitateurs indépendants. L'ensemble des études réalisées est répertorié au Tableau 2-6.

Comme pour le problème de la consommation de puissance des systèmes à plusieurs agitateurs, deux types d'approche ont été utilisés pour traiter le temps de mélange :

- L'approche de JOHN et al. (1997, 1998) consiste à développer un temps de mélange en fonction de la puissance consommée par chaque mobile (voir équation 2-33). Cette approche nous montre bien l'influence de chaque mobile sur le temps de mélange, mais ne caractérise pas l'interaction existant entre les deux agitateurs. Notons que cette approche apparaît très limitée puisqu'elle ne fonctionne plus dès qu'un agitateur est arrêté.

- La deuxième approche proposée par ASCANIO et TANGUY (2005) et FOUCAULT et al. (2006) consiste à développer un nombre de Reynolds généralisé pour les deux mobiles d'agitation et de le corréler ensuite au temps de mélange adimensionnel. L'intérêt de cette approche dite « généralisée » est d'avoir au final une unique courbe de temps de mélange pour tout le système de mélange. Cependant, les études de FOUCAULT et al. (2006) ont montré, avec sa définition présentée à l'équation (2-35), que la courbe de temps de mélange n'est pas la même pour les deux modes de rotation. De plus, notons que l'approche « généralisée » proposée par ASCANIO et TANGUY (2005) n'a aucun sens physique et que la corrélation présentée par ces auteurs ne fonctionne pas lorsque les deux vitesses d'agitation sont égales (voir équation 2-34).

Tableau 2-6 : Temps de mélange dans des systèmes à plusieurs agitateurs indépendants

Auteurs	Système de mélange et méthodes utilisées	Régime et limitations	Corrélations	
(JOHN et al., 1997, 1998)	Mélangeur dual à deux arbres centrés indépendants: Turbine Rushton (1) – Scaba axial (2)	- Tous les régimes d'écoulement - Liquide newtonien ou non newtonien	$t_m = A\left(\frac{P_1}{V}\right)^{\alpha}\left(\frac{P_2}{V}\right)^{\beta}$ **(2-33)**	
(ASCANIO et TANGUY, 2005)	Mélangeur dual à deux arbres excentrés : RT-RT ou RT-PBT	- Régimes laminaire et transitoire - Liquide non newtonien rhéofluidifiant - Diamètre identique pour les deux agitateurs	$N.t_m = A.\mathrm{Re}_{MO}^{a}$ **(2-34)** avec $\mathrm{Re}_{MO} = \frac{\rho N^{2-n} D^2}{m.K_S^{n-1}}$ et $N = \frac{N_1 - N_2}{\ln\left(\frac{N_1}{N_2}\right)}$	
(FOUCAULT et al., 2006)	Mélangeur coaxial : Ancre (1) – turbine (2)	- Régimes transitoire et turbulent - Liquide newtonien ou non newtonien - $\phi = N_2/N_1 \in [10, 20]$ (la turbine consomme majoritairement la puissance)	Mode co-rotatif : $N = N_2 - N_1$ Mode contre-rotatif : $N = N_2 + N_1$ $D = D_2$	$N.t_m = A.(\mathrm{Re}_{gen})^{a}$ avec $\mathrm{Re}_{gen} = \frac{\rho N^{2-n} D^2}{m \cdot K_S^{n-1}}$ **(2-35)** Courbes différentes en mode co- et contre-rotatif

2.2.4 Synthèse

L'étude portant sur les techniques de mesure du temps de mélange nous a montré que la méthode de décoloration apparaît comme une technique très intéressante pour caractériser le mélange dans l'ensemble d'une cuve. En effet, la méthode de décoloration nous permet de détecter les zones non mélangées ou encore le phénomène de compartimentation de l'écoulement pouvant exister dans un système à plusieurs agitateurs (voir Figure 1-11). Cependant, nous avons vu que la subjectivité de cette méthode est son principal désavantage. Il serait donc intéressant d'améliorer la mesure du temps de mélange par décoloration en utilisant l'analyse d'image et en introduisant le concept de « cinétique de mélange ».

Concernant l'excentrage, il apparaît que son effet sur le temps de mélange est assez bien connu en régime turbulent (7 études réalisées). Cependant, en régime laminaire, les 5 études réalisées sont très qualitatives et on ne sait pas exactement comment l'excentrage de l'arbre de rotation agit sur la destruction des zones ségrégées. Selon ALVAREZ et al. (2002) il semble exister un optimum pour l'excentrage de l'arbre permettant de détruire efficacement les zones ségrégées. Il serait donc intéressant de déterminer l'emplacement optimal de l'arbre de rotation pour notre système de mélange étudié.

Enfin, concernant le temps de mélange pour un système à plusieurs agitateurs indépendants, il apparaît que les études menées jusqu'à maintenant ne permettent pas de caractériser le mélangeur proposé dans cette thèse. Ainsi, sachant que les deux agitateurs sont assez éloignés dans le mélangeur proposé, il peut être intéressant de développer une

approche « interaction » comme il a été présenté pour la consommation de puissance des systèmes à plusieurs agitateurs indépendants. L'évolution de l'interaction entre les deux agitateurs en fonction du sens de rotation et du type de mobiles utilisés (axial ou radial) nous permettrait de favoriser la collaboration des écoulements entre les deux agitateurs.

2.3 Écoulement gaz-liquide et transfert de matière

La cuve agitée mécaniquement est connue pour être un réacteur très efficace lorsqu'on a besoin de favoriser le transfert de matière entre un gaz et un liquide. Les mobiles d'agitation utilisés dans ces réacteurs sont des mobiles à décharge radiale permettant de soumettre le mélange gaz-liquide à un fort taux de cisaillement et ainsi de disperser en fines bulles le gaz dans le liquide. Comme présenté à la Figure 2-10, le mobile de référence utilisé pour disperser un gaz dans un liquide est la turbine Rushton. Notons cependant que d'autres mobiles plus récents tels que les turbines à pales concaves (également appelées turbines à pales incurvées ou turbines Smith) montrent une efficacité de dispersion bien plus avantageuse (voir Figure 2-11). Par exemple, la turbine à pales concaves Scaba 6SRGT disperse 3,5 fois plus de gaz que la turbine Rushton à puissance consommée égale (SAITO et al., 1992).

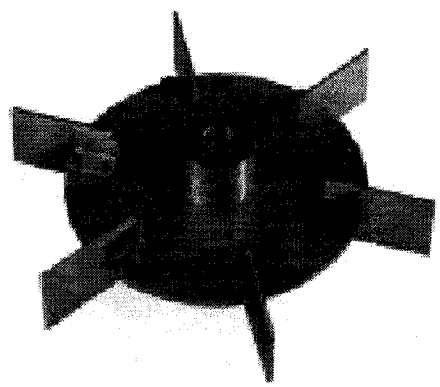


Figure 2-10 : Turbine Rushton

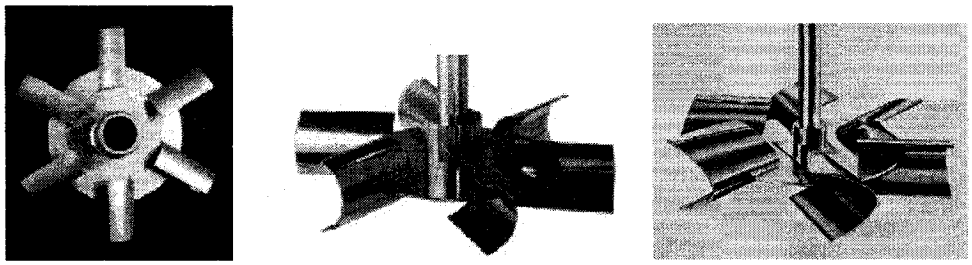


Figure 2-11 : Différents types de turbine à pales concaves

Les paramètres importants pour étudier la dispersion d'un gaz dans une cuve agitée mécaniquement sont (TATTERSON, 1991b) :

- les régimes hydrodynamiques d'écoulement autour de l'agitateur et dans la cuve,
- la taille des bulles, la rétention gazeuse et la surface spécifique,
- et le coefficient volumique de transfert de matière ($k_l a$)

Ces paramètres étant déterminés par (TATTERSON, 1991b) :

- la vitesse de rotation de l'agitateur,
- le débit de gaz,
- la géométrie de la cuve et de l'agitateur,
- et les propriétés physiques du liquide

2.3.1 Régimes hydrodynamiques d'écoulement

Typiquement, dans un contacteur gaz-liquide en cuve mécaniquement agitée, le gaz est introduit sous une turbine Rushton à l'aide d'un distributeur, comme il est illustré à la

Figure 2-12. Le gaz s'élève vers l'agitateur où il est dispersé en fines bulles et monte ensuite vers la surface de la cuve. Notons qu'une partie des bulles générées peut être recirculée par l'agitateur.

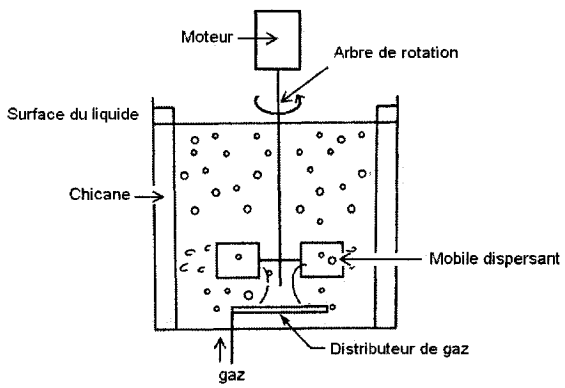


Figure 2-12 : Dispersion d'un gaz dans un liquide

Un des nombres adimensionnels importants dans les procédés diphasiques gaz-liquide pour caractériser les régimes d'écoulement est le nombre d'aération noté N_A et défini comme suit :

$$N_A = \frac{Q_{GD}}{ND^3} \qquad \textbf{(2-36)}$$

Le nombre d'aération représente le rapport entre le débit volumique de gaz introduit par le distributeur de gaz (Q_{GD}) et la capacité de pompage de l'agitateur (ND^3). Le nombre d'aération sert ainsi à caractériser la capacité de dispersion d'un agitateur. Notons que nous ne tenons pas compte de la quantité de gaz recirculée dans l'expression du nombre

d'aération; la recirculation ayant pour effet d'augmenter la quantité de gaz qui traverse l'agitateur.

L'autre nombre adimensionnel très utilisé pour caractériser les régimes d'écoulement gaz-liquide est le nombre de Froude noté *Fr*. Ce nombre adimensionnel représente le rapport entre les forces d'inertie et les forces de gravité et s'écrit :

$$Fr = \frac{N^2 D}{g} \qquad \textbf{(2-37)}$$

En pratique, le nombre de Froude représente le rapport entre la dépression de traînée créée par le mobile d'agitation et la poussée d'Archimède que subit le gaz. Ainsi, on utilise le nombre de Froude pour déterminer les conditions d'amorçage du mobile d'agitation lui permettant de générer la dispersion du gaz dans le liquide.

Dans un réacteur gaz-liquide, le régime d'écoulement du gaz permet de déterminer l'homogénéité de la dispersion et influence donc grandement la rétention gazeuse, la taille des bulles, la surface spécifique et le transfert de matière gaz-liquide. Les différents régimes d'écoulement des bulles de gaz dans le liquide sont présentés à la Figure 2-13.

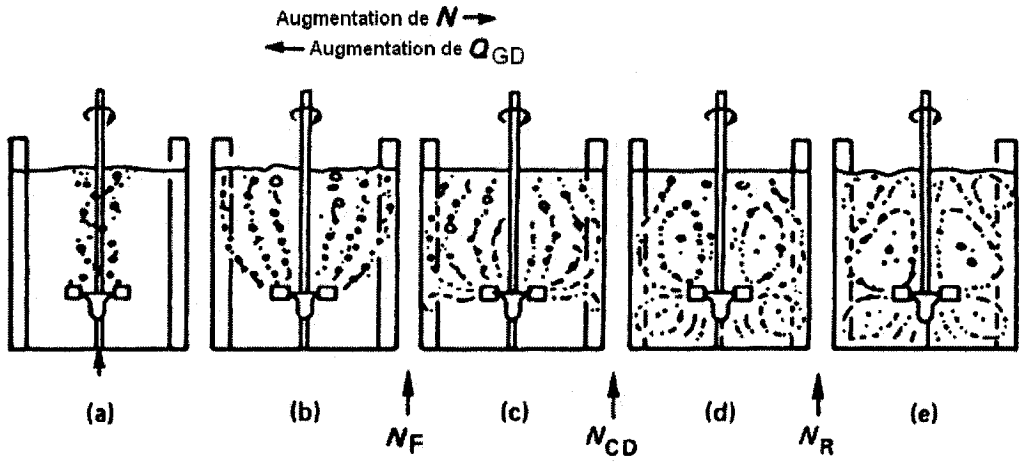


Figure 2-13 : Régimes d'écoulement des bulles de gaz dans le liquide

Pour un débit de gaz donné, le profil d'écoulement dans la cuve de mélange dépend de la vitesse d'agitation :

• A basse vitesse de rotation (Figure 2-13, a et b) le gaz passe principalement à travers l'agitateur sans être dispersé. On dit alors que l'agitateur est engorgé. En règle générale, un mobile s'engorge à un débit de gaz d'autant plus bas que sa capacité de pompage est faible. NIENOW et al. (1985) a proposé l'équation (2-38) pour déterminer le débit de gaz maximum avant engorgement d'une turbine Rushton dans de l'eau :

$$N_A = 30Fr\left(\frac{D}{T}\right)^{3,5} \qquad \textbf{(2-38)}$$

• En augmentant la vitesse d'agitation jusqu'à N_F, on capture le gaz dans les vortex présents à l'arrière des pales de l'agitateur et le gaz est dispersé radialement. On dit alors que l'agitateur est chargé (Figure 2-13, c). Il est généralement admis, lorsqu'on utilise une turbine Rushton dans de l'eau, que l'amorçage de la dispersion gaz-liquide se

produit à partir d'un nombre de Froude donné par l'équation (2-39) (WARMOESKERKEN et al., 1981).

$$Fr = 0{,}045 \tag{2-39}$$

• Lorsqu'on augmente davantage la vitesse d'agitation jusqu'à la valeur N_{CD}, le gaz est complètement dispersé dans la cuve de mélange (Figure 2-13, d).

• Au-delà de la vitesse N_{CD}, une recirculation du gaz apparaît, la recirculation complète ayant lieu à la vitesse N_R (Figure 2-13, e). L'équation (2-40) développée par NIENOW et al. (1977) nous donne le débit maximal de gaz utilisable avec une turbine Rushton pour permettre une recirculation complète du gaz dans de l'eau.

$$N_A = 13Fr^2\left(\frac{D}{T}\right)^5 \tag{2-40}$$

Le régime d'écoulement le plus rentable d'un point de vue énergétique est le régime chargé, c'est pourquoi les réacteurs gaz-liquide sont souvent opérés dans ce régime. Notons que les mêmes régimes d'écoulement décrits ci-dessus peuvent être obtenus en fixant la vitesse d'agitation et en faisant varier le débit de gaz.

Habituellement, pour représenter l'ensemble des régimes d'écoulement gaz-liquide, il est fréquent de tracer une carte d'écoulement comme celles présentées à la Figure 2-14. Sur ces cartes d'écoulement, le régime est déterminé en fonction de la vitesse d'agitation et du débit gazeux ou bien, si on travaille avec les nombres adimensionnels, en fonction du nombre de Froude et du nombre d'aération. Ces cartes d'écoulement sont valables

pour un système de mélange et un liquide donné. Notons qu'aucune carte d'écoulement n'a été déterminée pour un agitateur excentré dans une cuve non chicanée. Ainsi, les domaines des différents régimes d'écoulement ne sont pas connus pour le système de mélange proposé dans cette thèse.

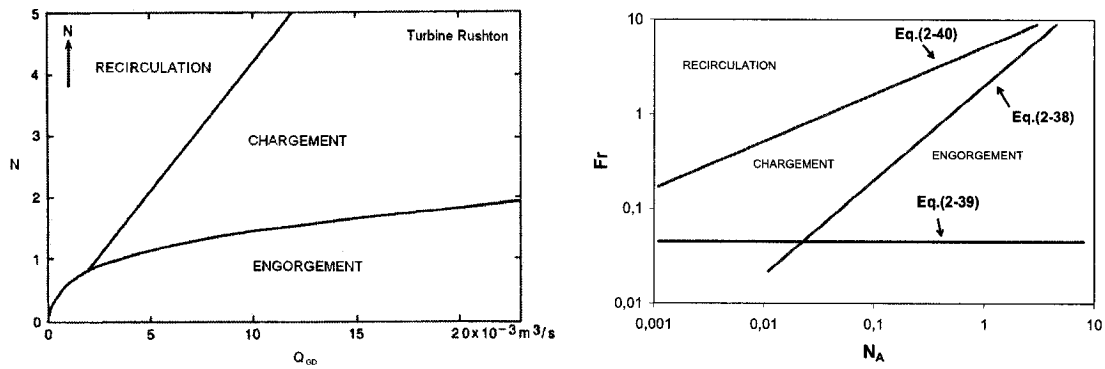


Figure 2-14: Cartes d'écoulement

Les lecteurs intéressés par les techniques employées pour déterminer les régimes d'écoulement sont invités à consulter l'excellent article de BOYER et al. (2002).

La plupart des études effectuées sur la dispersion gazeuse ont été réalisées avec des liquides peu visqueux et newtoniens (principalement de l'eau). Dans les liquides visqueux, la dispersion du gaz a lieu à faible nombre de Reynolds, le régime d'écoulement est ainsi laminaire-transitoire. Dans ce régime d'écoulement, l'agitateur le plus efficace pour disperser un gaz dans un liquide n'a pas encore été déterminé (TATTERSON, 1991b). Cependant, il semble que les mobiles distributifs tels que

l'ancre et le ruban hélicoïdal soient plus efficaces que la turbine Rushton pour disperser un gaz dans un liquide hautement visqueux (TECANTE, 1991). BRUIJN et al. (1974) ont constaté, dans le cas des fluides visqueux, que les cavités formées à l'arrière des agitateurs étaient très stables et que ces cavités restaient attachées à l'agitateur même lorsque le débit de gaz était coupé, ce qui conduisait à diminuer la puissance d'agitation. YOSHIDA et al. (2001) ont constaté que les mobiles raclants souffrent de lacunes importantes pour la dispersion gaz-liquide en milieux visqueux. Ces lacunes étant :

- la présence de grosses cavités gazeuses à l'arrière des pales,
- la nécessité d'opérer à faible débit de gaz pour éviter l'engorgement de l'agitateur,
- Et la création insuffisante de petites bulles de gaz due au faible taux de cisaillement généré par l'agitateur.

Les mobiles turbulents, qui génèrent un fort taux de cisaillement, peuvent donc être une bonne solution pour disperser un gaz dans un liquide visqueux.

2.3.2 Puissance consommée en milieu aéré

La consommation de puissance en milieu aéré est une quantité globale qui dépend du régime d'écoulement dans la cuve, lui-même déterminé par le débit de gaz, la vitesse de rotation de l'agitateur, la géométrie du système de mélange (agitateur, distributeur de gaz, etc.) et des propriétés physiques du fluide. C'est pourquoi la puissance consommée en milieu aéré est un paramètre très utilisé pour corréler la rétention gazeuse, la surface

spécifique des bulles, ainsi que le coefficient volumique de transfert de matière gaz-liquide. Notons de plus que la puissance consommée en milieu aéré est utilisée pour le calcul des coûts opératoires et la comparaison entre différents designs de réacteur.

Les corrélations les plus récentes de la puissance consommée en milieu aéré relient le ratio P_g/P_0 (en général $P_g<P_0$) au nombre d'aération (N_A) et au nombre de Froude (Fr). Pour un système de mélange et un liquide donné, il est donc commun d'écrire :

$$N_{Pg} = \frac{P_g}{\rho N^3 D^5} = f\left(P_0, N_A, Fr\right) \qquad \textbf{(2-41)}$$

où P_g est la puissance en milieu aéré et P_0 la puissance en milieu non aéré. Les corrélations de la puissance consommée en régime aéré ne sont valables que pour un régime d'écoulement donné. Notons cependant que beaucoup de confusions peuvent avoir lieu à cause de l'utilisation du nombre d'aération. En effet, la valeur du nombre d'aération peut être identique pour différents régimes d'écoulement. Par exemple, un faible nombre d'aération peut signifier un faible débit gazeux ou une haute vitesse de rotation de l'agitateur. Dans ces deux cas, la puissance en milieu aéré est fort différente. Il est donc important de bien vérifier le régime d'écoulement avant d'utiliser une corrélation de puissance en milieu aéré. Typiquement, pour une turbine Rushton en régime chargé, le rapport P_g/P_0 diminue rapidement de 1,0 jusqu'à 0,3-0,6 lorsque le nombre d'aération est entre 0,035 et 0,05. Ensuite, au-delà d'un nombre d'aération de 0,05, le nombre d'aération n'a plus d'influence sur le rapport P_g/P_0 qui est alors constant.

En plus du nombre d'aération et du nombre de Froude, certaines corrélations de la puissance en milieu aéré peuvent dépendre du nombre de Weber (qui représente le rapport des forces d'inertie sur les forces de tension superficielle ($We=\rho N^2D^3/\sigma$)), de la rétention gazeuse, du nombre de Reynolds ainsi que des rapports géométriques adimensionnels. NAGATA (1975a) a même noté que la consommation de puissance en milieu aéré dépendait de la géométrie du distributeur de gaz utilisé.

Le Tableau 2-7 présente quelques corrélations de la puissance en milieu aéré pour une turbine Rushton dans une cuve « standard » en fonction du régime d'écoulement.

Tableau 2-7 : Consommation de puissance d'une turbine Rushton en fonction du régime d'écoulement (SMITH et al., 1987)

Régime d'écoulement	Corrélation
Régime de recirculation	$\frac{P_g}{P_0} = 1 - 16{,}7.N_A Fr^{0{,}35}$ **(2-42)**
Régime chargé (grosses cavités gazeuses)	$\frac{P_g}{P_0} = 0{,}27 + 0{,}022.Fr^{-1}$ **(2-43)**
Régime chargé (petites cavités gazeuses)	$\frac{P_g}{P_0} = B - 0{,}1\left(\frac{A-B}{N_A - 0{,}1}\right) + \frac{(A-B)N_A}{N_A - 0{,}1}$ **(2-44)** $A = 1 - 17.N_A Fr^{0{,}35}$ $B = 0{,}27 + 0{,}022.Fr^{-1}$

La Figure 2-15 présente l'évolution de la consommation de puissance d'un agitateur en milieu aéré en fonction du régime d'écoulement. Lorsque l'agitateur est engorgé, la puissance consommée par l'agitateur est inférieure à celle en milieu non aéré (Figure 2-15b). On observe ensuite une forte diminution de la puissance consommée lorsque l'agitateur devient chargé (Figure 2-15c). Lorsque la dispersion complète du gaz est atteinte, la puissance consommée est minimale. Si on augmente la vitesse d'agitation au-dessus de N_{CD}, une recirculation apparaît conduisant à une augmentation de la puissance consommée.

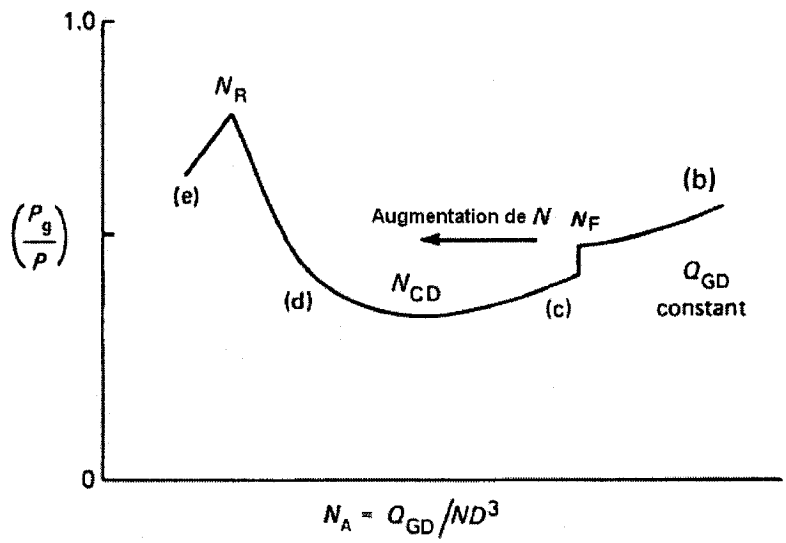


Figure 2-15 : Allure de la puissance en milieu aéré en fonction du nombre d'aération (débit gazeux constant)

Notons que la consommation de puissance en milieu aéré d'un agitateur excentré dans une cuve non chicanée demeure inconnue. Ainsi, concernant le mélangeur proposé dans

cette thèse, aucune corrélation n'est disponible pour déterminer la consommation de puissance en milieu aéré.

2.3.3 Transfert de matière gaz-liquide

2.3.3.1 Caractéristiques de la dispersion gaz-liquide

Afin de caractériser le transfert de matière entre la phase gazeuse et la phase liquide, il est important de connaître la surface de contact entre ces deux phases. Commençons donc par définir les caractéristiques d'une dispersion gaz-liquide :

- La surface spécifique des bulles, notée a, est définie comme la surface de contact entre la phase gazeuse et la phase liquide dans un volume de mélange gaz-liquide donné, divisée par le volume de liquide présent dans ce volume de mélange. Notons que cette surface spécifique peut être déterminée localement ou globalement en fonction de la taille du volume de mélange considéré.

- La rétention gazeuse, notée α, est quant à elle définie comme le volume de gaz dans un volume de mélange divisé par le volume de liquide présent dans le volume de mélange. Tout comme la surface spécifique, la rétention gazeuse peut être déterminée localement ou globalement.

La surface spécifique entre la phase gazeuse et la phase liquide dépend de la rétention gazeuse et de la taille des bulles. Si on considère une taille de bulle unique dans le

liquide; la rétention gazeuse (α), la surface spécifique (a) et la taille des bulles (d_b) sont reliées par l'équation (2-45).

$$a = \frac{6\alpha}{d_b} \tag{2-45}$$

Notons que le facteur 6 de l'équation (2-45) provient de la relation :

$$\frac{S_{bulle}}{V_{bulle}} = \frac{6}{d_b} \tag{2-46}$$

S_{bulle} et V_{bulle} étant respectivement la surface et le volume d'une bulle.

Sachant qu'en pratique il n'y a pas qu'une seule taille de bulles, on utilise plutôt la relation suivante :

$$a = \frac{6\alpha}{d_{32}} \tag{2-47}$$

d_{32} étant le diamètre moyen de Sauter des bulles défini comme suit :

$$d_{32} = \frac{\sum n_i d_i^3}{\sum n_i d_i^2} \tag{2-48}$$

où n_i est le nombre de bulles de diamètre d_i.

Typiquement, la rétention gazeuse est comprise entre 0 et 25%; le diamètre des bulles d'air dans l'eau entre 0,5 et 20 mm; et la surface spécifique de 0,1 à 5,0 cm^{-1}.

Le diamètre des bulles, la surface spécifique et la rétention gazeuse peuvent être mesurés par différentes méthodes expérimentales. Certaines méthodes déterminent des quantités moyennées sur l'ensemble de la cuve de mélange alors que d'autres donnent des valeurs locales. Avant d'utiliser une corrélation, une attention particulière doit donc être portée à la méthode expérimentale utilisée pour la détermination de la corrélation.

Taille des bulles

En se basant sur les travaux de HINZE (1955), CALDERBANK (1958) a relevé qu'un équilibre existait entre les forces interfaciales et les forces de fluctuation turbulente durant la rupture d'une bulle. À partir de cet équilibre, et en se basant sur des expériences réalisées avec une turbine Rushton à 6 pales dans une cuve munie de chicanes, l'équation suivante a été développée pour déterminer le diamètre de Sauter des bulles :

$$d_{32} = 4{,}15\times10^{-2}\cdot\left[\frac{\sigma^{0,6}}{(P_g/V)^{0,4}\,\rho_c^{0,2}}\right]\cdot\alpha^{0,5} + 0{,}0009 \qquad \textbf{(2-49)}$$

Cette équation n'est pas valable pour un très grand nombre de Reynolds et lorsque la taille de la cuve de mélange est supérieure à 100L. Notons que cette approche de CALDERBANK (1958) a aussi permis l'établissement de corrélations permettant de déterminer la rétention gazeuse et la surface spécifique.

Notons que SRIDHAR et POTTER (1980) ont amélioré la formule proposée par CALDERBANK (1958) en faisant intervenir la puissance totale injectée au système (P_T)

qui représente la somme des puissances générées par : l'agitation mécanique, le gaz injecté et l'expansion des bulles (voir équation (2-50)).

$$d_{32} = 4{,}15\times10^{-2}\cdot\left[\frac{\sigma^{0,6}}{\left(P_g/V\right)^{0,4}\rho_c^{0,2}}\right]\left(\frac{P_g}{P_T}\right)\left(\frac{\rho_{air}}{\rho_{injection}}\right)^{0,16}\cdot\alpha^{0,5}+0{,}0009 \qquad \textbf{(2-50)}$$

Rétention gazeuse

La rétention gazeuse est une quantité importante dans l'évaluation des performances d'un réacteur. La corrélation la plus largement admise pour déterminer la rétention pour un système en régime chargé ou de recirculation est donnée par l'équation (2-51) (MIDDLETON et SMITH, 2004).

$$\alpha = A.\left(\frac{P_g}{\rho V}\right)^{\alpha}\left(v_s\right)^{\beta} \qquad \textbf{(2-51)}$$

Dans cette relation v_s est la vitesse superficielle du gaz définie comme suit :

$$v_s = \frac{Q_{GD}}{\pi\dfrac{T^2}{4}} \qquad \textbf{(2-52)}$$

Par exemple, pour les milieux non newtoniens, MACHON et al. (1980) ont montré en se basant sur des études réalisées avec du CMC que :

$$\alpha \propto \left(\frac{P_g}{\rho V}\right)^{0,3}\left(v_s\right)^{0,7} \qquad \textbf{(2-53)}$$

Les lecteurs intéressés par les techniques de mesures de rétention gazeuses sont invités à consulter l'excellent article de BOYER et al. (2002).

Surface spécifique des bulles

VERMEULEN et al. (1955) ont étudié la surface spécifique des bulles dans une cuve chicanée agitée avec une turbine Rushton. Ces auteurs sont arrivés finalement à l'équation suivante :

$$a = \frac{1400 N^{1,5} D \rho_L^{0,5} \mu_G^{0,75} \alpha}{\sigma \mu_L^{0,25} f_\alpha} \tag{2-54}$$

où f_α est une fonction de α à déterminer.

En se basant sur les travaux de HINZE (1955), CALDERBANK (1958) a relevé qu'un équilibre existait entre les forces interfaciales et les forces de fluctuation turbulente durant la rupture d'une bulle. À partir de cet équilibre, l'équation suivante a été développée pour déterminer la surface spécifique d'un gaz dans de l'eau :

$$a_0 = 1{,}44 \times 10^{-2} \cdot \left[\frac{\left(P_g / V\right)^{0,4} \rho_c^{0,2}}{\sigma^{0,6}} \right] \left(\frac{v_s}{v_t} \right)^{0,5} \tag{2-55}$$

où v_t est la vitesse terminale de montée d'une bulle de gaz et v_s la vitesse superficielle du gaz (voir équation 2-52). Cette équation n'est pas valable pour des grands nombres de Reynolds et lorsque la taille de la cuve de mélange est supérieure à 100L.

Lorsque $Re^{0,7}(ND/v_s)^{0,3}>20\ 000$, CANDERBANK (1958) a ensuite proposé d'utiliser l'équation suivante :

$$\log\left(\frac{2,3a}{a_0}\right) = 1,95\times10^{-4}\,Re^{0,7}\left(\frac{ND}{v_s}\right)^{0,3} \qquad \textbf{(2-56)}$$

2.3.3.2 Coefficient volumique de transfert de matière (k_la)

Le transfert de matière gaz-liquide dépend principalement de l'hydrodynamique dans le film liquide à la surface des bulles de gaz, de la surface de transfert, de la différence de concentration de l'espèce migrante entre les deux phases et du temps de séjour de la phase gazeuse dans la phase liquide (ROONEY et HUIBREGTSE, 1983). La plupart des caractéristiques de l'aération telles que la rétention gazeuse, la vitesse des bulles et le coefficient volumique de transfert de matière (k_la) sont gouvernées par la grosseur des bulles dans la cuve d'agitation. Une bonne connaissance du comportement des bulles est donc nécessaire afin de comprendre et de prédire le transfert de matière gaz-liquide dans le réacteur.

Le transfert de matière gaz-liquide d'un gaz peu soluble, comme l'oxygène, est caractérisé par le produit du coefficient de transfert de matière coté liquide k_l (m/s) par l'aire spécifique d'échange par unité de volume de liquide a (m^{-1}). Ce produit est par définition le coefficient volumique de transfert de matière gaz-liquide, noté k_la (s^{-1}). Ce coefficient est un facteur d'efficacité pour les contacteurs gaz-liquide car il caractérise les possibilités de transfert de matière du contacteur. Sachant que le transfert de matière

gaz-liquide est souvent l'étape limitante d'une réaction, on conçoit la nécessité de favoriser au maximum ce transfert. Par exemple, dans les fermenteurs aérobiques, le rendement de production est déterminé par le transfert de matière entre l'oxygène présent dans la phase gazeuse et les cellules consommatrices d'oxygène présentes dans la phase liquide. Ceci est du à la basse solubilité de l'oxygène dans les bouillons de fermentation qui est de 9,1 g/m^3 pour un bouillon en équilibre avec de l'air à 1 bar et 20°C, alors que la demande des cellules peut être supérieure à 2,7 $kg.m^{-3}.h^{-1}$ (ANDERSON et al., 1982)

Sachant que, lors du transfert de matière, la concentration de gaz dissous dans la phase liquide dépend du temps, on peut déterminer le $k_l a$ en régime permanent (statique) ou en régime transitoire (dynamique). On définit ainsi, suivant le régime, deux types de méthodes pour la détermination du $k_l a$. Notons cependant que certaines méthodes particulières de détermination du $k_l a$ peuvent appartenir aux deux catégories de méthode.

Méthodes statiques :

Théoriquement, les méthodes statiques sont les méthodes les plus simples et les plus directes pour déterminer le $k_l a$. Toutes ces méthodes sont basées sur l'équation suivante :

$$\Phi = k_l a\left(c^* - c\right) \qquad \textbf{(2-57)}$$

qui relie le taux de transfert par unité de volume de liquide, Φ ($mol/m^3.s$), à l'écart par rapport à l'équilibre de la concentration dans le liquide de la substance transférée. Ici c

représente la concentration dans le liquide de l'espèce transférée et c^* est la valeur de c à l'interface gaz-liquide (interface d'équilibre thermodynamique entre les deux phases).

Les méthodes statiques supposent que l'absorption de la substance gazeuse est indépendante du temps grâce à une consommation très rapide de cette substance dans la phase liquide. La consommation de la substance migrante dans la phase liquide est réalisée par une réaction chimique ou enzymatique assez rapide pour maintenir une très faible concentration de cette substance dans la phase liquide. On considère alors que c=0 à tous moments dans l'équation (2-57) et ainsi le taux de transfert par unité de volume de liquide est constant et donné par l'équation suivante :

$$\Phi = k_l a.c^* \qquad \textbf{(2-58)}$$

Il suffit donc de doser les réactifs ou produits de la réaction au bout d'un temps donné pour connaître Φ. Connaissant la valeur c^*, on détermine alors $k_l a$. Le meilleur exemple de méthode de détermination du $k_l a$ en régime permanent est la méthode d'oxydation des sulfites. Certains auteurs considèrent que les méthodes en régime permanent sont les seules méthodes capables de donner de bonnes valeurs du $k_l a$ car la mesure réalisée est une mesure globale (LINEK et al., 1987).

Méthodes dynamiques :

Les méthodes dynamiques de mesure du $k_l a$ sont basées sur le fait que l'absorption d'une substance gazeuse A dans une phase liquide obéit à la relation :

$$\frac{dc}{dt} = k_l a\left(c^* - c\right) \qquad \textbf{(2-59)}$$

où : c est la concentration de A dissous dans le liquide ($c(t)$)

c^* est la solubilité de A dans le liquide

L'intégration dans le temps de l'équation différentielle précédente nous donne l'équation :

$$\ln\left(\frac{c^* - c}{c^* - c^o}\right) = -k_l a.t \qquad \textbf{(2-60)}$$

avec c^o la concentration de A dans le liquide en t=0

Nous pouvons donc obtenir le $k_l a$ en traçant $\ln(c^*-c)$=f(t). La droite ainsi obtenue ayant une pente de $-k_l a$. Ces méthodes sont les plus employées du fait de leur simplicité. Cependant, ces méthodes ne sont pas aussi précises que les méthodes statiques du fait de l'utilisation d'une sonde de mesure. En effet, ces sondes donnent une mesure locale de la concentration qui n'est pas forcément la même partout dans la cuve. Ainsi, lorsqu'on utilise une méthode dynamique, il est nécessaire de faire l'hypothèse que le réacteur est parfaitement mélangé, ce qui n'est toujours le cas en réalité.

Pour plus d'informations concernant l'ensemble des méthodes de détermination du k_la, les lecteurs intéressés pourront se référer à la très bonne revue de littérature réalisée dans la thèse de TECANTE (1991).

Corrélation du k_la :

Il est bien établi dans la littérature que la corrélation du k_la la plus largement admise s'exprime pour les régimes d'écoulement chargé et de recirculation de la forme suivante (JOHN et al., 1997; MIDDLETON et SMITH, 2004):

$$k_l a = K\left(\frac{P_g}{\rho V}\right)^{\alpha} (v_s)^{\beta} \qquad \textbf{(2-61)}$$

2.3.4 Agitateurs excentrés et systèmes de mélange à plusieurs arbres indépendants

Les études réalisées par HALL et al. (2005b,c) ont porté sur la position du distributeur de gaz lorsqu'on utilise une turbine à 6 pales inclinées (PBT) à pompage haut en position excentrée dans une cuve non chicanée de très petite taille (T=45mm). Deux positions de distributeur de gaz ont été testées comme présenté à la Figure 2-16. Les résultats obtenus sur des liquides newtoniens en régime turbulent ($Re \in [1{,}92.10^3 ; 1{,}44.10^4]$) ont montré que le diamètre des bulles était plus petit lorsque le distributeur était en position β comparé au cas généralement utilisé où le distributeur est placé juste en dessous de l'agitateur (position α). Le diamètre des bulles générées avec la position β était de 0,7-0,85 mm, ce qui est plus petit que les valeurs habituellement obtenues dans

une cuve « standard » de plus grande taille (agitateur centré avec chicanes) (HALL et al., 2005c). La surface spécifique obtenue était alors de 2 à 3 fois plus élevée que celle obtenue dans une cuve « standard » de plus grande taille. Selon les auteurs, les fines bulles générées par le distributeur sont à l'origine de ces résultats surprenants (HALL et al., 2005c).

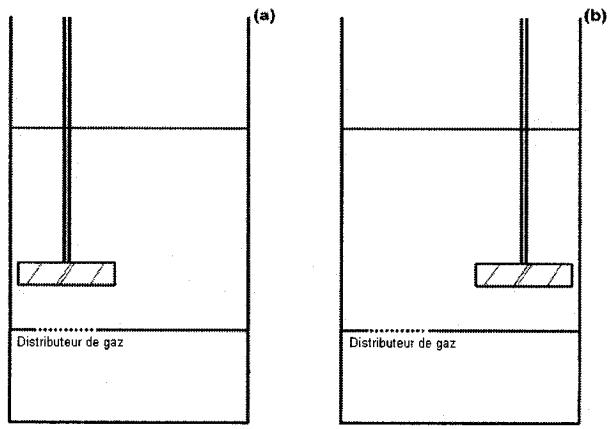


Figure 2-16 : Position du distributeur de gaz dans les études de HALL et al. (2005b,c) : a) Position α, b) Position β

Concernant l'effet de l'excentrage de l'arbre de rotation sur le transfert de matière gaz-liquide en régime laminaire, l'étude réalisée par BAGTZOGLOU et al. (2006) a montré que l'excentrage de l'arbre dans une cuve non chicanée favorisait le transfert de matière lors d'une fermentation aérobique dans un liquide newtonien.

Concernant le transfert de matière gaz-liquide dans un mélangeur à deux arbres de rotation indépendants, les études de JOHN et al. (1997, 1998) ont montré que l'on

pouvait simplement corréler le k_la avec l'équation classique (2-61) en utilisant la puissance totale dissipée par les agitateurs :

$$k_l a = K\left(\frac{P_{g1} + P_{g2}}{\rho V}\right)^{\alpha} (v_s)^{\beta} \qquad \textbf{(2-62)}$$

2.3.5 Synthèse

La revue de littérature nous a montré que la carte d'écoulement d'un agitateur excentré dans une cuve non chicanée n'est pas connue. De plus, on ne sait pas comment évolue cette carte d'écoulement lorsqu'on utilise un liquide visqueux newtonien ou un liquide non newtonien.

Concernant la consommation de puissance en milieu aéré, aucune étude n'a été réalisée avec un mobile excentré.

Enfin, très peu d'études ont été effectuées sur la dispersion gaz-liquide dans une cuve munie d'un agitateur excentré. D'après les études de HALL et al. (2005b,c) et BAGTZOGLOU et al. (2006), il semble que l'excentrage soit favorable au transfert de matière gaz-liquide en régime laminaire et turbulent pour des fluides newtoniens. Cependant, ces résultats sont à confirmer en effectuant des mesures de k_la. Concernant l'effet de l'excentrage sur le transfert de matière gaz-liquide dans un liquide non newtonien, aucune étude n'a été réalisée à ce jour.

2.4 Bilan et objectifs spécifiques

Faisons un bref bilan des différentes parties de la revue de littérature afin d'établir les objectifs spécifiques de cette thèse.

Puissance d'agitation :

- L'effet de l'excentrage d'un mobile d'agitation sur sa consommation de puissance est assez bien connue en régime turbulent mais ne l'est pas du tout en régime laminaire.
- L'interaction des deux mobiles sur la consommation de puissance du mélangeur proposé n'est pas connue.

Temps de mélange :

- La méthode de détermination du temps de mélange par décoloration souffre de subjectivité.
- Le concept de « cinétique de mélange » doit être introduit pour caractériser la présence des zones mortes et le phénomène de compartimentation de l'écoulement.
- L'effet de l'excentrage sur le temps de mélange est assez bien connu en régime turbulent mais ne l'est pas en régime laminaire.
- L'excentrage optimal des mobiles d'agitation n'est pas connu.
- L'interaction des deux mobiles sur le temps de mélange du mélangeur proposé n'est pas connue.

Écoulement gaz-liquide et transfert de matière :

- La carte d'écoulement d'un agitateur excentré dans une cuve non chicanée n'est pas connue. De plus, on ne sait pas comment évolue cette carte d'écoulement lorsqu'on utilise un liquide visqueux newtonien ou un liquide non newtonien.
- Aucune étude n'a été réalisée sur la consommation de puissance d'un mobile excentré en milieu aéré.
- L'effet de l'excentrage sur le transfert de matière gaz-liquide dans un liquide newtonien ou non newtonien n'est pas connu.

Au regard de ce bilan, les objectifs spécifiques abordés dans cette thèse sont donc :

- Rendre reproductible la technique de mesure du temps de mélange par coloration-décoloration en utilisant l'analyse d'images. Introduire le concept de « cinétique de mélange » afin de pouvoir caractériser les zones non mélangées et le phénomène de compartimentation de l'écoulement lors de la mesure du temps de mélange.
- Caractériser les effets de l'excentrage d'une turbine Rushton opérant en régime laminaire dans une cuve non chicanée sur :
    - la consommation de puissance du mobile d'agitation
    - et l'efficacité du mélange (temps de mélange et destruction des zones ségrégées).

- Evaluer l'interaction des deux mobiles d'agitation utilisés dans notre mélangeur à deux arbres excentrés sur :
    - la consommation de puissance
    - et sur le temps de mélange.
- Caractériser l'effet de l'excentrage sur le transfert de matière gaz-liquide en utilisant des liquides newtoniens et non newtoniens.

CHAPITRE 3: PRÉSENTATION DES ÉTAPES DE TRAVAIL

Voici la stratégie de recherche qui est envisagée pour répondre aux objectifs spécifiques de cette thèse :

• Nous proposons tout d'abord de développer une technique permettant d'étudier efficacement le mélangeur proposé dans cette thèse.

Afin de rendre reproductible la mesure du temps de mélange par décoloration d'une réaction acide-base, la stratégie utilisée est de suivre l'évolution des composantes du modèle de couleur RVB pendant la décoloration. L'évolution des composantes de couleur RVB devra être suivie en détail afin de définir avec précision un seuil différençiant un état mélangé d'un état non mélangé.

En ce qui concerne le suivi de la « cinétique de mélange », nous proposons d'étudier chacun des pixels individuellement afin de différencier les zones mélangées de celles non mélangées.

• Sachant que le mélangeur proposé est composé de deux agitateurs excentrés, nous commencerons tout d'abord à étudier le cas simple d'un agitateur excentré. L'effet de l'excentrage sur l'efficacité du mélange sera ainsi caractérisé en régime laminaire en

utilisant la méthode de détermination du temps de mélange par analyse d'images précedemment développée.

• Ensuite, nous étudierons l'hydrodynamique de la configuration à deux arbres de rotation excentrés proposée dans cette thèse. Afin de montrer les qualités de mélange de cette configuration, ses performances hydrodynamiques seront comparées avec des configurations plus « standards » où les deux agitateurs sont placés sur le même arbre de rotation.

• Enfin, les capacités de transfert de matière gaz-liquide du mélangeur proposé seront évaluées avec des liquides newtoniens et non newtoniens de différentes viscosités. Afin d'apprécier les performances du mélangeur, nous comparerons ces performances avec celles de configurations plus « standards ».

CHAPITRE 4: MÉTHODOLOGIE

4.1 Présentation du montage pilote

Le montage pilote à deux arbres de rotation excentrés utilisé pour cette recherche est présenté à la Figure 4-1. Ce montage comprend :

- Une cuve de mélange en plexiglas à fond plat ayant un diamètre T=0,21m et une hauteur de 0,46 m (soit un volume total de 15,93 L).
- Deux moteurs à courant continu possédant une vitesse nominale de 2500 tr/min (Type 42A5FEPM, 130V, 1,8A, 0,25 HP, Bodine Electric Company). Afin de contrôler la vitesse de rotation des moteurs, chacun des moteurs est relié à un tachymètre qui lui-même est lié à un contrôleur. L'agitateur lié au moteur de gauche peut uniquement être déplacé horizontalement alors que celui de droite peut être déplacé horizontalement et verticalement. Le moteur de gauche tourne uniquement dans un sens de rotation alors que celui de droite peut tourner dans les deux sens.
- Deux bonbonnes de gaz comprimé de 44L (une bouteille d'air et une bouteille d'azote) sont utilisées pour étudier le transfert de matière gaz-liquide. Afin de permettre un bon débit de gaz injecté, chacune des bonbonnes de gaz est reliée à un régulateur de pression à double étage.

- Un distributeur de gaz torique dont le diamètre représente 75% du diamètre de l'agitateur est utilisé (voir Figure 4-2). Le distributeur de gaz possède 8 orifices régulièrement espacés de 0,2 mm de diamètre.
- Le débit d'air injecté dans le réacteur est déterminé à l'aide d'un débimètre de masse de précision ± 0.05 L/min dont la gamme de mesure va de 0 à 50 L/min (Aalborg, Model GFM371).

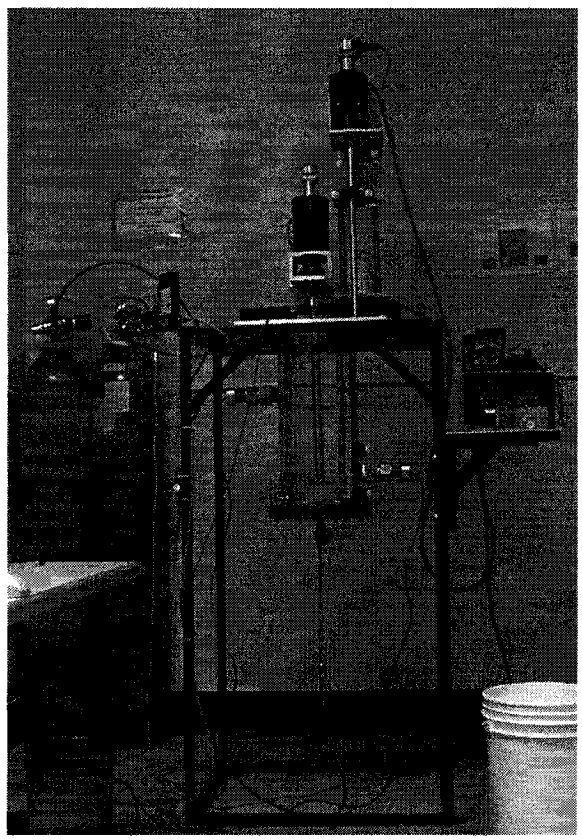


Figure 4-1 : Montage pilote



Figure 4-2 : Distributeur de gaz torique

Le mobile d'agitation utilisé dans cette thèse est la turbine Rushton (voir Figure 4-3). Ce mobile à pompage radial est traditionnellement utilisé en mélange gaz-liquide en raison de sa bonne capacité de dispersion (OLDSHUE, 1960). Cependant, les désavantages de cet agitateur sont :

- son grand nombre de puissance en milieu non aéré et sa forte diminution de puissance consommée en milieu aéré (cette diminution de puissance peut représenter jusqu'à 60-70% de la puissance en milieu non aéré) (NIENOW et ELSON, 1988)
- sa tendance à la compartimentation de la cuve (qui est due à un mauvais écoulement axial lorsqu'on utilise plusieurs agitateurs sur le même arbre de rotation) (KUBOI et NIENOW, 1986; SOLOMON et al., 1981a,b)

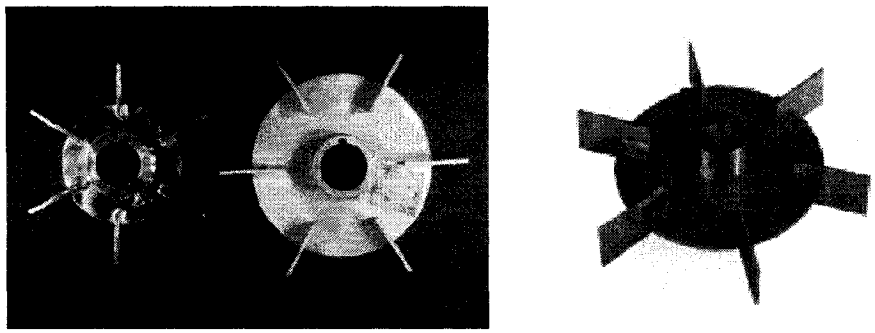


Figure 4-3 : Turbines Rushton

Les valeurs couramment rencontrées pour la turbine Rushton à 6 pales sont :

- Nombre de puissance en régime turbulent : N_P=5,4
- Nombre de débit : N_Q=0,72

4.2 Rhéologie des liquides utilisés

Les fluides utilisés pour les expériences sont :

- Fluides newtoniens :
    - Solutions visqueuses de glucose (dont la viscosité peut atteindre jusqu'à 33 Pa.s). La viscosité des solutions de glucose dépend beaucoup de la température, il est donc important de s'assurer que la température est constante tout au long d'expérience.
    - Eau (basse viscosité)

- Fluides non newtoniens rhéofluidifiants :
    - Solutions de Carboxyméthylcellulose (CMC) à différentes concentrations. Plus la concentration de CMC est importante et plus le liquide est visqueux et rhéofluidifiant. En raison de l'apparition de caractères viscoélastiques dans les solutions de CMC à haute concentration, le CMC utilisé (Cekol, Noviant) ne pouvait dépasser 1,5% en solution.

4.3 Mesure de la puissance d'agitation

La puissance dissipée par chacun des deux mobiles d'agitation sera déterminée grâce à une mesure de la puissance consommée par chacun des moteurs. Pour ce faire, les deux moteurs ont été reliés à un voltmètre (calibre 200V) et un ampèremètre (calibre 10A). La puissance électrique consommée par le moteur étant donnée par la relation :

$$P = U.I \qquad \textbf{(4-1)}$$

Une mesure de la puissance de chacun des moteurs en fonction de la vitesse de rotation lorsque la cuve de mélange est vide permet de connaître la puissance consommée à vide ($P_{vide}(N)$). Cette puissance à vide est ensuite soustraite de la puissance du moteur lors du mélange d'un fluide ($P_{chargé}(N)$) pour obtenir la puissance d'agitation.

Sachant que les moteurs n'ont pas un rendement de 100%, la puissance d'agitation est donnée par la formule :

$$P(N) = \eta P_{chargé}(N) - \eta_0 P_{vide}(N) \qquad \textbf{(4-2)}$$

où η et η_0 sont les rendements du moteur lorsqu'il est respectivement chargé ou à vide. Expérimentalement nous avons obtenu $\eta=\eta_0=60\%$ en étudiant une turbine Rushton de K_P connu en régime laminaire.

4.4 Mesure du temps de mélange

Les temps de mélange vont être évalués par la technique d'analyse d'images développée dans cette thèse. L'indicateur coloré utilisé est le bromocrésol pourpre (0,08% massique) qui a une zone de virage comprise entre pH de 5,2 et un pH de 6,8. En milieu acide l'indicateur coloré est jaune et en milieu basique il est pourpre.

Pour un volume de liquide de 10L, on incorporera environ 45 mL de bromocrésol pour que le changement de couleur soit bien perceptible. Afin de basifier le milieu à mélanger, on ajoutera quelques gouttes de NaOH (10M) dans le liquide. Ensuite, selon le changement de couleur visé, 2 mL de HCl (10M) ou 2 mL de NaOH (10M) seront mélangés à 100 mL de solution prélevée dans la cuve de mélange. Ce mélange est important pour que le traceur ait la même masse volumique que la solution présente dans la cuve de mélange. Des études faites par différents auteurs montrent que le temps de

mélange n'est pas affecté tant la différence de masse volumique entre le traceur et le liquide mélangé ne dépasse pas 100 kg/m^3 (BURMESTER et al., 1991; BOUWMANS et al., 1997). Dans notre cas, des essais avec du glucose pur ont montré que la différence de masse volumique entre le traceur et le milieu à mélanger variait de 25 à 50 kg/m^3.

Comme il est plus facile de visualiser la couleur pourpre dans un milieu qui est jaune que le contraire, le temps de mélange trouvé lorsqu'on ajoute le traceur acide dans la solution basique sera utilisé.

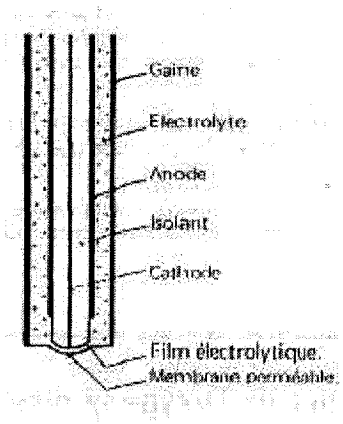
Pour ne pas changer les propriétés rhéologiques de la solution, il est suggéré d'utiliser une solution fraîche de CMC ou de glucose après 6 expériences. Après ce nombre d'expériences, l'accumulation des réactifs est trop importante pour ne pas affecter la rhéologie de la solution et fausser les temps de mélange observés. Sachant que nous déterminerons les temps de mélange uniquement lorsque la solution passe du pourpre au jaune, nous pourrons réaliser 3 temps de mélange par « batch ». De plus, une cuillère à café d'eau de Javel doit être ajoutée à chaque 10L de liquide mélangé. Cet ajout permet d'éviter la fermentation bactérienne qui conduit souvent à un changement rhéologique de la solution.

Afin d'avoir des expériences reproductibles, l'injection du traceur doit être faite toujours au même endroit. Ainsi, il a été choisi d'injecter le traceur à proximité de l'arbre central sur la surface du liquide.

4.5 Mesure du coefficient volumique de transfert de matière (k_la)

Le coefficient volumique de transfert de matière sera déterminé en régime transitoire grâce à la méthode du dégazage évoqué par WISE (1951). Dans cette méthode le k_la est évalué à partir de l'équation (2-60). Il suffit ainsi de tracer $\ln(c^*-c)=f(t)$ et de prendre la pente de la droite obtenue pour avoir le k_la.

Des sondes à oxygène dissous YSI (Model 58) reliées à un électromètre seront utilisées pour mesurer la concentration d'oxygène dissous dans la phase liquide. Une illustration de ces sondes et des réactions ayant lieu aux électrodes est présentée à la Figure 4-4.



réaction à la cathode

$$O_2 + 2H_2O + 4e^- \Leftrightarrow 4OH^-$$

réaction à l'anode

$$4Ag + 4Cl^- \Leftrightarrow 4AgCl + 4e^-$$

Figure 4-4 : Sonde polarographique pour doser l'oxygène

Pour calibrer une sonde à oxygène dissous, il suffit de l'étalonner avec la concentration d'oxygène dissous dans la solution à l'équilibre (c^*). En effet, cette concentration

correspond à un signal de 100% d'oxygène dans le liquide et les autres concentrations sont ensuite déterminées par linéarité. Pour réaliser cette calibration, il suffit de faire barboter de l'air dans la cuve de mélange pendant 10 min avec une agitation vigoureuse et de mesurer la concentration avec la sonde. Sachant que c^* dépend de la température sa valeur est corrigée lorsque la température varie à l'aide de la table de Winkler (les sondes a oxygène dissous sont équipées d'un thermocouple).

En pratique, lors d'une mesure du $k_l a$, l'essai est arrêté lorsque la concentration d'oxygène atteint sa valeur à l'équilibre. Seules les valeurs de la concentration d'oxygène situées entre 20 % et 80 % de la concentration à l'équilibre sont ensuite retenues afin de supprimer les effets de bouts lors du calcul du $k_l a$.

CHAPITRE 5: ARTICLE 1 : MIXING TIME ANALYSIS USING COLORIMETRIC METHODS AND IMAGE PROCESSING

Présentation de l'article :

Cet article, publié dans la revue *Industrial and Engineering Chemistry Research*, présente la technique de mesure du temps de mélange par analyse d'images utilisée dans cette thèse. L'intérêt de cette technique est de rendre reproductible la mesure du temps de mélange par coloration-décoloration, tout en donnant davantage d'informations sur l'évolution du mélange dans la cuve en fonction du temps. En effet, la technique d'analyse d'images proposée étudie individuellement chacun des pixels des images lors de la décoloration de la cuve permettant ainsi de caractériser la « cinétique du mélange ». A travers divers exemples, il est montré que les courbes de mélange générées par cette technique permettent de comparer l'hydrodynamique de différents réacteurs tout en caractérisant les phénomènes de zones mortes et de compartimentation de l'écoulement.

Le programme de traitement d'images réalisé sous Java est disponible en Annexe 2.

Auteurs : François Cabaret, Sylvain Bonnot, Louis Fradette, Philippe A. Tanguy

URPEI, Department of Chemical Engineering, Ecole Polytechnique, P.O. Box 6079 Station Centre-Ville, Montreal, QC, H3C 3A7, Canada

5.1 Abstract

A new image analysis technique is proposed to determine the macromixing time in a transparent stirred tank. It consists of capturing on video a decolorization process by using a fast acid-base indicator reaction and employing image analysis to quantify the color evolution. The color change is quantified by means of individual thresholds on the RGB color model and provides a direct measurement of the macromixing evolution as it can be seen by an operator in front of the vessel. It is shown that this technique removes the subjectivity of the estimation of macromixing time by the naked eye, has a high degree of reliability and repeatability, and can yield accurate macromixing information by considering the possible presence of segregated regions and dead zones. Moreover, applications show that the macromixing curves bring new insights to study and compare mixing efficiency of different impellers or multiple impeller mixing systems.

Keywords: Image analysis, Mixing, Visualisation, Experimental, Stirred tanks

5.2 Introduction

Mixing time is a convenient parameter commonly used to characterize the mixing performance of impellers in agitated tanks. It can be defined as the time taken to achieve a given degree of homogeneity following a perturbation. The importance of this parameter is such that many physical and chemical methods have been developed with various degrees of success. There is however no universally accepted technique for the measurement of mixing time mainly because each method has its own limitations.

The mixing time methods can be divided into two groups based on the volume of fluid involved in the measurement. On one hand, the local measurement methods rely on physical measurements made with intrusive probes. They provide a single mixing time, which is the time required to reach a given degree of homogeneity at a given location (e.g., thermal methods, conductometric methods, fluorimetric methods (PINEAULT et CLOUTIER, 1972), and pH based methods). However, let us note that more than one probe can be used in a tank to partially circumvent the problem of local measurement (e.g., see the work of KASAT and PANDIT (2004) (KASAT et PANDIT, 2004)). On the other hand, the global measurement methods are either chemically based, involving a fast reaction (e.g. acid-base and redox color change methods), or optically based like the Schlieren method. Table 5-1 compares local and global methods on an advantage/drawback basis.

Table 5-1 : Comparison of local and global measurement methods

	Local Methods	Global Methods
Examples	Thermal method Conductimetric method pH method	Decolorization methods Schlieren method
Advantages	Accurate Can be used in industrial tank	Non-intrusive Can identify unmixed zones Give the end point of the mixing
Drawbacks	Intrusive Do not quantify segregated regions and dead zones Do not give the end point of the mixing	Inaccurate (subjective) Transparent vessel needed

Contrary to the local methods, the global methods offer many useful and instructive features such as the capability to identify and very often quantify the unmixed zones. Moreover, the global methods allow for the measurement of the end point of the intimate mixing in the whole tank (ZLOKARNIK, 2001a), they are nonintrusive and they do not perturb the flow. However, they are usable only in transparent laboratory vessels, and one main drawback of these methods is the subjectivity of the measurement interpretation. Indeed, the mixing time is typically determined with naked eye and may yield different results if the same experiment is realized by different individuals or repeated many times by the same operator.

A literature survey showed that image analysis has been used to circumvent the subjectivity problem of the global methods (LEE et YIANNESKIS, 1997; DELAPLACE et al., 2004; LE COËNT et al., 2005). MÜLLER (1985) monitored the homogenization process of methylene blue in clear liquid through black and white photographs taken at different times after the tracer injection. The gray tone distribution, using the same 60 000 individual points per image, was analysed to determine the

mixing time. Müller's idea of analysing images was not developed further in the 1980s because of its intrinsic cumbersomeness related to the manual processing of the images.

LEE and YIANNESKIS (1997) proposed determining mixing time using a thermography technique based on the color change with temperature of a liquid phase containing liquid crystals. A small quantity of a liquid at higher temperature than the bulk of the fluid is added at the beginning of the experiment, and the color of the whole tank is analysed by image processing. The hue distribution of the colors displayed by the liquid crystals is used to determine the mixing time. The vessel is considered to be fully mixed when 95% of the pixels in the image have the same hue value. It was shown that the method works in turbulent regime with water but is limited by the requirement of having a fluid with the same density as the liquid crystal microcapsules so that the crystals are neutrally buoyant.

The mixing time determination method for highly viscous fluids developed by DELAPLACE et al. (2004) involves a chemical color change using two acid-base indicators and a colorimetric diagnosis of digital images extracted from a video captured during the mixing process. The mixing time (90% degree of homogeneity achieved) is set at the point where the global level of brightness of the green color (RGB color model) evens out. Compared to the standard single-indicator method, the use of a dual indicator (DISMT method from the work of MELTON et al. (2002)) provides a valuable

insight into the dynamics of the mixing process. Indeed, this method can distinguish rapidly mixed regions from slowly mixed zones.

Finally, the work from LE COËNT et al. (2005) deals with the blending of two powders in a viscous liquid followed by an image processing technique. The powder position is determined with a box-counting procedure using an erosion process to separate the particles. Mixing time was defined as the time required in obtaining a homogeneous particle distribution using a fractal dimension process. Let us note that this method does not involve single-phase homogeneous liquid mixing, but it deserves nevertheless to be mentioned because of its image analysis component.

Apart from the above presented methods, it is worth mentioning that mixing time has been determined by image analysis combined to planar laser-induced fluorescence method (pLIF) (HOUCINE et al., 1996; ALVAREZ, 2000; HALL et al., 2005a). This method is not global because the measurement is made solely in the laser plane and must hence be assimilated to a probe measurement. In addition, the pLIF is difficult to set up and is limited to small tanks because of the prohibitive laser power required in larger volumes. That is why the pLIF is rather employed to study the spatial structure of mixing patterns than to determine the mixing time (ARRATIA et MUZZIO, 2004; KLING et MEWES, 2004). Moreover, let us note that Electrical Resistance Tomography (ERT) provides a non-invasive and non-intrusive technique capable of measuring time-changing 3D concentration fields, hence mixing rates, within a vessel to a spatial

resolution approaching 10^4 volume elements (HOLDEN et al., 1998). Due to the complex setup used for this technique, ERT is employed for validation of computational fluid dynamics (CFD) mixing predictions instead of determining mixing time. The tomographic measurements using the dual wavelength photometry developed by BUCHMANN and MEWES (2000) give comparable results with ERT except that both micro- and macromixing are studied.

Although mixing time is mainly used to compare the mixing efficiency of impellers in an agitated tank, it is however useless for quantifying the mixedness evolution during a mixing operation. Indeed, two different impellers can have the same mixing time but exhibit totally different macromixing evolutions. To understand and be able to develop new impellers and optimal mixing systems, it is of paramount importance to determine the so-called "macromixing kinetics".

In the literature, only two studies refer to the change with time of the mixing dynamics. The study from VAN PUYVELDE et al. (1999) deals with solid mixing kinetics in a rotating drum characterized by the contact length between solids of two different colors and the study from ALVAREZ (2000) concerns liquid mixing kinetics. In the study from ALVAREZ (2000), the author used the pLIF – neutralization acid-base technique and characterized the mixing kinetics by following the evolution of the mixed area in the laser plane using image analysis. The generic curves obtained by ALVAREZ (2000) are of the type:

$$A = A_{\max}\left(1 - e^{-mt}\right) \qquad \textbf{(5-1)}$$

where A is the area coverage, A_{max} is the maximum achievable area coverage, which is specific to a given geometry and Re, m is the intensive rate of coverage, and t is the time. ALVAREZ et al. (2002) showed that equation (5-1) can be rewritten as:

$$A = A_{\max}\left(1 - e^{-KN_R}\right) \tag{5-2}$$

to obtain a dimensionless mixing rate (K) that is dependent on dimensionless time N_R (number of revolutions of the impeller).

The main problem of the method proposed by ALVAREZ (2000) to determine the mixing evolution is the use of the pLIF that is difficult to set up and limits the study to a single plane. Moreover, the image analysis performed by ALVAREZ (2000) was not documented, in particular how to separate the mixed areas from the unmixed ones.

Many global techniques for mixing time determination were reviewed above, and none of them determine the macromixing time and characterize the macromixing evolution in the whole mixing volume in a robust and repeatable manner. Thus, the remainder of this paper describes the materials involved along with the processing of the information required to quantify the 2D projection of the macromixing evolution of any impeller in a tank of any size with a special emphasis on robustness and repeatability. In this paper, all the experiments are performed in the laminar regime because this flow regime often generates compartmentalization and dead zones.

5.3 Materials and methods

5.3.1 Equipment

The experiments were conducted using three different mechanically agitated tanks: a non-baffled 7.8 L vessel with a single shaft, a nonbaffled 14.5 L vessel with two shafts, and a fully baffled 200 L Maxblend reactor (see Figure 5-1). The three mixing systems have a transparent polycarbonate cylindrical vessel with an open-top. The single shaft and the dual shaft configurations both have flat bottom whereas the Maxblend configuration has a semi-ellipsoidal bottom. The vessels, the impellers' dimensions, and the geometry details of the different mixing systems are given in Table 5-2. Three different impeller types with approximately the same diameter were used in the single shaft configuration. As presented in Figure 5-2, the impellers are a six blade Rushton turbine (RT) as a radial flow impeller, a four blade pitched blade turbine (PBT) as a mixed flow down-pumping impeller, and a turbine named α, which is a new mixed flow impeller under development. In the dual shaft configuration, two identical RTs were used, and in the Maxblend configuration, a typical wedged Maxblend impeller was employed.

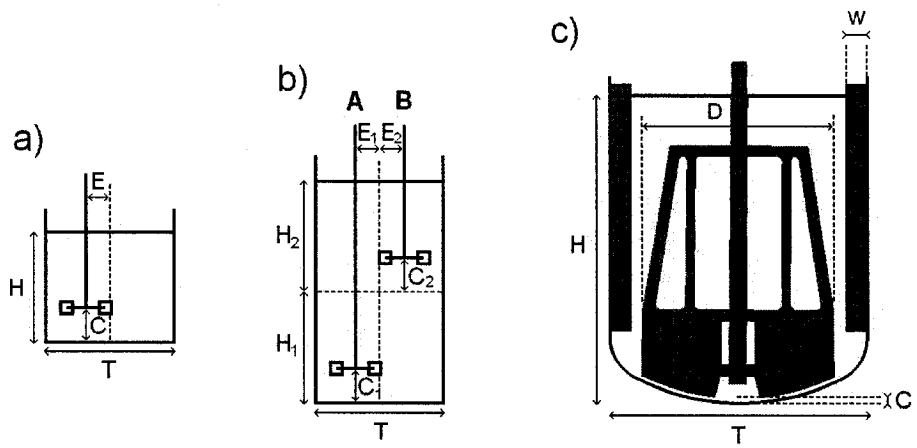


Figure 5-1 : Mixing systems: (a) single shaft configuration; (b) dual shaft configuration; (c) Maxblend configuration

Table 5-2 : Vessels and impeller dimensions of the three mixing systems

Mixing system	Tank size	Impellers	Impellers position
Single shaft	T=0.215 m H=T $V=7.8\times10^{-3}$ m^3	RT, $D=6.53\times10^{-2}$ m PBT, $D=6.646\times10^{-2}$ m Turbine α, $D=6.779\times10^{-2}$ m	C=T/3 E=0 or T/4
Dual shaft	T=0.21 m $H_1= H_2=T$ $V=14.5\times10^{-3}$ m^3	2 RT, $D=6.53\times10^{-2}$ m	$C_1= C_2=T/2$ $E_1= E_2=T/4.4$
Maxblend	T=0.60 m H=0.72 m $w=5\times10^{-2}$ m $V\approx200\times10^{-3}$ m^3	Maxblend, $D=45\times10^{-2}$ m	C=0.01 m

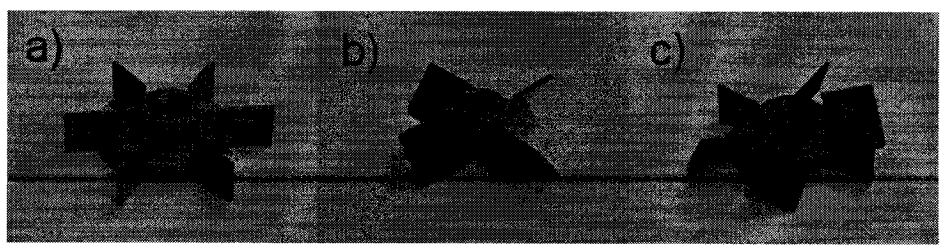


Figure 5-2 : Impellers geometries: (a) Rushon turbine; (b) pitched blade turbine; (c) turbine α

Aqueous solutions of corn syrup (Glucose Enzose 62DE, Univar) were chosen as the viscous Newtonian fluids. These solutions were settled for 24 h before starting the experiments in order to eliminate air bubbles. Knowing that the viscosity (μ) of the viscous corn syrup solutions varies significantly with temperature, preheating of the solutions was achieved by letting the impeller(s) in rotation (using the viscous dissipation effect of the impeller(s)). A constant temperature between 25.5 and 27.2°C was then reached and monitored during the experiments to ensure that it remained constant. Newtonian viscosities of the solutions were determined with a Couette viscometer (Visco 88, Bohlin Instruments) at the suitable temperature. During the experiments, the solutions' viscosity was measured in the range 1.5 – 8.2 Pa.s, and their density was between 1350 and 1361 kg/ m^3.

In the experimental setup, the cylindrical mixing vessels were always immersed in a rectangular water-filled chamber in order to minimize optical distortions due to the curvature of the tank. To obtain homogeneous illumination, a white sheet of paper was used as a light diffuser on the rectangular vessel. The mixing process was filmed with a digital mono charge-coupled device (CCD) camera (Digital Handycam DCR-PC101, Sony) linked to a computer via a 1394 IEEE (FireWire) cable.

5.3.2 Decolorization method

Each experiment consists of recording on video a mixing process during an acid-base color change and then analyzing the video in order to extract the color change kinetics. The standard single-indicator acid-base decolorization method was used to follow the macromixing evolution. This method, first reported by FOX and GEX (1956) for measuring mixing times, consists in following the color change of a solution containing an indicator when an acid or alkaline solution generating a fast reaction is added. Moreover, this method is very useful in unveiling the nature of the 3D flow patterns, and is thus particularly appropriate in detecting segregated regions and dead zones (SOLOMON et al., 1981a; LAMBERTO et al., 1996).

A small excess of acid and base is typically used to color the entire mixing vessel and then strip out the color (BROWN et al., 2004). However, the acid-to-base ratio has an influence on the degree of homogeneity achieved at the mixing time. GODLESKI and SMITH (1962) and NAGATA (1975b) have shown that when the acid-to-base ratio is close to 1 (neutralization method) the micromixing time is obtained, and when the acid-to-base ratio is higher than 2 it is the macromixing time which is determined. For an acid-to-base ratio close to 1, the terminal micromixing time can be very long and always hard to reproduce (GODLESKI et SMITH, 1962). That is why competitive chemical reactions are typically used to study the micromixing instead of using the acid-base neutralization method (BOURNE et al., 1992; GUICHARDON et FALK, 2000). Contrary to the neutralization method, for an acid-to-base ratio higher than 2,

GODLESKI and SMITH (1962) have shown that a reproducible macromixing time can be determined. Let us note that the macromixing time corresponds to the time required for the distribution of the tracer throughout the entire volume of the reactor totally leaving aside the aspect of the degree of acid homogeneity in the tank. In our experiments, we have ensured that all the acid-to-base ratios higher than 2 give the same macromixing time.

To present the proposed method, we used a solution of bromocresol purple (0.08% w/w in water) as the indicator. This indicator is yellow when pH < 5.2 (acid color) and purple when pH > 6.8 (alkaline color). Approximately 0.0043g of bromocresol purple was added per 1L of the corn syrup solution in order to color the solution. In the experiments, we followed the color evolution from purple (alkaline color) toward yellow (acid color) because it is far easier and more reliable to detect purple unmixed zones in a yellow liquid than the opposite.

At the beginning of an experiment the glucose solution was set to purple by using aqueous NaOH at 10 $mol.L^{-1}$ (pH≈8). A given quantity of solution was sampled from the tank and mixed with a relatively small volume of acid (aqueous HCl at 10 $mol.L^{-1}$) to prevent density and viscosity differences between the reactive dye and the liquid present in the vessel. The acid quantity added in the sample is always in excess with the alkali quantity present in the vessel in order to generate a sharp color change when the reactive dye is mixed with the alkaline fluid (acid-to-base ratio higher than 2). When a steady

hydrodynamic state is reached in the tank, the acidic sample is injected in the vessel, and at the same moment, the digital camera is turned on to record the color change. For reproducibility purposes, the acidic solution was always rapidly and gently injected at the same location on the free surface using a syringe having a large orifice. The tracer insertion time was kept constant throughout the experiment at 1.0 s, this time being very small compared to the experiments' duration. Table 5-3 presents the different compositions and locations of the acidic solutions added in the three mixing systems used.

Table 5-3 : Composition of the acidic solutions added in the mixing systems

Mixing system	**Glucose solution sampled in the tank**	**Acid quantity**	**Injection position of the mixture on the free surface**
Single shaft	100 mL	2.5 mL, aqueous HCl at 10 $mol.L^{-1}$	At 5 cm from the shaft
Dual shaft	200 mL	5 mL, aqueous HCl at 10 $mol.L^{-1}$	Centered between the two shafts
Maxblend configuration	1 L	25 mL, aqueous HCl at 10 $mol.L^{-1}$	At 15 cm from the shaft

Although the proposed method is presented with bromocresol purple as the indicator, five other indicators have been also tested to demonstrate that the same technique can be used with other indicators. The color changes, the transition pH range, and the quantities used for the different indicators are given in Table 5-4.

Table 5-4 : Indicators used in the experiments

Indicator	Color at low pH	Transition pH range	Color at high pH	Quantity used in the glucose solution
Bromocresol purple	Yellow	5.2 – 6.8	Purple	0.0043 g/L
Bromothymol blue	Yellow	6.0 – 7.6	Blue	0.0043 g/L
Cresol red (2nd color change)	Yellow	7.0 – 8.8	Red	0.0053 g/L
Methyl red	Red	4.8 – 6.0	Yellow	0.0043 g/L
Phenolphthalein	Colorless	8.2 – 10.0	Pink	0.0043 g/L
Phenol red	Yellow	6.6 – 8.0	Red	0.0043 g/L

5.3.3 Image analysis

The videos captured by the digital camera (avi format, 30 frames/s) during the acid-base color change were sampled at a frequency between 1 every 0.02 s up to 1 every 10 s depending on the mixing kinetics. The resulting bitmap (bmp) images were saved individually before being analyzed with homemade software. As presented in Figure 5-3, the key steps of the software treatment are the following:

(1) - An area of interest used as the working zone is defined on the bmp images. As shown in Figure 5-4, the liquid only is selected in this area of interest (the agitator and baffles are removed). Note that, for the Maxblend configuration, all the images were selected when the impeller was aligned with the shaft. It must be emphasized that, with such huge impellers, the position of the agitator on every picture should be the same to avoid biasing the pixel analysis.

(2) - To characterize the macromixing, we study the RGB evolution of each pixel on the working zone during the color change. In the RGB color model, a color can be

represented as a mixture of varying levels ranging from 0 to 255 of pure red, green, and blue light. The pixel RGB components can be determined by converting the bmp images in portable pixel map (ppm) format. The area of interest can be represented by a matrix of pixels $P_{i,j}(t)$, which are themselves divided into three RGB components : $R_{i,j}(t)$, $G_{i,j}(t)$ and $B_{i,j}(t)$. For each pixel, we define an individual threshold on the three RGB components ($\beta_{i,j}^{R}$, $\beta_{i,j}^{G}$, and $\beta_{i,j}^{B}$) in order to separate an "unmixed" pixel from a "mixed" one.

The easiest and most comprehensive manner to separate two colors by using a threshold on one RGB component is to consider that the color has changed when the fraction X of the total variation of this RGB component is reached ($X \in [0,1]$). Thus, if we consider a separation on the red component, the threshold $\beta_{i,j}^{R}$ is defined as shown in equation (5-3). The thresholds $\beta_{i,j}^{G}$ and $\beta_{i,j}^{B}$ are defined identically for the green and blue components.

$$\beta_{i,j}^{R} = R_{i,j}^{0} + X.\left(R_{i,j}^{\infty} - R_{i,j}^{0}\right) \qquad \textbf{(5-3)}$$

$R_{i,j}^{0}$ being the red component of the pixel $P_{i,j}$ at the beginning of the experiment (t=0), just before starting the color change experiment. And, $R_{i,j}^{\infty}$ being the red component of the pixel $P_{i,j}$ at the end of the experiment when we have a fully mixed picture. Let us note that if all the pixels have not reached their final fully mixed color at the end of the experiment, the impeller speed is increased and/or dynamically perturbed (succession of on/off) to obtain the fully mixed picture necessary to process the video.

To explain furthermore, if the separation is carried out on the red component, the pixel $P_{i,j}(t)$ will be considered mixed as soon as $R_{i,j}(t) > \beta^R_{i,j}$ if the red component increases during the color change or as soon as $R_{i,j}(t) < \beta^R_{i,j}$ if the red component decreases during the color change. By studying an example, we will see which X fraction appears to be the most appropriate to separate the indicator's starting color from its ending color and we will see that depending on the indicator used, a RGB component will be preferred to the others to realize the separation.

For each image sampled from the video, we count the number of mixed pixels ($N_{Mixed\ Pixels}$) and, then, plot the ratio $\frac{N_{Mixed\ Pixels}}{N_{Total\ Pixels}}$ over time to obtain the "mixing kinetics". The resulting curve represents the percentage of mixed pixels M (%) on the image (observer point of view) against time. In order to simplify the writings, from now on we will use mixing when it refers to macromixing. Obviously, M is equal to 0 at t=0 and M goes to 100% when complete mixing is reached. It is important to note that when M stabilizes at a plateau without reaching 100%, there remains at least one unmixed zone in the area of interest. The difference between 100% and the plateau represents the 2D projection surface of the unmixed zone in the area of interest. This 2D projection surface corresponds to what it is seen by an operator in front of the vessel but does not give real information on the unmixed volume. This limitation must be kept in mind in the analysis of any mixing results with an unmixed region. The time t at a given M is defined as the mixing time. Usually, M=100% is used to determine the complete mixing time but M

values higher than 80% can also be used. For example, 95%, 99% or similar criteria are usually adopted in the literature.

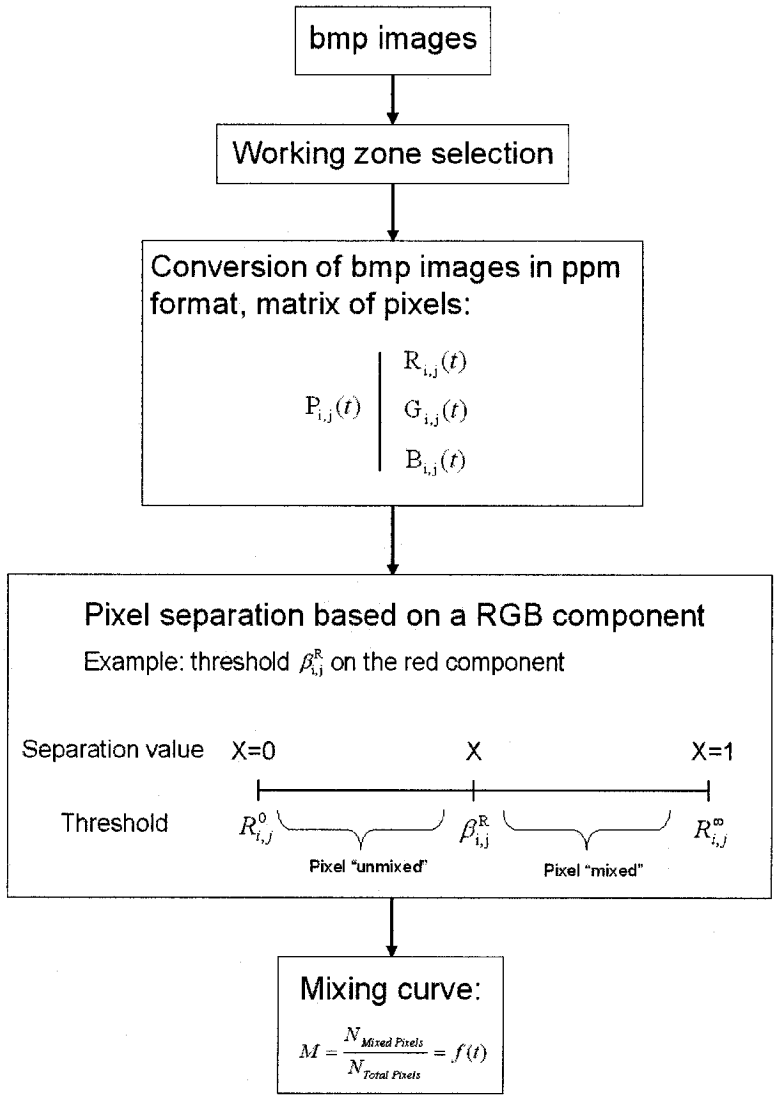


Figure 5-3 : Image analysis flow chart

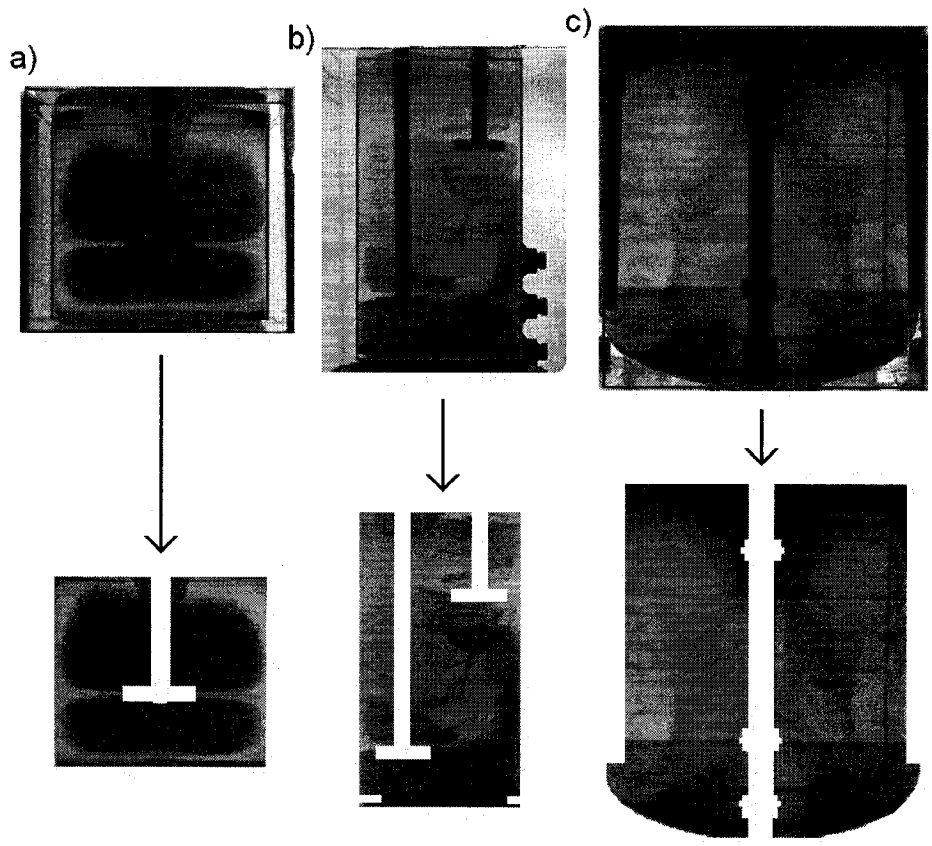


Figure 5-4 : Examples of video frames and area of interest (red rectangle) for the three configurations: single shaft (a), dual shaft (b) and Maxblend (c)

5.4 Results and Discussion

5.4.1 Validation of the method

5.4.1.1 Color separation

The experiment used as an example, with bromocresol purple as indicator, is performed with the single shaft configuration using the RT centered impeller (E=0) at *Re*=20

(ρ=1350 kg/m^3, N=5.68 s^{-1} and μ=1.64 Pa.s). Figure 5-5 presents the evolution of the three RGB components for two different pixel locations in the area of interest (a and b) presented in Figure 5-6. It can be seen in Figure 5-5a, for a pixel having a complete color change from purple to yellow (pixel a in Figure 5-6), that the level of brightness of the red and green components increase during the color change, which is not the case with the blue component. Besides, for a pixel in an unmixed segregated region (pixel b in Figure 5-6), Figure 5-5b shows that the red and green components are more stable that the blue component. Thus, with this indicator (bromocresol purple), it appears that the red and green components are the best suited ones to follow the mixing.

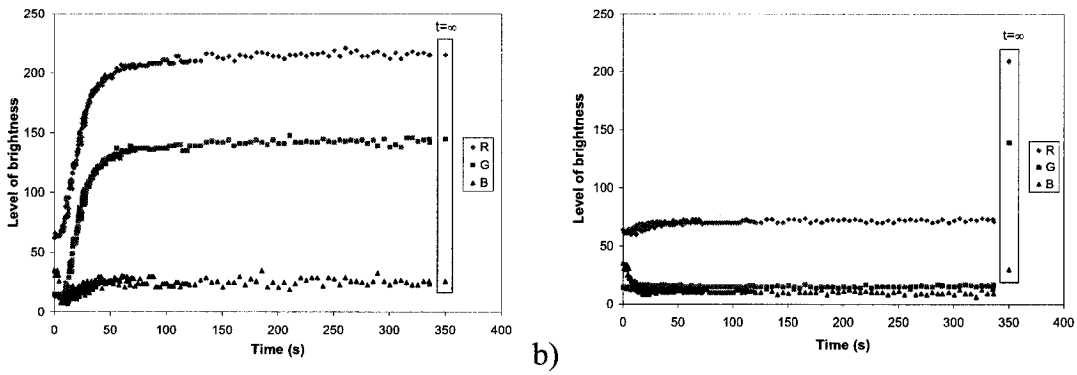


Figure 5-5 : Evolution of the RGB components: (a) pixel a, (b) pixel b as presented on Figure 5-6

To determine the effect of the X fraction chosen to separate the starting color (purple) from the ending color (yellow), we plotted the mixing curves at different X fractions for a separation based on the red component (see Figure 5-7). We see in Figure 5-7 that the

mixing curve depends on the X fraction; however, it appears that there is a range of X values where the mixing curves are very similar.

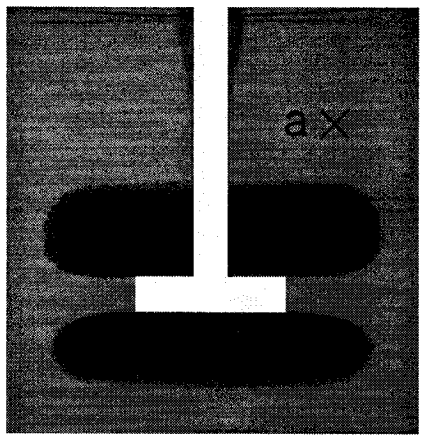


Figure 5-6 : Pixel positions on the area of interest (frame at t=336.03s)

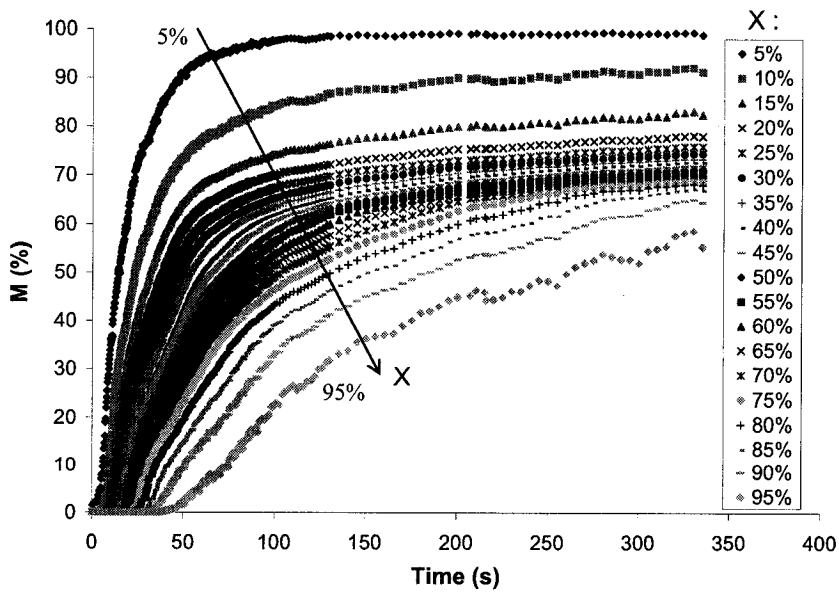


Figure 5-7 : Mixing efficiency over time using a separation based on the red light level

To put in evidence the domain of X values where the mixing curves are at their closest, we plotted the mixing efficiency (M) against X fraction at different times for the red separation (see Figure 5-8). In Figure 5-8, it can be seen that an inflection point appears on the curves M versus X representing the value of X around which the mixing curves are at their closest.

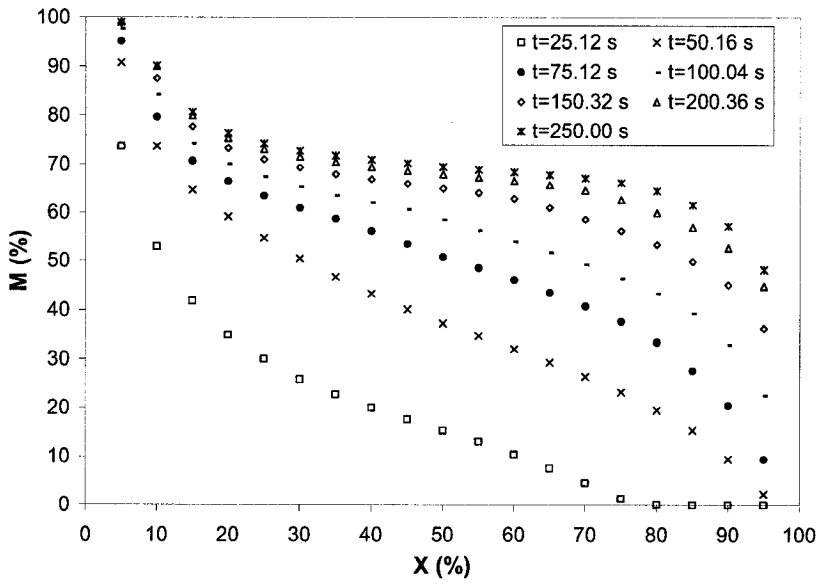


Figure 5-8 : Mixing efficiency as a function of the fraction of separation X at different times for the red component separation

In order to define a standard for the color separation, the X value where the inflexion point occurs will be used to separate the starting color from the ending color during the indicator color change. Let us note that this standard has been chosen because the inflection point represents the point where the mixing curve is the most stable against a X variation. In our example, the inflection point occurs approximately at X=50% for both

the red and the green component separation. This result appears intuitive because the simplest way to separate two colors with a RGB component is to separate the colors when the variation of the RGB component has reached the middle of its total variation. By using the standard separation X=50%, the two mixing curves obtained for a red and green component separation are identical as shown in Figure 5-9. Let us note that, on this figure, M does not reach 100% because of the segregated regions (torus shapes) remaining above and below the centered impeller; Figure 5-6 illustrates these remaining unmixed zones. Experimentally, with bromocresol purple as indicator, the green component will be preferred to the red component as the reference to determine the mixing curves. We will see later that the green component separation is less sensitive to illumination than the red component.

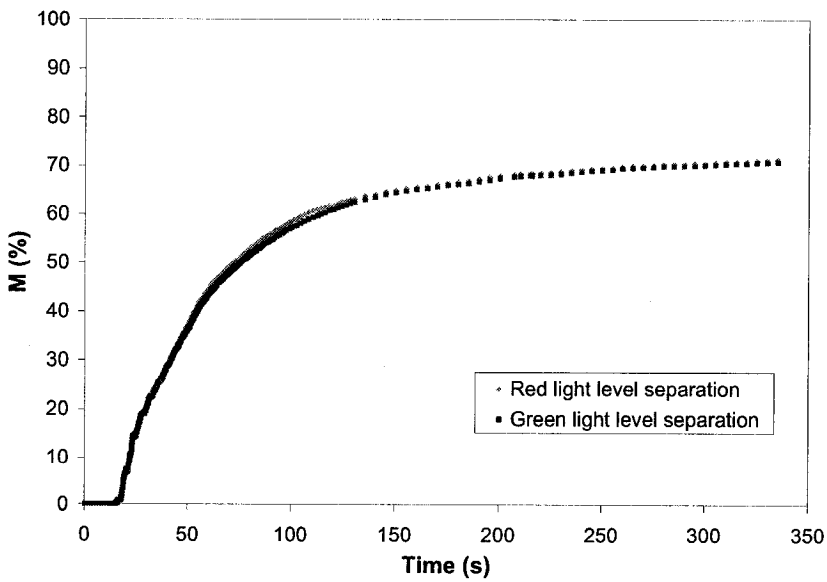


Figure 5-9 : Mixing curves for red and green light level separation

On Figure 5-10, we have determined the color of a pixel when it is taken as mixed for different X values. We observe that the separation X=50% is in agreement with a naked eye determination. A different X fraction can always be used by the experimenter as long as it is reported; however, sets of mixing curves have to be compared at the same X fraction.

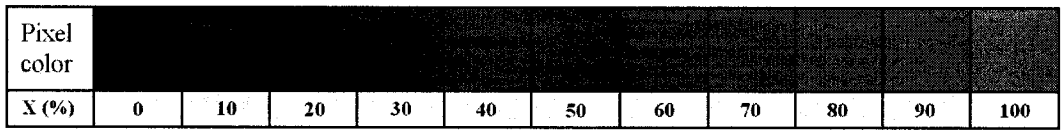


Figure 5-10 : Evolution of the "mixed" pixel color for different X separations

5.4.1.2 Reproducibility and robustness

To challenge the reproducibility of the tracer injection protocol, the same experiment was repeated six times with the same illumination. This experiment was performed with the single shaft configuration using the RT (centered, E=0) at Re=20 (ρ=1350 kg/m^3, N=5.68 s^{-1} and μ=1.64 Pa.s). Bromocresol purple was used as indicator, and the mixing curves were obtained with a green component separation using X=50%. Figure 5-11 presents the mixing curves for the six experiments. The small variations observed among the curves indicate clearly the reproducibility of the injection protocol.

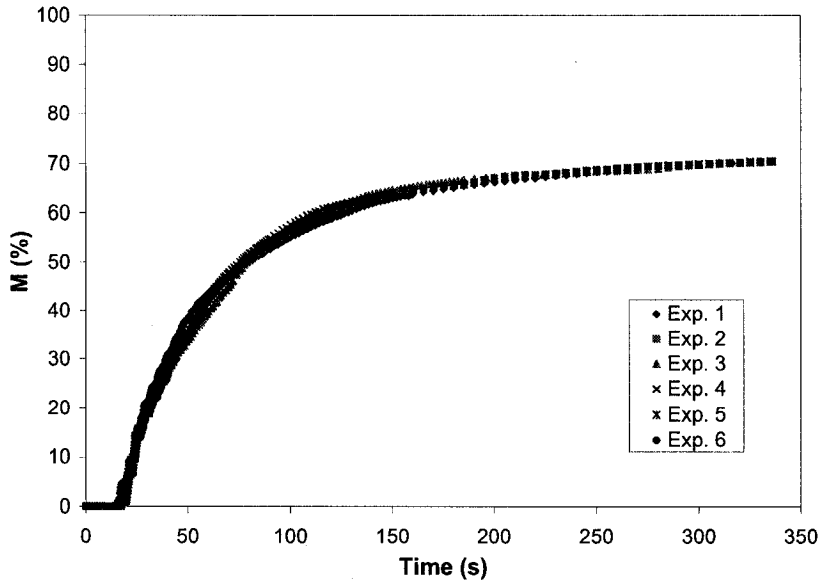


Figure 5-11 : Mixing curves obtained in the reproducibility test

In order to test the effect of illumination, we performed the same experiment six times with six different light intensities. These experiments were performed with the single-shaft configuration and using an RT (centered, E=0) at Re=19.9 (ρ=1350 kg/m^3, N=5.57 s^{-1} and μ=1.61 Pa.s). As shown in Figure 5-12, for experiments 1-5, we used homogeneous illumination and the intensity of lighting has been increased with the experiment number. To validate the robustness of the method, experiment no. 6 has been carried out with inhomogeneous illumination (see Figure 5-12).

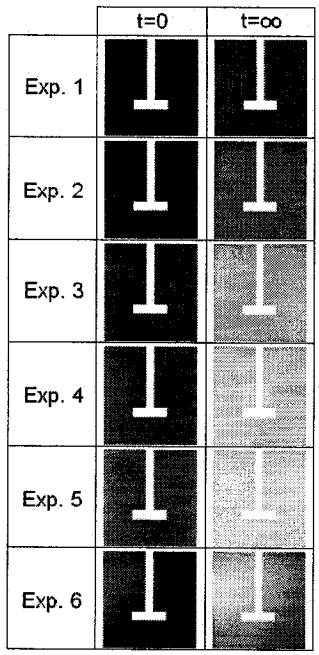


Figure 5-12 : Illuminations used in the robustness test

The mixing curves obtained in the six experiments are presented in Figure 5-13 for the red and green component separation. For the green component separation (see Figure 5-13b), we observe that the mixing curves superimpose remarkably, indicating that the mixing curves obtained with green component separation do not depend on the illumination intensity and homogenisation. However, concerning the red component separation (see Figure 5-13a), we observe that when the light intensity is too high (experiments 4-6), the mixing curves do not superimpose anymore. This sensitivity of the red component separation against light intensity can be understood by looking at the population curves. Figure 5-14 presents, for the experiments 2 and 4, the population curve in the red and green components at t=0 and t=∞. We observe in Figure 5-14b that, when the light intensity is too high, the red component saturates (level of brightness of

255). This saturation on the red component has the effect of underestimating the threshold. That is why for the red component (see Figure 5-13a) the curve of experiment 4 is above the ones of experiments 1-3. This saturation of the red component explains why the green component separation is the one best suited to determine the mixing curves when bromocresol purple is used as indicator.

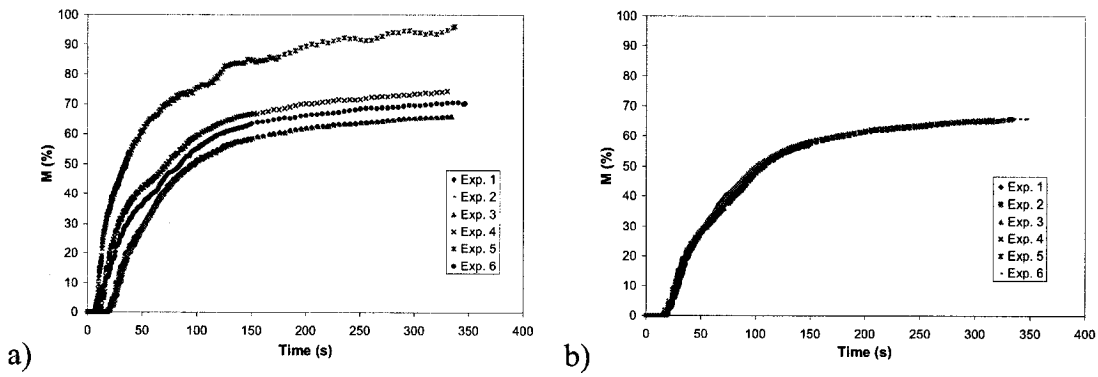


Figure 5-13 : Mixing curves with the red component separation (a) and the green component separation (b) for the illuminations presented in Figure 5-12

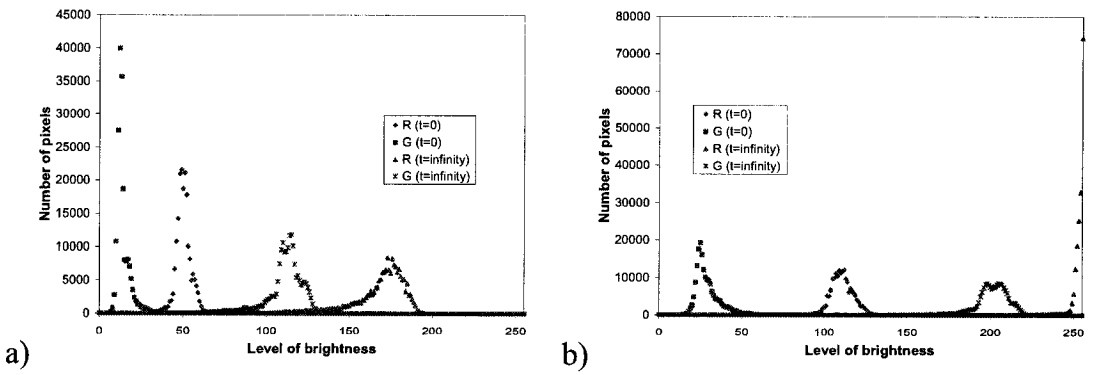


Figure 5-14 : Population curve of experiment 2 (a) and experiment 4 (b) presented in Figure 5-12

5.4.1.3 Effects of tracer injection and indicator

In the experiments, the injection protocol is always the same as presented in Table 5-3. However, to see the effect of the injection quantity on the mixing kinetics, we have performed the same experiment 10 times with different injection volumes varying from 0% (pure acid) to 5% of the tank volume. This experiment was carried out with the single-shaft configuration using the RT (centered, E=0) at Re=19.8 (ρ=1350 kg/m^3, N=5.43 s^{-1} and μ=1.58 Pa.s). Figure 5-15 shows that the injected volume must be between 0.25 % and 3 % of the tank volume to obtain a reproducible mixing curve. The injected volume premixed with acid or base has to be above 0.25 % of the tank volume to have a density quite close to the glucose solution, and the injected volume must not be higher than 3 % of the tank volume because such a high injection quantity perturbs the flow and breaks the unmixed zones. Experimentally, the range 0.25 - 3 % of the tank volume appeared to be a good injection volume for different stirred tank configurations and glucose viscosities.

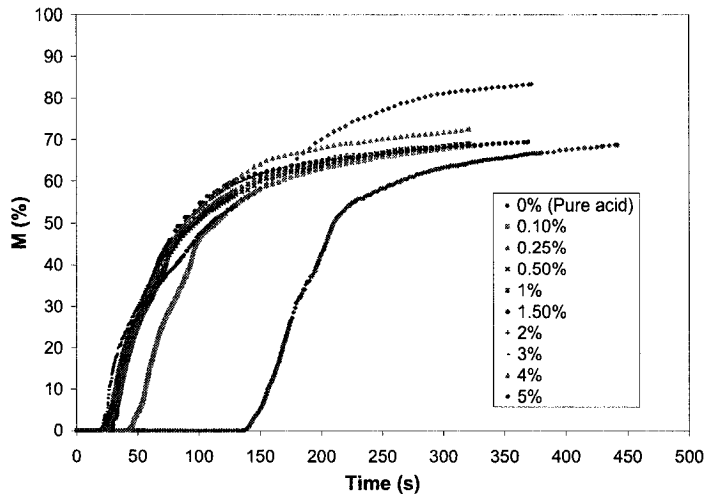
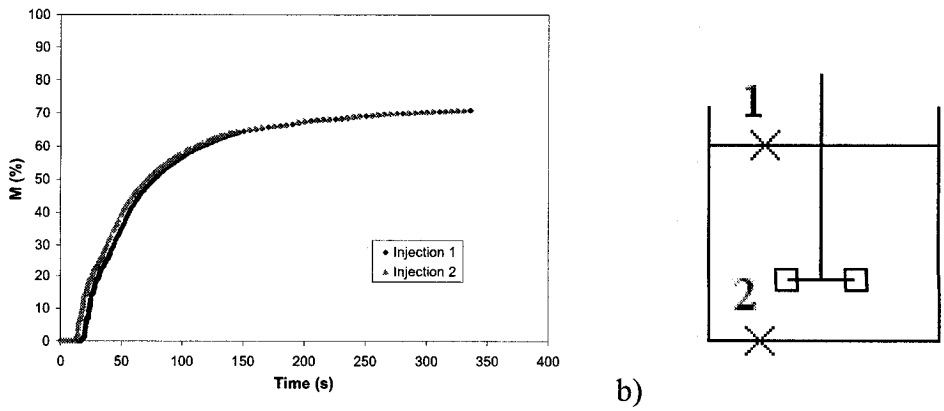


Figure 5-15 : Effect on mixing curves of the quantity of the acidic solution added (percent of the tank volume)

Regarding the injection position, it has been checked in Figure 5-16 with the single-shaft configuration using a centered RT at *Re*=20 that the injection position has no influence on the mixing curve shape but has just an influence on the time when the curve begins to rise (shift in time).



a) b)

Figure 5-16 : Effect on mixing curves of the injection position: (a) mixing curves; (b) position in the tank

By using bromocresol purple as indicator, we have seen that the best separation is based on the green component. To determine the effect of the indicator used, five other common indicators have also been tested. Table 5-5 presents, for these five other indicators, which RGB component appears to be the best suited one to follow the mixing kinetics. Let us note that the mixing kinetics is always determined when the color solution moves from the dark color toward the clear one (decolorization process). Figure 5-17 presents, with the single-shaft configuration using the RT (centered, E=0) at *Re*=20, the same mixing curve obtained with different indicators. For these indicators, we have used the RGB component separation presented in Table 5-5 and an *X* fraction of 50%. Figure 5-17 shows that the mixing curve depends on the indicator used and the *X* fraction. Using a given *X* fraction, the mixing curve is not the same for all the indicators; however, we can have a unique curve by adjusting the *X* fraction at the inflection point as presented in Figure 5-8.

Table 5-5 : Color separation with different indicators

Indicator	**Color change**	**RGB Component used for color separation**
Bromocresol purple	Purple to Yellow	G
Bromothymol blue	Blue to Yellow	R
Cresol red (2nd color change)	Red to Yellow	G
Methyl red	Red to Yellow	G
Phenolphthalein	Pink to Colorless	G
Phenol red	Red to Yellow	G

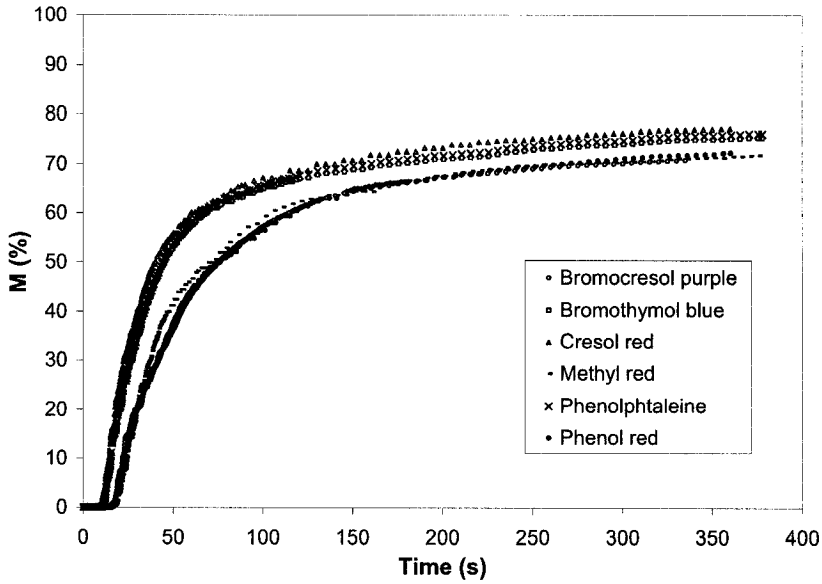


Figure 5-17 : Effect on mixing curves of the indicator used

5.4.2 Applications

To demonstrate the full potential of the method, we first define the mixing curve fit and, then, determine the mixing kinetics for different configurations. The proposed applications concern the multiple impeller systems investigation and the impellers comparison based on mixing efficiency. In all the examples, bromocresol purple was used as indicator with a separation on the green component with X=50%.

5.4.2.1 Mixing curve fit

In order to study impellers' mixing curves, a four parameters model is proposed (see equation (5-4)). This model appears to fit a vast majority of curves obtained with single impellers.

$$M = M_{\infty}\left(1-\left(1+(\lambda t)^{a}\right)^{n/a}\right) \qquad \textbf{(5-4)}$$

where:

- M_{∞} represents the vertical asymptotic value of M and qualitatively represents the apparent size of the mixed region: the higher M_{∞}, the larger is the mixed region from the observation point.
- $1/\lambda$ represents the time at which the mixing starts to be effective and generates a noticeable color change. It can be deduced that λ depends on the impeller and *Re*. $1/\lambda$ corresponds to the time required by the reactive injected dye to be pumped and mixed by the impeller. This parameter is hence related to the pumping capacity of the impeller.
- a scales the sharpness in the transition from the unmixed conditions towards the raising part of the mixing curve (starting point at t=$1/\lambda$). The higher the value of a, the sharper the transition.
- n represents the slope of the curve during the fast color change (n is negative). The slope tends to be lower when n gets closer to zero. It is a clear indication of the impeller capacity to generate efficient mixing. As with λ, n depends on the impeller type and *Re*.

Equation (5-4) can be rewritten as equation (5-5) by using a dimensionless time N_R representing the number of revolutions of the impeller. In equation (5-5), the dimensionless parameter h has the same meaning as λ in the previous form of the equation. The curve M vs N_R is named the dimensionless mixing curve.

$$M = M_\infty \left(1 - \left(1 + (hN_R)^a\right)^{n/a}\right) \tag{5-5}$$

To demonstrate the quality of the mixing curve fit, an experiment was performed with the single-shaft configuration by using an RT at two different shaft eccentricities (E=0 and E=T/4). In this experiment the Reynolds number was kept constant in laminar flow at Re=9.2 (ρ=1361 kg/m^3, N=9.25 s^{-1} and μ=5.8 Pa.s). The dimensionless mixing curves obtained are given in Figure 5-18.

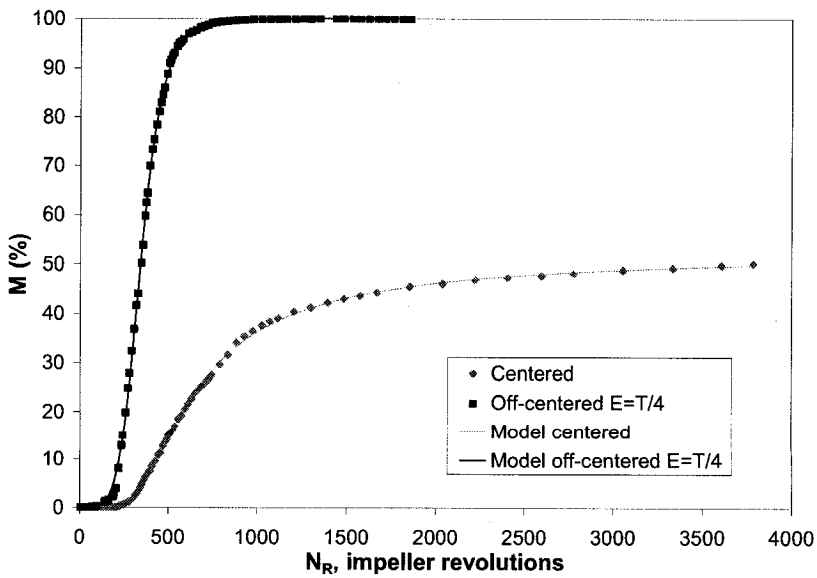


Figure 5-18 : Mixing curves and models for a centered and an off-centered impeller

The model equation (5-5) was used to fit the mixing kinetics experimental measurements, and the resulting model parameters are presented in Table 5-6. The two curves and the model parameters clearly demonstrate that an off-centered impeller is much more effective than the same impeller in centered position. This result is in accordance with different works in which it is found that mixing in laminar flow is greatly improved when using an off-centered impeller (ALVAREZ, 2000; ALVAREZ et al., 2002; ASCANIO et al., 2002b).

Table 5-6 : Comparison of equation (5-5) model parameters for a centered and an off-centered impeller

	M_∞ (%)	h	$1/h$	a	n
Centered	52.258	0.00232	431.0	4.772	-1.410
Off-centered E=T/4	100.083	0.00277	361.0	5.039	-5.320

5.4.2.2 Multiple impeller system investigation

The mixing kinetics method can be very useful to study the interaction between impellers in a multiple impeller mixing system. To show this potential of the method, we have compared the co- and the counter-rotating modes of a dual impeller system. This experiment was performed with the dual-shaft configuration using two RT impellers at Re=5.9 (ρ=1361 kg/m^3, N=8.33 s^{-1} and μ=8.2 Pa.s). Impeller A has a fixed rotation and impeller B is in co- or counter-rotating mode with impeller A. Figure 5-19 shows that the counter-rotating mode is more efficient than the co-rotating mode, what is in accordance with the work of ASCANIO et al. (2002b). In this case, the mixing curves can help to optimize the cooperation between the two impellers and show that this

collaboration is different in co- and counter-rotating modes. The mixing kinetics method presented here can hence be useful to determine the optimal positions and the most efficient rotating mode in a multiple impeller system: i.e., for example, in order to avoid compartmentalization or minimize the delay between two mixed zones.

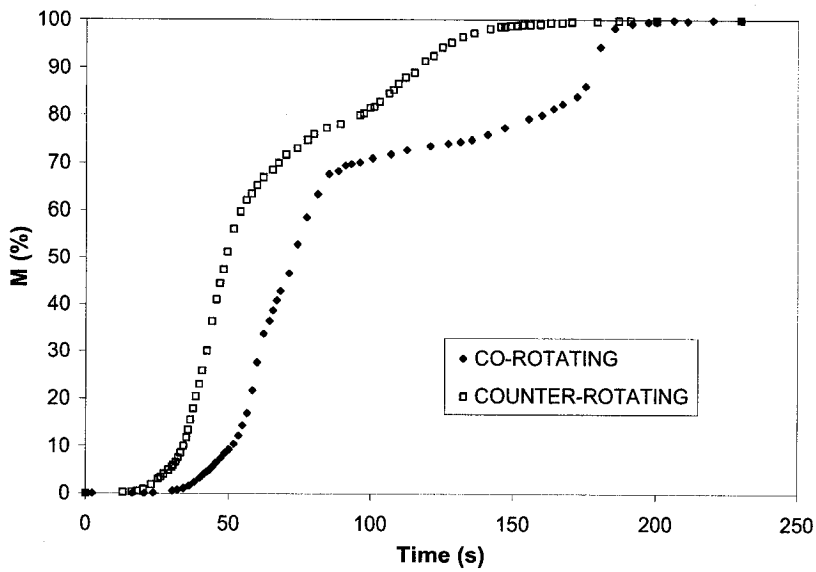


Figure 5-19 : Comparison of co and counter-rotating modes of a dual impeller system

5.4.2.3 Impeller comparison based on mixing efficiency

Finally, the method can be used to compare the mixing efficiency of different impellers. We performed the same experiment with the single-shaft configuration by using three different impellers keeping D/T and *Re* constant. The impellers being RT, PBT and the turbine α (centered, E=0) at *Re*=9.7 (ρ=1361 kg/m^3, N=9.25 s^{-1} and μ=5.7 Pa.s). Figure 5-20 presents images taken at the same time for each impeller. We see that turbine α is far more effective than the two other impellers. For information concerning impellers'

power consumption, the impeller power constants (K_P) were 71.4 for RT, 61.4 for PBT and 84.3 for turbine α. The mixing curves presented in Figure 5-21 quantify the decolorization, which is seen on the images, i.e., the turbine α mixes faster and generates smaller segregated regions.

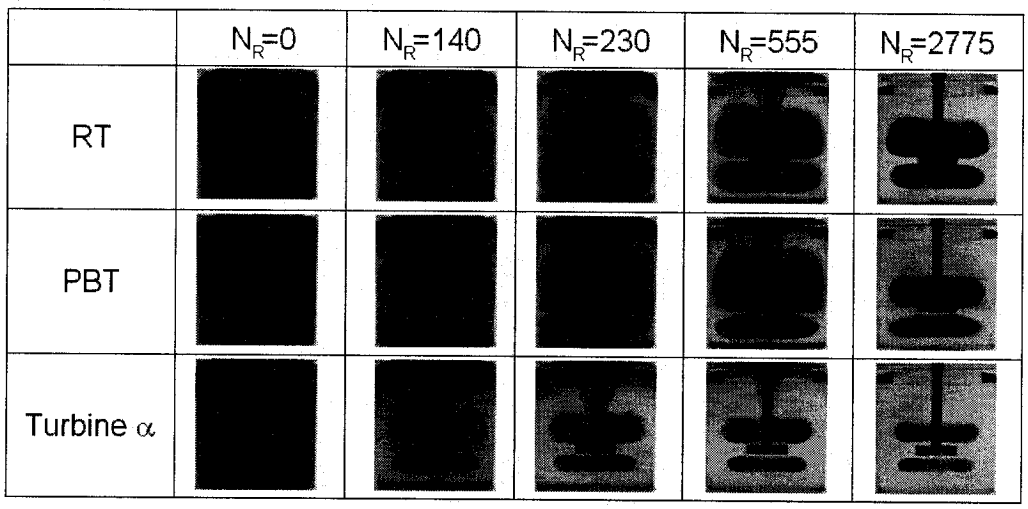


Figure 5-20 : Pictures of mixing experiments using three different impellers

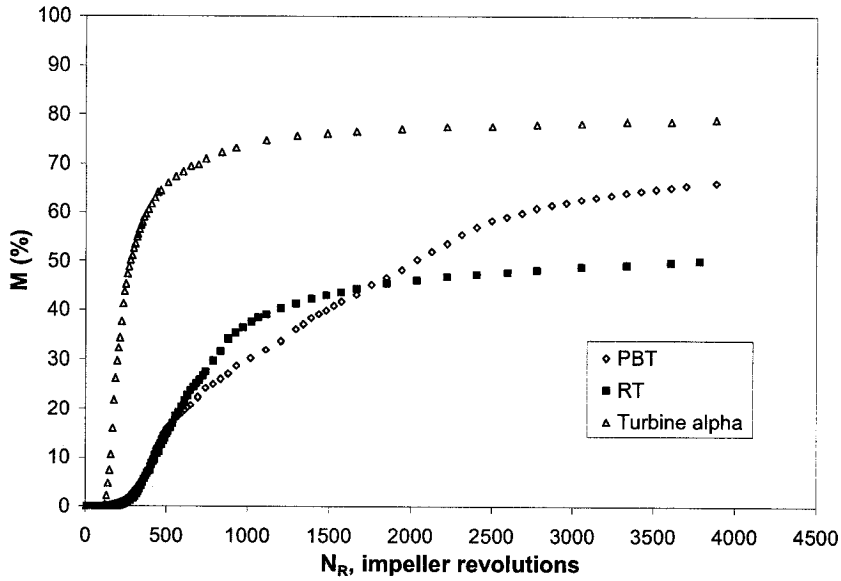


Figure 5-21 : Mixing efficiency of three different impellers illustrated by means of their mixing curves

5.4.3 Limitations of the method

5.4.3.1 Digital camera spatial resolution

In any experimental investigation involving physical measurement, the probe size is always of prime importance and may have a significant influence on the measurement accuracy and value. In the case of mixing kinetics obtained from image analysis, the probe size can be paralleled to the pixel size. The effect of the camera spatial resolution on the mixing curve was addressed by using the same experiment recording where image processing is performed at decreasing resolution. The objective was to determine the maximum surface which can be filmed with a given number of pixels.

The experiment used as a reference was realized with the 200L Maxblend configuration at Re=56 (ρ=1355 kg/m^3, N=0.50 s^{-1} and μ=2.45 Pa.s) and the surface filmed was 1828 cm^2 after having removed the shaft and baffles from the area of interest. The digital mono CCD camera used has 690 000 effective sensors and provides 720×480 bmp pictures (345 600 pixels). To reduce the size of the area of interest, we replace every square groups of 4 pixels by a single averaged pixel whose RGB values are the means calculated from the four individual pixels. This artificial resolution reduction is legitimate because the digital mono CCD camera sensors work with square RGB filters (also known as Bayer filters). Eight image sizes have been tested from 512×256 pixels to 4×2 pixels. The mixing curves for these different image resolutions are presented in Figure 5-22.

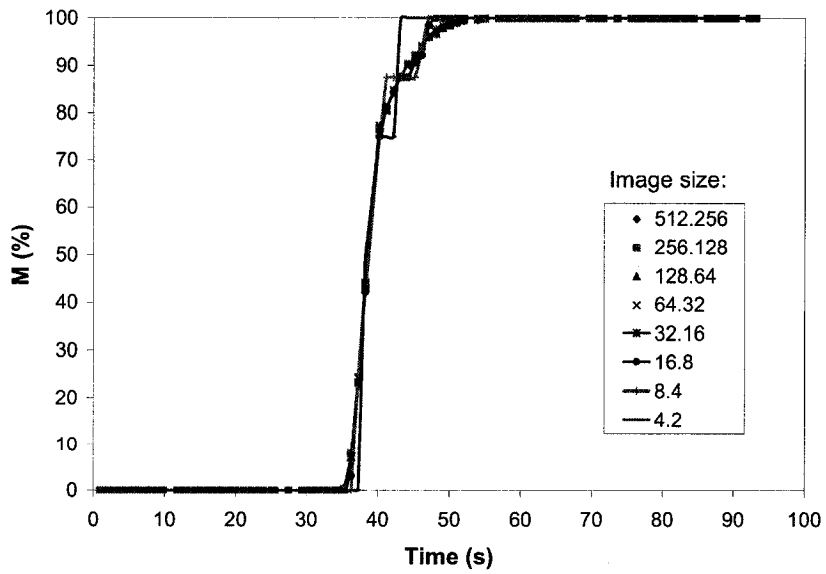


Figure 5-22 : Effect of the camera resolution on the mixing curves

From the previous graph, the challenge is to determine the minimum acceptable resolution in order to generate a reliable mixing curve. Table 5-7 presents equation (5-4) model parameters for the different image resolutions and their deviation in percentage from the values obtained at the highest resolution (512×256 pixels), which is considered to give an acceptable mixing curve. It can be seen that the deviations remain acceptable (<5%) until the 128×64 pixels resolution is reached. Let us note that a and n are the only parameters with a significant deviation, and this can be explained by the fact that they are the most sensitive to curve shape changes.

Table 5-7 : Comparison of equation (5-4) model parameters for different image resolutions

Image size	M_∞ (%)	M_∞ dev. (%)	λ (s^{-1})	λ dev. (%)	$1/\lambda$ (s)	a	a dev. (%)	n	n dev. (%)
512×256	99.879	0	0.027241	0	36.709	69.262	0	-14.200	0
256×128	99.904	0.025	0.027250	0.033	36.697	71.459	3.172	-14.182	0.127
128×64	99.924	0.045	0.027239	0.007	36.712	70.660	2.018	-14.218	0.127
64×32	99.955	0.076	0.027274	0.121	36.665	76.706	10.748	-14.022	1.253
32×16	99.951	0.072	0.027293	0.191	36.640	79.051	14.133	-14.128	0.507
16×8	100.086	0.207	0.027305	0.235	36.623	110.774	59.935	-13.624	4.056
8×4	100.043	0.164	0.027345	0.382	36.570	806.383	1064.250	-14.312	0.788
4×2	99.901	0.022	0.026933	1.131	37.129	849.475	1126.466	-18.230	28.380

From our tests, we conclude that if we have less than 8192 pixels for a surface filmed of 1828 cm^2, the mixing curve starts to degenerate and becomes much less reliable. The minimum sensitivity is therefore 4.48 pixels/cm^2. This means that with a 720×480 pixels camera a surface of 7.71 m^2 can be filmed and the output will be reproducible with reliable results. As this technique is mostly used in laboratories, it is clear that the resolution aspect does not have an influence on the results if adequate equipment is used.

5.4.3.2 Dimensional aspect

The only major drawback of this method is that we observe in 2D a 3D phenomenon. We could indeed obtain a more accurate measurement of actual size of segregated regions by studying the phenomenon in 3D. Thus, it can be envisaged to extend the same technique to 3D by using 3 CCD digital cameras coupled with a tomographic reconstruction. However, the fact that the colored unmixed regions hide the uncolored mixed ones may lead to serious difficulties. Thus, it can be interesting for the same experiment to couple the decolorization experiment with the colorization one because both processes are complementary.

5.5 Summary and conclusions

A new experimental method relying on image analysis was developed to characterize the macromixing of an impeller. This method is easy to set up and only requires a digital mono CCD camera, a transparent vessel and a color change reaction to characterize the mixing kinetics.

The analysis of the decolorization process is a new concept that yields more information than the single mixing time. It does not only remove the subjectivity of the mixing time determination by the naked eye but also provides a picture of the mixing process over time, which can be very useful to identify and quantify the unmixed zones.

On the basis of experimental validations, the method is highly reproducible and robust whatever the illumination conditions. With this method, it is possible to compare the

mixing times coming from different authors if the image analysis information are fixed (that is same: indicator, RGB component for separation, X value, and M value). Finally, we showed that the proposed method can be useful in many fields such as multiple impeller systems' investigation or impeller comparison.

5.6 Acknowledgments

The financial support of NSERC and the members of the Consortium 'Innovative Newtonian Mixing Technologies' is gratefully acknowledged.

5.7 Notation

a	Mixing curve model parameter, dimensionless
A	Area coverage, %
B	Blue component of the RGB color model, dimensionless
C	Bottom clearance, m
D	Impeller diameter, m
E	Eccentricity, m
G	Green component of the RGB color model, dimensionless
H	Liquid height, m
h	Dimensionless mixing curve model parameter, dimensionless
K	Dimensionless mixing rate, dimensionless

K_P Impeller power constant, dimensionless

m Intensive rate of coverage, s^{-1}

M Percentage of mixed pixel from the observer point of view, %

M_∞ Value of M at $t=\infty$, %

n Mixing curve model parameter, dimensionless

N Impeller rotational speed, s^{-1}

N_R Number of revolutions of the impeller, dimensionless

P Pixel, dimensionless

R Red component of the RGB color model, dimensionless

Re Reynolds number ($Re=\rho ND^2/\mu$), dimensionless

T Tank diameter, m

t Time, s

V Tank volume, m^3

w Baffle width, m

X Separation value, %

Greek letters

λ Mixing curve model parameter, s^{-1}

β Threshold used on a RGB component for color separation, dimensionless

μ Viscosity, Pa.s

ρ Liquid density, kg/m^3

5.8 Literature Cited

ALVAREZ, M.M., ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2002. "Laminar mixing in eccentric stirred tank systems". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:546-557.

ALVAREZ, M.M. 2000. *Using spatio-temporal asymmetry to enhance mixing in chaotic flows: from maps to stirred tanks.* 230 p. PhD thesis, The State University of New-Jersey, U.S.A. - Department of Chemical and Biochemical Engineering.

ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2004. "Planar laser-induced fluorescence method for analysis of mixing in laminar flows". *Industrial and Engineering Chemistry Research* . 43:6557-6568.

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002b. "Unconventional configuration studies to improve mixing times in stirred tanks". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:558-565.

BOURNE, J.R., KUT, O.M., LENZNER, J. 1992. "Improved reaction system to investigate micromixing in high-intensity mixers". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 31:3. 949-958.

BROWN, D. A. R., JONES, P.N., MIDDLETON, J.C., PAPADOPOULOS, G., ARIK, E.B. 2004. "Experimental methods". *Handbook of industrial mixing.* Sous la direction de E.L. Paul , V.A. Atiemo-Obeng et S.M. Kresta. Hoboken, New Jersey, U.S.A. John Wiley & Sons, Inc.

BUCHMANN, M., MEWES, D. 2000. "Tomographic measurements of micro- and macromixing using the dual wavelength photometry". *Chemical Engineering Journal.* 77:3-9.

DELAPLACE, G., BOUVIER, L., MOREAU, A., GUÉRIN, R., LEULIET, J.-C. 2004. "Determination of mixing time by colourimetric diagnosis - Application to a new mixing system". *Experiments in Fluids.* 36:437-443.

FOX, E.A., GEX, V.E. 1956. "Single-phase blending of liquids". *AIChE Journal.* 2:4. 539-544.

GODLESKI, E.S., SMITH, J.C. 1962. "Power requirements and blend times in the agitation of pseudoplastic fluids". *AIChE Journal.* 8:5. 617-620.

GUICHARDON, P., FALK, L. 2000. "Characterization of micromixing efficiency by iodite-iodate reaction system. Part I: Experimental procedure". *Chemical Engineering Science.* 55:19. 4233-4243.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005. "Comparative study of different mixing strategies in small high throughput experimentation reactors". *Chemical Engineering Science.* 60:2355-2368.

HOLDEN, P.J., WANG, M., MANN, R., DICKIN, F.J., EDWARDS, R.B. 1998 . "Imaging stirred-vessel macromixing using electrical resistance tomography". *AIChE Journal.* 44:780-790.

HOUCINE, I., VIVIER, H., PLASARI, E., DAVID, R., VILLERMAUX, J. 1996. "Planar laser induced fluorescence technique for measurements of concentration fields in continuous stirred tank reactors". *Experiments in Fluids.* 22:95-102.

KASAT, G.R., PANDIT, A.B. 2004. "Mixing time studies in multiple impeller agitated reactors.". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 82:892-904.

KLING, K., MEWES, D. 2004. "Two-colour laser induced fluorescence for the quantification of micro- and macromixing in stirred vessels". *Chemical Engineering Science.* 59:1523-1528.

LAMBERTO, D.J., MUZZIO, F.J., SWANSON, P.D., TONKOVICH, A.L. 1996. "Using time-dependent rpm to enhance mixing in stirred vessels". *Chemical Engineering Science.* 51:5. 733-741.

LE COËNT, A.-L., RIVOIRE, A., BRIANÇON, S. , LIETO, J. 2005. "An original image-processing technique for obtaining the mixing time: The box-counting with erosions method". *Powder Technology.* 152:62-71.

LEE, K.C., YIANNESKIS, M. 1997. "A liquid crystal thermographic technique for the measurement of mixing characteristics in stirred vessels". *Chemical Engineering Research and Design.* 75:A8. 746-754.

MELTON, L.A., LIPP, C.W., SPRADLING, R.W., PAULSON, K.A. 2002. "DISMT - Determination of mixing time through color changes". *Chemical Engineering Communications.* 189:3. 322-338.

MÜLLER, W. 1985. *Untersuchung von homogenisiervorgängen in nicht-Newtonschen flüssigkeiten mit einem neuen bildanalytischen verfahren.* TU Dortmund: TU Dortmund.VDI-Forschungsberichte, Reihe 3, n103.

NAGATA, S. 1975. "Mixing of homogeneous liquids". *Mixing: principles and applications.* Sous la direction de S. Nagata. New York, U.S.A. Kodansha Ltd. and John Wiley & Sons, Inc.

PINEAULT, G., CLOUTIER, L. 1972. "Fonction de transfert d'un réservoir agité en système continu: I. Détermination à l'aide d'un traceur fluorescent". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 50:736-742.

SOLOMON, J., ELSON, T.P., NIENOW, A.W., PACE, G.W. 1981a. "Cavern sizes in agitated fluids with a yield stress". *Chemical Engineering Communications.* 11:143-164.

VAN PUYVELDE, D.R., YOUNG, B.R., WILSON, M.A., SCHMIDT, S.J. 1999. "Experimental determination of transverse mixing kinetics in a rolling drum by image analysis". *Powder Technology.* 106:183-191.

ZLOKARNIK, M. 2001. "Homogenization". *Stirring: Theory and practice.* Sous la direction de M. Zlokarnik. Weinheim, Germany : Wiley-VCH Verlag GmbH.

CHAPITRE 6: ARTICLE 2 : EFFECT OF SHAFT ECCENTRICITY ON THE LAMINAR MIXING PERFORMANCE OF A RADIAL IMPELLER

Présentation de l'article :

Cet article, publié dans la revue *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, caractérise les effets de l'excentrage d'un mobile d'agitation opérant en régime laminaire sur sa consommation de puissance et son efficacité de mélange. En utilisant la technique de détermination du temps de mélange par analyse d'images, il est montré que le nombre de Reynolds et l'excentrage ont tous les deux des effets importants sur la destruction des zones ségrégées entourant une turbine Rushton en régime laminaire. De plus, l'étude de la « cinétique de mélange » indique que le nombre de Reynolds joue un rôle sur la capacité de pompage de l'agitateur, ce qui n'est pas le cas de l'excentrage. Concernant la consommation de puissance, il a été montré que l'excentrage n'a aucun effet sur celle-ci, d'où l'intérêt d'excentrer un mobile en régime laminaire. Pour finir, les résultats concluent qu'une turbine Rushton peut mélanger l'ensemble d'une cuve de mélange en régime laminaire seulement si le nombre de Reynolds et l'excentrage de l'agitateur sont au-dessus de certaines valeurs critiques.

Auteurs : François Cabaret, Louis Fradette, Philippe A. Tanguy

URPEI, Department of Chemical Engineering, Ecole Polytechnique, P.O. Box 6079 Station Centre-Ville, Montreal, QC, H3C 3A7, Canada

6.1 Abstract

The effects of impeller eccentricity and Reynolds number on the mixing performance were studied for Rushton turbine stirred tank systems operated in the laminar regime (Re<10). A digital image analysis of an acid-base decolorization reaction was used to characterize the mixing efficiency. Results show that both parameters have remarkable effects on the destruction of the toroidal segregated regions surrounding the Rushton turbine in laminar flow. Criteria are given to prevent the formation of these segregated regions in a tank. It is also shown that shaft eccentricity does not impact on the impeller power consumption.

Les effets de l'excentrage du mobile d'agitation et du nombre de Reynolds sur les performances d'une turbine Rushton opérée en régime laminaire (Re<10) ont été étudiés. Une analyse d'images numériques issues d'une réaction de décoloration acide-base a été utilisée pour caractériser l'efficacité du mélange. Les résultats montrent que ces deux paramètres ont des effets remarquables sur la destruction des zones toroïdales non mélangées entourant la turbine Rushton en régime laminaire. Des critères ont ainsi

été établis afin d'éviter la formation de ces zones ségrégées dans une cuve. De plus, il a été montré que l'excentrage de l'arbre n'a pas d'impact sur la consommation de puissance de l'agitateur.

Keywords: Laminar mixing, Stirred tank, Shaft eccentricity, Segregated regions.

6.2 Introduction

Fluid mixing in mechanically agitated tanks is a common unit operation in the chemical process industries. According to the fluid viscosity and process constraints, two types of impellers are mostly encountered in mechanically agitated vessels: close clearance impellers and open impellers. Close clearance impellers are used in the laminar regime because they generate sufficient bulk movement to homogenize the fluid at an acceptable level of mixing. They are, however, penalized by a high energy consumption. On the other hand, open impellers draw less power, but they are inefficient for mixing in the laminar regime. Indeed, open impellers generate segregated regions in the laminar regime irrespective of the discharge flow type, whether radial or axial (see Figure 6-1). Recent studies on open impellers (ALVAREZ, 2000; ALVAREZ et al., 2002; ASCANIO et al., 2002a,b; HALL et al., 2005b; SANCHEZ CERVANTES et al., 2006) conclude that, in the laminar regime, the dynamic perturbations generated by using an eccentric shaft could help to break the segregated regions, and increase the axial circulation in a tank even with radial agitator. This change in flow patterns prevents the

formation of flow compartmentalization and helps to improve the mixing efficiency of the mixing device.

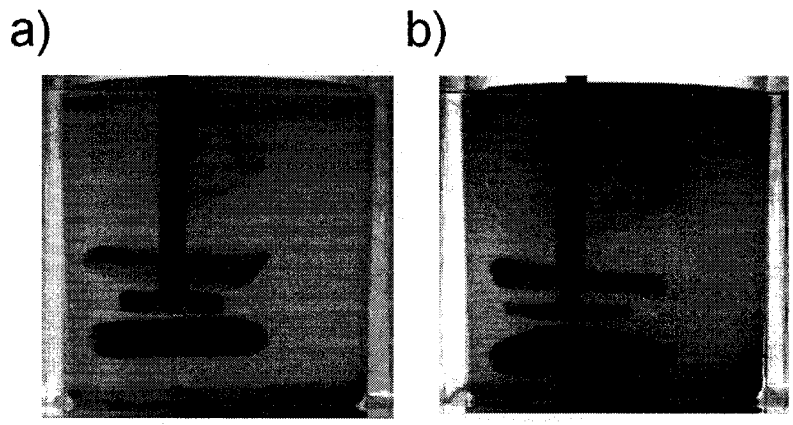


Figure 6-1 : Segregated regions (in dark) for radial (a) and axial (b) flow impellers

The idea of using off-centered impellers in the laminar regime is fairly recent but already pretty well established in the turbulent regime. Indeed, many authors have shown that, in turbulent flow, shaft eccentricity is equivalent to baffling (JOOSTEN et al., 1977; NISHIKAWA et al., 1979; NOVAK et al., 1982; KING et MUSKETT, 1985; HALL et al., 2004; HALL et al., 2005a; KARCZ et SZOPLIK, 2004; KARCZ et al., 2005; MONTANTE et al., 2006). NISHIKAWA et al. (1979), KARCZ and SZOPLIK (2004) and KARCZ et al. (2005) have shown that for axial and radial type impellers the mixing time decreases with the increase of the shaft eccentricity. Many studies also report increased power with the shaft eccentricity with both axial and radial type impellers (NISHIKAWA et al., 1979; NOVAK et al., 1982; KARCZ et al., 2005).

As only limited data is available to describe the effects of shaft eccentricity on mixing time and power consumption in the laminar regime, the objective of this article is to examine and quantify these effects when a Rushton turbine is used. Let us note that the results of this study might also be extended to axial impellers as they generate radial flow characteristics in laminar regime (FANGARY et al., 2000). The interest of this study is to determine the optimum shaft eccentricity in laminar flow.

6.3 Materials and methods

6.3.1 Equipment

The experiments were conducted using a non-baffled cylindrical polycarbonate tank with an open-top and a flat bottom, and having an internal diameter T=0.215m (see Figure 2). A liquid column height H=T was used yielding a liquid volume of 7.8 L. The open impeller examined in this study was a radial flow six-blade Rushton turbine (RT) with a diameter of $D=6.53\times10^{-2}$ m. The following notations will be used in the forthcoming: R denotes the radius of the tank, e the distance from the middle of the shaft to the centerline of the tank (see Figure 6-2), and the eccentricity E is defined as E=e/R. In the different experiments E was varied between 0 and 56.2% (56.2% being the highest possible value of E for the RT without touching the tank wall), and the bottom clearance of the impeller was kept constant at C=T/3. The mixing shaft was driven by an AC motor (0.69 kW). To modify the value of the shaft eccentricity, the vessel was moved horizontally on the table, perpendicularly with the camera focal axis (see Figure

6-3). A torquemeter (Vibrac, Model TQ-512) coupled to the agitation shaft was used for determining the power consumption in a range between 0 and 3.61 N.m.

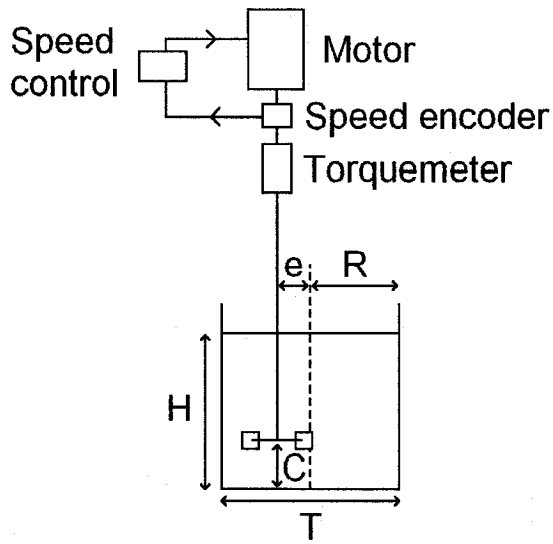


Figure 6-2 : Mixing system

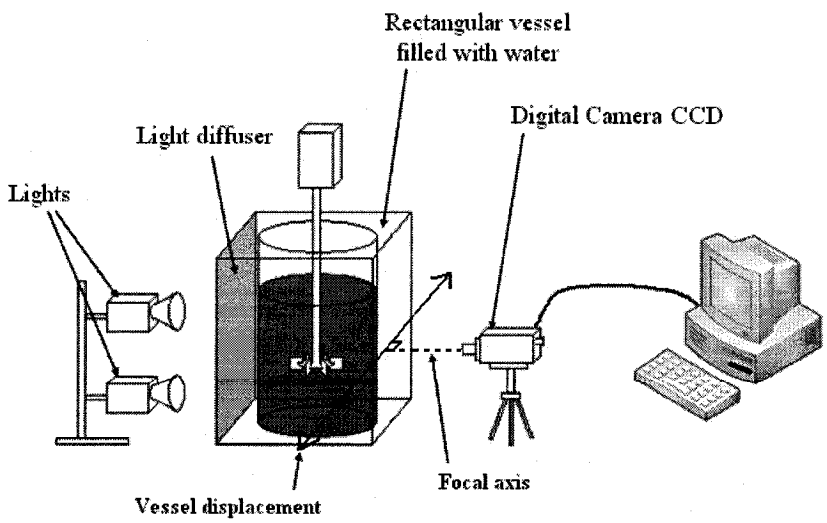


Figure 6-3 : Schematic representation of the experimental device

In the experimental setup presented in Figure 6-3, the cylindrical mixing tank is installed in a second rectangular water-filled chamber in order to minimize optical distortions due to the curvature of the tank. To obtain homogeneous illumination, a white sheet of paper was used as light diffuser on the rectangular vessel. The mixing process was filmed with a digital mono CCD camera (Digital Handycam DCR-PC101, Sony) linked to a computer via a 1394 IEEE (FireWire) connector.

6.3.2 Methods

Aqueous solutions of corn syrup (Glucose Enzose 62DE, Univar) were used as the viscous Newtonian fluids. In all the experiments the glucose solutions were allowed to settle for 24 h before starting the experiments in order to eliminate air bubbles. Knowing that the viscosity μ of the viscous corn syrup solutions varies significantly with temperature, preheating of the solutions was achieved by letting the impeller in rotation (using viscous dissipation as the source of heat). A constant temperature of 27.2°C was then reached and the temperature was monitored during the experiments to ensure it remained at this constant value. Newtonian viscosities of the solutions were determined with a viscometer (Visco 88, Bohlin Instruments) at 27.2°C with the Couette configuration. During the experiments, the viscosity of the solutions was found in the range 6.45 – 6.85 Pa.s and the liquid density ρ was 1360 kg/m^3.

In order to get a reliable color change, a solution of bromocresol purple (0.08% w/w in water) was used as the indicator. This indicator is yellow when pH < 5.2 (acid color) and

purple when pH > 6.8 (alkaline color). Approximately 45mL of the solution of bromocresol purple was added in the 7.8L of corn syrup solution. In all the experiments we followed the color evolution from purple (alkaline color) towards yellow (acid color) because it is far easier and more reliable to detect purple unmixed zones in a yellow liquid than the opposite.

At the beginning of a given experiment the glucose solution was set to purple, as close as reasonable to the color change limit by using aqueous NaOH at 10 $mol.L^{-1}$. Then, 200mL of solution was sampled from the tank and mixed with 2mL of HCl at 10 $mol.L^{-1}$. For reproducibility purposes, the acidic solution was always rapidly and gently injected at the same distance from the shaft (5 cm) on the free surface using a syringe having a large orifice. The tracer insertion time was kept constant throughout the experiment at 1.0 s, this time being very small compared to the duration of the experiments.

Image analysis was used according to the method proposed by CABARET et al. (2007). Each video captured by the digital camera during the acid-base color change was sampled and the resulting images were then analysed individually. The area of interest selected on the video frames is shown in Figure 6-4. For each pixel, the evolution of the level of brightness of the green color (RGB color model) is followed over time. By defining an individual threshold for each pixel, a pixel can be considered either mixed or unmixed by comparing its green level with the threshold. As recommended by CABARET et al. (2007), in our experiments we used a pixel separation value (X) of 50% between the first unmixed picture and the last fully mixed picture to define the

threshold. For each sampled image, we then count the number of mixed pixels $N_{Mixed\ Pixels}$, and plot the ratio (M %) $\frac{N_{Mixed\ Pixels}}{N_{Total\ Pixels}}$ over time to obtain the mixing curve. Obviously, M is equal to 0 at t=0 and M goes to 100% when complete mixing of the liquid is reached. The resulting curve quantifies the color change from the observer point of view. The technique has been shown to be highly reproducible and yields not only an eventual mixing time value but also a complete evolution of the color change.

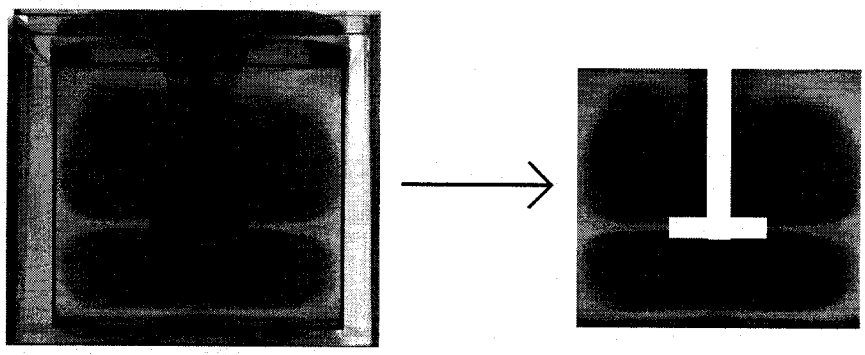


Figure 6-4 : Example of video frame and area of interest (dark rectangle)

Figure 6-5 presents mixing curves as the percentage of mixed pixels M (%) against time which can be seen from the observer point of view. It is important to note that when M stabilizes at a plateau without reaching 100%, there remains at least one unmixed zone in the area of interest. The difference between 100% and the plateau represents the 2D projection surface of the unmixed zone in the area of interest and it corresponds to what an observer can see in front of the vessel without providing quantitative information on the unmixed volume. This limitation must be kept in mind in the analysis of any mixing

results with an unmixed region. However the final or constant value of M can be used to compare the sizes of different segregated region(s). Moreover, let us note that the slope of the rising part in Figure 6-5 represents the pumping capacity of the impeller.

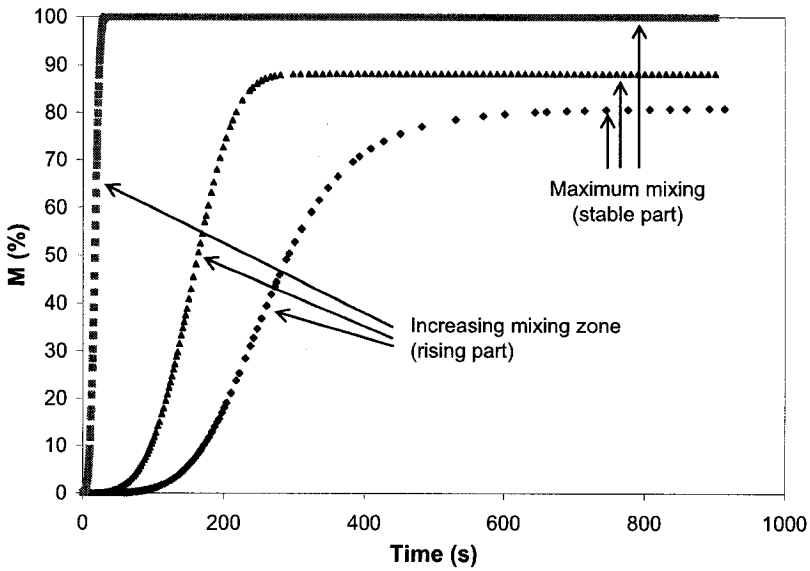


Figure 6-5 : Standard mixing curves

As the laminar region for a Rushton turbine exists below a Reynolds number value of 10 (TATTERSON, 1991d), we performed the experiments with seven different Reynolds numbers (*Re*): 1.7; 2.5; 3.5; 5.1; 7.5; 10, and 13. For the shaft eccentricity, we studied seven different values of E: 0, 14.3%, 25.7%, 34.3%, 40.9%, 50.5% and 56.2% (56.2% being the highest possible value of E for the RT without touching the tank wall). The whole set of values of *Re* and E tested corresponded to the performance of 49 experiments.

6.4 Results and discussion

6.4.1 Effect of Reynolds number on mixing

The standard mixing curves obtained give the percentage of mixed pixels over time (M vs. time). However, to compare the different results, it is far more interesting to plot the percentage of mixed pixels against the dimensionless time represented in this study by the number of revolutions of the impeller (N_R). The plots of M vs. N_R are called dimensionless mixing curves.

Figure 6-6 presents the effects of the Reynolds number on the mixing curves at constant eccentricity (E=34.3%). The Reynolds number influences the mixing curves in two ways: the level of M achieved at a given N_R in the rising part and the maximum value of M reached in the stable part. Indeed, as we can see with the arrows in Figure 6-6, both the rising and the stable part of the dimensionless mixing curves are improved when Re increases. This result is in contradiction with the theory claiming that there exists a unique dimensionless mixing curve in the laminar regime. Indeed, the dimensionless mixing time is presented as constant in this regime (NAGATA, 1975b; TATTERSON, 1991c; EDWARDS et al., 1992). A thorough investigation revealed that no thermal gradient yielding a higher viscosity near the free surface (injection zone) is at the source of the varying mixing kinetics. Thus, our results corroborate those of RICE et al. (2006), showing that the net pumping capacity of the Rushton turbine in the laminar regime decreases when the Reynolds number decreases. A drop in the impeller pumping capacity appears at low Re (below 10) where there are small values for the inertial forces

(creeping flow). In this case, the liquid is not radially ejected due to a balance between the pressure and viscous forces.

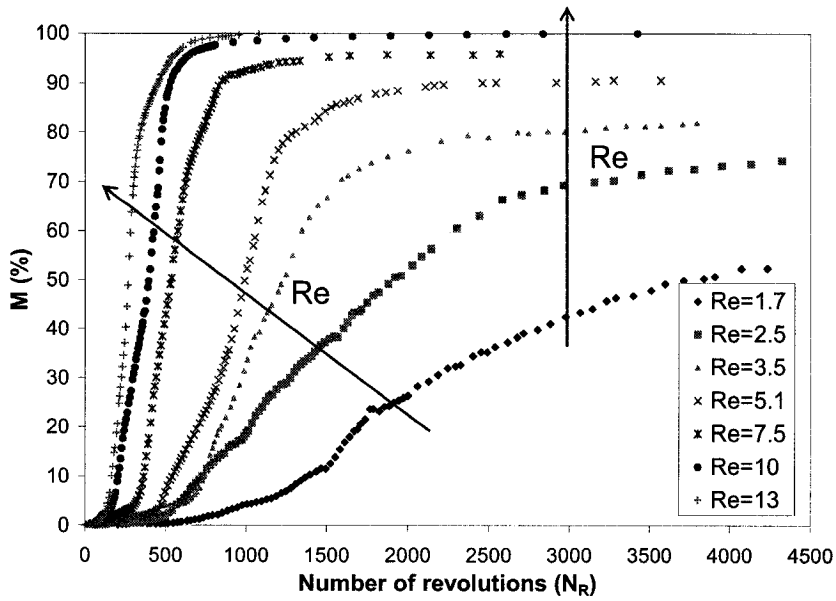


Figure 6-6 : Dimensionless mixing curves for different Reynolds numbers at E=34.3%

In order to validate that the non-constant mixing curves are independent of the eccentricity value E, we have plotted in Figure 6-7 the variation of M vs. Re at a given number of revolutions of the impeller; in this case N_R=2000. The curves are presented for the seven shaft eccentricity values considered in the experiments. We see again that, for a given dimensionless time, the number of mixed pixels increases with the Reynolds number. Moreover, let us note that Re has a strong influence on M for Re<4 which means that the pumping action of the impeller is very low for Re<4.

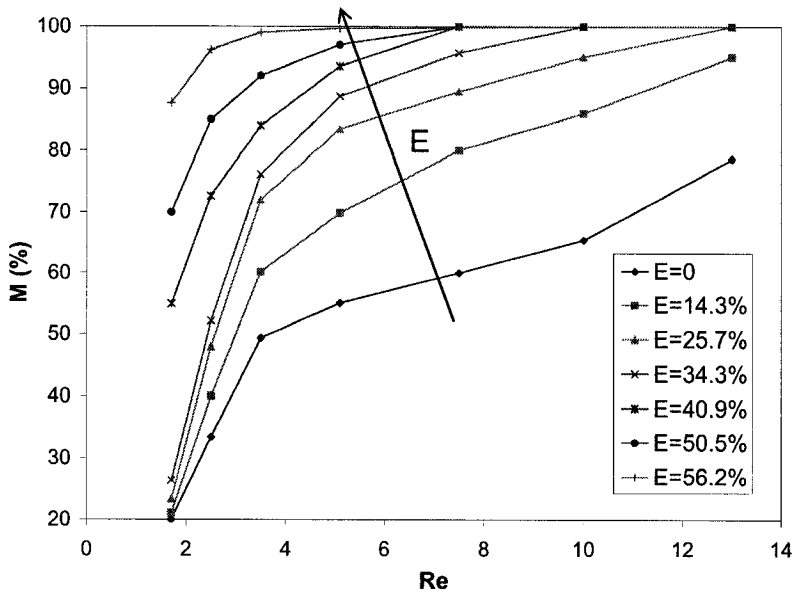


Figure 6-7 : Variation of *M* vs. *Re* for 7 shaft eccentricities at a constant number of impeller revolutions (N_R=2000)

6.4.2 Effect of shaft eccentricity on mixing

The dimensionless mixing curves presented in Figure 6-8 show the effect of the shaft eccentricity at a given Reynolds number (*Re*=7.5). We can see that the shaft eccentricity E has an evident and important impact on the maximum value of *M* reached. However, no effect is seen on the slope of the rising part of the curve. This means that eccentricity does not change the impeller pumping capacity but change the mixing volume considered.

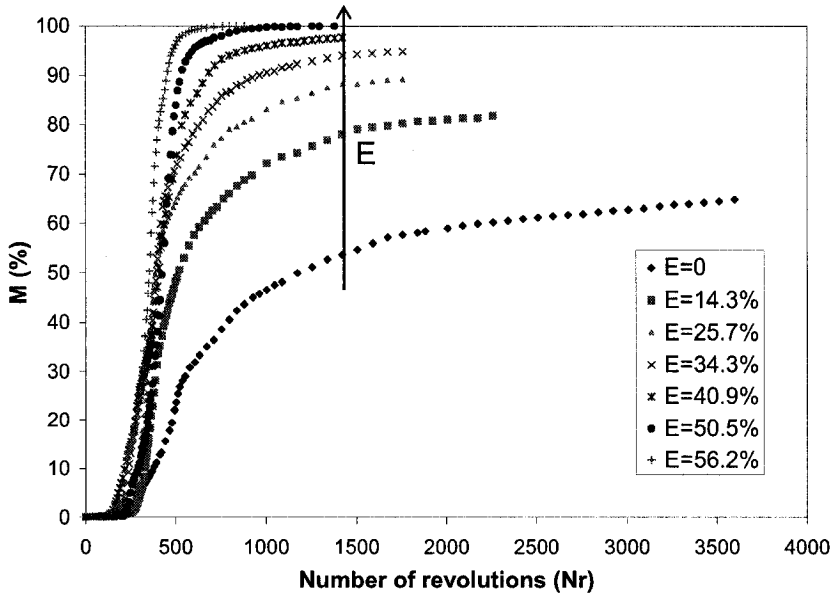


Figure 6-8 : Dimensionless mixing curves for 7 shaft eccentricities at *Re*=7.5

Let us note in Figure 6-8 that a small shaft eccentricity (E=14.3%) has an important effect on the maximum value of M reached (compared to the centered case). A small value is indeed enough to significantly decrease the size of the segregated regions and increase the volume of liquid mixed. This behaviour is illustrated in Figure 6-9 where images are shown at different shaft eccentricities for a dimensionless time of N_R=1500 at *Re*=7.5 (similar to the case presented in Figure 6-8). Figure 6-9 illustrates the evolution of the segregated regions shape when the shaft eccentricity increases. This figure shows two toroidal shapes, one above and one below the impeller. The upper torus is larger than the lower one when the shaft is centered (Figure 6-9a). With the increasing eccentricity, the upper torus shrinks faster than the bottom one, up to the point where the lower torus still exists while the upper one has disappeared (Figure 6-9d). The shaft

presence in the upper part of the tank is probably at the source of a useful perturbation equivalent to baffling. Increasing further the eccentricity eventually leads to the disappearance of the lower torus (Figure 6-9f).

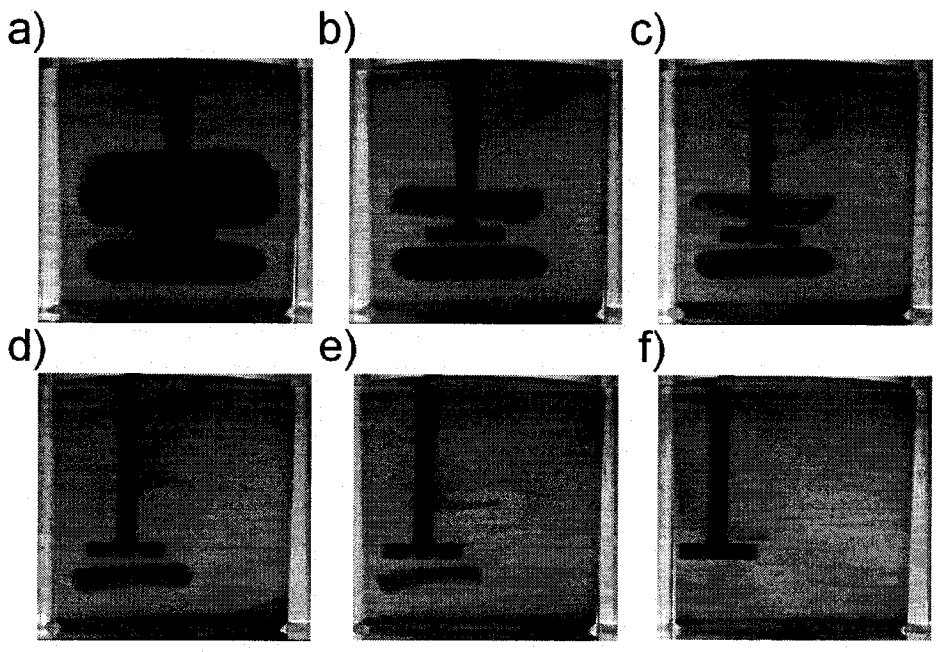


Figure 6-9 : Pictures of the segregated regions for different shaft eccentricities at N_R=1500 for *Re*=7.5 (a) E=0, b) E=14.3%, c) E=25.7%, d) E=34.3%, e) E=40.9% and f) E=56.2%)

In order to evaluate the shaft eccentricity effect on the mixing efficiency for different Reynolds numbers, we have plotted the variation of M vs. E for different *Re* at N_R=2000 (see Figure 6-10). At first glance, we observe that the mixing efficiency systematically increases with the shaft eccentricity. However, the behaviour of the increase of M with E is a function of *Re*. At low *Re* (*Re*=1.7 and 2.5) we observe that a small shaft eccentricity has a low impact on M and, with the increase in *Re,* the shaft eccentricity has a larger

impact on *M*. Moreover, we observe that for low *Re* (*Re*=1.7 and 2.5) there is a critical value of E (around E=34.3%) after which the mixing efficiency is largely improved. This indicates that the tank wall play an important role in the laminar mixing as mentioned by ALVAREZ et al. (2002).

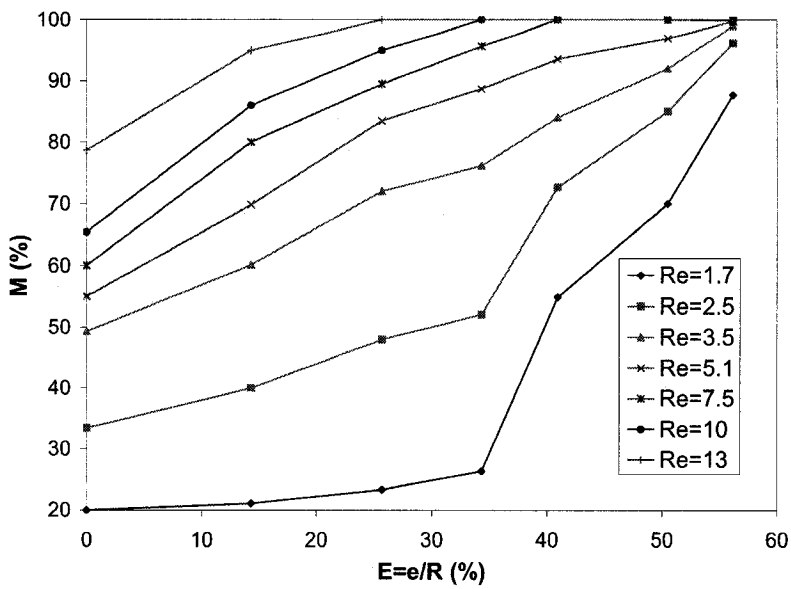


Figure 6-10 : Variation of *M* vs. the shaft eccentricity for different Reynolds number at a constant number of impeller revolutions (N_R=2000)

To summarize the results obtained on the Reynolds number and shaft eccentricity effects, we have plotted a 3D surface representing the variation of *M* vs. *Re* and *E* at N_R=2000 (see Figure 6-11). This graph shows that a complete mixing (*M*=100%) can be obtained with a Rushton turbine in laminar flow only for E≥34.3% and *Re*≥7.5. This zone is seen on the upper right part of the surface curve.

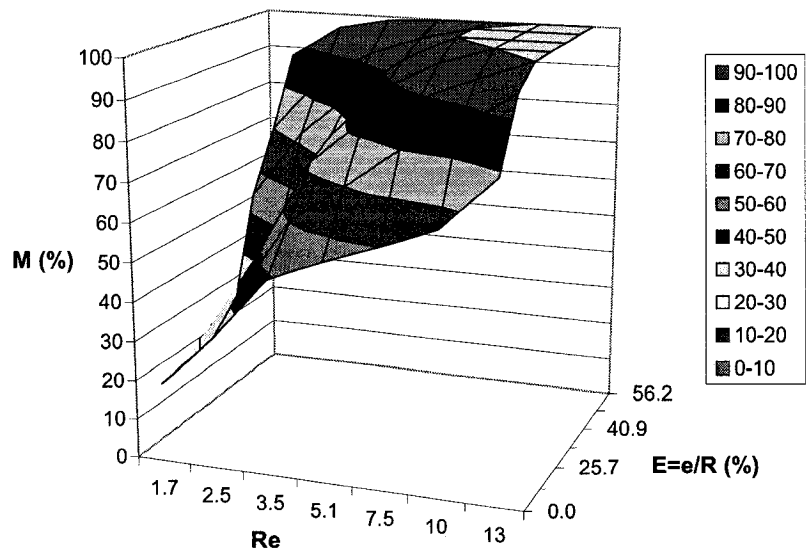


Figure 6-11 : Variation of M vs. Re and shaft eccentricity at a constant number of impeller revolutions (N_R=2000)

6.4.3 Power consumption

As the shaft eccentricity enhances the mixing efficiency, we have evaluated whether eccentricity had any detrimental consequences on the power consumption. Figure 6-12 shows the Rushton turbine power curve for three different shaft eccentricities (E=0, 40.9% and 56.2%). The impeller power consumption (P) was in the range [0.98±0.07W; 105.92±0.91W] giving a power number (N_P) in the range [6.93±0.005; 33.43±0.03]. The experimental results indicate that the shaft eccentricity has no effects on the Rushton turbine power consumption in the laminar regime. This result can be understood with the experiments from RICE et al. (2006) which show that the liquid just surrounding the impeller moves in laminar flow. Thus, there is no impeller power interaction with the

wall compared to the turbulent flow case. Moreover, the impeller power constant (K_P) was found to be 70.6, which is exactly the same value that we obtained for the centered configuration with four baffles having a width of w=T/10.

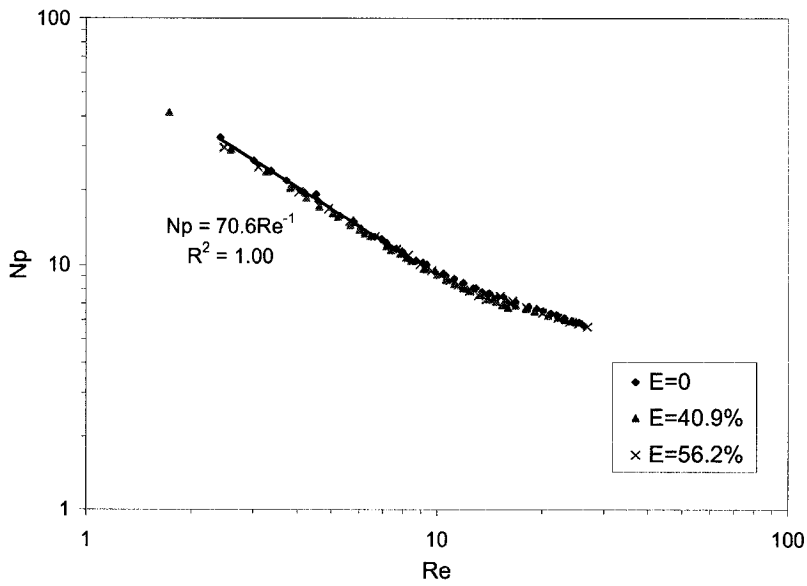


Figure 6-12 : Rushton turbine power curves for different shaft eccentricities

6.5 Conclusion

In this study, it has been shown experimentally for a radial discharge open impeller operating in laminar regime that the dimensionless mixing time is not a constant, contrary to a well-accepted idea. This result is also in agreement with the latest findings by RICE et al. (2006).

It has also been shown that the Reynolds number and the shaft eccentricity both have remarkable effects on the destruction of the toroidal segregated regions surrounding the

Rushton turbine in the laminar regime. It was observed that the Reynolds number plays a role on the pumping action of the impeller and on the mixing volume considered whereas the eccentricity plays just a role on the mixing volume. Moreover, results confirm that the tank wall play an important role in laminar mixing as it is mentioned in the literature by ALVAREZ et al. (2002) and DOUCET et al., (2005). Finally, it has been shown that the shaft eccentricity has no impact on the impeller power consumption hence the advantage of using off-centered impellers in the laminar regime.

It was thus concluded that a complete mixing can be obtained in laminar flow with an open impeller only when $E \geq 34.3\%$ and $Re \geq 7.5$.

6.6 Acknowledgements

The support of NSERC and the members of the Consortium "*Innovative Non-Newtonian Mixing Technologies*" is gratefully acknowledged. Moreover, we wish to thank Saïd Bikhir for his help in the experimental work.

6.7 Nomenclature

C Bottom clearance, m

D Impeller diameter, m

e Distance from the middle of the shaft to the centerline of the tank, m

E Eccentricity, %

H Liquid height, m

K_P Impeller power constant ($K_P = N_P.Re$), dimensionless

M Percentage of mixed pixel from the observer point of view, %

N Impeller rotational speed, s^{-1}

N_P Power number ($N_P = P/\rho N^3 D^5$), dimensionless

N_R Number of revolutions of the impeller, dimensionless

P Impeller power consumption, W

R Radius of the tank, m

Re Reynolds number ($Re = \rho ND^2/\mu$), dimensionless

T Tank diameter, m

t Time, s

V Tank volume, m^3

w Baffle width, m

X Pixel separation value, %

Greek letters

μ Viscosity, Pa.s

ρ Liquid density, kg/m^3

6.8 References

ALVAREZ, M.M., ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2002. "Laminar mixing in eccentric stirred tank systems". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:546-557.

ALVAREZ, M.M. 2000. *Using spatio-temporal asymmetry to enhance mixing in chaotic flows: from maps to stirred tanks.* 230 p. PhD thesis, The State University of New-Jersey, U.S.A. - Department of Chemical and Biochemical Engineering.

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002a. "Mixing enhancement of non-Newtonian fluids using unconventional configurations". *Proceedings of ASME Fluids Engineering Division Summer Meeting.*

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002b. "Unconventional configuration studies to improve mixing times in stirred tanks". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:558-565.

CABARET, F., BONNOT, S., FRADETTE, L., TANGUY, P.A. 2007. "Mixing time analysis using colorimetric methods and image processing". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 46:14. 5032-5042.

DOUCET, L., ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2005. "Hydrodynamics characterization of rotor-stator mixer with viscous fluids". *Chemical Engineering Research and Design.* 83:1186-1195.

EDWARDS, M. F., BAKER, M.R., GODFREY, J.C. 1992. "Mixing of liquids in stirred tanks". *Mixing in the process industries.* Sous la direction de N. Harnby, M.F. Edwards et A.W. Nienow. Oxford, U.K. Butterworth-Heinemann.

FANGARY, Y.S., BARIGOU, M., SEVILLE, J.P.K., PARKER, D.J. 2000. "Fluids trajectories in a stirred vessel of non-Newtonian liquid using positron emission particle tracking". *Chemical Engineering Science.* 55:5969-5979.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2004. "Mixing in unbaffled high-throughput experimentation reactors". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 43:4149-4158.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005a. "Comparative study of different mixing strategies in small high throughput experimentation reactors". *Chemical Engineering Science.* 60:2355-2368.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005b. "Just because it's small doesn't mean it's well mixed: ensuring good mixing in mesoscale reactors". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 44:9695-9704.

JOOSTEN, G.E.H., SCHILDER, J.G.M., BROERE, A.M. 1977. "The suspension of floating solids in stirred vessels". *Chemical Engineering Research and Design.* 55:220-222.

KARCZ, J., CUDAK, M., SZOPLIK, J. 2005. "Stirring of a liquid in a stirred tank with an eccentrically located impeller". *Chemical Engineering Science.* 60:2369-2380.

KARCZ, J., SZOPLIK, J. 2004 . "An effect of the eccentric position of the propeller agitator on the mixing time". *Chemical Papers.* 58:9-14.

KING, R., MUSKETT, M.J. 1985. "Fluid loading and power measurements on an eccentrically mounted pitched blade impeller". *Proceedings of the 5th European Conference on Mixing.* 285-301.

MONTANTE, G., BAKKER, A., PAGLIANTI, A., MAGELLI, F. 2006. "Effect of the shaft eccentricity on the hydrodynamics of unbaffled stirred tanks". *Chemical Engineering Science.* 61:2807-2814.

NAGATA, S. 1975. "Mixing of homogeneous liquids". *Mixing: principles and applications.* Sous la direction de S. Nagata. New York, U.S.A. Kodansha Ltd. and John Wiley & Sons, Inc.

NISHIKAWA, M., ASHIWAKE, K., HASHIMOTO, S. 1979. "Agitation power and mixing time in off-centring mixing". *International Chemical Engineering.* 19:1. 153-159.

NOVAK, V., DILT, P., RIEGER, F. 1982. "Mixing in unbaffled vessels, the influence of an eccentric impeller position on power consumption and surface aeration". *Proceedings of the 4th European Conference on Mixing.* Cranfield, England : BHRA Fluid Engineering. 57-70.

RICE, M., HALL, J., PAPADAKIS, G., YIANNESKIS, M. 2006. "Investigation of laminar flow in a stirred vessel at low Reynolds numbers". *Chemical Engineering Science.* 61:2762-2770.

SANCHEZ CERVANTES, M.I., LACOMBE, J., MUZZIO, F.J., ALVAREZ, M.M. 2006. "Novel bioreactor design for the culture of suspended mammalian cells. Part I: mixing characterization". *Chemical Engineering Science.* 61:8075-8084.

TATTERSON, G. B. 1991a. "Laminar mixing". *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* Sous la direction de G.B. Tatterson. New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc.

TATTERSON, G. B. 1991b. "Power consumption in turbulent mixing". *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* Sous la direction de G.B. Tatterson. New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc.

CHAPITRE 7: ARTICLE 3 : HYDRODYNAMICS PERFORMANCE OF A DUAL SHAFT MIXER WITH VISCOUS NEWTONIAN LIQUIDS

Présentation de l'article :

Cet article, publié dans la revue *Chemical Engineering Research and Design*, met en évidence l'intérêt d'utiliser un mélangeur dual à deux arbres de rotation excentrés pour le mélange de liquides visqueux dans une cuve non chicanée. La technique de détermination du temps de mélange par analyse d'images d'une réaction acide-base de décoloration est utilisée ici pour comparer les performances hydrodynamiques de différentes configurations de mélangeur dual non chicanées. Les mélangeurs étudiés possèdent tous deux agitateurs identiques placés soit sur le même arbre de rotation ou soit sur deux arbres de rotation distincts. Lorsque les agitateurs sont placés sur le même arbre de rotation, il apparaît que l'excentrage de l'arbre permet de détruire les zones ségrégées mais ne permet pas d'éviter la présence d'une compartimentation de l'écoulement entre les deux agitateurs. En utilisant une configuration de mélangeur dual munie de deux arbres de rotation excentrés, il apparaît que l'interaction entre les deux agitateurs empêche la création d'une compartimentation de l'écoulement et permet ainsi d'obtenir des temps de mélange réduits. Le mode contre-rotatif de cette configuration à deux arbres de rotation excentrés a montré expérimentalement et numériquement une

meilleure collaboration entre les deux agitateurs en comparaison avec le mode co-rotatif. L'étude numérique conclut que cette meilleure collaboration en mode contre-rotatif est due à un profil de pression favorable entre les deux agitateurs. Concernant la consommation de puissance, il apparaît que les deux mobiles d'agitation n'interagissent pas du fait de leur éloignement.

Auteurs : François Cabaret, Christian Rivera, Louis Fradette, Mourad Heniche, Philippe A. Tanguy

URPEI, Department of Chemical Engineering, Ecole Polytechnique, P.O. Box 6079 Station Centre-Ville, Montreal, QC, H3C 3A7, Canada

7.1 Abstract

The mixing performance of a dual shaft mixer with a Rushton turbine installed on each shaft was investigated experimentally and numerically in the laminar regime using viscous Newtonian liquids. A mixing quantification method based on the analysis of a fast acid-base discolouration reaction was used to follow the macromixing evolution in the tank. The macromixing curves generated by this method were used to determine the mixing times as well as to reveal the presence of flow compartmentalization and dead zones. In comparison with a dual impeller system with two Rushton turbines on the same shaft, it is shown that the dual shaft mixing system can eliminate the flow

compartmentalization, break the segregated regions and reduce the mixing time. Experimental results show that the counter-rotating mode of the impellers give smaller mixing times than the co-rotating one. A mixing time correlation was developed and used to characterize the strong interaction between the impellers when operated in counter-rotating mode. Numerical simulation results were used to highlight and explain the difference in global performance between the two rotating modes.

Keywords: dual impeller; compartmentalization; mixing evolution; experimental; simulation; hydrodynamics.

7.2 Introduction

Fluid mixing is known to be central to reactive process operations. However, as shown by ALVAREZ et al. (2005), few data exist regarding the flow and the mixing in multiple impellers stirred-tank reactors operating in the laminar regime. This situation arises because over the last decades biosystems were mainly operated in turbulent flow, with the development of high-value products resulting from recent progresses in biotechnology, the industry has to deal with large scale multiple impellers fermentors to mix shear-sensitive cells suspensions, or highly concentrated and viscous cell broths. That is why new efforts are needed to investigate the operation of multiple impellers mixers in the laminar and transition flow regimes.

The main problems of the current multiple impellers bioreactors in viscous fluids mixing are the presence of segregated regions and the poor axial circulation which result in a flow compartmentalization inside the vessel (HARVEY et al., 1997; ZALC et al., 2001; SZALAI et al., 2004; ALVAREZ et al., 2005). Figure 7-1 illustrates these pathologies during an acid-base discolouration reaction (dark zones represent the unmixed zones). It can be seen on Figure 7-1 that, after many impeller revolutions, unmixed segregated regions are developed around the upper impeller and a flow compartmentalization exist between the two impellers.

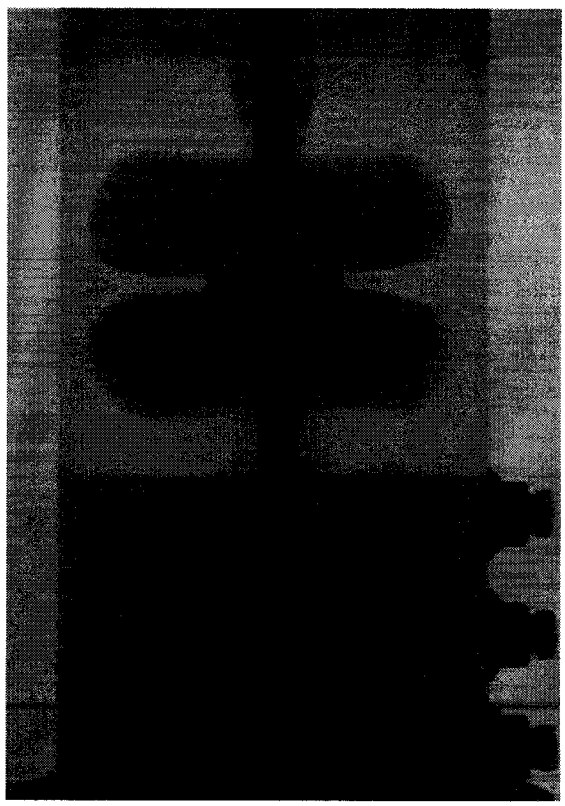


Figure 7-1 : Segregated regions and flow compartmentalization observed with a viscous Newtonian liquid

In laminar flow, the only route to achieve efficient mixing is chaos (ALVAREZ et al., 2002; ALVAREZ-HERNANDEZ et al., 2002). That is why different authors (ALVAREZ, 2000; ALVAREZ et al., 2002; ASCANIO et al., 2002b; ASCANIO et al., 2004; SZALAI et al., 2004; ASCANIO et TANGUY, 2005) introduce hydrodynamic perturbations to allow chaotic mixing to take place. Using variable agitation speeds, SZALAI et al. (2004) showed that convective mixing occurs significantly faster in the axial direction than at constant rates of agitation. ALVAREZ et al. (2002) studied the mixing behaviours in eccentric laminar stirred tanks and reported later (ALVAREZ et al., 2005) that eccentrically agitated multiple impellers bioreactors appear as a good alternative to solve the problems of segregated regions and poor axial circulation in bio-systems operated with viscous fluids.

Along the line of using the break of symmetry to promote mixing, the strategy tested in this paper is to use a dual impeller system with two eccentric shafts to mix viscous Newtonian fluids. A comparable mixing system was presented earlier by ASCANIO et al. (2002b) using a ratio H/T=1 and it was demonstrated that such a system can destroy segregated regions when used with viscous Newtonian liquids and improves the mixing of shear-thinning liquids (ASCANIO and TANGUY, 2005). Here, we emphasize the mixing efficiency of a dual shaft mixing system with a ratio H/T=2 in comparison with the single shaft system (centred or off-centred). Moreover, we compare the two possible rotational modes to better understand the interaction between the impellers.

7.3 Materials and methods

7.3.1 Equipment

Experiments were conducted in a cylindrical stirred tank agitated by two impellers. As shown in Figure 7-2, two different configurations were studied according to the impellers position: the single shaft configuration (SS) where both impellers are located on the same shaft; and the dual shaft configuration (DS) where the two impellers are fitted on two different shafts. Table 7-1 presents geometry details of the two mixing systems.

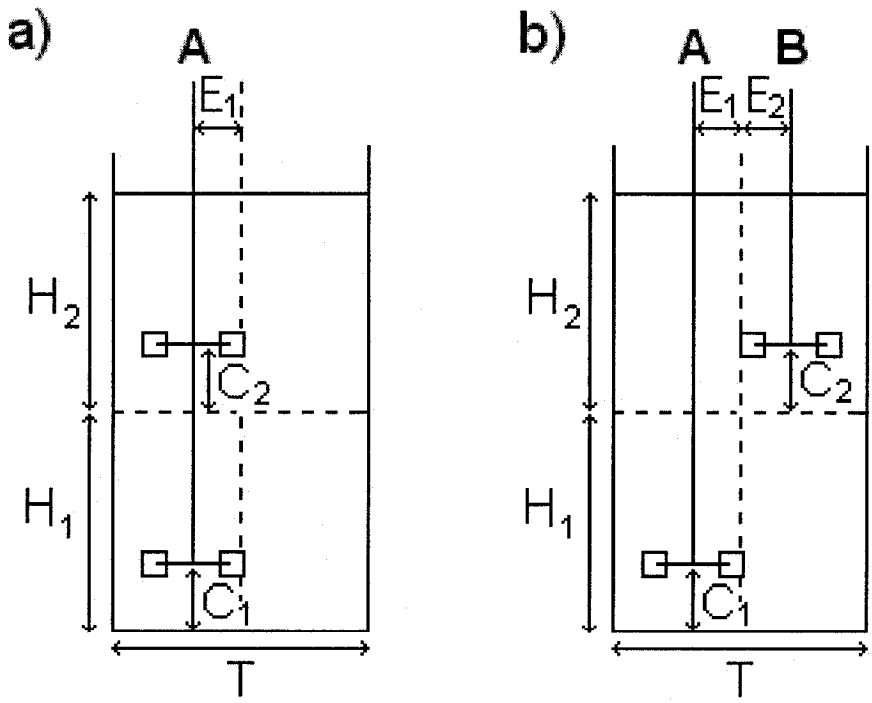


Figure 7-2 : Mixing systems: a) single shaft configuration (SS), b) dual shaft configuration (DS)

Table 7-1 : Vessel and impellers dimensions.

Tank size	T=0,21m $H_1 = H_2 = T$ $V = 14.5 \times 10^{-3}\ m^3$
Impellers	Rushton turbine, $D = 6.53 \times 10^{-2}$ m
Impellers position	SS : $C_1 = C_2 = T/3$ and $E_1 = 0$ or $T/4.4$ DS : $C_1 = C_2 = T/3$ and $E_1 = E_2 = T/4.4$

The vessel is a transparent polycarbonate cylindrical vessel with an open top and a flat bottom. The two impellers are identical and consist of standard six blades Rushton turbines ($D = 6.53 \times 10^{-2}$ m). In the dual shaft configuration, impeller A has a fixed rotation and impeller B can be operated in co or counter-rotating mode with impeller A. The two shafts are independently driven with two identical DC motors (Type 42A5FEPM, 130V, 1,8A, 0.25 HP, Bodine Electric Company) having an efficiency of $\eta = 0.60$.

The experimental setup to perform the mixing quantification method is described in CABARET et al. (2006). The cylindrical mixing vessel was immersed in a rectangular water-filled chamber in order to minimize optical distortions due to the curvature of the tank. The mixing process was filmed with a digital mono CCD camera (Digital Handycam DCR-PC101, Sony) linked to a computer via a 1394 IEEE (FireWire) cable.

Aqueous solutions of corn syrup (Glucose Enzose 62DE, Univar) were chosen as the viscous Newtonian fluids. In the experiments the solutions were settled for 24 h before starting the experiments in order to eliminate air bubbles. Knowing that the viscosity (μ)

of the viscous glucose solutions varies significantly with temperature, preheating of the solutions was achieved by letting the impellers in rotation (using the viscous dissipation effect of the impellers). A constant temperature of 27.2°C was then reached and monitored during the experiments to ensure it remained constant. Newtonian viscosities of the solutions were determined at 27.2°C with a Couette viscometer (Visco 88, Bohlin Instruments). During the experiments, the viscosity of the solutions was measured in the range 1.35 – 8.16 Pa.s, and their density (ρ) was between 1350 kg/m^3 and 1361 kg/ m^3.

A solution of bromocresol purple (0.08% w/w in water) was used as the indicator for the discolouration experiments. This indicator is yellow when pH < 5.2 (acid color) and purple when pH > 6.8 (alkaline color). Approximately 0.0043g of bromocresol purple was added per 1L of the corn syrup solution in order to colour the solution. In the experiments, we followed the colour evolution from the purple (alkaline colour) towards the yellow (acid colour) because it is far easier and more reliable to detect purple unmixed zones in a yellow liquid than the opposite. The acidic dye injected at the beginning of each experiment is composed of 4mL of aqueous HCl at 10 mol/L diluted in 200mL of the glucose solution. For reproducibility purposes, the acidic solution was always rapidly poured at the same distance from the shafts on the free surface. This distance was 5 cm from the shaft in the SS configuration and half way between the two shafts for the DS configuration.

7.3.2 Methods

The impeller power consumption was determined by means of an ammeter and a voltmeter (52-0052-2, Mastercraft) plugged on the DC motors. The impeller power consumption is given by the relation:

$$P = \eta W - \eta_0 W_0 \tag{7-1}$$

where W and W_0 are respectively the motor power consumption with and without load and η and η_0 are the motor efficiencies.

Mixing curves were determined using the mixing evaluation method developed by CABARET et al. (2006) following the same experimental protocol. This method based on image analysis outputs the evolution of the percentage of the yellow pixels (acid color) present in an area of interest during the acid-base discolouration method. In our experiments, the area of interest was the liquid seen by an observer placed in front of the vessel (as presented in Figure 7-1). Each video captured by the digital camera during the acid-base color change was sampled and the resulting images were then analysed individually. For each pixel, the evolution of the green color brightness in the RGB model is followed over time. By defining on each pixel a threshold on the green colour model, a pixel can be considered either mixed or unmixed by comparing its green level of brightness with the threshold. In our experiments we have defined the green threshold with a X separation value of 50% as recommended by CABARET et al. (2006). For each image sampled from the video, we then count the number of mixed pixels $N_{Mixed\ Pixels}$,

and plot the ratio $(M\,\%)\ \frac{N_{Mixed\ Pixels}}{N_{Total\ Pixels}}$ over time to obtain the mixing curve. The resulting curve quantifies the colour change in time from the observer point of view. On the mixing curves, the macromixing time $t_{m90\%}$ is determined when 90% of the pixels have reached the yellow colour (M=90%).

Computational fluid dynamics was used to simulate the dual shaft configuration in order to calculate the three-dimensional flow field. The incompressible Navier-Stokes equation was solved with the help of the finite element method, in conjunction with the following boundary conditions:

- No normal velocity at the fluid surface ($\mathbf{v_z} = 0$);
- No slip condition at the vessel wall ($\mathbf{v} = 0$);
- Constant angular velocity at the impeller surface (N= constant)

The pressure-velocity variables were handled with a coupled approach with help of TFQMR method as a linear solver (FREUND, 1993). This loop was immersed into a Newton scheme to tackle the convective term. Due the eccentricity of the impellers, the use of a Lagrangian frame of reference was not possible. Then, in this work, an Eulerian frame of reference was used resorting to the fictitious domain method to reproduce the unsteady rotation of the impellers (GLOWINSKI et al., 1994; BERTRAND et al., 1997). To take into account the unsteady nature of the flow, a Gear scheme was used (GEAR,

1971). Computations were carried out until periodic solutions were obtained. The CPU time necessary to run a typical simulation was about 70-80 h.

The mesh was constructed using block partitions as it has been suggested in other work (RIVERA et al., 2004). Due to the intrinsic complexity of the geometry, tetrahedral nine nodes elements (eight for velocity + one for pressure) P_1^+-P_0 that approximate the velocity with a super-linear polynomial and consider constant the pressure inside each element were employed. This type of elements ensures a rigorous stability and convergence for complex fluid flow problems (BERTRAND et al., 1997). The final computational mesh required approximately 480 000 elements and 1.5 millions of nodes producing a system of approximately 3.5 millions of equations. All the described numerical features are available in the commercial 3D finite element software POLY3D^{TM} (*Rheosoft, Inc.*) developed in our group. The total memory requirements were approximately 3 Gbytes. All simulations were run on an IBM computer cluster. The meshing was generated on I-DEAS (EDS) software and the visual post-processing was carried out with Ensight (CEI).

7.4 Results and discussion

7.4.1 Comparison between the single shaft and the dual shaft configuration

To test the ability of the single and dual shaft configurations to eliminate the flow compartmentalization in the tank volume, we performed the same mixing experiments

with different shaft configurations. The experiments were performed at Re=13.6 (ρ=1360 kg/m^3, N=8.33 s^{-1} and μ=3.55 Pa.s). Let us note that here the Reynolds number calculation is based on the speed and diameter of one impeller, and not a combination of speed and diameter. Firstly, two experiments were carried out with the single shaft configuration; in one experiment the shaft was centred (E_1=0) and in the other one the shaft was off-centred (E_1=T/4.4). Then, two experiments were repeated with the dual shaft configuration, one in the co-rotating mode and the other in the counter-rotating mode. The mixing curves obtained in the different experiments are presented in Figure 7-3. Video frames taken at different times on the corresponding mixing curves are presented in Figure 7-4.

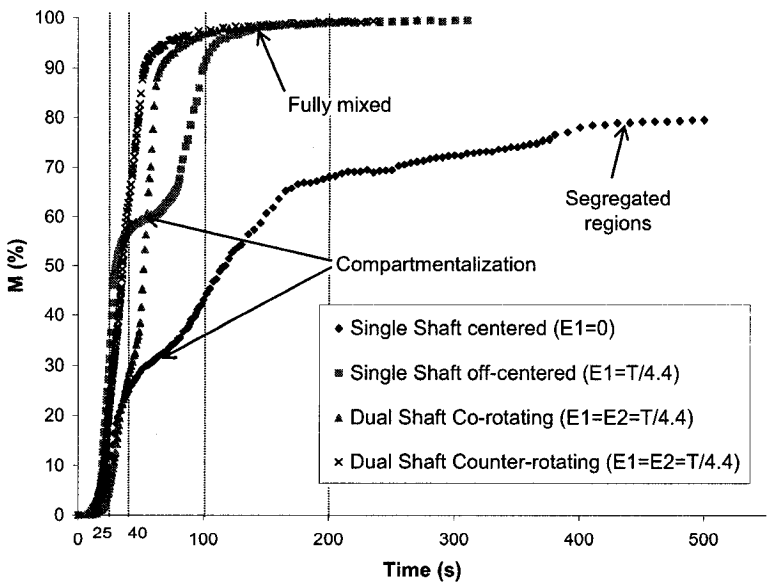


Figure 7-3 : Mixing curve comparison between the single shaft and the dual shaft configurations

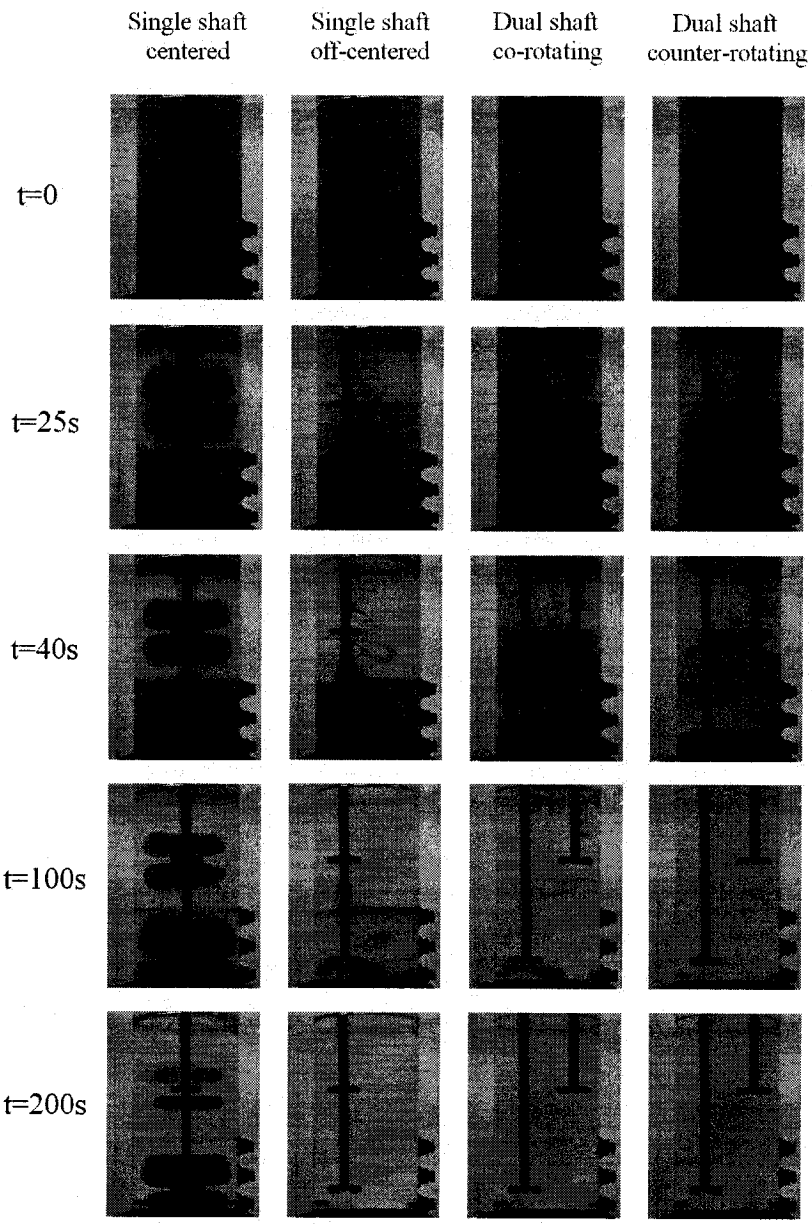


Figure 7-4 : Video frames at different times for the different shaft configurations

The single shaft experiments clearly demonstrate that off-centred impellers are far more effective in terms of mixing efficiency than the same centred impellers. Indeed, in

Figure 7-4 the completely mixed state is reached with the off-centred shaft, which is not the case with the centred one. This result is in accordance with recent studies on open impellers (ALVAREZ, 2000; ALVAREZ et al., 2002; ASCANIO et al., 2002b; HALL et al., 2004) which conclude that, in laminar flow, the dynamic perturbations generated by an eccentric shaft help to break the segregated regions and increase the axial circulation in the tank even if the agitator is of the radial type. Moreover, for the single shaft experiments, both curves exhibit a plateau before the completion of the mixing (see Figure 7-3). These plateaus are a signature of flow compartmentalization, therefore the shaft eccentricity does not prevent the formation of this compartmentalization as it can be seen in Figure 7-4. From this figure also, we see that the major effect of the shaft eccentricity is to break the toroidal segregated regions.

Concerning the dual shaft configuration, we observe smaller mixing times compared to the single shaft configuration with the smallest mixing time obtained for the counter-rotating mode. This result is in accordance with ASCANIO et al. (2002b) work. As seen in Figure 7-3, the dual shaft curves do not exhibit the typical compartmentalization plateau. Thus, a major advantage of the dual shaft configuration compared to the off-centred single shaft configuration it that flow compartmentalization does not occur.

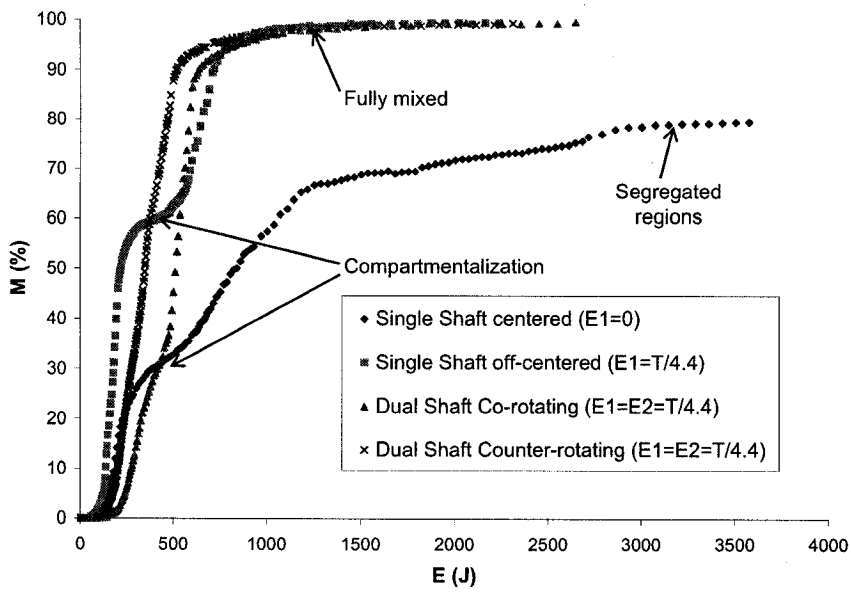


Figure 7-5 : *M* against impellers energy consumption (absorbed mechanical energy)

To compare the single and dual shaft performance in terms of energy, we plotted in Figure 7-5 *M* against the impellers energy consumption. It appears that both the co and the counter-rotating mode of the dual shaft configuration are more efficient than any single shaft configuration.

7.4.2 Dual shaft configuration: comparison between the co-rotating mode and the counter-rotating mode

To compare the co and the counter-rotating modes of the dual shaft configuration, we performed different mixing discolouration experiments using the same rotational speed for both impellers. The Reynolds number was again defined based on one impeller. All the experiments have been carried out at $Re \geq 7.5$ because when $Re < 7.5$ segregated

regions were present under the lower impeller. The dimensionless mixing times ($N.t_{m90\%}$) against Reynolds number obtained for both rotating modes are presented in Figure 7-6.

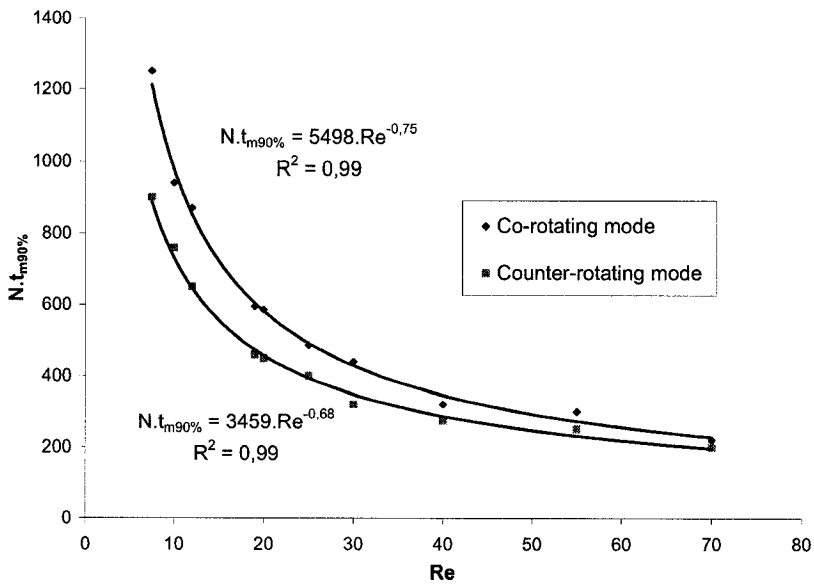


Figure 7-6 : Dimensionless mixing time against Reynolds number in co- and counter-rotating modes

In laminar flow, the counter-rotating mode leads to significantly smaller dimensionless mixing times than the co-rotating mode with the largest differences in the low Re range. Since the number of impeller revolutions required to achieve full mixing in an agitated tank is supposed to be constant in the laminar flow regime with Newtonian fluids (TATTERSON, 1991c), it is expected to have a unique dimensionless mixing time in this regime. The dimensionless mixing time here increases with a decrease in Re. After checking that this effect was not due to a thermal gradient yielding a higher viscosity

near the free surface (injection zone), we concluded that the pumping action of the impeller decreases when the Re decreases. The same results were obtained by RICE et al. (2006) showing that the net pumping capacity of the Rushton turbine decreases when the Reynolds number decreases as well. A breakdown in the impeller pumping capacity has been highlighted by these authors at low Re where there are small values for the inertial forces (creeping flow). In this case the liquid is not radially ejected due to a balance between the pressure and viscous forces.

Concerning the impeller power consumption, the power consumption of one impeller appears to be independent of the rotational speed of the other one. Thus, we conclude that in laminar regime there are no power interactions between the two impellers.

The flow visualisation of the co- and counter-rotating modes presented in Figure 7-4 shows that the mixing proceeds in three steps as presented in Figure 7-7. Initially, the region above the upper impeller B starts to mix (region 1 in Figure 7-7) and only then, the region between the two impellers (interaction zone) is mixed (region 2 in Figure 7-7). Finally, the region under the lower impeller mixes (region 3 in Figure 7-7).

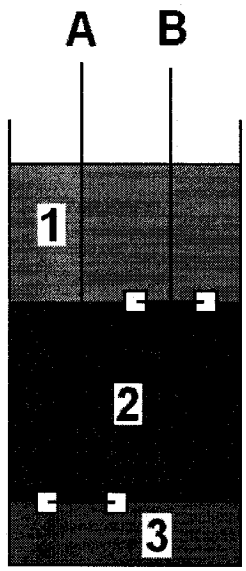


Figure 7-7 : Presentation of the different mixing zones in the dual shaft configuration

With the objective to construct a mixing time correlation, we have first studied the mixing time with only the impeller A and a liquid height of $H=H_1=T$ (single off-centred impeller). Figure 7-8 present the mixing time measurements. We see that the MOO-YOUNG et al. (1972) correlation for the mixing time fits very well our experimental results, namely for one single impeller:

$$N.t_m = \frac{A}{\mathrm{Re}^a} \Rightarrow t_m = \frac{A}{N.\mathrm{Re}^a} \text{ with } A=2676 \text{ and } a=0.73 \qquad \textbf{(7-2)}$$

Additionally, let us note that the value of a obtained with the off-centred impeller is very close to the value of a developed by MOO-YOUNG et al. (1972) for a centred impeller with $\mathrm{Re}\in[5, 10^3]$ (a=0.75).

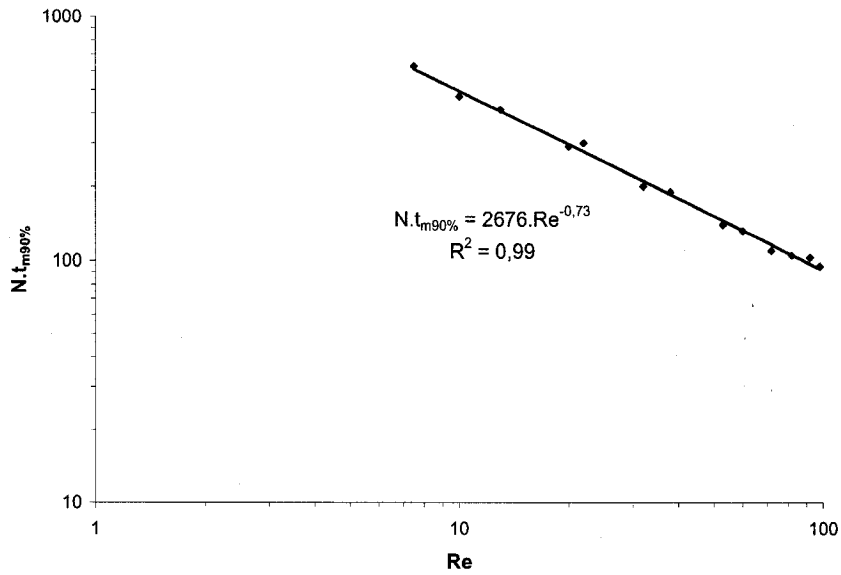


Figure 7-8 : Dimensionless mixing time versus Reynolds number for a single off-centered Rushton turbine

The proposed correlation assumes that the mixing time for the dual shaft configuration is equal to the sum of the mixing time for the upper impeller plus the mixing time for the lower impeller minus a term that represents the interaction between the two impellers. Since the interaction zone (region 2 in Figure 7-7) counts two impellers, the interaction term is defined with N_1+N_2 as the representative rotational speed N. Thus, the Re in the interaction zone becomes Re_1+Re_2 and the interaction time t_i is written:

$$t_i = \frac{B}{(N_1 + N_2).(\mathrm{Re}_1 + \mathrm{Re}_2)^a} \qquad \textbf{(7-3)}$$

The complete expression for the mixing time is therefore:

$$t_m = \frac{A}{N_1.\mathrm{Re}_1^a} + \frac{A}{N_2.\mathrm{Re}_2^a} - \frac{B}{(N_1+N_2).(\mathrm{Re}_1+\mathrm{Re}_2)^a} \qquad \textbf{(7-4)}$$

Expressed in this form, it is easy to see that the B value only scales the interactions between the impellers. This correlation have shown extremely good fitting with the experimental results that were carried out with N_1 and $N_2 \in [1.67, 16.67]$ and with Re_1 and $\mathrm{Re}_2 \in [7.5, 70]$ (let us note that N_1 and N_2 can take different values). The B values and the correlation factors for the two rotating modes are presented in Table 7-2. In Figure 7-9 we have compared the correlation with experimental results given in Figure 7-6 for $N_1=N_2=N$.

Table 7-2 : Comparison of the interaction parameter

	B	R^2
Co-rotating mode	94	0.98
Counter-rotating mode	4544	0.98

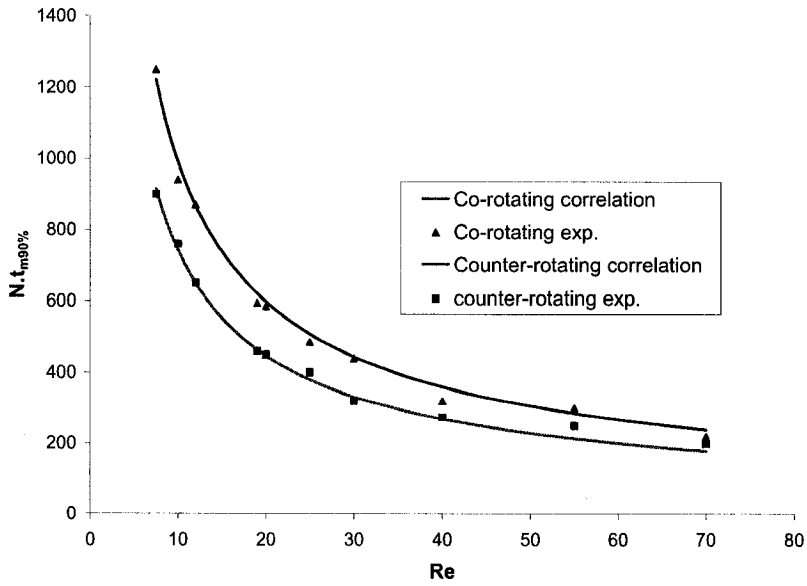


Figure 7-9 : Comparison between correlation and experimental results for the two rotating modes

In order to explain why the counter-rotating mode leads to smaller dimensionless mixing time than the co-rotating mode, simulations at Re=2, 10.1 and 50.7 in co- and counter-rotating modes were carried out. For validation purposes the numerical and experimental power consumptions were compared. The model showed an over-prediction of about 10% which indicates a very good accuracy for such a complex flow field. In Figure 7-10(a) it can be observed that the velocity in the XZ plane presents similar structure for both co- and counter-rotating modes with four asymmetric rings above and below each impeller. Nevertheless, there is a significant difference in the flow in the XY plane as is depicted in Figure 7-10(b) caused by the fact that Rushton turbine mainly produces a flow in the radial direction. The shaft of impeller A (on the left) plays an important role in this situation. When both turbines are in co-rotating mode there is an abrupt change in

the velocity close to the shaft of impeller A. This situation is not present when the impellers are in counter-rotating mode where a good collaboration between impellers A and B is observed.

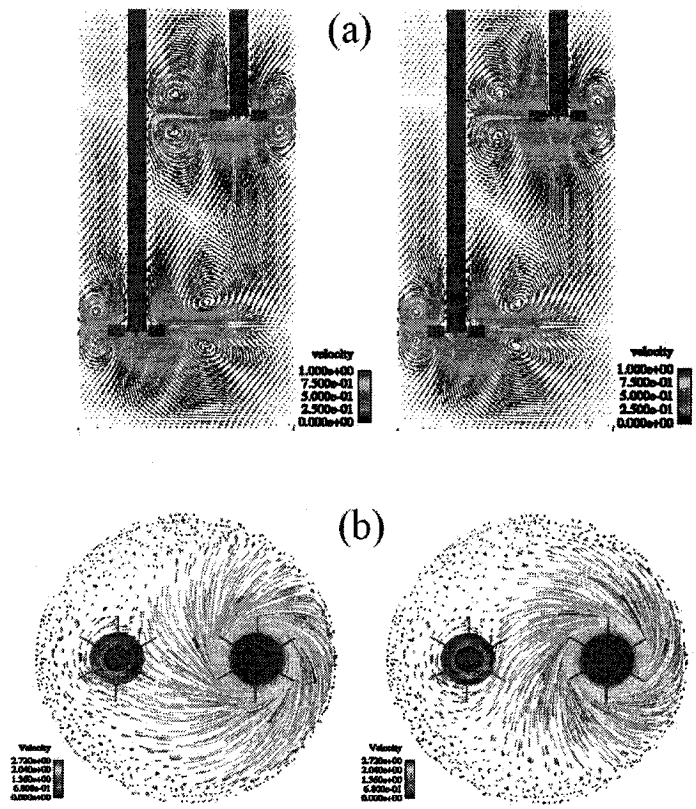


Figure 7-10 : Velocity profiles for the dual shaft configuration at Re=50.7. a) XZ plane b) XY plane at C_2=T/3 (left: co-rotating, right: counter-rotating). Impeller A (on left) is added for reference only

To assess the performance of the investigated scenarios, tracers were dispersed using an element-by-element tracking of massless particles (HENICHE et TANGUY, 2006). The tracers were injected at the top of the tank below the fluid surface. Figure 7-11 presents

the evolution of the volume occupied by the tracers. It is pretty clear that the counter-rotating mode gave a better performance either working with at Re=2, 10.1 or 50.7. Moreover, for a given impeller revolution, the mixed volume increases with the Reynolds number. This result is in accordance with the results from RICE et al. (2006) where it is shown that the pumping capacity of the impellers increases with Re in laminar flow.

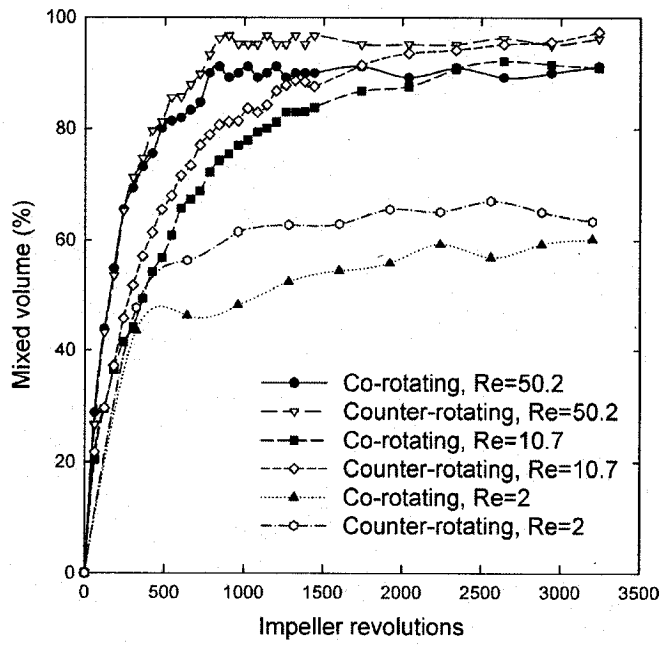


Figure 7-11 : Evolution of tracer dispersion for the dual shaft configuration

With the objective of clarifying the mixing time difference between the co and counter-rotating operations, the pressure patterns at the level of impeller B have been plotted in Figure 7-12. While the co-rotating mode shows a segregated pattern characterized by a pressure barrier between turbine B and shaft A, the counter-rotating mode presents an

extended low pressure zone that amplifies the effect of impeller B. Thus, when the tracers are dispersed in counter-rotating mode, the area of dispersion is enlarged, which helps agitator A to promote a better mixing at the bottom of the vessel than the one produced when the impellers are co-rotating. The pressure barrier seen in co-rotating mode also explains the presence of a small compartmentalized zone seen in the co-rotating mode (see Figure 7-3).

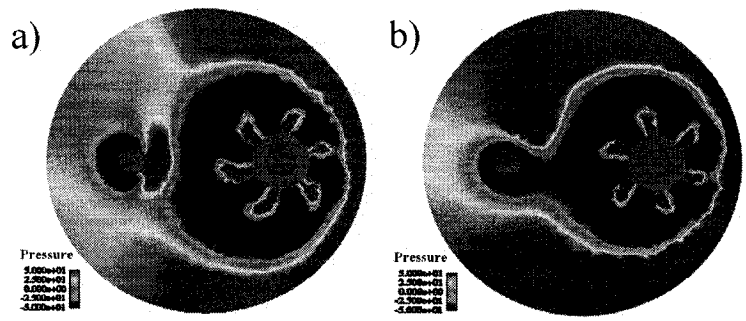


Figure 7-12 : Pressure profiles for the dual shaft configuration at Re=50.7 in the XY plane at C_2=T/3: a) co-rotating, b) counter-rotating

7.5 Summary and conclusions

In this work, we put in evidence the very interesting mixing features of the dual shaft mixer. Experimental and numerical results showed that, based on mixing evolution and flow compartmentalization, the dual shaft mixer with two Rushton turbines is much more efficient than the off-centred single shaft mixer. Moreover, the experimental results indicated that the dual shaft mixer will save energy compared to the single shaft mixer. Experimental results show that the counter-rotating mode of the impellers in the

dual shaft configuration give smaller mixing times than the co-rotating one. With the numerical results, it was demonstrated that the pressure pattern generated by two Rushton turbines in co-rotating mode prevents the collaboration between the two impellers and explains why the counter-rotating mode is more efficient.

7.6 Acknowledgment

The support of NSERC and the members of the Consortium 'Innovative non-Newtonian Mixing Technologies' is gratefully acknowledged.

7.7 Nomenclature

a	Moo-Young model parameter, dimensionless
A	Moo-Young model parameter for single impeller system, dimensionless
B	Moo-Young model interaction parameter, dimensionless
C	Bottom clearance, m
D	Impeller diameter, m
E	Eccentricity, m
H	Liquid height, m
M	Percentage of mixed pixel from the observer point of view, %
N	Impeller rotational speed, s^{-1}
P	Impeller power consumption, W
Re	Reynolds number ($Re=\rho ND^2/\mu$), dimensionless

T Tank diameter, m

t Time, s

t_i Interaction time, s

t_m Mixing time, s

V Tank volume, m^3

W Motor power consumption, W

X Separation value, %

Greek letters

η Motor efficiency, dimensionless

μ Viscosity, Pa.s

ρ Liquid density, kg/m^3

Subscripts

1 Refer to impeller A

2 Refer to impeller B

7.8 References

ALVAREZ-HERNANDEZ, M.M., SHINBROT, T., ZALC, J., MUZZIO, F.J. 2002. "Practical chaotic mixing". *Chemical Engineering Science.* 57:3749-3753.

ALVAREZ, M.M., ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2002. "Laminar mixing in eccentric stirred tank systems". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:546-557.

ALVAREZ, M.M., GUZMÁN, A., ELÍAS, M. 2005. "Experimental visualization of mixing pathologies in laminar stirred tank bioreactors". *Chemical Engineering Science.* 60:2449-2457.

ALVAREZ, M.M., ZALC, J.M., SHINBROT, T., ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2002 . "Mechanisms of mixing and creation of structure in laminar stirred tanks". *AIChE Journal.* 48:2135-2148.

ALVAREZ, M.M. 2000. *Using spatio-temporal asymmetry to enhance mixing in chaotic flows: from maps to stirred tanks.* 230 p. PhD thesis, The State University of New-Jersey, U.S.A. - Department of Chemical and Biochemical Engineering.

ASCANIO, G., FOUCAULT, S., TANGUY, P.A. 2004. "Time-periodic mixing of shear-thinning fluids". *Chemical Engineering Research and Design.* 82:9. 1199-1203.

ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2005. "Mixing of shear-thinning fluids with dual off-centred impellers". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 83:3. 393-400.

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002. "Unconventional configuration studies to improve mixing times in stirred tanks". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:558-565.

BERTRAND, F., TANGUY, P.A., THIBAULT, F. 1997. "A three-dimensional fictitious domain method for incompressible fluid flow problems". *International Journal for Numerical Methods in Fluids.* 25:719-736.

CABARET, F., FRADETTE, L., TANGUY, P.A. 2006. "Characterization of mixing kinetics using advanced image analysis". *Proceedings of the 12th European Conference on Mixing.*

FREUND, R.W. 1993. "A transpose-free quasi-minimum residual algorithm for non-Hermitian linear systems". *SIAM Journal of Scientific Computing.* 14:470-482.

GEAR, C.W. 1971. *Numerical initial value problems in ordinary differential equations.* Englewood Cliffs, U.S.A. Prentice-Hall.

GLOWINSKI, R., PAN, T.W., PERIAUX, J. 1994. "A fictitious domain method for Dirichlet problem and applications". *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering.* 111:283-303.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2004. "Mixing in unbaffled high-throughput experimentation reactors". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 43:4149-4158.

HARVEY, A.D., WOOD, S.P., LENG, D.E. 1997. "Experimental and computational study of multiple impellers flows". *Chemical Engineering Science.* 52:1479-1491.

HENICHE, M., TANGUY, P.A. 2006. "A new element-by-element method for trajectory calculations with tetrahedral finite element meshes". *International Journal for Numerical Methods in Engineering.* 67:9. 1290-1317.

MOO-YOUNG, M., TICHAR, K., DULLIEN, F.A.L. 1972. "The blending efficiencies of some impellers in batch mixing". *AIChE Journal.* 18:1. 178-182.

RICE, M., HALL, J., PAPADAKIS, G., YIANNESKIS, M. 2006. "Investigation of laminar flow in a stirred vessel at low Reynolds numbers". *Chemical Engineering Science.* 61:2762-2770.

RIVERA, C., HENICHE, M., ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2004. "A virtual finite element model for centered and eccentric mixer configurations". *Computers and Chemical Engineering.* 28:2459-2468.

SZALAI, E.S., ARRATIA, P., JOHNSON, K., MUZZIO, F.J. 2004. "Mixing analysis in a tank stirred with Ekato Intermig impellers". *Chemical Engineering Science.* 59:3793-3805.

TATTERSON, G. B. 1991. "Laminar mixing". *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* Sous la direction de G.B. Tatterson. New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc.

ZALC, J.M., ALVAREZ, M.M., MUZZIO, F.J., ARIK, B.E. 2001. "Extensive validation of computed laminar flow in a stirred tank with three Rushton turbines". *AIChE Journal.* 47:2144-2154.

CHAPITRE 8: ARTICLE 4 : GAS-LIQUID MASS TRANSFER IN UNBAFFLED DUAL-IMPELLER MIXERS

Présentation de l'article :

Cet article, publié dans la revue *Chemical Engineering Science*, présente les performances de transfert de matière gaz-liquide de différentes configurations de mélangeur dual composées de deux turbines Rushton identiques dans une cuve non chicanée. Les configurations étudiées diffèrent par l'utilisation d'un ou deux arbres de rotation lesquels étant placés en position centrée ou excentrée. Différents liquides ont été utilisés afin de tester les effets de la viscosité newtonienne et du caractère non newtonien rhéofluidifiant sur le transfert de matière. Deux sondes à oxygène dissous ont été employées pour évaluer le transfert de matière gaz-liquide à deux différents niveaux dans la cuve. Des corrélations de $k_l a$ et un critère d'homogénéisation axial ont ainsi été établis pour toutes les configurations proposées et les liquides utilisés. Les performances des différents réacteurs ont été comparées à ceux de la configuration « standard » composée d'un arbre de rotation centré dans une cuve chicanée.

Lorsque des liquides newtoniens de faible à haute viscosité sont employés, l'excentrage de l'arbre de rotation réduit la présence de vortex ce qui favorise la dispersion gaz-liquide dans une cuve non chicanée. Parmi les configurations à arbre excentré proposées,

il apparaît que le système à deux arbres de rotation excentrés opérant en mode contre-rotatif est la meilleure configuration pour éviter totalement la formation d'un vortex. De plus, cette configuration apparaît très flexible pour contrôler l'homogénéisation du transfert de matière dans la cuve.

Contrairement à ce qui a été obtenu avec les liquides newtoniens, l'excentrage de l'arbre de rotation doit être évité pour disperser un gaz dans un liquide non newtonien rhéofluidifiant. En effet, il apparaît que les configurations utilisant un arbre de rotation centré donne de bien meilleurs transferts de matière.

Auteurs : François Cabaret, Louis Fradette, Philippe A. Tanguy

URPEI, Department of Chemical Engineering, Ecole Polytechnique, P.O. Box 6079 Station Centre-Ville, Montreal, QC, H3C 3A7, Canada

8.1 Abstract

The gas-liquid mass transfer performance of different unbaffled dual-impeller mixers was investigated experimentally using low and high viscosity Newtonian and non-Newtonian liquids. The tested configurations were composed of two Rushton turbines located at two different height levels in the vessel in centered or off-centered positions. The various mixers were compared based on their respective mass transfer performance measured by means of two dissolved oxygen probes located at different levels in the

vessel. k_La correlations and an axial homogeneity criterion were established for the different configurations and liquids used. It was concluded that the dual shaft mixer consisting of two off-centered shafts appears to be a very interesting and flexible configuration to deal with Newtonian liquids in a large range of viscosities. However, concerning the gas-liquid dispersion in non-Newtonian liquids, it is shown that off-centered shaft configurations have to be avoided.

KEYWORDS:

Multiphase reactors, Mixing, Dispersion, Absorption, Unbaffled, Shaft off-centering.

8.2 Introduction

Stirred tank reactors under gassed conditions are often used with single impeller or multiple impellers stacked on a common shaft to intensify the contact between gas and liquid. These reactors have numerous industrial applications such as chemical synthesis, aerobic fermentation and waste water treatment. Compared to single-impeller reactors, the multiple-impeller configurations exhibit numerous advantages such as a better distribution of energy dissipation, improved liquid circulation in the vessel, a better gas distribution and longer gas residence time in the vessel, yielding a higher efficiency of gas utilisation.

When low-viscosity liquids are handled, baffled vessels with relatively small-sized turbine impellers generating a high shearing action are generally adopted. This

"standard" configuration can be used with radial turbine impellers along the shaft only or, to improve the axial homogenisation, a combination of radial and axial type impellers can be considered. In this case, a radial turbine impeller is often located at the bottom end of the shaft for gas dispersion and axial type impellers are placed along the shaft for homogenisation. To improve furthermore the flexibility of multiple-impeller reactors, SOLOMONS and LEGRYS (1981) proposed to use a baffled dual shaft system. In this reactor, a shaft was introduced at the bottom of the vessel to rotate a radial turbine impeller and another shaft was introduced at the top of the tank to drive an axial impeller. It has been shown that the flexibility of this reactor, resulting from the fact that the two impellers can rotate at different speeds, helps to mix slightly viscous and non-Newtonian liquids (ANDERSON et al., 1982; JOHN et al., 1995; JOHN et al., 1997; JOHN et al., 1998). However, the major drawback of this configuration is the use of baffles. Usually, baffles must be avoided with viscous and/or non-Newtonian fluids due to an insufficient mixing behind them often resulting in intensive cleaning requirements. For gas-liquid contacting operations dealing with liquids of high viscosity and often exhibiting non-Newtonian rheology, unbaffled vessels with relatively large-sized impellers of low shearing action, such as helical ribbon or Maxblend impellers can be used. However, problems encountered in these viscous reactors are multiple and include (YOSHIDA et al., 2001):

- the presence of large gas-filled cavities behind the impeller blades,
- the need to use a small gas sparging rate to avoid flooding of the impeller.
- and the insufficient generation of small bubbles due to the low shearing action of the

impeller.

All these problems lead to poor mass transfer between the two phases although a good spatial distribution is reached in the tank.

In some industrial applications such as fermentation processes, media evolves during the process from low-viscosity Newtonian fluids into a rheologically-complex viscous and non-Newtonian media. This leads to a major problem because low-viscosity multiple impeller gas-liquid reactors operate efficiently at the beginning of the process but their performance decreases drastically when the fluid rheology evolves. Thus, the need to develop new gas-liquid reactors able to deal with a large range of liquid viscosities becomes evident. Some solutions have already been proposed by different authors to circumvent this problem. TANGUY et al. (1997) and ESPINOSA-SOLARES et al. (1997, 2001, 2002) designed a coaxial mixer composed of a Rushton turbine and a close-clearance helical ribbon impeller for biotechnology applications. The authors justified their choice based on the well-documented capabilities of the Rushton turbine for gas dispersion and of the helical ribbon impeller for bulk homogenization. Another solution was proposed by YOSHIDA et al. (2001) which consists in using an unbaffled multiple-impeller agitated vessel having alternating forward-reverse rotating impellers. These authors have shown that the change of the rotating mode (forward-reverse) leads to an even gas dispersion without creating the typical bulk flow generated with a centered shaft used without baffles. Although both of the proposed reactors have shown good mixing characteristics, their main drawback arises from the construction and

maintenance costs associated with co-axial shafts or alternating forward-reverse operating mode.

Literature review shows that shaft eccentricity appears to be a good solution to prevent the use of baffles both in turbulent and laminar flow. In single phase turbulent mixing, different authors have shown that shaft eccentricity is equivalent to baffling (JOOSTEN et al., 1977; NISHIKAWA et al., 1979; NOVAK et al., 1982; KING et MUSKETT, 1985; HALL et al., 2004; HALL et al., 2005a; KARCZ et SZOPLIK, 2004; KARCZ et al., 2005; MONTANTE et al., 2006). NISHIKAWA et al. (1979), KARCZ and SZOPLIK (2004) and KARCZ et al. (2005) have shown that for axial and radial type impellers the mixing time decreases with the increase of the shaft eccentricity. Many studies also report an increase in the impeller power consumption with the shaft eccentricity when both axial and radial impellers are used (NISHIKAWA et al., 1979; NOVAK et al., 1982; KARCZ et al., 2005). It was even concluded by HALL et al. (2005a) that eccentrically agitated vessels provide slightly lower mixing times than baffled configurations at the same scale at equal power consumption per unit volume. Concerning the turbulent gas-liquid mixing, HALL et al. (2005b,c) have shown that an off-centered impeller produces smaller bubbles than these reported in previous studies conducted at a much larger scale in fully baffled vessels. Therefore, shaft off-centering appears also an interesting solution in gas-liquid mixing.

Moreover, in single phase laminar mixing recent studies on open impellers without baffles conclude that, in the laminar regime, the dynamic perturbations generated by using an eccentric shaft help to break the segregated regions, and increase the axial

circulation in a tank even if the agitator is of the radial type (ALVAREZ, 2000; ALVAREZ et al., 2002; ASCANIO et al., 2002a,b; HALL et al., 2005b; SANCHEZ CERVANTES et al., 2006; CABARET et al., 2007). For dual-impeller systems operating in laminar flow without baffles CABARET et al. (2007) has shown that the dual shaft mixer with two off-centered shafts (see Figure 8-1(d)) operating in counter-rotating mode appears a good alternative to prevent the flow compartmentalization and reduce the mixing time.

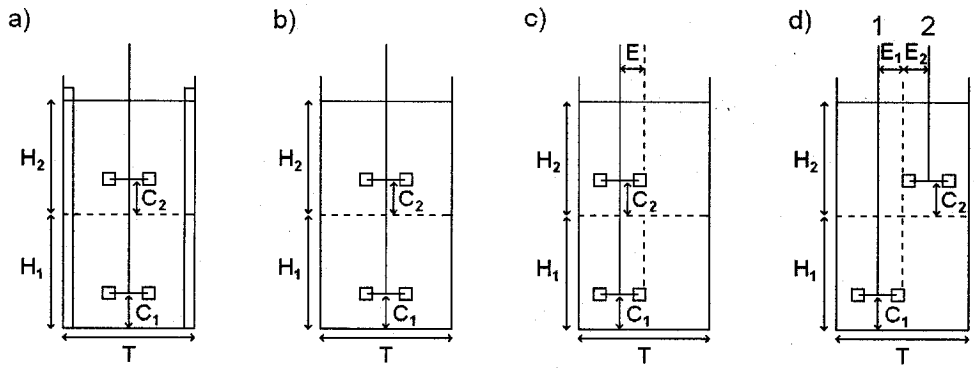


Figure 8-1 : Dual impeller mixing systems: (a) single shaft centered with baffles, (b) single shaft centered without baffles, (c) single shaft off-centered, (d) dual shaft

Since gas absorption is often a rate-limiting step in processes involving low solubility gases, the volumetric mass transfer coefficient is a crucial design parameter in gas-liquid reactors. Thus, we will focus our attention on this parameter. As unbaffled gas-liquid stirred vessels have received little attention by researchers so far and as no data exist in gas-liquid mass transfer with off-centered shaft(s), the objective of this paper is to test the ability of off-centered shaft(s) mixers to generate effective gas-liquid mass transfer

when handling low and high viscosity Newtonian and non-Newtonian liquids. Three differents unbaffled configurations of gas-liquid reactor are proposed and their performances are compared to the "standard" dual-impeller configuration with a centered shaft and baffles.

8.3 Materials and methods

8.3.1 Apparatus

Experiments were conducted in a cylindrical stirred tank equipped with two impellers. As shown in Figure 8-1, four different configurations were studied. In Figure 8-1, configurations (a), (b) and (c) are single shaft configurations where both impellers are located on the same shaft; and configuration (d) is a dual shaft configuration where the two impellers are mounted on two different shafts. Only configuration (a) has baffles. Table 8-1 presents the geometrical details of the four mixing systems.

Table 8-1 : Experimental set-up dimensions.

Tank size	T=0,21m $H_1 = H_2 = T$ $V = 14.5 \times 10^{-3}\ m^3$
Baffles	4 baffles, w=T/11
Sparger	d=0.75 D
Impellers	Rushton turbine, $D = 6.53 \times 10^{-2}$ m
Impellers position	$C_1 = C_2 = T/3$ $E = E_1 = E_2 = T/4.4$

The vessel is a transparent polycarbonate cylindrical vessel with an open top and a flat bottom. The two impellers are identical and consist of standard six blades Rushton turbines ($D=6.53\times10^{-2}$ m). In the configuration consisting of a single shaft centered with baffles (see Figure 8-1(a)), 4 baffles having a width w=T/11 were installed on the wall surface. In the dual shaft configuration (see Figure 8-1(d)), impeller 1 has a fixed rotation and impeller 2 can be operated in co- or counter-rotating mode with impeller 1. The two shafts are independently driven with two identical DC motors (Type 42A5FEPM, 130V, 1.8A, 0.25 HP, Bodine Electric Company).

Gas was fed into the system using a ring sparger with a diameter d=0.75D (as recommended in MIDDLETON AND SMITH, 2004) and a cross-section of 9.5 mm. This device was located 35 mm from the bottom of the tank and always immediately under the lower impeller. Air was supplied through 8 orifices facing up, each with a 0.2 mm diameter. Air flow rate was measured with an accuracy of ± 0.05 L/min using a mass flow meter (Aalborg, Model GFM371) with a flow range of 0 to 50 L/min.

8.3.2 Fluids and rheology

Water and aqueous solutions of glucose (Glucose Enzose 62DE, Univar) were chosen as the Newtonian fluids and aqueous solutions of Sodium Carboxymethyl Cellulose (CMC solution) (Cekol, Noviant) which showed shear-thinning behaviour were used as the non-Newtonian liquids.

Glucose and CMC solutions rheology were characterized with a Couette rheometer

(AR2000, TA Instruments) at room temperature (21°C). For the CMC solution, the apparent viscosity is described by the power law model:

$$\mu_a = m.\dot{\gamma}^{n-1} \quad \textbf{(8-1)}$$

Physical properties of the Newtonian and non-Newtonian liquids are listed respectively in Table 8-2 and Table 8-3.

Table 8-2 : Physical properties of Newtonian liquids at 21°C.

Solution	Viscosity (mPa.s)	Density (kg/m^3)
Water	0.954	998
Glucose solutions	15.0	1177
	49.0	1204
	102.0	1245

Table 8-3 : Physical properties of non-Newtonian liquids at 21°C (for $\dot{\gamma} \in$[50-300s^{-1}]) .

CMC Solution	m (Pa.s^n)	n	Density (kg/m^3)
0.1 wt %	0.071	0.68	998
0.5 wt %	0.860	0.54	1002
1.0 wt %	4.318	0.44	1007

The shear rate in an agitated medium was related to impeller speed by METZNER and OTTO (1957). In this study the common value obtained by METZNER and OTTO (1957) for 6 blades Rushton turbine was used:

$$\dot{\gamma}_{av} = K_S.N = 11.5N \quad \textbf{(8-2)}$$

In this study all the experiments were carried out at room temperature (21°C) and agitation speed was used in the range 5-25 s^{-1} (300-1500 RPM) which corresponds to $\dot{\gamma}_{av} \in$ 57.5-287.5 s^{-1}.

8.3.3 Gas-liquid mass transfer

The experimental setup used to determine the volumetric gas-liquid mass transfer coefficient (k_la) by the standard dynamic gassing out method is described in Figure 8-2. At the beginning of an experiment, oxygen presents in the liquid was stripped out using nitrogen until $C_{O2} \approx 0.5$ mg/L. When the liquid was completely free of gas bubbles, agitation was started and then air was sparged. The time-dependent oxygen concentration was followed after the air injection using two high precision Dissolved Oxygen (DO) probes (YSI, Model 58) and a LabVIEW software (National Instruments) was used for data acquisition. Due to the strong dependence of the oxygen concentration at the equilibrium (C_{O2}^*) with respect to temperature, thermometers were used to correct C_{O2}^* at the beginning of each experiment.

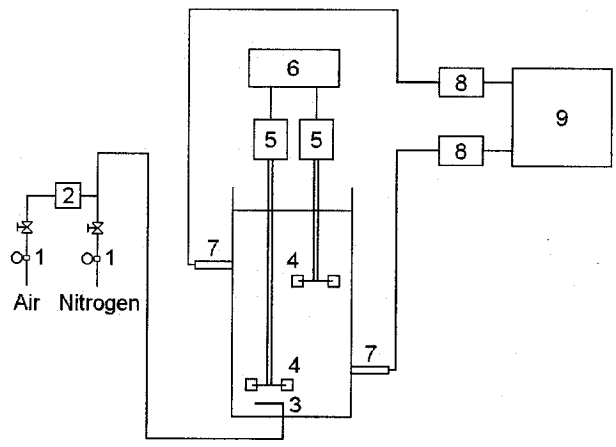


Figure 8-2 : Gas-liquid mass transfer experimental setup

The positions of the two DO probes are presented in Figure 8-2. Each DO probe is located 2 cm above the impeller level in order to follow the axial homogenisation in the vessel. In the two halves of the vessel (top and bottom parts) we assume an ideal mixing of the two phases, thus the oxygen balance in each part gives:

$$\frac{dC_{O_2}}{dt} = k_l a\left(C^*_{O_2} - C_{O_2}\right) \tag{8-3}$$

Upon integration of equation (8-3), one obtains:

$$\ln\left(C^*_{O_2} - C_{O_2}\right) = -k_l a.t \tag{8-4}$$

Thus, $k_l a$ can be evaluated from the slope of $\ln(C_{O2}^* - C_{O2})$ vs. time plot for each run. The mean value of $k_l a$ in the tank is simply evaluated by:

$$k_l a_{mean} = \frac{k_l a_{Top} + k_l a_{Bottom}}{2} \tag{8-5}$$

8.4 Results and discussion

8.4.1 Water

Several relationships correlating the Froude number (Fr), the Flow number (Fl) and dispersion regimes for a single RT in water in tanks with straight baffles have been reported in literature. NIENOW et al. (1977) defined the maximum gas-holding for full recirculation as equation (8-6). WARMOESKERKEN et al. (1981) reported that the minimum Fr for gas dispersion is given by equation (8-7). And, NIENOW et al. (1985) proposed equation (8-8) to determine the maximum gas flow rate before flooding the impeller.

$$Fl = 13Fr^2\left(\frac{D}{T}\right)^5 \quad \textbf{(8-6)}$$

$$Fr = 0.045 \quad \textbf{(8-7)}$$

$$Fl = 30Fr\left(\frac{D}{T}\right)^{3.5} \quad \textbf{(8-8)}$$

The mass transfer experiments performed on each configuration with water are presented on the flow map shown in Figure 8-3 (see black dot). Agitation speed was used in the range 5-16.7 s^{-1} (300-1000 RPM), which corresponds to Fr ∈ [0.17; 1.85]. Gas flow rate was used in the range 1.55-40.4 L/min, which corresponds to 0.11-2.78 vvm. Flow numbers are in the range [0.011; 0.217]. As presented in Figure 8-3, all the 31 experiments are in the loaded regime.

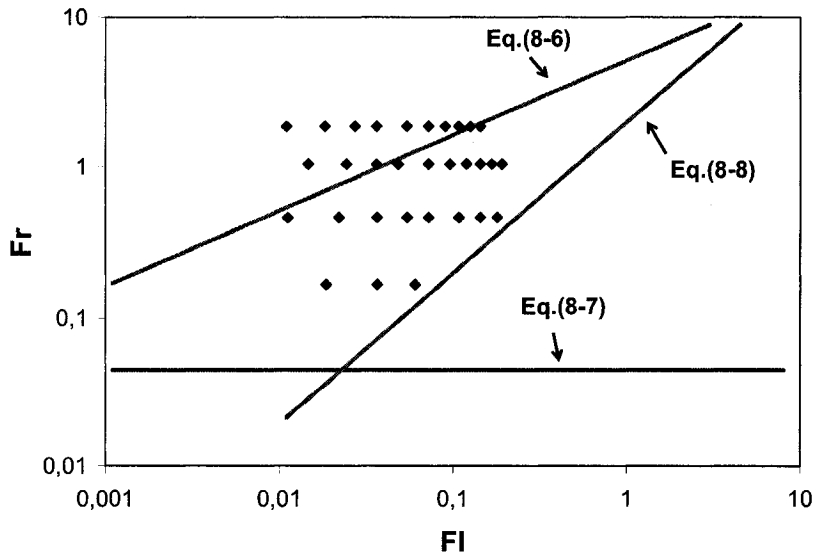


Figure 8-3 : Presentation of mass transfer experiments on the flow map (D/T=0.31)

Using water as the liquid, it is presented in Figure 8-4 a comparison of the four mixing configurations. This figure represents k_la_{mean} in the tank against gas flow rate at Fr=1.04 (which corresponds to an impeller speed of 12.5 s^{-1}).

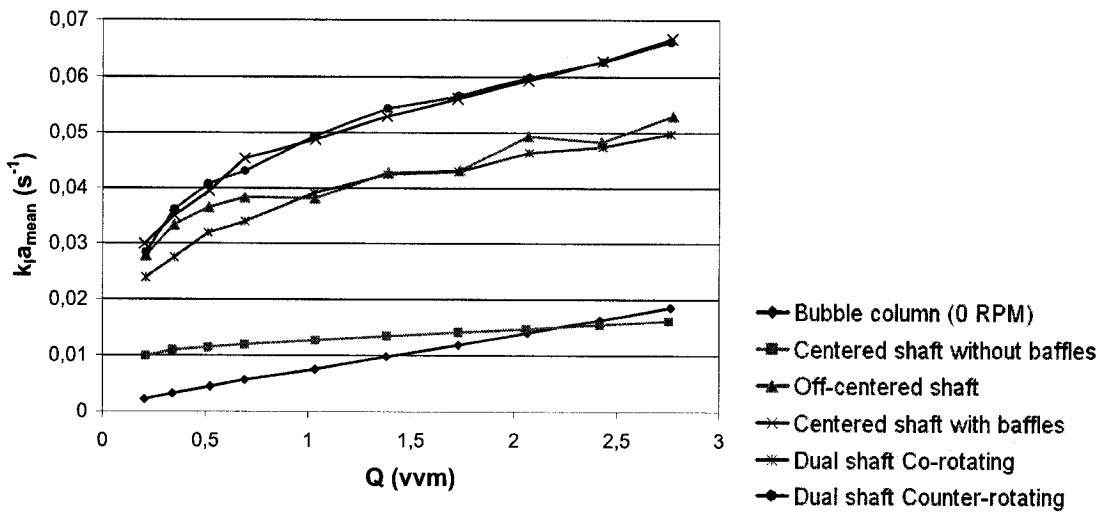


Figure 8-4 : Mass transfer coefficient in water against gas flow rate for the different configurations: (N=750 RPM, Fr=1.04)

It can be seen in Figure 8-4 that the dual shaft configuration operating in counter-rotating mode appears to be as effective as the single shaft configuration with baffles. Concerning the dual shaft configuration operating in co-rotating mode, its efficacy is lower than the counter-rotating one due to the formation of a bulk flow generating a vortex between the two impellers as presented in Figure 8-5 and Figure 8-6. Moreover, it can be seen that the off-centered shaft configuration yields comparable k_la_{mean} with the dual shaft configuration used in co-rotating mode. Even if an off-centered shaft was employed as a means of breaking solid body rotation within the vessel some bulk flow

remains as it was noticed by HALL et al. (2005a) in single phase mixing. Thus, the lower performance of the off-centered shaft configuration is also explained by a vortex formation between the two impellers as presented in Figure 8-7.

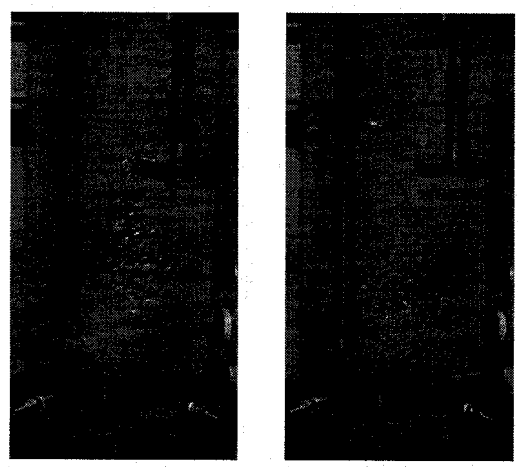


Figure 8-5 : Dual shaft configuration operating in Co-rotating mode (on the left) and Counter-rotating mode (on the right) (Fr=0.17 (N=5 s^{-1}) and Fl=0.018 (Q=0.11 vvm))

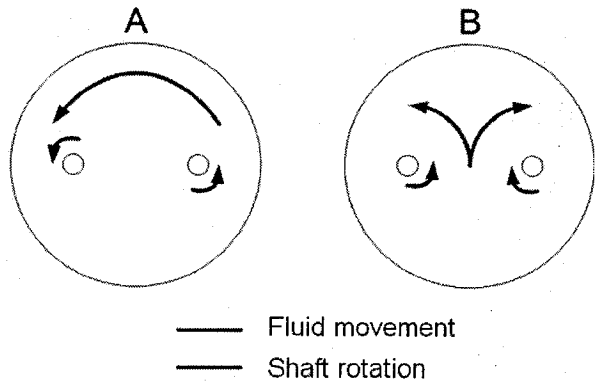


Figure 8-6 : Comparison of the flow patterns in the dual shaft configurations: A: co-rotating, B: counter-rotating

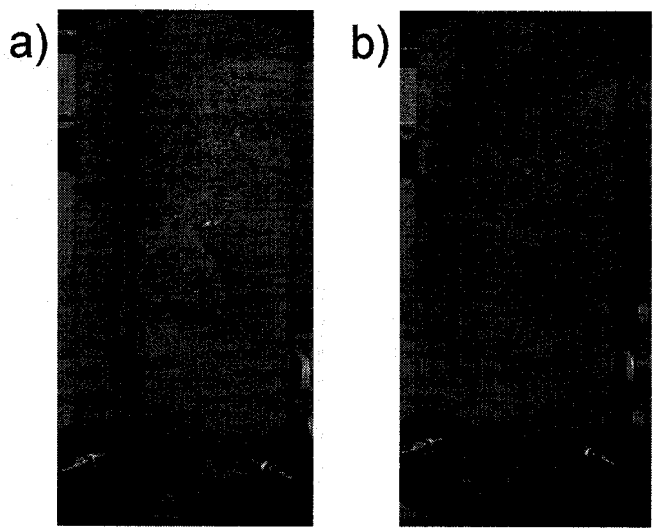


Figure 8-7 : Vortex formation observed in the off-centered shaft configuration: (a) Fr=0.46 (N=8.33 s^{-1}) and Fl=0.011 (Q=0.11 vvm), (b) Fr=1.04 (N=12.5 s^{-1}) and Fl=0.015 (Q=0.21 vvm)

Concerning the centered shaft configuration without baffles, a huge surface vortex is generated at the central part of the liquid surface. The free surface is isobaric, and many other isobaric surfaces exist parallel to the free surface. Gas bubbles injected at the tank bottom are subjected to buoyancy perpendicular to these isobaric faces and gather around the agitator axis as seen in Figure 8-8. Therefore the contacting efficiency of gas and liquid is very poor with an unbaffled centered shaft. Moreover, under certain conditions of impellers speed and gas flow rate, k_la can be lower in unbaffled agitated tanks with a centered shaft compared to unagitated ones (bubble column). Some experiments presented in Figure 8-9 have been carried out to determine these conditions, which are summarized in Table 8-4. Firstly, it appears on Figure 8-9a that when Re and the gas flowrate are high the impeller is flooded and thus it is better to do not mix (see the intersection between the bubble column curve and the others curves). The expression

of Fl_c given in Table 8-4 gives the separation between the loaded and flooding regimes. Moreover, it can be seen on Figure 8-9b that when Re<14800 the curves for the agitated case do not intersect the bubble column curve. This indicates that at low Re (below 14800) the vortex formation is small and some gas bubbles can be dispersed.

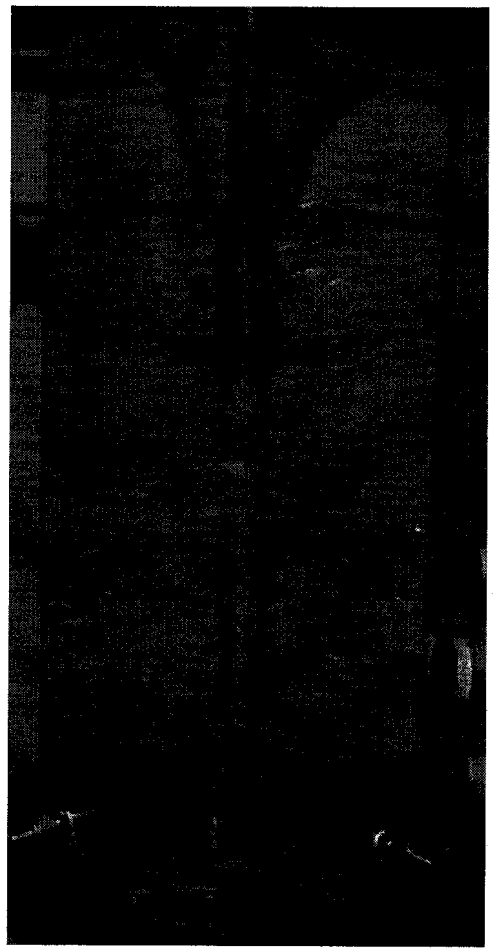


Figure 8-8 : Surface vortex formation in centered shaft without baffles configuration (Fr=1.04 (N=12.5 s^{-1}) and Fl=0.072 (Q=1.03 vvm))

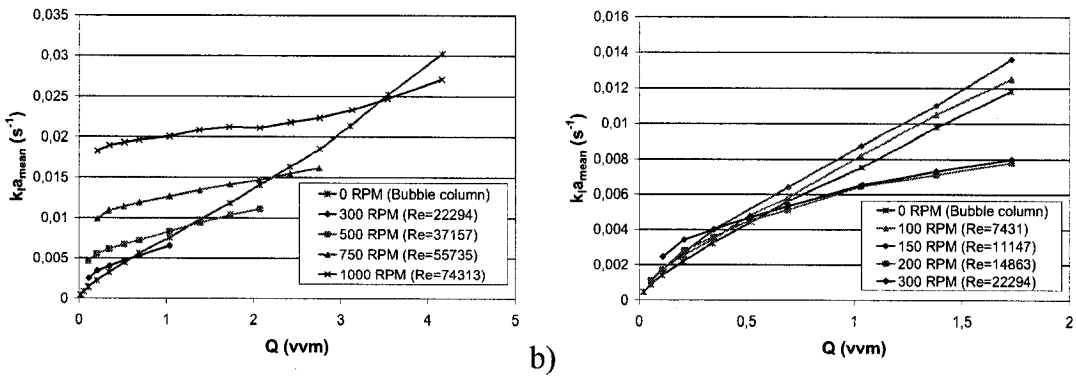


Figure 8-9 : Agitation effect on mass transfer coefficients in water with the centered shaft configuration without baffles

Table 8-4 : Agitation – No agitation comparison for the single shaft configuration without baffles.

Agitation preferred if:	Re<14800
No agitation preferred if:	Re≥14800 And $Fl>Fl_c=1.407.10^{-6}\ Re+7.654.10^{-2}$

In many of the early studies, the volumetric oxygen transfer coefficient, k_la, was correlated to gassed power input per unit mass, $P_g/\rho V$, since mechanical agitation plays an important role in gas absorption (MIDDLETON et SMITH, 2004). A second parameter that also has a strong effect on k_la is the superficial gas velocity, v_s. Many previous investigators combined these two effects and proposed correlations of the following form (MIDDLETON et SMITH, 2004):

$$k_l a = A\left(\frac{P_g}{\rho V}\right)^{\alpha} v_S^{\beta} \qquad \textbf{(8-9)}$$

In this work, in order to compare the different configurations the following equation was proposed:

$$k_l a = C.N^a Q^b \qquad \textbf{(8-10)}$$

This correlation was already used successfully by WARMOESKERKEN (1986) and OGUT and HATCH (1988) and is equivalent to equation (8-9) since (P_g/V) is proportional to N^3D^2 in turbulent flow (TATTERSON, 1991b). In dimensionless terms equation (8-10) can be rewritten as:

$$\frac{k_l a}{N} = K.Fr^e Fl^f \qquad \textbf{(8-11)}$$

With all the configurations tested in this work, equations (8-10) and (8-11) have shown very good agreement with experimental data as it can be seen in Figure 8-10. Equation (8-10) and (8-11) model parameters are presented for the different configurations in Table 8-5. It can be seen from Table 8-5 that the main difference between all the configurations comes from C and b values for equation (8-10) or K and f values for equation (8-11). Indeed, it is quite normal to have the same a (equation (8-10)) and e (equation (8-11)) values for the different configurations when the impeller is properly loaded. As it was mentioned, the centered shaft configuration without baffles is not well loaded, and it explains that we have different a and e parameters for this configuration. From Table 8-5 it can clearly be concluded that the dual shaft configuration operating in counter-rotating mode is at least as good as the centered shaft configuration with baffles.

The ranking of the others configurations are (from the best to the worst):

- Dual shaft Co-rotating
- Off-centered shaft without baffles
- Centered shaft without baffles

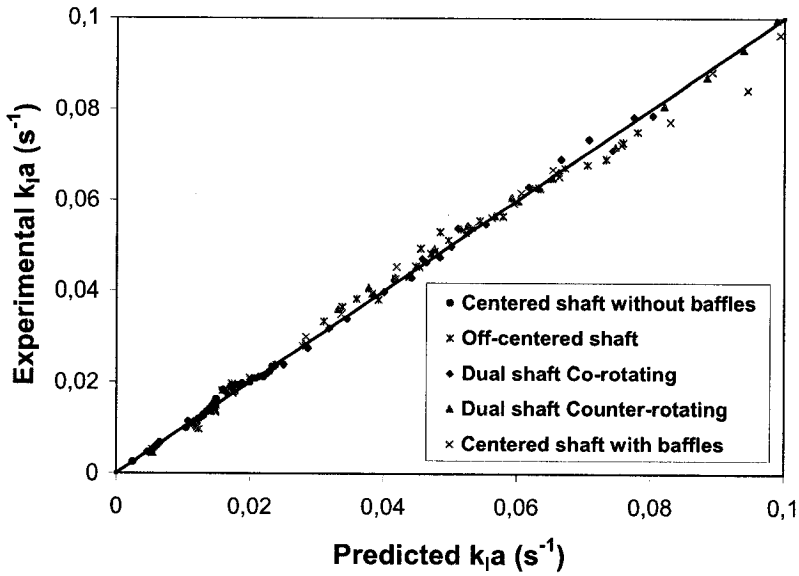


Figure 8-10 : Experimental k_la in water compared with predicted values by equation (8-10)

Table 8-5 : Equations (8-10) and (8-11) model parameters for the different mixing systems

Configuration	Eq. 10			Eq. 11		
	$C\times10^3$	a	b	$K\times10^3$	E	f
Centered shaft with baffles	11.927	1.598	0.320	8.692	0.459	0.320
Centered shaft without baffles	0.981	1.484	0.140	1.481	0.305	0.140
Off-centered shaft without baffles	3.564	1.654	0.214	5.418	0.435	0.214
Dual shaft Co-rotating	5.761	1.637	0.270	6.143	0.453	0.270
Dual shaft Counter-rotating	15.167	1.548	0.333	9.018	0.433	0.333

Even if the volumetric mass transfer coefficient is a key parameter in process design, oxygen homogenisation in the vessel must be also taken into account. In order to test the homogeneity generated within the different configurations, a criterion (h) has been defined as follows:

$$h = \frac{\sum_{n} \frac{\left|k_l a_{Top} - k_l a_{Bottom}\right|}{k_l a_{mean}}}{n} \qquad \textbf{(8-12)}$$

In this equation n represents the number of experiments, in our study n=31 (see the flow map in Figure 8-3). It is clear that h represents the mean deviation between the k_la at the top and the k_la at the bottom of the tank. A high h value means that the k_la at the top and the bottom are different and therefore oxygen concentration is not homogeneous in the vessel. Table 8-6 presents the h values in water for the different configurations. Surprisingly, the smallest h values have been obtained for the configurations where a vortex was seen. Moreover, it seems that the larger the solid body motion is, the lower is the homogenisation criterion. However, it is also reasonable to have k_la_{Bottom} higher than k_la_{Top} if the bottom impeller is properly loaded, that is why we have the higest h values for the most efficient configurations, that is for the centered shaft with baffles configuration and for the dual shaft configuration operating in counter-rotating mode.

Table 8-6 : Homogenisation criteria values in water

Configuration	h (%)
Centered shaft with baffles	5.16
Centered shaft without baffles	1.45
Off-centered shaft	4.53
Dual shaft Co-rotating	3.52
Dual shaft Counter-rotating	7.17

The interest of the dual shaft configuration in terms of flexibility to control homogenisation can be highlighted. Indeed, the counter-rotating mode can be used with a higher rotational speed for the upper impeller to increase furthermore the mass transfer at the top. Figure 8-11 presents an example where the upper impeller is rotated at a different rotational speed from the bottom one. We clearly see that an optimum rotational speed exists for the upper impeller in order to have an homogeneous mass transfer in the tank. This flexibility is not possible with a single shaft configuration. Thus by using an impeller speed 20 % higher for the upper impeller than the lower one in the dual shaft configuration in counter-rotating mode it was possible to reduce the h value to 1.57%.

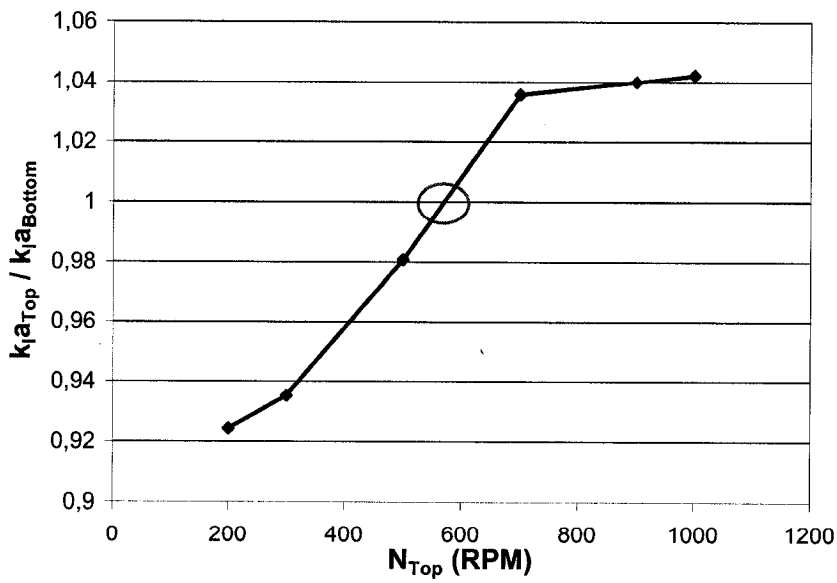


Figure 8-11 : Mass transfer homogenisation when the upper impeller rotational speed was varied in the dual shaft configuration operating in counter-rotating mode (Q=4.45 L/min (0.3 vvm) and N_{Bottom}=450 RPM)

8.4.2 Viscous Newtonian fluids

The evolution of the characteristics of the different configurations has been followed with a viscosity increase. Figure 8-12 presents $k_l a_{mean}$ against gas flow rate at Fr=1.04 (impeller speed: 12.5 s^{-1}) when a glucose solution of 15 mPa.s is used. In comparison with Figure 8-4, we observe that when the viscosity increases the two dual shaft configurations show better performance. Indeed, the counter-rotating mode of the dual shaft configuration appears to have better mass transfer than the baffled centered shaft configuration and the co-rotating mode of the dual shaft configuration appears to perform better than the off-centered configuration.

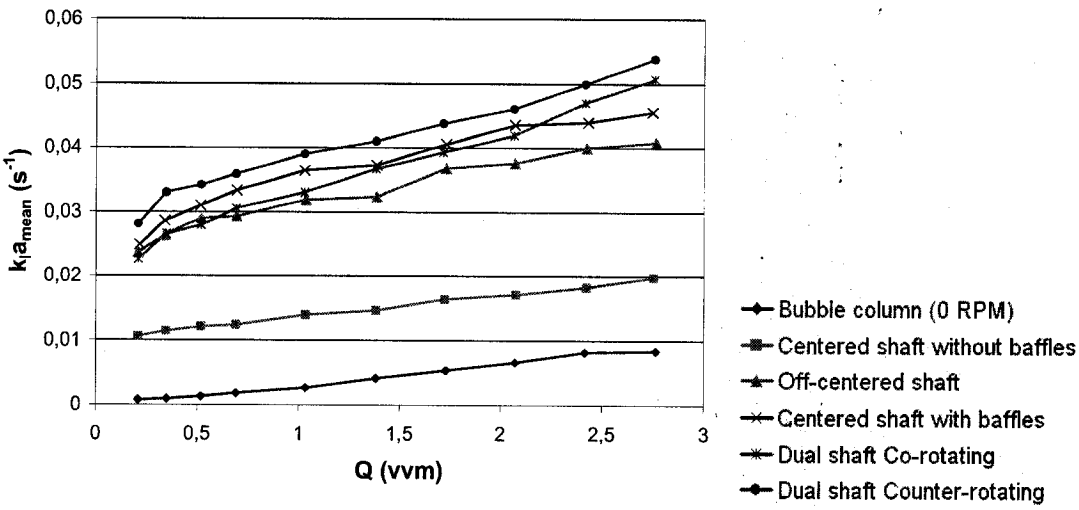


Figure 8-12 : Mass transfer coefficient in glucose solution (μ=15 mPa.s) against gas flow rate for the different configurations at Fr=1.04

Concerning the centered shaft configuration without baffles, we observe, by comparing Figure 8-4 and Figure 8-12 that its efficiency increases with liquid viscosity. This is due

to the fact that the vortex size reduces with liquid density and viscosity. Moreover, as it can be seen in Figure 8-13, when a viscous liquid is used the agitated mode of the centered shaft configuration is always better than the unagitated one. This is due to the fact that the Reynolds number is lower than 14800 (see Table 8-4).

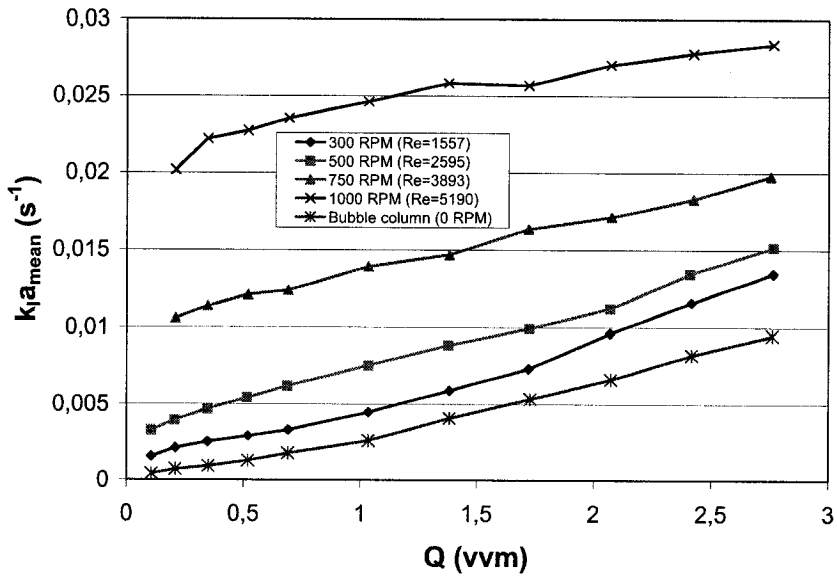


Figure 8-13 : Agitation effect on mass transfer coefficients with the centered shaft configuration without baffles (μ=15 mPa.s)

In order to compare the different configurations the following equation was proposed:

$$k_l a = C.N^a Q^b \mu^c \qquad \textbf{(8-13)}$$

This correlation was already employed successfully by OGUT and HATCH (1988) for viscous non-Newtonian liquid using the apparent viscosity. Moreover, let us note this correlation is to compare the different mixing configurations proposed and cannot be used to predict mass transfer coefficient in viscous liquids. Indeed, equation (8-13) does

not depend on liquid phase diffusivity and surface tension which differ with the liquid rheology.

Equation (8-13) has shown very good agreement with experimental data for a Newtonian viscosity in the range 0.954-102 mPa.s. It was observed that the a and b values were unchanged compared to Table 8-5. Therefore just the C and c values were determined as shown in Table 8-7, which also evidences the high efficiency in high viscosity of the dual shaft mixer in counter-rotating mode (c=-0.217 and C=9.029) compared to the centered shaft configuration with baffles (c=-0.377 and C=5.461).

Table 8-7 : Eq. 13 model parameters for the different mixing systems.

Configuration	$C \times 10^3$	c
Centered shaft with baffles	5.461	-0.379
Centered shaft without baffles	1.161	-0.099
Off-centered shaft without baffles	2.266	-0.378
Dual shaft Co-rotating	4.339	-0.277
Dual shaft Counter-rotating	9.029	-0.217

To demonstrate the effect of the viscosity on the different configurations we have plotted in Figure 8-14 k_la_{mean} as a function of the liquid viscosity at Fr=1.04 (N=12.5 s^{-1}) and Fl=0.072 (Q=1.03 vvm). It appears clearly that when the viscosity increases, the dual shaft configuration in counter-rotating mode is the best configuration. For example, for a viscosity of 102 mPa.s, the dual shaft configuration in counter-rotating mode has a k_la 149% higher than those of the "standard" centered shaft with baffles. As it was mentioned in CABARET et al. (2007), this result must be due to the flow compartmentalisation that appears with a centered shaft in viscous liquids.

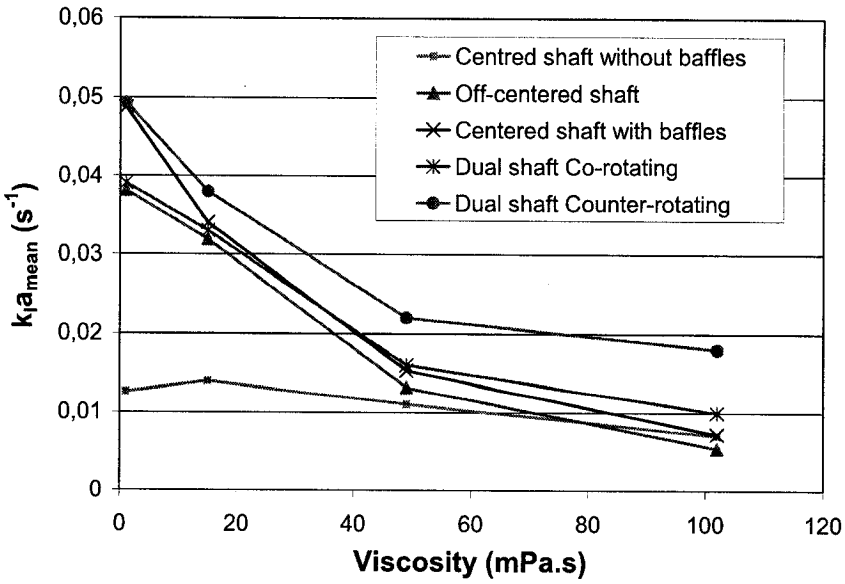


Figure 8-14 : Effect of Newtonian viscosity on the mass transfer coefficients for the different configurations (Fr=1.04 (N=12.5 s^{-1}) and Fl=0.072 (Q=1.03 vvm))

The effect of liquid viscosity on the homogenisation criterion for the different mixing configurations is given in Figure 8-15. We observe that the viscosity increase generates an increase of the homogenisation criterion. However, no change is observed concerning the homogenisation ranking for the different configurations. The dual shaft system operating in counter-rotating mode is always the worst configuration in terms of homogeneity when both impellers rotate at the same speed. The flexibility of the dual shaft configuration is thus more and more interesting when viscosity increases.

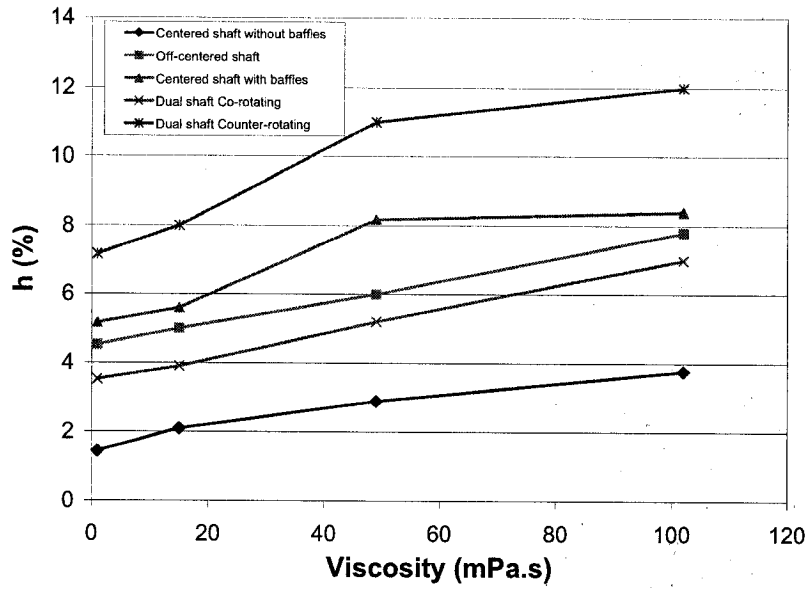


Figure 8-15 : Evolution of the homogenisation criteria with liquid viscosity

8.4.3 Non-Newtonian fluids

As it can be seen in Figure 8-16, when the liquid shear thinning effect increases, the centered shaft configuration without baffles shows good mass transfer, and the off-centered configurations (off-centered shaft and dual shaft in co- and counter-rotating modes) shows poor mass transfer.

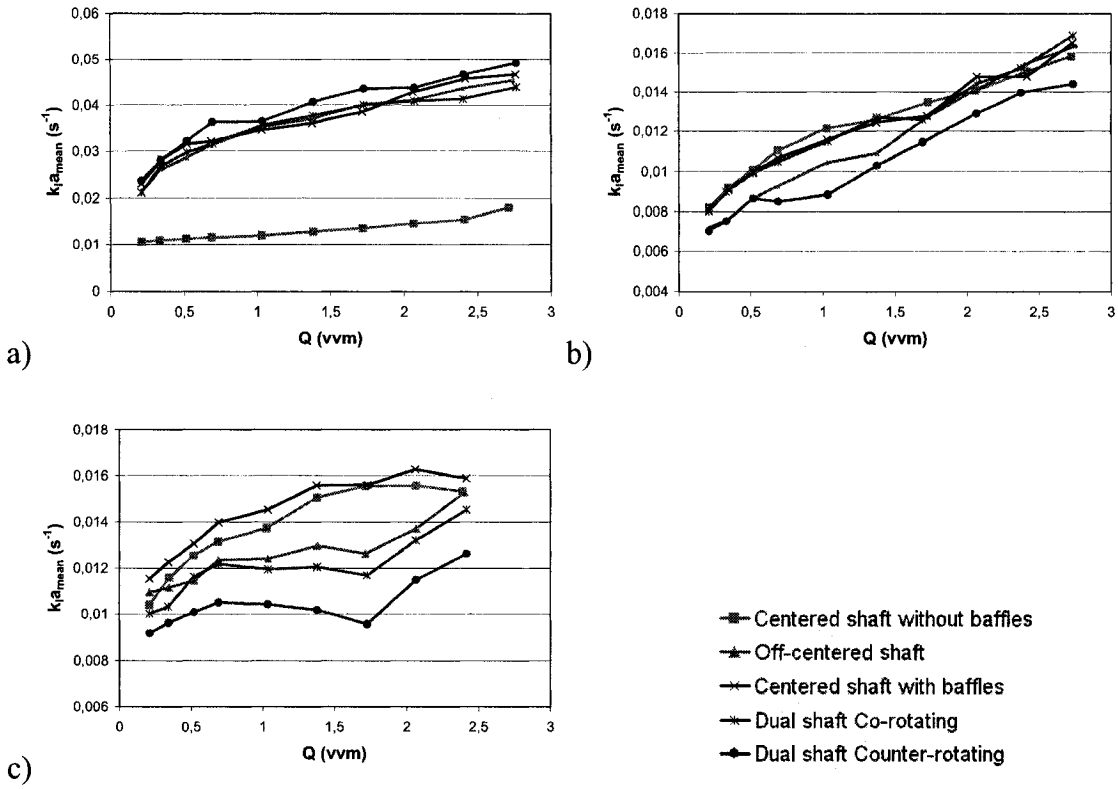


Figure 8-16 : Mass transfer coefficient in CMC solutions against gas flow rate for the different configurations (a) CMC 0.1%, N=16.67 s^{-1}, Fr=1.85; b) CMC 0.5%, N=16.67 s^{-1}, Fr=1.85, c) CMC 1%, N=25 s^{-1}, Fr=4.16)

Thus it appears that a centered configuration has to be preferred in presence of a shear-thinning fluid. Indeed, the shear stress distribution in a centered configuration is more homogeneous compared to an off-centered one (CUDAK et KARCZ, 2006). Concerning the dual shaft configuration, we observe clearly in Figure 8-16c that the co-rotating mode gives better $k_l a$ values than the counter-rotating mode. This result can be understood by looking back at Figure 8-6. In co-rotating mode a high shear stress region between the two shafts appears, which is not present in counter-rotating mode. Due to higher shear stress the average viscosity in co-rotating mode is lower than in counter-

rotating mode, and that is why the co-rotating performs better.

In order to compare the different configurations the following correlation was used, following OGUT and HATCH (1988) :

$$k_l a \; \alpha \; \mu_a^{\phi} \qquad \textbf{(8-14)}$$

Equation (8-14) has shown very good agreement with experimental data. As shown in Table 8-8, the ϕ values are lower for the centered configurations and higher for the off-centered configurations. This table concludes that the best configurations to deal viscous-shear thinning fluids are (from the best to the poorest):

- Centered shaft with baffles
- Centered shaft without baffles
- Off-centered shaft
- Dual shaft co-rotating
- Dual shaft counter-rotating

Remarkably, this ranking is the opposite from the one observed for viscous Newtonian liquids.

Table 8-8 : Effect of non-Newtonian apparent viscosity on the different configurations.

Configuration	ϕ
Centered shaft with baffles	-0.35
Centered shaft without baffles	-0.25
Off-centered shaft	-0.38
Dual shaft Co-rotating	-0.40
Dual shaft Counter-rotating	-0.50

8.5 Conclusions

Different configurations of unbaffled dual-impeller gas-liquid reactors have been compared in term of mass transfer performance using low and high viscosity Newtonian and non-Newtonian liquids.

It was shown that shaft off-centering is a good alternative to improve gas-liquid mass transfer in low and high viscosity Newtonian liquids. The dual shaft system operating in counter-rotating mode prevents the formation of vortex and appears better than the "standard" centered shaft with baffles configuration to deal with low and high viscosity liquids. Moreover, due to the flexibility of this dual shaft configuration, it is possible to circumvent the problem of axial homogenisation in a tank by using different rotational speed for the two impellers.

Contrary to what it was obtained with Newtonian liquids it appears that shaft off-centering has to be avoided with shear-thinning liquids. In this case the centered shaft configurations show better results than any other configuration.

8.6 Nomenclature

a Eq. (8-10) and (8-13) model parameter, dimensionless

A Eq. (8-9) model parameter, $m^{-2\alpha-\beta}s^{3\alpha+\beta-1}$

b Eq. (8-10) and (8-13) model parameter, dimensionless

c Eq. (8-13) model parameter, dimensionless

C Bottom clearance, m

C	Eq. (8-10) and (8-13) model parameter, $m^{-3b+c}kg^{-c}s^{a+b+c-1}$
C_{O2}	Oxygen concentration in the liquid phase, mol/m^3
C_{O2}^*	Oxygen concentration in the liquid phase at the equilibrium, mol/m^3
D	Impeller diameter, m
d	Ring sparger exterior diameter, m
e	Eq. (8-11) model parameter, dimensionless
E	Eccentricity, m
f	Eq. (8-11) model parameter, dimensionless
Fl	Flow or aeration number ($Fl=Q/ND^3$), dimensionless
Fr	Froude number ($Fr=N^2D/g$), dimensionless
g	Gravitational acceleration, $m.s^{-2}$
h	Homogenisation criterion, dimensionless
H	Liquid height, m
K	Eq. (8-11) model parameter, dimensionless
k_la	Volumetric gas-liquid mass transfer coefficient, s^{-1}
N	Impeller rotational speed, s^{-1}
P_g	Impeller power consumption under gassed condition, W
Q	Gas flow rate, $m^3.s^{-1}$ or vvm
Re	Reynolds number ($Re=\rho ND^2/\mu$), dimensionless
T	Tank diameter, m
t	Time, s
V	Tank volume, m^3

w Baffle width, m

Greek letters

α Eq. (8-9) model parameter, dimensionless

β Eq. (8-9) model parameter, dimensionless

ϕ Eq. (8-14) model parameter. dimensionless

μ Viscosity, Pa.s

μ_a Apparent viscosity, Pa.s

ρ Liquid density, kg/m^3

Subscripts

1 Refer to impeller 1

2 Refer to impeller 2

c Critical

8.7 References

ALVAREZ, M.M., ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2002. "Laminar mixing in eccentric stirred tank systems". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:546-557.

ALVAREZ, M.M. 2000. *Using spatio-temporal asymmetry to enhance mixing in chaotic flows: from maps to stirred tanks.* 230 p. PhD thesis, The State University of New-Jersey, U.S.A. - Department of Chemical and Biochemical Engineering.

ANDERSON, C., LEGRYS, G.A., SOLOMONS, G.L. 1982. "Concepts in the design of large-scale fermenters for viscous culture broths". *The Chemical Engineer.* 377:43-49.

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002a. "Mixing enhancement of non-Newtonian fluids using unconventional configurations". *Proceedings of ASME Fluids Engineering Division Summer Meeting.*

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002b. "Unconventional configuration studies to improve mixing times in stirred tanks". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:558-565.

CABARET, F., RIVERA, C., FRADETTE, L., HENICHE, M., TANGUY, P.A. 2007. "Hydrodynamics performance of a dual shaft mixer with viscous Newtonian liquids". *Chemical Engineering Research and Design.* 85:A5. 583-590.

CUDAK, M., KARCZ, J. 2006. "Momentum transfer in an agitated vessel with off-centered impellers". *Chemical Papers.* 60:5. 375-380.

ESPINOSA-SOLARES, T., BRITO-DE LA FUENTE, E., TECANTE, A., MEDINA-TORRES, L., TANGUY, P.A. 2002. "Mixing time in rheologically evolving model fluids by hybrid dual mixing systems". *Chemical Engineering Research and Design.* 80:A8. 817-823.

ESPINOSA-SOLARES, T., BRITO-DE LA FUENTE, E., TECANTE, A., TANGUY, P.A. 1997. "Power consumption of a dual turbine-helical ribbon impeller mixer in ungassed conditions". *Chemical Engineering Journal.* 67:3. 215-219.

ESPINOSA-SOLARES, T., BRITO-DE LA FUENTE, E., TECANTE, A., TANGUY, P.A. 2002. "Gas dispersion in rheologically-evolving model fluids by hybrid dual mixing systems". *Chemical Engineering and Technology.* 25:7. 723-727.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2004. "Mixing in unbaffled high-throughput experimentation reactors". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 43:4149-4158.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005a. "Comparative study of different mixing strategies in small high throughput experimentation reactors". *Chemical Engineering Science.* 60:2355-2368.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005b. "Just because it's small doesn't mean it's well mixed: ensuring good mixing in mesoscale reactors". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 44:9695-9704.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005c. "A PIV study of hydrodynamics in gas-liquid high throughput experimentation (HTE) reactors with eccentric impeller configurations". *Chemical Engineering Science.* 60:6403-6413.

JOHN, A.H., BUJALSKI, W., NIENOW, A.W. 1997. "A novel reactor with independently-driven dual impellers for gas-liquid processing". *Proceedings of the 9th European Conference on Mixing.* 169-176.

JOHN, A.H., BUJALSKI, W., NIENOW, A.W. 1998. "Performance of a proto-fermenter containing independently-driven dual impellers in a draft tube (IDDIDT): Mixing times". *Food and Bioproducts Processing.* 76:4. 199-207.

JOHN, A.H., BUJALSKI, W., NIENOW, A.W., SÁNCHEZ, A., TORRES, L., GALINDO, E. 1995. "Studies of an independently-driven, dual impeller protofermenter with and without a draft tube: power and hold-up". *Chemical Engineering Research and Design.* 73:A5. 535-541.

JOOSTEN, G.E.H., SCHILDER, J.G.M., BROERE, A.M. 1977. "The suspension of floating solids in stirred vessels". *Chemical Engineering Research and Design.* 55:220-222.

KARCZ, J., CUDAK, M., SZOPLIK, J. 2005. "Stirring of a liquid in a stirred tank with an eccentrically located impeller". *Chemical Engineering Science.* 60:2369-2380.

KARCZ, J., SZOPLIK, J. 2004 . "An effect of the eccentric position of the propeller agitator on the mixing time". *Chemical Papers.* 58:9-14.

KING, R., MUSKETT, M.J. 1985. "Fluid loading and power measurements on an eccentrically mounted pitched blade impeller". *Proceedings of the 5th European Conference on Mixing.* 285-301.

METZNER, A.B., OTTO, R.E. 1957. "Agitation of non-Newtonian fluids". *AIChE Journal.* 3:1. 3-10.

MIDDLETON, J. C., SMITH, J.M. 2004. "Gas-liquid mixing in turbulent systems". *Handbook of industrial mixing.* Sous la direction de E.L. Paul, V.A. Atiemo-Obeng et S.M. Kresta. Hoboken, New Jersey, U.S.A. John Wiley & Sons, Inc.

MONTANTE, G., BAKKER, A., PAGLIANTI, A., MAGELLI, F. 2006. "Effect of the shaft eccentricity on the hydrodynamics of unbaffled stirred tanks". *Chemical Engineering Science.* 61:2807-2814.

NIENOW, A.W., WARMOESKERKEN, M.M.C.G., SMITH, J.M., KONNO, M. 1985. "On the flooding/loading transition and the complete dispersal condition in aerated vessels agitated by a Rushton turbine". *Proceedings of the 5th European Conference on Mixing.* 143-154.

NIENOW, A.W., WISDOM, D.J., MIDDLETON, J.C. 1977. "The effect of scale and geometry on flooding, recirculation and power in gassed stirred vessels". *2nd European Conference on Mixing.* Cranfield, England : BHRA Fluid Engineering. 17-34.

NISHIKAWA, M., ASHIWAKE, K., HASHIMOTO, S. 1979. "Agitation power and mixing time in off-centring mixing". *International Chemical Engineering.* 19:1. 153-159.

NOVAK, V., DILT, P., RIEGER, F. 1982. "Mixing in unbaffled vessels, the influence of an eccentric impeller position on power consumption and surface aeration". *Proceedings of the 4th European Conference on Mixing.* Cranfield, England : BHRA Fluid Engineering. 57-70.

OGUT, A., HATCH, R.T. 1988. "Oxygen transfer into Newtonian and non-newtonian fluids in mechanically agitated vessels". *The Canadian Journal of Chemical Engineering.* 66:79-85.

SANCHEZ CERVANTES, M.I., LACOMBE, J., MUZZIO, F.J., ALVAREZ, M.M. 2006. "Novel bioreactor design for the culture of suspended mammalian cells. Part I: mixing characterization". *Chemical Engineering Science.* 61:8075-8084.

SOLOMONS, G.L., LEGRYS, G.A. 1981. *Method and apparatus for promoting fermentation. British Patent 1 584 103.*

TANGUY, P.A., THIBAULT, F., BRITO-DE LA FUENTE, E., ESPINOSA-SOLARES, T., TECANTE, A. 1997. "Mixing performance induced by coaxial flat blade-helical ribbon impellers rotating at different speeds". *Chemical Engineering Science.* 52:11. 1733-1741.

TATTERSON, G. B. 1991. "Gas dispersion in agitated tanks". *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* Sous la direction de G.B. Tatterson. New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc.

WARMOESKERKEN, M.M.C.G., FEIJEN, J., SMITH, J.M. 1981. "Institution of Chemical Engineers Symposium Series". 64, J1-J14.

YOSHIDA, M., YAMAGIWA, K., ITO, A., OHKAWA, A., ABE, M., TEZURA, S. et al. 2001. "Flow and mass transfer in aerated viscous Newtonian liquids in an unbaffled agitated vessel having alternating forward-reverse rotating impellers". *Journal of Chemical Technology and Biotechnology.* 76: 1185-1193.

CHAPITRE 9: DISCUSSION GÉNÉRALE

La technique de détermination du temps de mélange par analyse d'images s'est montrée efficace pour l'étude du réacteur proposé. En effet, cette technique a permis d'obtenir des résultats reproductibles tout en caractérisant l'hydrodynamique dans la cuve (zones ségrégées et compartimentation de l'écoulement). Cependant, il est important de noter que cette méthode n'est pas parfaite car elle consiste à étudier une projection en 2D d'un phénomène 3D. Des travaux complémentaires sont donc nécessaires pour extrapoler en 3D la technique proposée. Une solution possible serait d'utiliser plusieurs caméras localisées à différents endroits autour de la cuve.

Concernant le mélangeur à deux arbres excentrés, il serait très intéressant d'étudier en détail le profil d'écoulement à l'aide de la technique de vélocimétrie par image de particules (PIV). En effet, à l'aide de la technique PIV, nous pourrions déterminer les débits volumiques échangés entre le mobile du haut et celui du bas. Ainsi, une meilleure connaîssance de l'interaction nous permettrait d'optimiser celle-ci.

Il serait aussi très intéressant d'utiliser un mobile axial en position haute. Ainsi, le mobile radial du bas sera utilisé pour la dispersion tandis que le mobile axial du haut sera utilisé pour la distribution axiale.

Concernant la dispersion gaz-liquide réalisée avec le mélangeur à deux arbres excentrés, il serait intéressant d'effectuer des mesures de consommation de puissance du système. En effet, l'utilisation de deux arbres excentrés engendre une augmentation de la consommation de puissance comparé au cas d'un seul arbre centré. Il serait ainsi intéressant de savoir si l'augmentation du coefficient de transfert de matière obtenue avec le mélangeur à deux arbres excentrés est intéressante d'un point de énergétique.

Pour finir, il est important de noter que l'effet du changement d'échelle n'a pas été étudié dans cette thèse. Ainsi, les résultats obtenus doivent être utilisés avec précautions. C'est le cas notamment des valeurs critiques du nombre Reynolds et de l'excentrage du mobile qui ont été établies pour mélanger une cuve donnée avec une turbine Rushton en régime laminaire. Il est possible que le changement d'échelle a un effet sur ces valeurs critiques.

CHAPITRE 10: CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

En conclusion, il s'avère que le mélangeur à deux arbres de rotation excentrés qui est proposé dans cette thèse est une bonne solution pour éviter l'utilisation de chicanes dans une cuve de mélange. Il apparaît que le mélange engendré par deux agitateurs excentrés en mode contre-rotatif est très efficace pour le mélange des fluides newtoniens sur une grande gamme de viscosité. En effet, l'utilisation de deux arbres excentrés permet d'empêcher la compartimentation de l'écoulement ainsi que de détruire les zones ségrégées. De plus, l'emploi de deux arbres excentrés opérés en mode contre-rotatif permet d'éviter la formation de vortex et favorise ainsi le transfert de matière gaz-liquide.

Cependant, il a été relevé que le mélangeur proposé à de très faibles capacités de transfert de matière lorsque le liquide employé est rhéofluidifiant. Ce résultat limite ainsi l'utilisation de ce réacteur dans l'industrie car une grande majorité des liquides mélangés présentent un caractère non newtonien.

Connaîssant la nécessité d'utiliser des mobiles centrés avec les liquides non newtoniens, il est conseillé d'utiliser un mélangeur tel que celui présenté par SOLOMONS et LEGRYS (1981) (voir Figure 1-6). Cependant, afin d'éviter l'utilisation des chicanes, il peut être intéressant de faire tourner les deux mobiles dans des sens opposés. En effet, comme il a été noté avec le mélangeur à deux arbres excentrés, l'utilisation d'un mode contre-rotatif permet d'éviter la formation de vortex.

RÉFÉRENCES

ALVAREZ-HERNANDEZ, M.M., SHINBROT, T., ZALC, J., MUZZIO, F.J. 2002. "Practical chaotic mixing". *Chemical Engineering Science.* 57:3749-3753.

ALVAREZ, M.M., ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2002. "Laminar mixing in eccentric stirred tank systems". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:546-557.

ALVAREZ, M.M., GUZMÁN, A., ELÍAS, M. 2005. "Experimental visualization of mixing pathologies in laminar stirred tank bioreactors". *Chemical Engineering Science.* 60:2449-2457.

ALVAREZ, M.M., ZALC, J.M., SHINBROT, T., ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2002 . "Mechanisms of mixing and creation of structure in laminar stirred tanks". *AIChE Journal.* 48:2135-2148.

ALVAREZ, M.M. 2000. *Using spatio-temporal asymmetry to enhance mixing in chaotic flows: from maps to stirred tanks.* 230 p. PhD thesis, The State University of New-Jersey, U.S.A. - Department of Chemical and Biochemical Engineering.

ANDERSON, C., LEGRYS, G.A., SOLOMONS, G.L. 1982. "Concepts in the design of large-scale fermenters for viscous culture broths". *The Chemical Engineer.* 377:43-49.

AREF, H. 1984. "Stirring by chaotic advection". *Journal of Fluid Mechanics.* 143:1-21.

ARRATIA, P.E., MUZZIO, F.J. 2004. "Planar laser-induced fluorescence method for analysis of mixing in laminar flows". *Industrial and Engineering Chemistry Research* . 43:6557-6568.

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002a. "Mixing enhancement of non-Newtonian fluids using unconventional configurations". *Proceedings of ASME Fluids Engineering Division Summer Meeting.*

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002b. "Unconventional configuration studies to improve mixing times in stirred tanks". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:558-565.

ASCANIO, G., FOUCAULT, S., TANGUY, P.A. 2004. "Time-periodic mixing of shear-thinning fluids". *Chemical Engineering Research and Design.* 82:9. 1199-1203.

ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2005. "Mixing of shear-thinning fluids with dual off-centred impellers". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 83:3. 393-400.

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002a. "ASME Fluids Engineering Division Summer Meeting". *Mixing enhancement of non-newtonian fluids using unconventional configurations.* ASME.

ASCANIO, G., BRITO-BAZAN, M., BRITO-DE LA FUENTE, E., CARREAU, P.J., TANGUY, P.A. 2002b. "Unconventional configuration studies to improve mixing times in stirred tanks". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:558-565.

BAGTZOGLOU, A.C., ASSAF-ANID, N., CHEVRAY. R. 2006. "Effect of chaotic mixing on enhanced biological growth and implications for wastewater treatment: a test case with *Saccharomyces cerevisiae*". *Journal of Hazardous Materials.* 136:130-136.

BERTRAND, F., TANGUY, P.A., THIBAULT, F. 1997. "A three-dimensional fictitious domain method for incompressible fluid flow problems". *International Journal for Numerical Methods in Fluids.* 25:719-736.

BOURNE, J.R., KUT, O.M., LENZNER, J. 1992. "Improved reaction system to investigate micromixing in high-intensity mixers". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 31:3. 949-958.

BOUWMANS, I., BAKKER, A., VAN DEN AKKER, H.E.A. 1997. "Blending liquids of differing viscosities and densities in stirred vessels". *Chemical Engineering Research and Design.* 75:A8. 777-783.

BOYER, C., DUQUENNE, A.-M., WILD, G. 2002. "Measuring techniques in gas-liquid and gas-liquid-solid reactors". *Chemical Engineering Science.* 57:3185-3215.

BROWN, D. A. R., JONES, P.N., MIDDLETON, J.C., PAPADOPOULOS, G., ARIK, E.B. 2004. "Experimental methods". *Handbook of industrial mixing.* Sous la direction de E.L. Paul , V.A. Atiemo-Obeng et S.M. Kresta. Hoboken, New Jersey, U.S.A. John Wiley & Sons, Inc.

BRUIJN, W., VAN'T RIET, K., SMITH, J.M. 1974. "Power consumption with aerated Rushton turbines". *Transactions of the Institution of Chemical Engineers.* 52:1. 88-104.

BUCHMANN, M., MEWES, D. 2000. "Tomographic measurements of micro- and macromixing using the dual wavelength photometry". *Chemical Engineering Journal.* 77:3-9.

BUCKINGHAM, E. 1914. "On physically similar systems; illustrations of the use of dimensional equations". *Physical Review.* 4 :345-376.

BURMESTER, S.S.H., RIELLY, C.D., EDWARDS, M.F. 1991. "The mixing of miscible liquids with large differences in density and viscosity". *7th European Conference on Mixing.* 9-16.

CABARET, F., BONNOT, S., FRADETTE, L., TANGUY, P.A. 2007. "Mixing time analysis using colorimetric methods and image processing". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 46:14. 5032-5042.

CABARET, F., FRADETTE, L., TANGUY, P.A. 2006. "Characterization of mixing kinetics using advanced image analysis". *Proceedings of the 12th European Conference on Mixing.*

CABARET, F., RIVERA, C., FRADETTE, L., HENICHE, M., TANGUY, P.A. 2007. "Hydrodynamics performance of a dual shaft mixer with viscous Newtonian liquids". *Chemical Engineering Research and Design.* 85:A5. 583-590.

CALDERBANK, P.H. 1958. "Physical rate processes in industrial fermentation; Part I: the interfacial area in gas-liquid contacting with mechanical agitation". *Transactions of the Institution of Chemical Engineers.* 36:443-463.

CHAVAN, V. V., MASHELKAR, R.A. 1980. "Mixing of viscous Newtonian and non-Newtonian fluids". *Advances in transport processes.* Sous la direction de V.V. Chavan et R.A. Mashelkar. New York, U.S.A. Wiley Eastern Ltd.

COHEN, D., LANGHORN, K. 2004. *Mix it up.* Chemical Processing Magazine.numéro d'avril 2004.

CUDAK, M., KARCZ, J. 2006. "Momentum transfer in an agitated vessel with off-centered impellers". *Chemical Papers.* 60:5. 375-380.

DANCKWERTS, P.V. 1958. "The effect of incomplete mixing on homogeneous reactions". *Chemical Engineering Science.* 42:93-101.

DELAPLACE, G., BOUVIER, L., MOREAU, A., GUÉRIN, R., LEULIET, J.-C. 2004. "Determination of mixing time by colourimetric diagnosis - Application to a new mixing system". *Experiments in Fluids.* 36:437-443.

DOUCET, L., ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2005. "Hydrodynamics characterization of rotor-stator mixer with viscous fluids". *Chemical Engineering Research and Design.* 83:1186-1195.

EDWARDS, M. F., BAKER, M.R., GODFREY, J.C. 1992. "Mixing of liquids in stirred tanks". *Mixing in the process industries.* Sous la direction de N. Harnby, M.F. Edwards et A.W. Nienow. Oxford, U.K. Butterworth-Heinemann.

ESPINOSA-SOLARES, T., BRITO-DE LA FUENTE, E., TECANTE, A., MEDINA-TORRES, L., TANGUY, P.A. 2002. "Mixing time in rheologically evolving model fluids by hybrid dual mixing systems". *Chemical Engineering Research and Design.* 80:A8. 817-823.

ESPINOSA-SOLARES, T., BRITO-DE LA FUENTE, E., TECANTE, A., TANGUY, P.A. 1997. "Power consumption of a dual turbine-helical ribbon impeller mixer in ungassed conditions". *Chemical Engineering Journal.* 67:3. 215-219.

ESPINOSA-SOLARES, T., BRITO-DE LA FUENTE, E., TECANTE, A., TANGUY, P.A. 2001. "Flow patterns in rheologically evolving model fluids produced by hybrid dual mixing systems". *Chemical Engineering and Technology.* 24:9. 913-918.

ESPINOSA-SOLARES, T., BRITO-DE LA FUENTE, E., TECANTE, A., TANGUY, P.A. 2002. "Gas dispersion in rheologically-evolving model fluids by hybrid dual mixing systems". *Chemical Engineering and Technology.* 25:7. 723-727.

FANGARY, Y.S., BARIGOU, M., SEVILLE, J.P.K., PARKER, D.J. 2000. "Fluids trajectories in a stirred vessel of non-Newtonian liquid using positron emission particle tracking". *Chemical Engineering Science.* 55:5969-5979.

FARHAT, M., RIVERA, C., FRADETTE, L., HENICHE, M., TANGUY, P.A. 2007. "Numerical and experimental study of a dual-shaft coaxial mixer with viscous fluids". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 46:5021-5031.

FOUCAULT, S., ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2004. "Coaxial mixer hydrodynamics with Newtonian and non-Newtonian fluids". *Chemical Engineering and Technology.* 27:3. 324-329.

FOUCAULT, S., ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2005. "Power characteristics in coaxial mixing: Newtonian and non-Newtonian fluids". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 44:14. 5036-5043.

FOUCAULT, S., ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2006. "Mixing times in coaxial mixers with Newtonian and non-Newtonian fluids". *Industrial and Engineering Chemistry Research* . 45:1. 352-359.

FOUCAULT, S. 2004. *Caractérisation expérimentale de l'hydrodynamique dans un mélangeur coaxial.* 124 p. Mémoire de maîtrise, École Polytechnique - Département de génie chimique.

FOX, E.A., GEX, V.E. 1956. "Single-phase blending of liquids". *AIChE Journal.* 2:4. 539-544.

FREUND, R.W. 1993. "A transpose-free quasi-minimum residual algorithm for non-Hermitian linear systems". *SIAM Journal of Scientific Computing.* 14:470-482.

FUJASOVA, M., LINEK, V., MOUCHA, T. 2007. "Mass transfer correlations for multiple-impeller gas-liquid contactors. Analysis of the effect of axial dispersion in gas and liquid phases on "local" kla values measured by the dynamic pressure method in individual stages of the vessel". *Chemical Engineering Science.* 62:1650-1669.

GEAR, C.W. 1971. *Numerical initial value problems in ordinary differential equations.* Englewood Cliffs, U.S.A. Prentice-Hall.

GLOWINSKI, R., PAN, T.W., PERIAUX, J. 1994. "A fictitious domain method for Dirichlet problem and applications". *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering.* 111:283-303.

GODLESKI, E.S., SMITH, J.C. 1962. "Power requirements and blend times in the agitation of pseudoplastic fluids". *AIChE Journal.* 8:5. 617-620.

GUICHARDON, P., FALK, L. 2000. "Characterization of micromixing efficiency by iodite-iodate reaction system. Part I: Experimental procedure". *Chemical Engineering Science.* 55:19. 4233-4243.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2004. "Mixing in unbaffled high-throughput experimentation reactors". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 43:4149-4158.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005a. "Comparative study of different mixing strategies in small high throughput experimentation reactors". *Chemical Engineering Science.* 60:2355-2368.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005b. "Just because it's small doesn't mean it's well mixed: ensuring good mixing in mesoscale reactors". *Industrial and Engineering Chemistry Research.* 44:9695-9704.

HALL, J.F., BARIGOU, M., SIMMONS, M.J.H., STITT, E.H. 2005c. "A PIV study of hydrodynamics in gas-liquid high throughput experimentation (HTE) reactors with eccentric impeller configurations". *Chemical Engineering Science.* 60:6403-6413.

HARVEY, A.D., WOOD, S.P., LENG, D.E. 1997. "Experimental and computational study of multiple impellers flows". *Chemical Engineering Science.* 52:1479-1491.

HENICHE, M., TANGUY, P.A. 2006. "A new element-by-element method for trajectory calculations with tetrahedral finite element meshes". *International Journal for Numerical Methods in Engineering.* 67:9. 1290-1317.

HINZE, J.O. 1955. "Fundamentals of hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion processes". *Chemical Engineering Progress.* 1:3. 289-295.

HOLDEN, P.J., WANG, M., MANN, R., DICKIN, F.J., EDWARDS, R.B. 1998 . "Imaging stirred-vessel macromixing using electrical resistance tomography". *AIChE Journal.* 44:780-790.

HOLLAND, F.A., CHAPMAN, F.S. 1966. *Liquid mixing and processing in stirred tanks.* New York, U.S.A. Reinhold Pub. Corp. 319 p.

HOUCINE, I., VIVIER, H., PLASARI, E., DAVID, R., VILLERMAUX, J. 1996. "Planar laser induced fluorescence technique for measurements of concentration fields in continuous stirred tank reactors". *Experiments in Fluids.* 22:95-102.

JOHN, A.H., BUJALSKI, W., NIENOW, A.W. 1997. "A novel reactor with independently-driven dual impellers for gas-liquid processing". *Proceedings of the 9th European Conference on Mixing.* 169-176.

JOHN, A.H., BUJALSKI, W., NIENOW, A.W. 1998. "Performance of a proto-fermenter containing independently-driven dual impellers in a draft tube (IDDIDT): Mixing times". *Food and Bioproducts Processing.* 76:4. 199-207.

JOHN, A.H., BUJALSKI, W., NIENOW, A.W., SÁNCHEZ, A., TORRES, L., GALINDO, E. 1995. "Studies of an independently-driven, dual impeller protofermenter with and without a draft tube: power and hold-up". *Chemical Engineering Research and Design.* 73:A5. 535-541.

JOOSTEN, G.E.H., SCHILDER, J.G.M., BROERE, A.M. 1977. "The suspension of floating solids in stirred vessels". *Chemical Engineering Research and Design.* 55:220-222.

KARCZ, J., CUDAK, M., SZOPLIK, J. 2005. "Stirring of a liquid in a stirred tank with an eccentrically located impeller". *Chemical Engineering Science.* 60:2369-2380.

KARCZ, J., SZOPLIK, J. 2001. "Studies of mixing time in an agitated vessel with eccentric impeller". *Inzyniera Chemiczna I Procesowa.* 22:3C. 651-656.

KARCZ, J., SZOPLIK, J. 2004 . "An effect of the eccentric position of the propeller agitator on the mixing time". *Chemical Papers.* 58:9-14.

KASAT, G.R., PANDIT, A.B. 2004. "Mixing time studies in multiple impeller agitated reactors.". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 82:892-904.

KING, R., MUSKETT, M.J. 1985. "Fluid loading and power measurements on an eccentrically mounted pitched blade impeller". *Proceedings of the 5th European Conference on Mixing.* 285-301.

KLING, K., MEWES, D. 2004. "Two-colour laser induced fluorescence for the quantification of micro- and macromixing in stirred vessels". *Chemical Engineering Science.* 59:1523-1528.

KUBOI, R., NIENOW, A.W. 1986. "Intervortex mixing rates in high-viscosity liquids agitated by high-speed dual impellers". *Chemical Engineering Science.* 41:1. 123-134.

KÖHLER, S., BROD, H., WALZEL, P. 2006. "The blending efficiency of an intermeshing helical ribbon and screw impeller combination". *Proceedings of the 12th European Conference on Mixing.*

KÖHLER, S., HEMMERLE, W. 2003. "Analysis of the power characteristic of a coaxial agitator with varied diameter and speed ratio of inner and outer mixing device". *Proceedings of the 11th European Conference on Mixing.*

LAMBERTO, D.J., MUZZIO, F.J., SWANSON, P.D., TONKOVICH, A.L. 1996. "Using time-dependent rpm to enhance mixing in stirred vessels". *Chemical Engineering Science.* 51:5. 733-741.

LE COËNT, A.-L., RIVOIRE, A., BRIANÇON, S. , LIETO, J. 2005. "An original image-processing technique for obtaining the mixing time: The box-counting with erosions method". *Powder Technology.* 152:62-71.

LEE, K.C., YIANNESKIS, M. 1997. "A liquid crystal thermographic technique for the measurement of mixing characteristics in stirred vessels". *Chemical Engineering Research and Design.* 75:A8. 746-754.

LEVENSPIEL, O. 1999. *Chemical Reaction Engineering.* New York, U.S.A. Wiley. 668 p.

LINEK, V., VACEK, V., BENES, P.A. 1987. "Critical review and experimental verification of the correct use of the dynamic method for the determination of oxygen transfer in aerated agitated vessels to water, electrolyte solutions and viscous liquids". *Chemical Engineering Journal.* 34:1. 11-34.

MACHON, V., VLCEK, J., NIENOW, A.W., SOLOMON, J. 1980. "Some effects of pseudoplasticity on hold-up in aerated, agitated vessels". *Chemical Engineering Journal* . 19:1. 67-74.

MEDEK, J., FORT, I. 1985. "Mixing in vessel with eccentrical mixer". *Proceedings of the 5th European Conference on Mixing.* 285-301.

MELTON, L.A., LIPP, C.W., SPRADLING, R.W., PAULSON, K.A. 2002. "DISMT - Determination of mixing time through color changes". *Chemical Engineering Communications.* 189:3. 322-338.

METZNER, A.B., OTTO, R.E. 1957. "Agitation of non-Newtonian fluids". *AIChE Journal.* 3:1. 3-10.

MIDDLETON, J. C., SMITH, J.M. 2004. "Gas-liquid mixing in turbulent systems". *Handbook of industrial mixing.* Sous la direction de E.L. Paul, V.A. Atiemo-Obeng et S.M. Kresta. Hoboken, New Jersey, U.S.A. John Wiley & Sons, Inc.

MONTANTE, G., BAKKER, A., PAGLIANTI, A., MAGELLI, F. 2006. "Effect of the shaft eccentricity on the hydrodynamics of unbaffled stirred tanks". *Chemical Engineering Science.* 61:2807-2814.

MOO-YOUNG, M., TICHAR, K., DULLIEN, F.A.L. 1972. "The blending efficiencies of some impellers in batch mixing". *AIChE Journal.* 18:1. 178-182.

MÜLLER, W. 1985. *Untersuchung von homogenisiervorgängen in nicht-Newtonschen flüssigkeiten mit einem neuen bildanalytischen verfahren.* TU Dortmund: TU Dortmund.VDI-Forschungsberichte, Reihe 3, n103.

NAGATA, S. 1975a. "Agitation in gas-liquid systems". *Mixing: principles and applications.* Sous la direction de S. Nagata. New York, U.S.A. Kodansha Ltd. and John Wiley & Sons, Inc.

NAGATA, S. 1975b. "Mixing of homogeneous liquids". *Mixing: principles and applications.* Sous la direction de S. Nagata. New York, U.S.A. Kodansha Ltd. and John Wiley & Sons, Inc.

NAGATA, S. 1975c. *Mixing: principles and applications.* New York, U.S.A. Kodansha Ltd. and John Wiley & Sons, Inc. 458 p.

NAGATA, S. 1975d. "Power consumption of mixing impellers". *Mixing: principles and applications.* Sous la direction de S. Nagata. New York, U.S.A. Kodansha Ltd. and John Wiley & Sons, Inc.

NIENOW, A.W. 1997. "On impeller circulation and mixing effectiveness in the turbulent flow regime". *Chemical Engineering Science.* 52:15. 2557-2565.

NIENOW, A.W., ELSON, T.P. 1988. "Aspects of mixing in rheologically complex fluids". *Chemical Engineering Research and Design.* 66:1. 5-15.

NIENOW, A. W., HARNBY, N., EDWARDS, M.F. 1992. "Introduction to mixing problems". *Mixing in the process industries.* Sous la direction de N. Harnby, M.F. Edwards et A.W. Nienow. Oxford, U.K. Butterworth-Heinemann.

NIENOW, A.W., WARMOESKERKEN, M.M.C.G., SMITH, J.M., KONNO, M. 1985. "On the flooding/loading transition and the complete dispersal condition in aerated vessels agitated by a Rushton turbine". *Proceedings of the 5th European Conference on Mixing.* 143-154.

NIENOW, A.W., WISDOM, D.J., MIDDLETON, J.C. 1977. "The effect of scale and geometry on flooding, recirculation and power in gassed stirred vessels". *Proceedings of the 2nd European Conference on Mixing.* Cranfield, England : BHRA Fluid Engineering. 17-34.

NISHIKAWA, M., ASHIWAKE, K., HASHIMOTO, S. 1979. "Agitation power and mixing time in off-centring mixing". *International Chemical Engineering.* 19:1. 153-159.

NOVAK, V., DILT, P., RIEGER, F. 1982. "Mixing in unbaffled vessels, the influence of an eccentric impeller position on power consumption and surface aeration". *Proceedings of the 4th European Conference on Mixing.* Cranfield, England : BHRA Fluid Engineering. 57-70.

NOËL, G., CHOPLIN, L., LAJOIE, A., LACROIX, C., LEDUY, A. 1984. "A study of the evolution of viscoelastic properties of microbial polysaccharide fermentation broth". *Advances in rheology.* Sous la direction de B. Mena, A. García-Rejón et C. Rangel-Nafaile. Mexico, Mexico :

OGUT, A., HATCH, R.T. 1988. "Oxygen transfer into Newtonian and non-newtonian fluids in mechanically agitated vessels". *The Canadian Journal of Chemical Engineering.* 66:79-85.

OLDSHUE, J.Y. 1960. "Fluid mixing in fermentation processes". *Industrial & Engineering Chemistry.* 52:60-62.

OTTINO, J.M., MUZZIO, F.J., TJAHJADI, M., FRANJIONE, J.G., JANA, S.C., KUSCH, H.A. 1992. "Chaos, symmetry, and self-similarity. Exploiting order and disorder in mixing processes". *Science.* 257:5071. 754-760.

PAHL, M.H., BRENKE, A., LUO, Y. 1996. "Power consumption of multiple shaft agitators". *Chemical Engineering and Technology.* 19:503-509.

PATTERSON, G. K., PAUL, E.L., KRESTA, S.M., ETCHELLS, A.W. 2004. "Mixing and chemical reactions". *Handbook of industrial mixing.* Sous la direction de E.L. Paul, V.A. Atiemo-Obeng et S.M. Kresta. Hoboken, New Jersey, U.S.A. John Wiley & Sons, Inc.

PINEAULT, G., CLOUTIER, L. 1972. "Fonction de transfert d'un réservoir agité en système continu: I. Détermination à l'aide d'un traceur fluorescent". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 50:736-742.

RICE, M., HALL, J., PAPADAKIS, G., YIANNESKIS, M. 2006. "Investigation of laminar flow in a stirred vessel at low Reynolds numbers". *Chemical Engineering Science.* 61:2762-2770.

RIEGER, F., NOVAK, V. 1973. "Power consumption of agitators in highly viscous non-Newtonian liquids". *Transactions of the Institution of Chemical Engineers.* 51:2. 105-111.

RIVERA, C., HENICHE, M., ASCANIO, G., TANGUY, P.A. 2004. "A virtual finite element model for centered and eccentric mixer configurations". *Computers and Chemical Engineering.* 28:2459-2468.

ROONEY, T.C., HUIBREGTSE, G.L. 1983. "Increased oxygen transfer efficiency with coarse bubble diffusers". *Journal of Water Pollution Control Federation.* 52:2315-2326.

RUSHTON, J.H., COSTICH, E.W., EVERETT, H.J. 1955. "Power characteristic of mixing impellers Part I". *Chemical Engineering Progress.* 46:8. 395-404.

SAITO, F., NIENOW, A.W., CHATWIN, S., MOORE, I.P.T. 1992. "Power, gas dispersion and homogenization characteristics of Scaba SRGT and Rushton impellers". *Journal of Chemical Engineering of Japan.* 25:281-287.

SANCHEZ CERVANTES, M.I., LACOMBE, J., MUZZIO, F.J., ALVAREZ, M.M. 2006. "Novel bioreactor design for the culture of suspended mammalian cells. Part I: mixing characterization". *Chemical Engineering Science.* 61:8075-8084.

SHULER, M. L., KARGI, F. 2002. "Selection, scale-up, operation, and control of bioreactors". *Bioprocess Engineering, Basic Concepts.* Sous la direction de M.L. Shuler et F. Kargi. Upper Saddle River, New Jersey, U.S.A. Prentice Hall PTR.

SMITH, J. M., WARMOESKERKEN, M.M.C.G., ZEEF, E. 1987. "Flow conditions in vessel dispersing gases in liquids with multiple impellers". *Biotechnology processes: scale-up and mixing.* Sous la direction de C.S. Ho et J.Y. Oldshue. New York, U.S.A. American Institute of Chemical Engineers. 107-115.

SOLOMON, J., ELSON, T.P., NIENOW, A.W., PACE, G.W. 1981a. "Cavern sizes in agitated fluids with a yield stress". *Chemical Engineering Communications.* 11:143-164.

SOLOMON, J., NIENOW, A.W., PACE, G.W. 1981b. "Flow patterns in aerated plastic and pseudoplastic viscoelastic fluids". *Fluid Mixing I.* Institute of Chemical Engineers.

SOLOMONS, G.L., LEGRYS, G.A. 1981. *Method and apparatus for promoting fermentation. British Patent 1 584 103.*

SRIDHAR, T., POTTER, O.E. 1980. "Gas holdup and bubble diameters in pressurized gas-liquid stirred vessels". *Industrial and Engineering Chemistry, Fundamentals.* 19:1. 21-26.

SZALAI, E.S., ARRATIA, P., JOHNSON, K., MUZZIO, F.J. 2004. "Mixing analysis in a tank stirred with Ekato Intermig impellers". *Chemical Engineering Science.* 59:3793-3805.

TANGUY, P.A., THIBAULT, F. 2002. "Power consumption in the turbulent regime for a coaxial mixer". *Canadian Journal of Chemical Engineering.* 80:4. 601-603.

TANGUY, P.A., THIBAULT, F., BRITO-DE LA FUENTE, E., ESPINOSA-SOLARES, T., TECANTE, A. 1997. "Mixing performance induced by coaxial flat blade-helical ribbon impellers rotating at different speeds". *Chemical Engineering Science.* 52:11. 1733-1741.

TATTERSON, G.B. 1991a. *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc. 548 p.

TATTERSON, G.B. 1991b. "Gas dispersion in agitated tanks". *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* Sous la direction de G.B. Tatterson. New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc.

TATTERSON, G.B. 1991c. "Laminar mixing". *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* Sous la direction de G.B. Tatterson. New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc.

TATTERSON, G.B. 1991d. "Power consumption in turbulent mixing". *Fluid mixing and gas dispersion in agitated tanks.* Sous la direction de G.B. Tatterson. New York, U.S.A. McGraw-Hill, Inc.

TECANTE, C.A. 1991. *Mass transfer in rheologically complex fluids in helical ribbon screw-agitated and aerated tank.* 284 p. Thčse de doctorat, Université Laval , Québec, Canada- Département de Génie Chimique.

THIBAULT, F., TANGUY, P.A. 2002. "Power-draw analysis of coaxial mixer with Newtonian and non-Newtonian fluids in laminar regime". *Chemical Engineering Science.* 57:3861-3872.

VAN DE VUSSE, J.G. 1955. "Mixing by agitation of miscible liquids". *Chemical Engineering Science.* 4:178-200.

VAN PUYVELDE, D.R., YOUNG, B.R., WILSON, M.A., SCHMIDT, S.J. 1999. "Experimental determination of transverse mixing kinetics in a rolling drum by image analysis". *Powder Technology.* 106:183-191.

VANHOVE, D., BIAY, I. 1993. "Characterization of counter-rotating agitation for a gel-preparation reactor". *Récents Progrčs en Génie des Procédés (Études et Conception d'Équipements).* 7:30. 97-102.

VERMEULEN, T., WILLIAMS, G.M., LANGLOIS, G.E. 1955. "Interfacial area in liquid-liquid and gas-liquid agitation". *Chemical Engineering Progress.* 51:2. 85-94.

WARMOESKERKEN, M.M.C.G., FEIJEN, J., SMITH, J.M. 1981. "Institution of Chemical Engineers Symposium Series". 64, J1-J14.

WISE, W.S. 1951. "The measurement of the aeration of culture media". *Journal of General Microbiology.* 5:167-177.

YOSHIDA, M., YAMAGIWA, K., ITO, A., OHKAWA, A., ABE, M., TEZURA, S. et al. 2001. "Flow and mass transfer in aerated viscous Newtonian liquids in an unbaffled agitated vessel having alternating forward-reverse rotating impellers". *Journal of Chemical Technology and Biotechnology.* 76: 1185-1193.

ZALC, J.M., ALVAREZ, M.M., MUZZIO, F.J., ARIK, B.E. 2001. "Extensive validation of computed laminar flow in a stirred tank with three Rushton turbines". *AIChE Journal.* 47:2144-2154.

ZLOKARNIK, M. 2001a. "Homogenization". *Stirring: Theory and practice.* Sous la direction de M. Zlokarnik. Weinheim, Germany : Wiley-VCH Verlag GmbH.

ZLOKARNIK, M. 2001b. "Stirring, General". *Stirring: Theorie and practice.* Sous la direction de M. Zlokarnik. Weinheim, Germany : Wiley-VCH Verlag GmbH.

ANNEXES

Annexe 1 : Puissance d'agitation pour les fluides non newtoniens

Dans le cas des fluides non newtoniens, la viscosité dépend du taux de cisaillement appliqué au fluide. Analysons un fluide non newtonien décrit par le modèle Ostwald - de Waele plus connu sous le nom de loi de puissance :

$$\eta = m\left|\dot{\gamma}\right|^{n-1} \qquad \textbf{(A1-1)}$$

où η est la viscosité non newtonienne, m est l'indice de consistance du fluide et n l'indice d'écoulement de la loi de puissance.

A priori, l'analyse dimensionnelle nous permet d'écrire que le taux de cisaillement est représenté par la vitesse d'agitation dans l'expression du nombre de Reynolds ($\left|\dot{\gamma}\right| = N$) (RIEGER et NOVAK, 1973). On peut ainsi écrire le nombre de Reynolds dans le cas du modèle loi de puissance comme suit :

$$\mathrm{Re}_{Pl} = \frac{\rho N D^2}{\eta} = \frac{\rho N D^2}{m\left|\dot{\gamma}\right|^{n-1}} = \frac{\rho N D^2}{m.N^{n-1}} = \frac{\rho N^{2-n} D^2}{m} \qquad \textbf{(A1-2)}$$

Notons que chaque modèle rhéologique conduit à une expression différente du nombre de Reynolds.

Avec cette définition du nombre de Reynolds « loi de puissance », on peut exprimer la constante de puissance en régime laminaire dans le cas d'un fluide non newtonien obéissant à la loi de puissance :

$$K_P(m,n) = N_P.\mathrm{Re}_{Pl} = \frac{P}{\rho N^3 D^5}\frac{\rho N^{2-n} D^2}{m} = \frac{P}{mN^{n+1}D^3} \qquad \textbf{(A1-3)}$$

On remarque que la constante de puissance dans le cas d'un fluide non newtonien ne dépend plus seulement de l'agitateur, comme pour les fluides newtoniens, mais dépend aussi du fluide employé (K_P dépend des indices m et n).

Afin de déterminer facilement la puissance d'agitation en régime laminaire dans le cas d'un fluide non newtonien, METZNER et OTTO (1957) ont développé une approche basée sur l'étude des fluides newtoniens. Le but de cette approche est de créer un nombre de Reynolds nous permettant de lire le nombre de puissance correspondant sur la courbe de puissance obtenue avec un fluide newtonien. L'intérêt de ce nombre de Reynolds est de ne pas avoir à calculer la valeur de la constante de puissance K_P à chaque fois qu'on change de fluide. Pour ce faire, ces deux auteurs ont supposé qu'il existe, en régime laminaire, une relation de proportionnalité entre le taux de cisaillement moyen dans la cuve et la vitesse de rotation de l'agitateur (ce qui est en fait une analogie de Couette) :

$$\left|\dot{\gamma}_a\right| = K_S.N \qquad \textbf{(A1-4)}$$

Où K_S est une constante qui dépend de la géométrie du système d'agitation et N est la

vitesse de rotation de l'agitateur. K_S est couramment appelée constante de Metzner et Otto ou constante de cisaillement.

Connaissant le taux de cisaillement moyen dans la cuve de mélange, on a accès, par l'intermédiaire du modèle rhéologique, à la viscosité apparente (ou viscosité de procédé) valable sur l'ensemble de la cuve agitée. Ceci permet alors de calculer le nombre de Reynolds comme si on était dans le cas newtonien.

Si on prend le cas, par exemple, du nombre de Reynolds défini en utilisant la méthode de Metzner et Otto avec un fluide obéissant à la loi de puissance, nous obtenons:

$$\mathrm{Re}_{MO} = \frac{\rho N D^2}{\eta_a} = \frac{\rho N D^2}{m\left|\dot{\gamma}_a\right|^{n-1}} = \frac{\rho N D^2}{m.(K_S.N)^{n-1}} = \frac{\rho N^{2-n} D^2}{m.K_S^{n-1}} = \frac{\mathrm{Re}_{Pl}}{K_S^{n-1}} \qquad \textbf{(A1-5)}$$

L'intérêt de l'expression de Metzner et Otto est que la courbe de puissance ($log(N_P)=f(log(\mathrm{Re}_{MO}))$) devient unique pour tous les fluides non newtoniens et elle correspond à la courbe obtenue avec un fluide newtonien. Ainsi, la puissance consommée par l'agitateur en régime laminaire est déterminée grâce à une unique constante de puissance K_P qui est indépendante du fluide utilisé.

Afin de déterminer le taux de cisaillement moyen dans la cuve et par la suite la viscosité apparente, il est nécessaire d'estimer la constante K_S du système d'agitation. Pour ce faire on procède généralement comme suit (voir Figure A1-1):

1) Pour une vitesse de rotation donnée en régime laminaire (N'), et en mesurant la puissance consommée, on estime le nombre de puissance (N_P') pour le fluide non newtonien étudié. ($N_P'=P/\rho N'^3D^5$)
2) Connaissant la valeur du nombre N_P', on obtient la valeur du nombre de Reynolds de Metzner et Otto (Re_{MO}') à partir de la courbe de puissance pour les fluides newtoniens. On en déduit ainsi la viscosité apparente (η_a') grâce à l'expression du nombre de Reynolds de Metzner et Otto (voir équation (A1-5)).
3) À partir de la loi rhéologique du fluide non newtonien étudié ($\eta_a' = m|\dot{\gamma}_a|^{n-1}$ dans le cas de la loi de puissance), on obtient le taux de cisaillement ($|\dot{\gamma}_a|$) associé à la viscosité apparente. Connaissant la vitesse de rotation de l'agitateur, on détermine alors, à l'aide de l'équation (A1-4), la constante K_S.

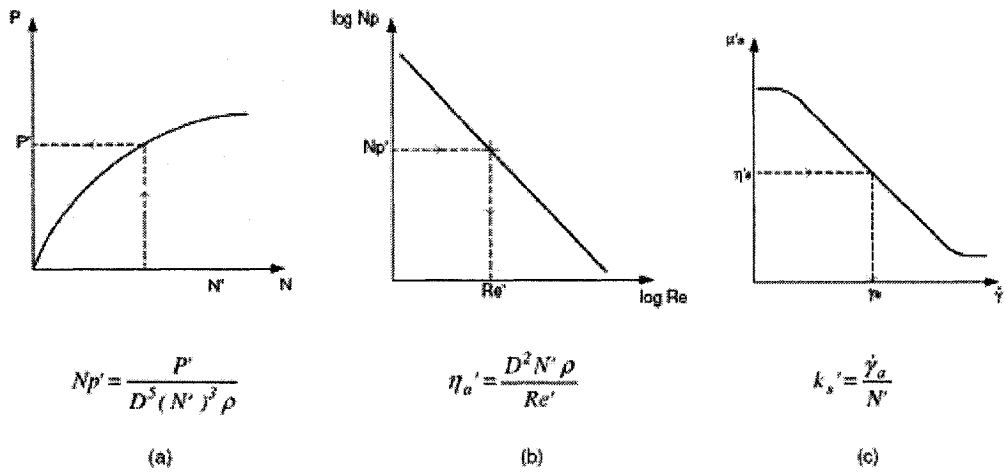


Figure A1-1 : Détermination de la constante K_S

Enfin, afin d'accentuer la précision de la constante K_S, on peut déterminer sa valeur pour différentes valeurs de la vitesse de rotation de l'agitateur en régime laminaire.

Une autre manière, proposée par RIEGER et NOVAK (1973), peut aussi être utilisée pour déterminer la constante K_S avec un fluide non newtonien obéissant à la loi de puissance.

Pour un fluide non newtonien obéissant à la loi de puissance, nous avons vu qu'en régime laminaire nous avons :

$$K_P = N_P.\mathrm{Re}_{MO} = N_P.\frac{\mathrm{Re}_{PI}}{K_S^{n-1}} \qquad \textbf{(A1-6)}$$

K_P correspondant à la constante de puissance dans le cas d'un fluide newtonien.

Et pour un fluide non newtonien obéissant à la loi de puissance, nous avons en régime laminaire:

$$K_P(m,n) = N_P.\mathrm{Re}_{Pl} \qquad \textbf{(A1-7)}$$

Nous pouvons donc écrire en utilisant les équations (A1-6) et (A1-7) :

$$N_P = \frac{K_P}{\mathrm{Re}_{MO}} = \frac{K_P(m,n)}{\mathrm{Re}_{Pl}} \Rightarrow \frac{K_P.K_S^{n-1}}{\mathrm{Re}_{Pl}} = \frac{K_P(m,n)}{\mathrm{Re}_{Pl}} \Rightarrow K_S = \left(\frac{K_P(m,n)}{K_P}\right)^{\frac{1}{n-1}} \qquad \textbf{(A1-8)}$$

Ainsi la détermination de K_p pour un fluide newtonien et la détermination de $K_p(m, n)$ pour un fluide non newtonien nous permet d'obtenir le K_S d'un agitateur.

Annexe 2 : Programme de traitement d'images

```
import java.io.*;
import java.lang.*;

class ProgPixelParPixel{

    public static int lireNpixelTotal (String args){
      try{
          InputStream ips=new FileInputStream(args);
          InputStreamReader ipsr=new InputStreamReader(ips);
          BufferedReader br=new BufferedReader(ipsr);
          br.readLine();
          String ligne2 = br.readLine();
          br.readLine();
          int pointeur=0;
          String nbligne=new String();
          String nbcolonne=new String();
          while (ligne2.charAt(pointeur) != ' ') {
            nbligne = nbligne + ligne2.charAt(pointeur);
            pointeur++;
          }
          for (int j = pointeur+1; j < ligne2.length(); j++){
            nbcolonne = nbcolonne + ligne2.charAt(j);
          }
          br.close();
          return Integer.parseInt(nbligne)*Integer.parseInt(nbcolonne);
      }
      catch (Exception e) {
          System.out.println(e.toString());
          return 0;
      }
    }


    public static int[][] TableauxValeurs (String Image,int
NpixelTotal){
      try{
          InputStream ips=new FileInputStream(Image);
          InputStreamReader ipsr=new InputStreamReader(ips);
          BufferedReader Fichier=new BufferedReader(ipsr);
          Fichier.readLine();
          Fichier.readLine();
          Fichier.readLine();
          String ligne=Fichier.readLine();
          int[][] Tableau=new int[3][NpixelTotal];
          int pointeur=0;
          for(int i=0;i<NpixelTotal;i++){
            String Rouge=new String();
            while(ligne.charAt(pointeur) != ' '){
                Rouge=Rouge+ligne.charAt(pointeur);
```

```
                pointeur++;
            }
            pointeur=pointeur+1;
            String Vert=new String();
            while (ligne.charAt(pointeur) != ' '){
                Vert=Vert+ligne.charAt(pointeur);
                pointeur++;
            }
            pointeur=pointeur+1;
            String Bleu=new String();
            while (ligne.charAt(pointeur) != ' '){
                Bleu=Bleu+ligne.charAt(pointeur);
                pointeur++;
            }
            pointeur=pointeur+1;
            Tableau[0][i]=Integer.parseInt(Rouge);
            Tableau[1][i]=Integer.parseInt(Vert);
            Tableau[2][i]=Integer.parseInt(Bleu);
          }
          Fichier.close();
          return Tableau;
      }
      catch (Exception e) {
          System.out.println(e.toString());
          int[][] r=new int[3][NpixelTotal];
          return r;
      }
    }


    public static int[][] Beta(String ImageDebut,String ImageFin,int
NpixelTotal){
      int[][]TableauDebut=TableauxValeurs(ImageDebut,NpixelTotal);
      int[][]TableauFin=TableauxValeurs(ImageFin,NpixelTotal);
      int[][]Beta=new int[3][NpixelTotal];
      for(int j=0;j<3;j++){
          for(int i=0;i<NpixelTotal;i++){
            if(TableauFin[0][i]==0){Beta[j][i]=0;}
            else {Beta[j][i]=(TableauDebut[j][i]+TableauFin[j][i])/2;}
          }
      }
      return Beta;
    }

    /*    public static int[] BetaMoyen(int[][] Beta,int NpixelTotal){

    int[] BetaMoyen=new int[2];
    int[] ValBeta=new int[2];
    int Nmoy=0;
    for(int j=0;j<2;j++){
    Nmoy=0;
    for(int i=0;i<NpixelTotal;i++){
    if(Beta[j][i]!=0){
```

```
    Nmoy=Nmoy+1;
    ValBeta[j]=ValBeta[j]+Beta[j][i];
    }
    }
    }
    BetaMoyen[0]=ValBeta[0]/Nmoy;
    BetaMoyen[1]=ValBeta[1]/Nmoy;
    return BetaMoyen;
    }
    */

    public static int NpixelAgit(int[][] Beta,int NpixelTotal){
      int Npixel=0;
      for(int i=0;i<NpixelTotal;i++){
          if(Beta[0][i]==0){Npixel=Npixel+1;};
      }
      return Npixel;
    }



    public static int[] Purple(String Image,int[][] Beta,int
NpixelTotal){
      int[][]TableauImage=TableauxValeurs(Image,NpixelTotal);
      int[]Purple=new int[3];
      for(int j=0;j<3;j++){
          for(int i=0;i<NpixelTotal;i++){
            if(TableauImage[j][i]<Beta[j][i]){Purple[j]=Purple[j]+1;}
          }
      }
      return Purple;
    }

    /*    public static int[] PurpleMoyenne(String Image,int[]
BetaMoy,int NpixelTotal){
        int[][]TableauImage=TableauxValeurs(Image,NpixelTotal);
        int[]Purple=new int[2];
        for(int j=0;j<2;j++){
        for(int i=0;i<NpixelTotal;i++){
        if(TableauImage[j][i]<BetaMoy[j] &&
TableauImage[j][i]!=0){Purple[j]=Purple[j]+1;}
        }
        }
        return Purple;
        }
    */

    public static double lireTemps (String args) {
      int pointeur=0;
      while (args.charAt(pointeur) !='_') {
          pointeur++;
      }
      String minutes=new String();
```

```
      String secondes=new String();
      String fractions=new String();
      minutes=minutes+args.charAt(pointeur+3)+args.charAt(pointeur+4);
      secondes=secondes+args.charAt(pointeur+6)+args.charAt(pointeur+7)
;
      fractions=fractions+args.charAt(pointeur+9)+args.charAt(pointeur+
10);
      double
Time=Integer.parseInt(minutes)*60+Integer.parseInt(secondes)+Integer.pa
rseInt(fractions)*0.04;
      return Time;
    }


    public static void EcrireCrbesMelange(String Image,int[][]
Beta,double TempsInjec,FileWriter FW,int NAg,int NpixelTotal){
      try {
          FW.write(Double.toString(lireTemps(Image)-TempsInjec)+' ');
          int[] Npurple=Purple(Image,Beta,NpixelTotal);
          //          int[]
NpurpleMoy=PurpleMoyenne(Image,BetaMoy,NpixelTotal);

          double PourRouge=100-100*(Npurple[0])/(double)(NpixelTotal-
NAg);
          double PourVert=100-100*(Npurple[1])/(double)(NpixelTotal-
NAg);
          double PourBleu=100-100*(Npurple[2])/(double)(NpixelTotal-
NAg);
          // double PourRougeMoy=100-
100*(NpurpleMoy[0])/(double)(NpixelTotal-NAg);
          // double PourVertMoy=100-
100*(NpurpleMoy[1])/(double)(NpixelTotal-NAg);
          //  FW.write(Double.toString(PourRouge)+' ');
          FW.write(Double.toString(PourRouge)+' ');
          //FW.write("  "+Double.toString(PourRougeMoy)+' ');
          //FW.write(Double.toString(PourVertMoy)+' ');
          FW.write(Double.toString(PourVert)+' ');
          FW.write(Double.toString(PourBleu)+' ');
          FW.write('\n');
      }
      catch (IOException e) {
          System.out.println("Erreur dans l'écriture du fichier !");
      }
    }


    public static void main(String[] args){


      double TempsInjec=lireTemps(args[0]);        //TEMPS INJECTION
      int NpixelTotal=lireNpixelTotal(args[0]);    //NpixelTotal
      int[][] Beta=Beta(args[0],args[args.length-1],NpixelTotal);
      //int[] BetaMoy=BetaMoyen(Beta,NpixelTotal);
```

```
        int NpixelAgit=NpixelAgit(Beta,NpixelTotal);
        System.out.println("Nom fichier data ?");
        String Fichier=Keyboard.readString();
        try{
            FileWriter FW = new FileWriter(Fichier+".txt");
            for(int i=0;i<args.length-1;i++){
              System.out.print(100*(i)/(args.length-1)+"%"+' ');

        EcrireCrbesMelange(args[i],Beta,TempsInjec,FW,NpixelAgit,NpixelTo
tal);
            }
            FW.close();
        }
        catch (IOException e) {
            System.out.println("Erreur dans l'écriture du fichier !");
        }
    }
}
```