

# Distribution des temps de séjour du liquide en écoulement tourbillonnaire non-entretenu liquide–solide: influence de la présence de solide

## Distribution of staying times of liquid in a non-maintained liquid–solid edding flow: influence of the presence of solids

P. Legentilhomme \*, L. Brujes, J. Legrand

Laboratoire de Génie des Procédés, I.U.T., B.P. 420, F-44606 Saint-Nazaire Cédex, France

Reçu le 24 octobre 1995; révisé le 9 septembre 1996; accepté le 12 février 1997

### Résumé

Ce travail a trait à la modélisation globale, à partir de la distribution des temps de séjour, de l'écoulement d'un liquide, en présence d'une phase dispersée constituée de microcapsules à différentes concentrations, dans des cellules annulaires ou tubulaires équipées d'une entrée tangentielle unique générant un écoulement tourbillonnaire non-entretenu. Dans le cas des écoulements tourbillonnaires pur ou avec contraction (diamètre de l'entrée tangentielle,  $\phi_e$ , supérieur ou égal à l'entrefer,  $e$ , de la cellule annulaire), l'hydrodynamique du liquide est décrite à l'aide du modèle piston avec dispersion axiale. Dans ces configurations, bien que l'écoulement soit très proche du modèle piston, l'adjonction d'une faible concentration en phase solide entraîne une augmentation de la dispersion axiale due à un mélange accru. Les écoulements tourbillonnaires tubulaire et annulaire avec expansion ( $\phi_e < e$ ), caractérisés par une importante zone de recirculation à la base de la cellule, sont modélisés en associant un volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale échangeant de la matière avec une zone stagnante. Suivant le débit, quelle que soit la concentration en phase dispersée, la fraction de volume stagnante peut atteindre 40% du volume total de la cellule et semble peu sensible à la concentration en microcapsules, l'hydrodynamique dans la zone en écoulement demeurant proche du modèle piston. © 1997 Elsevier Sciences S.A.

**Mots clés:** Écoulement tourbillonnaire; Suspension liquide–solide; Distribution des temps de séjour; Dispersion axiale; Zone stagnante  
**Keywords:** Turbulent flow; Liquid–solid suspension; Distribution of staying times; Axial dispersion; Stagnant zone

### 1. Liste des symboles

$A = KL/U_m$	coefficient de transfert de matière adimensionnel	$\mathcal{L}'_2(s)$	transformée de Laplace de la concentration normalisée à la sortie de la cellule
$C$	concentration en traceur/mol $m^{-3}$	$\mathcal{L}'_{2calc}(s)$	transformée de Laplace de la concentration normalisée calculée à la sortie de la cellule
$C^*$	concentration en traceur dans la zone stagnante/mol $m^{-3}$	$D_{ax}$	coefficient de dispersion axiale/ $m^2 s^{-1}$
$C_1(t)$	concentration en traceur à l'entrée de la cellule/mol $m^{-3}$	$D_{rad}$	coefficient de dispersion radiale/ $m^2 s^{-1}$
$C_2(t)$	concentration en traceur à la sortie de la cellule/mol $m^{-3}$	$2e = 2(R_2 - R_1)$	diamètre hydraulique de l'espace annulaire/m
$C_{caps}$	concentration en microcapsules/ $g l^{-1}$	EQM	erreur quadratique moyenne entre les courbes de sortie expérimentale et calculée/%
$\mathcal{L}'_1(s)$	transformée de Laplace de la concentration normalisée à l'entrée de la cellule	$f$	fraction de volume de la cellule siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale

\* Adresse de correspondance.

$F(s)$	fonction de transfert du modèle choisi
$F_1(s)$	fonction de transfert du modèle piston avec dispersion axiale (Eqn. (2))
$F_2(s)$	fonction de transfert du modèle piston avec dispersion axiale couplé avec une zone stagnante échangeant de la matière (Eqn. (7))
$F_3(s)$	fonction de transfert du modèle piston couplé avec une zone stagnante échangeant de la matière (Eqn. (8))
$F_4(s)$	fonction de transfert du modèle piston couplé avec une zone parfaitement agitée (Eqn. (9))
$K$	coefficient de transfert de masse entre la zone siège d'un écoulement et la zone stagnante/ $s^{-1}$
$L$	distance entre les détecteurs d'entrée et de sortie/m
$N = R_1/R_2$	rapport caractéristique de l'entrefer de l'espace annulaire
$Pe_d = 2 = eU_m/D_{ax}$	nombre de Péclet basé sur le diamètre hydraulique
$Pe_L = LU_m/D_{ax}$	nombre de Péclet basé sur la longueur de la cellule
$R$	rayon de la cellule tubulaire/m
$R_1$	rayon extérieur du cylindre intérieur de la cellule annulaire/m
$R_2$	rayon intérieur du cylindre extérieur de la cellule annulaire/m
$Re = 2eU_m/\nu$ ou $2RU_m/\nu$	nombre de Reynolds
$S_o = 4(1+N)(e/\phi_e)^2/(1-N)$	intensité tourbillonnaire initiale
$t$	temps/s
$t_m$	temps de séjour moyen/s
$t_p$	temps de séjour dans une zone siège d'un écoulement piston/s
$t_r = 1/K$	temps caractéristique du transfert de matière entre la zone en écoulement et le volume stagnant/s
$t_{Rac}$	temps de séjour moyen dans une zone parfaitement agitée e/s
$U_m$	vitesse moyenne débitante dans la cellule/ $m\ s^{-1}$
$z$	coordonnée dans le sens de l'écoulement/m

#### Lettres grecques

$\beta, \gamma$	paramètres définis dans Eqn. (7)
$\nu$	viscosité cinématique du liquide/ $m^2\ s^{-1}$

$\rho$	masse volumique du liquide/ $kg\ m^{-3}$
$\phi_e$	diamètre de l'entrée tangentielle/m

## 2. Introduction

Depuis plusieurs décennies, un grand nombre de travaux, tant expérimentaux que théoriques, est consacré à la caractérisation des écoulements tourbillonnaires qui se distinguent par l'existence d'une composante angulaire de vitesse élevée [1]. La présence de tourbillons, engendrant des caractéristiques intéressantes (coefficients de transfert élevés, propriétés de mélange, etc.), est d'ores et déjà mise à profit dans de nombreuses réalisations industrielles. L'augmentation des coefficients de transfert de matière ou de chaleur par rapport à un écoulement purement axial a été utilisée par Cedrone [2] ou Walsh et Wilson [3] dans des cellules électrochimiques équipées d'entrées tangentielles générant une hydrodynamique tourbillonnaire non-entretenue permettant de récupérer l'argent ou l'or initialement contenus dans des bains électrolytiques très dilués. De même, l'induction d'un écoulement tourbillonnaire dans un échangeur double-tubes permet de diminuer considérablement la surface nécessaire à l'échange d'une quantité de chaleur donnée [4]. Depuis longtemps, les cyclones, dans lesquels l'écoulement tourbillonnaire permet de séparer des matériaux de densités différentes, sont largement utilisés dans des domaines très diversifiés: industrie pétrolière [5]; dépolluage d'air chaud [6]; pyrolyse éclair du bois [7] ou traitement des eaux pluviales [8]. De même, les propriétés de mélange inhérentes aux écoulements tourbillonnaires ont été mises à profit par Ou et al. [9] pour concevoir un réacteur tubulaire basé sur des entrées tangentielles des réactifs assurant un mélange très efficace.

Depuis quelques années, nous avons entrepris une étude systématique des écoulements tourbillonnaires non-entretenus induits par une entrée tangentielle située à la base d'une cellule annulaire ou tubulaire disposée verticalement. Des mesures de transfert de matière global sur le cylindre intérieur de plusieurs cellules annulaires [10,11] et des campagnes de visualisation [12,13] ont permis de révéler le caractère fortement tridimensionnel de ce type d'écoulement, principalement à la base et au voisinage immédiat des deux cylindres constituant la cellule annulaire [13]. Ces investigations à caractère fondamental ont mis à jour les propriétés de mélange inhérentes à ce type d'hydrodynamique par ailleurs très complexe. Ainsi, la région siège d'écoulements très perturbés, à la base de la cellule, avec apparition d'une zone de recirculation très étendue dans le cas de l'utilisation d'une entrée tangentielle de diamètre,  $\phi_e$ , inférieur à l'entrefer,  $e$ , de l'espace annulaire [11,12] pourrait être mise à profit pour la mise en oeuvre de réactions chimiques nécessitant un mélange initial efficace suivi d'un volume réactionnel siège d'un écoulement plus piston, permettant d'atteindre une conversion élevée.

Le travail que nous présentons par la suite est consacré à la caractérisation globale de l'écoulement d'un liquide, en présence de différentes concentrations en solide, dans plusieurs cellules annulaires et une cellule tubulaire équipées d'une entrée tangentielle unique. Cette étude est réalisée à partir de la détermination expérimentale de la Distribution des Temps de Séjour (D.T.S.) du liquide. Dans un travail précédent, Legentilhomme et Legrand [14] ont modélisé, en utilisant la même démarche expérimentale, l'écoulement d'un liquide pur dans une cellule annulaire équipée d'une entrée tangentielle générant un écoulement tourbillonnaire pur ( $\phi_e = e$ ) ou avec contraction ( $\phi_e \geq e$ ). Le but de la présente étude est d'étendre cette investigation au cas des écoulements tourbillonnaires avec expansion ( $\phi_e \leq e$ ) qui semblent a priori les plus intéressants du point de vue mélange, du fait de la zone de recirculation qu'ils génèrent [11]. Par ailleurs, le but final de ce travail étant de mettre au point un procédé continu de microencapsulation d'un agent virucide, le fluide de travail est une suspension aqueuse de différentes concentrations en microcapsules, obtenues par un procédé discontinu d'évaporation de solvant dans un réacteur de type cuve agitée [15]. La mise en oeuvre de ce type d'opération en continu nécessite une bonne maîtrise des temps de séjour des différentes phases en présence pour assurer une rigidité satisfaisante de la coque des microcapsules, tout en contrôlant leur contenu en principe actif [15].

### 3. Dispositif expérimental et technique de mesure

#### 3.1. Configurations étudiées, suspension liquide–solide

La détermination expérimentale de la distribution des temps de séjour a été réalisée en utilisant la même installation pilote que celle employée par Legentilhomme et Legrand [14] pour modéliser globalement l'hydrodynamique dans différentes cellules annulaires siège d'un écoulement tourbillonnaire monophasique liquide induit par une entrée tangentielle à la base de la cellule disposée verticalement. Dans le présent travail, plusieurs cellules annulaires et une cellule tubulaire ont été employées.

Les cellules annulaires se présentent sous la forme de deux cylindres coaxiaux de 385 mm de longueur totale. Le cylindre extérieur a un rayon intérieur, constant,  $R_2$ , égal à 25 mm. Trois cylindres intérieurs de rayons extérieurs,  $R_1$ , de 18, 10.5 et 8 mm ont été utilisés. Deux entrées tangentielles de 7 et 9 mm de diamètre permettent de générer les trois catégories d'écoulement tourbillonnaire décelées par Legentilhomme et Legrand [11] lors de l'étude du transfert de matière global dans une telle configuration siège d'un écoulement liquide: (i) une hydrodynamique dite "tourbillonnaire pure" lorsque le diamètre de l'entrée tangentielle,  $\phi_e$ , est égal à l'entrefer ( $e = R_2 - R_1$ ) de l'espace annulaire ( $e = \phi_e = 7$  mm). Dans cette configuration, la structure tourbillonnaire, caractérisée par une trajectoire hélicoïdale du fluide, dégénère de façon monotone lorsque l'on s'éloigne du générateur de tourbillons.

(ii) un écoulement "tourbillonnaire avec contraction" lorsque  $\phi_e$  est supérieur à l'épaisseur intercylindres ( $e = 7$  mm;  $\phi_e = 9$  mm). Dans ce cas, Legentilhomme et Legrand [11] ont montré que l'évolution du mouvement hélicoïdal vers un écoulement à dominante axiale s'effectue plus rapidement, lorsque l'on s'éloigne de l'entrée tangentielle. (iii) une hydrodynamique "tourbillonnaire avec expansion" lorsque  $\phi_e$  est inférieur à l'entrefer de la cellule. Dans ce cas, l'existence d'un divergent entrée tangentielle-espace intercylindres engendre une zone de recirculation pouvant s'étendre sur plus du tiers de la hauteur totale de la cellule [12].

La cellule tubulaire, d'un rayon intérieur de 30 mm pour une longueur de 1315 mm, est équipée d'une entrée tangentielle de 10 mm de diamètre. Dans cette configuration, l'utilisation d'une suspension liquide–solide comme fluide de travail a montré qu'il existe également une région siège d'écoulements de recirculation principalement localisée à la base de la cellule et le long de l'axe de celle-ci sur la quasi-totalité de sa hauteur. Cette constatation visuelle est en accord avec les travaux numériques de Bottaro et al. [16] qui ont montré que, lors de l'écoulement tourbillonnaire généré dans un tube par une entrée tangentielle unique, il apparaît une zone de recirculation, principalement à la base de la cellule, mais qui s'étend le long de l'axe du tube lorsque le nombre de Reynolds augmente. Les écoulements tourbillonnaires annulaire et tubulaire avec expansion seront plus particulièrement discutés par la suite dans la perspective de leur utilisation dans un procédé de microencapsulation en continu.

Les différentes configurations, les volumes,  $V$ , des cellules ainsi que les gammes de variation du nombre de Reynolds, basé sur le diamètre hydraulique et la vitesse débitante, sont récapitulés dans le Tableau 1.

La suspension liquide–solide utilisée est composée d'eau et de microcapsules, contenant un produit virucide, obtenues par un procédé discontinu d'évaporation de solvant [15]. Le diamètre moyen en nombre des microcapsules est de 130  $\mu\text{m}$  avec un écart type de l'ordre de 50  $\mu\text{m}$ . La distribution de tailles des microcapsules a été déterminée à l'aide d'un microscope optique (NIKON SMZ-U) couplé à une caméra CCD couleur (SONY XC-007) reliée à un micro-ordinateur équipé d'une carte de digitalisation (MATROX-PIP). Un programme spécifique permet de mesurer le diamètre d'un échantillon de microcapsules (plusieurs centaines) à partir des images digitalisées et d'accéder ainsi à la distribution de taille [15]. La masse volumique de ces microcapsules est égale à 1050  $\text{kg m}^{-3}$  et par conséquent très proche de celle du fluide de travail, limitant ainsi d'éventuels problèmes de sédimentation. Trois concentrations massiques de 1, 5 et 10  $\text{g l}^{-1}$  ont été utilisées. Ces concentrations massiques correspondent respectivement à des fractions volumiques en phase solide voisines de 0.1, 0.5 et 1%. Les distributions expérimentales des temps de séjour, pour ces trois fractions de solide, seront comparées à celles obtenues par Legentilhomme et Legrand [14] en écoulement monophasique. Les concentrations en microcapsules,  $C_{\text{caps}}$ , comprises

Tableau 1  
Les différentes configurations étudiées

Cellules annulaires						
$R_1/\text{mm}$	$N=R_1/R_2$	$e=R_2-R_1/\text{mm}$	$\phi_e/\text{mm}$	$V/\text{m}^3 \times 10^4$	Re	Type d'écoulement
18.0	0.72	7.0	7.0	4.03	180–4500	Pur
18.0	0.72	7.0	9.0	4.05	110–4800	Contraction
10.5	0.42	14.5	7.0	6.67	220–5200	Expansion
8.0	0.32	17.0	14.5	7.67	320–5200	Expansion
Cellule tubulaire						
Rayon/mm	$\phi_e/\text{mm}$	$V/\text{m}^3 \times 10^4$	Re	Type d'écoulement		
30.0	10.0	37.18	260–7300	Expansion		

entre 1 et  $10 \text{ g l}^{-1}$  correspondent à celles relevées à la fin du procédé de microencapsulation [15]. Le débit dans l'installation est déterminé à partir du temps de séjour moyen, issu de la modélisation des courbes de D.T.S., et du volume des cellules (Tableau 1). Dans le cas d'un liquide pur, les débits ainsi calculés sont en très bon accord avec ceux mesurés à l'aide d'un débitmètre à flotteur. De plus, compte tenu de la masse volumique des microcapsules, la fraction volumique de la phase solide est au maximum de 1% ( $C_{\text{caps}} = 10 \text{ g l}^{-1}$ ), le volume accessible au liquide représente par conséquent plus de 99% du volume total de la cellule. De ce fait, l'erreur commise sur le calcul du débit à partir du volume total des cellules semble tout à fait acceptable. De plus, on n'observe visuellement aucune rétention de solide à la base des cellules de mesure, même aux plus faibles débits, ce qui diminuerait le cas échéant le volume réellement offert à l'écoulement. Durant l'établissement du régime stationnaire, la suspension circule en circuit fermé, alors qu'elle s'écoule vers un réservoir auxiliaire pendant l'obtention de la D.T.S. de manière à ne pas modifier la ligne de base des détecteurs en cours de manipulation (voir paragraphe suivant). A la température de travail de  $30^\circ\text{C}$ , la masse volumique,  $\rho$ , et la viscosité cinématique,  $\nu$ , de l'eau sont égales à  $995 \text{ kg m}^{-3}$  et  $8.24 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  respectivement.

### 3.2. Détermination de la distribution des temps de séjour

L'étude expérimentale de la distribution des temps de séjour est mise en oeuvre en employant la même méthode conductimétrique à deux points de mesure que celle utilisée par Legentilhomme et Legrand [14]. Cette technique consiste à enregistrer l'évolution temporelle de la concentration en entrée et en sortie de la cellule à la suite d'une injection de forme quelconque d'un faible volume ( $\cong 0.5 \text{ cm}^3$ ) d'hydroxyde de sodium à  $0.25 \text{ mol l}^{-1}$ . L'utilisation de cette méthode à deux points de mesure permet de s'affranchir des difficultés inhérentes à la réalisation d'une injection parfaite de type impulsion ou échelon, mais l'identification des paramètres caractéristiques d'un modèle donné s'avère plus

complexe [17]. Le traceur est détecté à l'aide de deux cellules de conductivité identiques, constituées de deux plaques hémicylindriques, reliées à deux conductimètres à fréquence variable (TACUSSEL CD810). Une différence de potentiel alternative de 1 kHz de fréquence est appliquée entre les deux électrodes de chaque cellule de conductivité de manière à obtenir une dépendance linéaire de la conductivité en fonction de la concentration en traceur. L'enregistrement des concentrations en traceur,  $C_1(t)$  et  $C_2(t)$ , respectivement à l'entrée et à la sortie de la cellule étudiée permet de déterminer la D.T.S. et de vérifier le bilan traceur qui boucle à moins de 10% pour les données analysées dans la suite de ce travail. Les signaux  $C_1(t)$  et  $C_2(t)$  sont échantillonnés à une fréquence variant entre 7 à 60 Hz, selon le débit, par une centrale d'acquisition de données (AOIP SA70) couplée à un micro-ordinateur compatible IBM P.C. à l'aide duquel est réalisée l'analyse des données expérimentales.

Bien que la soude à  $0.25 \text{ mol l}^{-1}$  ait une masse volumique et surtout une viscosité différentes de celles de l'eau, la faible quantité de traceur injectée permet de considérer que les propriétés physico-chimiques du liquide et le débit restent constants durant chaque expérience. Pendant l'obtention des courbes de D.T.S., du fait de l'injection d'un traceur fortement conducteur, la suspension liquide-solide n'est pas recyclée de manière à ne pas modifier la conductivité à l'entrée de la cellule de mesure. Cependant, pour limiter la consommation de microcapsules, dont la fabrication demeure coûteuse, la solution by-passée vers le réservoir auxiliaire est mélangée à celle du circuit principal à la fin de chaque expérience, la circulation de la suspension permettant d'obtenir rapidement une nouvelle conductivité de base stable. Cette procédure permet d'effectuer une vingtaine d'expériences sans renouveler la solution de travail.

### 4. Modélisation de la distribution des temps de séjour

Legentilhomme et Legrand [14], ont modélisé l'écoulement d'un liquide seul en présence d'une hydrodynamique

mique tourbillonnaire pure ou avec contraction en employant le modèle piston avec dispersion axiale. Ce modèle a été utilisé avec succès depuis une quarantaine d'années pour caractériser des écoulements très diversifiés, tels que: écoulement axial dans des conduites vides [18]; écoulements dans des lits fixes [19] ou fluidisés [20]; hydrodynamique dans une cellule de type Couette [21] ou Taylor–Couette [22]. Ce modèle, qui consiste à superposer à l'écoulement piston une dispersion dans le sens de l'écoulement, due aux fluctuations locales de la composante axiale de vitesse, a permis de révéler le caractère globalement piston du champ de vitesse dans une cellule annulaire munie d'une entrée tangentielle de diamètre supérieur ou égal à l'épaisseur inter-cylindres [14]. Les fluctuations de la vitesse axiale sont décrites à travers le coefficient de dispersion axiale,  $D_{ax}$ , sous la forme d'une équation analogue à la loi de diffusion de Fick. Pour les faibles vitesses,  $D_{ax}$  résulte d'une combinaison des effets dispersifs dus à la convection et de la diffusion moléculaire [18]. Pour les écoulements de convection forcée, comme celui étudié dans le présent travail, la contribution de la diffusion moléculaire devient négligeable ( $Re \geq 100$ , Tableau 1). Les variations de la concentration,  $C$ , du traceur, supposée constante sur toute la section de la cellule (dispersion radiale négligeable), en fonction du temps,  $t$ , et de la coordonnée spatiale dans le sens de l'écoulement,  $z$ , sont décrites par la relation suivante:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{ax} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - U_m \frac{\partial C}{\partial z} \quad (1)$$

où  $U_m$  est la vitesse débitante dans la cellule.

Dans Eqn. (1), le coefficient de dispersion axiale est supposé indépendant de la concentration en traceur,  $C$ , et de la coordonnée spatiale dans le sens de l'écoulement,  $z$ . Si la première condition est vérifiée lorsque la diffusion moléculaire peut être négligée, il est clair que le fait de supposer  $D_{ax}$  indépendant de  $z$  en présence d'un écoulement tourbillonnaire non-entretenu, pour lequel l'hydrodynamique évolue considérablement lorsque l'on s'éloigne de l'entrée tangentielle [13,23], ne constitue qu'une première approximation. Legentilhomme et Legrand [14] ont discuté ce problème, et notamment l'utilité d'introduire une dispersion radiale, ce qui entraînerait une complexité accrue quant à la détermination des paramètres du modèle sans améliorer considérablement l'adéquation avec l'expérience, qui s'avère par ailleurs tout à fait acceptable en ce qui concerne les écoulements tourbillonnaires pur ou avec contraction. Ainsi, le fait d'introduire un paramètre supplémentaire,  $D_{rad}$ , n'améliorerait pas obligatoirement de manière significative l'accord modèle-expérience, du fait des difficultés supplémentaires rencontrées lors de la détermination des paramètres optimaux à l'aide d'un algorithme de programmation non-linéaire dont la convergence vers le minimum global d'une fonction critère devient d'autant plus problématique que le nombre de paramètres à identifier est élevé [24].

La coque des microcapsules est très résistante et est supposée se rompre sous les seules actions d'une forte pression

ou par perçage par une seringue par exemple [15]. Par ailleurs, la diffusion de l'agent virucide (ammonium quaternaire) à travers la coque des microcapsules est très lente. Legrand et al. [15] ont établi une relation empirique permettant de traduire la cinétique de relargage du produit encapsulé dans l'eau. Pour un temps de séjour maximum des microcapsules de l'ordre de 300 s (cellule tubulaire pour  $Re \cong 260$ ), l'application de la corrélation de [15] conduit à une quantité de produit relarguée de l'ordre de 2% en masse du contenu initial des microcapsules. Cette faible fuite justifie l'utilisation d'un modèle d'écoulement sans transfert entre la phase liquide et la phase solide. De plus, le fait que le bilan traceur soit correctement satisfait permet également de négliger une éventuelle adsorption de ce traceur à la surface des microcapsules.

Les deux paramètres caractéristiques du modèle piston avec dispersion axiale, le temps de séjour moyen,  $t_m$ , et le critère de Péclet du réacteur,  $Pe_L = U_m L / D_{ax}$  ( $L$  étant la distance entre les deux cellules de conductivité), sont déterminés par la méthode dite du "tracé de courbes dans le domaine temporel" [17,25]. Cette technique d'identification paramétrique semble la plus adaptée au traitement des courbes de D.T.S. d'après Fahim et Wakao [26]. La méthode est basée sur la comparaison de la courbe de sortie expérimentale avec une courbe réponse calculée à partir du signal d'entrée et de la fonction de transfert du modèle.

Dans un premier temps, les signaux  $C_1(t)$  et  $C_2(t)$  sont normalisés. Les deux courbes normalisées sont ensuite mises sous la forme de séries de Fourier. La résolution de l'équation différentielle Eqn. (1), en utilisant la transformation de Laplace, permet de calculer la fonction de transfert  $F(s) = C'_{2calc}(s) / C'_1(s)$ , où  $C'_1(s)$  et  $C'_{2calc}(s)$  représentent respectivement les transformées de Laplace de la courbe expérimentale d'entrée et de la courbe réponse calculée normalisées. Legentilhomme et Legrand [14] ont distingués deux cas qui diffèrent par les conditions aux limites appliquées à la résolution de Eqn. (1): (i) l'écoulement dit "Ouvert-Ouvert" à la dispersion pour lequel le phénomène de dispersion axiale s'étend aux zones situées respectivement avant le détecteur d'entrée et après le détecteur de sortie. (ii) l'écoulement "Fermé-Fermé" à la dispersion pour lequel la dispersion axiale est limitée à la région située entre les deux détecteurs. Ces auteurs ont montré que pour ce qui est des écoulements tourbillonnaires pur ou avec contraction, les deux types de conditions aux limites conduisent à des résultats très voisins, compte tenu du caractère globalement piston de l'hydrodynamique. Cependant, Legentilhomme et Legrand [14] ont adopté le modèle "Fermé-Fermé" à la dispersion, l'écoulement purement axial dans les conduites d'entrée-sortie étant a priori très différent de celui rencontré à l'intérieur de la cellule caractérisé par une composante tangentielle de vitesse importante [13]. Dans ce cas, la fonction de transfert,  $F_1(s)$ , du modèle piston avec dispersion axiale, est donnée par [27]:

$$F_1(s) = \frac{2\alpha^{1/2} \exp\left\{\frac{1}{2} [Pe_L - \alpha^{1/2}]\right\}}{(Pe_L + \alpha^{1/2}) - (Pe_L - \alpha^{1/2}) \exp\{-\alpha^{1/2}\}} \quad (2)$$

avec  $\alpha = Pe_L^2 + 4sPe_L t_m$ .

En exprimant  $F_1(s)$  dans le domaine de Fourier, on peut calculer la courbe réponse théorique,  $C'_{2calc}(t)$ , par l'intermédiaire des transformées de Fourier:

$$F_1(i\omega) = \frac{\int_0^{2T} C'_{2calc}(t) \exp(-i\omega t) dt}{\int_0^{2T} C'_1(t) \exp(-i\omega t) dt} \quad (3)$$

où  $\omega$  représente la pulsation des séries de Fourier et  $2T$  est le temps séparant le décollage de la courbe d'entrée de la fin de la courbe réponse.

La comparaison des signaux de sortie expérimental,  $C'_2(t)$ , et calculé à l'aide de la fonction de transfert,  $C'_{2calc}(t)$ , est réalisée en évaluant l'Erreur Quadratique Moyenne, EQM, entre ces deux courbes [17]:

$$EQM = \left[ \frac{\int_0^{2T} (C'_2(t) - C'_{2calc}(t))^2 dt}{\int_0^{2T} (C'_2(t))^2 dt} \right]^{1/2} \quad (4)$$

EQM est une fonction de  $Pe_L$  et  $t_m$  dont le minimum est recherché en utilisant l'algorithme d'optimisation de Rosenbrock [28].

Rangaiah et Krishnaswamy [24] ont discuté l'incidence, sur la validité de la modélisation des courbes expérimentales de D.T.S., de l'optimisation du temps de séjour moyen,  $t_m$ , ou de l'utilisation de  $t_m$  obtenu en calculant le premier moment de la D.T.S. En utilisant quatre modèles différents et huit courbes expérimentales de distribution des temps de séjour obtenues dans des écoulements très divers. Ces auteurs ont conclu qu'il est préférable de considérer  $t_m$  comme un paramètre à optimiser. Cette démarche conduit à une erreur, EQM, plus faible en évitant de donner trop de poids à une éventuelle traînée sur la courbe réponse,  $C_2(t)$ , dont l'importance peut être surestimée lors du calcul du premier moment. Bien que les valeurs de  $t_m$  obtenues par les deux méthodes soient très proches dans notre cas (moins de 5% d'écart pour toutes les D.T.S.), nous avons néanmoins employé la procédure préconisée par Rangaiah et Krishnaswamy [24], en utilisant le premier moment pour initialiser l'algorithme d'optimisation. Les paramètres issus du modèle sont considérés comme corrects si  $0.05 \leq EQM \leq 0.10$  et très satisfaisants lorsque  $EQM \leq 0.05$  [24].

Comme nous l'avons signalé précédemment, les écoulements tourbillonnaires associés à une expansion entrée tangentielle-entrefer de l'espace annulaire sont caractérisés par

l'existence d'une zone de recirculation importante. En ce qui concerne les cellules annulaires, on observe une large zone de recirculation principalement localisée à la base de la cellule et au contact du cylindre intérieur. Legentilhomme et Legrand [12] ont visualisé ce phénomène en utilisant un indicateur coloré dont le virage est engendré par une brusque variation du pH due à un dégagement d'hydrogène ou d'oxygène sur le cylindre interne lui-même. On observe, à la base de la cellule, un "anneau de fluide" très stable tournant à grande vitesse. Lorsque l'on s'éloigne de l'entrée tangentielle, l'intensité tourbillonnaire diminuant, la zone de recirculation s'estompe et l'écoulement s'axialise. En configuration tubulaire, les phénomènes de recirculation sont plus importants. A la base de la cellule, on observe toujours une large "bulle" de recirculation, mais il apparaît également une seconde recirculation cantonnée le long de l'axe de la cellule [16]. Pour ces écoulements tourbillonnaires avec expansion, des essais préliminaires ont montré que le modèle piston avec dispersion axiale, décrit par Eqn. (1), ne permet pas de modéliser correctement les distributions expérimentales des temps de séjour du fait de l'apparition d'une traînée importante sur la courbe de sortie, due au piégeage, pendant un certain temps, d'une partie du traceur dans la zone de recirculation, ce qui engendre une erreur, EQM, supérieure à 20% dans la majorité des cas. Dans cette configuration particulière, une partie du traceur demeure piégée dans la région siège d'écoulements de recirculation avant d'en sortir très progressivement. Par conséquent, la zone de recirculation paraît se comporter comme une "zone morte" échangeant de la matière avec le fluide environnant. Pour cette raison, nous avons choisi de modéliser les écoulements de recirculation par une zone stagnante échangeant de la matière avec une région siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale. Ce modèle a été utilisé avec succès par Coats et Smith [29] pour rendre compte de l'écoulement dans un milieu poreux susceptible de présenter des pores bouchés à une de leurs extrémités, en permettant de traduire correctement la dissymétrie observée sur les courbes de D.T.S., traduisant une déviation par rapport à un phénomène purement dispersif. Ippolito [30] a employé ce modèle pour caractériser l'hydrodynamique dans des milieux poreux fracturés. Cette représentation a également été utilisée par Piva et al. [31] pour modéliser l'écoulement de Taylor-Couette avec débit axial. Dans ce cas, ces auteurs ont montré qu'une partie du traceur reste piégée pendant un certain temps dans les tourbillons de Taylor alors qu'une certaine quantité s'écoule le long des séparatrices de ces tourbillons sans y pénétrer. Piva et al. [31] ont ainsi pu détecter une "zone stagnante" pouvant représenter plus de 30% du volume total de leur cellule. Le modèle piston avec dispersion axiale échangeant de la matière avec une zone stagnante est décrit par les deux équations différentielles suivantes [29]:

$$D_{ax} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - U_m \frac{\partial C}{\partial z} = f \frac{\partial C}{\partial t} + (1-f) \frac{\partial C^*}{\partial t} \quad (5)$$

$$(1-f) \frac{\partial C^*}{\partial t} = K(C - C^*) \quad (6)$$

où  $C^*$  désigne la concentration en traceur dans la zone stagnante,  $f$  la fraction de volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale et  $K$  le coefficient de transfert de masse entre le fluide en écoulement et la zone stagnante.

En appliquant la transformation de Laplace aux Eqns. (5) et (6), on montre que la fonction de transfert,  $F_2(s)$ , du modèle "Fermé-Fermé" à la dispersion est donnée par:

$$F_2(s) = \frac{2\beta^{1/2} \exp\left\{\frac{1}{2} [Pe_L - \beta^{1/2}]\right\}}{(Pe_L + \beta^{1/2}) - (Pe_L - \beta^{1/2}) \exp\{-\beta^{1/2}\}} \quad (7)$$

avec

$$\beta = Pe_L^2 + 4s\gamma Pe_L t_m; \quad \gamma = f + \frac{A(1-f)}{t_m(1-f)s + A} \quad \text{et} \quad A = \frac{KL}{U_m}$$

Ce modèle est caractérisé par quatre paramètres,  $t_m$ ,  $A$ ,  $f$  et  $Pe_L$ , dont l'optimisation s'avère difficile si l'on ne dispose pas d'une bonne estimation initiale. Comme dans le cas du modèle piston avec dispersion axiale,  $t_m$  est initialisé par le calcul du premier moment de la D.T.S. Les valeurs initiales de  $A$  et de  $f$  ont été estimées en considérant que l'écoulement dans la zone non-stagnante était parfaitement piston. Dans ce cas, la fonction de transfert,  $F_2(s)$ , se réduit à:

$$F_3(s) = \exp\left[-s\left\{f + \frac{A(1-f)}{t_m s(1-f) + A}\right\}t_m\right] \quad (8)$$

Les valeurs de  $A$ ,  $f$  et  $t_m$  obtenues à partir de Eqn. (8) sont fixées pour calculer une première estimation de  $Pe_L$  à partir de la fonction de transfert Eqn. (7). Enfin, les quatre paramètres sont de nouveau optimisés globalement à l'aide de l'estimation précédente.

### 5. Résultats et discussion

Les résultats que nous discutons par la suite sont issus d'un total de 250 distributions expérimentales des temps de séjour, soit plus 60 expériences différentes pour chacune des 4 configurations récapitulées dans le Tableau 1. Quelles que soient la concentration en microcapsules ( $0 \leq C_{caps} \leq 10 \text{ g l}^{-1}$ ) et la cellule considérée nous avons traité un minimum d'une dizaine de D.T.S. obtenues pour des débits différents. Sur les 250 expériences analysées, seules 6 d'entre elles sont caractérisées par un écart de modélisation, estimé par Eqn. (4), supérieur à 10%, critère suffisant pour assurer une bonne adéquation entre l'expérience et la modélisation [24]. A titre indicatif, nous avons représenté sur la Fig. 1 deux exemples de modélisation de distributions expérimentales des temps de séjour. La Fig. 1a illustre la modélisation de la D.T.S. du liquide en écoulement tourbillonnaire pur ( $e = \phi_e = 7 \text{ mm}$ ) pour une concentration en microcapsules de  $5 \text{ g l}^{-1}$ . L'utilisation du modèle piston avec dispersion axiale, dont la fonction de transfert est donnée par Eqn. (2), permet de prédire la courbe de sortie expérimentale,  $C_2(t)$ , avec une erreur quadratique moyenne, EQM, inférieure à 5%, en tra-

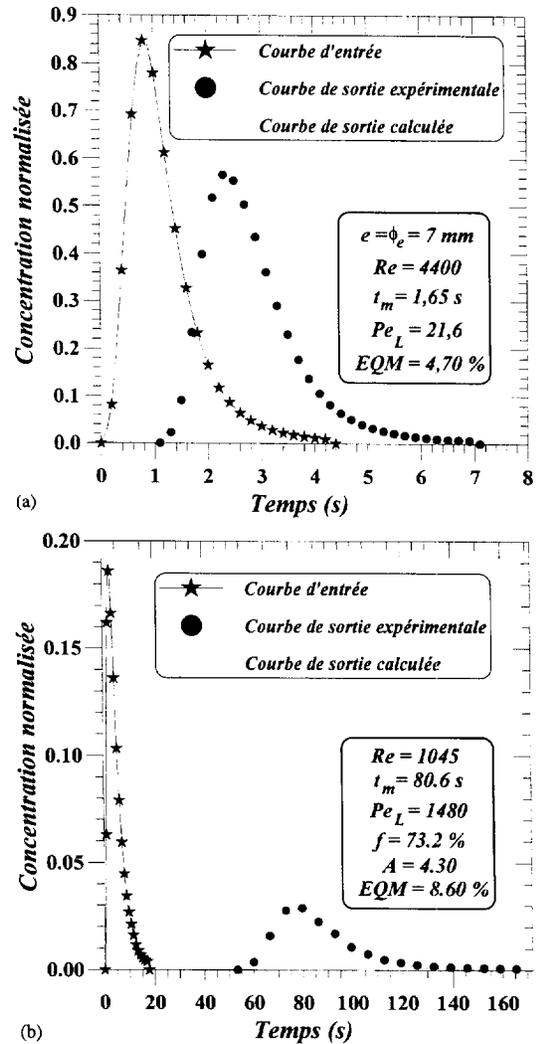


Fig. 1. Deux exemples de résultats: (a) écoulement tourbillonnaire pur avec une concentration de  $5 \text{ g l}^{-1}$  en microcapsules; (b) écoulement tourbillonnaire monophasique avec expansion dans la cellule tubulaire.

duisant tout à fait correctement la légère traînée observée sur la courbe expérimentale de sortie (Fig. 1a), celle-ci étant principalement due à la forme de l'injection (voir courbe  $C_1(t)$  sur la Fig. 1a). La Fig. 1b représente un exemple de modélisation de l'écoulement dans la cellule tubulaire, en l'absence de microcapsules, en employant le modèle piston avec dispersion axiale échangeant de la matière avec une zone stagnante (fonction de transfert donnée par la relation Eqn. (7)). Bien que l'erreur de modélisation soit une des plus élevées rencontrées dans ce travail (EQM = 8.6%), on peut cependant remarquer que le modèle prédit la courbe expérimentale de sortie de manière tout à fait acceptable (Fig. 1b).

#### 5.1. Influence de la concentration en microcapsules en écoulement tourbillonnaire pur ou avec contraction

Sur la Fig. 2 nous avons représenté l'ensemble des résultats obtenus en présence d'un écoulement tourbillonnaire pur dans la cellule annulaire de 7 mm d'entrefer ( $e = \phi_e = 7 \text{ mm}$ ; voir Tableau 1). Ces données sont présentées sous la forme

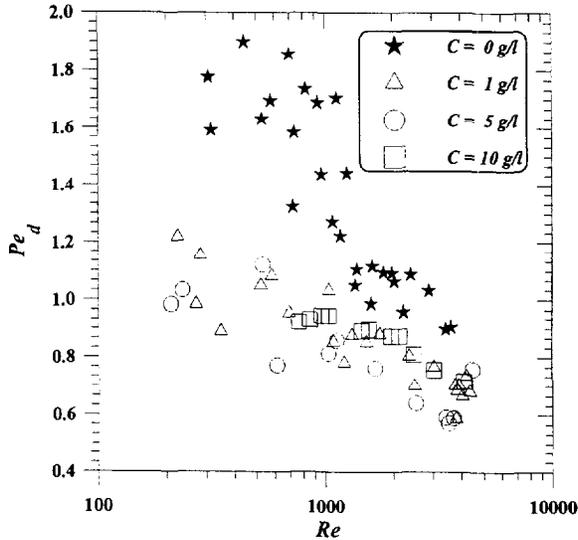


Fig. 2. Influence de la concentration en microcapsules sur la dispersion axiale en écoulement tourbillonnaire pur.

$Pe_d$  versus  $Re$  respectivement pour un écoulement liquide seul et pour les trois concentrations en microcapsules utilisées dans cette étude. Sur cette figure,  $Pe_d$  représente le nombre de Péclet basé sur le diamètre hydraulique,  $2e = 2(R_2 - R_1)$ , de l'espace annulaire ( $Pe_d = 2eU_m/D_{ax}$ ). Contrairement au nombre de Péclet basé sur la longueur de la cellule,  $Pe_L$ , qui apparaît lors de l'adimensionalisation de l'équation différentielle Eqn. (1),  $Pe_d$  permet de différencier les cellules annulaires ayant des entrefers,  $e$ , différents, alors que  $L$  est identique pour toutes les configurations annulaires. De plus, si l'on considère que  $D_{ax}$  est constant sur toute la longueur de la cellule, ce qui constitue l'une des hypothèses utilisées pour l'établissement de la fonction de transfert  $F_1(s)$  (Eqn. (2)), il est préférable d'employer le diamètre hydraulique,  $2e$ , comme échelle de longueur caractéristique de la géométrie de la cellule annulaire.

Lors d'un travail précédent, Legentilhomme et Legrand [14] ont révélé que, malgré une certaine dispersion des résultats, le critère de Péclet basé sur le diamètre hydraulique est relativement élevé, ce qui reflète l'existence d'une hydrodynamique proche de l'écoulement piston idéal dans le cas d'un liquide seul en écoulement tourbillonnaire pur ou avec contraction dans une cellule annulaire. Par ailleurs, ces auteurs ont montré que plus le caractère tourbillonnaire, caractérisé par l'intensité tourbillonnaire initiale  $S_0 = 4(1+N)(e/\phi_e)^2/(1-N)$ , devient prononcé, plus le mélange induit par l'entrée tangentielle est important, ce qui entraîne une augmentation du phénomène de dispersion axiale. Enfin, Legentilhomme et Legrand [14] ont montré que l'écoulement tourbillonnaire non-entretenu généré par une entrée tangentielle dans un espace annulaire engendre une dispersion axiale comprise entre celle observée dans des écoulements possédant une composante de vitesse angulaire importante, comme dans un réacteur de Taylor-Couette [22,32], ou dans un réacteur torique [33], et celle mesurée lors de l'écoulement dans un serpentin [34]. En effet, l'écoulement tourbillonnaire non-

entretenu est caractérisé par une vitesse tangentielle très élevée au voisinage du générateur de tourbillons, comme dans le cas d'une hydrodynamique de type Taylor-Couette, suivie par une décroissance de la vitesse angulaire, l'écoulement devenant à dominante axiale comme dans un serpentin.

Sur la Fig. 2, illustrant l'influence de la concentration en microcapsules sur la dispersion du liquide en écoulement tourbillonnaire pur ( $e = \phi_e = 7$  mm), on peut remarquer que le fait d'ajouter des particules solides au liquide en circulation entraîne une diminution du nombre de Péclet,  $Pe_d$ , par rapport à celui obtenu avec un liquide seul [14]. Par conséquent, la présence des microcapsules a tendance à augmenter le mélange, et ceci probablement plus particulièrement au voisinage immédiat de l'entrée tangentielle. L'agitation dans cette région, où la structure de l'écoulement s'avère fortement tridimensionnelle, est accrue par la présence des microcapsules. Ce phénomène est également observé dans le cas d'une entrée tangentielle formant une contraction avec l'entrefers de l'espace annulaire ( $e = 7$  mm et  $\phi_e = 9$  mm; Fig. 3).

L'augmentation de la dispersion axiale par adjonction de microcapsules est surtout notable pour les faibles critères de Reynolds ( $Re < 1000$ ), puis s'estompe lorsque  $Re$  augmente (Figs. 2 et 3). En effet, pour les nombres de Reynolds élevés, l'agitation à la base de la cellule semble essentiellement due à la turbulence inhérente au liquide, la phase dispersée n'ayant que peu d'incidence. L'influence d'une augmentation de la concentration en microcapsules est plus difficile à analyser. Ainsi, comme l'illustrent les Figs. 2 et 3, il apparaît que l'ajout d'une faible quantité de solide ( $C_{caps} = 1$  g l<sup>-1</sup>) induit une augmentation conséquente de la dispersion axiale ( $Pe_d$  diminue considérablement), cette tendance ne s'amplifiant pas lorsque l'on augmente  $C_{caps}$  (Figs. 2 et 3). Par conséquent, il semble que les microcapsules servent en quelque sorte de promoteur de turbulence dans la région perturbée en aval immédiat du générateur de tourbillons augmentant ainsi le mélange aux faibles nombres de Reynolds.

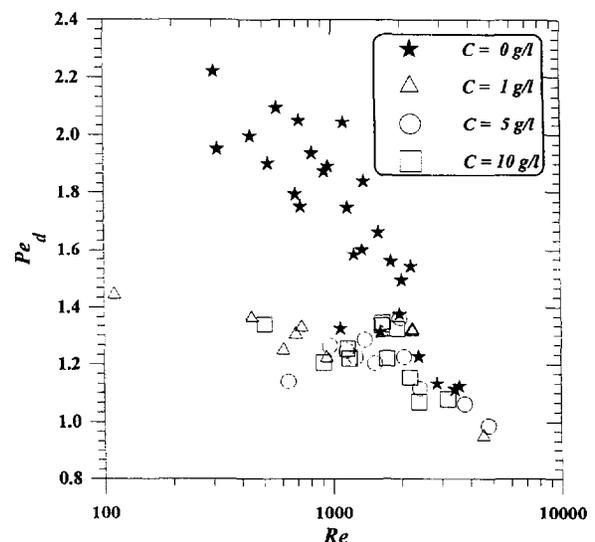


Fig. 3. Influence de la concentration en microcapsules sur la dispersion axiale en écoulement tourbillonnaire avec contraction.

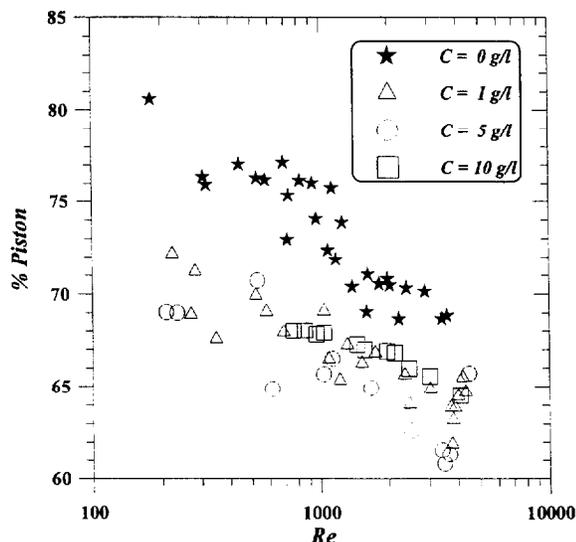


Fig. 4. Influence de la concentration en microcapsules sur le mélange en écoulement tourbillonnaire pur.

Dans leur travail consacré à l'étude de la distribution des temps de séjour d'un liquide seul en écoulement tourbillonnaire pur ou avec contraction, Legentilhomme et Legrand [14] ont caractérisé globalement le mélange dans la cellule annulaire par un modèle associant en série une zone siège d'un écoulement piston et une région parfaitement agitée. La fonction de transfert,  $F_4(s)$ , de ce modèle est donnée par:

$$F_4(s) = \frac{e^{-st_p}}{1 + st_{Rac}} \quad (9)$$

où  $t_p$  est le temps de séjour dans la zone piston et  $t_{Rac}$  le temps de séjour moyen dans la région siège d'un mélange parfait.

Dans le cas d'un écoulement tourbillonnaire pur ( $e = \phi_e = 7$  mm) ou associé à un convergent entrée tangentielle/entrefer de l'espace annulaire ( $e = 7$  mm,  $\phi_e = 9$  mm), Legentilhomme et Legrand [14] ont montré que le volume moyen siège d'un écoulement piston est respectivement de 73 et 76% du volume total de la cellule. Sur les Figs. 4 et 5, nous avons représenté la fraction de volume caractérisée par un écoulement piston ( $\% \text{ Piston} = t_p / (t_p + t_{Rac})$ ), respectivement en écoulement tourbillonnaire pur et avec contraction, en fonction du nombre de Reynolds, pour les différentes concentrations en microcapsules et en présence d'un liquide seul. On peut remarquer que la fraction de volume siège d'une hydrodynamique piston diminue légèrement lorsque le nombre de Reynolds augmente, et ceci quelle que soit la concentration en microcapsules. Ce phénomène, de la même manière que la décroissance du critère de Péclet, est lié à une augmentation de l'agitation dans la région très perturbée à la base de la cellule annulaire [13], cette zone étant assimilable à un réacteur parfaitement agité. Pour les faibles nombres de Reynolds, l'écoulement tourbillonnaire décroissant s'établit dès l'entrée du fluide dans la cellule [13,23], la majeure partie de la cellule se comporte comme un réacteur piston. Bien que la fraction de volume siège d'un écoulement piston ait tendance à diminuer lorsque le débit augmente, nous avons

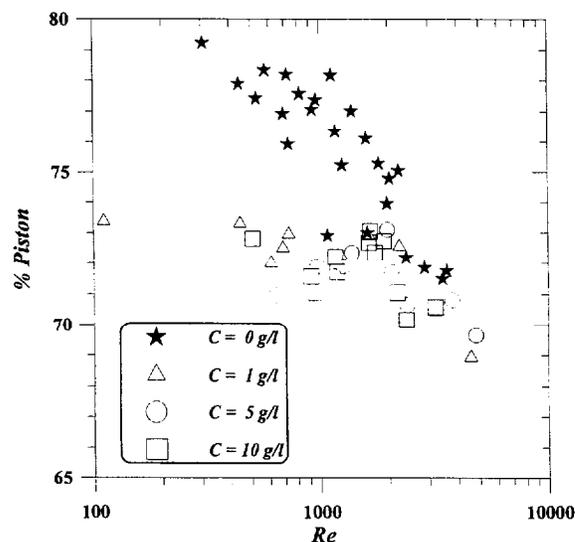


Fig. 5. Influence de la concentration en microcapsules sur le mélange en écoulement tourbillonnaire avec contraction.

Tableau 2

Caractérisation du mélange en écoulement tourbillonnaire pur ou avec contraction

$C_{caps}$	$e = \phi_e = 7$ mm		$e = 7$ mm et $\phi_e = 9$ mm	
	% Piston moyen	$\sigma_{\% \text{ Piston}}$	% Piston moyen	$\sigma_{\% \text{ Piston}}$
0	73.2	3.2	75.6	3.3
1	66.5	2.6	71.5	2.0
5	65.2	3.2	71.4	1.0
10	66.8	1.1	71.7	1.1

caractérisé chaque configuration, pour une concentration en microcapsules donnée, par une fraction moyenne de la cellule se comportant comme un réacteur piston. Ces moyennes, ainsi que les écarts-type,  $\sigma_{\% \text{ Piston}}$ , correspondant sont donnés dans le Tableau 2. Comme nous l'avons signalé précédemment à propos de la dispersion axiale, l'ajout d'une faible concentration en solide ( $C_{caps} = 1 \text{ g l}^{-1}$ ) engendre une diminution du caractère globalement piston de l'hydrodynamique, l'augmentation de la quantité de microcapsules à  $5 \text{ g l}^{-1}$  et  $10 \text{ g l}^{-1}$  s'avérant sans incidence notable.

### 5.2. Modélisation de l'écoulement tourbillonnaire avec expansion

Les données que nous analysons par la suite, concernant l'écoulement tourbillonnaire avec expansion dans une cellule annulaire ou tubulaire, ont été obtenues à partir de distributions des temps de séjour analysées en utilisant le modèle piston avec dispersion axiale échangeant de la matière avec une zone stagnante (fonction de transfert  $F_2(s)$  donnée par Eqn. (7)).

La Fig. 6 illustre l'influence de la concentration en microcapsules sur la dispersion axiale dans la zone siège d'un écoulement de recirculation dans la cellule annulaire de 14.5 mm d'entrefer équipée d'une entrée tangentielle de 7 mm de

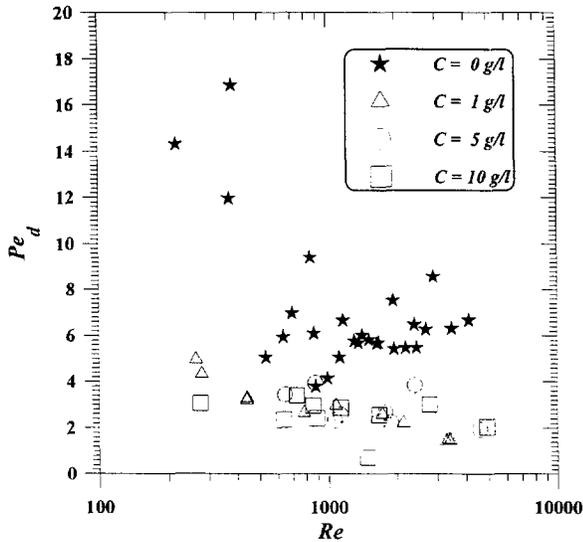


Fig. 6. Influence de la concentration en microcapsules sur la dispersion axiale en écoulement annulaire tourbillonnaire avec expansion ( $e=14.5$  mm;  $\phi_e=7$  mm).

diamètre (Tableau 1). Sur cette figure, on peut remarquer que, comme dans le cas des écoulements tourbillonnaires pur ou avec contraction (Figs. 2 et 3), l'adjonction d'une faible concentration en microcapsules ( $C_{\text{caps}} = 1 \text{ g l}^{-1}$ ) entraîne une diminution du critère de Péclet, donc une augmentation de la dispersion axiale, surtout sensible pour les nombres de Reynolds les plus faibles ( $Re < 1000$ ). L'augmentation ultérieure de la quantité de solide à 5 puis  $10 \text{ g l}^{-1}$  n'engendre pas d'accroissement supplémentaire consécutif de la dispersion axiale (Fig. 6). Comme dans le cas des écoulements tourbillonnaires pur ou associé à un convergent ( $\phi_e \geq e$ ; Figs. 2 et 3), en présence de microcapsules, la dispersion axiale apparaît relativement peu dépendante du nombre de Reynolds (Fig. 7). Par conséquent, il semble que la présence de microcapsules engendre une uniformisation des caractéristiques du mélange en fonction de  $Re$ .

En comparant les Figs. 2 et 3, relatives au cas où le diamètre de l'entrée tangentielle est supérieur ou égal à l'entrefer de l'espace annulaire ( $\phi_e \geq e$ ), et la Fig. 6, on peut remarquer que la dispersion axiale dans la région siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale, en configuration avec expansion, est inférieure à celle relevée pour l'ensemble de la cellule dans les deux premières configurations étudiées. Ainsi, en écoulement tourbillonnaire avec expansion (Fig. 6), le critère de Péclet est toujours supérieur à 1, quelle que soit la concentration en microcapsules, alors qu'il peut prendre des valeurs nettement inférieures à 1, quel que soit le nombre de Reynolds, pour des concentrations en solide de 5 et  $10 \text{ g l}^{-1}$ , en écoulement tourbillonnaire pur (Fig. 2). Cette constatation est probablement due au fait que, dans le cas de l'utilisation d'un modèle piston avec dispersion axiale pour représenter l'écoulement dans l'ensemble de la cellule, une partie de l'incidence de la zone perturbée en aval de l'entrée tangentielle, caractérisée par de faibles écoulements de recirculation principalement localisés au voisinage du cylindre

interne [13,23], contribue à une augmentation du coefficient de dispersion axiale. Par contre, la région siège de grandes recirculations s'étendant sur la totalité de l'espace inter-cylindres [35], dans le cas d'un écoulement tourbillonnaire associé à un divergent entrée tangentielle-entrefer de l'espace annulaire ( $\phi_e < e$ ), est correctement prise en compte par la "zone stagnante" du modèle. En effet, cette zone semble correctement simuler ces recirculations à vitesse interne élevée, mais dont le mouvement ascendant le long de la cellule s'effectue très lentement [35]. Ainsi, certaines molécules de traceur sont, en quelque sorte, piégées dans cette zone, pour en ressortir très lentement, comme dans le cas d'un écoulement de Taylor–Couette avec débit axial [31].

Sur le Fig. 7, nous avons représenté la fraction de volume en écoulement piston avec dispersion,  $f$  (Eqns. (5) et (6)), en fonction du nombre de Reynolds, pour les différentes concentrations en microcapsules, dans la cellule annulaire de 14.5 mm d'épaisseur munie de l'entrée tangentielle de 7 mm de diamètre. Compte tenu de la dispersion importante des résultats, il apparaît difficile d'analyser l'influence de la concentration en solide sur le volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale. Cependant, celle-ci semble avoir peu d'incidence. Dans le cas d'un écoulement monophasique, la taille de la zone stagnante augmente sensiblement avec le critère de Reynolds, pour passer d'environ 25% pour  $Re$  de l'ordre de 200 à plus de 40% pour  $Re$  supérieur à 2000. Ce fait semble traduire une augmentation du volume de la région siège d'un écoulement fortement tridimensionnel très perturbé à la base de la cellule. Par contre, l'adjonction de microcapsules, compte tenu de la dispersion des résultats expérimentaux de la Fig. 7, se traduit par une relative constance de la taille de la zone stagnante quel que soit  $Re$ , la phase solide ayant par conséquent tendance à homogénéiser les caractéristiques du mélange comme nous l'avons précédemment signalé.

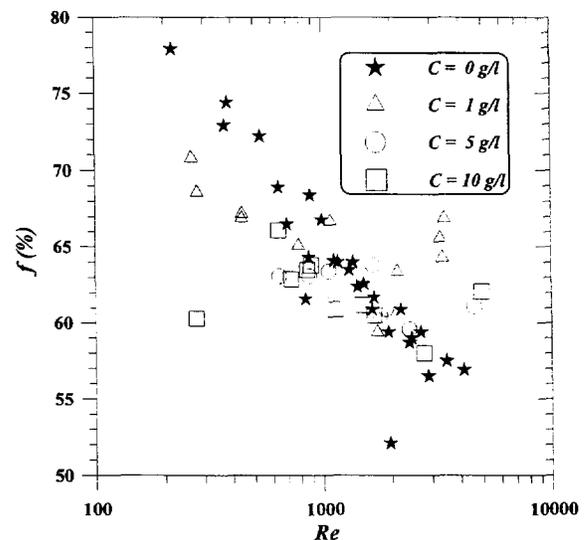


Fig. 7. Influence de la concentration en microcapsules sur la fraction de volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale dans la cellule annulaire de 14.5 mm d'entrefer équipée de l'entrée de 7 mm de diamètre.

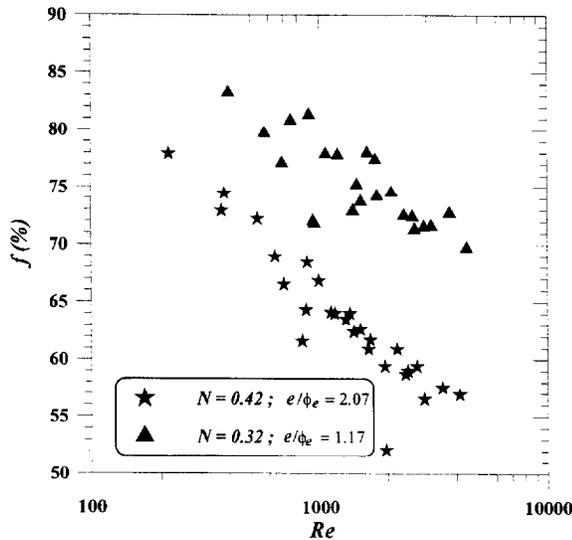


Fig. 8. Influence du rapport d'expansion,  $e/\phi_e$ , sur la taille de la zone stagnante en écoulement tourbillonnaire annulaire d'un liquide seul.

Sur la Fig. 8, nous avons comparé la fraction de volume siège d'un écoulement, obtenue en l'absence de microcapsules, respectivement dans les cellules annulaires de 14.5 mm d'entrefer avec une entrée tangentielle de 7 mm de diamètre ( $e/\phi_e = 2.07$ ) et de 17 mm d'épaisseur munie d'une entrée de 14.5 mm ( $e/\phi_e = 1.17$ ). Pour une valeur donnée du nombre de Reynolds, la taille de la zone "stagnante" augmente lorsque le rapport  $e/\phi_e$  augmente. Cette tendance est en accord avec l'expansion de la zone de recirculation observée par Legentilhomme [35] et du transfert de matière sur le cylindre intérieur [11] lorsque le rapport d'expansion,  $e/\phi_e$ , croît.

Sur la Fig. 9, nous avons représenté le rapport entre le temps caractéristique,  $t_r$ , de l'échange de matière entre la zone "stagnante" et la fraction de volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale ( $t_r = 1/K$ ) et le temps de séjour moyen dans la cellule de 14.5 mm d'entrefer équipée de l'entrée tangentielle de 7 mm de diamètre. Dans le cas de l'écoulement d'un liquide seul, lorsque le nombre de Reynolds augmente, le rapport  $t_r/t_m$  a tendance à diminuer, ce qui traduit le fait que l'échange entre la zone stagnante et le liquide en écoulement devient plus rapide. Il est possible que ce phénomène soit dû à une augmentation du degré de mélangeage dans la région siège d'écoulements de recirculation, assimilée à une zone "stagnante", augmentant ainsi le coefficient de transfert de masse,  $K$ , avec le fluide en écoulement. Par contre, dans le cas d'une suspension liquide-solide, quelle que soit la concentration en microcapsules, le rapport  $t_r/t_m$ , malgré la dispersion des résultats, semble relativement indépendant du nombre de Reynolds. En effet, il est probable qu'en présence d'une suspension liquide-solide, l'agitation dans la zone de recirculation à la base de la cellule, soit principalement due à la présence des microcapsules et peu liée à la vitesse moyenne de l'écoulement.

L'étude de l'écoulement dans la cellule tubulaire équipée d'une entrée tangentielle revêt une importance particulière

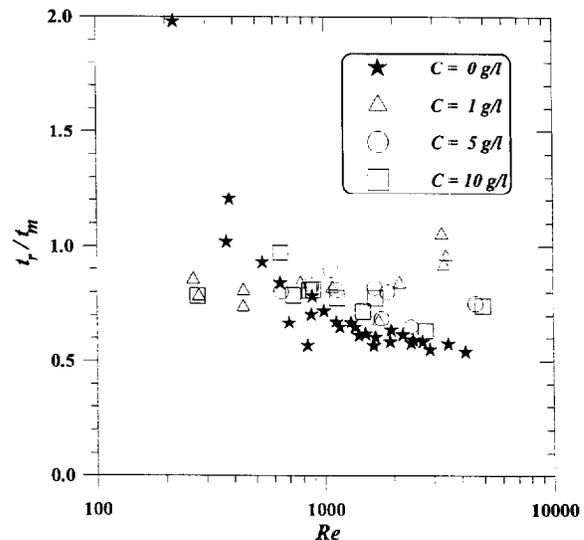


Fig. 9. Influence de la concentration en microcapsules sur la vitesse de transfert entre le volume siège d'un écoulement et la zone stagnante dans la cellule annulaire de 14.5 mm d'entrefer équipée de l'entrée de 7 mm de diamètre.

dans le cadre de la mise au point d'un procédé continu de microencapsulation d'un agent virucide, jusqu'à présent réalisée en discontinu. En effet, Legrand et al. [15] ont montré que la formation d'une coque de microcapsule ayant de bonnes propriétés mécaniques requiert un procédé possédant deux caractéristiques essentielles: (i) le réacteur doit permettre d'assurer un bon mélange des phases initialement en présence (émulsion huile/eau, solvant [15]) pour que la surface de contact soit suffisante; (ii) la formation de la coque des microcapsules, due à la désolvatation d'un composant spécifique [15] (EVAC 40 de chez Dupont de Nemours: copolymère Ethylène-Vinylacétate) par évaporation de solvant, nécessite une durée bien déterminée, et par conséquent une bonne maîtrise du temps de séjour dans l'installation. Pour cela, la cellule tubulaire équipée d'une entrée tangentielle apparaît tout à fait adaptée. En effet, la présence d'une large zone de recirculation au voisinage de l'entrée tangentielle assure un bon mélange initial des phases en présence. Par ailleurs, il apparaît plus aisé de maîtriser la distribution des temps de séjour dans ce type de dispositif que dans une cuve agitée par exemple.

La Fig. 10 illustre les variations du critère de Péclet,  $Pe_d$ , en fonction du nombre de Reynolds pour les différentes concentrations en phase solide dans la cellule tubulaire. Dans cette configuration, les résultats sont beaucoup plus dispersés qu'en écoulement tourbillonnaire annulaire (Figs. 2 et 3). Cependant, il convient de remarquer que dans la cellule tubulaire, le critère de Péclet caractéristique de la fraction siège d'un écoulement est beaucoup plus élevé que dans la cellule annulaire. Pour de telles valeurs de  $Pe_d$ , comprises entre 20 et 280 environ, l'écoulement peut être considéré comme purement piston. Dans ce cas, la fonction de transfert du modèle,  $F_2(s)$  (Eqn. (7)), devient très peu sensible à l'ajustement du critère de Péclet dont l'optimisation s'avère

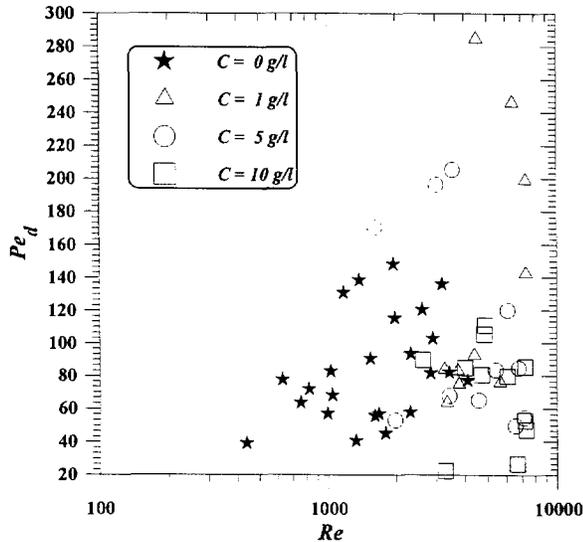


Fig. 10. Influence de la concentration en microcapsules sur la dispersion axiale en écoulement tourbillonnaire dans la cellule tubulaire.

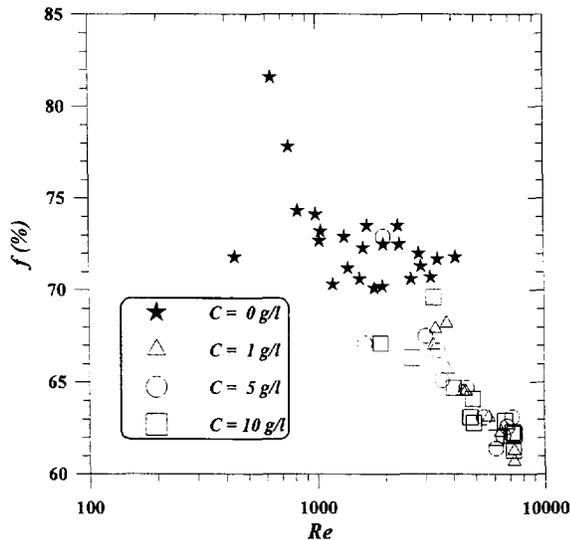


Fig. 11. Influence de la concentration en microcapsules sur la fraction de volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale dans la cellule tubulaire.

par conséquent délicate sans engendrer d'amélioration sensible de l'adéquation modèle-expérience par rapport à l'utilisation du modèle associant une région siège d'un écoulement piston pur échangeant de la matière avec un volume stagnant (fonction de transfert  $F_3(s)$  donnée par Eqn. (8)).

La Fig. 11 représente la fraction de volume,  $f$ , siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale en fonction du nombre de Reynolds pour les différentes concentrations en microcapsules dans la cellule tubulaire. De la même manière que pour la cellule annulaire siège d'un écoulement tourbillonnaire avec expansion (Fig. 7), la fraction de volume stagnant est très élevée ( $15\% \leq 1 - f \leq 40\%$ ) et croît lorsque le nombre de Reynolds augmente. Ce phénomène est dû, comme dans la cellule annulaire, à une augmentation du volume occupé par la zone siège d'écoulements de recirculation qui, dans le cas d'un écoulement tourbillonnaire tubulaire, apparaît non

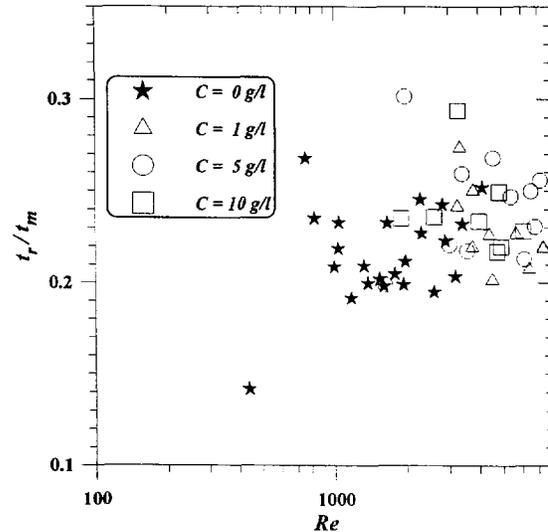


Fig. 12. Influence de la concentration en microcapsules sur la vitesse de transfert entre le volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale et la zone stagnante dans la cellule tubulaire.

seulement au voisinage de l'entrée tangentielle, mais également au niveau de l'axe du tube sur la presque totalité de la hauteur de la cellule [16].

Sur la Fig. 12, nous avons représenté, en fonction du nombre de Reynolds, le rapport  $t_r/t_m$ , traduisant la vitesse du transfert de matière entre la zone stagnante et la fraction de volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale. L'analyse de ce graphique s'avère délicate du fait de la dispersion des résultats. Cependant, le rapport  $t_r/t_m$  apparaît relativement indépendant du nombre de Reynolds et de la concentration en microcapsules. Quels que soient  $Re$  et  $C_{caps}$ ,  $t_r/t_m$  est compris entre 0.2 et 0.3, alors qu'il est toujours supérieur à 0.5 dans le cas de la cellule annulaire de 14.5 mm d'entrefer munie de l'entrée tangentielle de 7 mm de diamètre (Fig. 9). Dans la cellule tubulaire, le transfert de masse entre la zone stagnante et l'écoulement principal semble par conséquent plus rapide que dans la cellule annulaire. Ce phénomène est probablement dû à la différence de nature de la zone siège d'écoulements de recirculation qui s'étend sur la presque totalité de la hauteur de la cellule tubulaire, près de l'axe de celle-ci, alors que son extension demeure limitée au voisinage de l'entrée tangentielle dans la cellule annulaire. De plus, dans cette dernière configuration, cette zone est localisée près des parois dans la sous-couche visqueuse.

## 6. Conclusions

Dans ce travail, nous avons caractérisé globalement l'écoulement dans une cellule annulaire ou tubulaire alimentée par une entrée tangentielle unique permettant de générer trois types d'hydrodynamique non-entretenu suivant la configuration considérée: (i) un écoulement dit tourbillonnaire pur dans une cellule annulaire dont l'entrefer est égal au diamètre de l'entrée tangentielle ( $\phi_e = e$ ); (ii) un mouvement tourbillonnaire avec contraction dans la cellule annu-

laire ( $\phi_e > e$ ); (iii) une hydrodynamique tourbillonnaire avec expansion dans la cellule tubulaire ou dans une cellule annulaire équipée d'une entrée tangentielle de diamètre inférieur à l'épaisseur de l'espace inter-cylindres ( $\phi_e < e$ ). L'objectif principal de ce travail était d'analyser l'incidence de l'adjonction d'une phase dispersée, constituée de microcapsules à différentes concentrations, sur la distribution des temps de séjour de la phase liquide dans la cellule. Cette démarche s'inscrit dans le cadre plus vaste de la mise au point d'un procédé continu de microencapsulation d'un agent virucide par une technique d'évaporation de solvant. Les distributions expérimentales des temps de séjour, obtenues par une méthode conductimétrique à deux points de mesure, ont été analysées par la technique dite de l'ajustement des courbes dans le domaine temporel. Les écoulements tourbillonnaires pur et avec contraction entrée tangentielle-entrefer de l'espace annulaire sont caractérisés par le modèle piston avec dispersion axiale et une seconde représentation simplifiée associant en série un élément siège d'un écoulement piston pur avec un réacteur continu parfaitement agité. Dans ces configurations, l'hydrodynamique globale est très proche du modèle piston idéal. La dispersion axiale, s'avérant très faible, a cependant tendance à augmenter lors de l'adjonction d'une faible concentration en phase dispersée du fait d'un mélange accru dans la zone siège d'écoulements de recirculation située à la base de la cellule annulaire. Cette région, où l'écoulement est fortement tridimensionnel, peut être modélisée par un réacteur continu parfaitement agité occupant jusqu'à 35% du volume total de la cellule. Les configurations induisant un écoulement tourbillonnaire avec expansion sont modélisées par l'association d'une zone "stagnante" parfaitement agitée (concentration uniforme) échangeant de la matière avec un volume siège d'un écoulement piston avec dispersion axiale. La zone stagnante permet de simuler correctement les écoulements de recirculation, beaucoup plus intenses qu'en présence d'une hydrodynamique tourbillonnaire pure ou avec contraction, caractérisés par une grande vitesse interne, mais un mouvement ascendant beaucoup plus lent que l'écoulement résultant. Suivant la configuration considérée, la zone stagnante peut occuper plus de 40% du volume total de la cellule et semble peu sensible à la concentration en microcapsules, plus particulièrement dans la cellule annulaire. L'hydrodynamique dans la région siège d'un écoulement ascendant est très proche du modèle piston, surtout dans le cas de la cellule tubulaire pour laquelle la prise en compte de la dispersion axiale n'améliore pas de manière conséquente l'adéquation modèle-expérience.

## Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier Messieurs Yann Provost et Thomas Gourdon pour leur participation active à la campagne expérimentale de ce travail.

## Références

- [1] A.K. Gupta, D.G. Lilley, N. Syred, *Swirl Flows*, Abacus Press, Cambridge, 1984.
- [2] N.J. Cedrone, A silver recovery apparatus for operation at high current densities, *J. Soc. Mot. Pic. Tel. Eng.* 67 (1958) 172–174.
- [3] F.C. Walsh, G. Wilson, The electrolytic removal of gold from spent electroplating liquors, *Trans. IMF* 64 (1986) 55–61.
- [4] S.W. Hong, A.E. Bergles, Augmentation of laminar flow heat transfer in tubes by means of twisted-tapes inserts, *J. Heat Transfer* 98 (1986) 251–256.
- [5] M. Thew, Hydrocyclone redesign for liquid-liquid separation, *The Chemical Engineer Juillet/Août* (1986) 17–23.
- [6] T.A. Aklyama, T. Marui, M. Kono, Experimental investigation on dust collection efficiency of straight-through cyclone with air suction by means of secondary rotational air charge, *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.* 25 (1986) 914–918.
- [7] J. Lede, F. Verzarò, B. Antoine, J. Villermaux, Flash pyrolysis of wood in a cyclone reactor, *Chem. Eng. Proc.* 20 (1986) 309–317.
- [8] J.P. Villeneuve, E. Gaume, Efficiency evaluation of an installed swirl separator, *Can. J. Civ. Eng.* 21 (1994) 924–930.
- [9] J.J. Ou, C.S. Lee, S.H. Chen, Mixing of chemically reactive fluids by swirling in a tubular reactor, *Chem. Eng. Sci.* 38 (1983) 1323–1329.
- [10] P. Legentilhomme, J. Legrand, Overall mass transfer in swirling decaying flow in annular electrochemical cells, *J. Appl. Electrochem.* 20 (1990) 216–222.
- [11] P. Legentilhomme, J. Legrand, The effect of inlet conditions on mass transfer in annular swirling decaying flow, *Int. J. Heat Mass Transfer* 34 (1991) 1281–1291.
- [12] P. Legentilhomme, J. Legrand, Visualisation de l'écoulement tourbillonnaire non-entretenu dans un réacteur électrochimique à cylindres coaxiaux, *Récents Progrès en Génie des Procédés*, Edition Technique et Documentation, Lavoisier, 3, n° 7 (1989) 567–572.
- [13] H. Aouabed, P. Legentilhomme, J. Legrand, Wall visualization of swirling decaying flow using a dot-paint method, *Exp. Fluids* 19 (1995) 43–50.
- [14] P. Legentilhomme, J. Legrand, Distribution des temps de séjour en écoulement tourbillonnaire annulaire induit par une entrée tangentielle du liquide, *Can. J. Chem. Eng.* 73 (1995) 435–443.
- [15] J. Legrand, L. Brujes, G. Carnelle, P. Phalip, Study of microencapsulation of a virucide agent by a solvent evaporation technique, *J. Microencapsulation* 12 (1995) 639–649.
- [16] A. Bottaro, I.L. Ryhming, M.B. Wehrli, F.S. Rys, P. Rys, Laminar swirling flow and vortex breakdown in a pipe, *Comp. Meth. Appl. Mech. Eng.* 89 (1991) 41–57.
- [17] N. Wakao, S. Kaguei, *Heat and mass transfer in packed beds*, Gordon and Breach Publishers, London, 1982.
- [18] G. Taylor, Dispersion of soluble matter flowing slowly through a tube, *Proc. Roy. Soc. Ser. A* 219 (1953) 186–203.
- [19] P. Legentilhomme, J. Legrand, J. Comiti, Axial dispersion in electrolyte flowing through anisotropic packed beds, *J. Appl. Electrochem.* 19 (1989) 263–270.
- [20] S.F. Chung, C.Y. Wen, Longitudinal dispersion of liquid flowing through fixed and fluidized beds, *AIChE J.* 14 (1968) 857–865.
- [21] P.I. Pudjiono, N.S. Tavarè, J. Garside, K.D.P. Nigam, Residence time distribution from a continuous Couette flow device, *Chem. Eng. J.* 48 (1992) 101–110.
- [22] J. Legrand, F. Coeuret, Circumferential mixing in one-phase and two-phase Taylor vortex flows, *Chem. Eng. Sci.* 41 (1986) 47–53.
- [23] H. Aouabed, P. Legentilhomme, C. Nouar, J. Legrand, Experimental comparison of electrochemical and dot-paint methods for the study of decaying swirling flow, *J. Appl. Electrochem.* 24 (1994) 619–625.
- [24] G.P. Rangaiah, P.R. Krishnaswamy, Application of time domain curve-fitting to parameter estimation in RTD models, *J. Chem. Eng. Jpn.* 23 (1990) 124–130.

- [25] W.C. Clements, A note on determination of the parameters of the longitudinal dispersion model from experimental data, *Chem. Eng. Sci.* 24 (1969) 957–963.
- [26] M.A. Fahim, L.T. Wakao, Parameter estimation from tracer response measurements, *Chem. Eng. J.* 25 (1982) 1–8.
- [27] C.Y. Wen, L.T. Fan, *Model for flow systems and chemical reactors*, Marcel Dekker, New York, 1975.
- [28] G.S.G. Beveridge, R.S. Schechter, *Optimization: theory and practice*, McGraw-Hill, New York, 1970.
- [29] K.H. Coats, B.D. Smith, Dead-end pore volume and dispersion in porous media, *Soc. Petroleum Eng. J., Trans. AIME* 231 (1964) 73–84.
- [30] I. Ippolito, *Etude des phénomènes de transport et de dispersion de traceurs dans des milieux fracturés*, Thèse de Doctorat de l'Université de Paris VI, 1993.
- [31] M. Piva, A. Calvo, A. Barrantes, S. Gabanelli, M. Rosen, I. Ippolito, J.E. Wesfreid, Tracer dispersion in the Taylor–Couette instability with axial flow, in: E. Trapegui, W. Zeller (Eds.), *Instabilities and Non Equilibrium Structures IV*, Kluwer Academic Press, Dordrecht, 1993.
- [32] L. Guihard, F. Coeuret, J. Legrand, T.Z. Fahidy, Z.H. Gu, Circumferential mixing in the Taylor–Couette reactor, *Inst. Chem. Eng. Symp. Ser.* 112 (1989) 105–117.
- [33] P. Belleville, L. Nouri, J. Legrand, Mixing characteristics in the torus reactor, *Chem. Eng. Technol.* 15 (1992) 282–289.
- [34] R.N. Trivedi, K. Vasudeva, Axial dispersion in laminar flow in helical coils, *Chem. Eng. Sci.* 30 (1975) 317–325.
- [35] P. Legentilhomme, *Hydrodynamique et transfert de matière de l'écoulement annulaire tourbillonnaire induit par une entrée tangentielle du fluide*, Thèse de Doctorat de l'Université de Nantes-ENSM, 1991.