

Mesure du micromélange dans une turbulence quasi-homogène et isotrope

Cédric Durandal, Thierry Lemenand, Dominique Della Valle, Hassan Peerhossaini

*Equipe Thermofluides, écoulements complexes et énergie
Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, CNRS UMR 6607,
Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes,
Rue Christian Pauc, BP 50609, 44306 Nantes Cedex 3 – France
Email : cedric.durandal@univ-nantes.fr*

Résumé :

Le micromélange est mesuré expérimentalement dans un écoulement quasi-homogène et isotrope, sans écoulement moyen, à grand nombre de Schmidt et avec un nombre de Reynolds basé sur l'échelle de Taylor variant de 10 à 65. Cette turbulence est générée par deux grilles oscillant dans le plan vertical. La mesure du micromélange est effectuée par une « sonde chimique », sur le principe de deux réactions concurrentes qui consomment l'acide injecté localement au centre des grilles : le dosage des coproduits permet d'accéder à une mesure qualitative du micromélange. Deux modèles phénoménologiques 0D de micromélange sont testés pour des paramètres en concentration constante. Le modèle IEM ne peut fonctionner dans ce cas du fait d'une concentration d'acide trop forte. Le modèle d'engouffrement est validé à partir d'un nombre de Reynolds basé sur l'échelle de Taylor autour de 30.

Abstract :

An experimental study was carried out to measure the micromixing in a quasi homogeneous and isotropic turbulence, without mean flow, for a great Schmidt number and with a Reynolds number based on the Taylor micro-scale running from 10 to 65. This turbulence is provided by two vertically oscillating grids. The micromixing is measured by a chemical probe, i.e. two competitive reactions which consume the acid locally injected between the two grids. The acid consumption ratio of these reactions gives the qualitative measurement of micromixing. Two zero-dimensional phenomenological models are tested for a constant concentration of reactive species. IEM model is not available because of the high concentration of acid used. The Engulfment model is valid from a Taylor-Reynolds number of 30.

Mots-clefs :

Micromélange, turbulence de grille, sonde chimique

1 Introduction

Dans un réacteur chimique, le mélange est nécessaire à différentes échelles : le macromélange qui distribue les différentes espèces de façon homogène dans le réacteur, et le micromélange qui assure la mise en contact des réactifs à l'échelle moléculaire. Le micromélange est donc déterminant pour la sélectivité des réactions rapides, puisque le facteur limitant est souvent dans ce cas dû à un apport insuffisant des réactifs, permettant ainsi à des co-réactions plus lentes de se développer.

La méthode de la sonde chimique est précisément basée sur l'observation d'une réaction chimique « étalon » dans une hydrodynamique donnée, en régime turbulent. Le résultat de cette réaction étant sensible au micromélange, il est donc possible de quantifier celui-ci en analysant les produits de réaction. De nombreux résultats concernant cette sonde chimique sont présentés dans la littérature, dans des cuves agitées (Fournier et al. (1996) ; Guichardon et al. (2000) ; Assirelli et al. (2005)) ou des canaux (Fang et al. (2001) ; Ferrouillat et al. (2006)). Afin de relier ces mesures chimique avec les paramètres du mélange turbulent, il est nécessaire d'utiliser des modèles. Or ces modèles de micromélange reposent sur des hypothèses de turbulence

homogène et isotrope, condition idéale qui n'est généralement pas réalisée dans les procédés industriels.

Cette étude a pour objectif le test de modèles de micromélange dans le cas d'une turbulence homogène et isotrope pour obtenir une validation objective.

2 Dispositif expérimental

2.2 Dispositif de génération de la turbulence de grille

La turbulence est générée par deux grilles oscillant verticalement en phase dans un bac contenant le mélange de réactifs. Le bac possède une base carrée de longueur L_0 de 13 cm pour une hauteur en eau H_0 de 33 cm. La hauteur H entre les grilles varie de 8 à 12 cm, la course S de 2 à 4 cm et la fréquence d'agitation f de 4 à 8 Hz. Les grilles sont formées de 10 barres carrées de diamètre d de 5 mm pour un écartement (maille) M de 2,5 cm. Ceci donne une compacité de la grille de 36%. La variation de la hauteur de grille, de la fréquence d'agitation et de la course va permettre de générer une turbulence d'intensité variable munie d'échelles variables.

L'acide sulfurique est injecté au centre des deux grilles par une aiguille de 1 mm de diamètre. L'injection se fait au moyen d'un pousse-seringue composé de deux seringues de 20 ml reliées en "T" à l'aiguille d'injection. Ceci permet de faire trois à quatre injections d'acide sans recharger en acide le circuit.

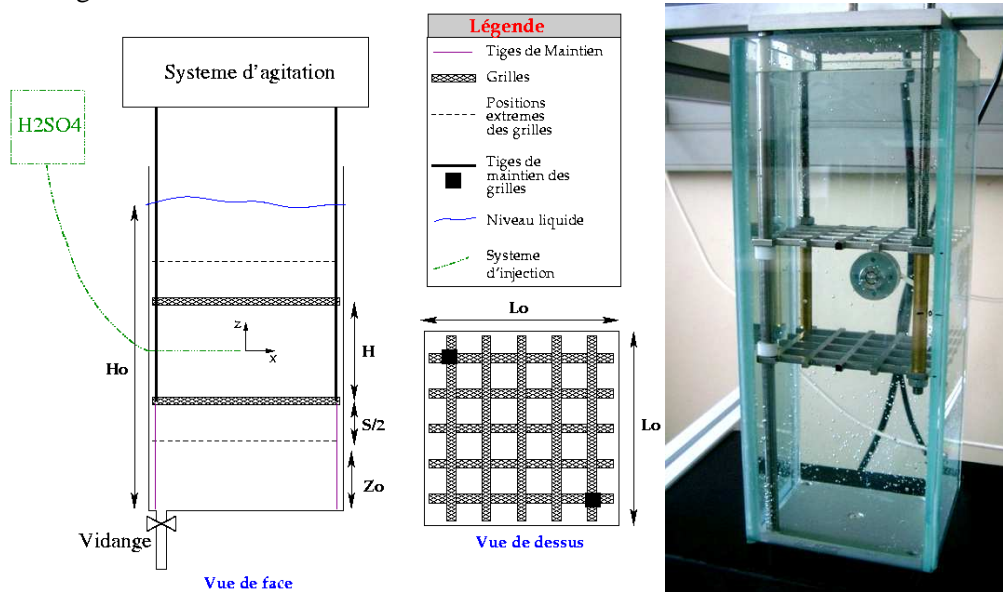


FIG. 1 – Dispositif expérimental

L'homogénéité et l'isotropie ont été vérifiées par vélocimétrie LASER dans une zone de 10 mm autour du point d'injection. Le champ de vitesse n'est pas tout à fait gaussien, les moments d'ordre 3 (skewness) varient entre -0,3 et 0,4 et les moments d'ordre 4 (kurtosis) varient entre 2,6 et 5,5.

Dans ce champ quasi-homogène et isotrope, la vélocimétrie LASER permet la mesure de la vitesse rms u , et l'échelle intégrale temporelle T pour chaque fréquence, hauteur et course des grilles. Le taux de dissipation d'énergie cinétique ε est estimé par Bache et al. (1996) :

$$\varepsilon = \gamma \frac{u^2}{T} \quad (1)$$

γ est une constante égale à $2,4 \pm 0,5$.

Le Reynolds de Taylor est défini par :

$$\text{Re}_{\text{taylor}} = \frac{u\lambda}{\nu} \quad (2)$$

avec l'échelle de Taylor :

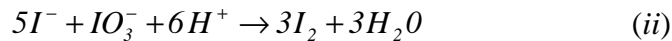
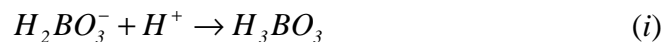
$$\lambda = \sqrt{30\nu \frac{u^2}{\varepsilon}} \quad (3)$$

2.1 Méthode de la sonde chimique pour la mesure du micromélange

Un volume $V_{\text{injection}}$ d'acide sulfurique est injecté dans la cuve de volume V_{cuve} contenant un mélange d'ions borate ($H_2BO_3^-$), iodure (I^-) et iodate (IO_3^-). Les concentrations utilisées sont précisées dans le tableau ci-dessous. Le volume de mélange de la cuve est de 5,5 l et le volume de l'injection est de 10 ml.

	Concentrations Initiales en mol/l
H_3BO_3	9,09 E-02
$H_2BO_3^-$	9,09 E-02
KI	1,17 E-02
KIO_3	2,33 E-03
Acide injecté en mol/l	
H_2SO_4	5,00 E-01

La réaction la plus rapide est acido-basique (i), dans le cas d'un mauvais mélange elle entre en compétition pour la consommation des ions H^+ avec la réaction redox (ii) un peu plus lente que la précédente. Cette dernière réaction est à considérer avec une réaction d'équilibre (iii). Les détails de la cinétique de ces réactions sont donnés par Guichardon et al. (2000).



Un indice de ségrégation X_s défini comme le rapport de l'acide consommé par la réaction (ii) sur la quantité d'acide total injecté, permet de donner une estimation qualitative du micromélange. Si $X_s=0$ alors le micromélange est parfait, c'est-à-dire que la cinétique des réactions pilote la consommation de l'acide (H^+). Plus X_s se rapproche de 1, moins le micromélange est efficace et ainsi apparaît comme facteur limitant dans l'avancements des réactions.

$$X_s = \frac{Y}{Y_{ST}} \quad (4)$$

$$Y = \frac{2V_{\text{cuve}} \left([I_2] + [I_3^-] \right)}{V_{\text{injection}} [H^+]_0} \quad (5)$$

$$Y_{ST} = \frac{6[IO_3^-]_0}{[H_2BO_3^-]_0 + 6[IO_3^-]_0} \quad (6)$$

X_s est mesuré grâce à un spectrophotomètre dans le rayonnement UV (à une longueur d'onde de 353 nm (Guichardon et al. (2000))).

Pour établir le lien entre le taux de ségrégation X_s et le micromélange, il est nécessaire de s'appuyer sur un modèle, dont l'issue permet la détermination d'un temps caractéristique du micromélange.

3 Les modèles de micromélange testés

3.1. Le modèle IEM

Ce modèle introduit par Villermaux et al. (1972) considère deux environnements de fluide qui s'échangent de la matière. L'environnement α représente l'état du fluide dans la cuve et β le volume d'acide injecté. Les échanges entre ces deux domaines s'effectuent par un gradient de concentration entre la concentration du domaine considéré et la concentration moyenne des deux environnements. L'intensité du mélange est introduite par une fréquence d'échange k_m estimée par la fréquence caractéristique d'un écoulement turbulent :

$$k_m = \frac{1}{t_{mi}} = C \frac{\varepsilon}{3u^2} \quad (7)$$

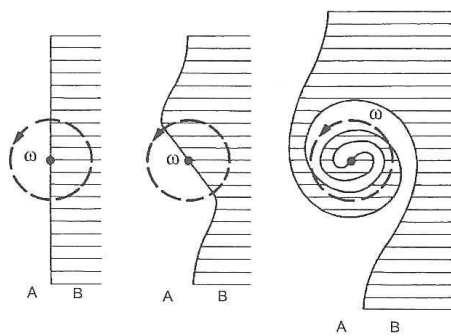
C est une constante d'ordre 1 et t_{mi} est le temps de micromélange du modèle IEM. L'évolution des concentrations des environnements est donnée par :

$$\frac{dc_{\alpha \text{ ou } \beta}}{dt} = k_m (\bar{c} - c_{\alpha \text{ ou } \beta}) \quad (8)$$

où c_β est la concentration du scalaire dans l'environnement β et \bar{c} la moyenne calculée en se basant sur les volumes $V_{\alpha \text{ ou } \beta}$ des 2 environnements :

$$\bar{c} = \frac{V_\alpha c_\alpha + V_\beta c_\beta}{V_\alpha + V_\beta} \quad (9)$$

3.2 Le modèle d'engouffrement



Ce modèle dit « d'engouffrement » introduit par Bałdyga et al. (1999), estime que l'étape limitante du micromélange se situe autour de l'échelle de Kolmogorov (environ 11 fois cette échelle selon le critère de vorticit  maximale). Le m lange entre le fluide A de la cuve et de l'acide inject  B se fait par incorporation du fluide de la cuve dans des vortex contenant initialement l'acide B . La mati re dans le vortex est suppos e parfaitement m lang e. Un bilan de mati re permet de calculer l' volution des concentrations dans les vortex. E est le taux

d'engouffrement correspondant   une fr quence li e   ces vortex. Le volume parfaitement m lang  du vortex cro t avec l'incorporation en suivant la loi suivante :

$$V(t) = V(0) e^{Et} \quad (10)$$

L' volution de la concentration d'un scalaire dans le vortex est donc donn e par :

$$\frac{dc}{dt} = E(c_0 - c) \quad (11)$$

avec c_0 la concentration du scalaire   l'ext rieur du vortex. La fr quence d'engouffrement permet de d finir un temps de microm lange t_{me} de ce mod le :

$$t_{me} = \frac{1}{E} = C_{me} \left(\frac{\nu}{\varepsilon} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (12)$$

Bałdyga et al. (1999) estime la constante C_{me} entre 12 et 17.

4 Résultats expérimentaux et interprétations des modèles

La figure 2 montre les résultats de la mesure de X_s en fonction du nombre Re_{Taylor} . En toute logique, une plus grande intensité turbulente et des échelles turbulentes plus fines favorisent le micromélange.

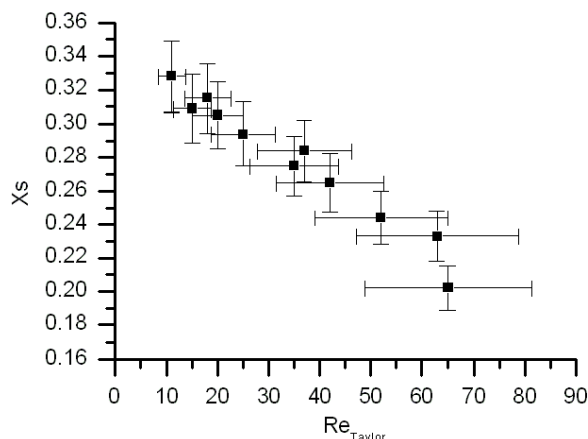


FIG. 2 – Taux de ségrégation en fonction du nombre de Reynolds

Le modèle d'engouffrement est capable de reproduire les mêmes niveaux de X_s mesurés par contre le modèle IEM est incapable de retrouver ces X_s quelque soit le coefficient d'échange k_m . En effet, la concentration d'acide est suffisamment forte pour que le modèle IEM estime à 76% de l'acide total injecté, la quantité d'acide transférée de l'environnement où l'acide est injecté à l'environnement de la cuve. Or dans l'environnement cuve, la réserve d'ion borate est tellement étendue que ces 76% d'acide sont intégralement consommés par la réaction (i). Ainsi X_s est largement sous-estimé. Néanmoins Durandal et al. (2006) montrent que ce modèle fonctionne dès que la concentration d'acide injecté est plus faible (de l'ordre de 10^{-2} mol l⁻¹ correspondant à une quantité d'acide transférée de l'ordre de 30%).

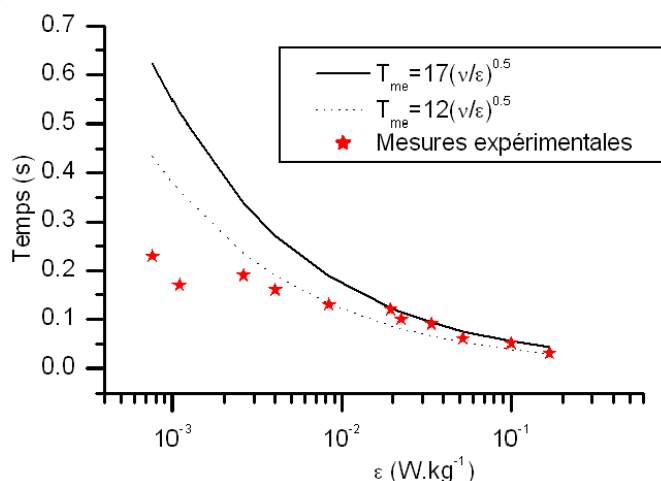


FIG. 3 – Comparaison du temps de micromélange du modèle d'engouffrement

La figure 3 montre que le modèle d'engouffrement est valide pour un nombre de Reynolds suffisamment grand (correspondant aux taux de dissipation d'énergie turbulente les plus grands). Ceci correspond à un nombre de Reynolds basé sur l'échelle de Taylor à partir de 30. Ce modèle permet aussi de simuler le micromélange avec des concentrations fortes, comme dans le cas présent, ou faible (Durandal et al. (2006)).

5 Conclusions

Le choix du modèle de micromélange n'est pas universel. Le modèle d'engouffrement estime assez correctement le micromélange pour des turbulences élevées. Le modèle IEM ne semble pas pertinent pour de fortes concentrations. D'autres modèles de nature stochastique sont en cours de test, principalement le modèle de Curl modifié par Norris et al. (1990).

Nous tenons à remercier Michel Gonzalez du laboratoire d'aérothermochimie de Rouen (Coria) pour les précisions importantes qu'il nous a apportées.

Références

- Assirelli, M., Bujalski, W., Eaglesham, A., Nienow, A.W., 2005. Intensifying micromixing in a semi-batch reactor using a Rushton turbine. *Chemical Engineering Science* **60**, 233-2339.
- Baldyga, J., Bourne, J.R., 1999. *Turbulent Mixing and Chemical Reaction*. Wiley.
- Bache, D.H., Rasool, E., 1996. Measurement of the rate of energy dissipation around an oscillating grid by an energy balance approach. *The Chemical Engineering Journal* **63**, 105-115.
- Durandal, C., Lemenand, T., Della Valle, D., Peerhossaini, H. 2006. A chemical Probe For Characterizing Turbulent Micromixing. *ASME Joint-U.S.-European Fluids Engineering Summer Meeting 2006, Symposium on Macro- and Micromixing of Single Phase Fluids, Miami, Florida*.
- Fang, J.Z., Lee, D.J., 2001. Micromixing efficiency in static mixer. *Chemical Engineering Science* **56**, 3797-3802.
- Ferrouillat, S., Tochon, P., Peerhossaini, H., 2006. Micromixing enhancement by turbulence: Application to multifunctional heat exchangers. *Chemical Engineering and Processing* **45**, 633-640.
- Fournier, M.C., Falk, L., Villermaux, J., 1996. A new parallel competing reaction system for assessing micromixing efficiency - experimental approach. *Chemical Engineering Science* **51** (22), 5053-5064.
- Guichardon, P., Falk, L., 2000. Characterisation of micromixing efficiency by the iodide-iodate reaction system. Part I : experimental procedure. *Chemical Engineering Science* **55**, 4233-4243.
- Guichardon, P., Falk, L., Villermaux, J., 2000. Characterisation of micromixing efficiency by the iodide-iodate reaction system. Part II : kinetic study. *Chemical Engineering Science* **55**, 4245-4253.
- Norris, A.T., Pope, S.B., 1990. Turbulent mixing model based on ordered pairing. *Combustion and flame* **83**, 27-42.
- Villermaux, J., Devillon, J.C., 1972. Representation de la coalescence et de la redispersion des domaines de segregation dans un fluide par un modèle d'interaction phénoménologique. *Proc. 2nd International Symposium on Chemical Reaction Engineering, Amsterdam*, B1-13.