

# Séparation des espèces d'un mélange binaire en présence de convection mixte.

A.KHOUZAM<sup>1,2</sup>, A.MOJTABI<sup>1,2</sup>, M.C.CHARRIER-MOJTABI<sup>3</sup>; B.OUATTARA<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Université de Toulouse ; INPT, UPS; IMFT (Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse); 1, Allée du Professeur Allée Camille Soula, F-31400 Toulouse, France

<sup>2</sup> CNRS; IMFT; F-31400 Toulouse, France

<sup>3</sup> Laboratoire PHASE, EA 3028, UFR PCA, Université Paul Sabatier, 118 route de Narbonne, 31062, Toulouse cedex, France

## Résumé :

*La thermodiffusion conduit à une très faible séparation des espèces d'un mélange. La diffusion thermogravitationnelle, couplage entre le phénomène de thermodiffusion et de convection naturelle augmente le degré de séparation mais la quantité des espèces produites reste toujours faible. En effet l'optimum de séparation est obtenu pour un choix approprié de la vitesse convective et du temps de diffusion massique, conduisant à une très faible épaisseur de la cellule. Nous proposons une nouvelle approche permettant d'améliorer le procédé de séparation en découplant le gradient thermique de la vitesse convective. On considère une cavité rectangulaire, horizontale, remplie d'un fluide binaire et on impose une vitesse uniforme à la paroi supérieure, ce qui permet de disposer de deux paramètres de contrôle indépendants.*

## Abstract :

*Thermodiffusion leads to a very low species separation of a binary mixture. The thermogravitational diffusion, coupling the phenomenon of thermodiffusion and natural convection, increases the degree of species separation but the amount of species produced is still low. In fact, the optimum separation is obtained for an appropriate choice of convective velocity and mass diffusion time, leading to a very thin cell. In this study, we propose a new approach to improve the separation process by decoupling the thermal gradient of the convective velocity. The configuration considered is a horizontal, rectangular cavity filled with a binary fluid. A constant velocity is applied to the upper wall in order to have two independent control parameters.*

**Mots clefs:** thermodiffusion, convection, séparation, fluide binaire, effet Soret.

## 1 Introduction

Lorsqu'on soumet une solution initialement homogène, constituée d'au moins deux espèces chimiques, à un gradient thermique, celui-ci engendre un transfert de matière au sein du mélange. Il en résulte la formation d'un gradient de concentration : ce phénomène est appelé thermodiffusion ou effet Soret. Le couplage de la thermodiffusion et la convection naturelle appelée diffusion thermogravitationnelle peut conduire à une séparation des constituants du mélange beaucoup plus importante que celle que celle induite par la thermodiffusion seule.

En 1938, Clusius et Dickel [1] ont considéré une colonne thermogravitationnelle (TGC), constituée de deux cylindres coaxiaux, verticaux de grande extension chauffés différemment. L'espace annulaire était rempli par un mélange de gaz. Ils ont observé une séparation importante des composants du mélange et ont suggéré l'utilisation de cette technique pour la séparation des isotopes.

En 1939, Furry, Jones et Onsager (FJO) [2] ont établi les équations de bilan pour décrire le processus de diffusion thermogravitationnelle pour un mélange binaire de gaz confiné dans une cavité rectangulaire verticale, de grand rapport d'aspect, différemment chauffée. Mais dans ce travail, ils ont ignoré le rôle de la concentration sur la masse volumique dans le terme de force de volume souvent appelé « l'effet oublié ».

En 1962, Horne et Bearman [3, 4] ont étendu la théorie FJO aux cas des solutions binaires dans une colonne

thermogravitationnelle cylindrique. Ecenarro et al. [5], et Horne and Bearman [3, 4] ont repris la théorie de FJO en ne prenant pas en compte l'hypothèse de l'effet oublié. En milieu poreux, en se basant sur la théorie de Furry, Jones et Onsager [2], Lorenz et Emery [6] ont développé une solution analytique du problème de diffusion thermogravitationnelle. Marcoux et Charrier-Mojtabi [7] ont réalisé des simulations numériques et comparé les résultats obtenus avec des résultats analytiques en diffusion thermogravitationnelle dans une cellule rectangulaire verticale, en milieux poreux. En 2003, Platten et al. [8] ont démontré que l'on pouvait augmenter la séparation moléculaire dans un fluide binaire confiné dans une colonne thermogravitationnelle en inclinant la colonne, chauffée par le haut, d'un certain angle par rapport à la verticale.

El Hajjar et al. [9] ont étudié la convection thermosolutale avec effet Soret, dans une couche poreuse horizontale chauffée par le bas, saturée par un fluide binaire. Ils ont montré que si le facteur de séparation  $\psi > \psi_{\text{mono}} > 0$ , il apparaît au sein de la cellule un écoulement monocellulaire, conduisant à la séparation des espèces entre les 2 extrémités de la cellule. La séparation optimale obtenue a la même valeur que dans une colonne verticale différentiellement chauffée, cependant le nombre de Rayleigh thermique conduisant à cette valeur optimale en configuration horizontale est bien plus élevé qu'en configuration verticale. Ceci permet d'utiliser des cellules horizontales d'épaisseur plus grande que celle des colonnes verticales et d'obtenir une plus grande quantité d'espèces séparées. Pour  $0 < \psi < \psi_{\text{mono}}$ , l'écoulement, au déclenchement de la convection, est stationnaire et multicellulaire : la séparation des espèces n'est donc pas possible.

Dans le présent travail, nous proposons d'étudier la séparation des espèces dans une cavité rectangulaire de grand rapport d'aspect, contenant un fluide binaire (figure1). Il s'agit d'une enceinte horizontale de hauteur  $H$  selon l'axe des  $z$  et de largeur  $L$  selon l'axe des  $x$  avec  $L \gg H$ . Les parois supérieure et inférieure de la cellule sont imperméables à la matière et maintenues à des températures constantes et différentes (avec  $T_1 < T_2$  ou  $T_1 > T_2$ ), tandis que les autres parois sont imperméables et adiabatiques. La paroi supérieure est animée d'une vitesse  $\vec{V} = U \vec{e}_x$ . On dispose donc ainsi de deux paramètres de contrôle indépendants pour l'étude de la séparation : la vitesse de la paroi supérieure et le gradient thermique imposé.

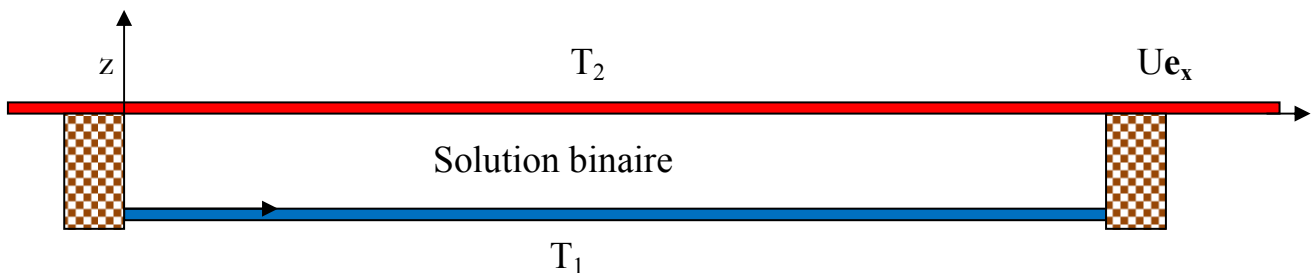


FIG.1- Configuration géométrique.

## 2 Formulation mathématique

Pour la modélisation mathématique, nous avons pris en compte les approximations suivantes:

- La longueur de l'enceinte est suffisamment grande par rapport aux autres dimensions pour que les effets des parois verticales soient négligeables.
- Le fluide binaire est un fluide newtonien incompressible.
- L'écoulement est laminaire.
- L'écoulement satisfait à l'approximation de Boussinesq, cette approximation suppose que les grandeurs thermophysiques du mélange binaire sont constantes à l'exception de la masse volumique du mélange dans le terme de force volumique générateur de convection naturelle où la masse volumique est donnée par

$$\rho = \rho_0 [1 - \beta_T (T - T_0) - \beta_c (C - C_0)] \quad (1)$$

Où  $\beta_T = -\frac{1}{\rho_0} \left( \frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_C$  et  $\beta_c = -\frac{1}{\rho_0} \left( \frac{\partial \rho}{\partial C} \right)_T$  sont respectivement les coefficients d'expansion

thermique et massique du fluide binaire,  $T$  la température et  $C$  la fraction massique du constituant le plus lourd. ( $\rho_0, T_0, C_0$  valeurs de ces grandeurs à l'état de référence).

Pour la plupart des fluides  $\beta_T$  est positif à température et pression ordinaire, à l'exception de l'eau en dessous de 4°C, par contre le signe de  $\beta_c$  est ici négatif puisque  $C$  désigne la fraction massique du constituant le plus lourd ; son coefficient de diffusion massique est  $D$  et de thermodiffusion est  $D_T$ . **Le coefficient Soret  $S=D_T/D$  sera supposé constant, indépendant de la température et de la fraction massique.**

Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement, de l'énergie et des espèces dans laquelle **l'effet Soret est pris en compte** s'écrivent sous forme adimensionnelle :

$$\nabla \cdot \vec{V} = 0 \quad (2)$$

$$\frac{\partial \vec{V}}{\partial t} + \vec{V} \cdot \nabla \vec{V} = -\nabla P + Ra Pr (T - \psi C) \vec{e}_z + Pr \nabla^2 \vec{V} \quad (3)$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \vec{V} \cdot \nabla T = \nabla^2 T \quad (4)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{V} \cdot \nabla C = \frac{1}{Le} (\nabla^2 C + \nabla^2 T) \quad (5)$$

Les conditions aux limites dynamiques, thermiques et massiques sont données par :

$$\begin{aligned} \vec{V}(x, z=0) = 0, \quad \vec{V}(x, z=1) = Pe \vec{e}_x \quad \forall x, \quad \vec{V}(x=(0, A), z) = 0 \quad \forall z \\ T(x, z=0) = 1, \quad T(x, z=1) = 0 \quad \forall x \\ \frac{\partial C}{\partial x}(x=(0, A), z) = \frac{\partial T}{\partial x}(x=(0, A), z) = 0 \quad \forall z \\ \frac{\partial C}{\partial z}(x, z) = -\frac{\partial T}{\partial z}(x, z) \quad \text{pour } z = 0, 1 \end{aligned} \quad (6)$$

où les paramètres adimensionnels sont définis par :

$$(x, y, z) = \frac{(x^*, y^*, z^*)}{H}; \quad (u, v, w) = \frac{(u^*, v^*, w^*)}{V_{ref}}; \quad P = \frac{P^*}{P_{ref}}; \quad t = \frac{t^*}{t_{ref}}; \quad \Delta T = T_1 - T_2;$$

$$T = \frac{T^* - T_{ref}}{\Delta T}; \quad C = \frac{C^* - C_{ref}}{\Delta C}; \quad \Delta C = \Delta T C_0 (1 - C_0) \frac{D_T}{D}.$$

$$\text{Où : } V_{ref} = \frac{a}{H}; \quad P_{ref} = \rho_0 \frac{a^2}{H^2}; \quad t_{ref} = \frac{H^2}{a}; \quad C_{ref} = C_0; \quad T_{ref} = T_0 = T_2$$

Le problème considéré dépend de six paramètres adimensionnels qui sont le nombre de Rayleigh thermique

$$Ra = \frac{g \beta_T H^3 \Delta T}{\nu a}, \quad \text{le nombre de Lewis } Le = \frac{a}{D}, \quad \text{le nombre de Prandtl : } Pr = \frac{\nu}{a}, \quad \text{le nombre de Péclet :}$$

$$Pe = Pr Re \quad \text{où le nombre de Reynolds : } Re = \frac{UL}{\nu} \quad \text{où } a \text{ et } \nu \text{ désignent respectivement la diffusivité}$$

thermique et cinématique du fluide binaire, le facteur de séparation  $\psi = -\frac{\beta_c}{\beta_T} \frac{D_T}{D} C_0 (1 - C_0)$  et le rapport d'aspect  $A=L/H$ .

### 3 Solution analytique

Afin de résoudre analytiquement ce problème, nous avons eu recours à l'approche de type «écoulement

parallèle» utilisée par Cormack et al.[10] et par El Hajjar et al. [11]. On néglige la composante de la vitesse perpendiculaire aux parois horizontales dans la partie centrale de la cellule et on écrit que la vitesse possède une seule composante selon  $\vec{e}_x$  qui ne dépend que de la coordonnée selon  $\vec{e}_z$  soit:  $\vec{V} = u(z)\vec{e}_x$ . Les profils de température et de concentration peuvent alors être écrits sous la forme:  $T(x, z) = bx + f(z)$ ,  $C(x, z) = mx + g(z)$  ou  $b$ ,  $m$  sont des constantes qui expriment respectivement les gradients de température et de concentration selon la direction  $\vec{e}_x$ . En substituant ces profils dans le système (2-5) et en éliminant la pression de l'équation (3) nous obtenons le système d'équations différentielles ordinaires suivant :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^3 u(z)}{\partial z^3} - Ra \frac{\partial}{\partial x} (T - \psi C) &= 0 \\ \nabla^2 T &= 0 \\ Lem u(z) - \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} &= 0 \end{aligned} \quad (7)$$

D'autres conditions sont nécessaires pour résoudre ce système d'équations, les conditions aux limites sur les parois verticales n'étant pas prises en compte, car nous nous intéressons à l'écoulement loin de ces parois. On traduit pour cela que le débit massique est nul à travers toute section droite verticale de la cavité:  $\int_0^1 u(z) dz = 0$ , et la conservation du soluté dans toute la cavité :  $\int_0^1 \int_0^A C dz dx = 0$  ( car nous avons considéré  $C_0=0$ ).

En appliquant les conditions aux limites (6), et les conditions mentionnées ci-dessus nous avons déterminé les profils de vitesse, de température et de concentration, solution du formalisme (7):

$$u(z) = -\frac{1}{6} Ra \psi m z^3 + \frac{1}{4} (Ra m \psi + 12 Pe) z^2 - \frac{1}{12} (Ra \psi m + 24 Pe) z \quad (8)$$

$$T = z \text{ pour } T_1 < T_2 \quad (9)$$

$$C = mx + \frac{1}{12} m Le \left( -\frac{1}{10} Ra \psi m z^5 + \frac{1}{12} (3 Ra \psi m + 36 Pe) z^4 \right. \quad (10)$$

$$\left. -\frac{1}{6} (Ra \psi m + 24 Pe) z^3 \right) + z + \frac{1}{1440} Le \psi m^2 Ra + \frac{1}{30} Pe - \frac{1+mA}{2}$$

Pour la détermination du gradient de concentration  $m$ , nous utilisons la condition que le flux du soluté à

travers toute section verticale est nul soit :  $\int_0^1 (u(z)C - \frac{1}{Le} (\frac{\partial C}{\partial x} + \frac{\partial T}{\partial x})) dz = 0$ . Après intégration, nous

obtenons une équation du troisième degré en  $m$  dont les coefficients sont des fonctions des nombres adimensionnels du problème ( $Le$ ,  $A$ ,  $Ra$ ,  $Pe$ ,  $\psi$ ). Nous ne donnons pas son expression pour ne pas alourdir le texte. La séparation, définie par la différence des fractions massiques du constituant le plus lourd entre les deux parois verticales de la cellule, est donnée par  $S = mA$ . La valeur maximale de la séparation obtenue

est pour  $m = \frac{\sqrt{42}}{15}$  avec  $Pe = \frac{\sqrt{42}}{Le}$ ,  $Ra = \frac{540}{Le\psi}$ . **pour une cellule chauffée par le bas avec  $\psi > 0$  et pour une cellule chauffée par le haut avec  $\psi < 0$ .**

#### 4 Comparaison entre les résultats analytiques et les résultats numériques

Des simulations numériques ont été effectuées pour corroborer les résultats analytiques. Nous avons utilisé le logiciel Comsol Multiphysics avec un maillage rectangulaire, bien adapté à la géométrie considérée. La résolution spatiale est de 120 x 20 pour  $A=10$ .

L'évolution de la séparation en fonction du nombre de Péclet pour  $Ra = -20$  (cellule chauffée par le

haut),  $Le = 200, \psi = 0.1, A = 10$  et pour  $Ra = 100$  (cellule chauffée par le bas),  $Le = 100, \psi = 0.1, A = 10$  est présentée sur la figure (2). La solution obtenue analytiquement est représentée en trait continu pour  $Ra=-20$  et discontinu pour  $Ra=100$ . Cette solution analytique ne prenant pas en compte les conditions aux limites au niveau des parois verticales est en bon accord avec la solution numérique représentée par des points ou des carrés.

Nous voyons sur la figure 2, que la séparation commence par augmenter avec l'augmentation du nombre de Péclet jusqu'à une valeur optimale ( $Pe_{opt}$ ) au-delà de laquelle la séparation diminue. Pour des faibles valeurs du nombre de Péclet (i.e. la vitesse de la paroi supérieure est faible) ou lorsque le nombre de Péclet est élevé, le temps de diffusion thermique n'est plus en bonne adéquation avec le temps convectif ce qui entraîne une moins bonne séparation des espèces entre les deux extrémités de la cellule.

Sur la figure 3 on présente un exemple du champ de concentration pour différentes valeurs du nombre de Péclet, les lignes étant des lignes d'iso-concentration, tandis que les couleurs représentent l'intensité de la fraction massique du constituant le plus lourd. Pour  $Pe=0.08$ , on est proche de la séparation optimale ( $S_{max}=4.32$ ) pour  $Le=100$  et la stratification du champ de concentration est plus importante que dans le cas  $Pe=0.16$ .

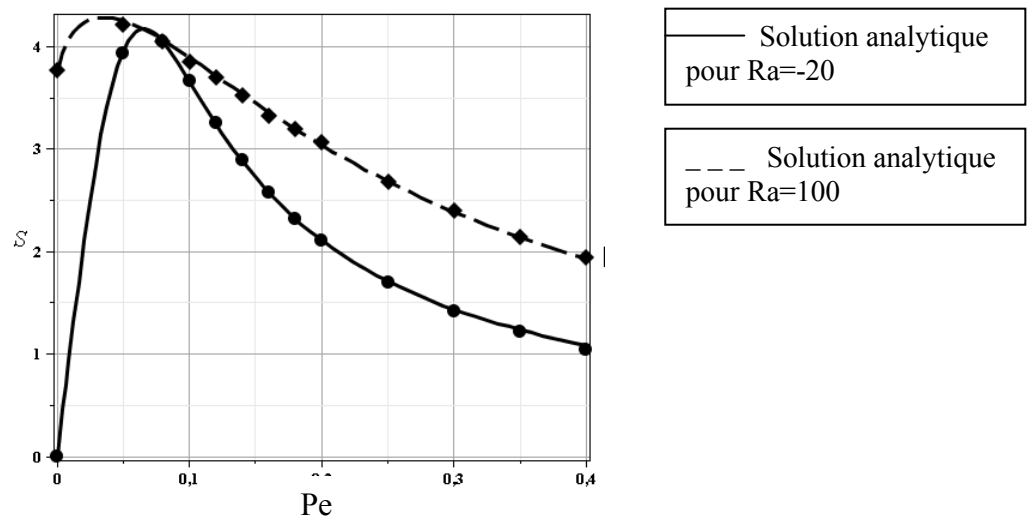


FIG.2- Variation de la séparation ( $S$ ) en fonction du nombre de Péclet ( $Pe$ ), pour  $Ra = -20, Le = 200, \psi = 0.1, A = 10$  et  $Ra = 100, Le = 100, \psi = 0.1, A = 10$  avec,  $Pr = 10$ .

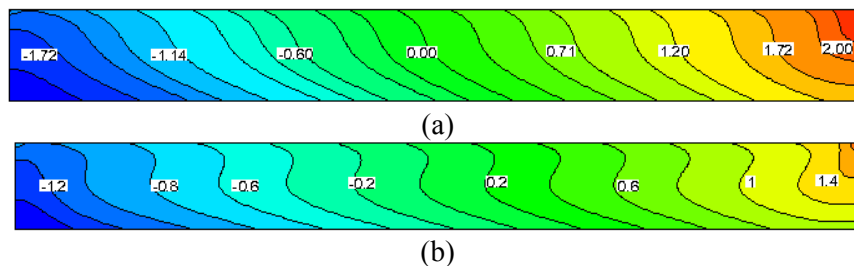


FIG.3- Iso-concentrations et variation du champ de concentration en fonction du nombre de Péclet ( $Pe$ ) (a)  $Pe = 0.08$ , (b)  $Pe = 0.16$ , avec  $Ra = -20$ , et  $Le = 200, \psi = 0.1, A = 10, Pr = 10$

La figure 4 montre l'évolution de la séparation en fonction du nombre de Rayleigh pour les cas  $Pe = 0, Pe = 0.05, Pe = 0.12$  avec  $Le = 120, \psi = 0.1$ . Pour  $Pe = 0.05$ , la séparation maximale ( $S = 4.32$ ) est obtenue pour  $Ra=45$  (cellule chauffée par le bas), tandis que pour  $Pe = 0.12$ , la séparation maximale ( $S = 4.12$ ) est obtenue à  $Ra = -34$  (cellule chauffée par le haut) et l'écoulement associé restera toujours stable pour cette valeur de  $Pe, \forall Ra$ . **De plus, on montre que dans le cas d'un chauffage par le haut, la séparation est toujours possible quel que soit le facteur de séparation  $\psi > 0$ .**

Pour  $Pe = 0$ , la séparation maximale ( $S = 4.2$ ) est obtenue à  $Ra = 114$  (cellule chauffée par le bas). Dans ce cas on montre que l'écoulement unicellulaire n'est possible que si :  $Ra \geq \frac{720}{Le\psi}$ .

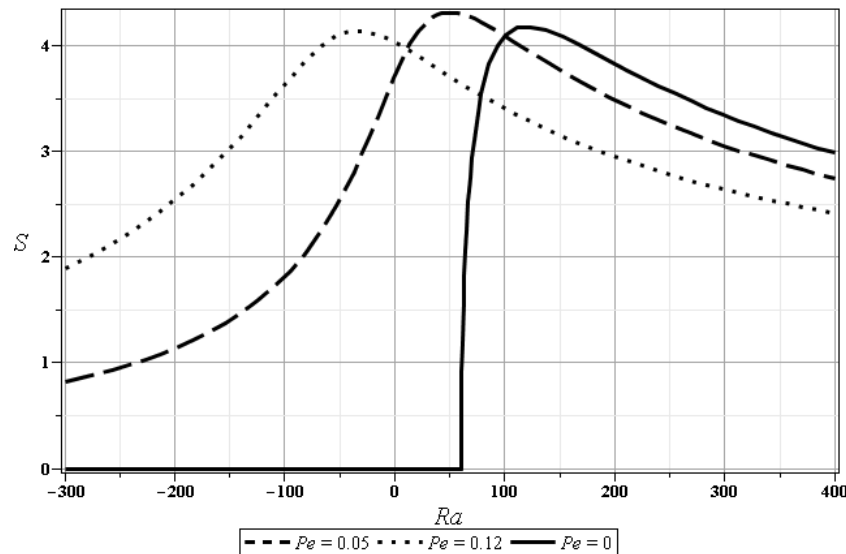


FIG-4. Séparation en fonction du nombre de Rayleigh pour  $Pe = 0$ ,  
 $Pe = 0.05$ ,  $Pe = 0.12$  avec  $Le = 120, \psi = 0.1$ .

## 5 Conclusion

Dans cette étude, nous avons proposé une nouvelle méthode permettant la séparation des espèces dans une cavité rectangulaire horizontale, remplie d'un fluide binaire. Cette méthode consiste à imposer une vitesse à la paroi supérieure de la cavité chauffée par le haut ou par le bas. Nous avons déterminé analytiquement la séparation en fonction du nombre de Péclet et du nombre de Rayleigh, qui constituent deux paramètres de contrôle indépendants. Des simulations numériques directes ont montré un très bon accord avec les résultats analytiques. **Dans ce nouveau procédé de séparation, la vitesse du rouleau convectif est indépendante de la différence de température imposée sur les parois horizontales. Pour  $\psi > 0$ , la séparation optimale est obtenue pour un chauffage par le bas : ce maximum est légèrement supérieur à celui obtenu par un chauffage par le haut et dans ce dernier cas la séparation est possible pour toutes valeurs de  $\psi > 0$ . De plus nos travaux antérieurs [9], [11] ont montré que les quantités d'espèces séparées sont supérieures en configuration horizontale par rapport au cas des colonnes verticales.**

## Références

- [1] K. Clusius, and G. Dickel, *Naturwissenschaften* **26**, 33 (1938).
- [2] W.H.Furry, R.C.Jones, and L.Onsager, *Phys. Rev.* **55**, 1083 (1939).
- [3] F. H. Horne and R. J. Bearman, *Chemical Physics* **49**, 3 (1968).
- [4] F.H.Horne and R. J. Bearman, *Chem. Physics.* **37**, 2842 (1962).
- [5] O. Ecenarro *et al.*, *Journal of Physics-Condensed Matter* **1**, 9741 (1989).
- [6] M. Lorenz and A.H. Emery, *The packed thermodiffusion column*, *Chem. Eng. Sc.*, pp. 16-23, (1959).
- [7] M. Marcoux, and M. C. Charrier-Mojtabi, *Comptes Rendus de l' Académie des Sciences Serie II,B - Mécanique Physique Astronomie* **326**, 539 (1998).
- [8] J. K. Platten, M. M. Bou-Ali, and J. F. Dutrieux, *Journal of Physical Chemistry B* **107**, 11763 (2003).
- [9] B. Elhajjar, M. C. Charrier-Mojtabi, and A. Mojtabi, *Physical Review E* **77**, 6 (2008).
- [10] D. E. Cormack, L. G. Leal, and J. Imberger, *Journal of Fluid Mechanics*, **65(02)**, (1974).
- [11] B. Elhajjar *et al.*, *International Journal of Heat and Mass Transfer* **53**, 4844 (2010).