






OATAO is an open access repository that collects the work of Toulouse researchers and makes it freely available over the web where possible

This is an author's version published in: <http://oatao.univ-toulouse.fr/21521>

Official URL:

To cite this version:

Chaumat, Hélène  and Benhamed, Imane  and Hengl, Nicolas and Baup, Stéphane and Gondrexon, Nicolas and Barthe, Laurie  *Effet des ultrasons basse fréquence sur l'hydrodynamique d'un réacteur annulaire continu : approche expérimentale en Distribution des Temps de Séjour (DTS)*. (2017) In: 16eme congrès de la SFGP 2017, 11 July 2017 - 13 July 2017 (Nancy, France).

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository administrator: tech-oatao@listes-diff.inp-toulouse.fr

Effet des ultrasons basse fréquence sur l'hydrodynamique d'un réacteur annulaire continu : approche expérimentale en Distribution des Temps de Séjour (DTS)

CHAUMAT Hélène^a, BENHAMED Imane^a, HENGL Nicolas^b, BAUP Stéphane^b, GONDREXON Nicolas^b, BARTHE Laurie^{a*}

^a Laboratoire de Génie Chimique, Université de Toulouse, CNRS, INPT, UPS, Toulouse, France
4 allée Emile Monso, CS 84234, 31 432 Toulouse cedex 4, France

^b Univ. Grenoble Alpes, LRP, F-38000 Grenoble, France

363 rue de la Chimie, Domaine Universitaire Saint Martin d'Hères/Gières, BP 53, 38610 Gières, France

Résumé

Les ultrasons sont particulièrement intéressants pour leurs effets mécaniques permettant d'activer les transferts, notamment en générant du mélange. Or ceci n'a pas encore été quantifié dans un réacteur continu ce qui constitue pourtant un point clé pour l'intensification de tels procédés. Dans ce but, ces travaux ont caractérisé l'écoulement au sein d'un réacteur annulaire continu sous ultrasons basse fréquence via une approche expérimentale de détermination de la Distribution des Temps de Séjour (DTS). Un protocole expérimental et une méthode de traitement du signal fiables et répétables ont été mis au point. Les essais en conditions silencieuses ont mis en avant que, de par sa géométrie, le réacteur étudié présente a priori des zones mortes non négligeables. La comparaison de ces résultats avec ceux obtenus sous ultrasons a clairement mis en évidence l'action des ondes ultrasonores dans les conditions de débit testées (régime laminaire). La comparaison des courbes de DTS ainsi que des valeurs du temps de séjour moyen obtenues permettent de confirmer l'action sur le mélange des ultrasons au sein du réacteur. En créant du micro-mélange, les ultrasons réduisent les zones mortes. L'étude de l'influence de la puissance ultrasonore semble montrer un effet de seuil au-delà duquel l'apport des ondes sur l'hydrodynamique est moins marqué. Ce point est encourageant quant à l'extrapolation des réacteurs sous ultrasons.

Mots-clés : Réacteur ; Ultrasons ; Hydrodynamique ; Mélange ; Temps de séjour

1. Introduction

De nombreux domaines industriels ont choisi de mettre à profit les ultrasons de puissance tels que celui des matériaux (nanomatériaux, polymères, revêtements de surface), de la cosmétique et l'alimentaire (principalement à travers l'extraction de produits naturels à partir de plantes, la dissolution, l'homogénéisation), et de l'environnement (en particulier le traitement de l'eau, des boues et du sol). En effet, les ultrasons de puissance sont connus pour leurs effets physiques et chimiques remarquables : ils peuvent activer des réactions chimiques mais aussi améliorer des procédés physiques (nettoyage, dissolution, désagrégation, dégazage, émulsification, ...).

Les effets mécaniques, recherchés dans notre étude, sont causés principalement par la cavitation ultrasonore et la génération de micro-jets. Ils sont intenses à basse fréquence (autour de 20 kHz) et ont pour conséquence directe non seulement le mélange à l'échelle du réacteur (macro-mélange) mais aussi à l'échelle moléculaire (micro-mélange). Si la notion de micro mélange par ultrasons a déjà été mise en évidence par Monnier et al. (1999), le phénomène de macro-mélange, mis en évidence visuellement par Parvizian et al. (2011), n'a été que très peu quantifié. Or, dans le domaine des procédés industriels, la caractérisation hydrodynamique des réacteurs chimiques est une étape indispensable pour le développement et l'optimisation de ces procédés. Les conditions de mélange au sein des réacteurs sont importantes et constituent un point clé pour

leur intensification. Ainsi, la mesure des distributions des temps de séjour, permettant de représenter le comportement de l'écoulement des fluides au sein des réacteurs et de caractériser l'état du mélange, est une méthode qui fait référence dans le domaine. Certaines études ont permis de déterminer des temps de mélange dans des réacteurs batch sous ultrasons (Vichare et al., 2001 ; Yusaf et al., 2007 ; Murugan et al. 2008) mais peu se sont intéressées aux cas des réacteurs continus (Gondrexon et al., 1998 ; Parvizian et al. 2012) et aucun à basse fréquence.

Dans ce contexte, ces travaux proposent de caractériser l'écoulement au sein d'un réacteur annulaire continu sous ultrasons basse fréquence via une approche expérimentale de détermination de la Distribution des Temps de Séjour (DTS). Les effets du débit de fluide et de la puissance ultrasonore seront analysés.

2. Matériels et méthodes

2.1 Montage expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est présenté sur la Figure 1. Le cœur de ce montage est un réacteur annulaire ultrasonore à l'échelle pilote (volume utile de liquide de 10,5 litres). Ce réacteur en acier inoxydable a pour dimensions 285 mm de diamètre et 572 mm de hauteur. Il est placé sur un axe pivotant afin de faciliter son démontage et est équipé d'un robinet d'isolement et d'un autre de vidange.

La sonde à ultrasons est en titane, de type Push-Pull ; elle occupe la partie centrale du réacteur (diamètre de 55 mm). Elle opère à une fréquence de 25 kHz avec une puissance variable (0 à 1 kW).

Ce dispositif fonctionne avec une circulation ascendante d'eau du réseau. L'eau est d'abord détendue à 1,5 bar relatif. Son débit est réglé au moyen d'un robinet pointeau et mesuré à l'aide d'un débitmètre à flotteur. Celui-ci a été étalonné et sa précision dans la gamme étudiée (100 à 300 L.h⁻¹) est de 3%.

On opère à température ambiante. Toutefois, les ultrasons générant un échauffement du liquide, la température de l'eau est mesurée en entrée et en sortie du réacteur.

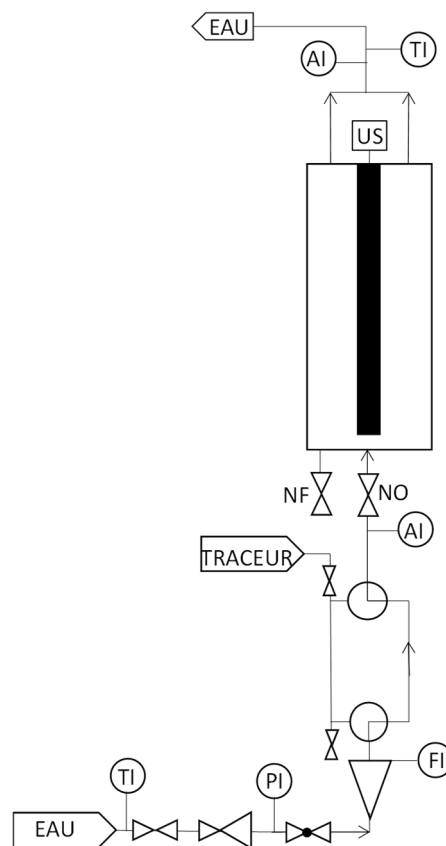


Figure 1 : Dispositif expérimental

2.2 Détermination expérimentale des Distributions de Temps de Séjour (DTS)

2.2.1. Méthode de mesure

Pour la mesure des DTS, le principe conductimétrique a été retenu comme méthode de détection, car il est simple, fiable et rapide.

Le traceur choisi est une solution saline de sulfate de sodium ($\text{Na}_2\text{SO}_4 \geq 99,5\%$, Sigma-Aldrich). Un volume connu d'une solution à 20 g.L^{-1} est injecté en entrée du réacteur sous forme d'impulsion au moyen d'un jeu de deux vannes trois voies. Ce dispositif permet à l'eau de circuler soit dans la cellule contenant la solution saline, soit dans une canalisation placée en dérivation (cf. Figure 1).

Pour s'affranchir des imperfections éventuelles de l'injection, la mesure de conductivité est effectuée en entrée du réacteur et en sortie, ce qui permet de reconstruire le signal de sortie qui serait obtenu avec une injection sous forme de Dirac parfait.

Afin de minimiser les temps de réponse, des cellules de mesure à deux plaques parallèles en platine (marque Heito) ont été choisies. Ces sondes sont reliées à des boîtiers (sans correction en température) permettant de réaliser l'acquisition simultanée de la conductimétrie en entrée et en sortie à une fréquence choisie de 10Hz. Un étalonnage de ces appareils a été effectué à différentes températures, afin de pouvoir convertir ces mesures en concentration. Chaque expérience a été répétée trois fois.

2.2.2. Traitement du signal

L'interprétation des signaux enregistrés nécessite un traitement préalable.

Les signaux de conductivité sont tout d'abord convertis en concentration en utilisant la courbe d'étalonnage de chaque sonde à la température de mesure. Afin de s'affranchir des variations de conductivité de l'eau du réseau en fonction des jours, le signal de base résultant est ramené à zéro. L'intégration en fonction du temps des signaux $C(t)$ obtenus multipliée par le débit volumique Q_V conduit à la masse de sel introduite lors de l'injection, m_{sel} (Eq. 1) :

$$m_{sel} = Q_V \cdot \int_0^{\infty} C(t) dt \quad (1)$$

Connaissant la quantité de sel introduite à chaque essai, le bilan matière peut alors être vérifié.

Les signaux sont ensuite adimensionnés pour obtenir les distributions de temps de séjour $E(t)$ (moment d'ordre 0) (Eq. 2) :

$$E(t) = \frac{C(t)}{\int_0^{\infty} C(t) dt} \quad (2)$$

On calcule alors les moments d'ordre 1, correspondant au temps de séjour moyen t_s , et d'ordre 2 des signaux (Houzelot, 2013) (respectivement Eq. 3 et 4).

$$t_s = \int_0^{\infty} t \cdot E(t) dt \quad (3)$$

$$\mu^2 = \int_0^{\infty} (t)^2 \cdot E(t) \cdot dt \quad (4)$$

En appliquant ce traitement aux signaux d'entrée et de sortie, on obtient le temps de séjour et le moment d'ordre 2 du système en faisant la différence entre les valeurs obtenues en sortie et en entrée (Houzelot, 2013) (respectivement Eq. 5 et 6) :

$$t_s = t_s(\text{sortie}) - t_s(\text{entrée}) \quad (5)$$

$$\mu^2 = \mu^2(\text{sortie}) - \mu^2(\text{entrée}) \quad (6)$$

Accompagnées de l'analyse des signaux, ces grandeurs permettront de caractériser le réacteur et d'analyser les effets du débit de liquide et de la puissance ultrasonore sur nos résultats.

3. Résultats

3.1 Validation du protocole

Des essais préliminaires ont permis de valider la procédure expérimentale utilisée (volume et concentration du traceur, procédure d'injection) et d'obtenir des mesures fiables et répétables au sein du réacteur. La Figure 2 témoigne de la bonne répétabilité des signaux entre les 3 mesures de distributions de temps de séjour obtenus à 100 L.h^{-1} sans et avec ultrasons. Elle montre également que les signaux sont moins bruités et plus répétables en présence d'ultrasons. Le même type de résultat a été obtenu pour toutes les conditions étudiées.

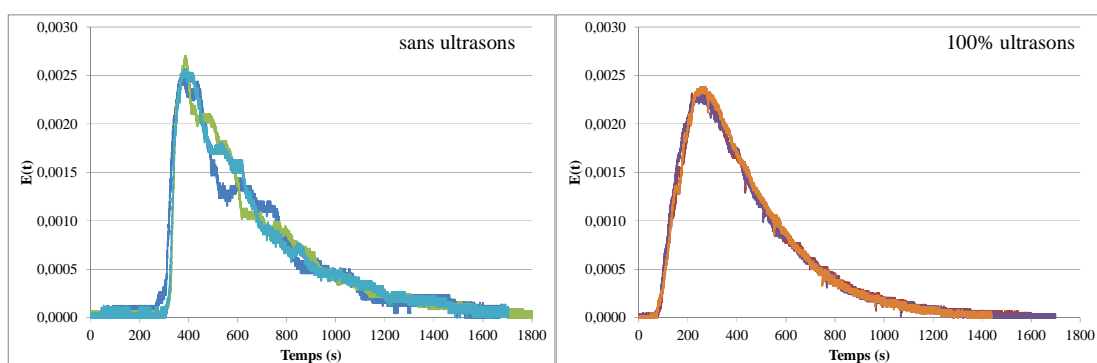


Figure 2 : Répétabilité des distributions de temps de séjour à $100L.h^{-1}$ sans et avec ultrasons

Le Tableau 1 présente les résultats du bilan matière pour les essais de la Figure 1. Comme précédemment, ces résultats sont assez représentatifs des différentes conditions explorées : les écarts à la masse introduite restent toujours inférieurs à 15%. Les écarts sont plus faibles en sortie qu'en entrée, ce qui est cohérent avec un étalonnage un peu moins précis sur le signal d'entrée, car, pour avoir un signal d'amplitude suffisante en sortie, les valeurs à fortes conductivités du signal d'entrée sont à la limite du domaine où la conductivité évolue linéairement avec la concentration. On peut également noter une différence entre les cas avec et sans ultrasons avec une meilleure vérification du bilan matière avec ultrasons.

Tableau 1. Bilan matière sur les essais à $100L.h^{-1}$ sans et avec ultrasons

	Masse introduite (g)	Masse calculée (g)		Ecart / masse introduite	
		Entrée	Sortie	Entrée	Sortie
Sans ultrasons	1,81	1,57	1,68	-13,04%	-6,97%
	2,41	2,16	2,52	-10,33%	4,42%
	2,10	1,91	2,06	-8,77%	-1,60%
100% ultrasons	2,44	2,26	2,49	-7,37%	1,94%
	2,48	2,24	2,48	-9,62%	0,05%
	2,39	2,19	2,37	-8,14%	-0,85%

Une bonne répétabilité est observée sur nos mesures et la masse de sel introduite est retrouvée par calcul sur les signaux d'entrée et de sortie traités : la validité de nos manipulations et du traitement effectué s'en trouve renforcée.

3.2 Essais préliminaires : influence du débit sans ultrasons

Le premier volet de ces travaux a été mené à faibles débits (débit entre 100 et 300 $L.h^{-1}$), en régime d'écoulement laminaire ($Re = 160-490$). Sans ultrasons, les courbes de DTS ont montré un comportement cohérent à celui attendu avec un profil de vitesse laminaire sans rétro-mélange dans un espace annulaire, tel que proposé par Lamb (1945). Quel que soit le débit, la distribution du temps de séjour présente un retard suivi d'un pic de sortie peu resserré du fait de l'allure du profil de vitesse (cf. Figure 3). A faible débit, le retard augmente et le signal est beaucoup plus étalé avec une très longue traînée.

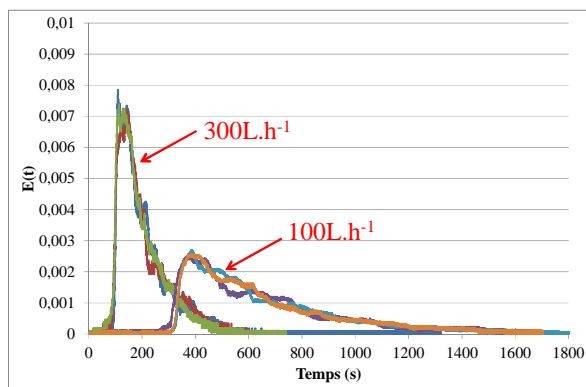


Figure 3 : Distributions de temps de séjour sans ultrasons à 100L.h⁻¹ et à 300 L.h⁻¹

Cela se traduit évidemment par un temps de séjour plus long à faible débit, mais le plus étonnant est l'écart observé systématiquement avec le temps de passage théorique τ , correspondant au rapport entre le volume balayé et le débit de liquide (cf. Tableau 2). Le temps de séjour moyen calculé est 57% à 68% plus grand que le temps de séjour attendu : le réacteur étudié présente a priori des zones mortes importantes (de l'ordre de 2L), ce qui est peu surprenant aux faibles vitesses d'écoulement étudiées.

Tableau 2. Effet du débit sur le temps de séjour sans ultrasons

	t_s (s)	τ^a (s)	Ecart
100 L.h ⁻¹	646	385	68%
300 L.h ⁻¹	201	128	57%

^aTemps de passage théorique calculé à partir du volume balayé, compris entre les deux sondes conductimétriques d'entrée et de sortie (réacteur et canalisations incluses), soit $V = 10,68L$

3.3. Effet des ultrasons

Différentes puissances ultrasonores sont à présent appliquées à notre système (de 20 à 100% de la puissance maximale). La première observation est évidemment une augmentation de la température en sortie telle qu'observée sur la Figure 4 : l'augmentation est globalement proportionnelle à la puissance.

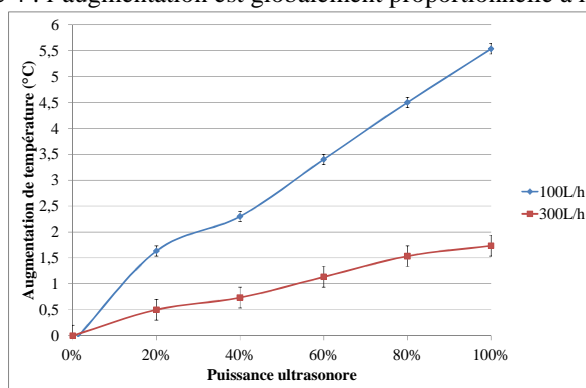


Figure 4 : Effet de la puissance ultrasonore sur l'échauffement au sein du réacteur

Comme en témoigne la Figure 5, la puissance ultrasonore présente également un effet sur le temps de séjour moyen dans le réacteur : celui-ci diminue en présence d'ultrasons et l'écart au temps de séjour moyen théorique se réduit à pleine puissance à respectivement 12% et 13% pour les débits de 100L.h⁻¹ et 300 L.h⁻¹. En créant du micro-mélange, les ultrasons réduisent les zones mortes. Il n'est cependant pas nécessaire de travailler à pleine puissance pour avoir cet effet : le temps de séjour diminue fortement jusqu'à 40% puis atteint un plateau légèrement descendant.

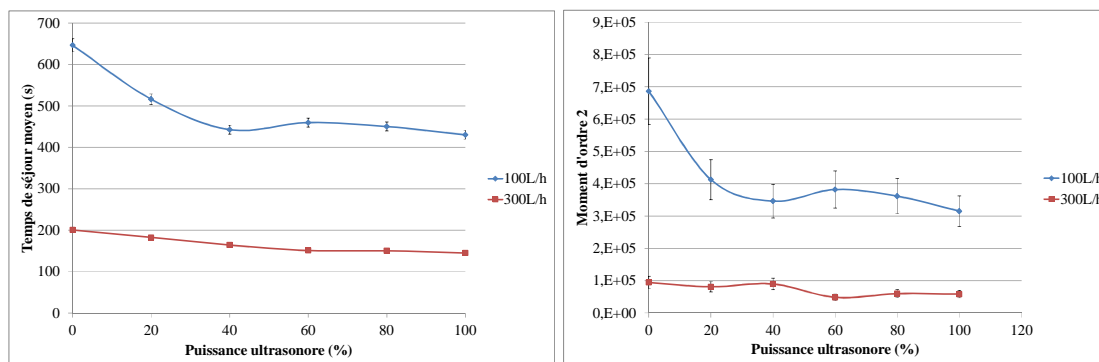


Figure 5 : Effet de la puissance ultrasonore sur le temps de séjour et le moment d'ordre 2 dans le réacteur

Un effet similaire est observé au niveau du moment d'ordre 2, ce qui tend vers une distribution plus resserrée, ce que valide la Figure 6 présentant les distributions de temps de séjour pour différentes puissances ultrasonores à 300 L.h⁻¹. L'analyse plus fine montre cependant que ce n'est pas tant la largeur des signaux qui diminue que la traînée liée au volume mort. Le moment d'ordre 2 n'est donc pas efficient dans ce cas pour décrire les phénomènes. En revanche, on observe clairement sur ces distributions que la puissance ultrasonore tend à diminuer le retard à la montée du signal, renforçant l'idée d'un milieu plus mélangé. Cet effet semble cependant également diminuer à partir d'une puissance ultrasonore de 40% environ.

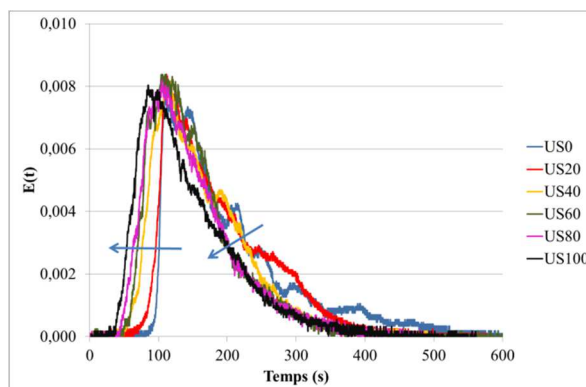


Figure 6 : Effet de la puissance ultrasonore sur les distributions de temps de séjour (300L.h⁻¹)

L'effet de mélange des ultrasons en présence de volume mort est clairement établi. Afin de vérifier si cet effet est maintenu en l'absence de volumes morts, des essais sont actuellement en cours en régime turbulent, conditions par ailleurs plus proches des conditions d'usage réel de ces réacteurs. La modélisation de l'écoulement dans le réacteur avec et sans ultrasons est également en cours, afin de pouvoir utiliser ces modèles pour l'optimisation des phénomènes de transfert.

4. Conclusions

Ce travail a permis la détermination expérimentale de la DTS dans un réacteur annulaire en présence d'ultrasons. L'action des ondes ultrasonores a été clairement mise en évidence dans les conditions de débit testées, à partir de la comparaison avec les résultats obtenus en conditions silencieuses. La comparaison des courbes de DTS ainsi que des valeurs du temps de séjour moyen obtenues permettent de confirmer l'action sur le mélange des ultrasons au sein du réacteur. L'étude de l'influence de la puissance ultrasonore, semble montrer un effet de seuil au-delà duquel l'apport des ondes sur l'hydrodynamique est moins marqué.

Références

- Gondrexon N., Renaudin V., Petrier C., Clement M., Boldo P. Gonthier Y. et A. Bernis, 1998, Experimental study of the hydrodynamic behaviour of a high frequency ultrasonic reactor. Ultrasonics Sonochemistry. 5, 1.
- Houzelot J.L., 2013, Distribution des temps de séjour et efficacité des réacteurs chimiques. Techniques de l'ingénieur, J4014.
- Lamb H., 6th edition, 1945, Hydrodynamics. Dover Publication, New York.

- Monnier H., Wilhelm A. M. et Delmas H., 1999, Influence of ultrasound on mixing on the molecular scale for water and viscous liquids. *Ultrasonics Sonochemistry*. 6, 67.
- Murugan R. V. et Nagarajan R., 2008, Pulsed ultrasonic mixing: An experimental study. *Chemical Engineering Research & Design*. 86, 454.
- Parvizian F., Rahimi M. et Faryadi, 2011, Macro-and micromixing in a novel sonochemical reactor using high frequency ultrasound. *Chemical Engineering and Processing*. 50, 732.
- Parvizian F., Rahimi M. et Azimi N., 2012, Macro- and micromixing studies on a high frequency continuous tubular Sonoreactor. *Chemical Engineering and Processing*. 57, 8
- Vichare N. P., Gogate P. R., Dindore V. Y. et Pandit A. B., 2001, Mixing time analysis of a sonochemical reactor. *Ultrasonics Sonochemistry*. 8, 23.
- Yusaf T. F. et Buttsworth D. R., 2007, Characterisation of mixing rate due to high power ultrasound. *Ultrasonics Sonochemistry*. 14, 266.
-

Effect of low-frequency ultrasound on the hydrodynamics of a continuous annular reactor: Residence Time Distribution experimental approach (RTD)

CHAUMAT Hélène^a, BENHAMED Imane^a, HENGL Nicolas^b, BAUP Stéphane^b, GONDREXON
Nicolas^b, BARTHE Laurie^{a*}

^a Laboratoire de Génie Chimique, Université de Toulouse, CNRS, INPT, UPS, Toulouse, France
4 allée Emile Monso, CS 84234, 31 432 Toulouse cedex 4, France

^b Univ. Grenoble Alpes, LRP, F-38000 Grenoble, France
363 rue de la Chimie, Domaine Universitaire Saint Martin d'Hères/Gières, BP 53, 38610 Gières, France

Abstract

Ultrasound (US) are particularly interesting for their mechanical effects enabling transfers activation, in particular by generating mixing. However, this phenomenon has not yet been quantified in a continuous reactor, which is nevertheless a key point for the intensification of such processes. For this purpose, this work characterized the hydrodynamics within a continuous annular reactor under low frequency ultrasound via a Residence Time Distribution experimental approach (RTD). Reliable and reproducible experimental protocol and data processing method were developed. The experiments under silent conditions showed that, due to its geometry, the studied reactor had dead zones that are not negligible. The comparison of these results with those obtained under US had clearly demonstrated the action of US in the flow rate range investigated (laminar flow). The comparison of the RTD curves, as well as the average residence time values obtained, confirmed the US effect on the mixing within the reactor. By creating micro-mixing, ultrasound also reduced dead zones. The study of US power influence showed a threshold beyond which its contribution on hydrodynamics is less marked. This point is encouraging for the scale up of reactors under ultrasound.

Keywords: Reactor; Ultrasound; Hydrodynamic; Mixing; Residence time
