

Lire
la première partie
de la thèse

Conclusion générale

Ce travail de thèse a été consacré à l'exploration des mécanismes de transport et de mélange d'un traceur passif en écoulement à bulles. Ceci a nécessité de développer des méthodes de mesure de concentration en écoulement à bulles car il existe à ce jour peu de moyens de mesure résolus en temps et en espace pour ces écoulements. Nous avons choisi d'utiliser des techniques basées sur le principe de fluorescence et d'absorption d'un traceur que ce soit par LIF couplée à de la spectrométrie à haute fréquence, par absorption de la lumière incidente ou encore par fluorescence induite par un éclairage aux néons UV au cœur d'un écoulement à bulles. Dans ces écoulements opaques, il a été indispensable de développer des traitements du signal et de l'image afin de s'assurer de la validité et de la robustesse de la mesure de concentration. Ces méthodes de mesure ont ensuite permis d'investiguer deux types d'écoulements à bulles contrastés : un écoulement homogène confiné en cellule de Hele-Shaw et un écoulement homogène en colonne à bulles tridimensionnel. Des expériences de mélange dans ces deux configurations ont alors permis d'étudier séparément différents mécanismes de mélange propres aux écoulements à bulles : le piégeage du colorant dans le voisinage proche des bulles d'une part et le transport par l'agitation turbulente générée par les sillages en interaction d'autre part.

Dans un écoulement à bulles confiné en cellule de Hele-Shaw, la turbulence induite par les interactions de sillages ne peut pas se développer à cause du frottement aux parois qui atténue très fortement les mouvements induits par les bulles dans le liquide. L'agitation dans la phase liquide ne résulte que des perturbations dans le voisinage des bulles et en particulier dans leur sillage. Le mélange dans cet écoulement est donc essentiellement produit par la capture du colorant dans les sillages. La topologie du champ de concentration dans le plan de l'écoulement montre que celui-ci est fortement marqué par la signature des tourbillons associés aux sillages des bulles. Schématiquement, il est possible de considérer que des paquets de colorants sont transportés au voisinage de chaque bulle sur une certaine longueur avant d'être relagargués. Puis, un nouveau paquet de colorant est alors mis en mouvement. En regardant l'évolution temporelle de la concentration dans un volume qui est de l'ordre d'un diamètre de bulle, il est possible de distinguer d'intenses fluctuations de concentration qui sont la signature du passage de ces paquets de colorant dans le volume de mesure. L'analyse spectrale de ces fluctuations de concentration a permis de mettre en évidence un spectre analogue à celui de la phase liquide (Bouche *et al.*, 2014), c'est-à-dire un spectre continu avec une décroissance à la puissance -3 du nombre d'onde. Cela suggère que le mélange dans cet écoulement est, comme l'agitation de la phase liquide, gouverné par des passages aléatoires de loi uniforme d'événements de concentration d'extension bornée et d'amplitude finie. Cela va également dans le sens d'un mélange par capture de colorant dans les sillages et donc vers un mécanisme fortement convectif et intermittent, incompa-

tible avec un processus purement diffusif. Nous avons donc proposé une modélisation de ce mécanisme de mélange qui est basée sur l'hypothèse que chaque bulle transporte dans son voisinage un volume de colorant, appelé *volume transporté*, sur une certaine longueur, appelée *longueur de transport*, avant de le relarguer. Bien que cette modélisation ne considère qu'un transport du colorant dans la direction verticale vers le haut, elle s'est révélée être adaptée à la configuration expérimentale étudiée. La confrontation des mesures expérimentales et des prédictions du modèle s'est avérée très satisfaisante à condition d'ajuster deux paramètres que sont le volume transporté et la longueur de transport. Leurs valeurs se sont révélées être compatibles avec la physique sous-jacente. En effet, le volume transporté est de l'ordre de 2 fois le volume de la bulle, ce qui est plutôt en accord avec les mesures de la longueur du déficit de vitesse à l'arrière des bulles (Bouche *et al.*, 2014). Quant à la longueur de transport, elle diminue entre 25 et 14 diamètres de bulles lorsque la fraction volumique de gaz augmente. Pour des fractions volumiques faibles, inférieures à 10 %, la longueur de transport varie peu avec la fraction volumique et elle est proche de la longueur visqueuse $\frac{Ve^2}{\nu}$ où V est la vitesse d'ascension des bulles, e est la largeur de l'interstice de la cellule de Hele-Shaw et ν est la viscosité cinématique (Roig *et al.*, 2012). Au contraire, pour des fractions volumiques supérieures à 10 %, la présence des autres bulles vient écranter la longueur de transport et celle-ci diminue en α à la puissance -1. Le modèle de transport intermittent et convectif nous a aussi permis de calculer les moments d'ordre 1 à 3 de la distribution spatiale de concentration au cours du temps. A partir du moment d'ordre 1, nous avons identifié la présence d'un déplacement d'ensemble de la distribution de colorant qui peut être modélisé par une vitesse de propagation. Cette vitesse de propagation qui est environ 10 fois plus faible que la vitesse d'ascension des bulles s'est révélée être proportionnelle à la fraction volumique. Il est néanmoins encore difficile d'interpréter l'origine physique de cette vitesse de propagation. Le calcul du moment d'ordre 2 de la distribution spatiale de concentration dans la direction verticale en fonction du temps a permis d'estimer un coefficient de diffusion effectif vertical qui est compris entre 2 et 5 cm²/s et qui sature avec la fraction volumique. Cette saturation du coefficient de diffusion effectif pourrait être due aux interruptions par le passage des bulles qui ont pour effet de limiter la longueur de transport à fortes fractions volumiques. Il est néanmoins important de garder à l'esprit que le mélange en cellule de Hele-Shaw n'est pas un processus purement diffusif et qu'il faut tenir compte de la dissymétrie entre le haut et le bas dans la direction verticale. Cette dissymétrie a pu être évaluée en calculant le moment d'ordre 3 de la distribution de concentration qui est significativement non nul. De ce fait, pour modéliser le mélange en cellule de Hele-Shaw, il faudrait, en plus des termes advectif et diffusif, ajouter un terme dispersif décrit par une dérivée spatiale d'ordre 3 de la concentration (figure en fin de chapitre).

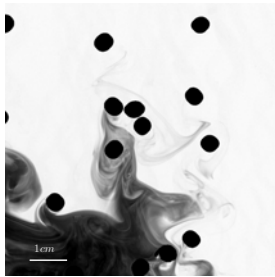
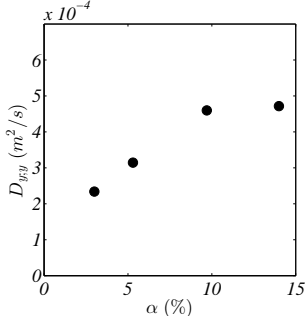
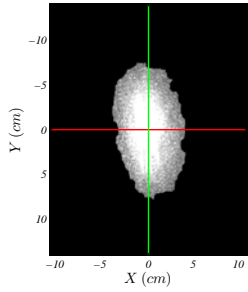
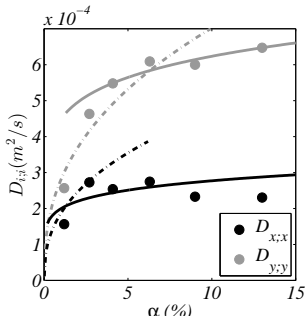
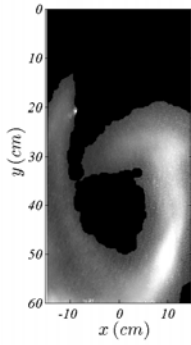
Contrairement à l'écoulement fortement confiné au sein duquel la turbulence ne peut se développer, l'agitation du liquide dans un écoulement à bulles tridimensionnel résulte *a priori* de deux contributions, la première provenant des sillages proches et la seconde des interactions entre les sillages. Mais nous avons pu constater au cours de cette étude que la contribution des sillages proches en mouvement préférentiellement orienté vers le haut n'est pas significative sur le mélange. En effet, nous avons observé ni de mouvement moyen vers le haut de la distribution spatiale de concentration du traceur, ni de dissymétrie de cette même distribution entre le haut et le bas. Le mélange dans un écoulement à bulles homogène tridimensionnel est donc essentiellement produit par la turbulence générée par les

sillages en interaction. Ce mécanisme de mélange s'est révélé être purement diffusif et nous avons ainsi pu mesurer expérimentalement des coefficients de diffusion effectifs dans les directions horizontale et verticale (figure en fin de chapitre). De manière assez surprenante, il s'est avéré que les coefficients de diffusion mesurés en écoulement à bulles tridimensionnel ont des propriétés communes avec celui calculé dans la direction verticale en cellule de Hele-Shaw. Ils sont du même ordre de grandeur pour des bulles légèrement plus grosses et des nombres de Reynolds équivalents. En effet, les coefficients de diffusion effectifs mesurés dans l'essai de bulles homogène sont compris entre 2 et 6 cm²/s. De plus, de même qu'en cellule de Hele-Shaw, nous avons observé une saturation du coefficient de diffusion avec la fraction volumique. Dans les deux cas, cette saturation pourrait avoir la même origine physique, à savoir l'écrantage des temps (resp. des longueurs) de corrélation des particules fluides par les passages successifs des bulles. Dans le cadre du mélange en écoulement à bulles homogène tridimensionnel, nous avons développé et proposé une modélisation de ce coefficient de diffusion effectif qui est basée sur la théorie de Taylor, 1922 selon laquelle le coefficient de diffusion dans un écoulement turbulent peut s'écrire comme le produit des variances des vitesses lagrangiennes $\overline{u_L^2}$ et de l'échelle intégrale de temps lagrangienne des vitesses notée T_L . L'ingrédient clé de la modélisation que nous présentons ici réside dans l'interprétation physique et diphasique de cette échelle intégrale de temps lagrangienne. A forte fraction volumique, nous proposons de prendre une échelle de temps de corrélation qui prend en compte les interruptions successives par les bulles. Celle-ci est donc proportionnelle au temps moyen entre deux passages successifs des bulles. Au contraire, à faible fraction volumique, l'échelle de temps de corrélation peut être estimée à partir de l'échelle eulérienne de longueur car les particules fluides ont le temps de se décorréliser avant d'être interrompues par le passage d'une bulle. Ce modèle, spécifique aux écoulements diphasiques, comporte donc deux régimes, l'un à faible fraction volumique, et l'autre à forte fraction volumique. Il permet d'expliquer à la fois la saturation du coefficient de diffusion et son anisotropie. En effet, le mélange est plus efficace dans la direction verticale que dans la direction horizontale et il s'avère que le rapport d'anisotropie, qui est de l'ordre de 3, provient directement de l'anisotropie des fluctuations de vitesse du liquide.

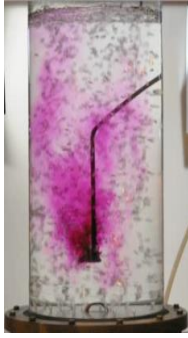
Nous avons ensuite étudié le mélange dans des écoulements à bulles tridimensionnels inhomogènes, c'est-à-dire en présence d'un mouvement moyen du liquide. Dans le cas de recirculations peu intenses, le gradient du mouvement moyen de liquide produit peu de turbulence de cisaillement et le traceur est alors principalement transporté par le mouvement moyen de liquide et dispersé par l'agitation induite par les bulles. Dans ces conditions, nous avons estimé le temps nécessaire à l'homogénéisation du traceur dans la colonne en considérant que le processus limitant le mélange est la dispersion induite par les bulles dans la direction horizontale. De ce fait, en l'absence de turbulence de cisaillement, l'équation de transport de la concentration du traceur se décompose en deux termes : un terme d'advection par le mouvement moyen du liquide et un terme de diffusion par les bulles qui est modélisé par les coefficients de diffusion effectifs mesurés en écoulement homogène (figure en fin de chapitre). La modélisation du coefficient de diffusion effectif proposée dans le cadre de l'étude du mélange en écoulement homogène peut donc être utilisée comme modèle de sous-maille. Mais dès que la turbulence de cisaillement produite par les grandes échelles devient significative, il faut prendre en compte cette dernière dans la modélisation de la diffusion effective. La simulation numérique est alors un outil particulièrement adapté pour prédire le mélange.

C'est dans l'objectif de tester la validité de la modélisation du coefficient de diffusion effectif induit par les bulles dans un modèle de sous-maille en présence de turbulence de cisaillement à grandes échelles qu'une étude numérique a été menée à l'IFPEN. Celle-ci, basée sur une série d'expériences en écoulement à bulles inhomogène réalisées à l'IFPEN a été menée à partir d'un code numérique Euler-Euler industriel, Ansys Fluent. L'hydrodynamique de l'écoulement a été reproduite en utilisant une modélisation turbulente standard pour ce type d'écoulement. Ceci a permis de reproduire de manière satisfaisante le mouvement moyen et les fluctuations du liquide. Puis, le mélange a été calculé en ajoutant le coefficient de diffusion obtenu en situation homogène au coefficient de diffusion qui rend compte de la turbulence de cisaillement produite par les gradients du mouvement moyen (figure en fin de chapitre). Ce dernier est calculé en supposant un nombre de Schmidt constant égal à 0.9, qui est une valeur admise pour une turbulence monophasique homogène et isotrope. Ainsi l'évolution du coefficient de diffusion effectif total avec la fraction volumique ne provient que de celle du coefficient de diffusion modélisant le mélange induit par les bulles. Les résultats numériques se sont révélés être en bon accord avec les résultats expérimentaux pour toute la gamme de fraction volumique explorée, à savoir entre 0.5 et 3% (pour plus de détails, voir l'annexe A). Ceci valide donc notre modèle de sous-maille pour le mélange dans des écoulements à bulles inhomogènes avec des fractions volumiques modérées, au sein desquels la diffusion par la turbulence induite par les bulles et la diffusion par la turbulence de cisaillement sont du même ordre de grandeur. D'autres travaux seront nécessaires pour aborder des situations plus complexes, en particulier lorsque la turbulence de cisaillement pleinement développée interagit avec la turbulence induite par les bulles.

**Equation de transport de la concentration moyenne \bar{c}
d'un traceur peu diffusif**

	Dans la direction verticale y		
	$\frac{\partial \bar{c}}{\partial t} + (V_p + U) \frac{\partial \bar{c}}{\partial y} = (D_m + D_{yy} + D_t) \frac{\partial^2 \bar{c}}{\partial y^2} + S \frac{\partial^3 \bar{c}}{\partial y^3}$		
Mécanisme de mélange	Advection	Diffusion	Symétrie haut/bas
<p>Capture dans les sillages</p> 	<p>$V_p + U$ $\propto V\alpha$</p>	<p>$D_m \ll D_{yy}; D_t = 0$ modèle de D_{yy} : eq 3.5</p> 	<p>$S \neq 0$</p>
<p>Turbulence induite par les bulles (TIB)</p> 	<p>$V_p = 0$ $U = 0$</p>	<p>$D_m \ll D_{ii}; D_t = 0$ modèle de D_{ii} : eq 6.13 & 6.18</p> 	<p>$S = 0$</p>
<p>TIB + Advection moyenne (AM)</p> 	<p>$V_p = 0$ $U \neq 0$</p>	<p>$D_m \ll D_{ii}; D_t = 0$ modèle de D_{ii} : eq 6.13 & 6.18</p>	<p>$S = 0$</p>

**Equation de transport de la concentration moyenne \bar{c}
d'un traceur peu diffusif**

	Dans la direction verticale y		
	$\frac{\partial \bar{c}}{\partial t} + (V_p + U) \frac{\partial \bar{c}}{\partial y} = (D_m + D_{yy} + D_t) \frac{\partial^2 \bar{c}}{\partial y^2} + S \frac{\partial^3 \bar{c}}{\partial y^3}$		
Mécanisme de mélange	Advection	Diffusion	Symétrie haut/bas
TIB + AM + Turbulence de cisaillement à grandes échelles 	$V_p = 0$ $U \neq 0$	$D_m \ll D_{ii}; D_t = \frac{\nu_t}{Sc_t}$ $(Sc_t = 0.9)$ modèle de D_{ii} : eq 6.13 & 6.18	$S = 0$

V_p : Vitesse de propagation du traceur,

U : Vitesse moyenne du liquide,

D_m : Diffusion moléculaire du traceur,

D_{ii} : Diffusion induite par les bulles,

D_t : Diffusion par la turbulence de cisaillement,

S : Coefficient de dissymétrie entre le haut et le bas

Bibliographie

- [1] Ansys fluent 14.5. *Theory Guide*, 2014.
- [2] ABBAS, M., BILLET, A.M. & ROIG, V. Experiments on mass transfer and mixing in a homogeneous bubbly flow. *Turbulence, Heat and Mass Transfer Conference 6*, 2009.
- [3] AMOURA, Z. *Etude hydrodynamique de l'écoulement traversant un réseau alléatoire de spheres fixes*. PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2008.
- [4] BERNEMANN, K. *Zur Fluidddynamik und zum Vermischungsverhalten der flussigen Phase in Blasensäulen mit längsangeströmten Rohrbündeln*. PhD thesis, University Dortmund, 1989.
- [5] BESNACI, C. *Mélange induit par un écoulement au travers un réseau aléatoire d'obstacles*. PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2012.
- [6] BOUCHE, E., CAZIN, S., ROIG, V., RISSO, F. & BILLET, A.M. Mixing swarm of bubbles rising in a confined cell measured by mean of plif with two different dyes. *16th Int. Symp. on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics*, 2012.
- [7] BOUCHE, E., ROIG, V., RISSO, F. & BILLET, A.M. Homogeneous swarm of high-reynolds-number bubbles rising within a thin gap. part 1. bubble dynamics. *J. Fluid Mech.*, 704 :211–231, 2012.
- [8] BOUCHE, E., ROIG, V., RISSO, F. & BILLET, A.M. Homogeneous swarm of high-reynolds-number bubbles rising within a thin gap. part 2. liquid dynamics. *J. Fluid Mech.*, 758 :508–521, 2014.
- [9] BROWN, AR.D, JONES, N.P., MIDDLETON, C.J., PAPADOPOULOS, G. & ARIK, E.B. *Experimental Methods, in L. E. Paul A. V. Atiemo-Obeng and M. S. Kresta, Eds., Handbook of Industrial Mixing*. John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, NJ, 2004.
- [10] BUIRET, P.L. Caractérisation expérimentale de l'hydrodynamique de réacteurs gaz-liquide. *Rapport interne IFPEN*, 2013.
- [11] CLIFT, R., GRACE, J.R. & WEBER, M.E. *Bubble Drops and Particles*. Academic Press, 1978.
- [12] COLOMBEST, D.P., RAMACHANDRAN, A. & DUDUKOVIC, M.P. On the gradient diffusion hypothesis and passive scalar transport in turbulent flow. *Ind. Eng. Science Res.*, 50 :8817–8823, 2011.
- [13] CORRSIN, S. Estimates of the relation between eulerian and lagrangian scales in large reynolds number turbulence. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 20 :115–119, 1963.
- [14] CRIMALDI J. Planar laser induced fluorescence ina qeous flows. *Exp. Fluids*, 44 :851–863, 2008.

-
- [15] DAVIDSON, P.A. Turbulence, an introduction for scientists and engineers. *Oxford*, 2003.
- [16] EUZENAT, F. Simulation cfd du mélange et de la dispersion dans des fermenteurs aérobies. *Rapport interne IFPEN*, 2014.
- [17] GABELLE, J.C, AUGIER, F., CARVALHO, A., ROUSSET, R., MORCHAIN, J. Effect of tank size on kla and mixing time in aerated stirred reactors with non-newtonian fluids. *Can. J. Chem. Eng.*, 89 :1139–1153, 2011.
- [18] HINZE, J. O. Turbulence. *McGraw-Hill Classic Textbook Reissue Series*, 1959.
- [19] JOSHI, J. Solid-liquid fluidised beds : some desing aspects. *Chemical Engineering Research and Design*, 61 :143–161, 1983.
- [20] KAWASE, Y. & MOO-YOUNG, M. Liquid phase mixing in bubble columns with newtonian and non-newtonian fluids. *Chemical Engineering Science*, 41 :1969–1977, 1986.
- [21] LINNEWEBER, K. *Örtliche Gehalte an Gas sowie an Gas und Feststoff in Blasensäulen*. PhD thesis, TU München, 1981.
- [22] MAREUGE, I. & LANCE, M. Bubble induced dispersion of a passive scalar in a bubbly flow. *Int. Conf. on Multiphase Flow*, 1995.
- [23] MARTÍNEZ-MERCADO, J., GÓMEZ, D.C., VAN GILS, D., SUN, C. & LOHSE, D. On bubble clustering and energy spectra in pseudo-turbulence. *J. Fluid Mech.*, 650 :287–306, 2010.
- [24] MARTÍNEZ-MERCADO, J., PALACIOS-MORALES, C.A. & ZENIT, R. Measurement of pseudoturbulence intensity in monodispersed bubbly liquids for $10 < re < 500$. *Phys. Fluids*, 19 :103302, 2007.
- [25] MENDEZ-DIAZ, J.C., SERRANO-GARCÍA, J.C. & ZENIT, R. Power spectral distributions of pseudo-turbulent bubbly flows. *Phys. Fluids*, 25 :043303, 2013.
- [26] RADL, S. & KHINAST, J. Multiphase flow and mixing in dilute bubble swarms. *AIChE J.*, 56 :2421–2445, 2010.
- [27] RIBOUX, G. *Hydrodynamique d'un essaim de bulles en ascension*. PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2007.
- [28] RIBOUX, G., RISSO. & LEGENDRE, D. Experimental characterization of the agitation generated by bubbles rising at high reynolds number. *J. Fluid Mech.*, 643 :509–539, 2009.
- [29] RISSO, F. Theoretical model for k-3 spectra in dispersed multiphase flow. *Physics of fluids*, 23 :011701, 2011.
- [30] RISSO, F. & ELLINGSEN, K. Velocity fluctuations in a homogeneous dilute dispersion of high-reynolds-number rising bubbles. *J. Fluid Mech.*, 453 :395–410, 2001.
- [31] RISSO, F., ROIG, V., AMOURA, Z., BILLET, A.-M. The dual nature of pseudo-turbulence analyzed from spatial and time avergings of a flow through random obstacles. *7th International Conference on Multiphase Flow, Tampa*, 2010.
- [32] ROIG, V., LARUE DE TOURNEMINE, A. Measurement of interstitial velocity of homogeneous bubbly flow at low to moderate void fraction. *J. Fluid Mech.*, 572 :87–110, 2007.

BIBLIOGRAPHIE

- [33] ROIG, V., ROUDET, M., RISSO, F., BILLET, A.-M. Dynamics of a high-reynolds-number bubble rising within a thin gap. *J. Fluid Mech.*, 707 :444–466, 2011.
- [34] ROUDET, M. *Hydrodynamique et transfert de masse autour d'une bulle confiné entre deux plaques planes*. PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2008.
- [35] SATO, Y. & SADATOMI, M. Momentum and heat transfer in two-phase bubble flow. *Int. J. Multiphase Flow*, 7 :167–177, 1981.
- [36] SOCOLOFSKY, S.A. & JIRKA, G.H. Cven 489-501 : Special topics in mixing and transport processes in the environnement. 5th edition. *Texas A & M University*, pages 1–172, 2005.
- [37] TANINO, Y. & NEPF, H. Lateral dispersion on random cylinder arrays at high reynolds number. *J. Fluid Mech.*, 600(339-371), 2008.
- [38] TAYLOR, G. Diffusion by continuous movements. 1921.
- [39] TENNEKEES, H. & LUMLEY, J.L. A first course in turbulence. *The MIT Press*, 1972.
- [40] WHITE, B. & NEPF, H. Scalar transport in random cylinder arrays at moderate reynolds number. *J. Fluid Mech.*, 487 :43–79, 2003.

Annexe A

Simulation numérique Euler-Euler du mélange dans un écoulement à bulles

Dans le cadre du stage de fin d'étude de Florian Euzenat à l'IFP Energies nouvelles, une étude numérique du mélange d'un traceur passif dans des écoulements à bulles inhomogènes a été menée (rapport interne IFPEN, Euzenat, 2014). Celui-ci a réalisé des simulations numériques 2D axisymétriques avec le code numérique Euler-Euler Ansys Fluent 14.5 en ajoutant ou non la contribution locale des bulles via le modèle de diffusion proposé au chapitre 6.3.2. Ces simulations numériques sont comparées à des expériences réalisées à l'IFPEN par colorimétrie dans des écoulements complexes mêlant convection, turbulence de cisaillement et pseudo-turbulence. Nous décrirons donc en premier lieu les expériences qui servent à la comparaison des résultats obtenus par CFD puis nous présenterons la modélisation CFD. Nous confronterons dans un dernier temps les résultats numériques aux données expérimentales, ce qui nous permettra de discuter de l'utilisation d'un coefficient de diffusion effectif obtenu en situation homogène pour une situation inhomogène plus complexe.

A.1 Description des expériences de mélange de l'IFPEN

Les expériences de mélange ont été réalisées à l'IFPEN Lyon dans une configuration expérimentale et avec des moyens de mesure qui sont propres à cette étude (rapport interne IFPEN, Buiret, 2013). Il est donc intéressant dans un premier temps de détailler les spécificités de ces expériences de mélange, en prenant soin de présenter la configuration expérimentale et le protocole d'injection. Nous exposerons aussi la technique de mesure par colorimétrie, méthode de mesure couramment utilisée en génie des procédés qui permet d'estimer des temps de mélange.

A.1.1 Configuration expérimentale et protocole d'injection

La configuration expérimentale de l'IFPEN est composée d'une cuve cylindrique en verre de 300 mm de diamètre et de 900 mm de haut qui est initialement remplie de 530 mm d'eau en absence de bulle (figure A.1 a). Les bulles sont injectées grâce à un distributeur d'air disposé au bas de la colonne et constitué d'une plaque plane de 250 mm de diamètre sur laquelle 35 trous de 1 mm sont disposés régulièrement selon un pas triangulaire de 4 cm (figure A.1 b). Ce type d'injecteur génère donc des écoulements à bulles inhomogènes

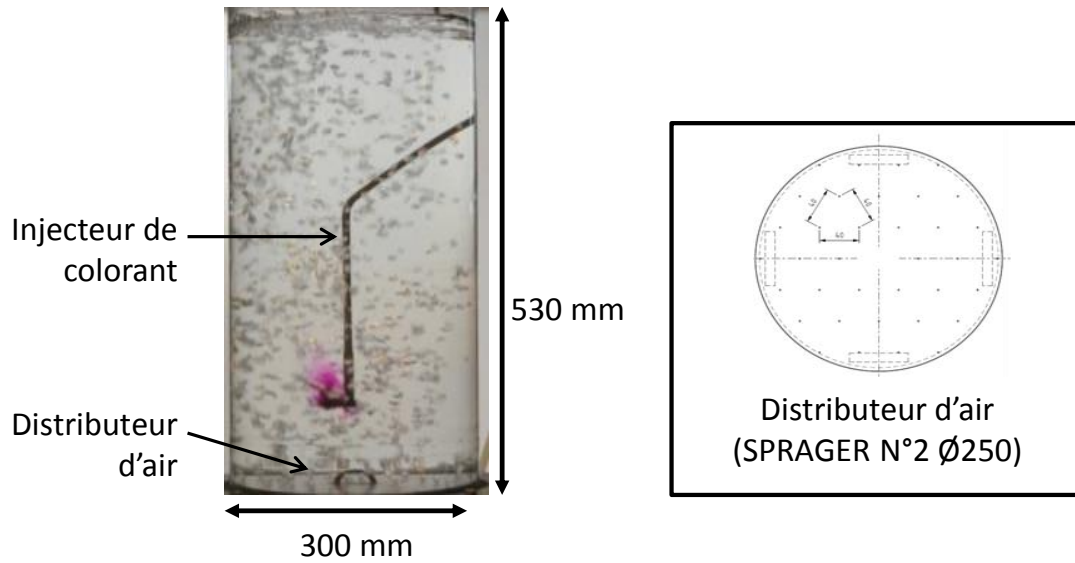


FIGURE A.1 – Configuration expérimentale de l'IFP Energies nouvelles

dont la fraction volumique de l'écoulement est mesurée globalement par élévation de la hauteur d'eau au centre de la cuve. Les diamètres des bulles générées sont évaluées par photographie et par un traitement semi-manuel développé à l'IFPEN. Dans cette étude, la fraction volumique globale des écoulements à bulles inhomogènes varie entre 0.2% et 3% et le diamètre des bulles évolue entre 5 et 6.5 mm avec la fraction volumique. Les distributions de taille de bulles restent peu polydispersées. Quant à la vitesse d'ascension des bulles V_b , elle est calculée à partir du débit d'air injecté Q , de la surface du fond de cuve S et de la fraction volumique α grâce à la formule suivante : $V_b = \frac{Q/S}{\alpha}$. Pour les conditions expérimentales de cette étude, la vitesse des bulles est comprise entre 200 et 250 mm/s, ce qui est en concordance avec la théorie concernant les vitesses d'ascension de bulles de diamètres équivalents dans de l'eau plus ou moins contaminée (Clift *et al.*, 1978). L'ensemble des propriétés hydrodynamiques de cette étude est présenté dans le tableau A.1.

Q (m ³ /h)	α (en %)	d (en mm)	V_b (en mm/s)
0.1	0.18	5.0	208
0.3	0.32	5.5	298
0.5	0.80	5.6	247
1	1.5	5.6	264
2	3.1	5.2	252

TABLE A.1 – Propriétés hydrodynamiques des bulles en écoulement homogène en fonction de la fraction volumique α . Diamètre des bulles (d). Vitesse d'ascension des bulles (V_b).

L'injection de colorant dans la colonne à bulles est réalisée grâce à une canne d'injection de 8 mm de diamètre intérieur au bout de laquelle se trouve une pastille frittée en bronze et un brise-jet (figure A.1 a). Ce dispositif d'injection, développé par Gabelle *et al.*, 2011 permet de limiter la formation d'un jet en sortie de la canne d'injection et de contrôler le volume de colorant injecté. Un volume de 10 mL de colorant alimentaire, du Violet Drimarène R2RL (Clariant) est injecté au centre de la colonne, à 90 mm au dessus du distributeur d'air pendant une durée finie de 2 s.

A.1.2 Mesure de temps de mélange

Après injection, le mélange du colorant est suivi par colorimétrie, technique de mesure couramment utilisée en génie des procédés. Cette technique de mesure consiste à suivre la propagation du traceur grâce à une caméra qui filme la totalité de la colonne éclairée par deux panneaux de LED blanc munis d'un panneau diffuseur. La figure A.2 représente 3 images prises à différents instants et caractéristiques de ce qui est obtenues par colorimétrie.

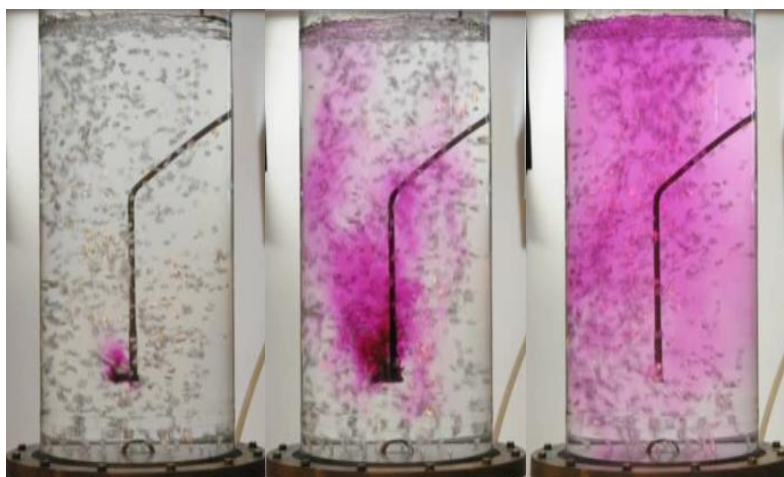


FIGURE A.2 – Expérience de mélange

Une fois les expériences réalisées, un traitement d'image développé à l'IFPEN est appliqué aux images dans le but de mesurer un temps de mélange macroscopique qui tient compte de l'ensemble des mécanismes de mélange à savoir le transport par le mouvement moyen, le mélange induit par les bulles et par la turbulence de cisaillement. Ce traitement de l'image consiste à diviser le champ d'observation en $n_p = 12$ fenêtres d'investigation, chaque fenêtre faisant 1 cm² environ. Le positionnement des fenêtres d'investigation est alors un élément clé du traitement puisqu'il doit permettre de prendre en compte l'ensemble des mécanismes de mélange. Les fenêtres sont donc positionnées judicieusement et spécifiquement à chaque écoulement. Ensuite, le niveau de gris moyenné sur chaque fenêtre d'investigation et normalisé par la valeur finale respective de chaque fenêtre est calculé. Ce niveau de gris moyen et normalisé est noté C_i par la suite, l'indice i faisant référence au numéro de la fenêtre d'investigation. Le temps de mélange est alors estimé lorsque la

moyenne des niveaux de gris moyennée et normalisé par fenêtre (C_i) atteint $\pm 5\%$ de la valeur finale, ce qui correspond à la formulation mathématique suivante (Brown *et al.*, 2004) :

$$\log \left(\frac{1}{n_p} \sum_{i=1}^{n_p} C_i - 1 \right)^2 = -2.6 \quad (\text{A.1})$$

Le temps de mélange expérimental calculé dans ces conditions est alors un paramètre représentatif du mélange puisqu'il prend en compte toutes les échelles auxquelles se produit le mélange, ces échelles étant très différentes dans un écoulement inhomogène. En effet, le transport advectif se fait à grandes échelles alors que le mélange induit par les bulles et par la turbulence de cisaillement se produit à de plus petites échelles. Le temps de mélange est donc un critère de validation pertinent et robuste pour les simulations numériques.

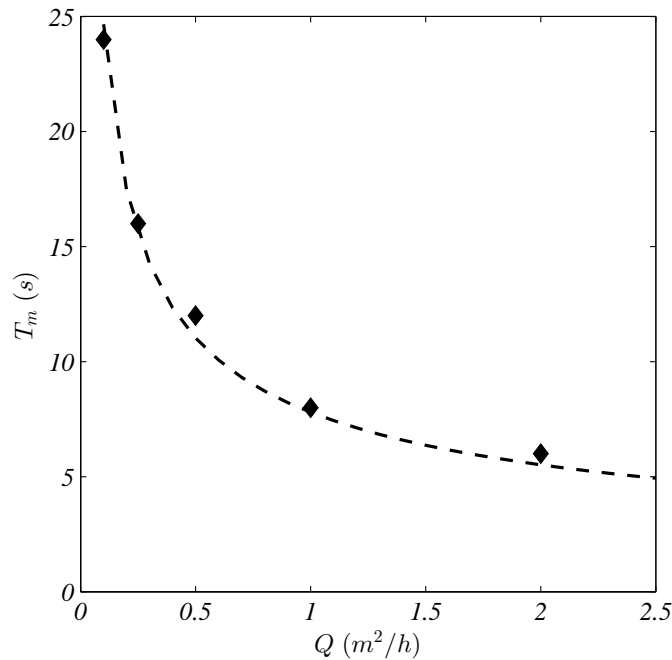


FIGURE A.3 – Temps de mélange en fonction du débit d'air. Données expérimentales (\blacklozenge). Approximation par une loi en $\frac{1}{\sqrt{\alpha}}$ (en pointillé).

Dans les conditions expérimentales présentées précédemment, les temps de mélange expérimentaux ont été calculés grâce à la méthode précédente pour différents débits d'air. Sur la figure A.3, il est présenté le temps de mélange en fonction du débit d'air. Nous pouvons constater que le temps de mélange, qui est compris entre 25 et 8 s, décroît avec le débit d'air à la puissance -0.5 sur l'ensemble de la gamme de débit étudié (figure A.3). Nous pouvons comparer ce temps de mélange mesuré expérimentalement au temps de mélange caractéristique de diffusion qui s'exprime par la relation $T_D = \frac{L^2}{D_i}$ où L est une longueur caractéristique du processus de mélange induit par les bulles et D_i est le coefficient

de diffusion effectif dans la direction i (Chapitre 7.2.4). Nous avons vu au chapitre 6.3.2 que dans la gamme de fractions volumiques de ces expériences, le coefficient de diffusion évolue en $\sqrt{\alpha}V_b$. En considérant que la vitesse de bulles constante et égale à 0.2 m/s, nous trouvons que le coefficient de diffusion effective dans la direction horizontale évolue entre 5.8×10^{-4} et 23×10^{-4} m²/s avec la fraction volumique. Vu que la diffusion par les bulles agit sur le rayon de la colonne (figure A.2), nous prenons comme longueur caractéristique L le rayon de la colonne et nous trouvons alors des temps caractéristiques de diffusion compris entre 41 et 10 s. Les temps de mélange expérimentaux sont donc bien plus courts que les temps caractéristiques de diffusion, ce qui signifie que dans ces écoulements, la turbulence de cisaillement et la turbulence induite par les bulles participent toutes deux au mélange du traceur.

A.2 Modélisation Euler-Euler du mélange en écoulement à bulles

La modélisation des propriétés hydrodynamiques d'un écoulement à bulles inhomogène reste à ce jour complexe. Celle-ci a donc nécessité un travail important pour trouver les modèles RANS du code numérique Ansys Fluent 14.5 qui soient adaptés à ce problème. De nombreux cas test ont été réalisés dans le but de trouver la modélisation la plus prédictive et représentative des écoulements étudiés. Cependant, nous ne présenterons dans ce chapitre que la modélisation finale retenue pour faire des simulations de mélange. Avant tout, nous rappellerons brièvement les équations résolues par le code dans le cadre d'une simulation RANS Euler-Euler. Puis, nous détaillerons comment ont été conduites les simulations avec Fluent et nous présenterons les propriétés du maillage et les conditions aux limites. Pour finir, nous évaluerons les modèles hydrodynamiques choisis.

A.2.1 Equations locales multiphasiques

Le code de simulation numérique utilisé est basé sur une modélisation Euler-Euler à deux fluides, dont chaque phase est caractérisée par sa propre masse volumique ρ_k , sa fraction volumique α_k , sa vitesse moyenne \mathbf{u}_k et fluctuante \mathbf{u}'_k . Ainsi, en l'absence de transfert de matière entre les phases et en l'absence de terme de production, l'équation de la conservation de la masse pour chaque phase k s'écrit de la manière suivante (Fluent Theory Guide 14.5, Eulerian model theory) :

$$\frac{\partial \alpha_k \rho_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \mathbf{u}_k) = 0 \quad (\text{A.2})$$

Quant à l'équation de la conservation de la quantité de mouvement de chaque phase k , elle s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\alpha_k \rho_k \mathbf{u}_k) + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \mathbf{u}_k \mathbf{u}_k) = -\alpha_k \nabla P + \alpha_k \rho_k \mathbf{g} \pm F_{kl} + \nabla \cdot (\alpha_k \boldsymbol{\tau}_k) + \nabla \cdot (\alpha_k \rho_k \mathbf{u}'_k \mathbf{u}'_k) \quad (\text{A.3})$$

où P est la pression, \mathbf{g} est la gravité, F_{kl} représente les forces d'interaction entre les phases et $\boldsymbol{\tau}_k$ est le tenseur des contraintes visqueuses qui s'exprime de la manière suivante :

$$\tau_k = \nu_{eff,k}(\nabla \mathbf{u}_k + \nabla \mathbf{u}_k^T - \frac{2}{3} I \nabla \mathbf{u}_k) \quad (\text{A.4})$$

Quant aux forces d'interaction entre les phases, elles se limitent au premier ordre à la force de trainée. De ce fait, en l'absence d'autres forces, la force d'interaction entre les phases se limite à l'expression suivante :

$$\mathbf{F}_{kl} = K_{kl}(\mathbf{u}_k - \mathbf{u}_l) \text{ avec } K_{kl} = \frac{3\alpha_k\alpha_l}{4} \frac{\rho_l}{d_k} C_d |\mathbf{u}_k - \mathbf{u}_l| \quad (\text{A.5})$$

Pour l'ensemble des simulations numériques qui ont été réalisées dans le cadre de cette étude, le coefficient de trainée C_d a été choisi constant de manière à trouver la vitesse terminale de bulles observée expérimentalement à savoir 20 cm/s ($C_d = 1.83$). L'effet de la fraction volumique sur le coefficient de trainée a donc été négligé.

Pour finir, en absence de terme source, l'équation de transport d'un scalaire dans la phase liquide s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{\partial \rho_l \Phi}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l \mathbf{u}_l \Phi - \mathbf{\Gamma} \Phi) = 0 \quad (\text{A.6})$$

où Φ représente la fraction massique de l'espèce considérée et $\mathbf{\Gamma}$ est le coefficient de diffusion dans le milieu. Dans le cas du mélange dans un écoulement à bulles, nous avons vu précédemment que la contribution des bulles est un processus diffusif et qu'il est donc possible de le modéliser grâce à une diffusivité efficace D_{ii} que nous avons modélisé au chapitre 6.3.2. Le coefficient de diffusion global $\mathbf{\Gamma}$ peut donc s'écrire sous la forme d'une somme de 3 contributions : (i) une contribution venant de la turbulence induite par les bulles (D_{ii}), (ii) une contribution venant de la turbulence de cisaillement (D_t) et (iii) une contribution de la diffusion moléculaire (D_m). Dans le cas d'un traceur passif, la diffusion moléculaire est négligeable, il ne reste donc que 2 contributions au terme de diffusion et celui-ci peut s'écrire de la manière suivante :

$$\mathbf{\Gamma}_i = \rho_l (D_t + D_{ii}) \quad (\text{A.7})$$

La diffusion turbulente est estimée à partir du nombre de Schmidt turbulent noté Sc_t grâce à la relation suivante $D_t = \frac{\nu_t}{Sc_t}$ où ν_t est la viscosité turbulente cinématique. La diffusion induite par les bulles est calculée à partir du modèle que nous avons présenté au paragraphe 6.3.2.

A.2.2 Mise en œuvre sous Fluent

Des simulations numériques instationnaires 2D axisymétriques avec un modèle de turbulence $k - \omega$ ont été réalisées avec le code numérique Ansys Fluent 14.5. La pression est résolue par un schéma numérique d'ordre 1 avec une formulation implicite instationnaire.

La quantité de mouvement, la fraction volumique, l'énergie cinétique turbulente et le taux de dissipation sont résolus par un schéma numérique d'ordre 1 amont. Quant à la résolution de l'équation de transport du scalaire, elle est résolue par un schéma numérique d'ordre 2 amont. Le couplage de la pression et de la vitesse est résolu par l'algorithme SIMPLE. La convergence de la solution est atteinte lorsque les résidus ont atteint 10^{-4} ou quand un maximum de 50 itérations a été atteint.

La géométrie du domaine de calcul est présentée sur la figure A.4. Le maillage cartésien comporte 26 250 cellules de 0.002 m de côté. Sur cette géométrie, la zone d'injection d'air est assimilée à un milieu poreux de diamètre 28 cm pour lequel la fraction volumique de gaz est imposée à 5% et la vitesse d'injection de gaz est ajustée pour obtenir la vitesse superficielle de gaz voulue. Les conditions aux limites utilisées sont précisées sur la figure A.4. L'injection de traceur se fait en définissant une zone de taille similaire à celle obtenue expérimentalement. Une étude de sensibilité sur la taille de cette zone a montré que les temps de mélange obtenus dépendaient peu de la taille de cette zone pour les configurations de faibles fractions volumiques.

Le temps de mélange est évalué à partir de l'évolution temporelle de l'écart-type du champ de concentration sur l'ensemble de la colonne. Cette méthode de calcul est équivalente à celle utilisée expérimentalement en considérant une infinité de fenêtre d'investigation ($n_p = +\infty$ dans l'équation A.1).

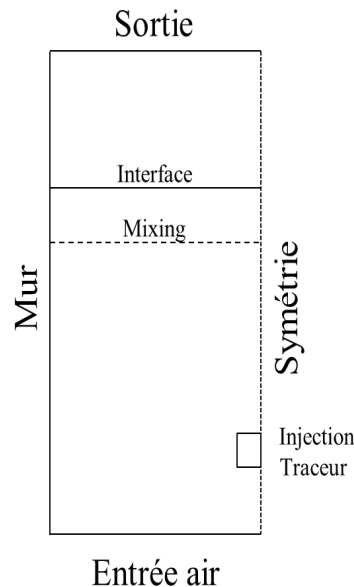


FIGURE A.4 – Maillage et conditions aux limites

A.2.3 Validation du modèle hydrodynamique

Deux types de validation peuvent être principalement retenues pour vérifier la pertinence du champ hydrodynamique obtenu par simulation. La première validation consiste à comparer les fractions volumiques globales mesurées expérimentalement avec celle simulées. Ainsi, la fraction volumique globale est tracée en fonction du débit d'air sur la figure A.5. Un bon accord entre les fractions volumiques globales expérimentales et simulées est observé. Néanmoins, une certaine déviation entre la fraction volumique expérimentale et simulée est visible lorsque le débit d'air injecté est de $2 \text{ m}^3/\text{h}$. Cet écart de l'ordre de 20% peut sans doute s'expliquer par les limites de l'utilisation d'un modèle 2D asymétrique du fait que les interactions entre bulles deviennent non négligeables.

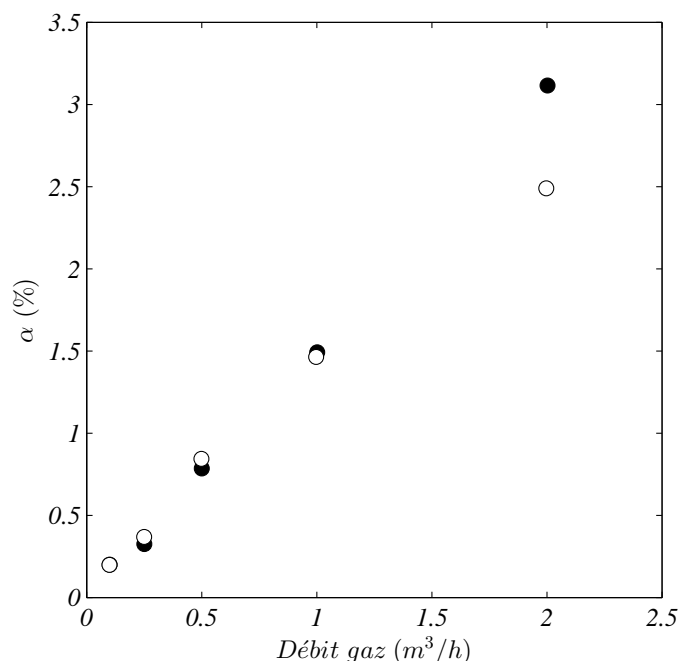


FIGURE A.5 – Validation de l'hydrodynamique de l'écoulement par comparaison des fractions volumiques globales en fonction du débit. Données expérimentales (●). Simulations numériques (○).

La deuxième validation du modèle hydrodynamique consiste à comparer les profils de vitesse du liquide à différentes hauteurs dans la colonne. N'ayant pas accès à de telles mesures expérimentales, les profils de vitesse du liquide obtenus par simulation ont été comparés à quatre différentes corrélations issues de la littérature qui sont données dans le tableau A.2. Ces corrélations sont normalisées par rapport à la vitesse du liquide au centre de la colonne, $V_l(0)$ obtenue par la simulation et au diamètre de la colonne R . La figure A.6 confronte alors le profil de vitesse du liquide obtenue par simulation à un hauteur $H = 0.4$ m avec les différentes corrélations. Le profil de vitesse du liquide simulé a donc une allure similaire à ceux issus des corrélations et présente le même point d'inversion de la vitesse à $\frac{r}{R} = 0.7$.

Il a aussi été vérifié que l'ordre de grandeur de la viscosité cinématique turbulente

obtenue par simulation numérique était cohérent avec certaines corrélations issues de la littérature. Nous ne présenterons néanmoins pas ces résultats dans ce chapitre. Nous pouvons donc conclure que les propriétés hydrodynamiques de l'écoulement simulé sont satisfaisantes.

Auteur	Corrélation
Berneman, 1989	$\frac{V_l(\frac{r}{R})}{V_l(0)} = -.72 \ln(1 - 0.75(\frac{r}{R})^2) - 2.53(\frac{r}{R})^2 + 1$
Joshi, 19832	$\frac{V_l(\frac{r}{R})}{V_l(0)} = 1 - \frac{3r}{2R}$
Kawase, 1986	$\frac{V_l(\frac{r}{R})}{V_l(0)} = 1 - \frac{r}{R}$
Linneweber, 1981	$\frac{V_l(\frac{r}{R})}{V_l(0)} = 1 + 0.19(\frac{r}{R}) - 4.37(\frac{r}{R})^2 + 2.69(\frac{r}{R})^3$ pour $\frac{r}{R} \in [0; 0.95]$

TABLE A.2 – Corrélation des profils de vitesse du liquide dans une colonne à bulles

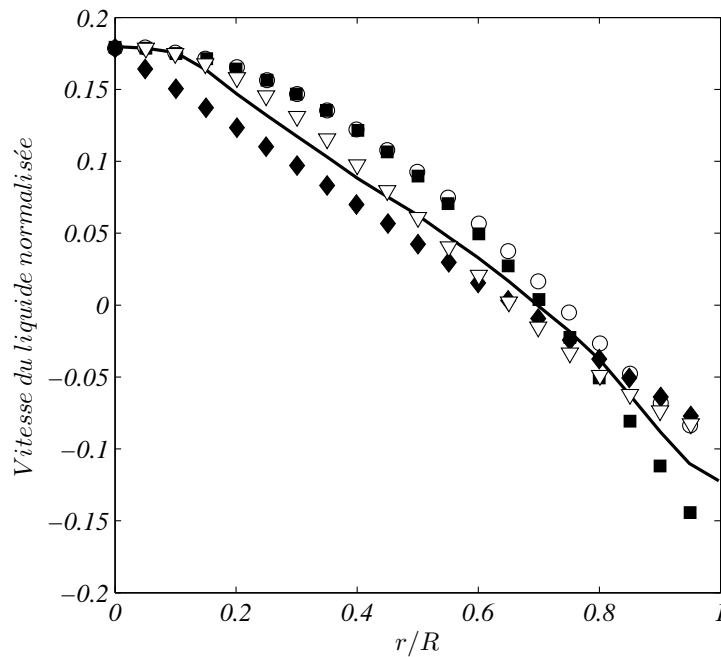
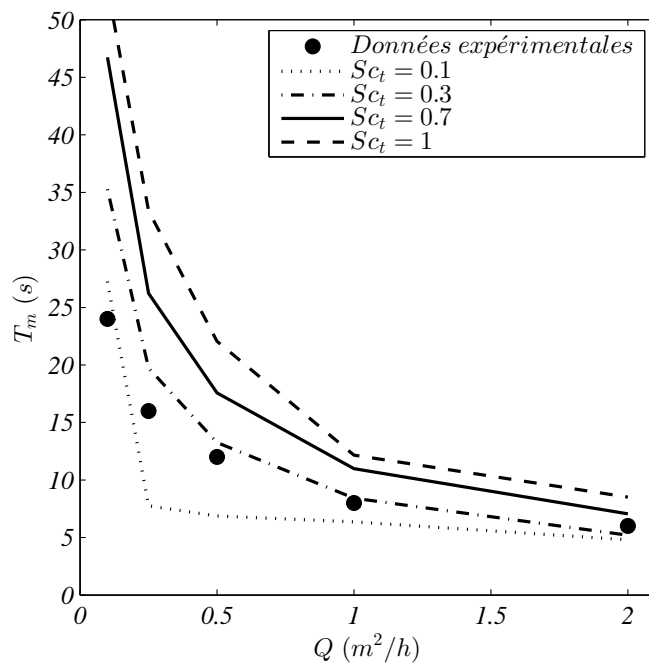


FIGURE A.6 – Validation de l'hydrodynamique de l'écoulement par comparaison du profil de vitesse moyenne du liquide à une hauteur $H = 0.4$ m. Profil de vitesse du liquide simulé (trait plein). Corrélation de Berneman, 1989 (○). Corrélation de Joshi, 1983 (◆). Corrélation de Kawase, 1986 (■). Corrélation de Linneweber, 1981 (▽).

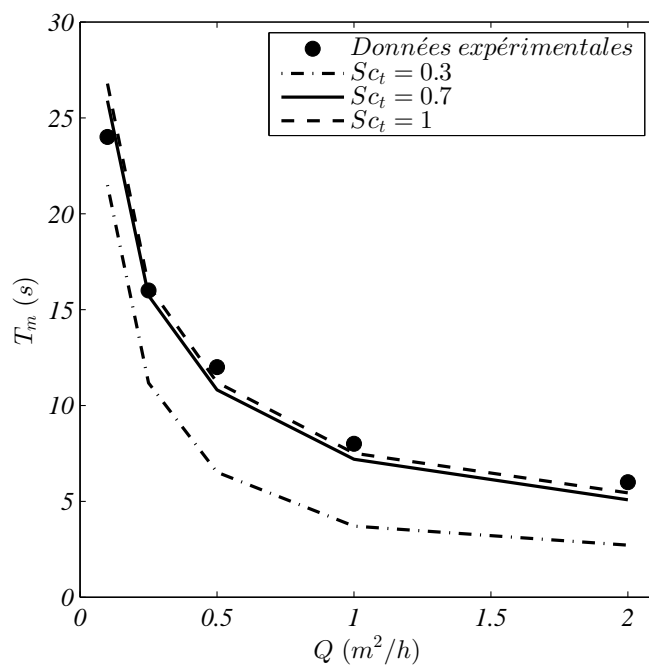
A.3 Prédiction du mélange par simulation numérique Euler-Euler

Concernant les simulations numériques de transport de scalaire, deux modèles de diffusivité ont été testés (équation A.7). Le premier modèle de diffusion consiste à considérer uniquement la diffusion turbulente et donc de ne pas prendre en compte la diffusion induite par les bulles, ce qui signifie que $\Gamma_i = D_{turb} = \frac{\nu_t}{Sc_t}$. Dans ce cas-ci, une sensibilité au nombre de Schmidt a été réalisée en faisant varier le nombre de Schmidt entre 0.1 et 1.5. Pour chaque nombre de Schmidt turbulent imposé, le temps de mélange en fonction du débit d'air a été calculé (figure A.7 a). Dans ce cas-ci, il est nécessaire de considérer des nombres de Schmidt très faibles entre 0.1 et 0.3 pour parvenir à obtenir le même ordre de grandeur de temps de mélange que ceux observé expérimentalement. C'est ce qui est reporté par Radl & Khinast, 2010. Néanmoins l'abaissement du nombre de Schmidt ne permet pas de prédire de manière robuste le temps de mélange. En effet, il n'est pas possible de traiter l'ensemble de la gamme de débit étudié expérimentalement sans adapter le nombre de Schmidt turbulent à chaque simulation. De plus, l'abaissement du nombre de Schmidt à des valeurs de 0.1-0.3 n'est pas physique puisque en turbulence homogène isotrope, celui-ci est de l'ordre de 0.9 et il n'y a pas de justification physique pour que cette valeur soit totalement différente en diphasique.

Dans un deuxième temps, un modèle de diffusion comprenant à la fois la diffusion turbulente mais aussi la contribution de bulle a été testé. La diffusion par les bulles D_{ii} a été estimée à partir d'un modèle que nous avons proposé au chapitre 6.3.2. Quant à la diffusion turbulente, celle-ci est toujours estimée à partir du nombre de Schmidt turbulent. Le coefficient de diffusion s'écrit donc ainsi $\Gamma_i = D_{turb} = \frac{\nu_t}{Sc_t} + D_{ii}$. Une sensibilité au nombre de Schmidt a de nouveau été réalisée pour des nombres de Schmidt compris entre 0.3 et 1. La figure A.7 b) présente les temps de mélange obtenus par simulation pour différents Sc_t en fonction de la fraction volumique de gaz. Lorsque la contribution des bulles est prise en compte dans la modélisation du coefficient de diffusion, un nombre de Schmidt de l'ordre de 0.7 à 1 permet alors de restituer fidèlement les résultats expérimentaux et ce quelque soit le débit d'air investigué dans cette étude. Le temps de mélange devient alors insensible au nombre de Schmidt lorsque celui-ci est compris entre 0.7 à 1. Cette gamme de nombre de Schmidt est plus cohérente par rapport à ce qui est observé en turbulence homogène isotrope monophasique. L'apport de notre modélisation du coefficient de diffusion qui prend en compte la contribution des bulles semble donc constituer un réel apport pour prédire de manière robuste le transport d'espèces chimiques et de scalaires par CFD.



(a) Sans contribution des bulles



(b) Avec contribution des bulles

FIGURE A.7 – Comparaison des temps de mélange expérimentaux aux temps de mélange simulés avec ou sans prise en compte de la contribution des bulles

A.4 Conclusion du chapitre

Cette étude numérique qui a été réalisée à l'IFPEN dans le cadre du stage de fin d'étude de Florian Euzenat constitue donc un premier pas vers la modélisation numérique du mélange dans des écoulements à bulles. En effet, ce travail a permis de tester et valider la pertinence de notre modélisation du coefficient de diffusion effectif induit par les bulles et ce dans le cas d'écoulements à bulles inhomogènes dans une unité pilote de l'IFPEN. Dans le cadre de recirculation à faible fraction volumique globale ($\alpha < 3\%$), l'apport de notre modèle de coefficient de diffusion effectif semble être tout à fait significatif. En effet, en prenant en compte la contribution des bulles sur le mélange, il est alors possible de prédire le temps de mélange en prenant un nombre de Schmidt constant compris entre 0.7 et 1 pour tous les débits de gaz considérés.

Annexe B

Article soumis au J. Fluid Mech.,
Mixing by bubble-induced turbulence

Mixing by bubble-induced turbulence

Elise Alm eras^{1,2}, Fr ed eric Risso¹, V eronique Roig¹, S ebastien Cazin¹,
C ecile Plais² and Fr ed eric Augier²

¹ Institut de M ecanique des Fluides de Toulouse, Universit e de Toulouse and CNRS. All ee C. Soula, Toulouse, 31400, France.

² IFP Energies nouvelles, Rond-point de l' changeur de Solaize, BP 3, 69360 Solaize, France

(Received 12 October 2014)

This work reports an experimental investigation of the dispersion of a low-diffusive dye within a homogeneous swarm of high-Reynolds-number rising bubbles at gas volume fractions α ranging from 1 to 14%. The capture and transport of dye within bubble wakes is found negligible and the mixing turns out to result from the bubble-induced turbulence. It is well described by a regular diffusion process. The diffusion coefficient corresponding to the vertical direction is larger than that corresponding to the horizontal direction, owing to the larger intensity of the liquid fluctuations in the vertical direction. Two regimes of diffusion have been identified. At low gas volume fraction, the diffusion timescale is given by the correlation time of the bubble-induced turbulence and the diffusion coefficients roughly increase as $\alpha^{0.4}$. At large gas volume fraction, the diffusion timescale is imposed by the time interval between two bubbles and the diffusion coefficients become almost independent of α . The transition between the two regimes occurs sooner in the horizontal direction ($1\% \leq \alpha \leq 3\%$) than in the vertical direction ($3\% \leq \alpha \leq 6\%$). Physical models based on the hydrodynamic properties of the bubble swarm are introduced and guidelines for practical applications are suggested.

Key Words: Gas/liquid flow, Bubble dynamics, Mixing and dispersion, Turbulent mixing.

1. Introduction

Bubbly flows are used in many industrial applications to favor contact between a gas and a liquid in view of enhancing mass transfer and chemical reactions. Bubble columns are particularly interesting because the rising motion of the bubbles generate liquid fluctuations which mix the chemical species without need of any additional mechanical agitation. Up to now, the design of such systems is based on the use of an empirical turbulent Schmidt number (see Radl & Khinast 2010, and references therein). The dispersion of a solute is described by an effective diffusion with a diffusion coefficient that is chosen proportional to the turbulent eddy viscosity through an empirical prefactor. The prefactor is found to depend on many parameters such as the turbulent intensity, the gas volume fraction or the column geometry. In the absence of any reliable theory, it is generally arbitrarily tuned between 0.1 and 2.2 to provide realistic results (Combest, Ramachandran, & Dudukovic 2011).

The modelling of the mixing in a bubbly flow requires first the knowledge of the hydrodynamic characteristics of the agitation within the liquid and then the understanding of the properties of dispersion of this agitation. Concerning liquid dynamics, it is now well

established that the bubble-induced agitation has features that make it different from shear-induced turbulence. A series of experimental investigations carried out in homogeneous columns have led to a rather complete description of its properties (Martínez-Mercado, Palacios-Morales & Zenit 2007; Martínez-Mercado *et al.* 2010; Riboux, Risso & Legendre 2010; Mendez-Díaz, Serrano-García & Zenit 2013). On the other hand, no fundamental investigation of the bubble-induced mixing has been performed so far, except for the preliminary work of Mareuge & Lance (1995) which was limited to a single very small value of the gas volume fraction, $\alpha = 0.2\%$.

The objective of this study is to determine the characteristics of the mixing induced by bubbles in the absence of any liquid mean flow and shear-induced turbulence. For that purpose, we have measured the dispersion of a volume of dye injected within a swarm of air bubbles rising in water. For the considered range of gas volume fractions ($1 \leq \alpha \leq 14\%$) and bubble Reynolds number (≈ 700), the bubble-induced turbulence is well developed while the swarm remains stable and homogeneous. Since the dye has a small concentration and a very low molecular diffusion (Schmidt number of 2500) we can consider that it is a passive scalar transported by the flow. Our motivation is to understand the physical mechanisms underlying the mixing. Previous results obtained in a two-dimensional bubble column where bubble-induced turbulence cannot develop have shown that the capture and the transport of a solute within the bubble wakes cannot be described by an effective diffusion (Bouche *et al.* 2013). First, it is therefore important to settle the question of whether it is a diffusion process or not in a three dimensional bubble column. Then, it is desirable to relate the mixing properties to the time, length and velocity scales of the bubble swarm in order to propose models.

The paper is organized as follows. Section 2 describes the experimental setup and the measuring methods while section 3 recalls the hydrodynamic characteristics of the bubble swarm. Section 4 presents experimental results concerning the mixing, which are then interpreted and modelled in section 5. Guidelines for applications and further work are discussed in section 6.

2. Experimental set-up and instrumentation

The experimental setup is depicted in figure 1. The test section is an open tank made of glass of 1000 mm height, with a rectangular cross-section of 150 by 300 mm. It is filled with tap water and air bubbles are continuously injected at the bottom through 1,800 capillary tubes of 0.2 mm inner diameter, which are distributed on a regular array with a spacing of 5 mm. The gas volume fraction α is varied from 1 to 14% by adjusting the inlet gas flow rate. In this range a homogeneous swarm of rising bubbles is generated and no coalescence takes place.

The characteristics of the gas phase are determined by means of a dual optical fiber probe from RBI, which detects the passages of the bubble interfaces at two points separated by a distance of 2.15 mm in the vertical direction. The signal processing is not detailed here since it has already been described in Riboux, Risso & Legendre (2010) and Colombet *et al.* (2011). Bubble sizes and volume fraction are estimated from the time periods the leading probe passes within each bubble. Bubble velocities are measured from the intervals between the instants a bubble successively touches the two probes. The technique has been validated by comparison with image processing. The resulting accuracy is better than 2% for the gas volume fraction α , 5% for the average bubble velocity V , and 10% for the average bubble equivalent diameter d .

Mixing experiments consist in measuring the evolution of a patch of dye within the bubble swarm. The dye is fluorescein sodium, which has a molecular diffusion coefficient

in water, $D_m = 4 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ at 22°C , much smaller than the water kinematic viscosity ν , and a high Schmidt number, $Sc = \nu/D_m = 2500$. An aqueous solution of fluorescein sodium at concentration $C_0 = 5 \times 10^{-3} \text{ mol L}^{-1}$ is injected within the bubble swarm through a vertical tube of 0.5 mm inner diameter and 0.9 mm outer diameter. The tube is inserted from the top of the tank in the middle of the cross-section. The dye injection point is located 500 mm above the gas injector in order to ensure that the dye does not interact with either the top or the bottom of the tank during an experiment. At the beginning of each run, 1 mL of dye solution is injected during 2 s at a constant flow rate of 30 mL min^{-1} by means of a volumetric pump. This makes a turbulent jet with a Reynolds number of about 1300, which interacts with the bubbles. At the end of the injection a grossly ellipsoidal patch of dye of about 100 mm height and 50 mm width is formed. Ten seconds after the beginning of the injection, the initial conditions are forgotten and the evolution of the dye is totally controlled by the bubble-induced agitation. The beginning of the injection is chosen as the origin of time and quantitative measurements are only considered for times larger than 10 s.

The dye concentration is measured by means of induced fluorescence. Twelve vertical ultraviolet neon tubes are arranged around the tank in order to generate a homogeneous lighting of the flow. The spectrum of the light emitted by the present neon tubes has been measured by means of a USB2000+ spectrometer from Ocean Optics. Figure 2 shows that it is mainly included in the range of wavelengths from 350 and 400 nm. The fluorescein sodium is a fluorescent dye that absorbs light in the range of wavelengths from 350 to 550 nm (peak at 500 nm) and emits light in the range from 480 to 640 nm (peak at 520 nm). A digital camera PCO EDGE sCMOS (2560×2160 pixels, 16 bits) equipped with a 85 mm optical lens with an aperture $f/D=2.8$ is used to film a field of 345 mm width and 410 mm high centered around the dye injection point. The depth of field is much larger than the test section and the variation of magnification all over the imaged volume of flow is negligible, with a pixel size of 0.16 mm. The camera takes 49 images per second with an exposure time of 10 ms. An optical bandpass filter (450–650 nm) is mounted in front of the camera in order to remove the neon light and ensure that only the light that is fluoresced by the dye is collected. Under appropriate conditions, the light intensity collected by each pixel, and so its grey level, is proportional to the mass of dye in the volume of fluid imaged by the corresponding pixel.

Preliminary tests have been conducted in the absence of bubbles by imaging a hollow transparent plastic sphere of 50 mm diameter filled with an aqueous solution of fluorescein sodium of known concentration. Firstly, the centre of the sphere is located at the dye injection point and various concentrations are considered. For $C_S = 5 \times 10^{-6}$ or $5 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$ (figure 3.a), the grey level of each pixel is found proportional to the dimension of the sphere in the direction of view. For $C_S = 5 \times 10^{-4}$ or $5 \times 10^{-3} \text{ mol L}^{-1}$ (not shown here), the mass of dye is so large that absorption is no longer negligible and saturation of the fluorescence signal occurs near the centre of the sphere. In a second step, the concentration is fixed to $C_S = 5 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$ and the intensity of the lighting is changed by progressively decreasing the number N_t of neon tubes that are switched on (see figure 1): $N_t = 12$ (all tubes), $N_t = 8$ (tubes # 1, 2, 4, 6, 7, 9, 11 & 12), $N_t = 6$ (tubes # 1, 3, 6, 7, 10 & 12), $N_t = 4$ (tubes # 1, 6, 7 & 12). As expected, the grey levels are found proportional to the number of activated neons. Thirdly, all the neons being switched on and $C_S = 5 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$, the sphere centre is moved in different locations. No variation of the grey-level profiles is observed, which confirms that the lighting is homogeneous all over the test section and there is no optical distortion. To sum up, in the present setup, provided the dye concentration is not larger than $5 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$ in a volume of fluid of 50 mm dimension in the y-direction, the fluorescence lies in the linear

regime regarding both the lighting intensity and the dye concentration. In the absence of bubbles, the grey level measured in each camera pixel is therefore proportional to the mass of dye.

In a second step, tests have been conducted with the sphere immersed in the bubble swarm. As visible in figure 3.b, the presence of the bubbles strongly affects the image. Two major effects can be identified. First, a part of the fluoresced-light beams emitted by the sphere that are initially not directed towards the camera are reflected or refracted in the direction of the camera by the bubbles that surround the sphere. Instead of being totally dark, the vicinity of the sphere thus appears brighter. The contour of the sphere, which appears very sharp and easy to detect in figure 3.a, therefore spreads out over a significant distance in figure 3.b. Secondly, the bubbles that are located between the sphere and the camera hide a part of the fluoresced light that should reach the camera. The image of the sphere is thus darker than it should be.

A two-step procedure has been developed to correct these two effects. The vertical distance travelled by each bubble between two successive images is about 6 mm ($\approx 2d$). The locations of the light spots generated by bubble refractions and reflexions are thus totally different from an image to another. Considering 15 successive images, there is at least one image in which no light spot is present in each given pixel located outside the sphere. The darker a pixel, the lower the grey level. Taking the minimum of the grey levels of each pixel over 15 successive images allows to set the exterior of the sphere at the level of the background noise (see figure 3.c). It is easy to detect the contour of the sphere by simple thresholding of the minimum image. The spreading of the region containing the dye is then removed by turning to black all the pixels of the original image that are located outside the contour. Considering again 15 successive images, there is at least one image in which the fluoresced light directed towards each pixel imaging the sphere is not intercepted by any bubble. Taking the maximum of grey level of each pixel over 15 successive images hence allows to cancel the darkening of the interior of the sphere. The image resulting from application of the whole procedure, shown in figure 3.d, compares well with the image taken in the absence of bubbles (figure 3.a). Finally, the horizontal (resp. vertical) profiles are obtained by taking the maximum of the grey levels over 21 lines of pixels located at z (resp. x) ± 10 pixels around the sphere centre. Figure 4 shows the horizontal profiles of grey level before and after image processing for $\alpha=3.9$ and 6.3%. A good agreement with the reference case without bubble ($\alpha=0$) is again obtained.

The previous procedure having been validated for a volume of dye of known geometry and concentration, it can be applied to a patch of dye injected within the bubble swarm. Figure 5.a shows an example of raw image of the patch of dye ($t = 10$ s, $\alpha = 3\%$), whereas figure 5.b shows the same image after processing. Figure 5.c compares the corresponding horizontal profiles of grey level before and after treatment. Note that the dye concentration at injection is fixed to $C_0 = 5 \times 10^{-3}$ mol L $^{-1}$ for all mixing experiments. Depending on the gas volume fraction, the volume of the patch of dye reaches a size which is two orders of magnitude (≈ 100 mL) larger than the injected volume (1 mL) between 2 and 10 s. This dimension is of the order of that of the sphere used in preliminary tests and its average concentration is of about 5×10^{-5} mol L $^{-1}$, which is the maximal value below which fluorescence is not limited by light absorption by the dye. We have chosen the largest initial concentration ensuring that grey levels are actually proportional to the mass of dye in order to maximize the intensity of fluoresced light, and consequently optimize the signal-to-noise ratio. Practically, this choice allows us to obtain reliable measurements until the average dye concentration is larger than 5×10^{-7} mol L $^{-1}$, which can be reached from $t = 20$ s at the largest considered volume fractions. Note also that

the tails of the grey-level profiles are not considered when the concentration passes below the signal-to-noise ratio.

We have thus developed a measurement technique that allows us to investigate the mixing of a patch of low-diffusive dye within a homogeneous swarm of bubbles from $t = 10$ to 20 s after the dye injection, for gas volume fractions from 1 to 14%. The spatial resolution is of 21 pixels (3.36 mm), which is ten times larger than the length scale L_D of the molecular diffusion on the duration T_e of an experiment ($L_D = \sqrt{D_m T_e} \approx 0.2$ mm for $T_e = 10$ s). While the camera grabbing rate is 49 Hz, each concentration measurement makes use of 15 consecutive images, so that the effective time resolution is 0.3 s.

3. Hydrodynamic characteristics of the bubble swarm

The dynamics of both phases has already been experimentally investigated in detail (Riboux, Riso & Legendre 2010; Colombet *et al.* 2011, 2014) and also numerically simulated (Riboux, Legendre & Riso 2013). In particular, the present bubble injection uses the same capillary tubes with the same spatial distribution as in previous experiments mentioned above. The only difference with the former setup is that the tank cross-section is a rectangle of 15×30 cm² instead of a square of 15×15 cm², a wider system being required to allow a sufficient time before the dye reaches the walls. For a homogeneous flow, the size of the tank is not a control parameter. An extensive investigation of the dynamics has therefore not been carried out again in the present work.

The main characteristics of the gas phase have been measured in the present setup. They confirm that the flow configuration is actually the same as in previous experiments. Various profiles of α have been measured to check that the gas injection is uniform and that the flow corresponds to a stable bubble column without large-scale recirculations. As α is increased from 1 to 13%, the bubble equivalent diameter d increases from 2.3 to 3.9 mm whereas the average bubble rise velocity V decreases from 300 to 215 mm s⁻¹, values which correspond to mobile interfaces and indicate that there is no significant effect of surface-active contaminants. Consequently, the bubble Reynolds number, $Re = Vd/\nu$, remains within the narrow range 680-840. The spatial distribution of the bubbles has been assessed by considering the statistics of the time intervals between the arrivals of two successive bubbles on the leading optical probe. Figure 6 shows the distribution function $F(\Delta t)$, which is the probability that the time intervals δt are larger than Δt . If the bubble locations are statistically independent from each others, the process should be Poissonian:

$$F(\Delta t) = \text{Prob}(\delta t < \Delta t) = 1 - \exp(-\Delta t/\Delta t_m). \quad (3.1)$$

Theoretical expression (3.1) has been fitted on experimental data by adjusting the average time interval Δt_m and found in good agreement with the measurements. We can conclude that bubble locations can be considered as statistically independent and there is no bubble clustering, which extends the results obtained at lower volume fractions by Riso & Ellingsen (2002). Assuming that bubbles are oblate ellipsoids of aspect ratio χ rising at velocity V with their minor axis oriented vertically, the average time interval should write

$$\Delta t_m = \frac{2d}{3\chi^{2/3}\alpha V}. \quad (3.2)$$

The insert in figure 6 compares the measured values of Δt_m with expression (3.2), where d and V are measured values for the corresponding volume fraction, and $\chi = 1.7$ from Riboux, Riso & Legendre (2010). The equation (3.2) gives an accurate estimation of the average time interval between consecutive bubbles, which therefore scales as α^{-1} .

The properties of the liquid agitation are known from Riboux, Risso & Legendre (2010). In the range of gas volume fraction considered here, the standard deviation of the liquid horizontal and vertical fluctuations are well described by the following empirical relations

$$u'_x = \gamma_x V_0 \alpha^{0.4} \quad \text{with } \gamma_x \approx 0.76, \quad (3.3)$$

$$u'_z = \gamma_z V_0 \alpha^{0.4} \quad \text{with } \gamma_z \approx 1.14, \quad (3.4)$$

where $V_0 = 320 \text{ mms}^{-1}$ is the rise velocity of an isolated bubble of $d = 2.1 \text{ mm}$. While normalized by the variance, the spatial spectra of the liquid fluctuations are independent of the gas volume fraction and similar in the horizontal and vertical directions. In particular, the Eulerian integral length scale Λ is found equal to 7.7 mm and a k^{-3} subrange is observed for the scales between $\Lambda/10$ and Λ .

4. Mixing induced by the bubbles

Figure 7 presents a typical evolution of the patch of dye for $\alpha = 4.5\%$. The first column shows pictures of the dye distribution after image processing at $t=5, 10, 15$ and 20 s . The second column shows the horizontal and vertical grey-level profiles passing through the patch barycentre, which is chosen as origin of the coordinates. The patch is rather regular and symmetric relative to its centre. The symmetry in the horizontal direction just results from the homogeneity of the bubble swarm and the isotropy of the bubble-induced agitation in the horizontal plane. More interesting is the symmetry in the vertical direction because it means that the upward flux of dye is equal to the downward flux of dye. The mechanism of transport by capture of dye within the bubble wakes, which should break the up/down symmetry, is therefore not dominant. Moreover, the grey-level profiles are approximately Gaussian. Altogether this suggests that the mixing could be described as a regular diffusion process.

Let us consider the evolution of the concentration C_{free} of a mass M of dye submitted to an anisotropic diffusion in an unbounded domain. The solution of the diffusion equation in the principal frame of the diffusion tensor D_{ij} writes (Socolofsky & Jirka 2005):

$$C_{\text{free}}(x; y; z; t) = \frac{M}{(2\pi)^{3/2} \sigma_x \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma_x^2} - \frac{y^2}{2\sigma_y^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2}\right). \quad (4.1)$$

The variance σ_i^2 of the Gaussian function in direction i is related to time by

$$\sigma_i^2 = 2 D_{ii} t. \quad (4.2)$$

Assuming that the diffusion is isotropic in a horizontal plane, we only introduce a horizontal and a vertical coefficients of diffusion: $D_h = D_{xx} = D_{yy}$ and $D_v = D_{zz}$.

In the present configuration, the concentration is often not negligible at the walls, which are located at $\|x\| = x_w = 150 \text{ mm}$ and $\|y\| = y_w = 75 \text{ mm}$. The equation of diffusion being linear, its solution in a domain that is bounded by walls (no-flux condition) is obtained by the summing an infinite number of mirror sources (Socolofsky & Jirka 2005):

$$C_{\text{bd}}(x; y; z; t) = \sum_{n_x=-\infty}^{\infty} \sum_{n_y=-\infty}^{\infty} C_{\text{free}}(x + 2n_x x_w; y + 2n_y y_w; z; t). \quad (4.3)$$

Since our experimental technique only gives us access to a two-dimensional view of the concentration field, C_{bd} cannot be directly compared with the measurements. By integration of eq. (4.3), we can however obtain a quantity that is proportional to the light

collected by a camera pointing in the y -direction:

$$C_{2D}(x; z; t) = \int_{-y_w}^{y_w} C_{bd}(x; y; z; t) dy = \frac{M}{2\pi\sigma_x\sigma_z} \sum_{n_x=-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{(x + 2n_x x_w)^2}{2\sigma_x^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2}\right). \quad (4.4)$$

It is interesting to note that, thanks to the properties of the exponential function, C_{2D} is similar to the solution of a two-dimensional diffusion problem. Three sources being largely sufficient to ensure a good accuracy, the infinite summation has been truncated to $-1 \leq n_x \leq 1$. For each instant, the horizontal and vertical profiles of grey level have been fitted with eq. (4.4) by adjusting σ_x and σ_z by means of the least-squares method. Figure 7 shows that the fitted profiles are in good agreement with the measured ones.

Now we need to check whether the time evolution of the patch of dye is in agreement with eq. (4.2). Figure 8 presents typical examples of time evolutions of the variances σ_x^2 and σ_z^2 for $\alpha = 9\%$. The results of five independent tests are plotted (light-grey curves) as well as their average (black curve). For both directions, the reproducibility is good and the variance evolves linearly with time in the interval from $t=10$ to 20 s. As discussed in section 2, for $t < 10$ s, fluorescence absorption may take place and the initial conditions of dye injection are not forgotten; for $t > 20$ s, the dilution becomes too large to guarantee a satisfactory measurement accuracy. We also note that the slope is larger in the vertical direction than in the horizontal one, indicating that the mixing is more efficient in the vertical direction. Similar results are obtained for all volume fractions from 1 to 14%. We can therefore conclude that the mixing process is well described by an anisotropic regular diffusion process.

For each volume fraction, the average variances have been determined from five independent tests. The diffusion coefficients have then been obtained from the slope of the time evolution of the average variance. The symbols in figure 9 shows the experimental diffusion coefficients in the horizontal and vertical directions, D_h and D_v , as a function of the gas volume fraction, α . The values are within 1 to 6 cm²/s, which is six order of magnitude larger than the molecular diffusion coefficient, and D_v is approximately 3 times larger than D_h for all α . As far as we know, the only previous measurement of the diffusion of a low-diffusive passive scalar in a homogeneous swarm of bubbles (Mareuge & Lance 1995) was limited to a single very low value of the gas volume fraction: $D_h = 0.4 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ and $D_v = 0.7 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ for air bubbles of 5.8 mm equivalent diameter in water at $\alpha = 0.2\%$. The order of magnitude is comparable to the present one and the horizontal diffusion was also found lower than the vertical one. However, we are not sure that the bubble-induced turbulence can be considered as fully developed at such a small volume fraction.

We also see in figure 9 that the evolution of the diffusion coefficients against the gas volume fraction presents two different regimes. For α less than 3% in the horizontal direction and less than 6% in the vertical direction, D_h and D_v strongly increase with α whereas their values become almost constant at larger α . A comparable limitation of the horizontal diffusion coefficient when α is increased beyond a few percents was already observed by Abbas, Billet & Roig (2009) in a homogeneous bubble swarm where a horizontal gradient of dissolved oxygen developed owing to a difference in mass transfer resulting from a different composition of the gas mixture within the bubbles. Considering that hydrodynamics of the bubble swarm shows no transition and that the energy of the liquid fluctuations continuously increases in the considered range of α , the observed saturation of the diffusion coefficients was rather unexpected.

To understand the mechanisms underlying the mixing, we need to relate the characteristics of the dye diffusion to the hydrodynamics of the bubble swarm.

5. Physical interpretation and modelling

Two mechanisms are candidates to control the mixing of a passive scalar in a homogeneous bubble swarm. The first is the capture and the transport by the bubble wakes. The second is the dispersion by the bubble-induced turbulence. In a bubble swarm that is confined between two plates, the turbulence does not develop even if the bubble rise Reynolds number is large (Bouche *et al.* 2014). In this particular case, only the first mechanism is present and experimental results show that the upwards transport of dye is more efficient than the downwards transport. As a consequence, mixing resulting from this mechanism cannot be described by a diffusion process (Bouche *et al.* 2013). In contrast, the mixing in an unconfined bubble swarm is found here to be well characterized by an effective diffusion. It therefore reasonable to conclude that it is dominated by turbulent dispersion.

The effective diffusion coefficient D resulting from the dispersion by a turbulent flow is the product of the Lagrangian integral time scale T_L by the variance u'^2 of the velocity fluctuations (Taylor 1922). The expression of D can be understood by considering a random walk process in which each elementary volume of dye is transported over a length ($u' \times T_L$) in a random direction that changes every time interval T_L . No description of the Lagrangian statistics of the bubble-induced turbulence is available. However, since the flow is homogeneous, it is reasonable to estimate T_L as the ratio of the Eulerian integral length scale, Λ , by the standard deviation of the velocity, u' (Corrsin 1963): $T_L = \Lambda/u'$. If we distinguish horizontal and vertical directions, we can propose the following expressions for the diffusion coefficients within the bubble swarm:

$$D_h^{low} = k_l u'_x \Lambda, \quad (5.1)$$

$$D_v^{low} = k_l u'_z \Lambda, \quad (5.2)$$

where k_l is a constant of order one. Since the integral length scale Λ is the same in both directions, the anisotropy of the diffusion is expected to result only from the difference between the standard deviations, u'_x and u'_z , of the fluctuations. Moreover, because Λ is independent of α , these expressions predict that D_h and D_z should increase as $V_0 \alpha^{0.4}$ (eq. 3.3 & 3.4) or, which is roughly equivalent in the considered range, as $V \alpha^{0.5}$. Expressions (5.1 & 5.2) with $\Lambda = 7.7$ mm and k_l empirically set to 0.63 are represented by dashed lines in figure 9. The model broadly reproduces the initial increase of the diffusion coefficients at low α . Yet, it fails to predict the saturation that is reached at larger α .

We have to recall that Λ has been measured behind a bubble swarm, in a region where the liquid fluctuations are still controlled by the bubble-induced turbulence, but where there is no bubble. T_L hence measures the time during which the liquid velocity remains correlated without accounting for the discontinuities caused by the bubble passages. In a given point within the bubble swarm, the liquid-velocity signal is, in average, interrupted every Δt_m . Considering that T_L broadly evolves as $\alpha^{-0.5}$ while Δt_m evolves as α^{-1} , it is logical to envisage the existence of two regimes of diffusion. At low α , T_L is shorter than Δt_m and the velocity signal has time to lose its correlation before being interrupted by a bubble: expressions (5.1 & 5.2) are thus relevant. On the other hand, at large α , Δt_m is shorter than T_L and decorrelation suddenly occurs when the velocity signal is interrupted by the passage of a bubble: we then expect that the diffusion coefficients are

given by

$$D_h^{high} = k_h u_x'^2 \Delta t_m, \quad (5.3)$$

$$D_v^{high} = k_h u_z'^2 \Delta t_m, \quad (5.4)$$

where k_h is a constant of order one. Equations (5.3 & 5.4) with k_h empirically set to 0.40 are represented by continuous lines in figure 9. The agreement with the experiments is good, with a slight residual increase resulting from the small increase of the bubble diameter. The independence of the diffusion coefficients with the gas volume fraction is obtained because the increase of the intensity of the agitation ($u'^2 \propto \alpha$) is compensated by a comparable decrease of the average time interval between bubbles ($\Delta t_m \propto \alpha^{-1}$). Moreover, the ratio between D_h and D_v is reproduced without the need of any adjustment since it simply results from the ratio between the variances $u_x'^2$ and $u_z'^2$. Also, the fact the transition between the two regimes occurs at a lower value of α in the horizontal direction is consistent with the fact that $T_{L_h} = \Lambda/u_x'$ is larger than $T_{L_v} = \Lambda/u_z'$, while Δt_m does not depend on the considered direction.

6. Concluding remarks

The mixing of a low-diffusive scalar in a homogeneous swarm of bubbles has been investigated experimentally for gas volume fractions ranging from 1 to 14%. It turns out to result from the dispersion by the bubble-induced turbulence and can be modelled by an anisotropic regular diffusion process. The vertical and horizontal diffusion coefficients, can be expressed as the product of the variance of the liquid velocity in the corresponding direction by the correlation time of the fluctuations. At low gas volume fraction, the correlation time is the Lagrangian integral timescale of the bubble-induced turbulence and the diffusion coefficients, given by expressions (5.1 & 5.2), roughly increases with the volume fraction as $\alpha^{0.4}$. At large volume fraction, the correlation time is determined by the average time interval between bubbles and the diffusion coefficients, given by (5.3 & 5.4), become almost independent of α . The transition between the two regimes occurs sooner in the horizontal direction ($1\% \leq \alpha \leq 3\%$) than in the vertical direction ($3\% \leq \alpha \leq 6\%$).

For intermediate volume fractions, the two correlation times are of the same order and the expressions of the diffusion coefficients are difficult to be derived from theoretical considerations. For those who need numerical estimations for practical purpose, a reasonable approximation is obtained by simply considering that the expressions for small and large volume fractions are valid on both sides till their point of intersection, which is $\alpha_{th} = 1.3\%$ in the horizontal direction and $\alpha_{tv} = 6.4\%$ in the vertical direction. The use of these expressions nevertheless require the knowledge of Δt_m , u_x' , u_z' and Λ . The average time interval between the bubbles, Δt_m , can be measured by means of any system able to detect the bubble passages or deduced from the bubbling frequency, which is generally easy to estimate from the gas inlet flow rate and the bubble size; it can also be estimated from (3.2). The standard deviations of the liquid velocity fluctuations (u_x' and u_z') are commonly measured by means of a hotwire technique (Lance & Bataille 1991; Martínez-Mercado, Palacios-Morales & Zenit 2007) or laser Doppler anemometry (Riboux, Risso & Legendre 2010); alternatively, empirical results such as equations (3.3-3.4) are available in the works mentioned above for different bubble sizes. The integral length scale, Λ , has been found equal to 7.7 mm for air bubbles in water of diameter ranging from 1.6 to 2.5 mm by Riboux, Risso & Legendre (2010), who proposed to model it as

d/C_d , where d is the bubble diameter and C_d the bubble drag coefficient of a single rising bubble.

Finally, let us analyze what mean the numerical values of the diffusion coefficients that have been found in this work. Consider a bubble column of high H operated at a volume fraction of 10%. The time required by the concentration of a solute to homogenize over the column is of the order of H^2/D_v . Taking $H = 1$ m and $D_v = 6 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ yield a mixing time of about half an hour. However, engineers know that the mixing time in an industrial column of this size is significantly lower, from a few tens of seconds up to a few minutes. The reason for these large disparities is that industrial columns are most of the time not stable, the gas volume fraction thus does not remain homogeneous and large-scale velocity circulations develop. The advection of the solute by the large scales and the turbulent dispersion at the bubble scale combine their effects to control the mixing. The present investigation of a homogeneous bubble swarm is a fundamental step in the understating of the mixing in bubbly flows. The proposed model describes well the mixing in configurations where only the bubble-induced turbulence is responsible for the dispersion. It can also be envisaged as a subgrid-scale model in numerical simulations where only large scales are resolved.

REFERENCES

- ABBAS, M., BILLET, A. M. & ROIG, V. 2009 Experiments on mass transfer and mixing in a homogeneous bubbly flow. *Proceedings of the 6th International Symposium on Turbulence, Heat and Mass Transfer*, 815-817, Rome, Italy.
- BOUCHE, E., CAZIN, S., ROIG, V. & RISSO, F. 2013 Mixing in a swarm of bubbles rising in a confined cell measured by mean of PLIF with two different dyes. *Exp. in Fluids* **54**, 1552
- BOUCHE, E., ROIG, V. RISSO, F. & BILLET, A.-M. 2014 Homogeneous swarm of high-Reynolds-number bubbles rising within a thin gap. Part 2. Liquid dynamics. *J. Fluid Mech.* **758**, 508–521.
- COLOMBET, D., LEGENDRE, D., COCKX, A., GUIRAUD, G., RISSO, F., DANIEL, C. & GALINAT, S. 2011 Experimental study of mass transfer in a dense bubble swarm. *Chem. Eng. Science* **66**, 3432–3440.
- COLOMBET, D., LEGENDRE, D., RISSO, F., COCKX, A. & GUIRAUD, P. 2014 Dynamics and mass transfer of rising bubbles in an homogeneous swarm at large gas volume fraction. submitted to *J. Fluid Mech.*
- COMBEST, D. P., RAMACHANDRAN, A. & DUDUKOVIC, M. P. 2011 On the gradient diffusion hypothesis and passive scalar transport in turbulent flows. *Ind. Eng. Chem. Res.* **50**, 8817–8823.
- CORRSIN, S. 1963 Estimates of the Relations between Eulerian and Lagrangian Scales in Large Reynolds Number Turbulence. *Journal of the Atmospheric Sciences* **20**, 115–119.
- LANCE, M. & BATAILLE, J. 1991 Turbulence in the liquid phase of a uniform bubbly air-water flow. *J. Fluid Mech.* **222**, 95–118.
- MAREUGE, I. & LANCE, M. 1995 Bubble-induced dispersion of a passive scalar in bubbly flows. *Proceedings of the 2nd International Conference on Multiphase Flow*, PT1-3–8, Kyoto, Japan.
- MARTÍNEZ-MERCADO, J., PALACIOS-MORALES, C. A. & ZENIT, R. 2007 Measurement of pseudoturbulence intensity in monodispersed bubbly liquids for $10 < Re < 500$. *Phys. Fluids* **19**, 103302.
- MARTÍNEZ-MERCADO, J., GÓMEZ, D. C., VAN GILS, D., SUN, C. & LOHSE, D. 2010 On bubble clustering and energy spectra in pseudo-turbulence. *J. Fluid Mech.* **650**, 287–306.
- MENDEZ-DIAZ, J. C., SERRANO-GARCÍA, J. C. & ZENIT, R. 2013 Power spectral distributions of pseudo-turbulent bubbly flows. *Phys. Fluids* **25**, 043303.
- RADL, S. & KHINAST, J. 2010 Multiphase Flow and Mixing in Dilute Bubble Swarms. *AIChE J.* **56**, 2421–2445.

- RIBOUX, G., LEGENDRE, D. & RISSO, F. 2013 A model of bubble-induced turbulence based on large-scale wake interactions. *J. Fluid Mech.* **719**, 196–212.
- RIBOUX, G., RISSO, F. & LEGENDRE, D. 2010 Experimental characterization of the agitation generated by bubbles rising at high Reynolds number. *J. Fluid Mech.* **643**, 509–559.
- RISSO, F. & ELLINGSEN, K. 2002 Velocity fluctuations in a homogeneous dilute dispersion of high-Reynolds-number rising bubbles. *J. Fluid Mech.* **453**, 395–410.
- SOCOLOFSKY, S. A. & JIRKA, G. H. 2005 CVEN 489-501: Special Topics in Mixing and Transport Processes in the Environment. 5th edition. *Texas A&M University*, 1–172.
- TAYLOR, G. I. 1922 Diffusion by Continuous Movements. *Proc. London Math. Soc.* **s2-20 (1)**, 362–387.

12

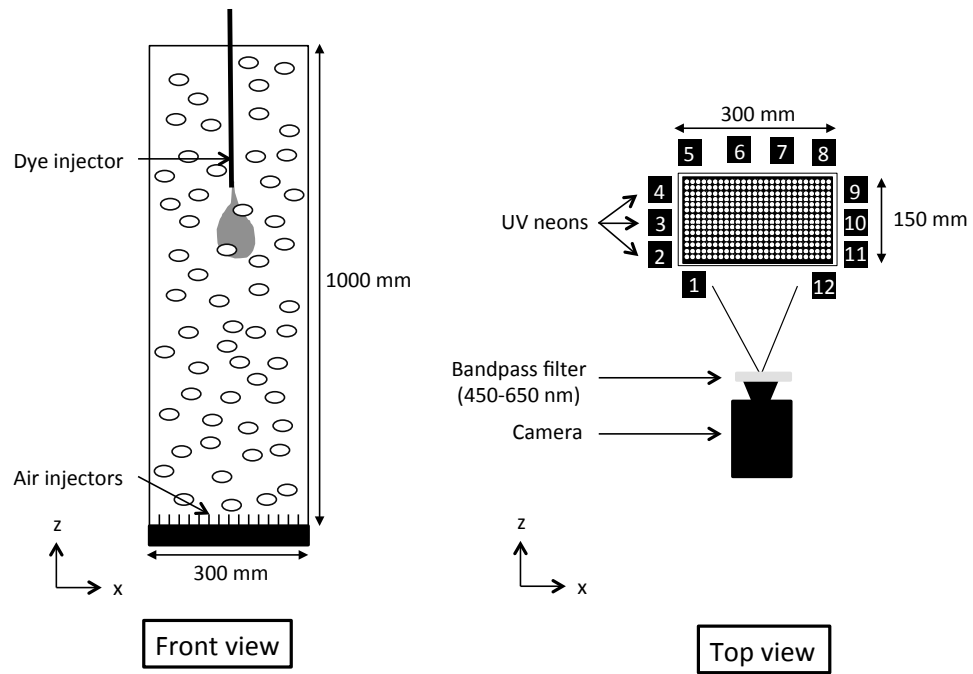
E. Alméras et al.

FIGURE 1. Experimental set-up

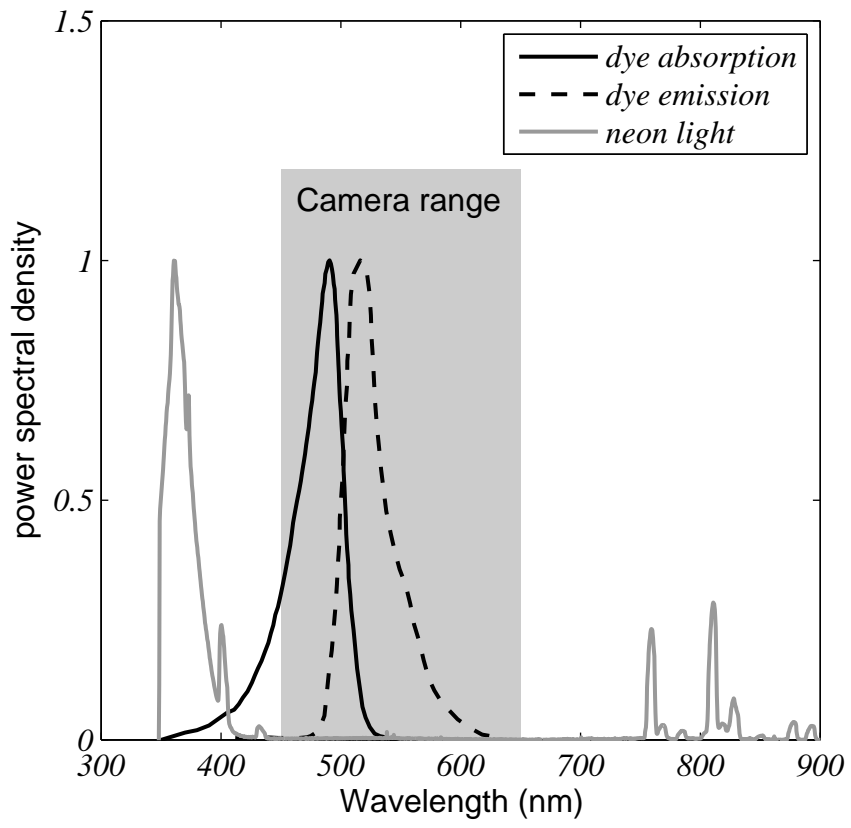


FIGURE 2. Spectrum of UV-neon light, fluorescein absorption and emission spectra, and range of wavelengths collected by the camera.

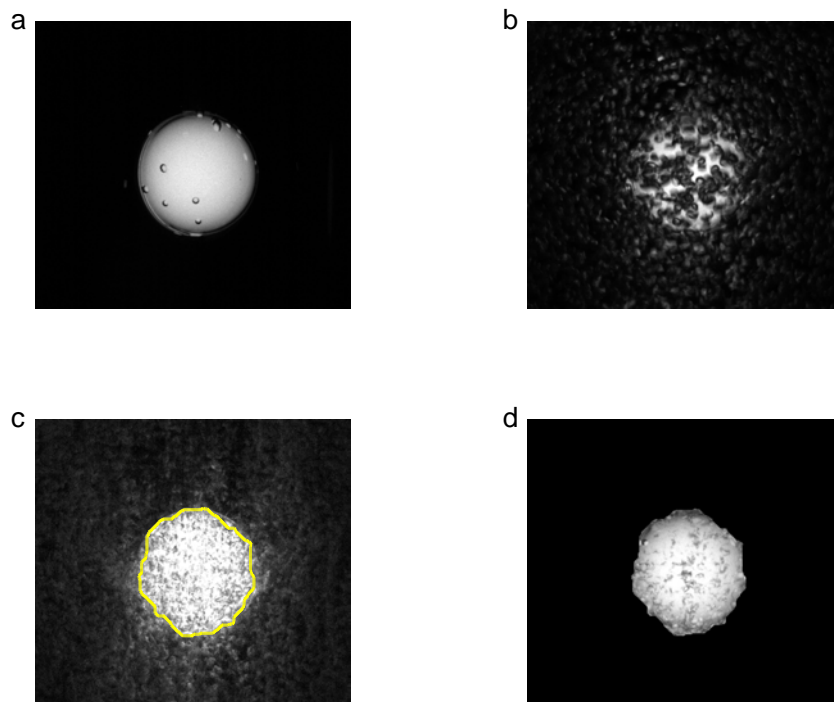


FIGURE 3. Steps of the image processing technique applied to a sphere that is filled with dye at concentration $C_S = 5 \times 10^{-5} \text{ mol L}^{-1}$: (a), reference image in the absence of bubbles; (b), raw image within the bubble swarm at $\alpha = 3.9\%$; (c), image obtained after taking the minimum and detected contour; (d), final result of the procedure.

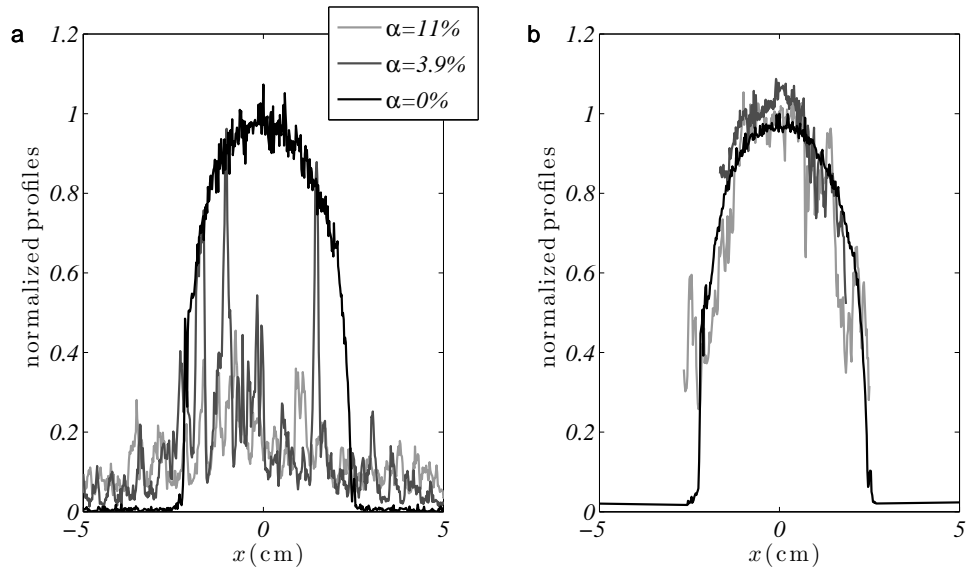


FIGURE 4. Grey-level profiles passing through the sphere centre: (a), raw image; (b) after image processing.

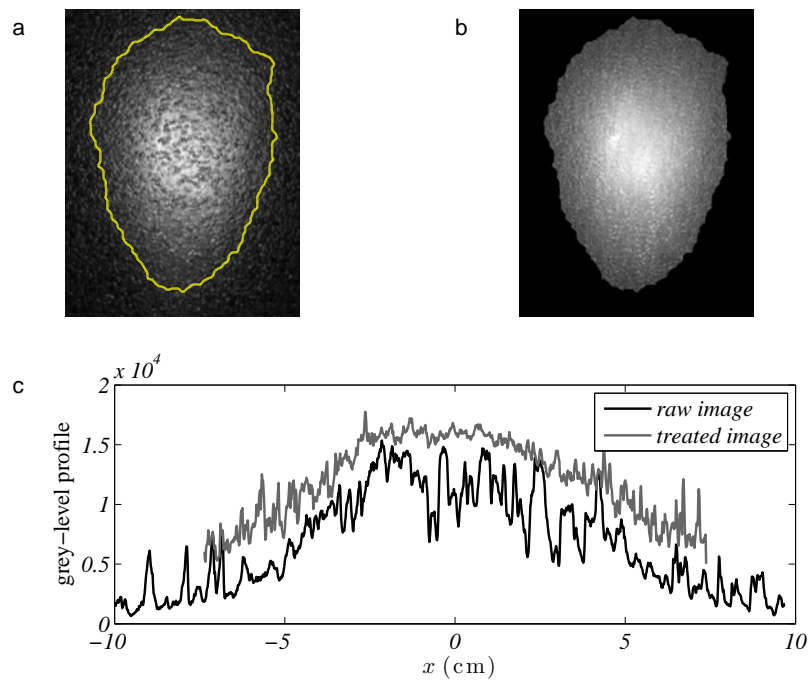


FIGURE 5. Illustration of image processing applied to mixing experiments ($t = 10$ s, $\alpha = 3\%$). (a), raw image with detected contour; (b) image after processing; (c), horizontal profiles of grey-levels before and after treatment.

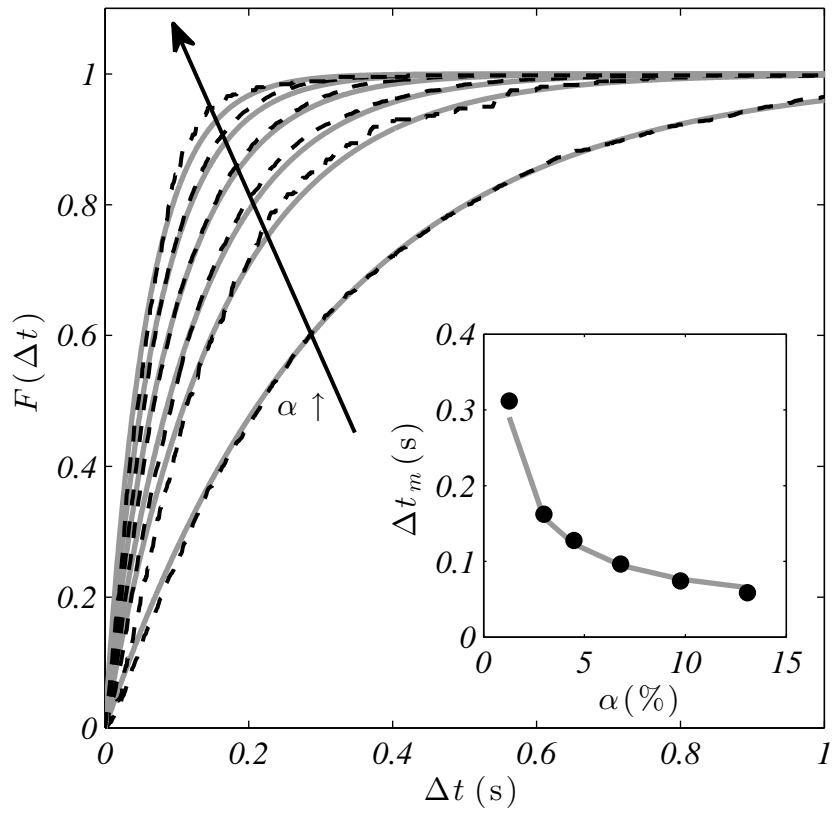


FIGURE 6. Time interval between consecutive bubbles for $\alpha=1.2, 2.7, 4.1, 6.3, 9$ and 13% . Distribution function in the main figure and average time interval in the insert. Dark dashed-line or symbols: experimental measurements. Light continuous lines: eq. (3.1) for $F(\Delta t)$ and eq. (3.2) for Δt_m

18

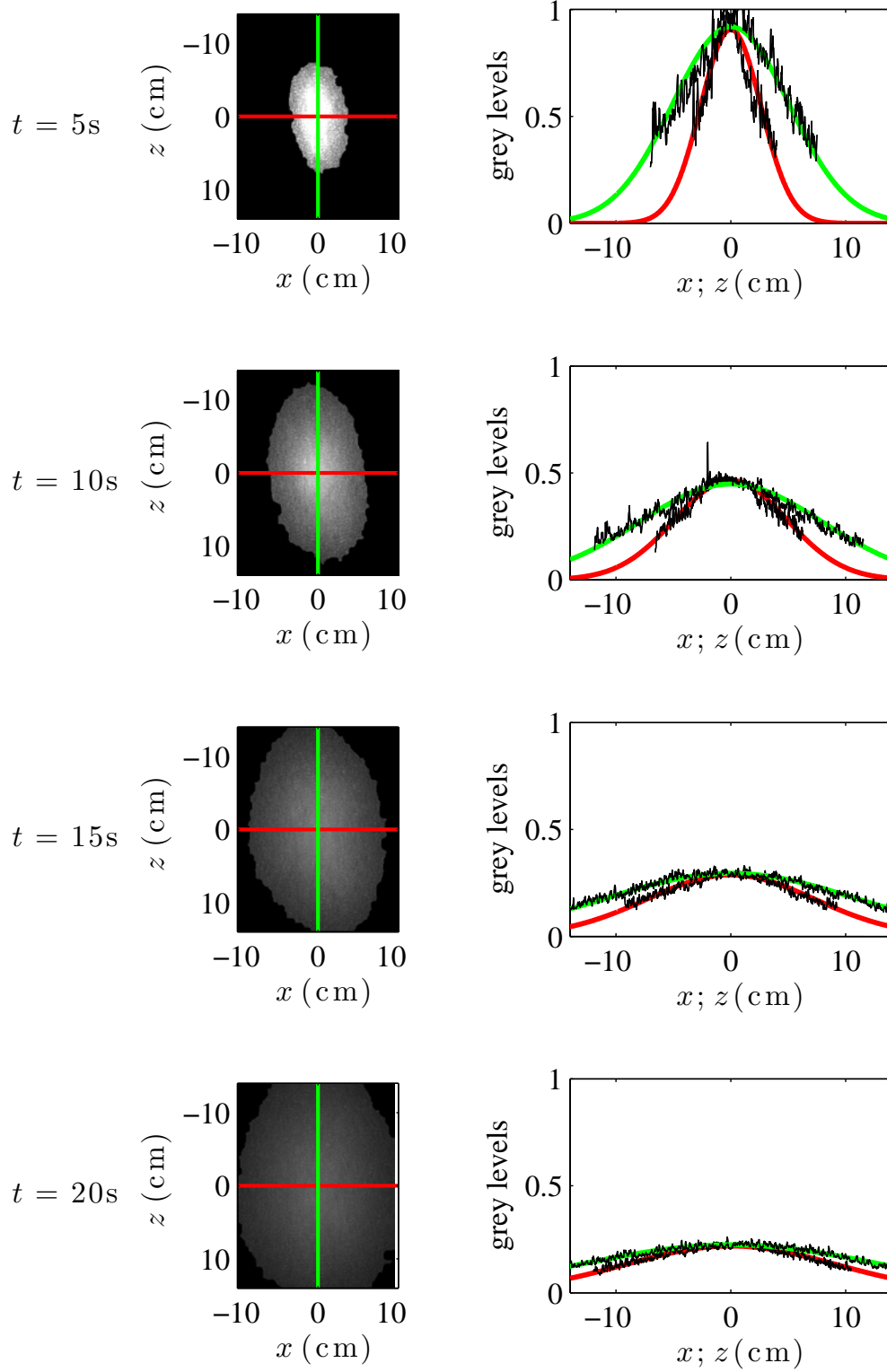
E. Alméras et al.

FIGURE 7. Time evolution of patch of dye for $\alpha = 4.5\%$. First column, images. Second column, experimental profiles of grey levels and curves fitted using eq. (4.4).

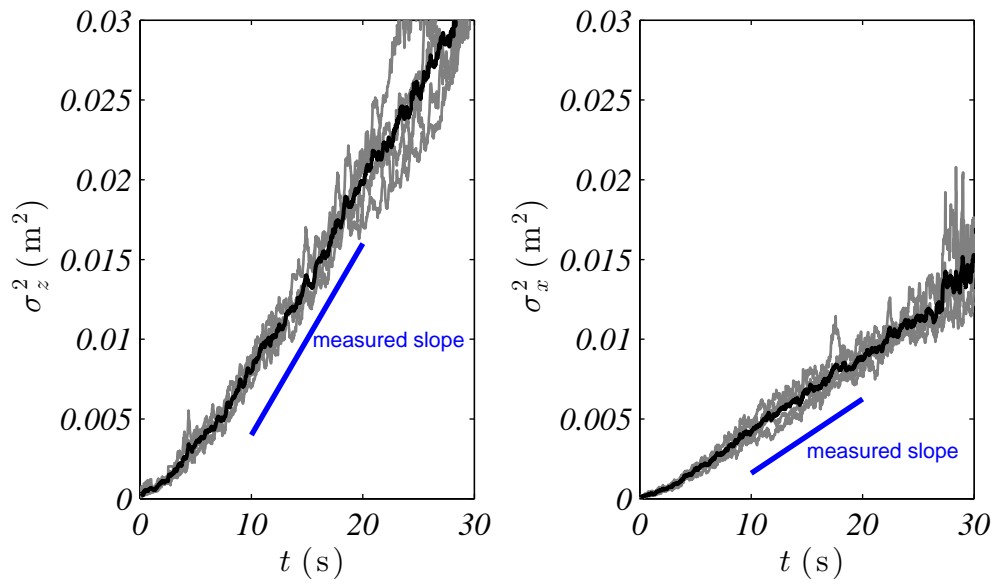


FIGURE 8. Time evolution of the variance of the spatial distribution of the patch of dye for $\alpha = 9\%$. Light-grey curves, individual tests. Black curves, average over 5 tests.

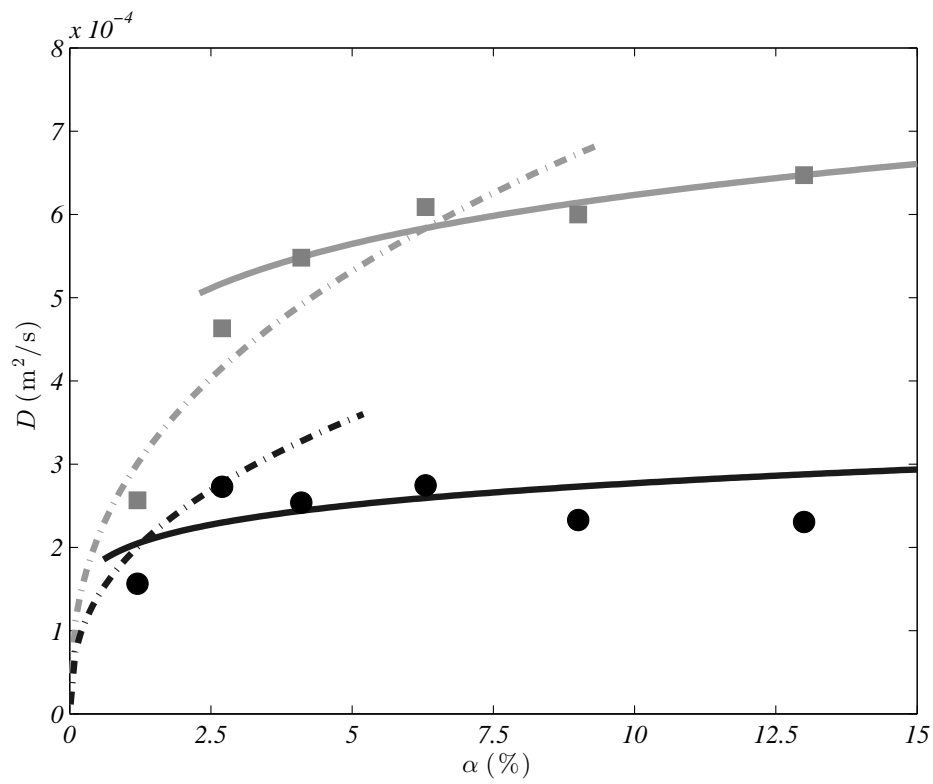


FIGURE 9. Diffusion coefficients against gas volume fraction. Circles, measured horizontal coefficients (D_h). Squares, measured vertical coefficient (D_v). Dashed lines, model (5.1-5.2) for low α with $k_l = 0.63$. Continuous lines, model (5.3-5.4) for large α with $k_h = 0.40$.