

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

N° D'ORDRE:
SERIE:

UNIVERSITE MENTOURI CONSTANTINE
FACULTÉ DES SCIENCES DE L'INGÉNIEUR
DÉPARTEMENT DE CHIMIE INDUSTRIELLE

THÈSE

En vue de l'obtention

DU DOCTORAT EN SCIENCES
EN GENIE DES PROCEDES

Par

ABDELMALEK HASSEINE

MODELISATION DES COLONNES D'EXTRACTION
LIQUIDE-LIQUIDE A BASE DE LA RESOLUTION DU
BILAN DE POPULATION. INCORPORATION DES
PHENOMENES DE RUPTURE ET DE COALESCENCE
DES GOUTTES

- Jury -

Mr M. BENCHEIKH LEHOCINE	Professeur, Université de Constantine	Président
Mr A.H. MENIAI	Professeur, Université de Constantine	Rapporteur
Mr M. OMARI	Professeur, Université de Biskra	Examineur
Mr M. KADJA	Professeur, Université de Constantine	Examineur
Mr D. BARKAT	Professeur, Université de Biskra	Examineur

...../...../2007

Remerciements

- *Avant tout, je dois remercier Dieu le tout puissant qui m'a donné la force pour mener à terme ce long et dur travail ;*
- *Je tiens à remercier très sincèrement le Professeur A.-H. MENIAI de l'université Mentouri de Constantine, mon encadreur et directeur de thèse. Ce fut un grand plaisir de travailler avec lui, durant la préparation du Magister puis du Doctorat. Personnellement, je lui serai éternellement reconnaissant de la confiance qu'il m'a témoignée, et du soutien qu'il m'a porté. Malgré son agenda surchargé, ses occupations scientifiques et administratives, il a toujours su être là quand j'en avais besoin. Merci encore MrMeniai;*
- *Je tiens aussi à remercier le Professeur BENCHEIKH LEHOCINE M. pour m'avoir fait un grand honneur en acceptant de présider le jury. Personnellement je le remercie aussi pour les discussions scientifiques que j'ai eu avec lui, à maintes occasions;*
- *Je remercie aussi Messieurs les Professeurs M. KADJA (U.Constantine), M. OMARI (U.Biskra) et D. BARKAT (U.Biskra), pour m'avoir fait honneur et plaisir en acceptant d'examiner ce travail ;*
- *Je voulais également exprimer ma reconnaissance au professeur H.J.Bart (Université Kaiserslautern, Allemagne) et au maître de conférence O. Masbernat (Laboratoire de génie chimique, Toulouse, France) d'avoir accepté de m'accueillir dans leur laboratoire et mis tous les moyens à ma disposition durant mes stages ;*
- *Je tiens aussi à exprimer toute ma gratitude à Mr KORICHI Mourad de l'université de Ouargla, pour sa collaboration au niveau de l'algorithme génétique et son accueil chaleureux durant mon séjour à Toulouse dans le cadre d'une bourse Algérienne de finalisation de thèse;*
- *Je tiens aussi à exprimer ma gratitude envers l'ensemble de la direction de Université de Biskra pour le financement de mes stages ;*
- *Je ne saurais oublier toutes les autres personnes qui, plus ou moins directement, ont contribué aussi bien à la réussite de ce travail*
- *Et enfin, je remercie mes parents, mes frères, ma soeur et mes beaux parents pour leur constant soutien, et en particulier ma femme pour son infinie patience et sa compréhension, et j'adresse toute ma tendresse paternelle à mes deux enfants, ma fille Raiane et mon fils Abdelali Anis.*

RESUME

Ce travail est une étude d'un modèle d'évaluation considérant deux paramètres hydrodynamiques principaux : la rétention de la phase dispersée et le diamètre de Sauter. Ceci est fait pour deux types différents de colonnes d'extraction, à savoir le contacteur à disque rotatif (RDC) et la colonne Kühni, en utilisant différents modèles de rupture et de coalescence des gouttes dans un modèle de bilans de populations des gouttes. Basées sur les modèles de drainage de film pour des gouttes indéformables (des gouttes sphériques) et déformables avec les interfaces partiellement mobiles, différentes simulations ont été effectuées et les résultats ont été comparés aux valeurs expérimentales. L'accord entre l'observation expérimentale et la simulation est satisfaisant et les modèles utilisés se sont avérés appropriés pour prévoir des profils de rétention et de diamètre de Sauter pour le système toluène/eau. Le modèle de bilan populations est un outil utile pour la conception et la prévision dans un intervalle des processus qui concernent des phases dispersées et des substances particulières. La méthode inverse de problème pour le modèle de bilans de populations de gouttes est appliquée aux paramètres de coalescences d'évaluation pour le système biphasé de liquide-liquide. Ceci est fait pour deux systèmes, à savoir toluène/eau et n- acétate de butyle/eau dans un contacteur à disque rotatif (RDC) utilisant un modèle de bilan de populations de gouttes. Dans la littérature ouverte, la méthode d'évaluation à ce problème est souvent basée sur l'approche déterministe d'optimisation. Ces méthodes produisent des instabilités près d'un minimum local, exigeant inévitablement des informations sur les dérivés à chaque itération.

Pour surmonter les limitations ci-dessus, on propose une méthode fournissant une évaluation pour des paramètres de coalescences. Elle est basée sur une structure simple et adaptée de l'algorithme génétique, pour ce problème particulier.

L'accord entre l'observation expérimentale et les simulations encourage et, en particulier, le modèle utilisé se sont avérés approprié pour prévoir des profils de hold-up et de diamètre de Sauter pour ces deux systèmes.

En conclusion, ces résultats démontrent que le procédé d'optimisation proposé est très commode pour estimer les paramètres de coalescences pour des systèmes de colonnes d'extraction.

Mots clés : Extraction, Hold-up, Coalescence, Rupture, Sauter diameter, Efficacité, Gouttes

SOMMAIRE

	Page
NOMENCLATURE	(i)
LISTE DES FIGURES	(iv)
LISTE DES TABLEAUX	(vii)
INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE I – REVUE BIBLIOGRAPHIQUE	5
1.1 Introduction	
1.2 Revue des méthodes numériques disponibles	
1.2.1 Méthodes stochastiques	
1.2.2 Méthodes d'ordre élevé	
1.2.3 Méthodes d'ordre zéro	
1.2.4 Références citées dans le chapitre I	
CHAPITRE II - MODELISATION DES COLONNES D'EXTRACTION LIQUIDE-LIQUIDE	18
2.1 Introduction	
2.2 Modélisation d'un contacteur diphasique	
2.2.1 Généralités	
2.2.2 Développement du modèle continu	
2.2.2a Bilan sur la phase dispersée	
2.2.2b Bilan sur la phase continue	
2.2.2c Les conditions aux limites et initiales	
2.2.3 Modélisation de l'hydrodynamique	
2.2.3a Les paramètres hydrodynamiques	
2.2.4 Les termes de production d'aire d'échange	
2.2.4a Discrétisation par rapport à la taille des gouttes	
2.2.4b Rupture des gouttes	

2.2.4c Coalescence des gouttes	
2.3 Estimation des paramètres des modèles	
2.3.1 Détermination des paramètres de coalescence	
2.4 Références citées dans le chapitre II	
CHAPITRE III - METHODES DE RESOLUTION NUMERIQUE	45
3.1 Introduction	
3.2 Discrétisation du modèle	
3.2.1 Discrétisation par rapport à la variable interne	
3.2.2 Discrétisation par rapport à la variable externe	
3.2.2a Discrétisation des flux dispersif et des termes de sources	
3.2.2b Discrétisation du flux convectif	
3.2.3 Ecriture matricielle du système linéaire	
3.3 Algorithme de calcul	
3.4 Méthode de détermination des paramètres de coalescence	
3.4.1 Description de l'algorithme génétique	
3.4.1a Sélection	
3.4.1b Croisement	
3.4.1c Mutation	
3.5 Remarques générales	
3.6 Références citées dans le chapitre III	
CHAPITRE IV – RESULTATS ET DISCUSSION	58
4.1 Détermination des paramètres de coalescence	
4.2 Résultats de la modélisation des colonnes d'extraction liquide-liquide	
4.3 Références citées dans le chapitre IV	
CONCLUSION GENERALE	77
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	78
ANNEXES	89
Annexe I Calcul de la vitesse de chute	

Annexe II Distribution expérimentale et simulée des tailles des gouttes

Annexe III Traitement statistique des populations de particules

NOMENCLATURE

a	Diamètre réduit (m) $= r_1 r_2 / (r_1 + r_2)$
A_k	Constante d'Hamaker (J)
C_1, C_2	Constantes de fréquence de collisions
C_3, C_4	Constantes d'efficacité de coalescence
C_V	Constante de turbulence (damping)
D_{ax}	Coefficient de dispersion axial (m^2/s)
D_C	Diamètre de la colonne (m)
D_R	Diamètre du rotor (m)
D_S	Diamètre du stator (m)
$d_1, d_2, \text{resp. } d$	Diamètre de la goutte (m)
d_{crit}	Diamètre critique de la goutte pour la rupture (m)
d_{eq}	Diamètre équivalent (m)
d_0	Diamètre de la goutte mère (m)
d_{32}	Diamètre de Sauter moyen de la goutte (m)
e	Fraction de la surface libre du plateau
F, F_1	Force (N)
$g(z, d)$	Fréquence de la rupture (s^{-1})
g	Accélération de gravité (m/s^2)
H_C	Hauteur du compartiment (m)
$h(d_1, d_2)$	Fréquence de collision pour un volume unité (m^3/s)
h_1, h_2, h	Épaisseur du film (m)
N	Vitesse du rotor (s^{-1})
N_P	Nombre de puissance $= P / (N^3 D_R^5 \rho_c)$
P	Fonction de densité de distribution (m^{-1})
P	Puissance d'entrée par compartiment (W)
$P(d)$	Probabilité de rupture pour une goutte de diamètre d

Q	Flux des phases (m ³ /s)
Re_R	Nombre de Reynolds du rotor = $\frac{\rho_c R^2 N}{\mu_c}$
r	diamètre (m)
\bar{t}	Temps de contact moyen (s)
$\bar{\tau}$	Temps de coalescence moyen (s)
$V(d)$	Volume d'une goutte de diamètre d (m ³)
v	Vitesse de phase (m/s)
v_r	Vitesse relative (m/s)
v_T	Vitesse terminale (m/s)
We_m	Nombre de Weber modifié
We_R	Nombre de Weber du rotor = $\frac{\rho_c D_R^3 N^2}{\sigma}$
x_m	Nombre moyen des gouttes filles
z	Hauteur (m)

Symboles grecques

$\beta(d_0, d)$	Distribution des tailles des gouttes filles (m ⁻¹)
σ	Tension interfaciale (N/m)
$\Delta\rho$	Différence de densité entre phases (kg/m ³)
ε	Puissance de dissipation mécanique par unité de mass (W/kg)
μ	Viscosité dynamique (Pa.s)
γ	Viscosité cinématique (m ³ .s ⁻¹)
ρ	Densité (kg/m ³)
ϕ	Fraction volumique (hold-up) de la phase dispersé
$\lambda(d_1, d_2)$	Probabilité de coalescence
$\omega(d_1, d_2)$	Taux de coalescence (m ³ /s)

Subscripts

c	Phase continue
crit	critique

d	Phase dispersée
max	maximale

LISTE DES FIGURES

Figures	Titre	Page
Figure 2.1	Schéma général d'une colonne d'extraction liquide-liquide à contre-courant	19
Figure 2.2	Bilan sur un volume de référence $A.\Delta z$ pour la phase dispersée	21
Figure 2.3	Bilan sur un volume de référence $A.\Delta z$ pour la phase continue	22
Figure 2.4	Vitesse d'une goutte unique	27
Figure 2.5	Coefficient de traînée d'une goutte unique	27
Figure 2.6	Exemple de trajectoire simulée (Bardin, 1998)	29
Figure 2.7	Comportement des gouttes au voisinage d'un plateau	33
Figure 2.8	Algorithme pour l'évaluation des paramètres de coalescence	42
Figure 3.1	Volume de contrôle pour la méthode des volumes finis	48
Figure 3.2	Système linéaire à matrice dominante	50
Figure 3.3	Organigramme de l'algorithme de calcul	51
Figure 3.4	Organigramme de l'algorithme génétique général	53
Figure 3.5	Opérateurs de croisement et de mutation	55
Figure 4.1	Installation expérimentale (coalescence)	58

Figure 4.2	Optimisation des constantes de coalescence pour le système Toluène/Eau($Q_c=100$ l/h), $Q_d=100$ l/h) à 273K	60
Figure 4.3	Comparaison entre le hold-up simulé et les diamètres de Sauter avec les données expérimentales dans la colonne RDC. Influence de l'effet de l'agitation sur le hold-up et les diamètres de Sauter, ($Q_c=100$ l/h, $Q_d=112$ l/h), (250 r.p.m.-*- Sim. -►- Exp.), (300 r.p.m. -O- Sim. -◄- Exp.), (350 r.p.m. -+- Sim. -x- Exp.).	64
Figure 4.4	Comparaison entre le hold-up simulé et les diamètres de Sauter avec les données expérimentales dans la colonne RDC. Influence des débits de solvant sur le hold-up et les diamètres de Sauter. (300 r.p.m), ($Q_c=100$ l/h, $Q_d=112$ l/h) -*- Sim. -►- Exp., ($Q_c=100$ l/h, $Q_d=56$ l/h) -O- Sim. -◄- Exp.).	65
Figure 4.5	Hold-up et diamètres de Sauter, comparaison entre les données simulées et expérimentales, RDC (-*- Sim. -►- Exp.) et Kühni (-O- Sim. -◄- Exp.).	67
Figure 4.6	$p/(1-p)$ en fonction du nombre de Weber modifié dans les colonnes RDC et Kühni	68
Figure 4.7	Influence de la rupture et la coalescence sur le hold-up et les diamètres de Sauter dans la colonne Kühni (-*- Sim. -◄- Exp. rupture), (-O- Sim. coalescence), (-+- Sim. Pas de rupture et coalescence). $\varepsilon=0.0788$ W/kg, ($Q_c=125$ l/h, $Q_d=130$ l/h)	70

Figure 4.8	Influence de la rupture et de la coalescence sur le hold-up et le diamètre de Sauter dans la colonne RDC N=300 rpm. (Qc=100 l/h, Qd=112 l/h) (-*- Sim. -◀- Exp Rupture), (-O- Sim. coalescence), (-+- Sim. Pas de rupture et de coalescence)	71
Figures 4.9	Influence de la rupture et de la coalescence sur le hold-up et le diamètre de Sauter dans la colonne RDC N=300 rpm. (Qc=100 l/h, Qd=112 l/h) (-*- Sim. -◀- Exp Rupture), (-O- Sim. coalescence), (-+- Sim. Pas de rupture et de coalescence)	72
Figure 4.10	Influence de la rupture et de la coalescence sur le hold-up et les diamètres de Sauter pour le système toluène/eau. N=350 r.p.m. (Qc=100 l/h, Qd=112 l/h). (-O- Sim. -◀- Exp. Rupture et coalescence), (-*- Sim. Rupture)	73
Figure 4.11	Comparaison entre le hold-up simulé et les diamètres de Sauter avec les données expérimentales dans la colonne RDC. Influence de l'agitation sur le hold-up et les diamètres de Sauter pour le système n- acétate de butyle/eau. (Qc=100 l/h, Qd=112 l/h), (250 r.p.m.-O- Sim. -▶- Exp.), (200 r.p.m. -*- Sim.-◀- Exp.)	74

LISTE DES TABLEAUX

Tableau	Titre	Page
Tableau 3.1	Paramètres de AG et ses valeurs	56
Tableau 4.1	Caractéristiques de la colonne pilote et conditions opératoires	59
Tableau 4.2	Propriétés physiques des systèmes	59
Tableau 4.3	Les paramètres de l'efficacité et du taux de collision pour les gouttes déformables (D) et indéformables (N)	61
Tableau 4.4	Résultats d'optimisation pour les systèmes toluène/eau et acétate de butyle/eau	62

INTRODUCTION

La technique d'extraction liquide-liquide est fréquemment utilisée dans différents secteurs industriels tels que pharmaceutiques, alimentaires, chimiques, pétrochimiques etc. [1, 2]. Son avantage réside dans sa simplicité et surtout sa haute performance, l'efficacité et le coût relatif de l'équipement utilisé qui permet d'atteindre des degrés de séparation assez élevés [3, 4].

Par conséquent de par cette importance de l'extraction liquide-liquide, des programmes de recherche sont constamment élaborés, touchant les deux aspects: expérimental et modélisation.

En effet la fiabilité ou le calcul d'un équipement d'extraction liquide-liquide, dépend en grande partie du modèle utilisé. Choisir le modèle le plus approprié pour calculer, par exemple, un type de colonne d'extraction liquide-liquide bien précis, n'est pas une opération facile. Ceci s'explique, principalement, par l'influence de certains paramètres opératoires tels que la température, les débits des différents courants liquides ainsi que les propriétés physiques du système. Donc à ce stade, une idée claire peut être faite sur l'importance et l'intérêt de toute étude des systèmes d'extraction liquide-liquide, basée sur la modélisation.

Dans la littérature, un grand nombre de travaux se rapportant à la modélisation des colonnes d'extraction liquide-liquide sont rapportés, mais jusqu'à présent aucun modèle ne s'est imposé comme assez complet et général, pouvant prendre en charge tout type de colonnes. Ceci motive donc la réalisation d'autres études qui sont toujours en cours.

En effet les modèles les plus récents [5, 6] visent surtout à étudier l'influence des taux de rupture et de coalescence sur l'hydrodynamique et le transfert de masse dans les dispersions turbulentes. La coalescence et la rupture des gouttes sont les paramètres principaux pour une bonne compréhension du comportement des dispersions liquide-liquide dans les colonnes d'extraction. Ces deux processus sont de nature dynamique et, dans un domaine turbulent d'écoulement, dépendent des tailles de gouttes, des propriétés physico-

chimiques de la phase impliquée, de la rétention, des conditions d'écoulement et de divers autres paramètres tels que la dissipation locale d'énergie, et ceci selon la géométrie de l'appareil.

Le transfert de masse dans la phase continue dans la région autour de la goutte est influencé par l'état de sa surface qui peut être immobile, partiellement ou entièrement mobile [7].

Généralement, la modélisation des phénomènes cités ci-dessus repose sur deux approches principales: la première concerne le drainage de film utilisant l'approximation de lubrification de Chesters [8] pour des gouttes déformables avec les films inter faciaux parallèles partiellement mobiles et la deuxième, celle de Davis et coll. [9] est surtout applicable pour des gouttes indéformables à interface partiellement mobile.

Le phénomène de coalescence est toujours précédé d'un processus de collision pour au moins deux gouttes. Ce dernier peut être dû au taux de collision turbulente (fluctuations turbulentes), au taux de collision dû à la flottabilité (dépendant de l'intensité de l'accroissement des différences des vitesses) et à la réalisation d'une condition de taux de cisaillement laminaire (couche de cisaillement induites par des différences de vitesses) [10].

Cependant la majorité des modèles décrivent ce comportement de coalescence, plutôt qualitativement mais pas quantitativement parce qu'ils ne tiennent pas compte de tous les paramètres appropriés, tels que les forces électrostatiques de répulsion [10]. Par conséquent, il est nécessaire d'améliorer et de raffiner ces modèles au moyen de données expérimentales. En outre, les effets dus aux interactions entre gouttes sont, généralement différents d'un type de colonne à l'autre, et ce pour une puissance fournie équivalente, résultant en des efficacités de transfert de masse différentes.

Les phénomènes de coalescence et de rupture produisent de nouvelles aires interfaciales, améliorant ainsi le transfert de masse.

Par conséquent, dans ce travail, les différentes étapes principales impliquées dans une opération d'extraction liquide-liquide en colonne, comme le transport des gouttes, leur rupture et coalescence, sont considérées pour deux types différents de colonne : une colonne RDC et une colonne Kühni. L'objectif est de calculer la rétention locale et le diamètre de Sauter, paramètres essentiels et requis pour le processus de transfert de masse.

L'approche du modèle de bilan de population est adoptée et incluse dans la modélisation par le biais d'une équation intégral-différentielle à paramètres répartis et régis par une équations aux dérivées partielles, qui décrivent le comportement spatio-temporel des variables du modèle.

Cependant l'utilisation de cette approche (bilan de population) nécessite la connaissance de certains paramètres de coalescence intervenant dans le modèle et qui sont généralement totalement inconnus, ou plutôt mal connus. Par conséquent, dans cette étude, il est proposé d'identifier ces paramètres à partir d'observations expérimentales. Cette démarche constitue la résolution du problème inverse par opposition à la résolution directe de l'équation elle-même, et est d'une grande importance. En effet généralement, le modèle est écrit mais ses paramètres présentent une assez grande incertitude.

Les valeurs optimales de ces paramètres sont obtenues par le biais de méthodes d'optimisation sans ou avec contraintes, telle que celle basée sur l'approche de l'algorithme génétique couplé avec un solveur d'éléments finis au sens de Galerkin ou la méthode du pivot fixe pour la variable interne (diamètre de la goutte) et la méthode des volumes finis pour la variable externe (hauteur de la colonne).

L'utilité du thème de cette étude peut aussi apparaître dans le dimensionnement des colonnes d'extraction liquide-liquide, qui sont assez sollicités dans les procédés industriels. Cette tâche de design nécessite des modèles assez fiables avec des paramètres assez précis et pouvant être déterminés assez facilement. Sur ce point, l'extraction par solvant est moins favorisée, par rapport aux autres opérations unitaires telles que la distillation, qui disposent de simulateurs permettant de prédire avec une précision suffisante le fonctionnement en régimes permanent et dynamique, des colonnes de rectification. La raison principale est due surtout à la complexité de l'interaction entre les différents phénomènes mis en jeu (transport, rupture, coalescence et transfert de masse).

Les résultats de la modélisation se sont appuyés sur ceux issus de la collaboration avec le laboratoire de génie chimique de l'université de Kaiserslautern (Allemagne) qui dispose d'un équipement assez performant, qui permet de générer des résultats expérimentaux assez fiables.

Le présent manuscrit sanctionnant ce travail est entamé par cette introduction générale qui donne une idée sur l'importance et l'intérêt du thème abordé, tout en soulignant les objectifs visés.

Dans le premier chapitre, une revue bibliographique sur l'application de l'approche du modèle de l'équation de bilan de population de gouttes et les stratégies numériques de résolutions, sont présentées.

Le deuxième chapitre présente les équations du modèle. Ces dernières résultent d'une discrétisation de la colonne en une succession de compartiments dans lesquels les bilans volumiques macroscopiques sont effectués. A une échelle plus locale, la description des lois

décrivant l'hydrodynamique d'une population de gouttes dans une colonne d'extraction liquide-liquide, est aussi donnée.

Le chapitre trois présente la stratégie numérique retenue pour résoudre les équations du modèle, particulièrement la méthode de discrétisation et de résolution de ces équations. L'algorithme simulation- optimisation développé, est aussi présenté.

Finalement, dans le chapitre quatre, les résultats issus de la modélisation sont comparés aux données expérimentales acquises sur une colonne pilote fonctionnant en régime permanent avec les systèmes toluène/eau et n-acétate de butyle d'eau. Des résultats obtenus par le biais d'expériences numériques sont aussi exposés et couvrent un ensemble de conditions hydrodynamiques différentes (charge, taux de solvant, intensité d'agitation, etc.). Finalement la comparaison entre les résultats obtenus pour les deux différents types de colonnes (RDC et Kühni) par l'utilisation des différents modèles de coalescence élaborés, clôture cette partie.

Références citées dans l'introduction

- [1] H. W. Brandt, K.-H. Reissinger and J. Schröter, *Chem. Eng. Tech.* 1978, 50, 345.
- [2] T. C. Lo, M. H. I. Baird and C. Hanson, Eds., *Handbook of Solvent Extraction*. J. Wiley & Sons, New York 1983.
- [3] J. C. Godfrey and M. J. Slater, Eds., *Liquid-Liquid Extraction Equipment*. J. Wiley & Sons, Chichester 1994.
- [4] A. Robins and R. W. Cusack, *Liquid-Liquid Extraction Operations and Equipment*. Perry's Chemical Engineers' Handbook. R. H. Perry and D. W. Green, Eds. New York, McGraw Hill 1997, 15/1.
- [5] T. Kronberger, A. Ortner, W. Zulehner, H.J. Bart, *Computers Chem. Eng.* 1995, 19, 639.
- [6] C. Tsouris, L.L. Tavlarides, *AIChE J.* 1994, 40, 395
- [7] C. Tsouris, L.L. Tavlarides, *Chem. Eng. Sci.* 1993, 48, 1503.
- [8] A.K. Chesters, *Trans. IChemE* 1991, 69, 259.
- [9] R.H. Davis, J.A. Schonberg, and J.M. Rallison, *Phys. Fluids A1* 1989, 77 (1).
- [10] M. Simon, H.-J. Bart, *Chem. Eng. Technol.* 2002, 25, 4 81.

CHAPITRE I

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

1.1. Introduction

Généralement, la modélisation des équipements de séparation tels que les contacteurs liquide-liquide, complètement agités et différentiels, est basée sur l'approche de bilan de population des gouttes, qui est surtout utilisée pour décrire le comportement hydrodynamique complexe de la phase dispersée, de par la nature des interactions macroscopiques de la phase dispersée, dans un champ continu d'écoulement, généralement turbulent. Ces interactions macroscopiques sont dues aux phénomènes de rupture et de coalescence, qui résultent dans une population distribuée de gouttes, non seulement dans un domaine spatial de l'équipement, mais également aléatoirement, en ce qui concerne l'état des gouttes (propriétés) comme la taille, la concentration et l'âge. Dans ce cadre, il apparaît que dans [11, 12], les auteurs étaient parmi les premiers à introduire le modèle de l'équation de bilan de populations dans la modélisation de certains procédés de génie chimique faisant intervenir une phase dispersée. De tels processus incluent les opérations unitaires effectuées dans les réacteurs discontinus et continus agités, ainsi que dans des contacteurs différentiels tel que rapporté, par exemple, dans [13-15] pour la cristallisation et dans [16, 17] pour les colonnes d'extraction liquide-liquide.

Dans de tels équipements d'opérations unitaires, le comportement dynamique des particules dispersées, telles que des bulles ou des gouttes comme pour le cas de ce travail, est assez variable. Par conséquent, il est nécessaire de considérer un modèle mathématique assez détaillé, afin de pouvoir décrire les événements engendrés par l'interaction entre la phase continue turbulente et la phase dispersée (gouttes), incluant les phénomènes de rupture et de coalescence.

D'une manière générale, le terme de rupture considère l'interaction d'une simple goutte avec la phase continue turbulente, où elle subit la rupture si l'énergie cinétique turbulente transmise à la goutte excède son énergie de surface [18].

D'autre part, la coalescence de gouttes peut avoir lieu en raison de l'interaction entre deux gouttes et la phase continue turbulente. La coalescence entre ces deux gouttes est considérée comme effective si le film liquide intervenant a suffisamment de temps de contact pour subir un drainage [19].

Par conséquent, une distribution des tailles des gouttes est générée le long de la coordonnée spatiale du contacteur liquide-liquide rendant les modèles inhérents en supposant des distributions de taille de gouttes uniformes ou basées sur un certain diamètre moyen de gouttes (d_{32}) de valeur pratique assez petite [20, 21].

En conséquence, la modélisation de ces phénomènes, basée sur les bilans de populations des gouttes, contribue non seulement à la détermination du hold-up de la phase dispersée (concentration volumique) mais également toute propriété intégrale liée à la distribution résultante de particules (gouttes), comme la taille moyenne des gouttes et la surface interfaciale spécifique requise pour le calcul du transfert de masse et de la chaleur [22 – 24].

L'approche du bilan de populations a été appliquée pour modéliser le comportement des dispersions interactives liquide-liquide de deux manières différentes, la première se basant sur la notion d'étage et l'autre sur les modèles différentiels.

Dans l'approche d'étage rapportée dans [23, 25, 26], la colonne est assimilée à une série de réacteurs agités interagissant l'un sur l'autre et traversés par des écoulements allant de l'avant vers l'arrière, pour compenser le comportement non idéal de chaque réacteur.

Des exemples pratiques de telles colonnes peuvent être cités tels que la colonne perforée, la colonne pulsée, la colonne Scheible et les cascades de mélangeurs- décanteurs. Pour ce système, une équation de bilan de population doit être écrite pour chaque réacteur avec des conditions aux limites adéquates.

Dans l'approche basée sur le modèle différentiel, les phases sont en contact continu et se séparent seulement à la sortie du contacteur, comme pour le cas de la colonne de jet, du contacteur à disque rotatif (RDC), à plateaux pulsés, Kühni et la colonne d'Oldshue-Rushton. Dans tels équipements, le modèle de bilan de population est habituellement formulé comme étant une loi de conservation en termes de concentrations volumiques [16, 27-29]. Le modèle différentiel résultant tient compte du transport de gouttes, des ruptures et coalescences des

gouttes, avec des conditions aux limites nécessaires. Cependant ces dernières ne sont pas clairement énoncées dans la littérature. Une revue assez complète de modélisation mathématique de ces colonnes d'extraction liquide-liquide, ainsi que les avantages et inconvénients des modèles correspondants, est rapportée dans [30].

Globalement, l'application de l'approche de bilan de populations fournit des informations assez utiles pour toute modélisation incluant les phénomènes de rupture et de coalescence ainsi que les lois de transport de gouttes. Cependant, le développement des programmes de recherche visant à déterminer expérimentalement les cinétiques de rupture et de coalescence des gouttes ainsi que le transport des gouttes uniques ou par groupes, a grandement contribué à l'élaboration de modèles plus réalistes, grâce à la disponibilité de ces paramètres cinétiques et de lois de transport, comme démontré dans les travaux présentés dans [24, 25, 31- 38].

Cependant, le niveau de développement des modèles acquis a induit des complexités mathématiques qui exigent ainsi un coût informatique assez élevé, du fait qu'aucune solution analytique n'est facile à obtenir pour l'équation de bilan de population générale. En conséquence, une solution numérique est nécessaire pour une simulation des processus de la phase dispersés assez précise. Depuis deux décennies plusieurs travaux ont été publiés, concernant seulement la solution numérique de nombreux cas particuliers, comme illustré dans [22, 27, 28, 39-77].

En dépit de toute cette recherche intensive, aucune approche numérique générale n'existe jusqu'à présent et qui est applicable systématiquement à l'équation de bilan de population quand les distributions à plusieurs variables tels que la taille, la concentration et l'âge des gouttes, connus comme étant des coordonnées internes, interviennent [11]. Une telle distribution multi variables dans les dispersions liquide-liquide, est rapportée dans [78, 79]. Cependant, le problème devient plus compliqué quand des coordonnées externes formées par la phase continue, interviennent, comme dans le cas des modèles différentiels de bilan de population. Cet ensemble de coordonnées indépendantes est souvent mentionné dans la littérature de l'équation de bilan de population comme étant l'espace de phase de gouttes (particule).

Une approche assez courante pour réduire la dimension de bilan de population est de faire la moyenne, par rapport à la coordonnée interne choisie, utilisant la méthode des moments décrite dans [67, 68, 80] et qui est considérée comme très attractive et facilement programmable, particulièrement pour le calcul des propriétés spécifiques moyennes de la population. Malheureusement, la méthode des moments n'est pas exempte de problèmes inhérents dus à la

fermeture et à la complexité de reconstruction de la distribution [67]. Par conséquent d'autres méthodes sont nécessaires, comme le montre les sections suivantes.

1.2. Revue des méthodes numériques disponibles

Généralement, les méthodes numériques utilisées pour la solution de l'équation de bilan de population, sont groupées en trois catégories: méthodes stochastiques, d'ordre élevé et d'ordre zéro, qui sont décrites comme suit :

1.2.1. Méthodes stochastiques

Les approches stochastiques, à la différence des méthodes des différences finies, sont des techniques conçues pour la simulation du comportement du système par la génération des nombres aléatoires utilisés pour l'identification des fonctions de probabilité, régissant un tel comportement [82].

Cette approche stochastique de simulation a l'avantage d'être capable de simuler l'équation de bilan de population multi variables, en ce qui concerne la coordonnée interne quand les autres méthodes numériques deviennent extrêmement coûteuses. La présentation d'algorithmes actuellement utilisés pour la simulation stochastique de l'équation de bilan de population dans les réacteurs continus agités ainsi que de la simulation directe et les algorithmes d'écoulement de la masse, est donnée dans [77].

1.2.2. Méthodes d'ordre élevé

La plupart des méthodes à ordre élevé essaient d'approximer la fonction de distribution par un ensemble de fonctions linéairement indépendantes d'ordre plus grand que zéro, par la méthode d'éléments finis. Dans [40], l'équation de bilan de population pour la coalescence de gouttes dans un réacteur continu agité a été résolue, utilisant la collocation orthogonale en éléments finis avec des polynômes cubiques, avec une définition logarithmique du diamètre de gouttes.

Dans [60], les auteurs ont résolu l'équation de bilan de population pour le réacteur continu agité en régime permanent en utilisant le couplage entre les méthodes de Galerkin et de collocation orthogonales en éléments finis avec des polynômes cubiques. En dépit de leur exactitude, l'inconvénient principal de ces méthodes est le calcul excessif imposé pour l'évaluation des intégrales doubles. Cette particularité a lieu quand les fonctions de rupture et de

coalescence sont dépendantes d'une certaine propriété de l'intégrale liée à la population telle que le hold-up de la phase dispersée qui dépend du temps.

Dans [70], cette question a été abordée, en plus des difficultés liées aux singularités de la fonction à intégrer où des suggestions sont présentées pour lever ces dernières pour des fréquences spécifiques de coalescence.

Dans [66], l'équation de bilan de population a été résolue pour le processus de cristallisation, en utilisant la méthode de Galerkin en éléments finis, qui est adaptée pour les tailles des gouttes et l'ordre élevé.

L'inconvénient principal de cette méthode est la difficulté pour découpler le temps où les fréquences des phénomènes de coalescence et de rupture dépendent des variables elles mêmes dépendantes du temps, et par conséquent le coût en terme de temps de calcul informatique devient excessivement important, particulièrement quand plus d'une coordonnée dans l'équation de bilan de population est impliquée. Un examen étendu de ces méthodes a été rapporté dans [81, 82].

1.2.3. Méthodes d'ordre zéro

Les méthodes d'ordre zéro comme rapporté dans [83] sont celles concernées par une représentation de la distribution de population, après division de la taille de gouttes en un nombre fini de classes, par une valeur constante (polynôme d'ordre zéro) dans chaque classe. De cette façon l'équation originale intégral- différentielle partielle est transformée en système d'équations aux dérivées ordinaires pour lesquelles la solution numérique est bien établie.

Enfin, ce chapitre a été une opportunité pour consulter un nombre assez important de travaux ayant un lien avec le thème de ce travail, comme le montre le paragraphe suivant. Ceci a permis de bien préciser et raffiner l'axe considéré.

1.2.4. Références citées dans le chapitre I

- [11] Hulbert, H., & Katz, S. (1964). Some problems in particle technology. A statistical mechanical formulation. *Chem. Eng. Sci.*, 19, 555-574.
- [12] Valentas, K. J., & Amundson, A. R. (1966). Breakage and coalescence in dispersed phase systems. *Ind.Eng. Chem. Fundam.*, 5, 533-542.
- [13] Motz, S., Mitrovic, A., & Gilles, E.-D. (2002). Comparison of numerical methods for the simulation of dispersed phase systems. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 4329-4344.
- [14] Puel, F., Fevotte, G., & Klein, J. P. (2003). Simulation and analysis of industrial crystallization processes through multidimensional population balance equations. Part 1: a resolution algorithm based on the method of classes. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 3715-3727.
- [15] Campos, F. B., & Lage, P. L. C. (2003). A numerical method for solving the transient multidimensional population balance equation using Euler-Lagrange formulation. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 2725-2744.
- [16] Modes, G., Bart, H.-J., Rodrigue-Perancho, D., & Broder, D. (1999). Simulation of the fluid dynamics of solvent extraction columns from single droplet parameters. *Chem. Eng. Tech.*, 22, 231-236.
- [17] Gerstlauer, A., (1999): Herleitung und Reduktion populationsdynamischer Modelle am Beispiel der Flüssig-Flüssig-Extraktion. Fortschritt-Berichte VDI Reihe, 3, 612.
- [18] Coualoglou, C. A. , & Tavlarides, L. L. (1977). Description of interaction processes in agitated liquidliquid dispersions. *Chem. Eng. Sci.*, 32, 1289-1297.
- [19] Chatzi, E. , & Lee, J. M. (1987). Analysis of interactions for liquid-liquid dispersions in agitated vessels. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 26, 2263-2267.

- [20] Alatiqi, I., Aly, G., Mjalli, F., & Mumford, C. J. (1995). Mathematical modeling and steady-state analysis of a Scheibel extraction column. *Can. J. Chem. Eng.*, 73, 523-533.
- [21] Weinstein, O., Semiat, R., & Lewin, D. R. (1998). Modeling, simulation and control of liquid-liquid extraction columns. *Chem. Eng. Sci.*, 53, 325-339.
- [22] Al Khani, S. D., Gourdon, C., & Casamatta, G. (1988). Simulation of hydrodynamics and mass transfer of disks and rings pulsed column. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 27, 329-333.
- [23] Tsouris, C., Kirou, V. I., & Tavlarides, L. L. (1994). Drop size distribution and hold-up profiles in a multistage extraction column. *AIChE J.*, 40, 407-418.
- [24] Alopaeus, V., Koskinen, J., Keskinen, K. I., & Majander, J. (2002). Simulation of the population balances for liquid-liquid systems in a non ideal stirred tank: Part 2- parameter fitting and the use of multiblockmodel for dense dispersions. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 1815-1825.
- [25] Kentish, S. E., Stevens, G. W., & Pratt, H. R. C. (1998). Estimation of coalescence and breakage rate constants within a Kühni column. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 37, 1099-1106.
- [26] Steiner, L., Bamelli, M., & Hartland, S. (1999). Simulation of hydrodynamic performance of stirred extraction column. *AIChE J.*, 45, 257-267.
- [27] Casamatta, G., & Vogelpohl, A. (1985). Modelling of fluid dynamics and mass transfer in extraction columns. *Ger. Chem. Eng.*, 8, 96-103.
- [28] Al Khani, S. D., Gourdon, C., & Casamatta, G. (1989). Dynamic and steady-state simulation of hydrodynamics and mass transfer in liquid-liquid extraction column. *Chem. Eng. Sci.*, 44, 1295-1305.
- [29] Cabassud, M., Gourdon, C., & Casamatta, G. (1990). Single drop break-up in a Kühni column. *Chem.Engng. J.*, 44, 27-41.

- [30] Mohanty, S. (2000). Modeling of liquid-liquid extraction column: A review. *Rev. Chem. Eng.*, 16, 199-248.
- [31] Cauwenberg, V., Degreve, J., & Slater, M. J. (1997). The interaction of solute transfer, contaminants and drop break-up in rotating disc contactors: Part I. Correlation of drop breakage probabilities. *Can. J. Chem. Eng.*, 75, 1046-1055.
- [32] Colella, D., Vinci, D., Bagatin, R., & Masi, M. (1999). A study on coalescence and breakage mechanisms in three different bubble columns. *Chem. Eng. Sci.*, 54, 4767-4777.
- [33] Modes, G., (2000): Grundsatzliche Studie zur Populationsdynamik einer Extraktionskolonne auf Basis von Einzeltropfenuntersuchungen, Dissertation, Shaker Verlag.
- [34] Biggs, C. A., & Lant, P. A. (2002). Modelling activated sludge flocculation using population balances. *Powder Tech.*, 14, 201-211.
- [35] Bart, H.-J. (2003). Reactive extraction in stirred columns: A review. *Chem. Eng. Tech.*, 26, 723-731.
- [36] Desnoyer, C., Masbernat, O., & Gourdon, C. (2003). Experimental study of drop size distribution at high phase ratio in liquid-liquid dispersions. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 1353-1363.
- [37] Mignard, D., Amin, L., & Ni, X.-D. (2003). Population balance modelling of droplets in an oscillatory baffled reactor- using direct measurements of breakage rates constants. *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, 78, 364-369.
- [38] Schmidt, S., Simon, M., & Bart, H.-J. (2003). Tropfenpopulationsmodellierung-Einfluss von Stoffsystem und technischen Geometrien. *Chemie Ingenieur Technik*, 75, 62-67.
- [39] Gelbard, F. , & Seinfeld, J. H. (1978). Numerical solution of the dynamic equation for particulate systems. *J. Comput. Phys.*, 28, 357-375.

- [40] Gelbard, F., Tambour, Y., & Seinfeld, J. H. (1980). Sectional representation of simulating aerosol dynamics. *J. Colloid & Interface Sci.*, 76, 541-556.
- [41] Sastry, K. V. S. , & Gaschignard, P. (1981). Discretization procedure for the coalescence equation of particulate process. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 20, 355-361.
- [42] Guimaraes, M. M., Cruz-Pinto, J. J. C., Regueiras, P. F. R., & Madureira, C. M. N. (1992). The simulation of interacting liquid-liquid dispersions- A new algorithm and its potentiality. Sekine T.(Ed.), *Solvent extraction 1990*, Part B, p. 1241-1246, Elsevier, Amsterdam .
- [43] Hounslow, M. J. (1990). A discretized population balance for continuous systems at a steady state. *AIChE J.*, 36, 106-116.
- [44] Kronberger, T., Ortner, A., Zulehner, W., & Bart, H.-J. (1994) Numerical determination of drop size distribution in extraction columns. Fasano A. (Ed.), *7th European Conference on Mathematics in Industry*, p. 247-254, B. G. Teubner Stuttgart.
- [45] Hill, P. J. , & Ng, K. M. (1995). New discretization procedure for the breakage equation. *AIChE J.*, 41, 1204-1216.
- [46] Kronberger, T., (1995): Numerische Simulation von Tropfenpopulationen in Extraktionskolonnen, Dissertation, Johannes Kepler Universitat Linz, Linz 1995.
- [47] Ribeiro, L. M., Regueiras, P. F. R., Guimaraes, M. M. L., Madureira, C. M. C., & Cruz-Pintu, J. J. C.(1995). The dynamic behavior of liquid-liquid agitated dispersions-I. The hydrodynamics. *Comput.Chem. Eng.*, 19, 333-343.
- [48] Zimmermann, A., Joulia, X., Gourdon, C., & Gorak, A. (1995). Maxwell-Stefan approach in extractor design. *Chem. Eng. J.*, 57, 229-236.
- [49] Hill, P. J., & Ng, K. M. (1996). New discretization procedure for the agglomeration equation. *AIChE J.*, 42, 727-741.

- [50] Kumar, S., & Ramkrishna, D. (1996a). On the solution of population balance equations by discretization-I. A fixed-pivot technique. *Chem. Eng. Sci.*, 51, 1311-1332.
- [51] Kumar, S., & Ramkrishna, D. (1996b). On the solution of population balance equations by discretization-II. A moving pivot technique. *Chem. Eng. Sci.*, 51, 1333-1342.
- [52] van Peborgh Gooch, J. R. , & Hounslow, M. J. (1996). Monte Carlo simulation of size-enlargement mechanics in crystallization. *AIChE J.*, 42, 1864-1874.
- [53] Zamponi, G., Stichlmair, J., Gerstlauer, A., & Gilles, E.-D. (1996). Simulation of the transient behaviour of a stirred liquid/liquid extraction column. *Comput. Chem. Eng.*, 20, S963-S968.
- [54] Kumar, S., & Ramkrishna, D. (1997). On the solution of population balance equations by discretization-III. Nucleation, growth and aggregation of particles. *Chem. Eng. Sci.*, 52, 4659-4679.
- [55] Hill, P. J. , & Ng, K. M. (1997). Simulation of solids processes accounting for particle -size distribution. *AIChE J.*, 43, 715-726.
- [56] Liou, J.-J., Sreenc, F., & Fredrickson, A. G. (1997). Solutions of population balance models based on a successive generations approach. *Chem. Eng. Sci.*, 52, 1529-1540.
- [57] Ribeiro, L. M., Regueiras, P. F. R., Guimaraes, M. M. L., Madureira, C. M. N., & Cruz-Pinto, J. J. C. (1997). The dynamic behavior of liquid-liquid agitated dispersions II. Coupled hydrodynamics and mass transfer. *Comput. Chem. Eng.*, 21, 543-558.
- [58] Song, M., Steif, A., & Weinspach, P.-M. (1997). A very effective method to solve the population balance equation with particle size growth. *Comput. Chem. Eng.*, 52, 3493-3498.

- [59] Nicmanis, M., & Hounslow, M. J. (1998). Finite-element methods for steady-state population balance equations. *AIChE J.*, 44, 2258-2272.
- [60] Toutain, J., Lann, J. M. L., Gourdon, C., & Joulia, X. (1998). Maxwell-Stefan approach coupled drop population model for the dynamic simulation of liquid-liquid extraction pulsed column. *Comput. Chem. Engng.*, 22, S379-S386.
- [61] Vanni, M. (1999). Discretization procedure for the breakage equation. *AIChE J.*, 45, 916-919.
- [62] Bennett, M. K. , & Rohani, S. (2001). Solution of population balance equations with a new combined Lax-Wendroff/ Crank-Nicholson method. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 6623-6633.
- [63] Liu, Y., & Cameron, T. (2001). A new wavelet-based method for the solution of the population balance equation. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 5283-5294.
- [64] Vanni, M. (2000). Approximate population balances equations for aggregation-breakage processes. *J.Coll. Int. Sci.*, 221, 143-160.
- [65] Lee, G., Yoon, E. S., Lim, Y. I., Le Lann, J. M., Meyer, X. M., & Joulia, X. (2001). Adaptive mesh method for the simulation of crystallization processes including agglomeration and breakage: the potassium sulfate system. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 40, 6228-6235.
- [66] Wulkow, M., Gerstlauer, A., & Nieken, U. (2001). Modeling and simulation of crystallization process using parsival. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 2575-2588.
- [67] Diemer, R. B. , & Olson, J. H. (2002a). A moment methodology for coagulation and breakage problems: Part 1- analytical solution of the steady-state population balance. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 2193-2209.

- [68] Diemer, R. B., & Olson, J. H. (2002b). A moment methodology for the coagulation and breakage problems: Part 2-moment models and distribution reconstruction. *Chem. Eng. Sci.*, **57**, 2211-2228.
- [69] Lim, Y. I., Le Lann, J. M., Meyer, X. M., Joulia, X., Lee, G., & Yoon, E. S. (2002). On the solution of population balance equations (PBE) with accurate front tracking methods in practical crystallization processes. *Chem. Eng. Sci.*, **57**, 3715-3732.
- [70] Mahoney, A. W. , & Ramkrishna, D. (2002). Efficient solution of population balances equations with discontinuities by finite elements. *Chem. Eng. Sci.*, **57**, 1107-1119.
- [71] Motz, S., Mitrovic, A., & Gilles, E.-D. (2002). Comparison of numerical methods for the simulation of dispersed phase systems. *Chem. Eng. Sci.*, **57**, 4329-4344.
- [72] Verkoefen, D., Pauw, G. A., Meesters, G. M. H., & Scarlett, B. (2002). Population balances for particulate processes- a volume approach. *Chem. Eng. Sci.*, **57**, 2287-2303.
- [73] Attarakih, M. M., Bart, H. J., & Faqir, N. M. (2003a). Optimal moving and fixed grids for the solution of discretized population balances in batch and continuous systems: droplet breakage. *Chem. Eng. Sci.*, **58**, 1251-1269.
- [74] Attarakih, M. M., Bart, H.-J., & Faqir, N. M. (2003b). Solution of the population balance equation for liquid-liquid extraction columns using a generalized fixed-pivot and central difference schemes.
- [75] Kraslawski, A. & Turunen, I. (Ed.), *European symposium on computer aided process engineering-13*, Computer-aided chemical engineering 14 (pp. 557-562). Elsevier, Amsterdam.
- [76] Campos, F. B. , & Lage, P. L. C. (2003). A numerical method for solving the transient multidimensional population balance equation using Euler-Lagrange formulation. *Chem. Eng. Sci.*, **58**, 2725-2744.

[77] Goodson, M. , & Kraft, M., (2003): Stochastic simulation of coalescence and breakage processes: a practical study. Preprint No. 9, pp. 1-30. Cambridge center for computational chemical engineering, Cambridge.

[78] Ribeiro, L. M., Regueiras, P. F. R., Guimaraes, M. M. L., Madureira, C. M. C., & Cruz-Pintu, J. J. C. (1995). The dynamic behavior of liquid-liquid agitated dispersions-I. The hydrodynamics. *Comput.Chem. Eng.*, 19, 333-343.

[79] Gerstlauer, A., (1999): Herleitung und Reduktion populationsdynamischer Modelle am Beispiel der Fluessig-Fluessig-Extraktion. Fortschritt-Berichte VDI Reihe, 3, 612.

[80] Randolph, A. D. , & Larson, M. A. (1988). *Theory of particulate process*. 2nd Ed. San Diego: Academic Press.

[81] Ramkrishna, D. (2000). *Population balances: Theory and applications to particulate systems in engineering*. San Diego: Academic Press.

[82] Ramkrishna, D. (1985). The status of population balances. *Rev. Chem. Eng.*, 5, 49-95.

[83] Kostoglou, M. , & Karabelas, A. J. (1994). Evaluation of zero order methods for simulating particle coagulation. *J. Colloid Interface Sci.*, 163, 420-431.

CHAPITRE II

MODELISATION DES COLONNES D'EXTRACTION LIQUIDE-LIQUIDE

2.1. Introduction

Le fonctionnement des contacteurs diphasiques est caractérisé par deux aspects fondamentaux : l'hydrodynamique et le transfert de matière. Par conséquent une modélisation fiable doit essayer d'incorporer ces deux aspects dans le modèle. Cependant, seul l'hydrodynamique a fait l'objet de ce travail, du fait qu'elle est déjà assez complexe, surtout quand les processus de transport, de rupture et de coalescence, sont considérés.

Généralement, dans le cas des opérations liquide-liquide à contre-courant, la modélisation de l'hydrodynamique part initialement d'une vision très simplifiée, selon laquelle la phase dispersée est considérée comme une pseudo-phase continue [84]. Puis, l'introduction d'un coefficient de dispersion axiale a apporté une amélioration dans la description des écoulements et du transfert de matière, même si celui-ci s'est avéré finalement plus approprié à la phase continue qu'à la phase dispersée [85]. Une extension importante de ces modèles fut de considérer la phase dispersée comme une population polydispersée de gouttes, afin de prendre en compte les paramètres qui peuvent sérieusement affecter les performances d'un contacteur [86]. Mais ce type de modèle a fourni des résultats intéressants uniquement pour des profils de rétention plus ou moins constants, ce qui n'est pas toujours garanti pour les régimes de fonctionnement des colonnes industrielles.

Comme discuté dans le chapitre précédent, l'apparition des bilans de population qui tiennent compte explicitement des phénomènes fondamentaux de rupture et de coalescence des gouttes, a constitué un véritable progrès dans la description du fonctionnement des contacteurs diphasiques. Une contribution remarquable a été rapportée dans [87] où un

modèle a été développé, permettant de simuler le fonctionnement des colonnes d'extraction liquide-liquide pour des conditions opératoires pouvant aller jusqu'à l'engorgement. Cette approche est encore reprise dans ce travail dans le développement du modèle et où à priori des constantes nécessaires, sont déterminées pour le processus de coalescence.

2.2. Modélisation d'un contacteur diphasique

2.2.1. Généralités

Le fonctionnement d'une colonne d'extraction liquide-liquide mécaniquement agitée est principalement caractérisé par l'hydrodynamique et le transfert de matière. La Figure 2.1 montre une représentation schématique d'une telle colonne d'extraction. Globalement, celle-ci peut être divisée en trois parties bien distinctes : la partie active où les phases sont mises en contact, et les deux zones de décantation, en haut et en bas de la colonne, où les phases se séparent. Le niveau de l'interface au niveau du décanteur supérieur est maintenu constant par ajustement du débit de soutirage Q^s .

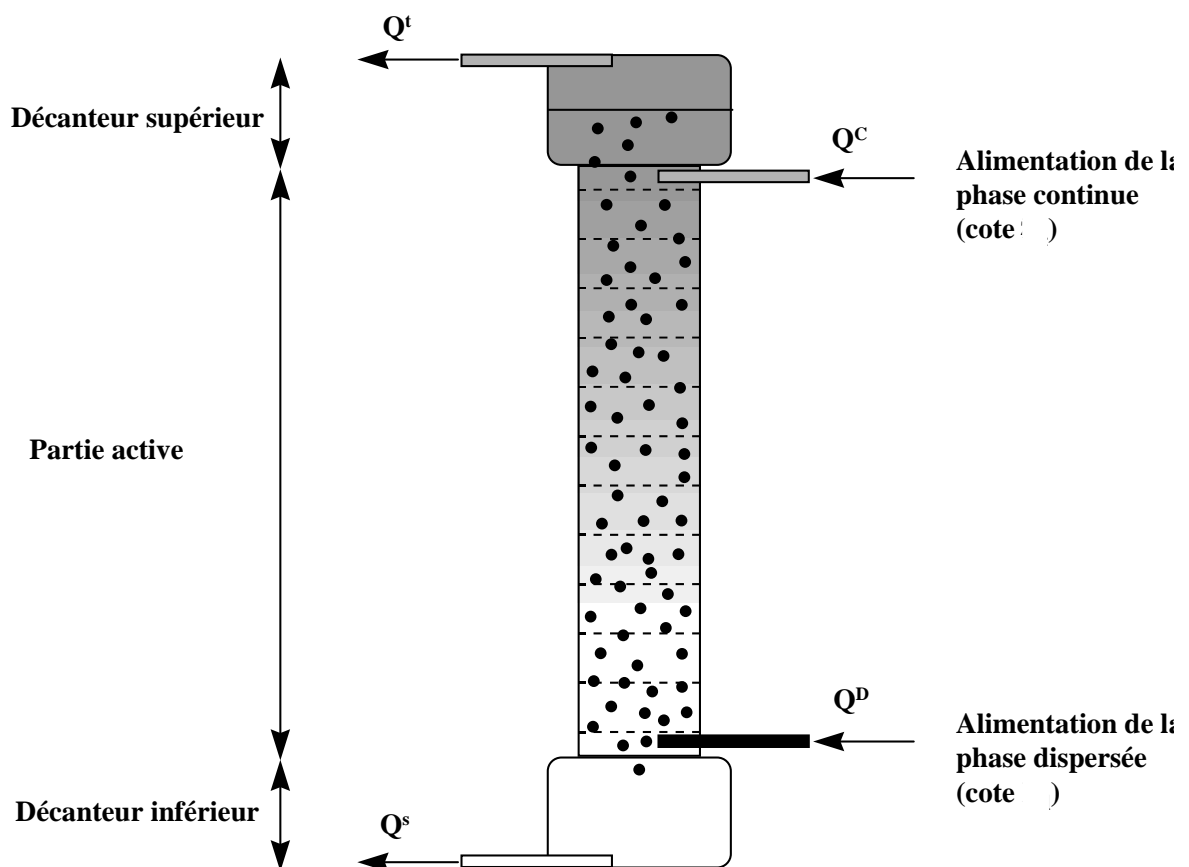


Figure 2.1. Schéma général d'une colonne d'extraction liquide-liquide à contre-courant

Généralement, dans les colonnes pilotes de laboratoire ou industrielles, c'est la phase légère qui est dispersée. Ceci a été maintenu dans la modélisation effectuée dans ce travail où l'origine des cotes est placée au pied de la colonne et l'axe correspondant est orienté vers le haut. Ainsi, il est admis que le courant de la phase légère en tête ne contient aucune trace de la phase lourde, contrairement au soutirage en pied de colonne qui peut contenir une fraction entraînée de la phase légère. Dans le cas où la phase lourde est la phase dispersée, la méthodologie à suivre reste identique, seulement il suffit juste de fixer l'origine des cotes z en tête de colonne et d'orienter l'axe vers le bas. On admet, dans ce cas, que le courant de la phase légère en tête peut contenir une fraction entraînée de la phase lourde, alors que le soutirage en pied ne contient aucune trace de la phase légère.

2.2.2. Développement du modèle continu

Le caractère poly dispersé de l'une des phases est représenté par une loi de distribution de volume, notée $P(z, d, t)$. L'intégration de cette distribution sur l'ensemble des tailles présentes conduit à la fraction de volume de colonne occupée par la phase dispersée à une cote z dans la colonne au temps t , c'est-à-dire la rétention $\phi(z, t)$, d'où :

$$\phi(z, t) = \int_0^{d_{\max}} P(z, d, t) \delta d \quad (2.1)$$

d_{\max} représentant le diamètre maximal de goutte, observé dans la colonne.

Le développement du modèle est basé sur les équations qui résultent d'un bilan volumique autour d'un volume élémentaire dans le corps de la colonne et qui font intervenir quatre contributions : les entrées, les sorties, le terme de production et enfin le terme d'accumulation.

2.2.2a. Bilan sur la phase dispersée

Le bilan fait intervenir différents termes, comme montré par la figure 2.2 suivante :

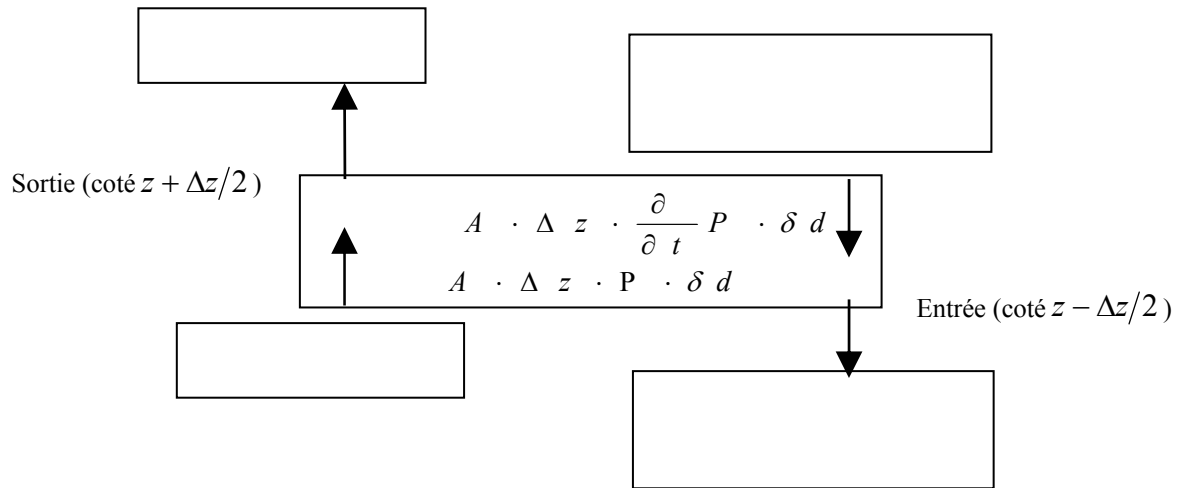


Figure 2.2. Bilan sur un volume de référence $A \cdot \Delta z$ pour la phase dispersée

Il est supposé dans ce qui suit une phase dispersée ascendante (phase légère). Ainsi, pour des gouttes de tailles $d \pm \delta d/2$, pour un volume défini entre $z + \Delta z/2$ et $z - \Delta z/2$ les différents termes intervenant dans le bilan sont comme suit:

- Entrée (E):

$$[A \cdot P \cdot \delta d \cdot v_d]_{z - \Delta z/2} - \left[A \cdot D_d \cdot \frac{\partial}{\partial z} [P \cdot \delta d] \right]_{z - \Delta z/2}$$

- Sortie (S):

$$[A \cdot P \cdot \delta d \cdot v_d]_{z + \Delta z/2} - \left[A \cdot D_d \cdot \frac{\partial}{\partial z} [P \cdot \delta d] \right]_{z + \Delta z/2}$$

- Production (G):

$$A \cdot \Delta z \cdot P_v \cdot \delta d$$

- Accumulation (A):

$$A \cdot \Delta z \cdot \left[\frac{\partial}{\partial t} [P \cdot \delta d] \right]$$

en écrivant que, $E - S + G = A$, et par passage à la limite, $\Delta z \rightarrow 0$, le bilan volumique sur la phase dispersée pour des gouttes de tailles $d \pm \delta d/2$ conduit donc à l'équation suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t} P(t, z, d) + \frac{\partial}{\partial z} (v_d(t, z, d, \varphi) P(t, z, d)) = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{ax} \frac{\partial}{\partial z} P(t, z, d) \right) \quad (2.2)$$

$$+ \frac{Q_d}{A} p_{in}(d) \delta(z - z_d) + P_V(t, z, d)$$

Les termes transitoire et convectif compensent le terme de rétro mélange (Back mixing) caractérisé par le coefficient de dispersion D_{az} . L'alimentation en phase dispersée étant alors une source ponctuelle décrite par la fonction delta (δ) de Dirac. Les processus de rupture et de coalescence des gouttes sont pris en considération dans le terme P_V , qui est donné par :

$$P_V(t, z, d) = \int_0^{d_{max}} \beta(d_0, d) g(t, z, d_0) P(t, z, d_0) \partial d_0 - g(t, z, d) P(t, z, d) + \frac{V(d)}{2} \int_0^{\sqrt[3]{2}} \omega(d_1, d_2) \frac{P(t, z, d_1)}{V(d_1)} \frac{P(t, z, d_2)}{V(d_2)} \left(\frac{d}{d_2}\right)^2 \partial d_1 - P(t, z, d) \int_0^{\sqrt[3]{d_{max}^3 - d^3}} \omega(d_1, d_2) \frac{P(t, z, d_1)}{V(d_1)} \partial d_1 \quad (2.3)$$

La première intégrale explique le gain et la perte dus à la rupture de gouttelette mère d_0 selon la distribution de gouttelettes filles β . La deuxième intégrale traduit la même chose en incluant le paramètre de taux de coalescence ω .

2.2.2b. Bilan sur la phase continue

Pour cette phase, les différents termes qui interviennent dans le bilan sont montrés sur la figure 2.3 suivante :

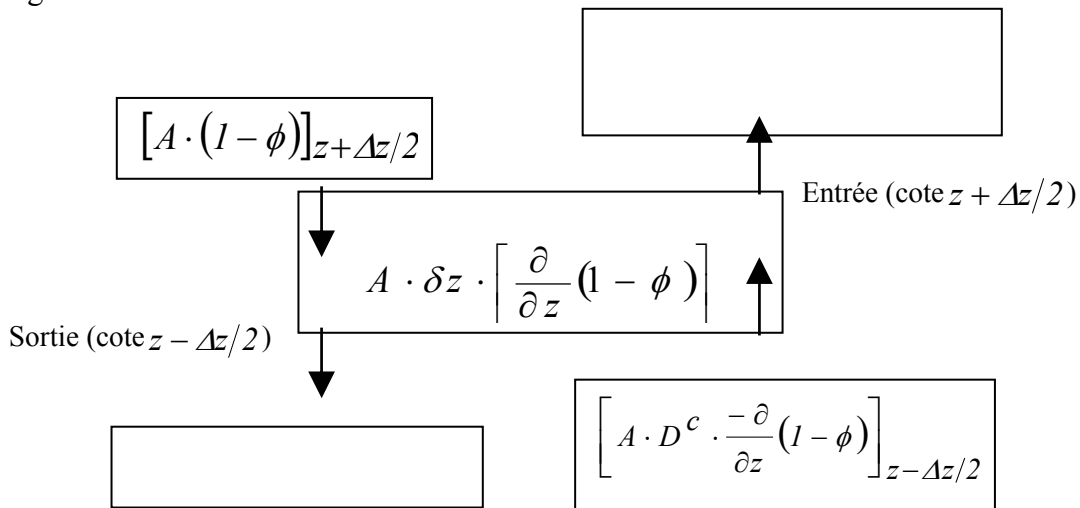


Figure 2.3. Bilan sur un volume de référence $A \cdot \Delta z$ pour la phase continue

Pour ce système, le sens de l'écoulement est opposé à celui de la phase dispersée, et il est nécessaire de tenir compte de ce facteur pour les termes dispersifs. Ainsi, pour un volume défini entre $z + \Delta z/2$ et $z - \Delta z/2$, l'établissement du bilan conduit aux termes suivants :

- Entrée :

$$\left[A \cdot (1 - \phi) \cdot v_c \right]_{z+\Delta z/2} - \left[A \cdot D_c \cdot \frac{\partial}{\partial z} [(1 - \phi)] \right]_{z+\Delta z/2}$$

- Sortie :

$$\left[A \cdot (1 - \phi) \cdot v_c \right]_{z-\Delta z/2} - \left[A \cdot D_c \cdot \frac{\partial}{\partial z} [(1 - \phi)] \right]_{z-\Delta z/2}$$

- Accumulation :

$$A \cdot \Delta z \cdot \left[\frac{\partial}{\partial t} [(1 - \phi)] \right]$$

Comme précédemment, par passage à la limite, $\Delta z \rightarrow 0$, le bilan volumique sur la phase continue conduit à l'équation différentielle suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [(1 - \phi(t, z))] + \frac{\partial}{\partial z} [(1 - \phi(t, z)) \cdot v_c(t, z)] &= \frac{\partial}{\partial z} \left[D_c(z) \cdot \frac{\partial}{\partial z} [(1 - \phi(t, z))] \right] \\ &+ \frac{Q_c}{A} \delta(z - z_c) \end{aligned} \quad (2.4)$$

Les conditions limites que les équations différentielles 2.2 et 2.4 doivent vérifier, ainsi que les hypothèses sur la continuité des grandeurs intervenant dans le bilan sont présentées dans la section suivante.

2.2.2c. Les conditions aux limites et initiales

Les équations différentielles établies ci-dessus permettent une description physique du contacteur. A ces équations différentielles sont associées des conditions aux limites qui sont définies pour quatre zones particulières de la colonne : les deux étages d'alimentations (pour la phase continue et la phase dispersée), l'étage de pied et l'étage de tête et qui sont exprimées comme suit :

- Pour la phase dispersée :

$$\frac{\partial}{\partial t} P + \frac{\partial}{\partial z} (v_d P) = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_d \frac{\partial}{\partial z} P \right) + S \quad (2.5)$$

Avec le terme source $S = S_F + S_B + S_C$

Pour tout $t > 0$ et $d \in [0, d_{\max}]$

- Condition en pied de la colonne (cote 0):

$$z = 0 \quad v_d^+ P - D_d \frac{\partial P}{\partial z} = 0 \quad \text{avec} \quad v_d^+ = \max(v_d, 0) \quad (2.6a)$$

- Condition en tête de la colonne (cote H) :

$$z = H \quad D_d \frac{\partial P}{\partial z} = 0 \quad (2.6b)$$

- La condition initiale:

$$\text{A } t = 0 \quad P(0, z, d) = P^0(z, d) \quad \text{pour } z \in [0, H], d \in [0, d_{\max}] \quad (2.6c)$$

Dans ce cas nous considérons au départ que la colonne ne contient que la phase continue d'où $P^0(z, d) = 0$

- Condition à l'alimentation de la phase dispersée :

$$S_F(z, d) = \frac{Q_d}{A} P_F(d) \delta(z - z_d) \quad \text{avec} \quad \int_0^{d_{\max}} P_F(d) \delta d = 1 \quad (2.6d)$$

- Pour la phase continue :

$$\text{Posons : } \phi(t, z) + \theta(t, z) = 1$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \theta + \frac{\partial}{\partial z} (v_c \theta) = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_c(z) \cdot \frac{\partial}{\partial z} \theta \right) + \frac{Q_c}{A} \delta(z - z_c) \quad (2.7)$$

Les conditions initiale et aux limites sont comme suit :

$$t = 0 \quad \theta(0, z) = \theta^0(z) \quad \text{pour } z \in [0, H] \quad (2.8a)$$

$$z = H \quad v_c \theta - D_c \frac{\partial \theta}{\partial z} = 0 \quad \text{pour } t > 0 \quad (2.8b)$$

$$z = 0 \quad D_c \frac{\partial \theta}{\partial z} = 0 \quad \text{pour } t > 0 \quad (2.8c)$$

Dans l'équation (2.5) :

$$\phi(t, z) = \int_0^{d_{\max}} P(t, z, d) \delta d \quad (2.9a)$$

$$v_d(t, z, d, \phi) = v_r (1 - \phi) - \frac{v_{c, \text{sup}}}{1 - \phi(t, z)} \quad (2.9b)$$

$$\text{avec } v_{c,\text{sup}} = \frac{Q_c}{A}$$

De plus à la formulation initialement adoptée dans [87], ces équations sont écrites en terme de bilan volumique, complété par un terme d'alimentation en solvant qui est représenté comme une source ponctuelle décrite par la fonction delta (δ) de Dirac. L'alimentation de la phase dispersée se fait avec une distribution en taille qui simule l'existence d'un distributeur.

Chacune de ces équations comprend une contribution dispersive, représentant le mélange axial et une contribution convective. Pour la phase dispersée, cela permet ainsi de tenir compte explicitement d'une part, du mélange en avant dû à la différence des vitesses de déplacement des gouttes de différentes tailles et d'autre part, du mélange en retour lié à l'agitation du milieu.

Les phénomènes de rupture et de coalescence des gouttes sont pris en compte dans le terme P_V appelé terme de génération ou de production d'aire d'échange.

L'établissement des équations du modèle mathématique détaillé nécessite une discrétisation spatiale du contacteur diphasique, par rapport aux diamètres des gouttes et la cote z .

Dans le cadre de cette étude, la méthode des éléments finis au sens de Galerkin pour la discrétisation par rapport aux diamètres des gouttes et celle des volumes finis suivant la cote z , ont été adoptées.

Nous ne traiterons dans cette étude que le cas de contacteurs où une phase dispersée sous forme de gouttes circule à contre courant de la phase continue, surtout pour l'aspect hydrodynamique qui ne concerne que la première (dispersée).

Il faut noter que le modèle présenté se situe dans la continuité de travaux initiés il y a une vingtaine d'années dans les équipes d'Extraction par Solvant [87, 88] et la contribution remarquable rapportée dans [46]. L'accent a été mis sur l'établissement d'un système d'équations intégro-différentiel qui tiennent compte des phénomènes fondamentaux propres au fonctionnement des colonnes d'extraction liquide-liquide.

Cependant, sur le plan de l'hydrodynamique, le caractère polydispersé de la phase dispersée est pleinement représenté. L'introduction d'un coefficient de dispersion axiale permet en outre d'étendre le champ d'application à des colonnes dont les écoulements sont caractérisés par de forts débits de retour. Les mécanismes fondamentaux de rupture et de coalescence, sont groupés dans un terme de production d'aire d'échange et sont explicitement pris en compte.

2.2.3. Modélisation de l'hydrodynamique

Pour la simulation des colonnes d'extraction liquide-liquide, la modélisation de l'hydrodynamique est essentielle. Différentes lois, plus ou moins empiriques, qui permettent de décrire le comportement de chacune des phases, sont présentées. Pour la phase continue, la représentation repose sur l'évaluation du coefficient de dispersion axiale. Par contre, les phénomènes relatifs à la phase dispersée sont à la fois plus nombreux et plus complexes.

La prédiction de la distribution des tailles des gouttes est un élément clé, qui détermine entièrement la rétention (hold-up), le temps de séjour moyen ainsi que le comportement à l'engorgement. De plus, elle est intimement liée à la description du transfert de matière entre les phases puisqu'elle conditionne l'aire interfaciale et joue donc un rôle prépondérant sur la cinétique de transfert. Inversement, le sens et l'intensité du transfert peuvent affecter considérablement le comportement de la population de gouttes, ce qui peut se traduire par une diminution non négligeable de l'efficacité globale de la colonne.

2.2.3a. Les paramètres hydrodynamiques

- Vitesse des gouttes : Comme mentionné auparavant, l'établissement de notre modèle fait intervenir une relation cinématique entre les vitesses absolues de chaque phase où apparaît un terme représentant une vitesse de glissement. Celui-ci est généralement dérivé de la vitesse limite d'ascension d'une goutte unique dans un milieu infini stagnant. Cette vitesse est fonction de la taille des gouttes et des propriétés physico-chimiques du système. Mais, dans une colonne agitée munie d'un garnissage, la trajectoire d'une goutte n'est pas rectiligne et peut être affectée par diverses conditions extérieures (turbulence, recirculation, interactions avec les parois, obstacles ou autres gouttes, etc.).

La vitesse effective résulte alors d'un modèle de vitesse de goutte unique en milieu stagnant U_1 que l'on corrige pour tenir compte de la présence de l'ensemble de la phase dispersée, de l'agitation et de la géométrie de la colonne. La figure 2.4 montre l'évolution de la vitesse d'une goutte unique en milieu stagnant en fonction de son diamètre.

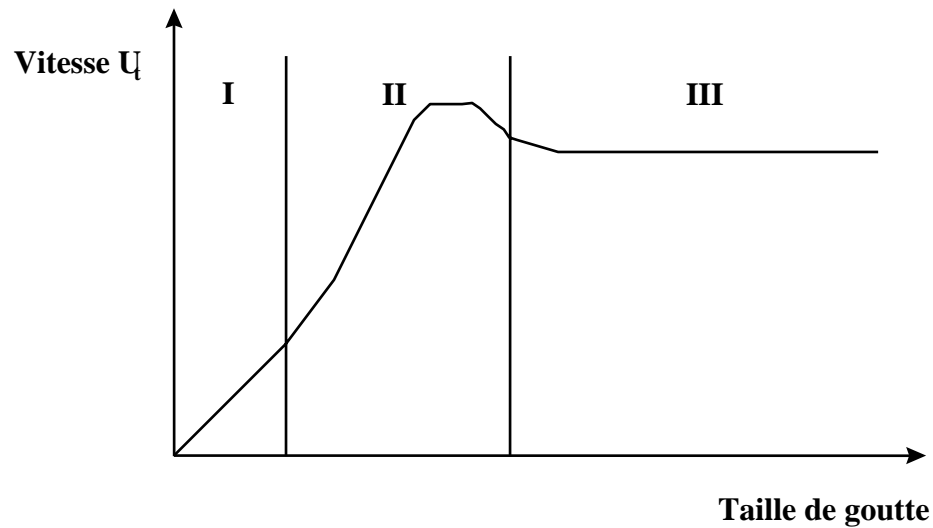


Figure 2.4 . Vitesse d'une goutte unique

Trois différents régimes peuvent être constatés dont les limites ne sont pas toujours clairement définies. Formellement, la vitesse terminale de déplacement est donnée par l'expression suivante :

$$U_t = \left(\frac{4}{3} \cdot g \cdot \frac{\Delta\rho}{\rho_C} \cdot d \right)^{\frac{1}{2}} \cdot c_w^{-\frac{1}{2}} \quad (2.10)$$

Cette relation résulte d'un bilan des forces s'exerçant sur la goutte : équilibre entre force de pesanteur et force de traînée. L'application de ce type de relation requiert la connaissance du coefficient de traînée c_w qui est fonction du nombre de Reynolds, ramené à la goutte comme montré par la figure 2.5 suivante :

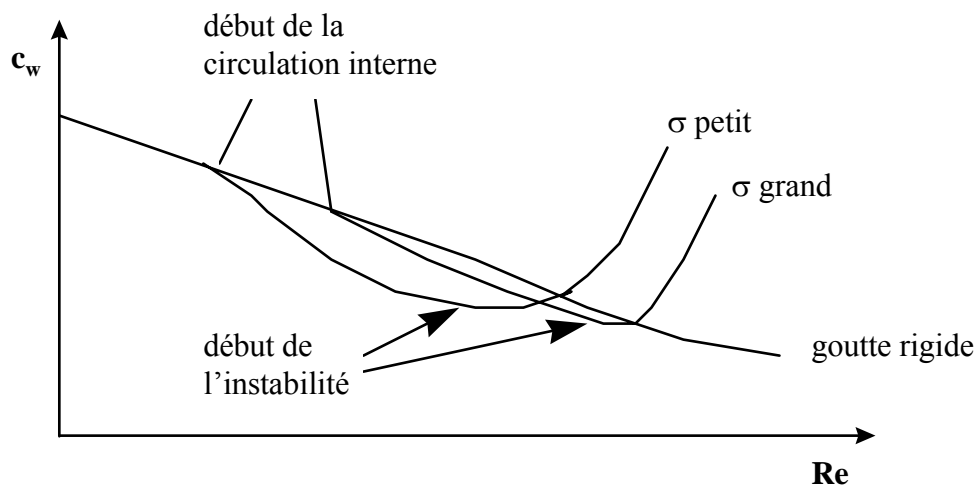


Figure 2.5. Coefficient de traînée d'une goutte unique

Pour le premier régime, les gouttes sont assimilées à des particules solides sphériques. Cette situation correspond à de faibles nombres de Reynolds (écoulements rampants). Pour des valeurs supérieures, un mouvement de surface et une recirculation interne commencent à se développer, dues aux contraintes visqueuses (régime II). La résistance à l'ascension tend donc à diminuer puisque la goutte, tout en restant sphérique, roule quasiment dans la phase qui l'entoure. C'est au régime III que le comportement de la goutte s'écarte brusquement du modèle de la goutte sphérique. Cette différence intervient d'autant plus tôt que la tension interfaciale est faible. A cet instant, la goutte perd sa stabilité de forme et commence à s'aplatir puis finalement à osciller, du fait que la tension interfaciale ne compense plus les forces extérieures auxquelles elle est soumise. La vitesse d'ascension diminue à cause de la perte de forme et finit par atteindre une valeur constante, même pour des diamètres croissant jusqu'à ce que la goutte casse.

La détermination du coefficient de traînée c_w pour les gouttes rigides n'est pas difficile, comparativement au cas des gouttes avec circulation interne. Dans ce travail, le calcul de la vitesse terminale est basé sur une des corrélations rapportées dans [90], selon la valeur du nombre adimensionnel de Morton joue un rôle prépondérant, comme montré en annexe I.

Comme mentionné auparavant, les différents effets qui perturbent la montée d'une goutte isolée, sont surtout provoqués par la présence dans la colonne, du garnissage, des parois, des autres gouttes ou encore d'un système d'agitation.

Pour les colonnes pulsées à plateaux perforés, il a été démontré expérimentalement dans [91] que les effets de la pulsation pouvaient diminuer la vitesse d'une goutte unique d'environ 10%, pour les grands diamètres. Pour ce type de technologie, une autre source de ralentissement est la présence des plateaux perforés qui représentent un obstacle au passage des gouttes. Ce ralentissement est notamment lié à l'intensité d'agitation et au rapport du diamètre des gouttes par rapport à celui des perforations. Dans [90], il a été montré que la diminution engendrée peut atteindre 20% de la valeur de la vitesse, sans garnissage.

Pour les colonnes à disques et couronnes, on observe également de tels phénomènes, mais avec une plus grande ampleur, comme rapporté dans l'étude complète de [91]. Cet auteur a montré que la diminution est, dans ce type de géométrie, beaucoup plus accentuée puisqu'il n'est pas rare d'observer des diminutions de l'ordre de 40% à 50% par rapport à la vitesse sans garnissage. Ce dernier empêcherait la goutte d'avoir une trajectoire rectiligne

(Fig. 2.6). Globalement, le ralentissement augmente avec la taille de la goutte et diminue avec l'intensité d'agitation.

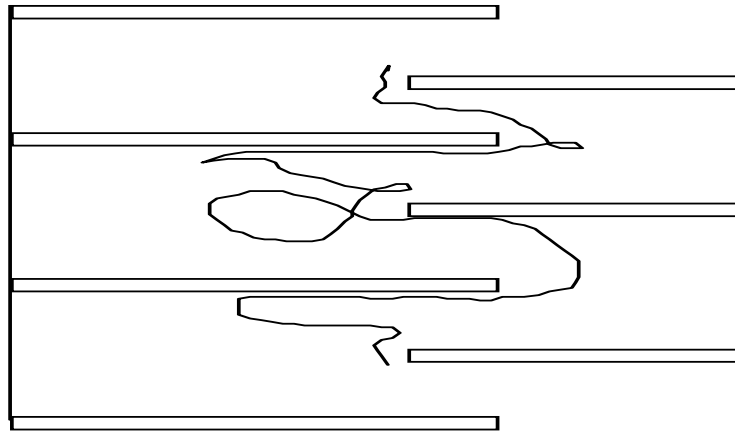


Figure 2.6. Exemple de trajectoire simulée [91]

Dans le cadre de notre modèle, tous ces effets sont groupés dans un coefficient de ralentissement k_V qui permet d'intégrer de façon simple l'ensemble de ces phénomènes. Il en résulte une expression de la vitesse d'une goutte unique dans une colonne :

$$v_r^* = k_V \cdot v_t \quad (2.11)$$

Pour prendre en considération l'influence de la présence d'autres gouttes, il existe des corrélations dont une liste est donnée dans [88]. Dans le cadre de notre étude, nous avons adopté l'expression rapportée dans [92] qui s'est avérée tout à fait satisfaisante pour de nombreux fonctionnements dans diverses colonnes et qui est exprimée comme suit:

$$v_r = v_0(1 - \phi) \quad (2.12)$$

où v_0 est une vitesse caractéristique qui dépend des conditions opératoires, des propriétés physico-chimiques du système et des obstacles dans la colonne. Nous avons identifié cette vitesse à la vitesse d'ascension v_r^* définie dans l'équation 2.11, pour retenir l'expression suivante :

$$v_r = k_V v_T (1 - \phi) \quad (2.13)$$

le terme $(1 - \phi)$ revient à diminuer l'effet de la poussée d'Archimède qui s'exerce sur la goutte.

Le calcul de $k_v(d)$ dépend aussi du type de colonnes comme suit :

- Pour la colonne RDC, une corrélation tirée de la littérature et rapportée dans [93], est proposée et exprimée comme suit :

$$k_v(d) = 1 - 1.037(N^3 D_R^5)^{0.12} - 0.62 \left(\frac{d}{D_S - D_R} \right)^{0.44} \quad (2.14)$$

avec N la vitesse du rotor, D_S et D_R , sont les diamètres du stator et du rotor, respectivement.

- Pour la colonne Kühni, ce terme est [94] :

$$k_v = 1 - (1 - e) \left(\frac{7.18 \cdot 10^{-5} Re_R / e}{1 + 7.18 \cdot 10^{-5} Re_R / e} \right) \quad (2.15)$$

- Le coefficient de dispersion axiale : La notion de dispersion axiale prend en considération le fait qu'un écoulement réel s'écarte de l'écoulement piston (idéal). Ce phénomène est essentiellement dû à l'agitation mécanique du contacteur. Le coefficient de dispersion axiale permet de décrire le rétro-mélange et pour la phase continue, il est exprimé comme suit :

$$\frac{D_{ax,c}}{v_c H} = 0.42 + 0.29 \cdot \left(\frac{v_d}{v_c} \right) + \left[c_1 \left(\frac{ND_R}{v_c} \right) + \frac{13.38}{3.18 + \left(\frac{ND_R}{v_c} \right)} \right] \left(\frac{v_c D_R \rho_c}{\eta_c} \right)^{-0.08} \cdot \left(\frac{D_K}{D_R} \right)^{0.16} \left(\frac{D_K}{H_c} \right)^{0.1} e \quad (2.16)$$

L'importance du coefficient de dispersion axiale pour la phase dispersée est beaucoup plus limitée, voire quasiment nulle, puisque dans ce cas, c'est le mélange en avant, dû à la différence des vitesses d'ascension des gouttes de différentes tailles, qui joue un rôle prépondérant. Il est exprimé comme suit :

$$\frac{D_{ax,d}}{v_d H} = 0.7 + 0.02 \cdot \left(\frac{ND_R}{v_T} \right) \quad (2.17)$$

- Transport des gouttes : les vitesses des deux phases sont liées au modèle des deux couches qui sont exprimées comme suit [95]:

$$v_d(t, z, d, \phi) = v_r(t, z, d, \phi) + v_c(t, z, \phi) \quad (2.18)$$

avec v_c la vitesse de la phase continue, v_d la vitesse de la phase dispersée et v_r la vitesse relative d'une gouttes de diamètre d par rapport à la phase continue environnante.

Afin de calculer $v_d(t, z, d, \phi)$, il convient de trouver une expression pour la vitesse de la phase continue.

On décrit l'hydrodynamique de la colonne en utilisant le modèle Piston – diffusion [85].

Le débit de la phase continue à travers une section droite de la colonne s'exprime selon l'expression suivante:

$$Q_c(z) = A \cdot v_c(z) \cdot (1 - \phi(z)) - A \cdot D_c(z) \frac{\partial}{\partial z} (1 - \phi(z)) \quad (2.19)$$

d'où :

$$v_c(z, d) = \frac{Q_c}{A(1 - \phi(z))} - D_c(z) \frac{1}{(1 - \phi(z))} \frac{\partial \phi(z)}{\partial z} \quad (2.20)$$

2.2.4. Les termes de production d'aire d'échange

Le terme de production P_V qui intervient dans l'équation du bilan volumique de la phase dispersée et qui est une fonction de la hauteur dans la colonne et de la discrétisation du spectre de taille de gouttes, représente les effets relatifs à la rupture et à la coalescence des gouttes. C'est un paramètre crucial, car de son estimation dépendent la production d'aire d'échange et le mélange en avant de la phase dispersée.

Comme mentionné auparavant, chaque nombre de gouttes dans une classe peut augmenter ou diminuer par rupture et coalescence. En pratique, ce terme de génération est dissocié en deux contributions, l'une reflétant les effets de la rupture et l'autre ceux de la coalescence, soit :

$$P_V = P_{RG} + P_{CG} \quad (2.21)$$

Chacun de ces deux termes résultent eux-mêmes de deux contributions : chaque classe de gouttes peut gagner de volume par rupture de gouttes de plus grandes tailles ou par coalescence des plus petites. Inversement, elle peut perdre de volume par rupture ou par coalescence avec n'importe quelle autre classe. Globalement, la rupture est entièrement décrite par un taux de rupture et par une distribution de gouttes-filles. Ces deux paramètres sont en général exprimés en fonction d'un nombre de Weber particulière qui dépend fortement de la tension interfaciale. La coalescence entre les gouttes est également décrite par

un taux de coalescence qui résulte du produit d'une fréquence de collision et d'un facteur d'efficacité qui définit la probabilité de coalescence entre deux gouttes.

2.2.4a Discrétisation par rapport à la taille des gouttes

Une simulation impliquant des gouttes dont les tailles sont comprises entre d_{\min} et d_{\max} qui représentent les limites des gouttes observables dans la colonne, est généralement confrontée au problème de la manière de discrétisation de cet intervalle pour décrire au mieux la population de goutte. A cet effet, on peut choisir d'utiliser des suites arithmétiques, géométriques etc. Dans ce travail, l'approche arithmétique a été adoptée et généralement, elle donne de bons résultats.

A ce stade, la population de gouttes est entièrement définie et l'étude des mécanismes fondamentaux, peut être abordée.

2.2.4b Rupture des gouttes

La rupture d'une goutte se produit lorsque la tension interfaciale ne permet plus de compenser les forces extérieures auxquelles la goutte est soumise. Pour les colonnes à plateaux perforés, diverses études expérimentales montrent que la rupture se produit au voisinage des plateaux qui constituent un obstacle à l'écoulement [89, 96, 97].

De plus, elle diffère selon que la goutte arrive au plateau au point mort de la pulsation ou à vitesse de pulsation maximale. Deux mécanismes de rupture peuvent intervenir :

- les tourbillons générés par la pulsation peuvent casser les grosses gouttes avant qu'elles ne passent à travers le plateau ;
- la déformation due à leur passage au travers des perforations conduit à la rupture.

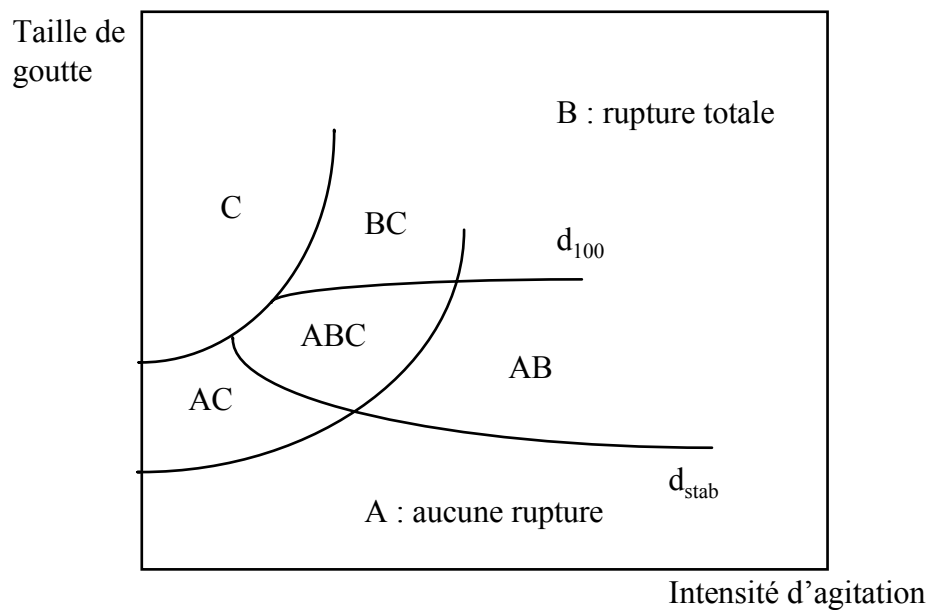


Figure 2.7. Comportement des gouttes au voisinage d'un plateau

Dans [89], une étude des phénomènes de rupture au voisinage des plateaux a été entreprise et a établi que le comportement des gouttes peut être entièrement décrit par un diagramme du type de celui montré sur la figure 2.7, où on y distingue trois domaines principaux :

- A : aucune rupture des gouttes (gouttes de petits diamètres) ;
- B : toutes les gouttes cassent (grands diamètres de gouttes par rapport au diamètre des perforations) ;
- C : les gouttes ne traversent pas le plateau (faible intensité d'agitation, grands diamètres de gouttes par rapport au diamètre des perforations, systèmes à haute tension interfaciale).

Dans les domaines intermédiaires, le comportement des gouttes ne peut être décrit que par une probabilité de rupture représentant le nombre de gouttes qui cassent sur le nombre initial de gouttes. Par ailleurs, ce diagramme fait apparaître deux lignes caractéristiques. La première, notée d_{100} définit le diamètre de goutte au-delà duquel toutes les gouttes cassent, alors que d_{stab} définit le diamètre en dessous duquel aucune rupture ne se produit.

Des mécanismes différents de rupture existent et dépendent fortement des géométries. Par exemple, dans la colonne Kühni les gouttes sont produites en passant à travers les trous des plateaux contrairement à la colonne RDC où le procédé de rupture se produit seulement près du disque du rotor. La probabilité de rupture des gouttes est supposée homogène en chaque compartiment de la colonne et donc une approche locale est employée, prouvant que

le mécanisme entier de la probabilité de rupture peut être décrite avec un nombre de Weber modifié. Ainsi, le diamètre de Sauter pour le mécanisme de rupture, comme décrit ci-dessus, peut être corrélé avec un nombre de Weber modifié.

- Pour la colonne RDC la prédiction de la probabilité de rupture des gouttes $P(d)$ et la fréquence $g(z,d)$ sont calculées avec les corrélations rapportées dans [31,98] et recommandées par Modes [33] :

$$\frac{p(d)}{1-p(d)} = 1.2 \cdot 10^{-6} We_m^{2.88} \quad (2.22)$$

L'idée est de corréler la probabilité de rupture avec un nombre de Weber modifié, qui représente le rapport de l'énergie fournie à celle extérieure d'une gouttelette. La fréquence de rupture dépend alors du temps de séjour des gouttes :

$$g(z,d) = \frac{p(d)v_d(z,d)}{H_c} \quad (2.23)$$

où le rapport $v_d(z,d)/H_c$ représente l'inverse du temps de séjour moyen d'une goutte de diamètre d dans un compartiment de la colonne, délimité par deux plateaux successifs. Cette expression revient à moyenniser la rupture sur un volume de référence qui est le volume réel d'un compartiment de la colonne.

Avec :

$$We_m = \frac{\rho_c^{0.8} \mu_c^{0.2} d D_R^{1.6} (\varpi^{1.8} - \varpi_{crit}^{1.8})}{\sigma} \quad (2.24)$$

Pour le système toluène/eau

$$\varpi_{crit} = 2\pi 1.148 \left(\frac{\rho_c D_R^3}{\sigma} \right)^{-0.5} \left(\frac{d}{D_R} \right)^{-0.667} \quad (2.25)$$

et pour le système n- acétate de butyle/eau:

$$\varpi_{crit} = 2\pi 0,016 \frac{D_R^{-2/3} \mu_d d^{-4/3}}{(\rho_c \rho_d)^{1/2}} + \left[(0,008 \frac{D_R^{-2/3} \mu_d d^{-4/3}}{(\rho_c \rho_d)^{1/2}})^2 + 0.127 \frac{\sigma}{\rho_c D_R^{1/3} d^{5/3}} \right]^{0.5} \quad (2.26)$$

La distribution des tailles des gouttes filles est donnée par une fonction de distribution bêta, basée sur le diamètre de gouttelette mère d_0 :

$$\beta(d_0, d) = 3x_m(x_m - 1) \left(1 - \frac{d^3}{d_0^3}\right)^{(x_m-2)} \frac{d^5}{d_0^6} \quad (2.27)$$

avec x_m le nombre moyen des gouttes filles donné par :

$$x_m = 2 + 0.17 \left[\left(\frac{d_0}{d_{crit}} \right) - 1 \right]^{1.83} \quad (2.28)$$

Le diamètre critique à partir duquel les gouttes commencent à se casser est :

$$d_{crit} = 1.23 D_R We_R^{-0.75} \quad (2.29)$$

- Pour la colonne Kühni, la probabilité de rupture des gouttes et la fréquence de rupture sont données par l'expression suivante :

$$\frac{p(d)}{1 - p(d)} = 0.2148 We_m^{0.7796} \quad (2.30)$$

La fréquence de rupture et le nombre de Weber modifié sont analogues aux équations 2.23 & 2.24 où :

$$\varpi_{crit} = 2\pi 0.65 \left(\frac{\rho_c D_R^3}{\sigma} \right)^{-0.5} \left(\frac{d}{D_R} \right)^{-0.72} \quad (2.31)$$

La distribution des tailles des gouttes filles est similaire à celle donnée par l'équation 2.27 mais avec :

$$x_m = 2 + 0.838 \left[\left(\frac{d_0}{d_{crit}} \right) - 1 \right]^{1.309} \quad (2.32)$$

Le diamètre critique des gouttes est pour ce cas, donné par la relation suivante:

$$d_{crit} = 0.65 D_R We_R^{-0.72} \quad (2.33)$$

2.2.4c. Coalescence des gouttes

La coalescence entre les gouttes est un phénomène extrêmement complexe et sa modélisation complète reste non complètement maîtrisée. Pour sa description, nous nous

sommes appuyés sur les travaux de [88] où il est proposé de décomposer le processus de coalescence en deux phases successives. Pour ce processus l'hydrodynamique, les propriétés physico-chimiques des interfaces du système, l'intensité du choc et la durée de mise en contact sont les paramètres principaux. L'efficacité de coalescence entre deux gouttes s'approchant, des gouttes déformables selon la théorie de drainage du film, est due au drainage de l'écoulement du film de la phase porteuse. Elle a comme conséquence une résistance qui gêne les gouttes à s'approcher. L'efficacité de coalescence due à cette résistance dépend de la mobilité des interfaces des gouttes. Supposant que les gouttes s'approchent suivant la ligne de leurs centres, le rapport entre la force d'approchement et la vitesse des gouttes a été calculé en utilisant l'approximation de la théorie de lubrification [99]. On a supposé que la coalescence se produit quand l'épaisseur du film entre deux gouttes atteint une valeur critique h_c qui lui permet de se rompre facilement. Il a été montré théoriquement [99], que h_c peut être exprimé comme suit :

$$h_c = (A_k d_{eq} / 16\pi\sigma)^{1/3} \quad (2.34)$$

L'efficacité de coalescence peut alors être calculée pour trois gammes du rapport de viscosité pour des interfaces appelées mobiles, partiellement mobiles et immobiles. Dans le travail de [9], la force sans dimensions de lubrification entre deux gouttes indéformables en contact étroit s'avère dépendante d'un paramètre sans dimension :

$$m = \frac{\mu_c}{\mu_d} \left(\frac{a}{h_0} \right)^{1/2} \quad (2.35)$$

Où a est le rayon réduit de deux gouttes et h_0 est la plus étroite épaisseur entre deux surfaces de ces deux gouttes. Ce paramètre m décrit la mobilité des interfaces : Quand $m \ll 1$, les gouttes se comportent en tant que sphères rigides, tandis que quand $m \gg 1$, les gouttes ont des interfaces entièrement mobiles et offrent une résistance relativement faible au mouvement des gouttes. On note que la mobilité de la surface, m , représente la résistance visqueuse du fluide à l'intérieur des gouttes à l'écoulement exercé sur leurs interfaces par le fluide externe qui est drainé en dehors de l'espace entre les gouttes.

Généralement le processus de coalescence est décrit par le taux de coalescence de gouttes qui est le produit de la fréquence de collision $h(d_1, d_2)$, et l'efficacité de coalescence $\lambda(d_1, d_2)$, entre deux gouttes du diamètre d_1 et d_2 . Cependant, la détermination de ce taux de coalescence (paire de goutte) demeure un phénomène extrêmement complexe et son modélisation n'est pas entièrement maîtrisable.

De la littérature [8, 18, 99], des expressions pour h (d_1, d_2) peuvent être dérivées, selon la nature des gouttes, comme suit :

- Pour les gouttes déformables :

- Colonne Kühni [8, 99] :

$$h(d_1, d_2) = 1.247 \varepsilon^{1/3} (d_1 + d_2)^{7/3} \quad (2.36)$$

- Colonne RDC [18, 99] :

$$h(d_1, d_2) = C_1 \frac{\varepsilon^{1/3}}{(1 + C_v \phi)} (d_1 + d_2)^{7/3} \quad (2.37)$$

- Pour les gouttes non déformables:

- Colonne RDC [18, 99] :

$$h(d_1, d_2) = C_2 \frac{\varepsilon^{1/3}}{(1 + C_v \phi)} (d_1 + d_2)^{7/3} \quad (2.38)$$

Ces équations sont dérivées à partir de la vitesse relative des deux masses ponctuelles dans la phase liquide, le long d'une distance égale à $d_1 + d_2$. Un facteur de turbulence (damping factor) a été présenté pour expliquer les effets de l'écoulement diphasique, sur le degré de turbulence comme défini par [7, 18]. La détermination de l'efficacité de coalescence dépend principalement aussi bien de la nature des deux gouttes impliquées dans le processus de coalescence que des propriétés de leurs interfaces. Certains des modèles appropriés rapportés ci-dessus sont décrits comme suit :

- Efficacité de coalescence pour des gouttes non-deformables : En utilisant le concept de la mobilité de l'interface cité ci-dessus, la force de lubrification agissant dans la direction suivant la ligne des centres des gouttes peut être simplement exprimée selon l'expression suivante :

$$F = \frac{6\pi\mu_c a^2 w f(m)}{h} \quad (2.39)$$

où $w = dh/dt$ est la vitesse de rapprochement des gouttes et $f(m)$ est une fonction sans dimensions qui est approximée dans [9] et utilisant l'expression suivante :

$$f(m) = \frac{1 + 0.38m}{1 + 1.69m + 0.43m^2} \quad (2.40)$$

Il convient de noter que ce modèle d'efficacité de coalescence tente d'expliquer les effets du drainage du film par le biais de l'épaisseur du film dénotée h . Si on suppose que le taux de

drainage du film entre deux sphères est constant sous la force de compression, alors la force de lubrification, F , est égale à la force de compression, F_1 . Par exemple, l'efficacité de coalescence est donnée comme suit [6]:

$$\lambda(d_1, d_2) = \exp\left(-\frac{\bar{\tau}}{\bar{t}}\right) \quad (2.41)$$

où

$$\bar{\tau} = \frac{6\pi\mu_c a^2}{F_1} \zeta$$

$$\zeta = 1.872 \ln\left(\frac{h_1^{1/2} + 1.378q}{h_2^{1/2} + 1.378q}\right) + 0.127 \ln\left(\frac{h_1^{1/2} + 0.312q}{h_2^{1/2} + 0.312q}\right) \quad (2.42)$$

$$q = \frac{\mu_c}{\mu_d} a^{1/2} \quad (2.43)$$

Avec

$$h_2 = 0 \text{ and } h_1 = 0.1 a$$

$$\bar{t} = \frac{(a/2)^{2/3}}{\varepsilon^{1/3}} \quad (2.44)$$

Afin d'appliquer l'équation 2.44 aux dispersions turbulentes, une expression pour F_1 est nécessaire, selon la théorie de Kolmogoroff-Hinze, si on suppose que les tourbillons responsables de la coalescence appartiennent au domaine inertiel, alors que dans [100] l'analyse dimensionnelle indique que :

$$F_1 = k \rho_c \left((\varepsilon d)^{1/3} \right)^2 d^2 \quad (2.45)$$

et on peut obtenir :

$$F_1 = k \rho_c \varepsilon^{2/3} a^2 (d_1 + d_2)^{2/3} \quad (2.46)$$

Cette force est dérivée de la mesure de la vitesse relative de deux points matériels dans le liquide distants de $d_1 + d_2$. Alors, l'efficacité de coalescence pour la colonne RDC devient :

$$\lambda(d_1, d_2) = \exp\left(-C_3 \frac{\mu_c (1 + 1.56\phi)}{\rho_c \varepsilon^{1/3} (d_1 + d_2)^{2/3} a^{2/3}} \zeta\right) \quad (2.47)$$

- Efficacité de la coalescence pour des gouttes déformables : dans le travail de [8], les collisions sont divisées comme visqueuses et inertielles :
- Dans le cas visqueux, la force exercée par l'écoulement externe sur une particule en collision (et transmise à la deuxième particule, avec les forces inertielles étant négligeables) soit donnée par une expression de type Stokes.
- Dans le cas inertiel, pendant des collisions visqueuses, les particules sont rassemblées par l'écoulement, tournent autour de l'un à l'autre et puis se séparent une fois la coalescence ne s'est pas produite.
- Pour les collisions inertielles et dans le cas des gouttes à interfaces partiellement mobiles plane film model, le temps de drainage de film est défini comme [8] :

$$\bar{t} = \frac{\pi \mu_d F_1^{1/2}}{2(4\pi\sigma / d_{eq})^{3/2} h_{crit}} \quad (2.48)$$

où F_1 est la force qui garde les gouttes ensemble

$$F_1 = k_1 \rho_c \varepsilon^{2/3} d_{eq}^2 (d_1 + d_2)^{2/3} \quad (2.49)$$

Cette force est dérivée de la même considération ci-dessus, selon l'expression suivante [99] :

$$d_{eq} = 2 \frac{d_1 d_2}{d_1 + d_2} \quad (2.50)$$

et le temps de contact [101] :

$$\bar{t} = \frac{(d_{eq}/2)^{2/3}}{(\varepsilon)^{1/3}} \quad (2.51)$$

Alors l'efficacité de coalescence devient pour la colonne RDC :

$$\lambda (d_1, d_2) = \exp \left(-C_4 \frac{\mu_d \rho_c^{1/2} \varepsilon^{2/3} d_{eq}^{11/6} (d_1 + d_2)^{1/3}}{\sigma^{3/2} (1 + C_v \phi)^2 h_{crit}} \right) \quad (2.52)$$

Pour les collisions visqueuses et le cas des interfaces partiellement mobiles, l'efficacité de coalescence est pour la colonne Kühni [8]:

$$\lambda (d_1, d_2) = \exp \left(-0.077 \left(\frac{\mu_d}{\mu_c} \right) \Omega^{3/2} \left(\frac{d_{eq}}{h_c} \right) \right) \quad (2.53)$$

avec

$$\Omega = \frac{\mu_d \varepsilon^{1/2} d_{eq}}{\sigma \gamma^{1/2}}$$

L'équation 2.53 prévoit que l'efficacité de coalescence diminue jusqu'à une épaisseur minimum du film avec le rapport de viscosité, le nombre capillaire \mathcal{Q} , et le rapport des tailles moyennes des particules. On note que le nombre capillaire adimensionnel contrôle la déformation et la rupture des gouttes dans un domaine de cisaillement visqueux. La puissance de dissipation par unité de masse ε est un paramètre qui peut être expliqué par l'effet de l'agitation externe dans la colonne d'extraction liquide-liquide. Elle est exprimée en termes comme rapport de la puissance fournie P et de l'agitateur comme suit :

$$\varepsilon = P/m = P/\rho_c V_c = 4P/(\pi D_c^2 H_c \rho_c) \quad (2.54)$$

où P peut être calculé à partir de l'expression suivante :

$$P = N_p N^3 D_R^5 \rho_c \quad (2.55)$$

Avec N_p , le nombre de puissance pour la colonne RDC et Kühni comme suit [102] :

- Pour la colonne RDC :

$$N_p = \frac{C_5}{Re_R} + C_6 \left[\frac{1000 + 1.2 Re_R^{m_2}}{1000 + 3.2 Re_R^{m_2}} \right]^{m_3} \quad (2.56)$$

avec $C_5 = 109.4$, $C_6 = 0.74$, $m_2 = 0.72$, $m_3 = 3.30$

- Pour la colonne Kühni :

$$N_p = 1.08 + \frac{10.94}{Re_R^{0.5}} + \frac{257.37}{Re_R^{1.5}} \quad (2.57)$$

Finalement, dans ce chapitre, les aspects relatifs à l'hydrodynamique d'une colonne d'extraction liquide-liquide sont présentés. La phase dispersée est décrite par un bilan de population de gouttes, incorporant les phénomènes fondamentaux de transport, de rupture et de coalescence.

2.3. Estimation des paramètres des modèles

La détermination du hold-up de la phase dispersée dans les contacteurs diphasiques est toujours nécessaire pour le calcul des processus de génie chimique, tels que l'extraction par solvant. La modélisation de tels systèmes est basée principalement sur l'utilisation de l'approche de bilan de population des gouttes qui permet la description des variations de la distribution de grandeurs de la phase dispersée en faisant la moyenne des fonctions qui lient le comportement de différentes particules comme des gouttes ou des bulles, à leurs interactions. Le développement des modèles correspondants nécessite l'ajustement de paramètres par rapport aux distributions de grandeurs expérimentales. Ceci définit l'approche du problème

inverse qui est considérée, quand la solution mathématique du modèle de bilan de population est connue, mais les fonctions phénoménologiques ne le sont pas.

En effet plusieurs paramètres peuvent avoir une influence sur la fiabilité du modèle, particulièrement ceux liés à la coalescence qui est assez sensible à l'hydrodynamique, aux propriétés physico-chimiques, au transfert de masse, etc. Aussi, Il faut noter qu'aucune corrélation pouvant déterminer le taux de coalescence, n'est disponible jusqu'à présent. Par conséquent, ces facteurs n'ont fait que motivé la considération de ce point, dans cette étude, comme montré dans la section suivante.

2.3.1. Détermination des paramètres de coalescence

La coalescence est un processus stochastique où des expériences de base dans un tube de Venturi ont prouvé que la probabilité de coalescence des gouttelettes dépend fortement de leurs tailles, des propriétés physico-chimiques, du hold-up, etc. [103, 104].

La coalescence dans les colonnes agitées d'extraction liquide-liquide se produit principalement dans les zones de faible turbulence de la colonne qui correspondent directement aux zones en dessous des plateaux du stator [25, 10]. En raison du fait que la rupture et les processus de coalescence ont lieu en même temps il n'est pas possible d'étudier et estimer la coalescence comme un phénomène isolé. Par conséquent il n'est pas possible de déterminer les paramètres de coalescence sans méthodes numériques.

Par conséquent dans ce travail, un code d'optimisation- simulation, a été développé pour résoudre le problème inverse du modèle de bilan de population des gouttes. Il est basé sur l'algorithme génétique, similairement au travail rapporté dans la littérature [108], se basant sur l'algorithme de Rosenbrock.

Le code de calcul détermine les constantes inconnues dans le modèle de coalescence choisi parmi ceux déjà discutés dans une section précédente. Pour ce cas, le calcul de l'hydrodynamique (distribution de grandeurs de gouttes, hold-up le long de la colonne) est basé sur un modèle simplifié de bilan de population négligeant la dispersion axiale et l'algorithme numérique pour une partie de la colonne [74] ou bien celui développé dans ce travail.

Les constantes de coalescence dans l'équation de bilan de population de gouttes sont déterminées par le biais de l'algorithme génétique, en minimisant une fonction objective, généralement exprimée comme suit :

$$S = \sum_{k=1}^{NDC} [Q_3^{k,out}(exp) - Q_3^{k,out}]^2 \quad (2.58)$$

$$F_{obj} = 1.0 / (1.0 + S) \quad (2.59)$$

Par conséquent la distribution cumulative simulée Q_3 de sortie est forcée vers la valeur expérimentale en changeant les paramètres C_1 et C_4 de coalescence, et ce jusqu'à ce que le résidu de la fonction objective tend vers zéro, selon l'algorithme montré par la figure 2.8.

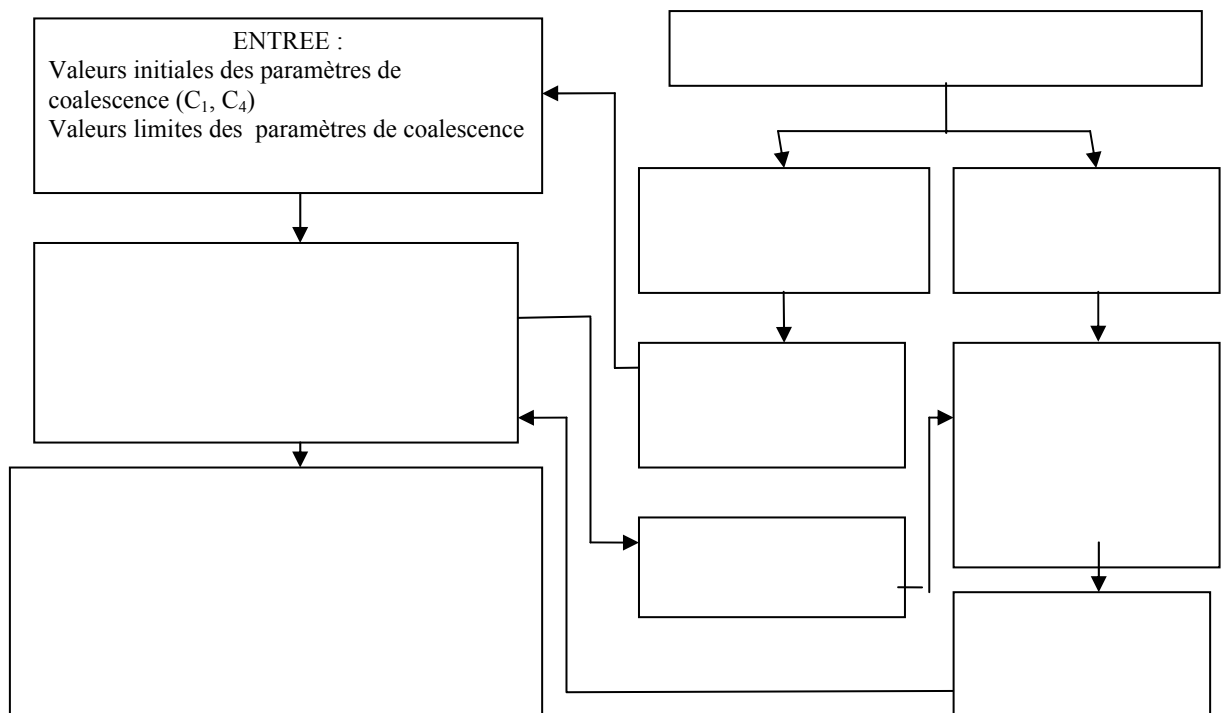


Figure 2 .8. Algorithme pour l'évaluation des paramètres de coalescence

2.4. Références citées dans le chapitre II

- [6] C. Tsouris, L.L. Tavlarides, *AIChE J.* 1994, 40, 395.
- [7] C. Tsouris, L.L. Tavlarides, *Chem. Eng. Sci.* 1993, 48, 1503.
- [8] A.K. Chesters, *Trans. IChemE* 1991, 69, 259.
- [9] R.H. Davis, J.A. Schonberg, and J.M. Rallison, *Phys. Fluids A1* 1989, 77 (1).
- [10] M. Simon, H.-J. Bart, *Chem. Eng. Technol.* 2002, 25, 481.
- [18] Coualoglou, C. A. , & Tavlarides, L. L. (1977). Description of interaction processes in agitated liquidliquid dispersions. *Chem. Eng. Sci.*, **32**, 1289-1297.
- [25] Kentish, S. E., Stevens, G. W., & Pratt, H. R. C. (1998). Estimation of coalescence and breakage rate constants within a Kühni column. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **37**, 1099-1106.
- [31] Cauwenberg, V., Degreve, J., & Slater, M. J. (1997). The interaction of solute transfer, contaminants and drop break-up in rotating disc contactors: Part I. Correlation of drop breakage probabilities. *Can. J. Chem. Eng.*, **75**, 1046-1055.

- [46] Kronberger, T., (1995): Numerische Simulation von Tropfenpopulationen in Extraktionskolonnen, Dissertation, Johannes Kepler Universität Linz, Linz 1995.
- [74] Attarakih, M. M., Bart, H.-J., & Faqir, N. M. (2003b). Solution of the population balance equation for liquid-liquid extraction columns using a generalized fixed-pivot and central difference schemes. in European Symposium on Computer Aided Process Engineering. Kraslawski, A. & Turunen, I. (Eds). *Elsevier*, Amsterdam 2003, 13, 557.
- [84] Thornton J. D., « Spray liquid-liquid extraction column: Prediction of limiting hold-up and flooding rates », *Chem. Eng. Science*, Vol. 5, pp. 201, (1956)
- [85] Miyauchi T., Vermeulen T., « Longitudinal dispersion in two-phase continuous-flow operations », *Ind.Eng.Chem.Fund.* Vol.2; pp.113, (1963)
- [86] Korchinsky W., Chartres R.H., « Modelling of liquid-liquid extraction columns: Predicting the influence of drop size distribution », *AIChE*, Vol. 53, pp. 247, (1975)
- [87] Casamatta G., « Comportement de la population de gouttes dans une colonne d'extraction : Transport, rupture, coalescence et transfert de matière », Thèse de Docteur ès Sciences, INP Toulouse, (1981)
- [88] Gourdon C., « Les colonnes d'extraction par solvant : Modèles et comportement », Thèse de Docteur ès Sciences, INP Toulouse, (1989)
- [89] Haverland H., « Untersuchungen zur Tropfendispergierung in flüssigkeitspulsierten Siebboden-Extraktionskolonnen », Dissertation TU Clausthal, (1988)
- [90] Hussain A.A., Liang T.B., Slater M.J., « Characteristic velocity of drops in liquid-liquid extraction pulsed sieve-plate column », *Chem. Eng. Res. Des.*, Vol.66, n°6, pp.541, (1988)
- [91] Bardin N., « Simulations et expériences Lagrangiennes d'écoulements diphasiques dans les colonnes pulsées à garnissage disques-couronnes », Thèse de Doctorat, INP Toulouse, (1998)
- [92] Pratt H.R.C., Glayer R., Roberts N.W., « Liquid-liquid extraction. Part IV : a further study of hold-up in packed columns », *Trans.Inst. Chem.Eng.*, Vol. 31, (1953)
- [93] J.C. Godfrey, M.J. Slater, *Trans. IChemE*, 1991, 69, 130.
- [95] R. Gayler, N.W. Roberts, H.R.C. Pratt, *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.* 1953, 31, 57.
- [96] Eid K.M., « Etude de la rupture des gouttes dans une colonne pulsée », Thèse de Doctorat, INP Toulouse, (1984)
- [97] Jares J., Prochazka J., « Break-up of droplets in Karr reciprocating plate extraction columns », *Chem.Eng.Science*, Vol.42, n°2, pp.283, (1987)

- [98] M. Simon, S.A. Schmidt, H.-J. Bart, *Chem. Eng. Tech.* 2002, 74, 247.
- [99] A.M. Kamp, A.K. Chesters, C. Colin, J. Fabre, *Int. J. Multiphase Flow* 2001, 27, 1363.
- [100] R.M. Thomas, *Int. J. Multiphase Flow* 1981, 7, 709.
- [101] K. Shimizu, S. Takada, K. Minekawa, Y. Kawase, *Chem. Eng. J.* 2000, 78, 21.
- [102] A. Kumar, S. Hartland, *Ind. Eng. Chem. Res.* 1996, 35, 2682.
- [103] Simon, M., Bart, H.-J., (2001). Experimentelle Untersuchung zur Koaleszenz in Flüssig/Flüssig-Systemen, *Chem. Ing. Tech.*, 73, 988-992.
- [104] Simon, M., Schmidt, S., Bart, H.-J., (2003). The droplet population balance model- Estimation of breakage and coalescence, *Chem. Eng. Technol.*, 26, 745-750.
- [108] Attarakih, M. M., Simon, M., Lagar, Lagar G., Schmidt, S. A., Bart, H.-J., (2004). Internal report, Technical University Kaiserslautern.

CHAPITRE III

METHODES DE RESOLUTION NUMERIQUE

3.1. Introduction

La nature polydispersive d'une population donnée de gouttes turbulentes dans les équipements des contacteurs liquide-liquide agités, rend toute modélisation mathématique de ces systèmes assez complexe.

Généralement, cette polydispersion est modélisée comme une population des gouttes aléatoirement distribuées, en ce qui concerne certaines propriétés internes, utilisant l'équation de bilan de population.

Cependant, la solution de ce modèle mathématique est difficile à obtenir analytiquement, et par conséquent des méthodes numériques doivent être utilisées. Ceci est surtout dû aux non-linéarités induites dans les termes convectifs et diffusifs ainsi qu'à la présence de plusieurs intégrales dans le terme source.

Dans ce travail deux méthodes conservatrices de discrétisation pour les variables internes (état des gouttes) et externe (spatiales), sont utilisées pour résoudre l'équation de bilan de population décrivant l'hydrodynamique des contacteurs diphasiques d'extractions liquide-liquide à contre courant.

Pour la variable interne et contrairement à la technique de discrétisation utilisée dans [87] pour la solution de l'équation du bilan de population dans une colonne pulsée, la méthode de Galerkin décrite dans [46], est adoptée pour les contacteurs Kühni et à disque rotatifs.

Pour la distribution spatiale de la population des gouttes, le système d'équations aux dérivées partielles résultant dans sa forme conservatif est discrétisé spatialement en utilisant une méthode des volumes finis à pas avancé.

Finalelement la discrétisation temporelle est performée en utilisant une approche implicite fortement stable qui est formulée en tenant compte de la forte non linéarité des termes convectifs et de source.

3.2. Discrétisation du modèle

L'équation intégró-différentielle (Equation 3.1) est discrétisée par rapport aux diamètres des gouttes (variables internes) en utilisant la méthode de Galerkin et par rapport à la hauteur de la colonne (variable externe) par la méthode des volumes finis. A titre de rappel, elle est exprimée comme suit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} P(t, z, d) + \frac{\partial}{\partial z} (v_d(t, z, d, \varphi) P(t, z, d)) = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{ax} \frac{\partial}{\partial z} P(t, z, d) \right) \\ + \frac{Q_d}{A} p_{in}(d) \delta(z - h_d) + P_v(t, z, d) \end{aligned} \quad (3.1)$$

Avec les conditions aux limites qui sont aussi données dans le chapitre précédent.

3.2.1. Discrétisation par rapport à la variable interne

Cette partie représente l'application de la méthode de Galerkin pour la simulation de l'hydrodynamique pour les contacteurs d'extraction liquide-liquide agités.

Le premier pas du traitement numérique de l'équation 3.1, est la discrétisation par rapport au diamètre d de la goutte. Afin d'obtenir un nombre fini d'équations, la méthode de Galerkin est utilisée : soit $\{d_k \mid k = 0, \dots, K\}$ les diamètres discrets avec $0 = d_0 < d_1 < \dots < d_K = d_{\max}$. Une approximation de la distribution des tailles des gouttes par une fonction constante par morceau est appliquée comme suit :

$$P(t, z, d) = \sum_{k=1}^n P_k(t, z) \cdot b_k(d) \quad (3.2)$$

Avec $p_k(t, z)$ dépendant de la hauteur de la colonne et du temps et $b_k(d) = 1$ si d appartient à $[d_{k-1}, d_k]$, autrement $b_k(d) = 0$. La fraction volumique $\varphi_k(t, z)$ des gouttes de diamètre d appartenant à $[d_{k-1}, d_k]$ est donnée par:

$$\varphi_k(t, z) = \int_{d_{k-1}}^{d_k} P(t, z, d) dd \quad (3.3)$$

En combinant (3.2) et (3.3), on obtient la relation suivante entre les fonctions $\varphi_k(t, z)$ et $p_k(t, z)$ suivante:

$$\varphi_k(t, z) = P_k(t, z) \cdot \Delta d_k \quad (3.4)$$

L'application de la méthode de Galerkin consiste à l'insertion des relations (3.2) et (3.4) dans (3.1), la multiplication avec la fonction de base $b_i(d)$ et l'intégration de l'équation qui en résulte sur tout l'intervalle des diamètres $[0, d_{\max}]$. Ceci donne finalement un système de K équations différentielles pour la fonction $\varphi_k(t, z)$:

$$\frac{\partial \varphi_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z} (v_{d,k} \varphi_k) = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{d,ax} \frac{\partial}{\partial z} \varphi_k \right) + \frac{Q_d}{A} \delta(z - z_{d,in}) \varphi_{in,k} + S_k(\varphi_1 \dots \varphi_k) \quad (3.5)$$

Pour plus de précision, le résultat est un système couplé par des équations de convection diffusion dans une forme conservative avec un terme de source non linéaire. Cette loi conservative est couplée avec φ_k, ϕ et le terme de couplage S_k . Comme résultat, les intégrales dans les termes de source de l'équation intégral-différentielle (3.1) sont transformées en sommations, comme suit:

$$S_k(\varphi_1 \dots \varphi_k) = \sum_{i=k}^K b_{ki}^+ \cdot \varphi_i - b_k^- \cdot \varphi_k + \sum_{i=1}^K \sum_{j=1}^K c_{kij}^+ \varphi_i \cdot \varphi_j - \sum_{i=1}^K c_{ki}^- \varphi_i \cdot \varphi_k \quad (3.6)$$

Ici b^+, b^-, c^+ et c^- sont les intégrales d'interactions, qui ont été résolues numériquement, en utilisant la quadrature de Gauss. Les expressions pour b et c sont données comme suit :

$$b_{ki}^+ = \frac{1}{\Delta d_i} \int_{d_{k-1}}^{d_k} \int_{\max(d, d_{i-1})}^{d_i} \beta(d_0, d) \cdot g(d_0) \cdot \partial d_0 \partial d \quad (3.7a)$$

$$b_k^- = \frac{1}{\Delta d_k} \int_{d_{k-1}}^{d_k} g_k(d) \partial d \quad (3.7b)$$

$$c_{kij}^+ = \frac{1}{\Delta d_j \cdot \Delta d_i} \int_{d_{k-1}}^{d_k} \int_{\max(d_{j-1}, \sqrt[3]{d^3 - d_i^3})}^{\min(d_j, \sqrt[3]{d^3 - d_i^3} \cdot d / \sqrt[3]{2})} \frac{\omega(d_1, d_2)}{V(d_1) \cdot V(d_2)} \cdot \left(\frac{d}{d_2} \right)^2 \partial d_1 \cdot V(d) \partial d \quad (3.7c)$$

$$c_{ki}^- = \frac{1}{\Delta d_k \cdot \Delta d_i} \int_{d_{i-1}}^{\min(d_j, \sqrt[3]{d_{\max}^3 - d^3})} \frac{\omega(d_1, d_2)}{V(d)} \cdot \partial d_1 \quad (3.7d)$$

3.2.2. Discrétisation par rapport à la variable externe

Afin de discrétiser l'équation de transport 3.5, la colonne est décomposée en L cellules qui correspondent à des volumes finis de longueur $\Delta z = H / L$ chacune. Le point du milieu de la l^{ième} cellule de contrôle est défini par $z_l = (l - 1/2)\Delta z$ (pour $l = 1, \dots, L$). Ces cellules de contrôles sont localisées par $z_{l\pm 1/2}$. En se référant à la figure 3.1, l'intégration à travers la l^{ième} cellule et l'intervalle de temps $[t_n, t_{n+1}]$ donne l'expression suivante:

$$\varphi_{kl}^{n+1} - \varphi_{kl}^n + \frac{1}{\Delta z} \int_{t_n}^{t_{n+1}} (v_k \varphi_k) \Big|_{z_l - \frac{\Delta z}{2}}^{z_l + \frac{\Delta z}{2}} dt = \frac{1}{\Delta z} \int_{t_n}^{t_{n+1}} \left(D_d \frac{\partial \varphi_k}{\partial z} + D_c \frac{\varphi_k}{1 - \varphi} \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right) \Big|_{z_l - \frac{\Delta z}{2}}^{z_l + \frac{\Delta z}{2}} dt + \int_{t_n}^{t_{n+1}} \int_{z_l - \frac{\Delta z}{2}}^{z_l + \frac{\Delta z}{2}} S_k dz dt \quad (3.8)$$

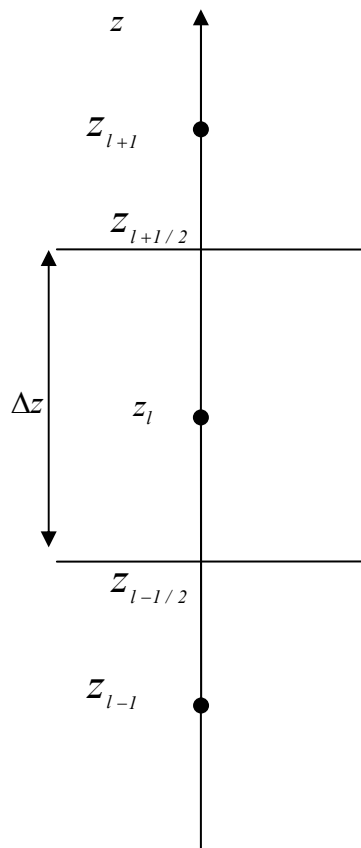


Figure 3.1. Volume de contrôle pour la méthode des volumes finis

Chaque terme de l'équation de transport est discrétisé comme suit:

3.2.2a. Discrétisation des flux dispersif et des termes de sources

Flux dispersif:

$$\int_{t_n}^{t_{n+1}} \left(D_d \frac{\partial \varphi_k}{\partial z} \right) \Big|_{z_l + \frac{1}{2}} dt \approx \Delta t \cdot D_d \left(z_l + \frac{1}{2} \right) \cdot \frac{1}{\Delta z} (\varphi_{k,l+1}^{n+1} - \varphi_{k,l}^{n+1}) \quad (3.9)$$

$$\int_{t_n}^{t_{n+1}} \left(D_c \frac{\varphi_k}{1-\varphi} \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right) \Big|_{z_l + \frac{1}{2}} dt \approx \Delta t \cdot D_c \left(z_l + \frac{1}{2} \right) \cdot \frac{1}{2} \left(\frac{\varphi_{k,l}^n}{1-\varphi_l^n} + \frac{\varphi_{k,l+1}^n}{1-\varphi_{l+1}^n} \right) \cdot \frac{1}{\Delta z} (\varphi_{k,l+1}^{n+1} - \varphi_{k,l}^{n+1}) \quad (3.10)$$

Termes de sources:

$$\int_{t_n}^{t_{n+1}} \frac{Q_d}{A} \cdot d(z - z_{d,in}) \cdot \Phi_{F,k} dz dt = \begin{cases} \Delta t \cdot \frac{Q_d}{A} \cdot \varphi_{F,k} & \text{si } z_l \in \left[z_l - \frac{1}{2}, z_l + \frac{1}{2} \right] \\ 0 & \text{si non} \end{cases} \quad (3.11)$$

$$\int_{t_n}^{t_{n+1}} \int_{z_l - \frac{1}{2}}^{z_l + \frac{1}{2}} (S_{B,k} + S_{C,k}) dz dt \approx \Delta t \cdot \Delta z \left(\sum_{i=k}^K S_{B,ki}^+ \cdot \varphi_{il}^n - S_{B,k}^- \cdot \varphi_{B,k}^{n+1} + \sum_{i=1}^K \sum_{j=1}^K S_{C,kij}^+ \varphi_{il}^n \cdot \varphi_{jl}^n - \varphi_{kl}^{n+1} \sum_{j=1}^k S_{C,ki}^- \varphi_{jl}^n \right) \quad (3.12)$$

3.2.2b Discrétisation du flux convectif

$$v_k \varphi_k \Big|_{z_l + \frac{1}{2}} = v_{k,l}^+ \varphi_{k,l} + v_{k,l+1}^- \varphi_{k,l+1} \quad (3.13)$$

Où : $v_{k,l}^+ = \max(v_{k,l}, 0)$, $v_{k,l}^- = \min(v_{k,l}, 0)$ et $v_{k,z_l} = v_k(z_l, \varphi_l)$

Donc

$$v_k \varphi_k \Big|_{z_l + \frac{1}{2}} \approx -v_{k,l-1}^+ \varphi_{k,l-1}^{n+1} + (v_{k,l}^+ - v_{k,l}^-) \varphi_{k,l}^{n+1} - v_{k,l+1}^- \varphi_{k,l+1}^{n+1} \quad (3.14)$$

3.2.3 Ecriture matricielle du système linéaire

Après tout réarrangement, l'écriture matricielle suivante est obtenue:

$$\begin{bmatrix} m_{11} & m_{12} & 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} & 0 & \dots & \dots & & & \vdots \\ 0 & m_{32} & m_{33} & m_{34} & 0 & & & & \vdots \\ 0 & 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & & & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & m_{l,l-1} & m_{l,l} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \varphi_{k1}^{n+1} \\ \varphi_{k2}^{n+1} \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \varphi_{kl}^{n+1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_1 \\ r_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ r_l \end{pmatrix}$$

Figure 3.2. Système linéaire à matrice dominante

Avec les termes du système à résoudre qui s'écrivent comme suit :

$$m_{l,l} = 1 + \frac{\Delta t}{\Delta z} (v_{k,l}^+ - v_{k,l}^-) + \frac{\Delta t}{\Delta z^2} \left(D_{d,l+\frac{1}{2}} + D_{d,l+\frac{1}{2}} \right) + \Delta t \left(S_{B,k}^- + \sum_{j=1}^k S_{C,kj}^- \cdot \varphi_{jl}^n \right) \tag{3.15}$$

$$m_{l,l+1} = -\frac{\Delta t}{\Delta z^2} \cdot D_{d,l+\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t}{\Delta z} v_{k,l+1}^- \tag{3.16}$$

$$m_{l,l-1} = -\frac{\Delta t}{\Delta z^2} \cdot D_{d,l-\frac{1}{2}} - v_{k,l-1}^+ \tag{3.17}$$

$$r_l = \varphi_{k,l}^n + \frac{\Delta t}{\Delta z} (Diff^n) + \Delta t (S_{B,k}^+ (\varphi^n) + S_{C,k}^+ (\varphi^n)) \tag{3.18}$$

Avec Diffⁿ le terme de dispersion qui est explicite et non linéaire.

Les distributions initiales de la phase dispersée et le diamètre de Sauter sont données en annexe 2 et 3 respectivement.

3.3. Algorithme de calcul

L'écriture matricielle donne une matrice à diagonale dominante et pour cela nous utilisons la méthode d'élimination de Gauss qui s'avère très efficace pour ce genre de système. L'algorithme de calcul est donné comme suit:

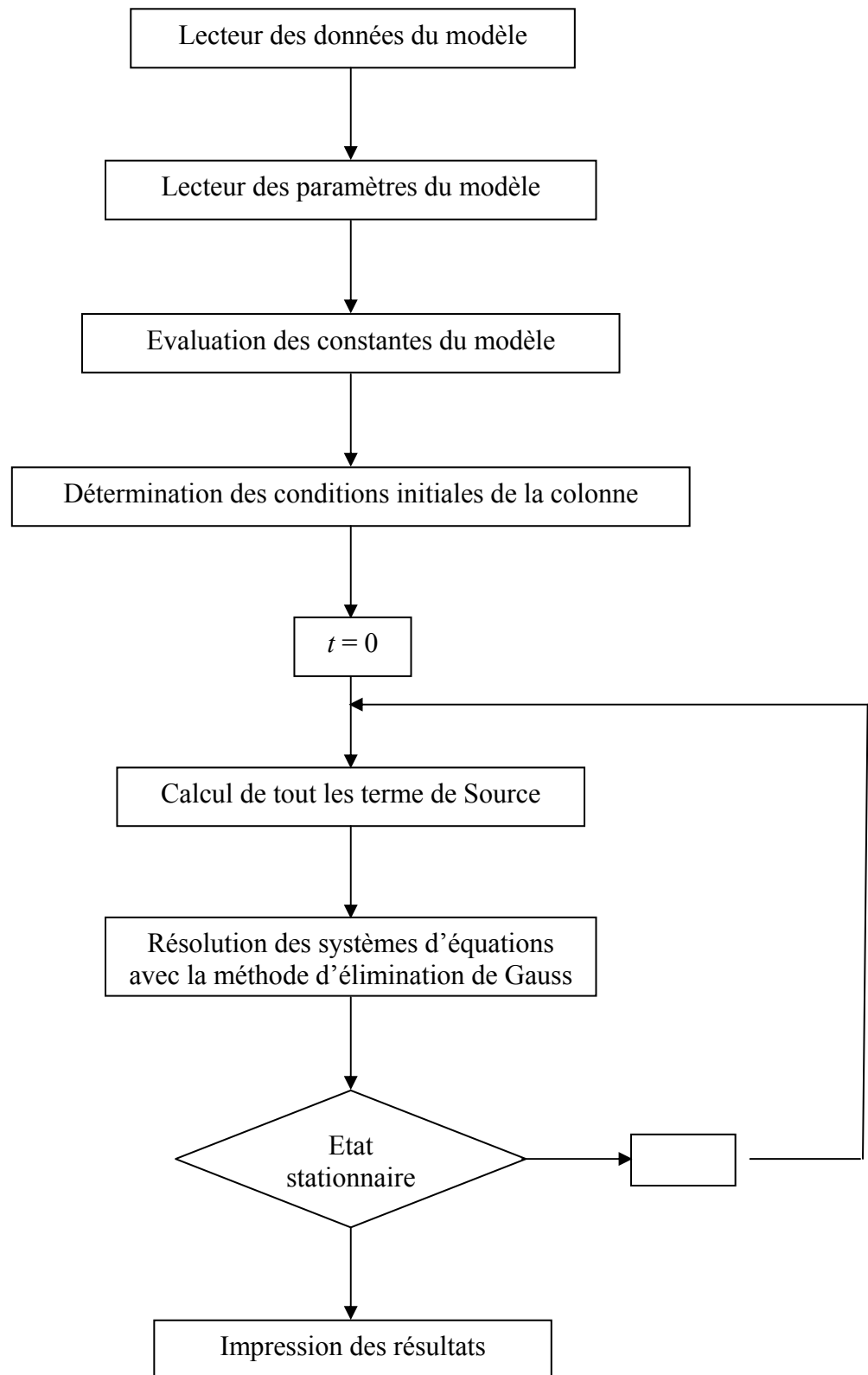


Figure 3.3. Organigramme de l'algorithme de calcul

3.4. Méthode de détermination des paramètres de coalescence

Généralement, un procédé de programmation mathématique doit être appliqué pour trouver le meilleur ajustement des données expérimentales. L'application d'un problème inverse mène à une solution analytique ou approximative explicite qui est extrêmement sensible aux erreurs des données expérimentales [105].

Le problème d'ajustage des paramètres est résolu par l'algorithme génétique (AG), où les techniques des volumes finis et du pivot fixe généralisé [75] ou bien la méthode de Galerkin sont utilisées pour résoudre le problème de bilan de population et le calcul des paramètres qui dérivent de la solution. Cette approche est basée sur une méthode de recherche globale qui s'est avérée plus robuste que beaucoup de techniques traditionnelles de recherche avec les dispositifs suivants [106] :

- L'AG ne fait aucune supposition au sujet de la fonction à optimiser et il peut donc également être utilisé aussi pour des fonctions objectives non convexes;
- L'AG fait une différence entre explorer de nouveaux points dans l'espace de recherche et exploiter l'information actuelle;
- L'AG est un algorithme de nature stochastique dont les résultats sont régis par des règles probabilistes de transition plutôt que des règles déterministes;
- L'AG traite plusieurs solutions simultanément, recueillant l'information de la recherche actuelle des points en utilisant la précédente pour mener les recherches suivantes, ce qui le rend moins susceptible envers des problèmes d'optimums locaux;
- L'AG utilise une fonction objective ou une information de forme physique seulement, au lieu d'utiliser des dérivés ou toute autre connaissance auxiliaire, contrairement aux exigences des méthodes traditionnelles d'optimisation.

3.4.1. Description de l'algorithme génétique

Un algorithme génétique (AG) est un algorithme de recherche d'optimisation basé sur les principes d'évolution et la génétique normale [106]. L'idée fondamentale de l'AG est de mettre les paramètres du problème réel à optimiser on les désignant sous le nom d'un chromosome (ou de la personne) qui se compose des gènes. Chaque paramètre est identifié à un gène dans le chromosome. Les paramètres peuvent être de vrais nombres, nombres entiers, ou même structures de données complexes. Un AG général crée une première génération (une

population ou un ensemble discret des variables de décision), $G(t=0)$, et pour chaque génération, $G(t)$, il produit une nouvelle, $G(t+1)$. L'algorithme génétique général est décrit sur la figure 3.4 suivante:

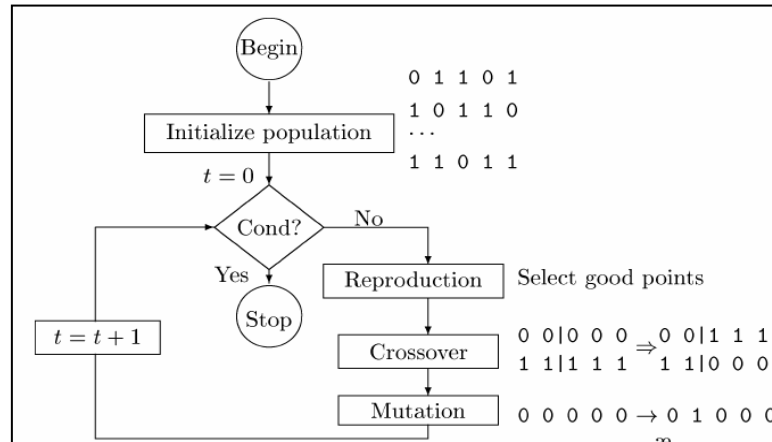


Figure 3.4. Organigramme de l'algorithme génétique général

Un chromosome, également appelé une solution de chaîne de caractères de longueur n , qui est un vecteur de la forme $\{x_1, x_2, \dots, x_i\}$ où chaque x_i est un gène représentant un ensemble de valeurs de variable de décision. Le domaine des valeurs desquelles la valeur x_i est choisie s'appelle les alphabets du problème. La population initiale $G(0)$ peut être choisie heuristiquement ou aléatoirement. Les populations de la génération $G(t+1)$ sont choisies de $G(t)$ par une procédure de sélection randomisée qui se compose de quatre opérateurs :

3.4.1a. Sélection

La sélection est un processus dans lequel différentes chaînes de caractères sont copiées selon leur fonction objective (F). En cours de la sélection, seulement les chaînes de caractères solutions, avec des valeurs ajustables sont reproduites dans la prochaine génération. Ceci signifie que les chaînes de caractères solutions qui sont ajustées et qui ont montré une meilleure performance auront des chances plus élevées de contribuer à la prochaine génération. Il y a beaucoup de méthodes de sélection disponibles, comme la sélection de tournoi, sélection de roue de roulette, ces méthodes etc. emploient la valeur ajustable de chaque chromosome pour décider si elle survivra ou pas.

3.4.1b. Croisement

L'opérateur de croisement, aléatoirement, permute des parties des gènes pour deux parents de chaînes de caractères solutions de la génération $G(t)$ pour produire deux chaînes de caractères d'enfants solutions de génération $G(t+1)$. Il y a trois variantes de croisement: un point, deux-points, et croisement d'un gène (voir la figure 3.5). Dans un croisement simple

d'un point, une coupe aléatoire est faite et des gènes sont commutés à travers ce point. Un opérateur de croisement de deux-points choisit aléatoirement deux points de croisement et permute alors des gènes dans l'intervalle. Cependant, dans un croisement d'un gène, un gène simple est permuté entre les chromosomes de deux parents à une position aléatoire. Le but principal de l'opérateur de croisement est de rechercher l'espace de paramètre. L'autre aspect est que la recherche doit être exécutée dans une voie de préserver l'information stockée dans les chaînes de caractères des parents au maximum, parce que ces chaînes de caractères des parents sont des exemples de bonnes chaînes de caractères choisies en utilisant l'opérateur de sélection.

3.4.1c. Mutation

La mutation traite un individu (chromosome) produisant la progéniture qui est très différente de son parent. Un AG choisit aléatoirement un gène de la chaîne de caractères de chromosome ou de solution et change alors la valeur de ce gène dans sa marge permise avec une petite probabilité de mutation (P.M.), suivant les indications de la figure 3.5. Le P.M. contrôle la cadence à laquelle de nouveaux gènes sont introduits dans la population. Une volonté à faible taux empêche l'introduction des gènes potentiels et une cadence élevée donnera trop de perturbation aléatoire. Les mutations encouragent une population qui est convergente sur un certain optimum pour sauter dans une partie différente de l'espace de solution, de ce fait augmentant la probabilité de détecter un point différent mener à la solution optimum globale. Le besoin de mutation est de mettre à jour la diversité dans la population.

Après sélection, le croisement, et la mutation sont appliqués à la population entière, une génération de l'AG est terminée. Ces trois opérateurs sont simples et efficaces. L'opérateur de sélection choisit de bonnes chaînes de caractères et l'opérateur de croisement recombine de bonnes sous chaînes de deux bonnes chaînes de caractères ensemble pour former une meilleure sous chaîne. L'opérateur de mutation modifie une chaîne de caractères localement pour créer une meilleure chaîne de caractères. Quoique aucune de ces réclamations ne soit garantie et/ou soit testée tout en créant une nouvelle population des chaînes de caractères, on s'attend à ce que si de mauvaises chaînes de caractères sont créées elles soient éliminées par l'opérateur de reproduction dans la prochaine génération et si de bon chaînes de caractères sont créées, elles seront soulignées.

3.5. Remarques générales

Les algorithmes génétiques ont certaines uniques caractéristiques qui leur font une méthode globale plus robuste de recherche que beaucoup de techniques traditionnelles de

recherche [106]: un AG ne fait aucune supposition au sujet de la fonction à optimiser et peut également être utilisé ainsi pour des fonctions objectives non convexes; un AG optimise la différence entre explorer de nouveaux points dans l'espace de recherche et exploiter jusqu'ici l'information découverte; un AG est implicitement parallèle; un AG est un algorithme randomisé dont les résultats sont régis par des règles probabilistes de transition plutôt que des règles déterministes; un AG traite plusieurs solutions simultanément, recueillant l'information de la recherche actuelle et qui l'utilise pour diriger des recherches ultérieures qui rend un AG moins susceptible des problèmes des optimums et du bruit locaux ; un AG utilise seulement la fonction objective ou l'information de forme physique, au lieu d'utiliser des dérivés ou toute autre connaissance auxiliaire, comme sont nécessaires par des méthodes traditionnelles d'optimisation.

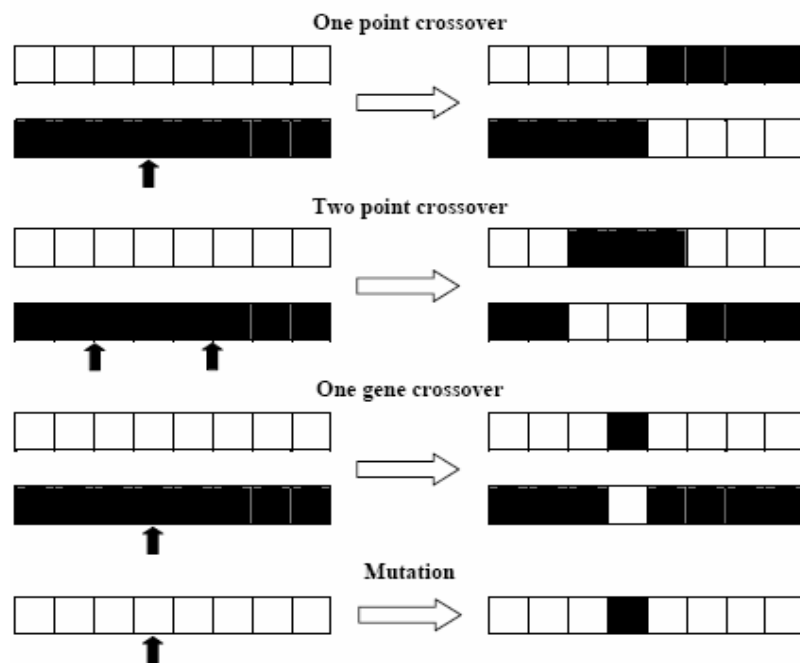


Figure 3.5. Opérateurs de croisement et de mutation

L'efficacité d'un AG dépend de la personnalisation des paramètres aux problèmes particuliers. Parmi les idées qui ont été introduites sont la graduation de forme physique, l'intervalle de génération, la sélection luxuriante, et les critères de remplacement.

Les paramètres clés de l'AG, qui sont communs à toutes les stratégies ont été expliqué dans les sections postérieures, sont la taille de population dans chaque génération, le pourcentage de la population subissant la reproduction (r), le croisement (c), et la mutation (m), et le nombre de générations (NGEN).

Les valeurs des paramètres sont représentées dans les chaînes de caractères binaires. Si on suppose que cinq bits sont employés pour coder chacune des deux variables indépendantes, rendant de ce fait la longueur globale de chaîne de caractères égale à 10. Dans l'initialisation

de l'AG, des tailles de population de 10 et de 20 sont adoptées dans la simulation suivante. Des solutions sont aléatoirement produites dans la région de recherche exigée, en tant que combinaisons binaires (C_1 , C_2). La fonction objective est comme définie dans la prochaine section.

Puisque le but est de réduire au minimum la fonction objective et l'AG est de maximiser la fonction ajustable, il est simple de prendre la réciproque de la valeur de la fonction objective.

Si deux parents X et Y sont choisis, alors ils exécuteront le croisement avec une probabilité P_c définie généralement entre 0.70 et 0.80. Chaque nouvelle conception produite par le croisement exécutera la mutation avec une probabilité P_m égale à 0.001. Pour maintenir la meilleure solution trouvée pendant le processus de recherche et pour accélérer le processus de recherche, la mise à jour de nécessité population est appliquée, c.à.d. des conceptions avec les valeurs de probabilité les plus élevées seront choisies en tant que nouvelle population. Un critère d'arrêt approximatif de l'AG est utilisé ici. C'est-à-dire, si la meilleure solution est fixée dans 100 générations successives, la recherche génétique sera stoppée, donnant la meilleure conception X^* ainsi que sa véritable valeur objective $F(X^*)$ calculée avec l'expression explicite de la fonction objective.

Le tableau 3.1 présente les paramètres de l'algorithme génétique et leurs valeurs pour cette étude, comme suit :

Tableau 3.1. Paramètres de AG et ses valeurs

Paramètres	Valeurs
Taille de population	10, 20
Nombre de génération	100
Stratégie de sélection	binaires
Longueur de chromosome	10 bits
Type de croisement	Un point
Probabilité de croisement	0.70-0.80
Probabilité de mutation	0.01

3.6. Références du chapitre III

- [46] T. Kronberger, A. Ortner, W. Zulehner, H.J. Bart, *Computers Chem. Eng.* 1995, 19, 639.
- [75] Attarakih, M. M., Bart, H.-J., & Faqir, N. M. (2003b). Solution of the population balance equation for liquid-liquid extraction columns using a generalized fixed-pivot and central difference schemes.
- [87] Casamatta G., « Comportement de la population de gouttes dans une colonne d'extraction : Transport, rupture, coalescence et transfert de matière », Thèse de Docteur ès Sciences, INP Toulouse, (1981)
- [105] A. W. Mahoney, D. Ramkrishna, "Inverse Problem Modeling of Agglomeration, » Paper No.17d, A.I.Ch.E. Annual Meeting 2000, Los Angeles, November 12-17, 2000.
- [106] Goldberg, D. E., Genetic algorithms in searching, optimization, and machine learning (p. 1989). Reading, MA: Addison-Wesley.

CHAPITRE IV

RESULTATS ET DISCUSSION

Dans ce chapitre, tous les résultats obtenus dans cette étude sont présentés et discutés. A priori les valeurs des paramètres de coalescence issus du travail d'optimisation sont déterminées.

4.1. Détermination des paramètres de coalescence

En effet les paramètres de coalescence ont été estimés à partir des résultats expérimentaux obtenus par le biais du dispositif pilote expérimental des départements du génie des procédés des universités de Munich où la colonne est de type Kühni, et de Kaiserslautern (Allemagne) où elle est plutôt de type RDC (Allemagne), comme montré dans la figure 4.1 suivante:

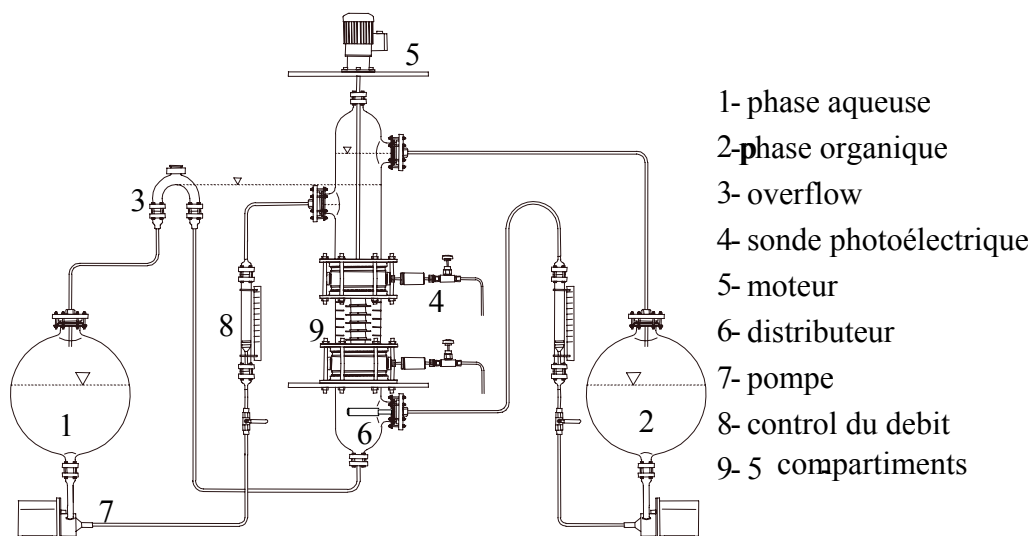


Figure 4.1. Installation expérimentale (coalescence)

La colonne d'extraction utilisée se compose de cinq compartiments et dont les caractéristiques sont montrées dans le tableau suivant :

Tableau 4.1. Caractéristiques de la colonne pilote et conditions opératoires

	Colonne RDC	Colonne Kühni
	Kaiserslautern	Munich
Diamètre de la colonne, mm	150	150
Hauteur des compartiments, mm	30	70
Partie active, mm	1740	2520
Diamètre de la turbine, mm	90	85
Transparence des plateaux, %	/	27
Vitesse du rotor, 1/min	300	160
Energie de dissipation, W/kg	0.0788	0.0788

Les distributions des tailles de gouttes ont été mesurées à l'admission et à la sortie de la colonne. Selon les taux de solvant et la vitesse de rotation, les gouttes ont été détectées avec une sonde photoélectrique d'aspiration.

Comme mentionné auparavant, les expériences dans la colonne ont été effectuées avec les systèmes toluène/eau et n-acétate de butyle/eau, dont les propriétés physiques utilisées pour le calcul des paramètres de coalescence, sont montrées dans le tableau suivant :

Tableau 4.2. Propriétés physiques des systèmes

Systèmes	μ_x (mPa)	μ_y (mPa)	ρ_x (kg m ⁻³)	ρ_y (kg m ⁻³)	σ mN m ⁻¹
Eau/n-acétate de butyle	0.73	1.34	881.5	998.9	14.0
Eau/toluene	0.59	1.00	865.6	997.7	36.1

Plusieurs vitesses de rotation et taux de solvant pour les systèmes toluène/eau et n-acétate de butyle/eau, ont été considérés pour estimer les constantes des modèles de coalescence, utilisant, le couplage des algorithmes décrits dans [107] et génétique [106], avec la technique généralisée du pivot fixe [74] ou bien celle de Galerkin pour résoudre le problème inverse du modèle de bilan de populations des gouttes, qui consiste en la minimisation des fonctions objectives suivantes S [108] et F [106] :

- Pour l'algorithme de Rosenbrock :

$$S = \sum_{k=1}^{NDC} [Q_3^{k,out}(exp) - Q_3^{k,out}(sim)]^2 \quad (4.1)$$

- Pour l'algorithme génétique :

$$F = 1.0 / (1.0 + S) \quad (4.2)$$

La distribution cumulative simulée Q_3 de sortie est corrélée avec les valeurs expérimentales en variant les paramètres de coalescence. Cette opération se poursuit jusqu'à ce que S et F atteignent un minimum, dont la valeur est proche de zéro. La figure 4.2 montre les distributions simulées de sortie pour trois conditions de fonctionnement par rapport aux distributions mesurées.



Figure 4.2. Optimisation des constantes de coalescence pour le système Toluène/Eau ($Q_c=100$ l/h), $Q_d=100$ l/h) à 273K.

Dans l'intervalle des erreurs de l'expérience, les valeurs moyennes des paramètres de coalescence pour les gouttes déformables ou indéformables sont obtenues pour le système toluène/eau en utilisant l'algorithme de Rosenbrock comme le montre le tableau suivant :

Table 4.3. Les paramètres de l'efficacité et du taux de collision pour les gouttes déformables (D) et indéformables (N)

	Q_c [l/h]	Q_d [l/h]	N [rpm]	C_1	C_2	C_3	C_4	h [x 10^9]	λ	O.F.
D	100	50	300	0,001	-	-	0,057	-	-	0,002
D	100	50	450	0,001	-	-	0,011	-	-	0,04
D	100	50	250	0,001	-	-	0,049	-	-	0,02
D	100	112	300	0,001	-	-	0,049	-	-	0,65
Moy.	-	-	-	0,001	-	-	0,0415	0.94	0.48	-
N	100	50	300	-	0,013	300	-	-	-	0,236
N	100	50	450	-	0,019	300	-	-	-	0,132
N	100	50	250	-	0,004	300	-	-	-	0,041
N	100	112	300	-	0,002	300	-	-	-	0,015
Moy.	-	-	-	-	0,0095	300	-	8.95	0.17	-

Pour les gouttes déformables, les meilleurs paramètres obtenus en utilisant l'algorithme génétique sont $c_1 = 0.001$ et $c_4 = 0.041$ pour le système toluène/eau et pour le système *n*-acétate de butyle /eau, sont $c_1 = 0.010$ et $c_4 = 0.011$, comme montré dans le tableau suivant:

Tableau 4.4. Résultats d’optimisation pour les systèmes toluène/eau et n-acétate de butyle/eau gouttes déformables

System	Toluène/eau						n-Acétate de butyle/eau					
Population	10			20			10			20		
ACCUMULATED STATISTICS	C ₁	C ₂	Fitness	C ₁	C ₂	Fitness	C ₁	C ₂	Fitness	C ₁	C ₂	Fitness
	1) .001	.041	.13611	1) .001	.041	.13655	1) .009	.011	.17599	1) .009	.011	.17568
	2) .001	.039	.13742	2) .001	.040	.13785	2) .010	.009	.17634	2) .009	.010	.17572
	3) .001	.040	.13928	3) .001	.041	.13492	3) .010	.010	.17684	3) .010	.011	.17653
	4) .001	.040	.13713	4) .001	.041	.13640	4) .009	.010	.17626	4) .010	.009	.17668
	5) .001	.040	.13871	5) .001	.039	.13551	5) .010	.010	.17668	5) .010	.010	.17630
	6) .001	.041	.13699	6) .001	.040	.13655	6) .009	.011	.17622	6) .010	.011	.17661
	7) .001	.040	.13669	7) .001	.039	.13669	7) .009	.010	.17614	7) .010	.010	.17653
	8) .001	.040	.13640	8) .001	.040	.13581	8) .009	.010	.17607	8) .010	.010	.17668
	9) .001	.041	.13756	9) .001	.039	.13785	9) .010	.011	.17637	9) .010	.011	.17672
	10) .001	.040	.13596	10) .001	.040	.13913	10) .009	.010	.17595	10) .009	.011	.17618
				11) .001	.039	.13814				11) .010	.010	.17645
				12) .001	.040	.13814				12) .010	.009	.17653
				13) .001	.040	.13742				13) .009	.009	.17595
				14) .001	.039	.13699				14) .009	.011	.17584
				15) .001	.040	.13566				15) .009	.010	.17599
				16) .001	.039	.13899				16) .009	.009	.17572
				17) .001	.039	.13669				17) .010	.010	.17645
				18) .001	.040	.13611				18) .009	.010	.17587
				19) .001	.040	.13871				19) .009	.011	.17603
				20) .001	.041	.13756				20) .009	.011	.17576
BEST SOLUTION	.001	.041		.001	.041		.010	.011		.010	.011	
POPULATION STATISTICS AT LAST GENERATION												
MAXIMUM FITNESS	.13928			.13913			.17684			.17672		
AVERAGE FITNESS	.13722			.13708			.17629			.17621		
MINIMUM FITNESS	.13596			.13492			.17595			.1756		
NUMBER OF CROSSEOVERS	500			1000			500			1000		
NUMBER OF MUTATIONS	5097			10100			5097			55334		
Population	10			20			10			20		
ACCUMULATED STATISTICS	C ₁	C ₂	Fitness	C ₁	C ₂	Fitness	C ₁	C ₂	Fitness	C ₁	C ₂	Fitness
	1) .001	.041	.13611	1) .001	.041	.13655	1) .009	.011	.17599	1) .009	.011	.17568
	2) .001	.039	.13742	2) .001	.040	.13785	2) .010	.009	.17634	2) .009	.010	.17572
	3) .001	.040	.13928	3) .001	.041	.13492	3) .010	.010	.17684	3) .010	.011	.17653
	4) .001	.040	.13713	4) .001	.041	.13640	4) .009	.010	.17626	4) .010	.009	.17668
	5) .001	.040	.13871	5) .001	.039	.13551	5) .010	.010	.17668	5) .010	.010	.17630
	6) .001	.041	.13699	6) .001	.040	.13655	6) .009	.011	.17622	6) .010	.011	.17661
	7) .001	.040	.13669	7) .001	.039	.13669	7) .009	.010	.17614	7) .010	.010	.17653
	8) .001	.040	.13640	8) .001	.040	.13581	8) .009	.010	.17607	8) .010	.010	.17668
	9) .001	.041	.13756	9) .001	.039	.13785	9) .010	.011	.17637	9) .010	.011	.17672
	10) .001	.040	.13596	10) .001	.040	.13913	10) .009	.010	.17595	10) .009	.011	.17618
				11) .001	.039	.13814				11) .010	.010	.17645
				12) .001	.040	.13814				12) .010	.009	.17653
				13) .001	.040	.13742				13) .009	.009	.17595
				14) .001	.039	.13699				14) .009	.011	.17584
				15) .001	.040	.13566				15) .009	.010	.17599
				16) .001	.039	.13899				16) .009	.009	.17572
				17) .001	.039	.13669				17) .010	.010	.17645
				18) .001	.040	.13611				18) .009	.010	.17587
				19) .001	.040	.13871				19) .009	.011	.17603
				20) .001	.041	.13756				20) .009	.011	.17576

La fiabilité de ces valeurs est testée dans les sections suivantes où elles sont utilisées pour calculer les paramètres clés pour le design des colonnes d’extraction liquide-liquide.

Pour chaque condition de fonctionnement et pour les systèmes étudiés (toluène/eau et n-acétate de butyle/eau), un ensemble de paramètre défini est obtenu. Les paramètres ne sont pas influencés par les conditions de fonctionnement, sont du même ordre de grandeur et sont spécifiques pour chaque système chimique. Par conséquent, la considération d'autres systèmes est nécessaire pour améliorer le modèle de coalescence. Cependant, en regard des limites de la précision expérimentale, les valeurs moyennes des paramètres obtenus, décrivent d'une manière satisfaisante, ces systèmes et ont été utilisées pour d'autres simulations.

4.2. Résultats de la modélisation des colonnes d'extraction liquide-liquide

Les résultats obtenus par le biais de la modélisation sont présentés et discutés selon trois parties. La première partie traite la validation du modèle de la probabilité de rupture en comparant les résultats issus du couplage entre la méthode de Galerkin et des volumes finis, avec les valeurs expérimentales et ce à différentes vitesses de rotation du rotor et différents taux de solvant dans la colonne RDC [33]. La seconde partie concerne la comparaison entre le comportement des deux types de colonne considérés (RDC et Kühni), mises dans les mêmes conditions opératoires et de fonctionnement. La dernière partie est une tentative de considération des différentes situations possibles d'écoulement par rapport au processus de coalescence pour les gouttes indéformables et déformables [8, 9].

Les simulations des opérations de ces deux types de colonnes sont basées sur les systèmes ternaires eau-acétone-toluène et eau-acétone-acétate de butyle qui sont recommandés comme systèmes test par la fédération européenne du génie chimique (EFCE) pour l'étude de l'extraction liquide-liquide [109, 110]. Cependant ce travail considère seulement la simulation de hydrodynamique, excluant le transfert de matière. Les propriétés physiques de l'eau, du toluène et du n-acétate de butyle sont données dans le tableau 4.2 avec l'eau comme phase continue et le toluène ou le n-acétate de butyle comme phase dispersée. Les conditions de fonctionnement et les dimensions de chacune des colonnes sont présentées dans le tableau 4.1.

Pour la première partie, le procédé de validation a été suivi par l'étude de l'influence des conditions de fonctionnement telles que le taux de solvant ou l'intensité de l'agitation sur les paramètres hydrodynamiques tels que le hold-up et le diamètre de Sauter.

Dans les Figures 4.3 et 4.4, les résultats de la simulation et les données expérimentales pour la colonne RDC sont présentés. La simulation inclue la dispersion axiale, la rupture et la coalescence. Le coefficient axial de dispersion pour la phase dispersée a été déterminé selon la corrélation de Rod [111]; et pour la phase continue, il est pris selon [112].

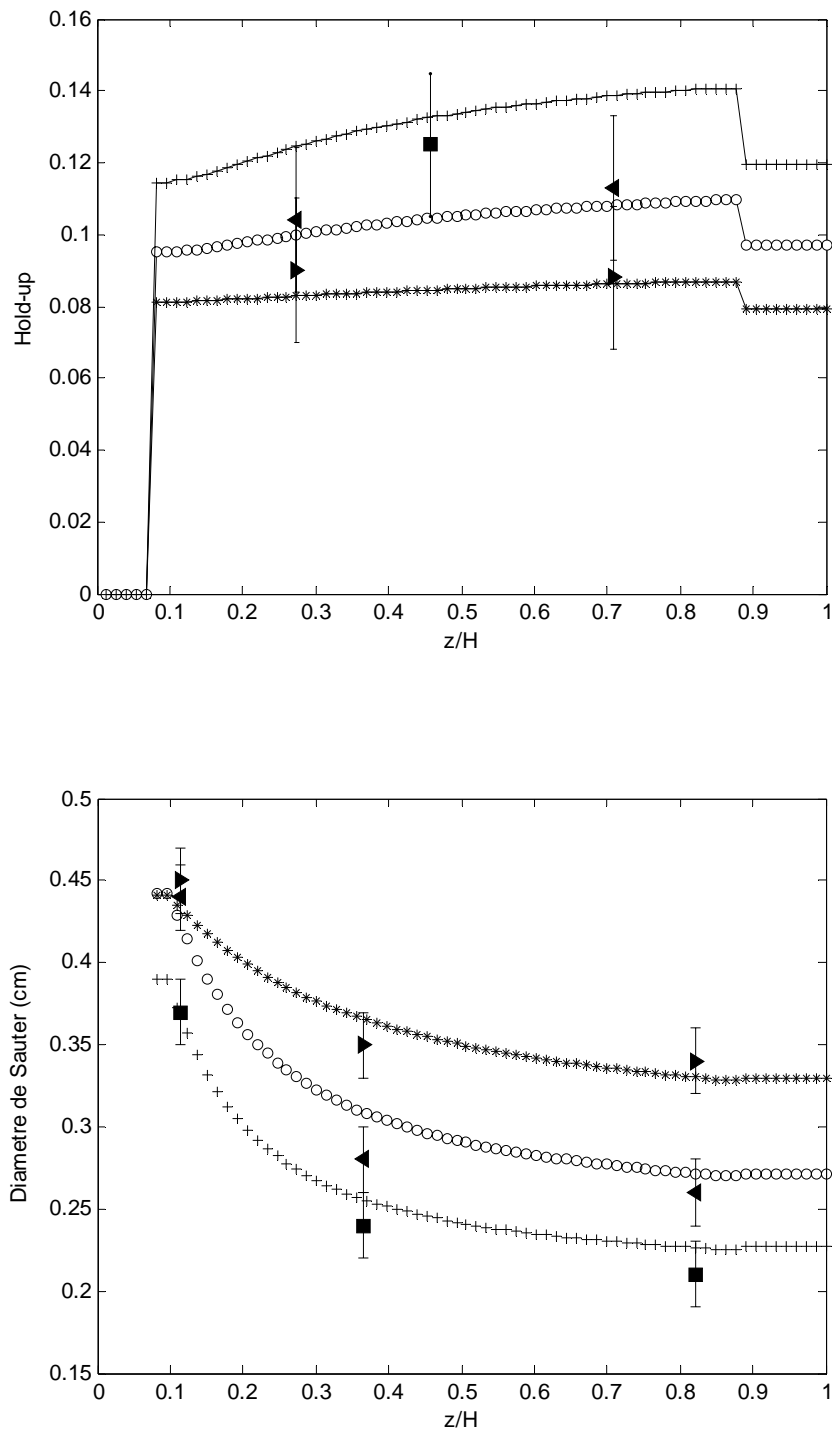


Figure 4.3. Comparaison dans la colonne RDC des hold-up et des diamètres de Sauter calculés avec les valeurs expérimentales. Influence de l'effet de l'agitation (QC=100 l/h, Qd=112 l/h), (250 r.p.m.-* - Sim. -▶ - Exp.), (300 r.p.m. -o- Sim.-◀- Exp.) (350 r.p.m. -+- Sim. -■- Exp.).

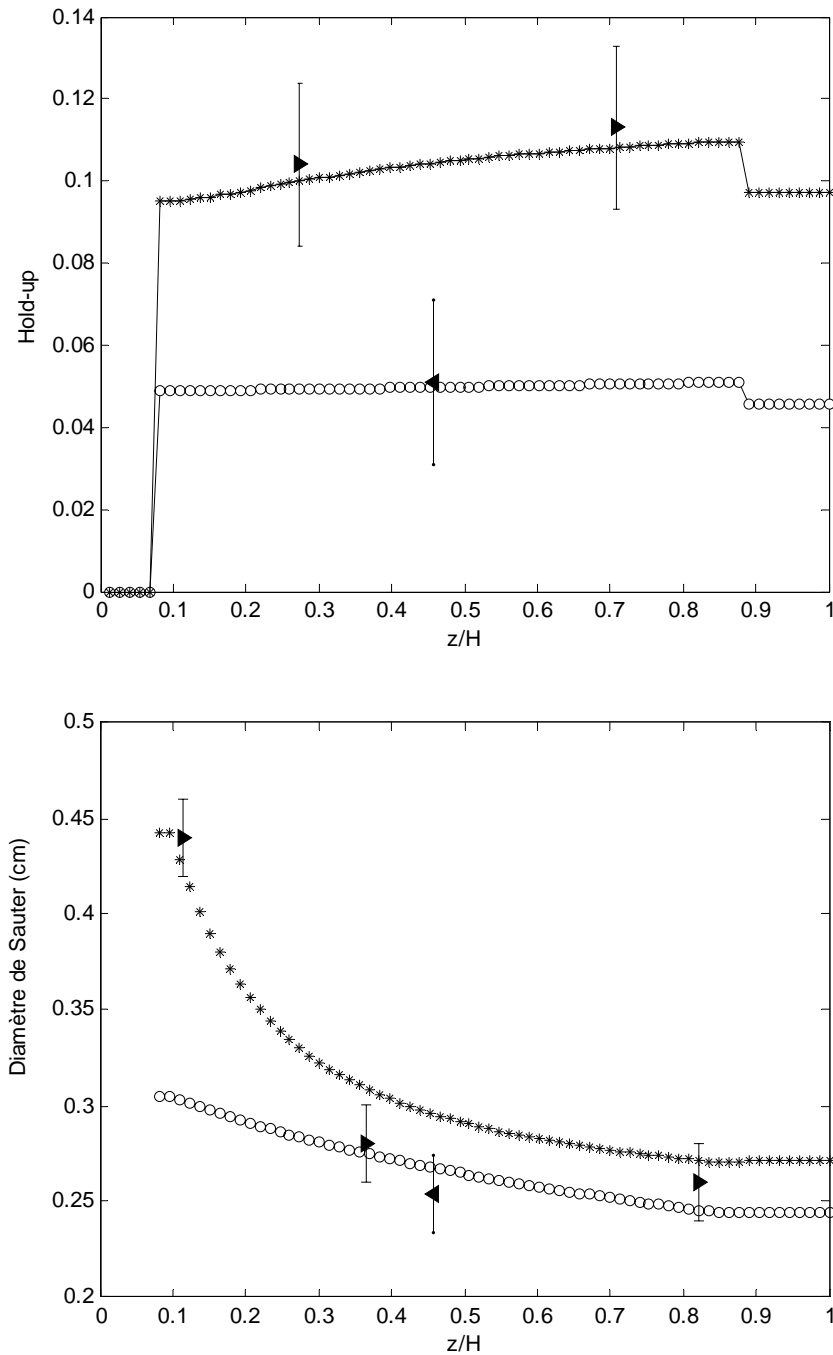


Figure 4.4. Comparaison dans la colonne RDC des hold-up et des diamètres de Sauter calculés avec les valeurs expérimentales. Influence de l'effet de solvant. (300 r.p.m), ($Q_c=100 \text{ l/h}$, $Q_d=112 \text{ l/h}$) -*- Sim. - \blacktriangleright - Exp., ($Q_c=100 \text{ l/h}$, $Q_d=56 \text{ l/h}$) -o- Sim. - \blacktriangleleft - Exp.).

Clairement l'augmentation de la vitesse d'agitation encourage la rupture des gouttes et réduit considérablement leurs coalescences. Ceci a comme conséquence des gouttes avec des petites tailles moyennes et par conséquent une rétention considérable et des faibles diamètres de Sauter, comme l'illustre la figure 4.3. Sur la figure 4.4, on peut voir qu'une augmentation ($Q_d = 56$ l/h, $Q_d = 112$ l/h) du taux de solvant a également des effets significatifs sur la rétention et les profils de diamètre de Sauter. Plus le taux de solvant de la phase dispersée augmente, et plus les rétentions et les diamètres de Sauter sont plus élevés. De ces figures, on peut conclure que les résultats prévus pour la rétention et le diamètre de Sauter sont dans une concordance tout à fait acceptable avec les valeurs expérimentales.

Pour la deuxième partie de l'étude, et dans le cas d'une énergie de dissipation identique pour les deux colonnes ($\varepsilon = 0.0788$ (W/kg)) et approximativement dans les mêmes conditions des débits d'alimentations adoptés dans la figure 4.3, et des classes des diamètres des gouttes qui sont considérés. La figure 4.5 montre que la rétention et le diamètre de Sauter moyen sont

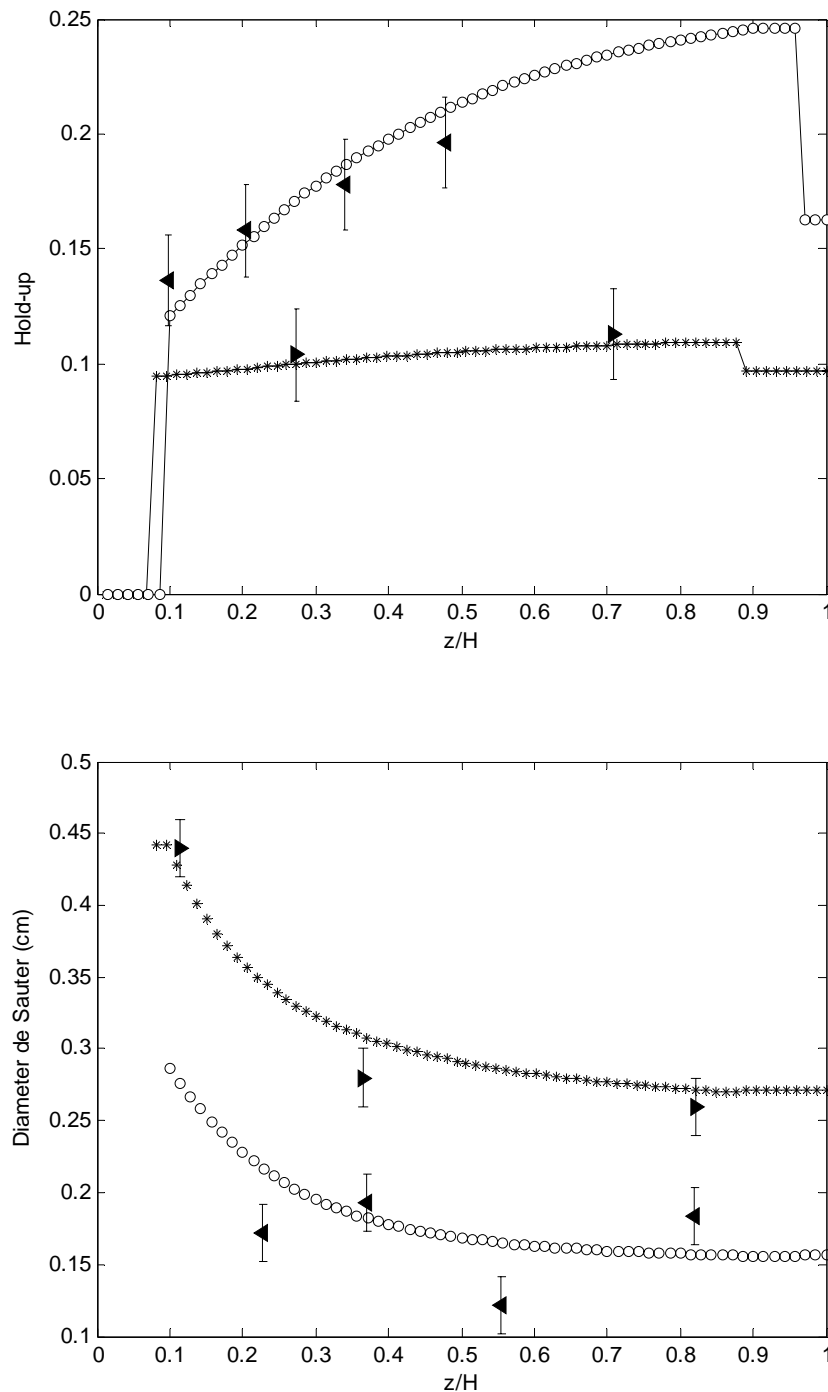
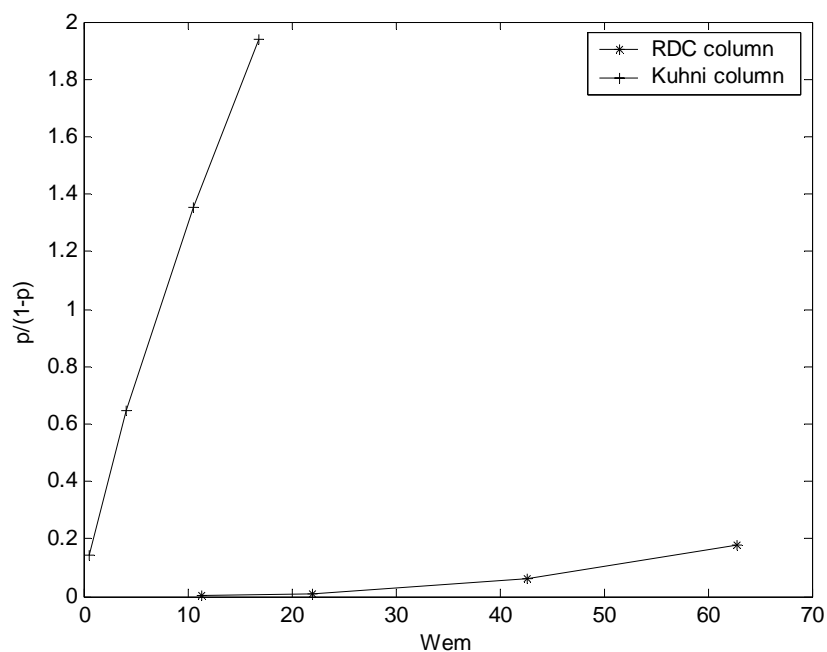


Figure 4.5. Comparaison des Hold-up et des diamètres de Sauter calculés avec les valeurs expérimentales. RDC (-*- Sim. -►- Exp.) and Kühni (-O- Sim. -◄- Exp.).

tracés en fonction de la hauteur adimensionnelle de la colonne. On peut voir que le profil de la rétention est plus efficace dans la colonne de Kühni que dans la colonne RDC. Le diamètre moyen de Sauter est plus faible avec la colonne de Kühni qui est plus efficace, et qui est en bon accord avec les valeurs expérimentales [33,113].

La Figure 4.6 montre les différentes dépendances de la probabilité de rupture $p/(1-p)$ en fonction du nombre de Weber modifié. Elle indique une interprétation physique réaliste de la rupture selon les équations 2.23 et 2.30, pour les colonnes RDC et Kühni, respectivement ainsi que la dépendance entre la rupture et le nombre de Reynolds du rotor et les dimensions de la colonne qui peut être aussi examinée. Le calcul du rapport (D_C/H_C) pour les deux colonnes est de 0.2 et 0.45 pour la colonne RDC et la colonne Kühni, respectivement, correspondant à une augmentation de pente comme illustré par la figure 4.6. Le calcul de ReR donne 20900 et 43900 pour la colonne Kühni et la colonne RDC, respectivement, et les différentes intensités d'écoulement peuvent être significatives dans les compartiments qui ont différentes géométries (Tableau 4.1). La figure 4.6 montre que la pente pour la colonne Kühni est plus grande que pour la colonne RDC. Ceci implique que la rupture est plus importante dans la colonne Kühni. Ce qui peut être également expliqué par les profils représentés au niveau de la figure 4.5.



Dans la troisième partie, la rétention et les profils des diamètres de Sauter sont représentés en fonction de la hauteur adimensionnelle de la colonne. La figure 4.7 concerne la colonne Kühni pour le cas des gouttes déformables avec une interface parallèle et partiellement mobile (cas visqueux).

Les figures 4.8, 4.9, 4.10 et 4.11 concernent le cas inertiel pour les deux systèmes pour des gouttes déformables et indéformables à interface partiellement mobile dans la colonne RDC. Les résultats obtenus pour les estimations des paramètres de coalescence avec

les algorithmes de Rosenbrock et génétique sont représentés sur les figures 4.8 et 4.9 pour le premier et 4.10 et 4.11 pour le deuxième.

Différentes situations telles que la rupture seulement, la coalescence seulement et aucune rupture et coalescence sont considérées. Ces résultats peuvent être considérés comme une analyse de sensibilité du modèle basé sur le concept d'un bilan de population avec les paramètres qui en dérivent et la validation par les données expérimentales.

Le premier cas sans la coalescence et seulement la rupture mène à des plus petites gouttes qui ont des plus petites vitesses de glissement et un plus grand temps de séjour. Par conséquent la rétention dans la colonne augmente et le diamètre de Sauter diminue.

Pour le cas inverse, en l'absence de ruptures, les gouttes avec un grand diamètre sont plus présentes. Ceci mène à une rétention faible et à un diamètre plus élevé de Sauter comme le montre les figures 4.7, 4.8, 4.9 et 4.10.

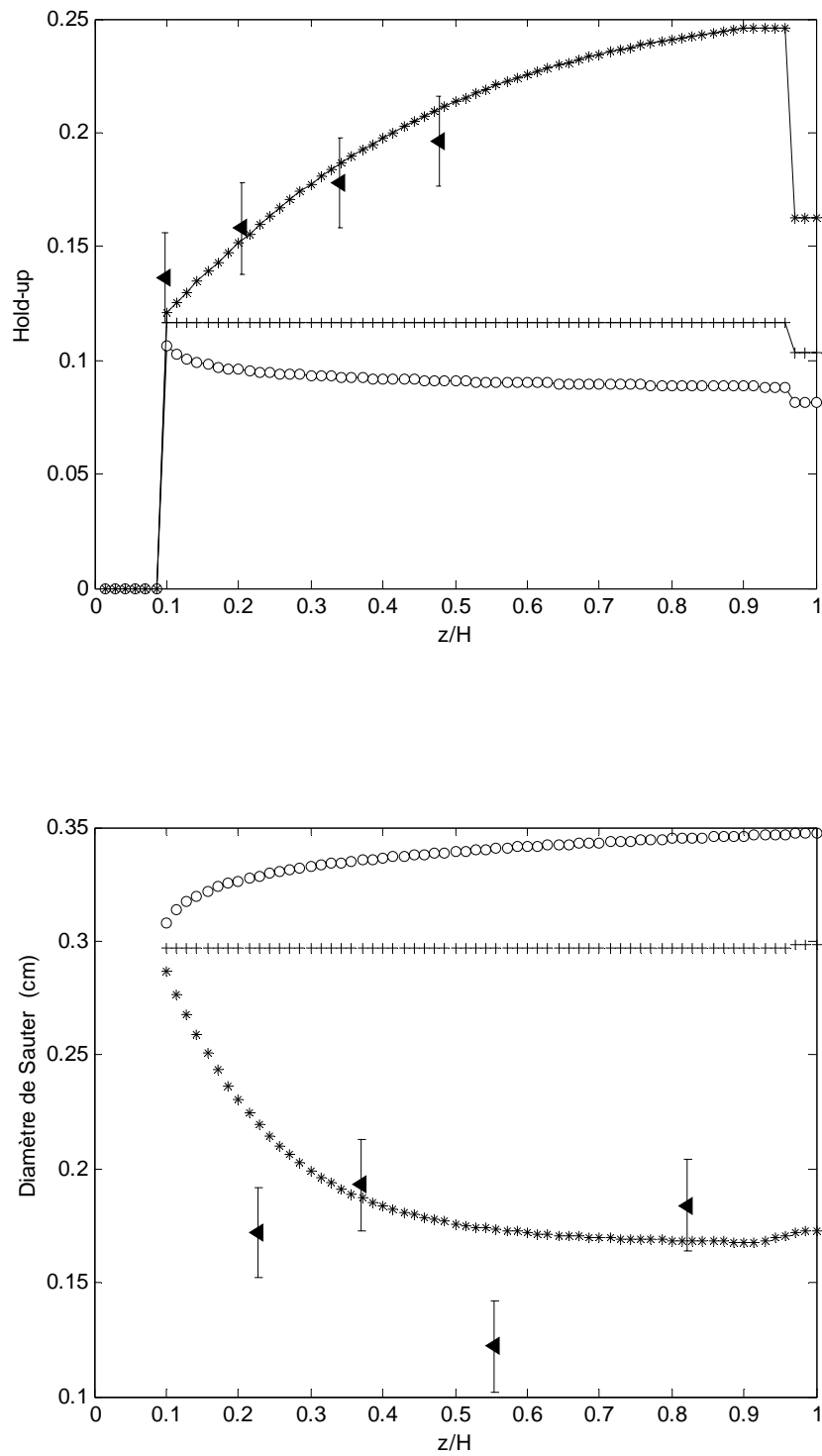


Figure 4.7. Influence de la rupture et coalescence sur le hold-up et diamètres de Sauter dans la colonne Kühni (-*- Sim. -◄- Exp. rupture), (-o- Sim. coalescence), (+- Sim. Pas de rupture et coalescence) $\varepsilon = 0.0788$ W/kg, ($Q_c = 125$ l/h, $Q_d = 130$ l/h).

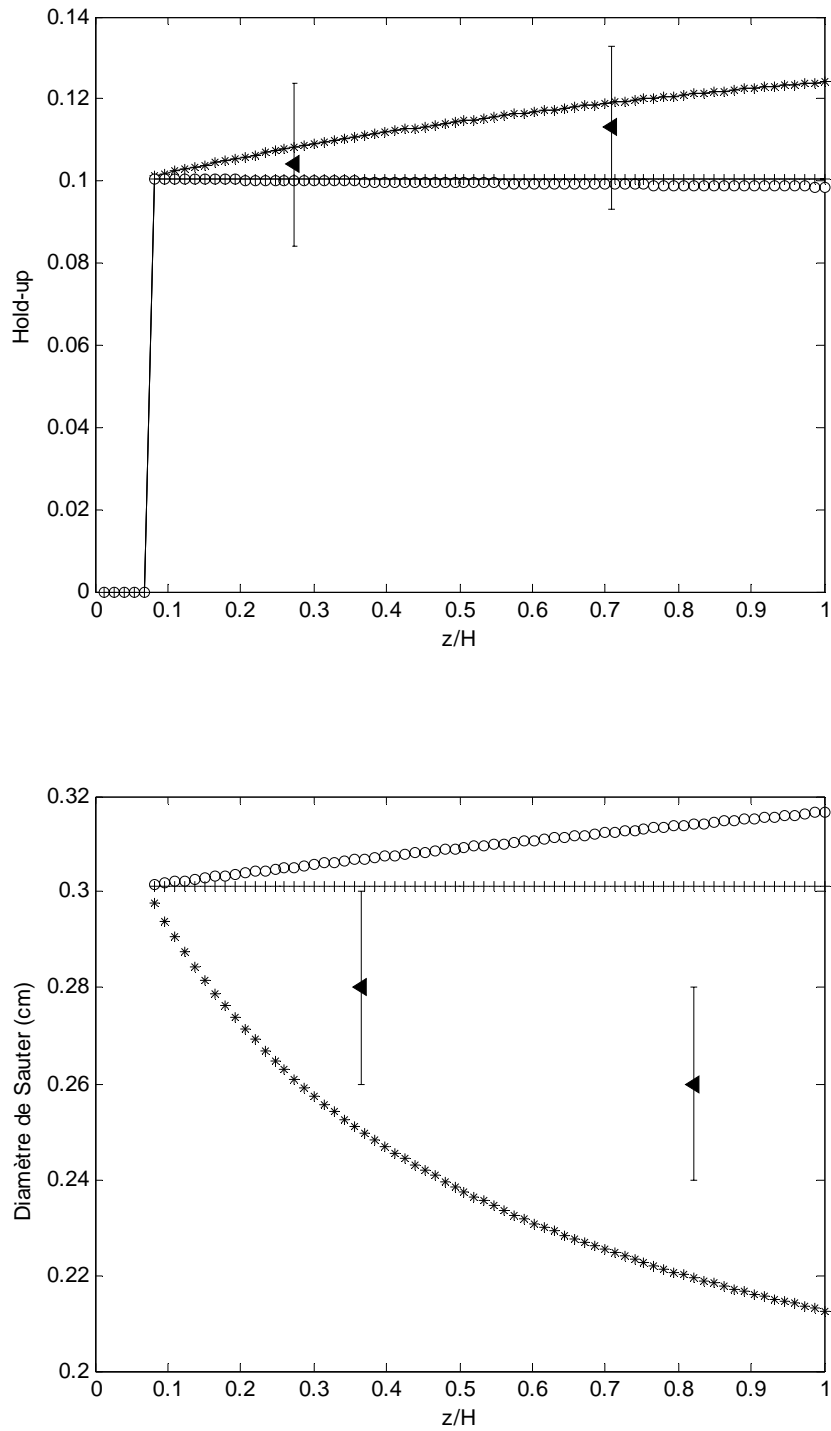


Figure 4.8. Influence de la rupture et de la coalescence sur le hold-up et le diamètre de Sauter dans la colonne RDC $N=300$ r.p.m. ($Q_c=100$ l/h, $Q_d=112$ l/h) (-*- Sim. -◀- Exp Rupture), (-o- Sim. coalescence), (-+- Sim. Pas de rupture et de coalescence)

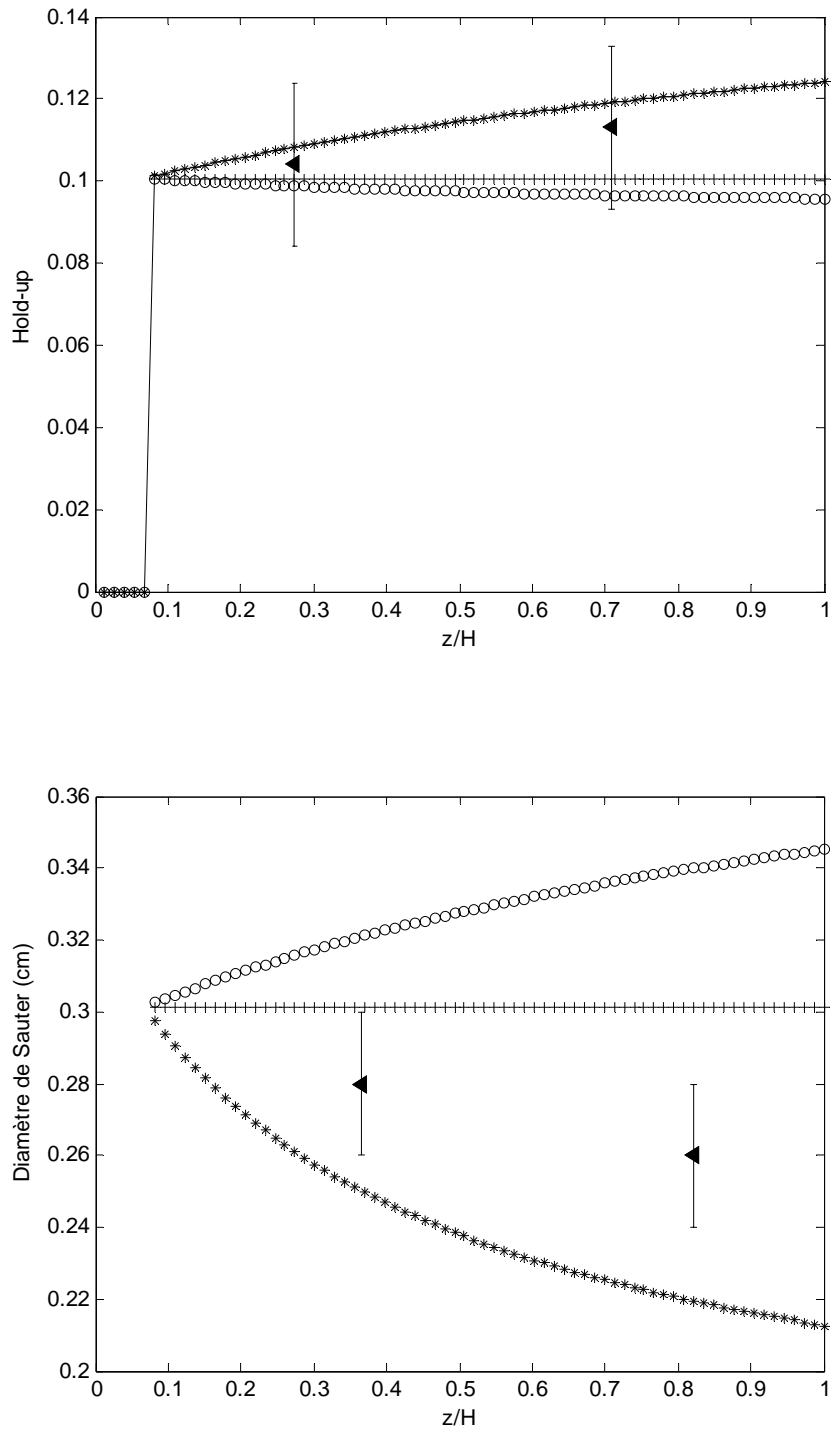


Figure 4.9 Influence de la rupture et de la coalescence sur le hold-up et le diamètre de Sauter dans la colonne RDC $N=300$ r.p.m. ($Q_c=100$ l/h, $Q_d=112$ l/h) (-*- Sim. -◄- Exp Rupture), (-o- Sim. coalescence), (-+- Sim. Pas de rupture et de coalescence)

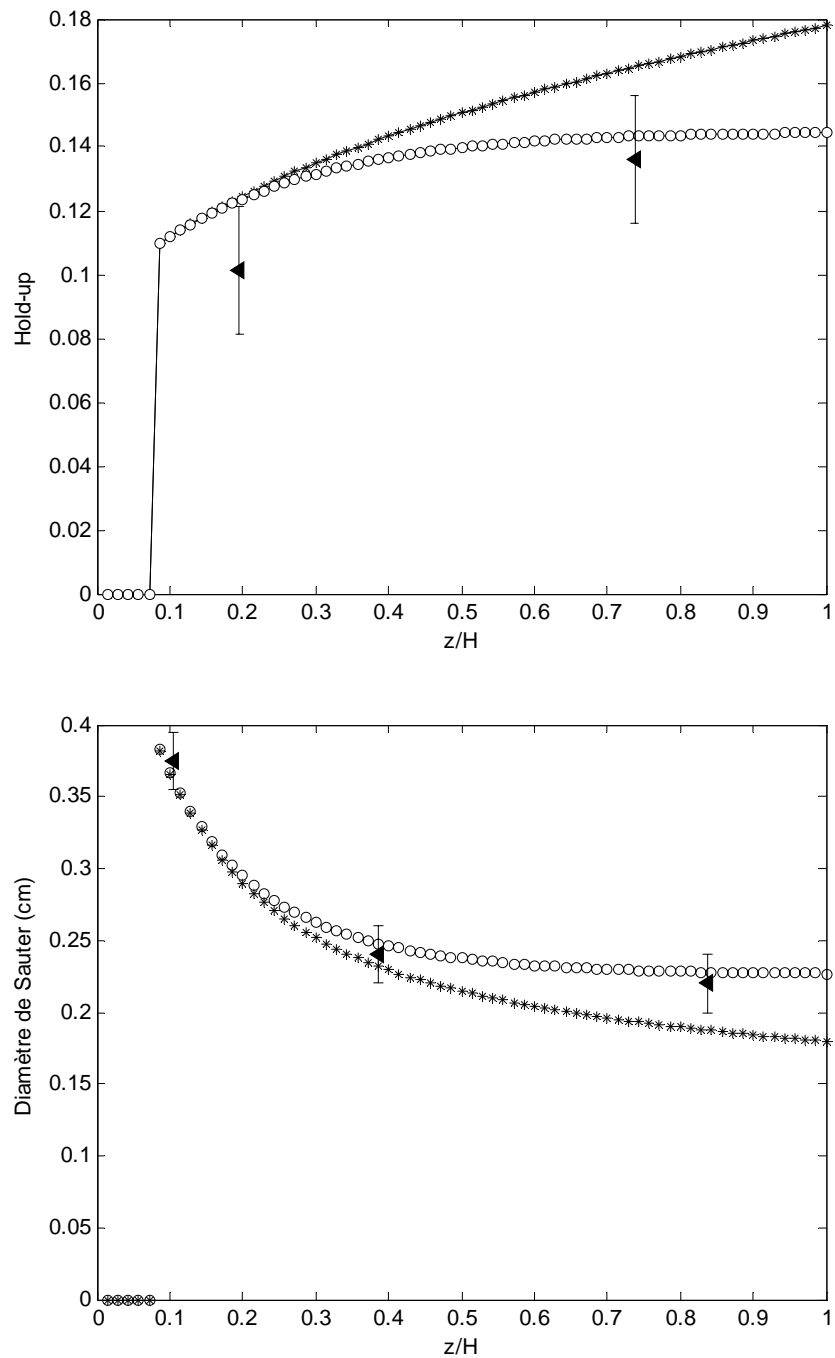


Figure 4.10. Influence de la rupture et de la coalescence sur le hold-up et le diamètre de Sauter pour le système toluène/eau. $N=350$ r.p.m. ($Q_c=100$ l/h, $Q_d=112$ l/h). (-O- Sim. -◄- Exp. Rupture et coalescence), (-*- Sim. Rupture)

La figure 4.11 montre l'influence de l'effet d'agitation sur le hold-up et le diamètre de Sauter comme déjà discuter dans la première partie de cette étude.

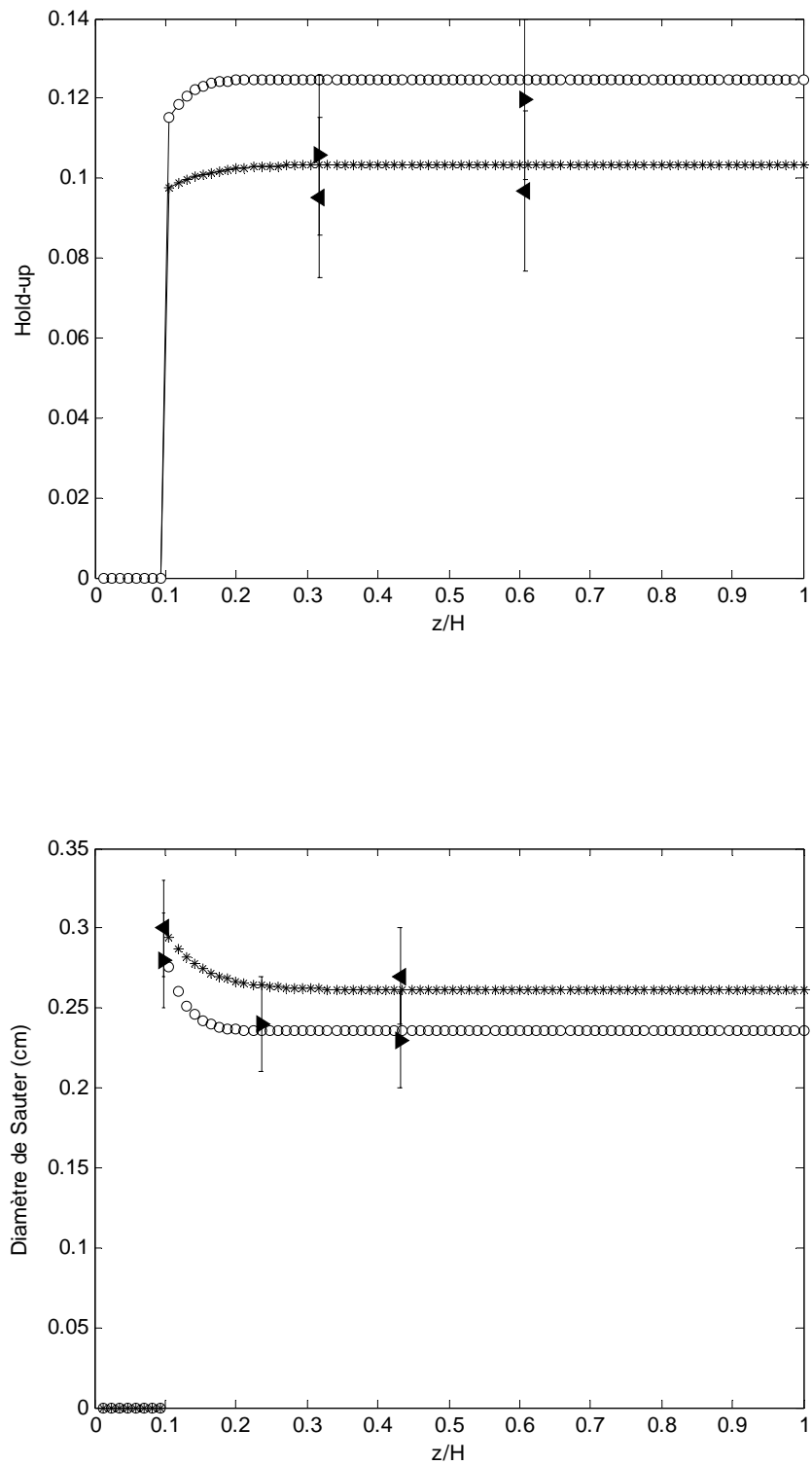


Figure 4.11. Comparaison des Hold-up et des diamètres de Sauter calculés avec les valeurs expérimentales pour le système n- acétate de butyle/eau. Influence de l'effet d'agitation ($Q_c=100$ l/h, $Q_d=112$ l/h), (250 r.p.m.-O- Sim. -►- Exp.), (200 r.p.m. -* - Sim.-◄- Exp.)

4.3 Références citées dans le chapitre IV

- [8] A.K. Chesters, *Trans. IchemE* 1991, 69, 259.
- [9] R.H. Davis, J.A. Schonberg, and J.M. Rallison, *Phys. Fluids A1* 1989, 77 (1).
- [33] G. Modes, *Grundsätzliche Studie zur Populationsdynamik Extraktionskolonne auf Basis von Einzeltröpfchenuntersuchungen*. Shaker Verlag 2000, Aachen.
- [74] M. Attarakih, H.-J. Bart, N. M. Faqir, *Solution of the population balance equation for liquid-extraction columns using a generalized fixed-pivot and central difference schemes*. in European Symposium on Computer Aided Process Engineering. Kraslawski, A. & Turunen, I. (Eds). Elsevier, Amsterdam 2003, 13, 557.
- [106] Goldberg, D. E. (1989). Genetic algorithms in searching, optimization, and machine learning (p. 1989). Reading, MA: Addison-Wesley.
- [107] H.H. Rosenbrock. *Comp. J.* 1960, 175.
- [108] L. Lagar Garcia, *Studienarbeit*, TU Kaiserslautern 2003.
- [109] T. Misek, R. Berger, J. Schröter, *Standard Test Systems for Liquid Extraction*, The Inst. Chem. Engineers, Rugby, 1978 (<http://www.icheme.org/learning:/Feb> 2002).
- [110] H.J. Bart, T. Misek, M.J. Slater, J. Schröter, B. Wachter, *Recommended Systems for Liquid Extraction Studies*, in *Liquid-Liquid Extraction Equipment*, J.C. Godfrey and M.J. Slater, (eds), John Wiley & Sons, London 1994.
- [111] V. Rod, *Coll. Czech. Chem. Commun.* 1968, 33, 2855.
- [112] A. Kumar, S. Hartland, *Empirical prediction of operating variables*, in: *Liq.-Liq. Extraction Equipment*, J.G. Godfrey, M.J. Slater, (eds.), J. Wiley & Sons, Chichester, 1994, 625.
- [113] Zamponi, *Das dynamische Verhalten einer gerührten Solventextraktionskolonne*. Shaker Verlag, Aachen 1996.

CONCLUSION GENERALE

Les corrélations de rupture des gouttes déterminées précédemment par l'écoulement de cisaillement en utilisant le model de la goutte unique pour des géométries de la colonne RDC et la colonne Kühni qui peuvent être mises en application dans un modèle de bilan de population de gouttes. Ceci donne une occasion de simuler le comportement hydrodynamique des colonnes pilotes sans des paramètres ajustables. La comparaison entre les deux types de colonnes dans la même gamme d'énergie de dissipation donne une rétention plus élevé pour la colonne Kühni que pour la colonne RDC, inversement pour le diamètre de Sauter. Ceci peut être expliqué par le fait que l'efficacité des turbines de la colonne Kühni est plus haute que celle des disques de la colonne RDC, et ceci est un résultat raisonnable.

La simulation de l'hydrodynamique des colonnes d'extractions a besoin de la connaissance de la dispersion axiale, de la vitesse de glissement des phases pour une certaine géométrie de colonne et des phénomènes d'interactions des gouttes, qui est la rupture et la coalescence. Pour les colonnes d'extractions Kühni et RDC les relations hydrodynamiques standard publiées pour la dispersion axiale des deux phases et de la vitesse de glissement ont été employées jusqu'ici. La rupture des gouttes a été calculée sur la base d'un nombre de Weber modifié par Cauwenberg et autres [31] et adaptés pour des géométries spécifique des colonnes par Modes [33] et Simon et autres [103, 104]. Une nouvelle tentative a été développé est d'évalué l'hydrodynamique de l'essaim des gouttes dans ces deux colonnes d'extractions agitées en utilisant des modèles de coalescence basés sur le drainage du film pour des gouttes indéformables et déformables avec des interfaces partiellement mobiles à l'aide de l'approximation de lubrification de Chesters [8]. Dans le domaine des expériences on l'a constaté que les valeurs obtenues des paramètres de coalescence décrivent d'une manière satisfaisante les systèmes toluène/eau et n-butylacetate/eau.

L'analyse inclut aussi une comparaison aux mêmes conditions opératoires des colonnes. L'énergie de dissipation indique des différentes efficacités des deux colonnes. Une analyse de sensibilité tenant compte de la coalescence ou de la rupture ou ni l'un ni l'autre de elles ci,

indique l'influence du système chimique utilisé dans deux géométries différentes. Cependant, ce travail est nécessaire pour obtenir une plus grande base de données avec différents systèmes EFCE pour les systèmes d'essais test, où le isododecane/eau est un candidat à l'essai pour sa grande viscosité.

Dans cette thèse on a exploré l'utilisation de l'algorithme génétique à fin d'estimer les paramètres de coalescence pour l'extraction liquide-liquide. L'approche systématique de l'algorithme génétique pour résoudre le problème inverse a été proposée et mise en application. Les résultats ont prouvé que la méthode de GA a éliminé des calculs complexes et s'est avérée être un outil pertinent dans le calcul de ces paramètres.

Dans cette thèse un algorithme intégré d'optimisation-simulation a été développé à, inversement, estimez les paramètres de coalescence et avez été appliqué à la simulation d'hydrodynamique basée sur le modèle de bilan de population de gouttes dans l'écoulement liquide-liquide biphasiques pour deux systèmes. L'algorithme tient compte du calcul des dérivés de la solution en ce qui concerne les coefficients empiriques du modèle. Dès que les dérivés paramétriques seront connus, une méthode d'algorithme génétique d'optimisation efficace peut être employée pour réduire au minimum la différence entre les résultats observés et numériques, c'est-à-dire, les paramètres empiriques inconnus du modèle peuvent être extraits à partir des données expérimentales disponibles. Cent itérations de l'algorithme génétique sont exigées pour identifier les coefficients inconnus. Les coefficients identifiés sur la base d'un ensemble de données expérimentales peuvent être employés pour prévoir le comportement de ces deux systèmes dans différentes conditions d'exécution.

L'algorithme proposé fournit également des informations au sujet de la sensibilité de la solution aux paramètres du modèle; cette information peut être employée pour décider quels paramètres doivent être identifiés dans la meilleure solution.

Actuellement, cet outil pour la simulation permet une interprétation et une compréhension des divers phénomènes implicites dans les opérations des colonnes d'extractions liquide-liquide et essentiellement pour le calcul de dimensionnements de ces appareils.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] H. W. Brandt, K.-H. Reissinger and J. Schröter, *Chem. Eng. Tech.* 1978, 50, 345.
- [2] T. C. Lo, M. H. I. Baird and C. Hanson, Eds., *Handbook of Solvent Extraction*. J. Wiley & Sons, New York 1983.
- [3] J. C. Godfrey and M. J. Slater, Eds., *Liquid-Liquid Extraction Equipment*. J. Wiley & Sons, Chichester 1994.
- [4] L. A. Robins and R. W. Cusack, *Liquid-Liquid Extraction Operations and Equipment*. Perry's Chemical Engineers' Handbook. R. H. Perry and D. W. Green, Eds. New York, McGraw Hill 1997, 15/1.
- [5] T. Kronberger, A. Ortner, W. Zulehner, H.J. Bart, *Computers Chem. Eng.* 1995, 19, 639.
- [6] C. Tsouris, L.L. Tavlarides, *AIChE J.* 1994, 40, 395.
- [7] C. Tsouris, L.L. Tavlarides, *Chem. Eng. Sci.* 1993, 48, 1503.
- [8] A.K. Chesters, *Trans. IChemE* 1991, 69, 259.
- [9] R.H. Davis, J.A. Schonberg, and J.M. Rallison, *Phys. Fluids A1* 1989, 77 (1).
- [10] M. Simon, H.-J. Bart, *Chem. Eng. Technol.* 2002, 25, 481.

- [11] Hulbert, H., & Katz, S. (1964). Some problems in particle technology. A statistical mechanical formulation. *Chem. Eng. Sci.*, 19, 555-574.
- [12] Valentas, K. J., & Amundson, A. R. (1966). Breakage and coalescence in dispersed phase systems. *Ind.Eng. Chem. Fundam.*, 5, 533-542.
- [13] Motz, S., Mitrovic, A., & Gilles, E.-D. (2002). Comparison of numerical methods for the simulation of dispersed phase systems. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 4329-4344.
- [14] Puel, F., Fevotte, G., & Klein, J. P. (2003). Simulation and analysis of industrial crystallization processes through multidimensional population balance equations. Part 1: a resolution algorithm based on the method of classes. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 3715-3727.
- [15] Campos, F. B., & Lage, P. L. C. (2003). A numerical method for solving the transient multidimensional population balance equation using Euler-Lagrange formulation. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 2725-2744.
- [16] Modes, G., Bart, H.-J., Rodrigue-Perancho, D., & Broder, D. (1999). Simulation of the fluid dynamics of solvent extraction columns from single droplet parameters. *Chem. Eng. Tech.*, 22, 231-236.
- [17] Gerstlauer, A., (1999): Herleitung und Reduktion populationsdynamischer Modelle am Beispiel der Flüssig-Flüssig-Extraktion. Fortschritt-Berichte VDI Reihe, 3, 612.
- [18] Coulaloglou, C. A. , & Tavlarides, L. L. (1977). Description of interaction processes in agitated liquidliquid dispersions. *Chem. Eng. Sci.*, 32, 1289-1297.
- [19] Chatzi, E. , & Lee, J. M. (1987). Analysis of interactions for liquid-liquid dispersions in agitated vessels. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 26, 2263-2267.
- [20] Alatiqi, I., Aly, G., Mjalli, F., & Mumford, C. J. (1995). Mathematical modeling and steady-state analysis of a Scheibel extraction column. *Can. J. Chem. Eng.*, 73, 523-533.
- [21] Weinstein, O., Semiat, R., & Lewin, D. R. (1998). Modeling, simulation and control of liquid-liquid extraction columns. *Chem. Eng. Sci.*, 53, 325-339.

- [22] Al Khani, S. D., Gourdon, C., & Casamatta, G. (1988). Simulation of hydrodynamics and mass transfer of disks and rings pulsed column. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 27, 329-333.
- [23] Tsouris, C., Kirou, V. I., & Tavlarides, L. L. (1994). Drop size distribution and hold-up profiles in a multistage extraction column. *AIChE J.*, 40, 407-418.
- [24] Alopaeus, V., Koskinen, J., Keskinen, K. I., & Majander, J. (2002). Simulation of the population balances for liquid-liquid systems in a non ideal stirred tank: Part 2- parameter fitting and the use of multiblockmodel for dense dispersions. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 1815-1825.
- [25] Kentish, S. E., Stevens, G. W., & Pratt, H. R. C. (1998). Estimation of coalescence and breakage rate constants within a Kühni column. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 37, 1099-1106.
- [26] Steiner, L., Bamelli, M., & Hartland, S. (1999). Simulation of hydrodynamic performance of stirred extraction column. *AIChE J.*, 45, 257-267.
- [27] Casamatta, G., & Vogelpohl, A. (1985). Modelling of fluid dynamics and mass transfer in extraction columns. *Ger. Chem. Eng.*, 8, 96-103.
- [28] Al Khani, S. D., Gourdon, C., & Casamatta, G. (1989). Dynamic and steady-state simulation of hydrodynamics and mass transfer in liquid-liquid extraction column. *Chem. Eng. Sci.*, 44, 1295-1305.
- [29] Cabassud, M., Gourdon, C., & Casamatta, G. (1990). Single drop break-up in a Kühni column. *Chem. Engng. J.*, 44, 27-41.
- [30] Mohanty, S. (2000). Modeling of liquid-liquid extraction column: A review. *Rev. Chem. Eng.*, 16, 199-248.
- [31] Cauwenberg, V., Degreve, J., & Slater, M. J. (1997). The interaction of solute transfer, contaminants and drop break-up in rotating disc contactors: Part I. Correlation of drop breakage probabilities. *Can. J. Chem. Eng.*, 75, 1046-1055.

- [32] Colella, D., Vinci, D., Bagatin, R., & Masi, M. (1999). A study on coalescence and breakage mechanisms in three different bubble columns. *Chem. Eng. Sci.*, 54, 4767-4777.
- [33] Modes, G., (2000): Grundsätzliche Studie zur Populationsdynamik einer Extraktionskolonne auf Basis von Einzeltropfenuntersuchungen, Dissertation, Shaker Verlag.
- [34] Biggs, C. A., & Lant, P. A. (2002). Modelling activated sludge flocculation using population balances. *Powder Tech.*, 14, 201-211.
- [35] Bart, H.-J. (2003). Reactive extraction in stirred columns: A review. *Chem. Eng. Tech.*, 26, 723-731.
- [36] Desnoyer, C., Masbernat, O., & Gourdon, C. (2003). Experimental study of drop size distribution at high phase ratio in liquid-liquid dispersions. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 1353-1363.
- [37] Mignard, D., Amin, L., & Ni, X.-D. (2003). Population balance modelling of droplets in an oscillatory baffled reactor- using direct measurements of breakage rates constants. *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, 78, 364-369.
- [38] Schmidt, S., Simon, M., & Bart, H.-J. (2003). Tropfenpopulationsmodellierung-Einfluss von Stoffsystem und technischen Geometrien. *Chemie Ingenieur Technik*, 75, 62-67.
- [39] Gelbard, F. , & Seinfeld, J. H. (1978). Numerical solution of the dynamic equation for particulate systems. *J. Comput. Phys.*, 28, 357-375.
- [40] Gelbard, F., Tambour, Y., & Seinfeld, J. H. (1980). Sectional representation of simulating aerosol dynamics. *J. Colloid & Interface Sci.*, 76, 541-556.
- [41] Sastry, K. V. S. , & Gaschignard, P. (1981). Discretization procedure for the coalescence equation of particulate process. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 20, 355-361.
- [42] Guimaraes, M. M., Cruz-Pinto, J. J. C., Regueiras, P. F. R., & Madureira, C. M. N. (1992). The simulation of interacting liquid-liquid dispersions- A new algorithm and its potentiality. Sekine T.(Ed.), *Solvent extraction 1990*, Part B, p. 1241-1246, Elsevier, Amsterdam .

- [43] Hounslow, M. J. (1990). A discretized population balance for continuous systems at a steady state. *AIChE J.*, 36, 106-116.
- [44] Kronberger, T., Ortner, A., Zulehner, W., & Bart, H.-J. (1994) Numerical determination of drop size distribution in extraction columns. Fasano A. (Ed.), *7th European Conference on Mathematics in Industry*, p. 247-254, B. G. Teubner Stuttgart.
- [45] Hill, P. J. , & Ng, K. M. (1995). New discretization procedure for the breakage equation. *AIChE J.*, 41, 1204-1216.
- [46] Kronberger, T., (1995): Numerische Simulation von Tropfenpopulationen in Extraktionskolonnen, Dissertation, Johannes Kepler Universitat Linz, Linz 1995.
- [47] Ribeiro, L. M., Regueiras, P. F. R., Guimaraes, M. M. L., Madureira, C. M. C., & Cruz-Pintu, J. J. C.(1995). The dynamic behavior of liquid-liquid agitated dispersions-I. The hydrodynamics. *Comput.Chem. Eng.*, 19, 333-343.
- [48] Zimmermann, A., Joulia, X., Gourdon, C., & Gorak, A. (1995). Maxwell-Stefan approach in extractor design. *Chem. Eng. J.*, 57, 229-236.
- [49] Hill, P. J., & Ng, K. M. (1996). New discretization procedure for the agglomeration equation. *AIChE J.*, 42, 727-741.
- [50] Kumar, S., & Ramkrishna, D. (1996a). On the solution of population balance equations by discretization-I. A fixed-pivot technique. *Chem. Eng. Sci.*, 51, 1311-1332.
- [51] Kumar, S., & Ramkrishna, D. (1996b). On the solution of population balance equations by discretization-II. A moving pivot technique. *Chem. Eng. Sci.*, 51, 1333-1342.
- [52] van Peborgh Gooch, J. R. , & Hounslow, M. J. (1996). Monte Carlo simulation of size-enlargement mechanics in crystallization. *AIChE J.*, 42, 1864-1874.

- [53] Zamponi, G., Stichlmair, J., Gerstlauer, A., & Gilles, E.-D. (1996). Simulation of the transient behaviour of a stirred liquid/liquid extraction column. *Comput. Chem. Eng.*, 20, S963-S968.
- [54] Kumar, S., & Ramkrishna, D. (1997). On the solution of population balance equations by discretization-III. Nucleation, growth and aggregation of particles. *Chem. Eng. Sci.*, 52, 4659-4679.
- [55] Hill, P. J. , & Ng, K. M. (1997). Simulation of solids processes accounting for particle - size distribution. *AIChE J.*, 43, 715-726.
- [56] Liou, J.-J., Sreenc, F., & Fredrickson, A. G. (1997). Solutions of population balance models based on a successive generations approach. *Chem. Eng. Sci.*, 52, 1529-1540.
- [57] Ribeiro, L. M., Regueiras, P. F. R., Guimaraes, M. M. L., Madureira, C. M. N., & Cruz-Pinto, J. J. C. (1997). The dynamic behavior of liquid-liquid agitated dispersions II. Coupled hydrodynamics and mass transfer. *Comput. Chem. Eng.*, 21, 543-558.
- [58] Song, M., Steif, A., & Weinspach, P.-M. (1997). A very effective method to solve the population balance equation with particle size growth. *Comput. Chem. Eng.*, 52, 3493-3498.
- [59] Nicmanis, M., & Hounslow, M. J. (1998). Finite-element methods for steady-state population balance equations. *AIChE J.*, 44, 2258-2272.
- [60] Toutain, J., Lann, J. M. L., Gourdon, C., & Joulia, X. (1998). Maxwell-Stefan approach coupled drop population model for the dynamic simulation of liquid-liquid extraction pulsed column. *Comput. Chem.Engng.*, 22, S379-S386.
- [61] Vanni, M. (1999). Discretization procedure for the breakage equation. *AIChE J.*, 45, 916-919.
- [62] Bennett, M. K. , & Rohani, S. (2001). Solution of population balance equations with a new combined Lax-Wendroff/ Crank-Nicholson method. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 6623-6633.

- [63] Liu, Y., & Cameron, T. (2001). A new wavelet-based method for the solution of the population balance equation. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 5283-5294.
- [64] Vanni, M. (2000). Approximate population balances equations for aggregation-breakage processes. *J.Coll. Int. Sci.*, 221, 143-160.
- [65] Lee, G., Yoon, E. S., Lim, Y. I., Le Lann, J. M., Meyer, X. M., & Joulia, X. (2001). Adaptive mesh method for the simulation of crystallization processes including agglomeration and breakage: the potassium sulfate system. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 40, 6228-6235.
- [66] Wulkow, M., Gerstlauer, A., & Nieken, U. (2001). Modeling and simulation of crystallization process using parsival. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 2575-2588.
- [67] Diemer, R. B. , & Olson, J. H. (2002a). A moment methodology for coagulation and breakage problems: Part 1- analytical solution of the steady-state population balance. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 2193-2209.
- [68] Diemer, R. B., & Olson, J. H. (2002b). A moment methodology for the coagulation and breakage problems: Part 2-moment models and distribution reconstruction. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 2211-2228.
- [69] Lim, Y. I., Le Lann, J. M., Meyer, X. M., Joulia, X., Lee, G., & Yoon, E. S. (2002). On the solution of population balance equations (PBE) with accurate front tracking methods in practical crystallization processes. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 3715-3732.
- [70] Mahoney, A. W., & Ramkrishna, D. (2002). Efficient solution of population balances equations with discontinuities by finite elements. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 1107-1119.
- [71] Motz, S., Mitrovic, A., & Gilles, E.-D. (2002). Comparison of numerical methods for the simulation of dispersed phase systems. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 4329-4344.
- [72] Verkoeijen, D., Pauw, G. A., Meesters, G. M. H., & Scarlett, B. (2002). Population balances for particulate processes- a volume approach. *Chem. Eng. Sci.*, 57, 2287-2303.

- [73] Attarakih, M. M., Bart, H. J., & Faqir, N. M. (2003a). Optimal moving and fixed grids for the solution of discretized population balances in batch and continuous systems: droplet breakage. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 1251-1269.
- [74] Attarakih, M. M., Bart, H.-J., & Faqir, N. M. (2003b). Solution of the population balance equation for liquid-liquid extraction columns using a generalized fixed-pivot and central difference schemes. in European Symposium on Computer Aided Process Engineering. Kraslawski, A. & Turunen, I. (Eds). *Elsevier*, Amsterdam 2003, 13, 557.
- [75] Kraslawski, A. & Turunen, I. (Ed.), *European symposium on computer aided process engineering-13*, Computer-aided chemical engineering 14 (pp. 557-562). Elsevier, Amsterdam.
- [76] Campos, F. B. , & Lage, P. L. C. (2003). A numerical method for solving the transient multidimensional population balance equation using Euler-Lagrange formulation. *Chem. Eng. Sci.*, 58, 2725-2744.
- [77] Goodson, M. , & Kraft, M., (2003): Stochastic simulation of coalescence and breakage processes: a practical study. Preprint No. 9, pp. 1-30. Cambridge center for computational chemical engineering, Cambridge.
- [78] Ribeiro, L. M., Ragueiras, P. F. R., Guimaraes, M. M. L., Madureira, C. M. C., & Cruz-Pintu, J. J. C. (1995). The dynamic behavior of liquid-liquid agitated dispersions-I. The hydrodynamics. *Comput.Chem. Eng.*, 19, 333-343.
- [79] Gerstlauer, A., (1999): Herleitung und Reduktion populationsdynamischer Modelle am Beispiel der Flüssig-Flüssig-Extraktion. Fortschritt-Berichte VDI Reihe, 3, 612.
- [80] Randolph, A. D. , & Larson, M. A. (1988). *Theory of particulate process*. 2nd Ed. San Diego: Academic Press.
- [81] Ramkrishna, D. (2000). *Population balances: Theory and applications to particulate systems in engineering*. San Diego: Academic Press.
- [82] Ramkrishna, D. (1985). The status of population balances. *Rev. Chem. Eng.*, 5, 49-95.

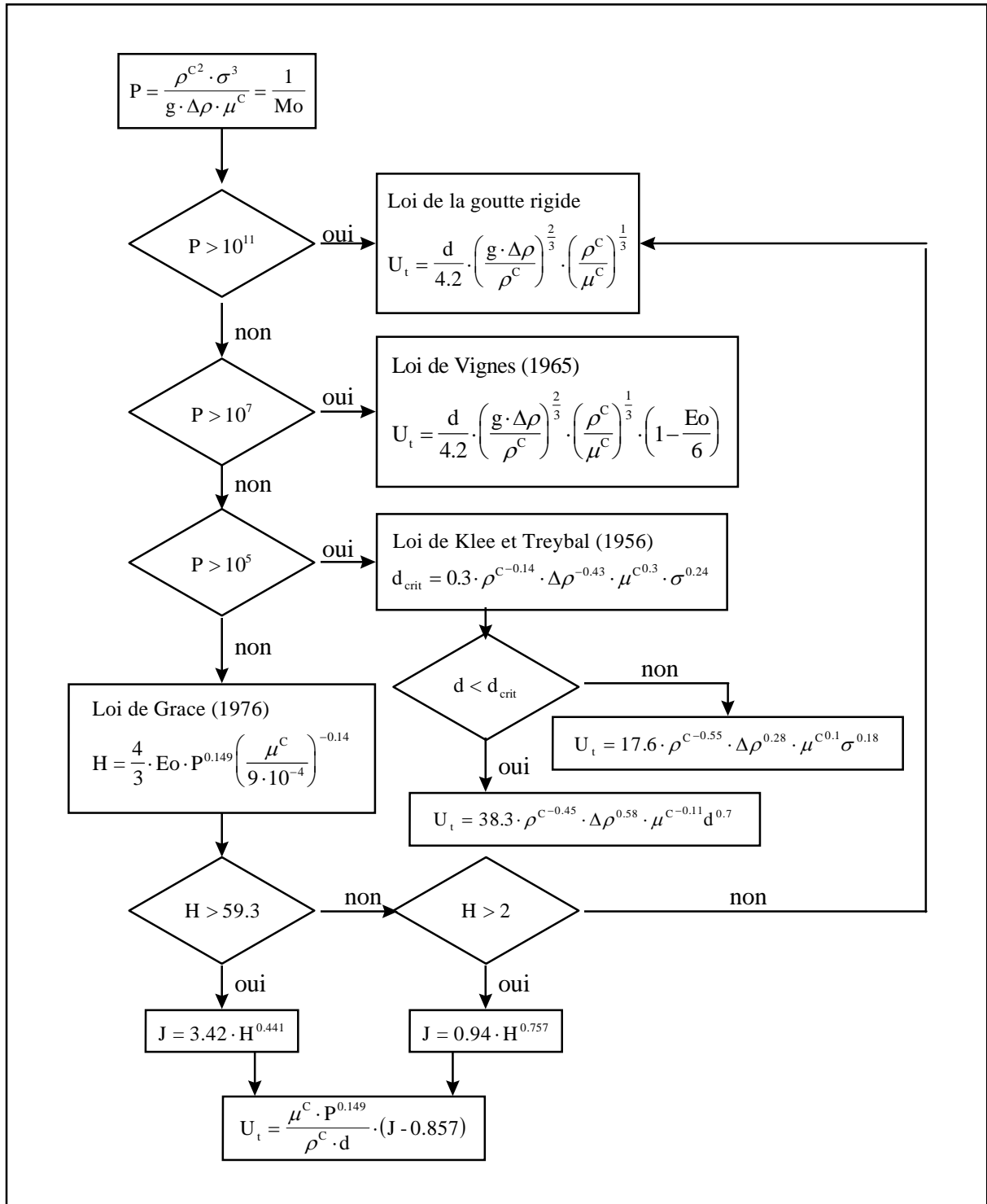
- [83] Kostoglou, M. , & Karabelas, A. J. (1994). Evaluation of zero order methods for simulating particle coagulation. *J. Colloid Interface Sci.*, **163**, 420-431.
- [84] Thornton J. D., « Spray liquid-liquid extraction column: Prediction of limiting hold-up and flooding rates », *Chem. Eng. Science*, Vol. 5, pp. 201, (1956).
- [85] Miyauchi T., Vermeulen T., « Longitudinal dispersion in two-phase continuous-flow operations », *Ind.Eng.Chem.Fund.* Vol.2; pp.113, (1963).
- [86] Korchinsky W., Chartres R.H., « Modelling of liquid-liquid extraction columns: Predicting the influence of drop size distribution » , *AIChE*, Vol. 53, pp. 247, (1975)
- [87] Casamatta G., « Comportement de la population de gouttes dans une colonne d'extraction : Transport, rupture, coalescence et transfert de matière », Thèse de Docteur ès Sciences, INP Toulouse, (1981).
- [88] Gourdon C., « Les colonnes d'extraction par solvant : Modèles et comportement », Thèse de Docteur ès Sciences, INP Toulouse, (1989).
- [89] Haverland H., « Untersuchungen zur Tropfendispergierung in flüssigkeitspulsierten Siebboden-Extraktionskolonnen », Dissertation TU Clausthal, (1988).
- [90] Hussain A.A., Liang T.B., Slater M.J., « Characteristic velocity of drops in liquid-liquid extraction pulsed sieve-plate column », *Chem. Eng. Res. Des.*, Vol.66, n°6, pp.541, (1988).
- [91] Bardin N., « Simulations et expériences Lagrangiennes d'écoulements diphasiques dans les colonnes pulsées à garnissage disques-couronnes », Thèse de Doctorat, INP Toulouse, (1998).

- [92] Pratt H.R.C., Glayler R., Roberts N.W., « Liquid-liquid extraction. Part IV : a further study of hold-up in packed columns », *Trans.Inst. Chem.Eng.*, Vol. 31, (1953).
- [93] J.C. Godfrey, M.J. Slater, *Trans. IchemE*, 1991, 69, 130.
- [94] J. Fang, J.C. Godfrey, Z.Q. Mao, M.J. Slater and C. Gourdon, *Chem. Eng. Technol.* 1995, 18, 41.
- [95] R. Gayler, N.W. Roberts, H.R.C. Pratt, *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.* 1953, 31, 57.
- [96] Eid K.M., «Etude de la rupture des gouttes dans une colonne pulsée », Thèse de Doctorat, INP Toulouse, (1984).
- [97] Jares J., Prochazka J., « Break-up of droplets in Karr reciprocating plate extraction columns », *Chem.Eng.Science*, Vol.42, n°2, pp.283, (1987).
- [98] M. Simon, S.A. Schmidt, H.-J. Bart, *Chem. Eng. Tech.* 2002, 74, 247.
- [99] A.M. Kamp, A.K. Chesters, C. Colin, J. Fabre, *Int. J. Multiphase Flow* 2001, 27, 1363.
- [100] R.M. Thomas, *Int. J. Multiphase Flow* 1981, 7, 709.
- [101] K. Shimizu, S. Takada, K. Minekawa, Y. Kawase, *Chem. Eng. J.* 2000, 78, 21.
- [102] A. Kumar, S. Hartland, *Ind. End. Chem. Res.* 1996, 35, 2682.
- [103] Simon, M., Bart, H.-J., (2001). Experimentelle Untersuchung zur Koaleszenz in Flüssig/Flüssig-Systemen, *Chem. Ing. Tech.*, 73, 988-992.

- [104] Simon, M., Schmidt, S., Bart, H.-J., (2003). The droplet population balance model- Estimation of breakage and coalescence, *Chem. Eng. Technol.*, 26, 745-750.
- [105] A. W. Mahoney, D. Ramkrishna, "Inverse Problem Modeling of Agglomeration, » Paper No.17d, A.I.Ch.E. Annual Meeting 2000, Los Angeles, November 12-17, 2000.
- [106] Goldberg, D. E., Genetic algorithms in searching, optimization, and machine learning (p. 1989). Reading, MA: Addison-Wesley.
- [107] H.H. Rosenbrock. *Comp. J.* 1960, 175.
- [108]] L. Lagar Garcia, *Studienarbeit*, TU Kaiserslautern 2003.
- [109] T. Misek, R. Berger, J. Schröter, *Standard Test Systems for Liquid Extraction*, The Inst. Chem. Engineers, Rugby, 1978 (<http://www.icheme.org/learning/:Feb> 2002).
- [110] H.J. Bart, T. Misek, M.J. Slater, J. Schröter, B. Wachter, *Recommended Systems for Liquid Extraction Studies*, in *Liquid-Liquid Extraction Equipment*, J.C. Godfrey and M.J. Slater, (eds), John Wiley & Sons, London 1994.
- [111] V. Rod, *Coll. Czech. Chem. Commun.* 1968, 33, 2855.
- [112] A. Kumar, S. Hartland, *Empirical prediction of operating variables*, in: *Liq.-Liq. Extraction Equipment*, J.G. Godfrey, M.J. Slater, (eds.), J. Wiley & Sons, Chichester, 1994, 625.
- [113] Zamponi, *Das dynamische Verhalten einer gerührten Solventextraktionskolonne*. Shaker Verlag, Aachen 1996.

ANNEXE I

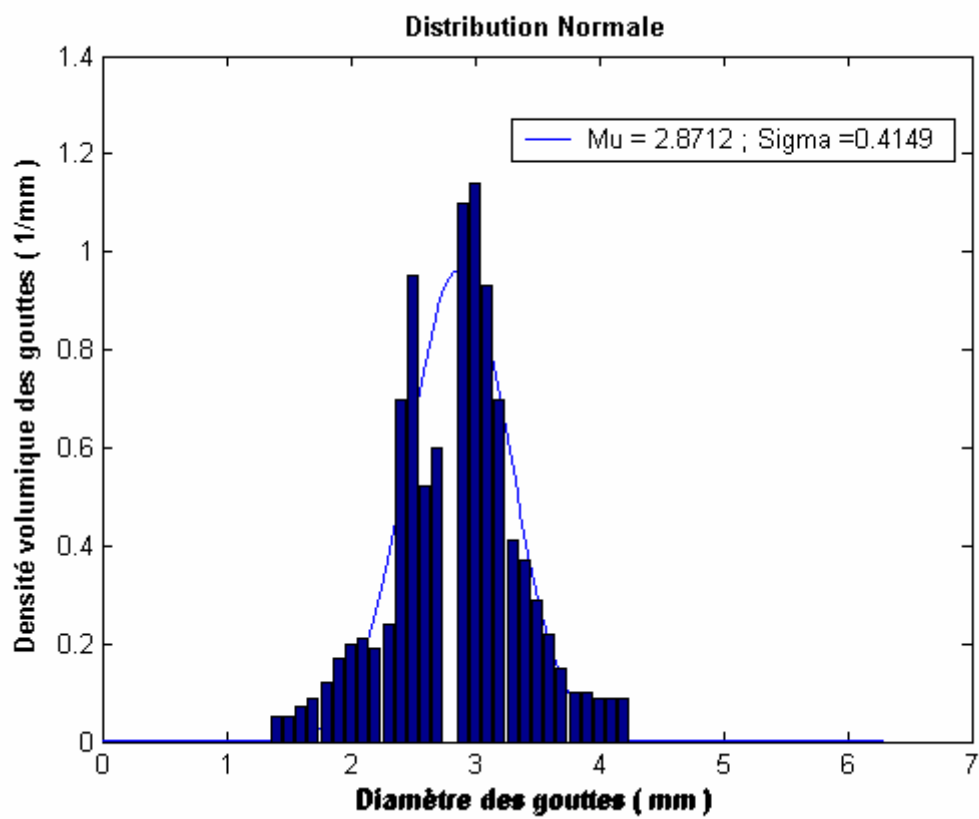
CALCUL DE LA VITESSE DE CHUTE



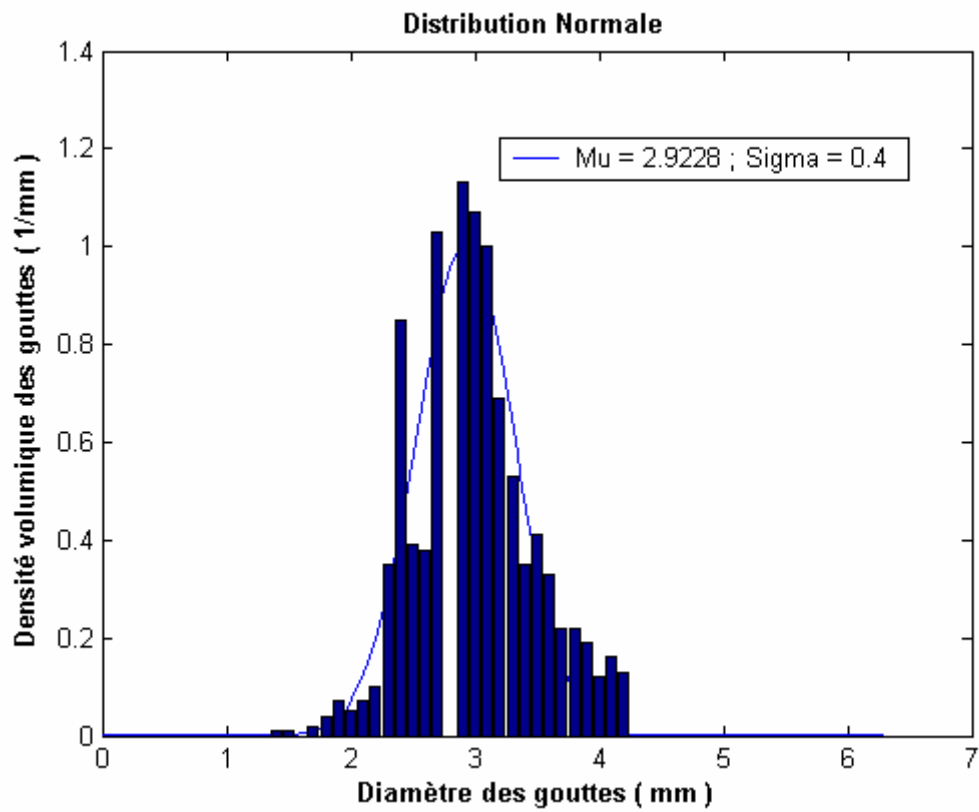
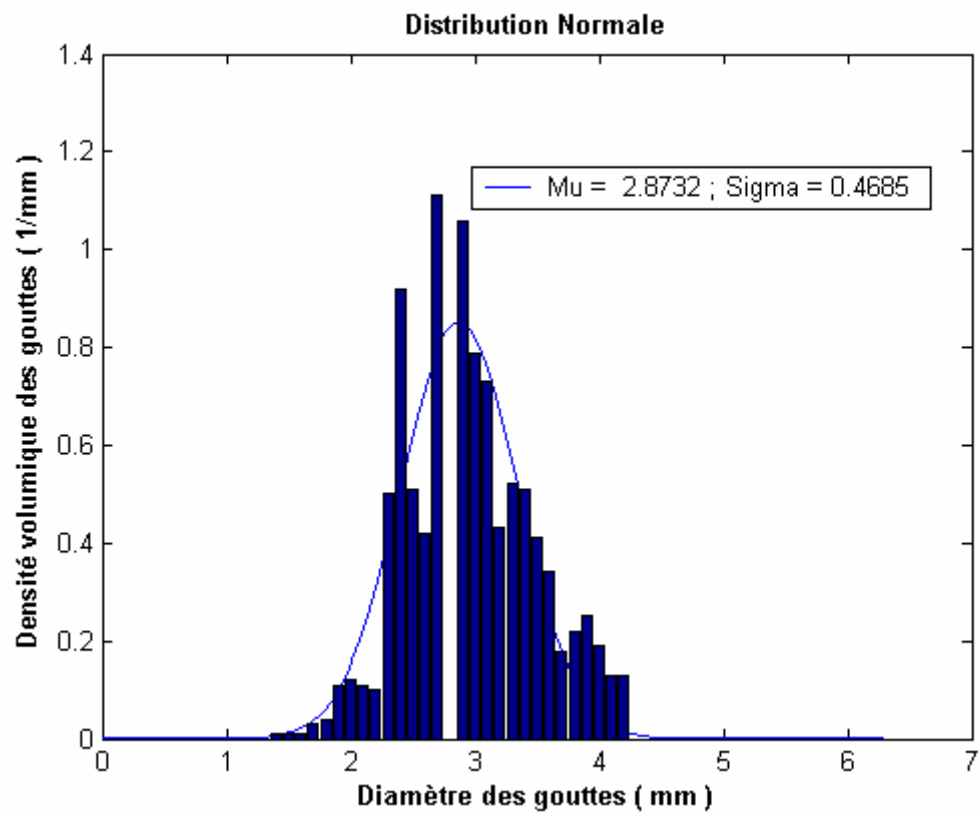
ANNEXE II

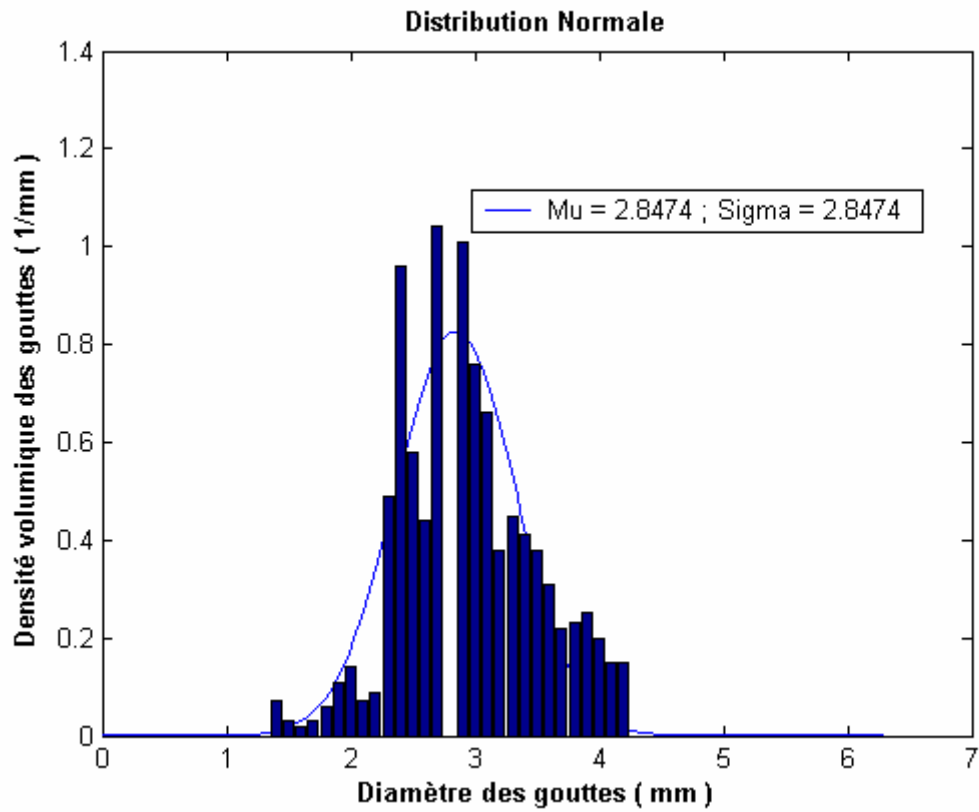
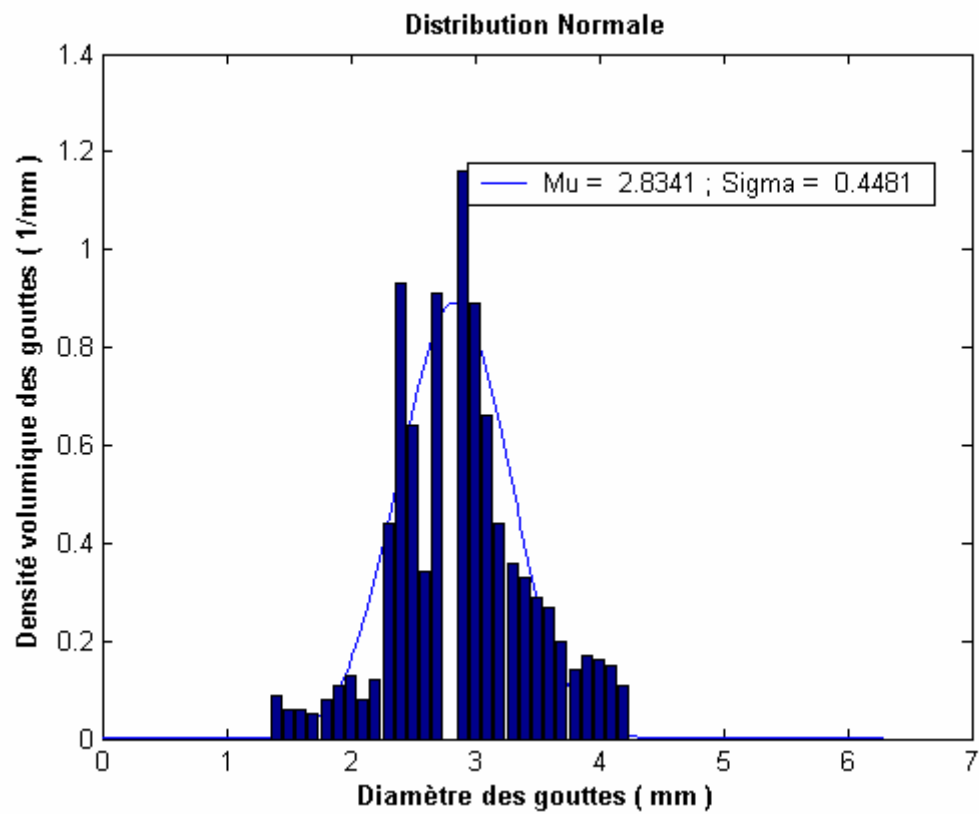
DISTRIBUTION EXPERIMENTALE ET SIMULEE DES
TAILLES DES GOUTTES

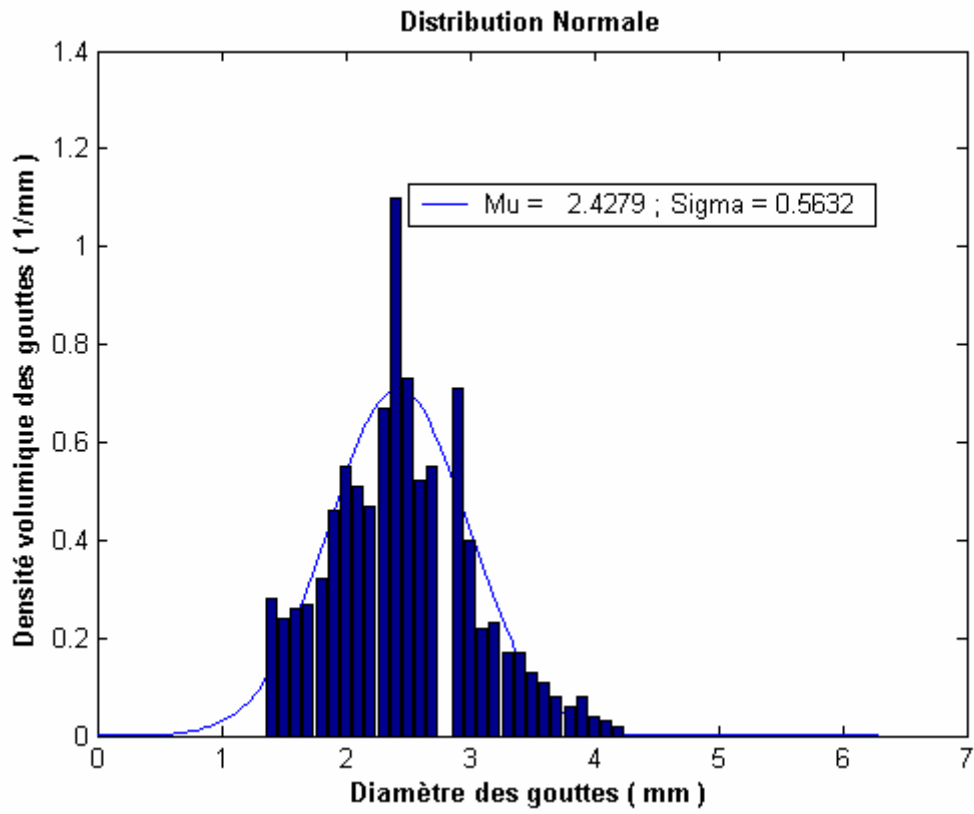
N=300



N=150

**N=200****N=250**

**N=300****N=450**



ANNEXE III

TRAITEMENT STATISTIQUE DES POPULATIONS DES GOUTTES

Nous avons utilisé, pour décrire les populations de gouttes, la variable $P(z, d)$ définie comme la densité de probabilité qu'un point au niveau z de la colonne appartienne à une goutte de diamètre d , $P^*(z, d) = \frac{P(z, d)}{\varphi(z)}$ est alors la densité de probabilité qu'un point de la phase dispersée, au niveau z de la colonne, appartienne à une goutte de diamètre d .

$P(z, d)\delta d$ est donc la fraction de volume occupée par les gouttes de diamètre d , au niveau z de la colonne.

On peut également caractériser une population de particules par une distribution en nombre, soit $n(z, d)$, la densité de probabilité en nombre des gouttes de diamètre d , au niveau z .

A partir de la variable $n(z, d)$ on peut proposer la définition des diamètres moyens suivants :

$$d_{pq} = \frac{\int_0^{d_{\max}} d^p \cdot n(z, d) \delta d}{\int_0^{d_{\max}} d^q \cdot n(z, d) \delta d} \quad (1)$$

Nous retiendrons pour notre étude, le diamètre suivant : d_{32} , définis par :

$$d_{32} = \frac{\int_0^{d_{\max}} d^3 \cdot n(z, d) \delta d}{\int_0^{d_{\max}} d^2 \cdot n(z, d) \delta d} = \frac{\int_0^{d_{\max}} d^3 \cdot \frac{P(z, d)}{V(d)} \delta d}{\int_0^{d_{\max}} d^2 \cdot \frac{P(z, d)}{V(d)} \delta d} \quad (2)$$

d_{32} est appelé diamètre de SAUTER ; c'est le diamètre volume – surface qui apparaît dans le calcul de l'aire d'échange.

Soit :

$$P(z, d) = \sum_{k=1}^K P_k(z) b_k(d) \quad (3)$$

Avec

$$\varphi_k(z) = P_k(z) \Delta d_k \quad (4)$$

L'insertion de (3) et (4) dans 2 donne :

$$\sum_{k=1}^K P_k(z) \frac{6}{\pi} \int_0^{\infty} b_k(d) \delta d = \sum_{k=1}^K P_k(z) \frac{6}{\pi} \int_{d_{k-1}}^{d_k} \delta d = \frac{6}{\pi} \sum_{k=1}^K \varphi_k(z) \quad (5)$$

$$\sum_{k=1}^K P_k(z) \frac{6}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{1}{d} b_k(d) \delta d = \sum_{k=1}^K P_k(z) \frac{6}{\pi} \int_{d_{k-1}}^{d_k} \frac{1}{d} \delta d = \frac{6}{\pi} \sum_{k=1}^K P_k(z) \ln \left(\frac{d_k}{d_{k-1}} \right) \quad (6)$$

Et enfin :

$$d_{32}(z) = \frac{\sum_{k=1}^K \varphi_k(z)}{\sum_{k=1}^K \frac{\varphi_k(z)}{\Delta d_k} \ln \left(\frac{d_k}{d_{k-1}} \right)}$$

A. Hasseine¹
A.-H. Meniai²
M. Korichi³
M. Bencheikh Lehocine²
H.-J. Bart⁴

Research Article

A Genetic Algorithm Based Approach to Coalescence Parameters Estimation in Liquid-Liquid Extraction Columns

¹ Dept. of Chemistry, University of Med Khider Biskra, Algeria.

² Laboratoire de l'Ingénierie des Procédés d'Environnement, University Mentouri Constantine, Algeria.

³ Dept. of Chemistry, University of Kasdi Merbeh, Ouargla, Algeria.

⁴ Dept. of Process Engineering, TU Kaiserslautern, Kaiserslautern, Germany.

The population balance model is a useful tool for the design and prediction of a range of processes that involve dispersed phases and particulates. The inverse problem method for the droplet population balance model is applied to estimate coalescence parameters for two-phase liquid-liquid systems. This is undertaken for two systems, namely toluene/water and n-butyl acetate/water in a rotating disc contactor (RDC), using a droplet population balance model. In the literature, the estimation procedure applied to this problem is often based on the deterministic optimization approach. These methods generate instabilities near a local minimum, inevitably requiring information about the derivatives at each iteration. To overcome these limitations, a method providing an estimate for the coalescence parameters is proposed. It is based on a simple and adapted structure of the genetic algorithm, for this particular problem. The agreement between the experimental observations and the simulations is encouraging and, in particular, the models used have proven to be suitable for the prediction of hold-up and Sauter diameter profiles for these systems. Finally, these results demonstrate that the optimization procedure proposed is very convenient for estimating the coalescence parameters for extraction column systems.

Keywords: Coalescences, Extraction, Modeling, Two-Phase systems

Received: July 17, 2006; *revised:* August 17, 2006; *accepted:* September 23, 2006

DOI: 10.1002/ceat.200600218

1 Introduction

The determination of the dispersed phase hold-up and the particle size distributions in two phase contactors is necessary for the computations involved in many chemical engineering processes, such as solvent extraction, absorption, reaction engineering, etc. The modeling of such systems mainly relies on the use of the population balance approach, which enables the description of the variations in size distribution of the dispersed phase, by averaging functions relating to the behavior of individual particles such as drops or bubbles, as well as their interactions. The development of the corresponding models relies on a parameter fitting to match the experimental size distributions. This defines the so-called inverse problem, which is suitably considered when the mathematical solution to a population balance model is known, but phenomenological functions are not.

Generally, a mathematical programming procedure has to be applied to find the best fit of the experimental data. The application of an inverse problem leads to an explicit analytical or approximate solution, which is highly sensitive to errors in the experimental data [1].

The parameter-fitting problem is solved by a genetic algorithm (GA), where a finite volume and generalized fixed-pivot [2] techniques are used for solving the population balance problem and the calculation of the parametric derivatives of the solution. This approach is based on a global search method which has proven to be more robust than many traditional search techniques [3]. It possesses the following features:

- The GA makes no assumption about the function to be optimized, and thus, it can also be used for nonconvex objective functions;
- The GA makes a tradeoff between the exploration of new points in the search space and the exploitation of the current information;
- The GA is a randomized algorithm whose results are governed by probabilistic transition rules rather than deterministic rules;

Correspondence: Prof. Dr. A.-H. Meniai (meniai@caramail.com), Laboratoire de l'Ingénierie des Procédés d'Environnement, University Mentouri Constantine, Algeria.

- The GA operates on several solutions simultaneously, gathering information from current search points and using it to direct subsequent searches, which makes it less susceptible to the problems of local optima;
- The GA uses an objective function or fitness information only, instead of using derivatives or other auxiliary knowledge, as required by traditional optimization methods.

2 Model Equations

In the present model, the basic variable is a drop size distribution function $P(z, d, t)$, which represents the volume fraction of drops with diameter d , in a unit volume of the column at level z and time t [4]. The local hold-up of the dispersed phase can be calculated from $P(z, d, t)$ as follows¹⁾:

$$\varphi(z, t) = \int_0^{d_{\max}} P(t, z, d) \, d \quad (1)$$

The volume balance equation of unit volume of the column can be expressed as:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} P(t, z, d) + \frac{\partial}{\partial z} (v_d(t, z, d, \varphi) P(t, z, d)) = \\ \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{ax} \frac{\partial}{\partial z} P(t, z, d) \right) \\ + \frac{Q_d}{A} p_{in}(d) \delta(z - h_d) + P_V(t, z, d) \end{aligned} \quad (2)$$

with the transient and convective terms balanced against a back mixing term expressed by means of the dispersion coefficient, D_{ax} . The solvent feed is handled as a point source by Dirac's δ -function. The drop break-up and coalescence processes are taken into account in the term P_V , which is given by:

$$\begin{aligned} P_V(t, z, d) = \\ \int_0^{d_{\max}} \beta(d_0, d) g(t, z, d_0) P(t, z, d_0) \, dd_0 - g(t, z, d) P(t, z, d) + \\ \frac{V(d)}{2} \int_0^{d/\sqrt{2}} \omega(d_1, d_2) \frac{P(t, z, d_1)}{V(d_1)} \frac{P(t, z, d_2)}{V(d_2)} \left(\frac{d}{d_2} \right)^2 \partial d_1 - \\ P(t, z, d) \int_0^{\sqrt{3d_{\max}^3 - d^3}} \omega(d_1, d_2) \frac{P(t, z, d_1)}{V(d_1)} \partial d_1 \end{aligned} \quad (3)$$

The first integral accounts for gain and loss due to break-up of the mother droplet d_0 , according to the daughter droplet distribution β . Similarly, the second integral holds for coalescence according to the coalescence frequency ω .

2.1 Drop Transport

The velocities of both phases are expressed according to the two layers model [5] as follows:

$$v_d(t, z, d, \phi) = v_r(t, z, d, \phi) + v_c(t, z, \phi) \quad (4)$$

with v_c and v_d the continuous and the dispersed phase velocities, respectively, and v_r the velocity of a drop of diameter d , relative to the surrounding continuous phase. It can be obtained from the single drop terminal velocity v_T by means of the following correlation:

$$v_r(d, \phi) = k_v(d) v_T (1 - \phi) \quad (5)$$

where $k_v(d)$ is the slowing coefficient, taking values between 0 and 1 by definition, depending on the type of extraction column.

For these systems, a correlation from the literature [6] has been proposed as follows:

$$k_v(d, N) = 1 - 1.037(N^3 D_R^5)^{0.12} - 0.62 \left(\frac{d}{D_S - D_R} \right)^{0.44} \quad (6)$$

with the rotor speed N , and D_S and D_R , as the stator and rotor diameters, respectively.

2.2 Drop Break-Up

In the case of a stirred extraction column, different break-up mechanisms exist and strongly depend on geometries. For instance, in a RDC column the drops are generated while passing near the rotor disc. The probability of drop break-up is supposed to be homogeneous in each compartment of the column, and therefore, a local approach is used. Hence, the entire mechanism of break-up probability is correlated in terms of the geometries of the column, the system physical properties and the energy dissipation.

For these systems the prediction of the drop break-up probability $p(d)$, and frequency $g(z, d)$, are calculated with the correlations [7, 8, 9] recommended by Modes [10]:

$$\frac{p(d)}{1 - p(d)} = 1.2 \cdot 10^{-6} [\rho_c^{0.8} \mu_c^{0.8} d D_R^{1.6} (2\pi)^{1.8} (N^{1.8} - N_c^{1.8}) / \sigma]^{2.88} \quad (7)$$

The breakage frequency depends on the residence time of the drops and is given by:

$$g(z, d) = \frac{p(d) v_d(z, d)}{HC} \quad (8)$$

For the toluene/water system, N is expressed as follows:

$$N = 1.148 \left(\frac{\rho_c D_R^3}{\sigma} \right)^{-0.5} \left(\frac{d}{D_R} \right)^{-0.667} \quad (9)$$

whereas for the n-butyl acetate/water system, it is given as follows:

$$\begin{aligned} N_{\text{crit}} = 0,016 \frac{D_R^{-2/3} \mu_d d^{-4/3}}{(\rho_c \rho_d)^{1/2}} + \\ \left[(0,008 \frac{D_R^{-2/3} \mu_d d^{-4/3}}{(\rho_c \rho_d)^{1/2}})^2 + 0.127 \frac{\sigma}{\rho_c D_R^{1/3} d^{5/3}} \right]^{0.5} \end{aligned} \quad (10)$$

1) List of symbols at the end of the paper.

The daughter drop-size distribution is assumed to follow the beta distribution, based on the mother droplet diameter d_0 , expressed as follows:

$$\beta(d_0, d) = 3x_m(x_m - 1)\left(1 - \frac{d^3}{d_0^3}\right)^{(x_m-2)} \frac{d^5}{d_0^6} \quad (11)$$

where x_m is the mean number of daughter drops produced upon breakage of a mother droplet of diameter d_0 . It is experimentally correlated, and found to be dependent on the energy dissipation, as well as having a value greater or equal to 2 for these two systems.

2.3 Drop Coalescence

For this process, the hydrodynamics, the system properties at the interfaces, the intensity of the collision and the contacting time between the colliding drops are all key parameters. According to the film drainage theory, the coalescence efficiency between two approaching, deformable drops is due to drainage of the flow of the film into the bulk. It results in a resistance that hinders the drops approach to one another. The coalescence efficiency due to this resistance depends on the interfacial mobility of the drops. Assuming that the drops approach along the centerline of the two drops, the relationship between the force and the approaching velocity of the drops has been calculated using a lubrication approximation [11]. It was assumed that coalescence occurs when the gap between two drops reaches a critical value, h_c , at which point the film between the drops ruptures, resulting in coalescence. It has been shown theoretically [11] that:

$$h_c = (A_k d_{eq} / 16 \pi \sigma)^{1/3} \quad (12)$$

In general, the coalescence process is described by the drop coalescence rate, which is the product of the collision rate $h(d_1, d_2)$, and the coalescence efficiency, $\lambda(d_1, d_2)$, between two drops of diameter d_1 and d_2 . However, the determination of this (drop pair) coalescence rate remains an extremely complex phenomenon and its modeling is still not fully developed.

From the literature [12, 13] the expressions for $h(d_1, d_2)$, can be derived for these two systems as follows:

– (A) Collision Rate

$$h(d_1, d_2) = C_1 \frac{\varepsilon^{1/3}}{(1 + C_V \varphi)} (d_1 + d_2)^{7/3} \quad (13)$$

This equation is derived from the relative velocity of two mass points in the liquid phase at $d_1 + d_2$. The turbulence damping factor was introduced to account for the effects of two phase flow on the intensity of the turbulence, as defined by [13, 14]. The determination of the coalescence efficiency depends mainly on the nature of the two drops involved in the coalescence process, as well as the properties of their interfaces. Some of the relevant models reported above are described later.

– (B) Coalescence Efficiency

In the work of Chesters [11], the collisions are differentiated as viscous and inertial, when deriving the following formula, for the coalescence efficiency (see also [15]):

$$\lambda(d_1, d_2) = \exp\left(-C_2 \frac{\mu_d \rho_c^{1/2} \varepsilon^{2/3} d_{eq}^{11/6} (d_1 + d_2)^{1/3}}{\sigma^{3/2} (1 + C_V \varphi)^2 h_{crit}}\right) \quad (14)$$

3 Genetic Algorithm

3.1 Definition of the Genetic Algorithm

A genetic algorithm (GA) is an optimization search algorithm based on evolution principles and natural genetics [3]. The basic idea of a GA is to place the parameters of the real problem to be optimized within what is referred to as a chromosome (or individual) which consists of genes. Each parameter is mapped to a gene in the chromosome. Parameters may be real numbers, integers, or even complex data structures. A general GA creates an initial generation (a population or a discrete set of decision variables), $G(t=0)$, and for each generation, $G(t)$, it generates a new one, $G(t+1)$. The general genetic algorithm is described in Fig. 1.

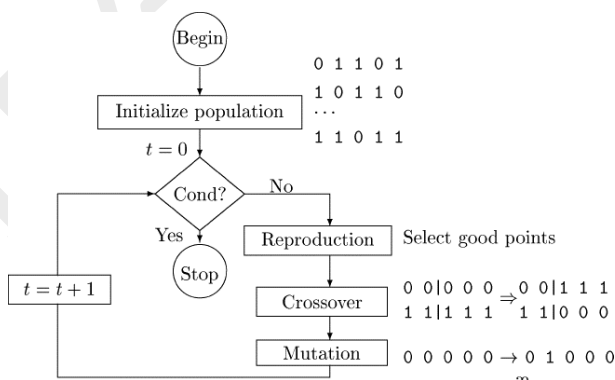


Figure 1. Flow diagram of the general genetic algorithm.

A chromosome, also called a solution string of length n , is a vector of the form $\{x_1, x_2, \dots, x_n\}$, where each x_i is an allele or a gene representing a set of decision variable values. The domain of values from which the x_i value is chosen is called the alphabets of the problem. The initial population $G(0)$ can be chosen either heuristically or randomly. The populations of the generation $G(t+1)$ are chosen from $G(t)$ by a randomized selection procedure, which is composed of three operators:

1. Selection

Selection is a process in which individual strings are copied according to their objective function or fitness, f . In the process of selection, only solution strings with high fitness values are reproduced in the next generation. This means that the solution strings which are fitter and have shown better performance will have a higher chance of contributing to the next generation. There are many selection methods available, such as tournament selection, roulette wheel selection, etc. These methods use the fitness value of each chromosome to decide whether it will survive or not.

2. Crossover

The crossover operator, randomly exchanges parts of genes of two parent solution strings of generation $G(t)$ to gener-

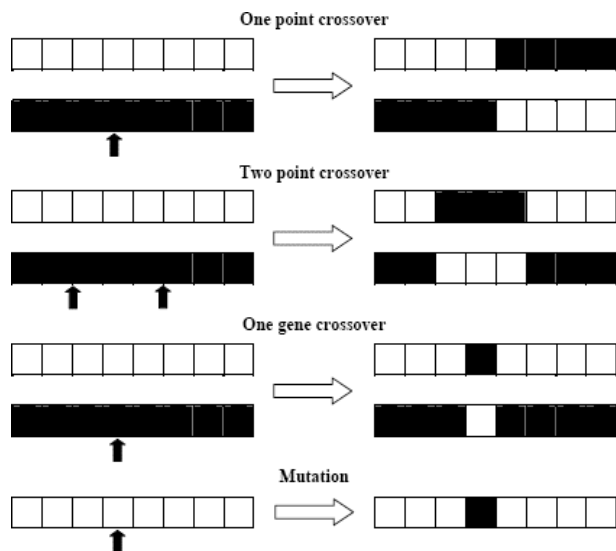


Figure 2. Crossover and mutation operators.

ate two child solution strings of generation $G(t+1)$. There are three variants of crossover: one-point, two-point, and one-gene crossover (see Fig. 2). In a simple one-point crossover, a random cut is made and genes are switched across this point. A two-point crossover operator randomly selects two crossover points and then exchanges genes in between. However, in a one-gene crossover, a single gene is exchanged between chromosomes of two parents at a random position. The main purpose of the crossover operator is to search the parameter space. Another important aspect is that the search needs to be performed in a way to maximally preserve the information stored in the parent strings, because these parent strings are instances of good strings selected using the selection operator.

3. Mutation

Mutation operates on an individual (chromosome) producing an offspring which is very different from its parent. A GA randomly selects a gene of the chromosome or solution string and then changes the value of this gene within its permissible range with a small mutation probability (P_m), as shown in Fig. 2. P_m controls the rate at which new genes are introduced into the population. A low rate will prevent the introduction of potential genes and a high rate will give too much random perturbation. Mutations encourage a population which is converging onto some optimum to jump into a different part of the solution space, thus increasing the probability of detecting a different point leading to the global optimum solution. The necessity for mutation is to maintain diversity in the population.

After selection, crossover, and mutation are applied to the whole population, one generation of a GA is completed. These three operators are simple and straightforward. The selection operator selects good strings and the crossover operator

recombines good substrings from two good strings together to hopefully form a better substring. The mutation operator alters a string locally, in the hope of creating a better string. Even though none of these claims are guaranteed and/or tested while creating a new population of strings, it is expected that if bad strings are created they will be eliminated by the reproduction operator in the next generation and if good strings are created, they will be emphasized.

3.2 General Remarks

GAs have some unique characteristics which make them a more robust global search method than many traditional search techniques [3]: a GA makes no assumption about the function to be optimized, and therefore, can also be used for nonconvex objective functions; a GA optimizes the tradeoff between exploring new points in the search space and exploiting the information discovered thus far; a GA is implicitly parallel; a GA is a randomized algorithm whose results are governed by probabilistic transition rules rather than deterministic rules; a GA operates on several solutions simultaneously, gathering information from current search points and using it to direct subsequent searches, which makes a GA less susceptible to the problems of local optima and noise; a GA only uses objective function or fitness information, instead of using derivatives or other auxiliary knowledge, as are required by traditional optimization methods. The efficiency of a GA depends on the customization of the parameters to the specific problems. Among the ideas that have been introduced are fitness scaling, generation gap, rank selection, and replacement criteria. The key GA parameters, which are common to all strategies explained in later sections, are the population size in each generation (NPOP), the percentage of the population undergoing reproduction (R), crossover (C), and mutation (M), and the number of generations (NGEN).

The parameter values are represented in binary strings. It is assumed that five bits are used to code each of the two independent variables, thereby making the overall string length equal to 10. In the initialization of the GA, population sizes of 10 and 20 are adopted in following simulation. Solutions are randomly generated in the required search region, as binary combinations (C_1, C_2). The objective function is as defined in the next section.

Since the goal of the GA is to minimize the objective function and to maximize the fitness function, it is simply supposed that the fitness value be the reciprocal of the objective function value.

If two parents X and Y are selected, then they will perform crossover with a probability, P_c , set between 0.70 and 0.80. Each new design generated by crossover will perform mutation with a probability, P_m , set to 0.001. In order to retain the best solution found during the searching process and to speed up the searching process, entail-population updating is applied, i.e., designs with the highest probability values will be selected as the new population. An approximate stopping criterion of the GA is used here, i.e., if the best solution is fixed in 100 successive generations, the genetic search will be halted, giving the best design X^* together with its true objective value $f(X^*)$ cal-

Table 1. GA parameters and their values.

Parameter	Value
Population size	10, 20
No. of generation	100
Selection strategy	Binary tournament
Length of chromosome	10 bits
Crossover type	One point
Crossover probability	0.70–0.80
Mutation probability	0.01

culated with the explicit expression of the objective function. Tab. 1 presents the GA parameters and their values for this study.

4 Description of the Considered Extraction System

The present study considers a liquid-liquid flow in a pilot-scale rotating disc contactor (RDC), operating with two different chemical systems: toluene/water and n-butyl acetate/water. These are usually recommended by the European Federation of Chemical Engineering (EFCE) as test systems for liquid extraction studies [6, 17]. The physical properties of water, toluene and n-butyl acetate are shown in Tab. 2, with water as the continuous phase and toluene and n-butyl acetate forming the dispersed phase, respectively.

Table 2. Chemical system properties.

System	μ_x (mPa)	μ_y (mPa)	ρ_x (kg m ⁻³)	ρ_y (kg m ⁻³)	σ mN m ⁻¹
water/ n-butyl acetate	0.73	1.34	881.5	998.9	14.0
water/ toluene	0.59	1.00	865.6	997.7	36.1

The extraction column considered has a diameter of 0.15 m, a compartment height of 0.03 m and a total active part of 1.65 m. The diameters of the rotor and the stator are 0.09 and 0.105 m, respectively. The volumetric flow rates are 100 and 112 L/hr for the continuous and the dispersed phases, respectively. Three different rotor speeds of 200, 250 and 350 rpm, have been considered.

5 Results and Discussion

In this section, the experimental and simulated results are presented and discussed as follows. It is attempted to present the possible flow situations concerning the coalescence process for non-deformable drops [11]. The coalescence parameters were estimated in a small laboratory scale device, which consists of five compartments of an RDC column. Several rotational

speeds and flow rates for the saturated toluene/water and n-butyl acetate/water systems were used to estimate the constants of the coalescence model. They were estimated using the GA method [3] and the generalized fixed-pivot [2] technique to solve the inverse problem of the droplet population model, which consists of minimizing the objective function, S , expressed as follows [16]:

$$S = \sum_{k=1}^{NDC} [Q_3^{k,out}(\text{exp}) - Q_3^{k,out}(\text{sim})]^2 \quad (15)$$

According to this, the simulated outlet cumulative distribution, Q_3 , is correlated to the experimental one by varying the coalescence parameters. This procedure is continued as long as the least square differences are moving towards a minimum.

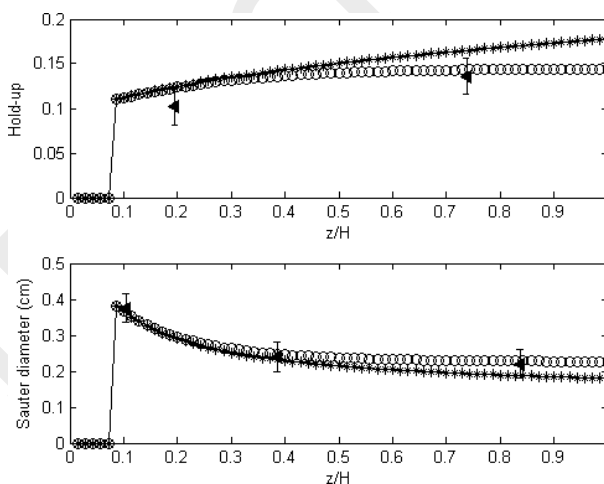


Figure 3. Influence of rupture and coalescence on the hold-up and Sauter diameters for the toluene/water system. $N = 350$ rpm, ($Q_c = 100$ L/h, $Q_d = 112$ L/h); (-O- Sim., -◀- Exp. break-up and coalescence), (-*- Sim. break-up).

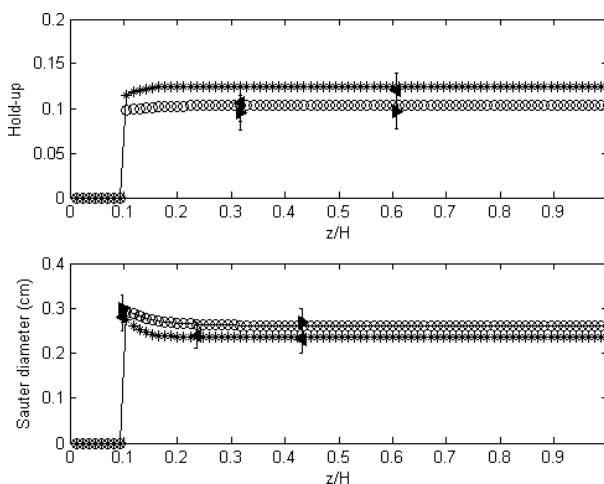


Figure 4. Comparison of a simulated hold-up and Sauter diameters with experimental data for the n-butyl acetate system. Influence of agitation effect on hold-up and Sauter diameters; ($Q_c = 100$ L/h, $Q_d = 112$ L/h), (200 rpm, -O- Sim., -▶- Exp.), (250 rpm, -*- Sim., -◀- Exp.).

A set of parameters is obtained for the investigated systems (toluene/water, n-butyl acetate/water). They are not influenced by the operational conditions (rotor speed and volumetric flow rates) but are specific for each chemical system. For the toluene/water system, the best parameters are $c_1 = 0.001$ and $c_2 = 0.041$ and for the n-butyl acetate/water system, they are $c_1 = 0.010$ and $c_2 = 0.011$ for the two populations considered for each system, as shown in Tab. 3.

The parameters should, in principle, be of the same order of magnitude. However, further work considering different

chemical systems, is required to improve the coalescence model. Within the range of experimental accuracy, the mean values for these constants satisfactorily describe these systems and are used below.

For an assessment of the proposed approach, Figs. 3 and 4 present the simulation results and the experimental data for these two systems in an RDC column. The simulation includes axial dispersion, break-up and coalescence terms. The axial dispersion coefficient for the dispersed phases has been obtained by means of Rod's correlation [18], whereas for the

Table 3. Optimization results for toluene/water and n-butyl acetate/water systems.

System	Toluene			n-butyl acetate												
	10	20		10	20											
Population	C_1	C_2	Fitness	C_1	C_2	Fitness	C_1	C_2	Fitness							
ACCUMULATED STATISTICS	1)	.001	.041	.13611	1)	.001	.041	.13655	1)	.009	.011	.17599	1)	.009	.011	.17568
	2)	.001	.039	.13742	2)	.001	.040	.13785	2)	.010	.009	.17634	2)	.009	.010	.17572
	3)	.001	.040	.13928	3)	.001	.041	.13492	3)	.010	.010	.17684	3)	.010	.011	.17653
	4)	.001	.040	.13713	4)	.001	.041	.13640	4)	.009	.010	.17626	4)	.010	.009	.17668
	5)	.001	.040	.13871	5)	.001	.039	.13551	5)	.010	.010	.17668	5)	.010	.010	.17630
	6)	.001	.041	.13699	6)	.001	.040	.13655	6)	.009	.011	.17622	6)	.010	.011	.17661
	7)	.001	.040	.13669	7)	.001	.039	.13669	7)	.009	.010	.17614	7)	.010	.010	.17653
	8)	.001	.040	.13640	8)	.001	.040	.13581	8)	.009	.010	.17607	8)	.010	.010	.17668
	9)	.001	.041	.13756	9)	.001	.039	.13785	9)	.010	.011	.17637	9)	.010	.011	.17672
	10)	.001	.040	.13596	10)	.001	.040	.13913	10)	.009	.010	.17595	10)	.009	.011	.17618
					11)	.001	.039	.13814					11)	.010	.010	.17645
					12)	.001	.040	.13814					12)	.010	.009	.17653
					13)	.001	.040	.13742					13)	.009	.009	.17595
					14)	.001	.039	.13699					14)	.009	.011	.17584
					15)	.001	.040	.13566					15)	.009	.010	.17599
					16)	.001	.039	.13899					16)	.009	.009	.17572
					17)	.001	.039	.13669					17)	.010	.010	.17645
					18)	.001	.040	.13611					18)	.009	.010	.17587
					19)	.001	.040	.13871					19)	.009	.011	.17603
					20)	.001	.041	.13756					20)	.009	.011	.17576
BEST SOLUTION	.001	.041		.001	.041		.010	.011		.010	.011					
POPULATION STATISTICS AT LAST GENERATION	.13928			.13913			.17684			.17672						
MAXIMUM FITNESS	.13722			.13708			.17629			.17621						
AVERAGE FITNESS	.13596			.13492			.17595			.1756						
MINIMUM FITNESS	500			1000			500			1000						
NUMBER OF CROSSOVERS	5097			10100			5097			55334						
NUMBER OF MUTATIONS																

continuous phase, it has been determined from Kumar and Hartland's work [19].

In Fig. 3, the hold-up and the Sauter diameter profiles are represented versus the dimensionless column height for the toluene/water system. Different situations such as break-up alone, and break-up with coalescence are considered. The results can further be regarded as a sensitivity analysis of the model based on the concept of a population balance, with the parameters derived and the validation by experimental data. The first case with break-up only (no coalescence) leads to smaller drops which have a lower slip-velocity and greater residence time. Therefore, the hold-up in the column increases and the Sauter diameter decreases. For the inverse case with coalescence, larger drops are seen to be present. This leads to a lower hold-up and a higher Sauter diameter.

Fig. 4 shows the simulation and experimental data for the n-butyl acetate/water system for different rotation speeds. It is clear that any increase in agitation speed encourages drop break-up and greatly reduces their coalescence. This results in drops with smaller average sizes, and hence, an improved hold-up and smaller Sauter diameter values.

6 Conclusions

This paper has explored the use of GA to estimate the coalescence parameters for liquid-liquid extraction. The systematic approach of GA to solve the inverse problem has been proposed and implemented. The results have shown that the GA method has eliminated complex calculations and has proven to be an effective tool in the calculation of these key parameters.

An integrated optimization-simulation algorithm has been developed to inversely estimate the coalescence parameters and it has been applied to the simulation of hydrodynamics based on the droplet population balance model in two-phase liquid-liquid flow for two systems. The algorithm allows for the calculation of the derivatives of the solution with respect to the empirical coefficients of the model. As soon as the parametric derivatives are known, an efficient optimization genetic algorithm method can be used to minimize the difference between the observed and numerical results, i.e., the unknown empirical parameters of the model can be extracted from the available experimental data. One hundred iterations of the genetic algorithm are required to identify the unknown coefficients. The coefficients identified on the basis of one set of experimental data can be used to predict the behavior of these two systems under different operating conditions.

The proposed algorithm also provides information about the sensitivity of the solution to the parameters of the model. This information can be used to decide which parameters have to be identified within the best solution.

At present, this simulation tool facilitates an interpretation and a comprehension of the various phenomena involved in the operation of liquid-liquid extraction columns, in particular for determining the dimensions of the equipment.

Symbols used

A_k	[J]	Hamaker constant
C_1	[-]	collision frequency constant
C_2	[-]	coalescence efficiency constant
C_V	[-]	turbulence (damping) constant
D_{ax}	[m ² /s]	axial dispersion coefficient
D_C	[m]	column diameter
D_R	[m]	rotor diameter
D_S	[m]	stator diameter
d_1, d_2	[m]	drop diameter
d_{eq}	[m]	equivalent radius
d_0	[m]	mother drop diameter
d_{32}	[m]	Sauter mean drop diameter
$g(z, d)$	[s ⁻¹]	break-up frequency
H_C	[m]	compartment height
$h(d_1, d_2)$	[m ³ /s]	collision frequency in unit volume
h	[m]	film thickness
N	[s ⁻¹]	rotor speed
P	[m ⁻¹]	distribution density function
$P(d)$	[-]	break-up probability for a drop of diameter d
Q	[m ³ /s]	phase flux
$V(d)$	[m ³]	drop volume with size d
r	[m/s]	phase velocity
r	[m/s]	relative velocity
T	[m/s]	terminal velocity
x_m	[-]	mean number of daughter droplets
z	[m]	height

Greek symbols

$\beta(d_0, d)$	[m ⁻¹]	daughter drop size distribution
σ	[N/m]	interfacial tension
$\Delta\rho$	[kg/m ³]	density difference between phases
	[W/kg]	mechanical power dissipation per unit mass
μ	[Pa s]	dynamic viscosity
ρ	[kg/m ³]	density
ϕ	[-]	volume fraction holdup of the dispersed phase
$\lambda(d_1, d_2)$	[-]	coalescence probability
$\omega(d_1, d_2)$	[m ³ /s]	coalescence rate

Subscripts

C	continuous phase
crit	critical
d	dispersed phase
max	maximal
R	rotor
S	stator
y, x	continuous and dispersed phases, respectively

References

- [1] A. W. Mahoney, D. Ramkrishna, *AIChE Annual Meeting*, Los Angeles, CA, November 2000.
- [2] M. M. Attarakih, H.-J. Bart, N. M. Faqir, in *Proc. European Symp. on Computer Aided Process Engineering* (Eds: A. Kraslawski, I. Turunen), Elsevier, Amsterdam 2003.
- [3] D. E. Goldberg, in *Genetic Algorithms in Searching, Optimization and Machine Learning*, 1st ed., Addison-Wesley, Reading, MA, 1989.
- [4] T. Kronberger, A. Ortner, W. Zulehner, H.-J. Bart, *Comput. Chem. Eng.* 1995, 19, 639.
- [5] R. Gayler, N. W. Roberts, H. R. C. Pratt, *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.* 1953, 31, 57.
- [6] *Liquid-Liquid Extraction Equipment* (Eds: J. C. Godfrey, M. J. Slater), J. Wiley & Sons, Chichester 1994.
- [7] V. Cauwenberg, J. Degreve, M. J. Slater, *Can. J. Chem. Eng.* 1997, 75, 1046.
- [8] M. Simon, S. A. Schmidt, H.-J. Bart, *Chem. Ing. Tech.* 2003, 74 (3), 247.
- [9] S. A. Schmidt et al., *Chem. Eng. Sci.* 2006, 61, 246.
- [10] G. Modes, in *Grundsätzliche Studie zur Populationsdynamik Extraktionskolonne auf Basis von Einzeltröpfchenuntersuchungen*, Shaker Verlag, Aachen 2000.
- [11] A. K. Chesters, *Trans. Inst. Chem. Eng.* 1991, 69, 259.
- [12] A. M. Kamp, A. K. Chesters, C. Colin, J. Fabre, *Int. J. Multiphase Flow* 2001, 27, 1363.
- [13] C. A. Coulalougrou, L. L. Tavlarides, *Chem. Eng. Sci.* 1977, 32, 1289.
- [14] C. Tsouris, L. L. Tavlarides, *AIChE J.* 1994, 40, 395.
- [15] A. Hasseine, A.-H. Meniai, M. Bencheikh Lehocine H.-J. Bart, *Chem. Eng. Technol.* 2005, 28 (5), 552.
- [16] L. Lagar Garcia, *Studienarbeit*, TU Kaiserslautern 2003.
- [17] T. Misek, R. Berger, J. Schröter, in *Standard Test Systems for Liquid Extraction*, The Institute of Chemical Engineers, Rugby, England, 1978.
- [18] H. J. Bart et al., Recommended Systems for Liquid Extraction Studies, in *Liquid-Liquid Extraction Equipment* (Eds: J. C. Godfrey, M. J. Slater), John Wiley & Sons, Chichester 1994, 1.
- [19] V. Rod, *Czech. Chem. Commun.* 1968, 33, 2855.
- [20] A. Kumar, S. Hartland, *Ind. End. Chem. Res.* 1996, 35, 2682.

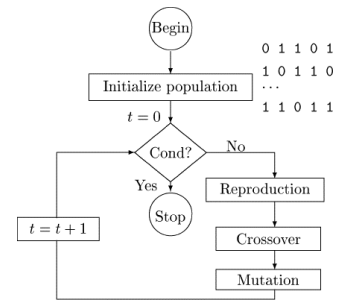
DOI: 10.1002/ceat.200600218

Research Article: The inverse problem method for the droplet population balance model is applied to estimate coalescence parameters for two-phase liquid-liquid systems. These results demonstrate that the optimization procedure proposed is very convenient for estimating the coalescence parameters for extraction column systems.

A Genetic Algorithm Based Approach to Coalescence Parameters Estimation in Liquid-Liquid Extraction Columns

A. Hasseine, A.-H. Meniai*, M. Korichi, M. Bencheikh Lehocine, H.-J. Bart

Chem. Eng. Technol. 2006, 29 (12), XXX ... XXX



WILEY-VCH

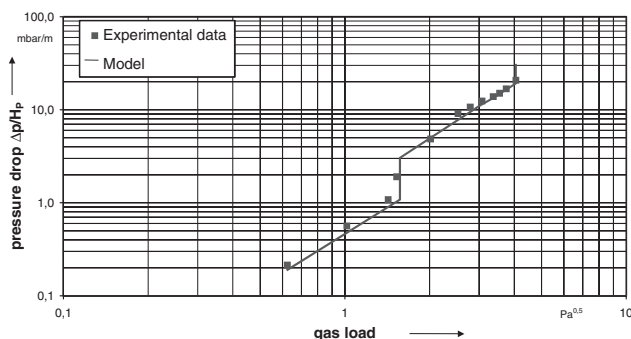


Figure 6. Comparison between newly developed model and experimental data of a sandwich packing, combination of Montz B1-250/B1-500, for a liquid load of $L = 10 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})$.

holdup. The liquid load varied between $\dot{B} = 2 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})$ and $\dot{B} = 50 \text{ m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})$. Experiments showed that the most favorable constellation of conventional packing elements is the combination of Montz B1-250 as separation layer with a packing element having a specific surface area of $a = 1000 \text{ m}^2/\text{m}^3$ as loading layer. Furthermore, it was demonstrated that the sandwich packing reacts less sensitive to liquid maldistribution. The liquid dripping from the packing layers was always homogeneously distributed. Thus, the operation of a sandwich packing above the loading point does not need liquid distributors or redistributors.

A new model for describing the fluiddynamic behavior of the sandwich packing was developed. Based on existing models for conventional packings, this model allows the complete description of fluid dynamics of the sandwich packing including the prediction of the operating range where the mass transfer rate is increased. The model was fitted empirically to the experimental data obtained at the pilot plant.

The characteristics of the sandwich packing can be summarized as follows:

- use of conventional packing elements
- gas loadings up to more than $3.0 \text{ Pa}^{0.5}$
- according to the operating range 3 to 5 theoretical stages per meter
- up to 80 % lower liquid holdup compared with sieve tray columns
- pressure drop related to the number of theoretical stages is approximately the same for a sandwich packing and a sieve tray.

Received: December 16, 2004 [CET 7153]

Symbols used

a	$[\text{m}^2/\text{m}^3]$	specific surface area
n	$[-]$	number of packing elements
Δp	$[\text{N}/\text{m}^2]$	pressure drop
\dot{B}	$[\text{m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})]$	liquid load
F	$[\text{Pa}^{0.5}]$	gas load
F_{load}	$[\text{Pa}^{0.5}]$	gas load at loading point

References

- [1] B. Kaibel, *Diploma Thesis*, TU Karlsruhe/BASF AG, Ludwigshafen, Germany, **1999**.
- [2] N. Kashani, *Diploma Thesis*, FH Regensburg/BASF AG, Ludwigshafen, Germany, **2002**.
- [3] V. Engel, *Fluidodynamik in Packungskolonnen für Gas/Flüssig-Systeme*, VDI Fortschr.-Ber., Reihe 3, 605, VDI-Verlag, Düsseldorf **1999**.
- [4] J. Stichlmair, J. L. Bravo, J. R. Fair, *Gas Sep. Purif.* **1989**, 3.

Assessment of Drop Coalescence and Breakup for Stirred Extraction Columns*

By A. Hasseine**, A.-H. Menai, M. Bencheikh Lehocine, and H.-J. Bart

This work is a model assessment study considering two major hydrodynamic parameters: the holdup of the dispersed phase and the Sauter diameter. This is done for two different types of extraction columns, namely, the rotating disc contactor (RDC) and the Kühni column, using different drop breakup and coalescence models in a droplet population balance model. Based on the film drainage models for undeformable (spherical drops) and deformable drops with partially mobile interfaces, different simulations have been performed and the results compared with experimental values. The agreement between the experimental observation and the simulation is encouraging and the used models have proven to be suitable to predict holdup and Sauter diameter profiles for the system toluene/water.

1 Introduction

Extraction columns are widely used in petroleum, pharmaceutical and chemical industries, mainly with physical extraction systems [1, 2]. Their advantage is their high efficiency and low cost in respect of number of stages, solvent inventory, settler area, site area, maintenance, etc. [3, 4]. The choice of the most appropriate model for calculating a given type of a liquid-liquid extraction column is not straightforward. Most of the recent models [5, 6] aim to study the influence of breakup and coalescence rates in turbulent dispersions on hydrodynamics and mass transfer. Drop coalescence and breakage are key parameters for a fundamental understanding of the behavior of liquid-liquid dispersions in extraction columns. These two processes are dynamic in nature and, in a turbulent flow field, depend on the drop sizes, the

[*] Presented at the GVC working group "Fluidverfahrenstechnik", March 31–April 1, 2004, Leipzig, Germany.

[**] MSc A. Hasseine, Dept. of Chemistry, University Med Khider Biskra, Algeria; Prof. Dr. A.-H. Menai, Prof. Dr. M. B. Lehocine, Dept. of Industrial Chemistry, University Mentouri Constantine, Algeria; Prof. Dipl.-Ing. Dr. techn. H.-J. Bart, Dept. of Process Engineering, TU Kaiserslautern, Germany.

physicochemical properties of the phase involved, the hold-up, the flow conditions and various other parameters such as the local energy dissipation, according to the apparatus geometry.

Mass transfer in the continuous phase in the region around the drop is influenced by the condition of the drop surface, which may be immobile, partially mobile or fully mobile [7]. A film drainage model using the lubrication approximation of Chesters [8] for deformable drops with partially mobile parallel interfacial film and that of Davis et al. [9] for undeformable drops with partially mobile interface, are proposed to describe the drop coalescence.

The drop collision process for two drops may be due to turbulent collision rate (turbulent fluctuations), buoyancy driven collision rates (size dependent rising velocity differences) and laminar shear condition rate (shear layer induced velocity differences) [10]. These models describe the coalescence behavior qualitatively but not quantitatively because they do not take into account all relevant parameters, e.g., electrostatic repulsion forces [10]. Hence, it is necessary to improve and assess these models with respect to experimental data. Also, the effects of these two drop interaction phenomena will be different for each column type at equivalent power input, which may result in quite different mass transfer efficiency. Permanent coalescence and breakup events generate new interfacial areas and thus promote mass transfer. In this work, the main different steps involved in liquid-liquid extraction processes like drop transport, drop breakup and drop coalescence are considered for two different column types, namely, a RDC and a Kühni column, with the aim to calculate the local holdup and Sauter diameter for further mass transfer studies.

2 Model Equations

In the present model the basic variable is a drop size distribution function $P(z, d, t)$ that represents the volume fraction of drops with diameter d in a unit volume of the column at level z and time t [5]¹⁾. The local holdup of the dispersed phase can be calculated from $P(z, d, t)$ as follows:

$$\phi(z, t) = \int_0^{d_{\max}} P(t, z, d) \, dd$$

The volume balance equation of unit volume of the column can be expressed as:

$$\frac{\partial}{\partial t} P(t, z, d) + \frac{\partial}{\partial z} (v_d(t, z, d, \phi) P(t, z, d)) = \left(D_{ax} \frac{\partial}{\partial z} \frac{\partial}{\partial z} P(t, z, d) \right) + \frac{Q_d}{A} p_{in}(d) \delta(z - h_d) + P_V(t, z, d) \quad (2)$$

with a transient and a convective term balanced against a back-mixing term expressed with the dispersion coefficient D_{ax} . The solvent feed is handled as a point source by Dirac's δ -function. The breakup and coalescence process of drops are taken into account in the term $P_{V\phi}$ which is given by:

$$P_V(t, z, d) = \int_0^{d_{\max}} \beta(d_0, d) g(t, z, d_0) P(t, z, d_0) \, dd_0 - g(t, z, d) P(t, z, d) + \frac{V(d)}{2} \int_0^{\sqrt[3]{d}} \omega(d_1, d_2) \frac{P(t, z, d_1)}{V(d_1)} \frac{P(t, z, d_2)}{V(d_2)} \left(\frac{d}{d_2} \right)^2 \partial d_1 - P(t, z, d) \int_0^{\sqrt[3]{d_{\max}^3 - d^3}} \omega(d_1, d_2) \frac{P(t, z, d_1)}{V(d_1)} \partial d_1 \quad (3)$$

The first integral accounts for gain and loss due to breakup of the mother droplet d_0 according to the daughter droplet distribution β . The second integral holds similarly for coalescence according to the coalescence frequency ω .

2.1 Drop Transport

The velocities of both phases are related to the two layer model [11] which is expressed as:

$$v_d(t, z, d, \phi) = v_r(t, z, d, \phi) + v_c(t, z, \phi) \quad (4)$$

with v_c as the continuous phase, v_d as the dispersed phase and v_r as the relative velocity of a drop of diameter d relative to the surrounding continuous phase. It can be obtained from the single drop terminal velocity v_T by the following correlation:

$$v_r(d, \phi) = k_v(d) v_T (1 - \phi) \quad (5)$$

where $k_v(d)$ is the slowing coefficient taking by definition values between 0 and 1. The value of $k_v(d)$ depends on the type of the extraction column.

– For a RDC a correlation from the literature [32] has been proposed as follows:

$$k_v(d) = 1 - 1.037 \left(N^3 D_R^5 \right)^{0.12} - 0.62 \left(\frac{d}{D_S - D_R} \right)^{0.44} \quad (6)$$

with N as the rotor speed, D_S and D_R as the stator and rotor diameters, respectively.

– For a Kühni column [13] it is:

$$k_v = 1 - (1 - e) \left(\frac{7.18 \cdot 10^{-5} Re_R / e}{1 + 7.18 \cdot 10^{-5} Re_R / e} \right) \quad (7)$$

2.2 Drop Breakup

Different breakup mechanisms exist and strongly depend on geometries. For instance, in a Kühni column the drops are generated when passing at the hole in the plates and at the turbine in contrast to the RDC where the breakup pro-

1) List of symbols at the end of the paper.

cess occurs only near the rotor disc. The probability of drop breakup is supposed to be homogeneous in each compartment of the column and therefore a local approach is used, showing that the entire mechanism of breakup probability can be described with a modified Weber number [14]. Thus, the Sauter diameter for a breakup mechanism, as described above, can be correlated with a modified Weber number.

– For the RDC the drop breakup probability $p(d)$ and frequency $g(z,d)$ are calculated with the correlations [14, 15] recommended by Modes [12]:

$$\frac{p(d)}{1-p(d)} = 1.2 \cdot 10^{-6} We_m^{2.88} \quad (8)$$

The idea is to correlate the breakup probability with a modified We-number, which represents the ratio of energy input and the surface energy of a droplet. The breakage frequency depends then on the residence time of the drops:

$$g(z,d) = \frac{p(d)v_d(z,d)}{H_c} \quad (9)$$

with

$$We_m = \frac{\rho_c^{0.8} \mu_c^{0.2} d D_R^{1.6} (\varpi^{1.8} - \varpi_{crit}^{1.8})}{\sigma} \quad (10)$$

and

$$\varpi_{crit} = 2\pi 1.148 \left(\frac{\rho_c D_R^3}{\sigma} \right)^{-0.5} \left(\frac{d}{D_R} \right)^{-0.667} \quad (11)$$

The daughter drop size distribution is given with a β distribution, based on the mother droplet diameter d_0 :

$$\beta(d_0, d) = 3x_m(x_m - 1) \left(1 - \frac{d^3}{d_0^3}\right)^{(x_m - 2)} \frac{d^5}{d_0^6} \quad (12)$$

where x_m is the mean number of daughter drops given by:

$$x_m = 2 + 0.17 \left(\left(\frac{d_0}{d_{crit}} \right) - 1 \right)^{1.83} \quad (13)$$

The critical diameter at which drops start to break is:

$$d_{crit} = 1.23 D_R We_R^{-0.75} \quad (14)$$

– For the Kühni column, the drop breakage probability and breakage frequency are given by the following expression:

$$\frac{p(d)}{1-p(d)} = 0.2148 We_m^{0.7796} \quad (15)$$

The breakage frequency and modified We-number is analogous to Eqs. (9) and (10), where:

$$\varpi_{crit} = 2\pi 0.65 \left(\frac{\rho_c D_R^3}{\sigma} \right)^{-0.5} \left(\frac{d}{D_R} \right)^{-0.72} \quad (16)$$

The daughter drop size distribution is as Eq. (12) with

$$x_m = 2 + 0.838 \left[\left(\frac{d_0}{d_{crit}} \right) - 1 \right]^{1.309} \quad (17)$$

The critical diameter at which drops start to break is given by:

$$d_{crit} = 0.65 D_R We_R^{-0.72} \quad (18)$$

2.3 Drop Coalescence

For this process the hydrodynamics, the system properties at the interfaces, the intensity of the collision and the contacting time between the colliding drops are key parameters. The coalescence efficiency between two approaching, deformable drops according to the film drainage theory is due to drainage of the flow of the film into the bulk. It results in a resistance that hinders the drops to approach. The coalescence efficiency due to this resistance depends on the interfacial mobility of the drops. Assuming that the drops approach the long line of the centers, the relationship between the force and approaching velocity of the drops was calculated using a lubrication approximation [8]. It was assumed that coalescence occurs when the gap between two drops reaches a critical value, h_c , at which the film between the drops ruptures resulting in coalescence. It has been shown theoretically [8] that

$$h_c = (A_k d_{eq} / 16 \pi \sigma)^{1/3} \quad (19)$$

The coalescence efficiency can then be calculated for three ranges of the viscosity ratio called mobile, partially mobile and immobile interfaces. In the work of Davis et al. [9] the dimensionless lubrication force between two undeformable drops in close contact is shown to be dependant on a single, dimensionless parameter:

$$m = \frac{\mu_d}{\mu_c} \left(\frac{a}{h_0} \right)^{1/2} \quad (20)$$

where a is the reduced radius of the two drops and h_0 is the closest distance at two drop surfaces. This parameter m describes the mobility of the interfaces: When $m \ll 1$, the drops behave as rigid spheres, whereas when $m \gg 1$, the drops have fully mobile interfaces and offer relatively low resistance to the drop relative motion. Note that the surface mobility, m , represents the viscous resistance of the fluid inside the drops to the flow exerted on their interfaces by the external fluid as drained out from the gap between the drops.

In general, the coalescence process is described by the drop coalescence rate which is the product of the collision rate $h(d_1, d_2)$, and the coalescence efficiency, $\lambda(d_1, d_2)$, between two drops of diameter d_1 and d_2 . However, the determination of this (drop pair) coalescence rate remains an extremely complex phenomenon and its modeling is still not fully developed.

From the literature [8, 16, 17] the expressions for $h(d_1, d_2)$ can be derived as follows:

Collision rate for deformable drops:

– Kühni column [8, 16]:

$$h(d_1, d_2) = 1.247 \varepsilon^{1/3} (d_1 + d_2)^{7/3} \quad (21)$$

– RDC column [16, 17]:

$$h(d_1, d_2) = C_1 \frac{\varepsilon^{1/3}}{(1+C_V \phi)} (d_1 + d_2)^{7/3} \quad (22)$$

Collision rate for nondeformable drops:

– RDC column [16, 17]:

$$h(d_1, d_2) = C_2 \frac{\varepsilon^{1/3}}{(1+C_V \phi)} (d_1 + d_2)^{7/3} \quad (23)$$

These equations are derived from the relative velocity of two mass points in the liquid phase on a distance of $d_1 + d_2$. The turbulence damping factor was introduced to account for the effects of two phase flow on the degree of turbulence as defined by [6, 17]. The determination of the coalescence efficiency depends mainly on the nature of the two drops involved in the coalescence process as well as on the properties of their interfaces. Some of the relevant models reported above are described as follows:

Coalescence efficiency for nondeformable drops:

Using the mobility interface concept cited above, the lubrication force acting in a direction along the drop center line can be simply expressed as:

$$F = \frac{6\pi\mu_c a^2 w f(m)}{h} \quad (24)$$

where

$$w = dh/dt \quad (25)$$

is the approaching velocity and $f(m)$ is a dimensionless function which is approximated by Davis et al. [9] using the following expression:

$$f(m) = \frac{1+0.38m}{1+1.69m+0.43m^2} \quad (26)$$

$$\text{with } m = \frac{\mu_d}{\mu_c} \left(\frac{a}{h}\right)^{1/2} \quad (27)$$

It should be noted that this coalescence efficiency model is to account for the effects of the film drainage with h denoting the film thickness. If it is assumed that the film drainage rate between the two spheres is constant under the compressing force, then the lubrication force, F , is equal to

the compressing force, F_1 . For example, the coalescence efficiency is [6]:

$$\lambda(d_1, d_2) = \exp\left(-\frac{\bar{v}}{\bar{t}}\right) \quad (28)$$

where

$$\bar{v} = \frac{6\pi\mu_c a^2}{F_1} \zeta \quad (29)$$

$$\zeta = 1.872 \ln \left(\frac{h_1^{1/2} + 1.378q}{h_2^{1/2} + 1.378q} \right) + 0.127 \ln \left(\frac{h_1^{1/2} + 0.312q}{h_2^{1/2} + 0.312q} \right) \quad (30)$$

$$q = \frac{\mu_c}{\mu_d} a^{1/2} \quad (31)$$

with $h_2 = 0$ and $h_1 = 0.1$

$$\bar{t} = \frac{(a/2)^{2/3}}{\varepsilon^{1/3}} \quad (32)$$

In order to apply Eq. (29) to turbulent dispersions, an expression for F_1 is needed. According to the Kolmogoroff-Hinze theory if it is assumed that the eddies responsible for coalescence belong to the inertial subrange, then dimensional analysis indicates that [18]:

$$F_1 = k \rho_c \left((\varepsilon d)^{1/3} \right)^2 d^2 \quad (33)$$

and one can obtain:

$$F_1 = k \rho_c \varepsilon^{2/3} a^2 (d_1 + d_2)^{2/3} \quad (34)$$

This force is derived from [16, 17] with the measurement of the relative velocity of two material points in the liquid as a distance of $d_1 + d_2$. Then, the coalescence efficiency for the RDC column becomes:

$$\lambda(d_1, d_2) = \exp \left(-C_3 \frac{\mu_c (1+1.56\phi)}{\rho_c \varepsilon^{1/3} (d_1 + d_2)^{2/3} a^{2/3}} \zeta \right) \quad (35)$$

Coalescence efficiency for deformable drops:

In the work of Chesters [8], the collisions are divided as viscous and inertial:

- In the viscous case, a typical force exerted by the external flow on a colliding particle (and transmitted to the second particle, with inertial forces being negligible) would be expected to be given by a Stokes-type expression.
- In the inertial case, during viscous collisions, particles are brought together by the flow, rotate around each other and then separate again if coalescence has not occurred.

– For inertial collisions and the partially mobile interface plane film case, the film drainage time is defined as [8]:

$$\bar{t} = \frac{\pi\mu_d F_1^{1/2}}{2(4\pi\sigma/d_{eq})^{3/2} h_{crit}} \quad (36)$$

where F_1 is the force which keeps the drops together:

$$F_1 = k_1 \rho_c \varepsilon^{2.3} d_{eq}^2 (d_1 + d_2)^{2/3} \quad (37)$$

This force is derived from the same consideration as above, with [16]:

$$d_{eq} = 2 \frac{d_1 d_2}{d_1 + d_2} \quad (38)$$

and the contact time [19]:

$$\bar{t} = \frac{(d_{eq}/2)^{2/3}}{(\varepsilon)^{1/3}} \quad (39)$$

Then, the coalescence efficiency becomes for the RDC column:

$$\lambda(d_1, d_2) = \exp\left(-C_4 \frac{\mu_d \rho_c^{1/2} \varepsilon^{2/3} d_{eq}^{11/6} (d_1 + d_2)^{1/3}}{\sigma^{3/2} (1 + C_v \phi)^2 h_{crit}}\right) \quad (40)$$

For the viscous collisions and partially mobile interface plane film case, the coalescence efficiency is [8] for a Kühni column:

$$\lambda(d_1, d_2) = \exp\left(-0.077 \left(\frac{\mu_d}{\mu_c}\right) \Omega^{3/2} \left(\frac{d_{eq}}{h_c}\right)\right) \quad (41)$$

with

$$\Omega = \frac{\mu_d \varepsilon^{1/2} d_{eq}}{\sigma \gamma^{1/2}} \quad (42)$$

Eq. (41) predicts that the coalescence efficiency decreases to the minimum film thickness with the viscosity ratio, the capillary number Ω , and the ratio of the average particle size. It is noted that the capillary number is the dimensionless group controlling drop deformation and breakup in a viscous shear field. The power dissipation per unit mass, ε , is a parameter which can be accounted for the effect of external agitation in a liquid-liquid extraction column. It is expressed in terms as the ratio of the power input P to the agitator as follows:

$$\varepsilon = P/m = P/\rho_c V_c = 4P/(\pi D_c^2 H_C \rho_c) \quad (43)$$

where P can be calculated from the following expression:

$$P = N_p N^3 D_R^5 \rho \quad (44)$$

with N_p as the power number for the RDC and Kühni columns as follows [20]:

– for RDC columns:

$$N_p = \frac{C_5}{Re_R} + C_6 \left[\frac{1000 + 1.2 Re_R^{m_2}}{1000 + 3.2 Re_R^{m_2}} \right]^{m_3} \quad (45)$$

with $C_5 = 109.4$, $C_6 = 0.74$, $m_2 = 0.72$, $m_3 = 3.30$

– for Kühni columns:

$$N_p = 1.08 + \frac{10.94}{Re_R^{0.5}} + \frac{257.37}{Re_R^{1.5}} \quad (46)$$

3 Results and Discussion

The experimental and simulated results are presented and discussed in three sections. The first one deals with the validation of the breakup probability by comparison with the results from the experimental work at different rotor speeds and throughputs in RDC columns [12]. The second one is about the comparison between the behaviors of both column types at similar operating conditions. The last one is an attempt to present the possible flow situations concerning the coalescence process for undeformable and deformable drops [8, 9]. The coalescence parameters were estimated in a small laboratory scale device, which consists of five compartments of the RDC column. Several rotational speeds and flow rates for the saturated toluene/water system were used to estimate the constants of the coalescence model. They were estimated using the Rosenbrock method [26] and the generalized fixed-pivot [24] technique to solve the inverse problem of the droplet populace model, which and consists in the minimization of the objective function, S [27].

$$S = \sum_{k=1}^{NDC} \left[Q_3^{k,out}(\text{exp}) - Q_3^{k,out}(\text{sim}) \right]^2 \quad (47)$$

As to this, the simulated outlet cumulative distribution Q_3 is correlated to the experimental one by varying the coalescence parameters. This procedure is continued as long as the least square differences have reached a minimum. Within the range of the experimental accuracy the mean values of $C_1 = 0.001$, $C_2 = 0.01$, $C_3 = 300$ and $C_4 = 0.04$ describe the system water/toluene satisfactorily and are used further on.

The simulations of the operation of the two column types are based on the ternary system water-acetone-toluene which is recommended as a European Federation of Chemical Engineering (EFCE) test system for liquid extraction studies [21, 22]. However, this work considers only the hydrodynamic simulation, excluding mass transfer. The physical properties of water and toluene are $\rho_c = 997.2 \text{ kg/m}^3$, $\rho_d = 862.2 \text{ kg/m}^3$, $\mu_c = 0.92 \text{ mPa s}$, $\mu_d = 0.6 \text{ mPa s}$, $\sigma = 0.0337 \text{ N/m}$ with water as the continuous phase and toluene as the dispersed phase, respectively. The operating conditions and the dimensions of each of the columns are presented in Tab. 1.

Table 1. Compartment details and operating conditions

	RDC column [12]	Kühni column [23]
Column diameter, mm	150	150
Compartment height, mm	30	70
Active part, mm	1740	2520
Turbine diameter, mm	90	85
Free area fraction, %	/	27
Rotor speed, 1/min	300	160
Energy dissipation, W/kg	0.0788	0.0788

For the first part, the validation process has been carried out through the study of the influence of operating conditions such as the solvent flow rate or the intensity of the agitation on hydrodynamic parameters such as holdup and Sauter diameter. In Figs. 1 and 2 the simulation results and the experimental data for the RDC column are presented. The simulation includes axial dispersion, breakup and coalescence. The axial dispersion coefficient after Modes [12] for the dispersed phase was with a correlation of Rod [30] and for the continuous phase after Kumar and Hartland [31].

Clearly any increase in agitation speed encourages drop breakup and greatly reduces their coalescence. This results in drops with small average sizes and hence an improved

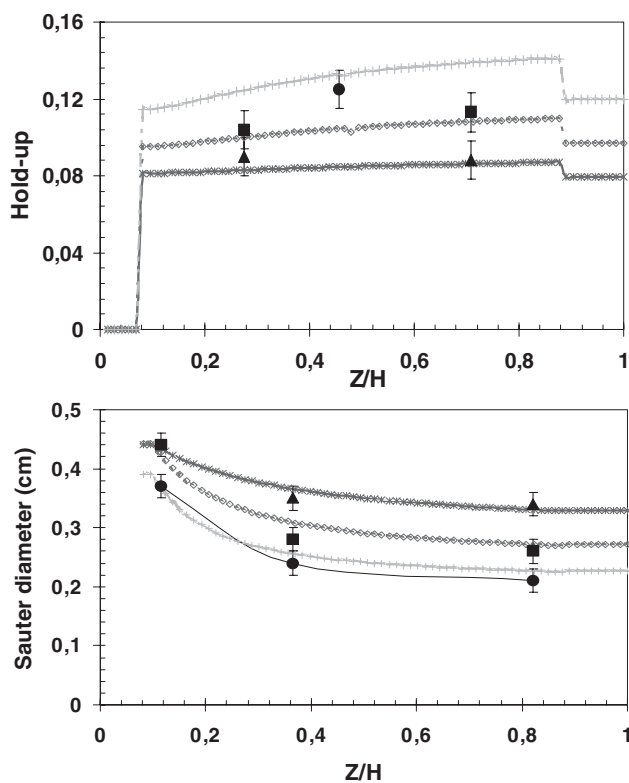


Figure 1. Comparison in RDC column of a simulated holdup and Sauter diameters with experimental data. Influence of agitation effect on holdup and Sauter diameters. ($Q_c=100$ L/h, $Q_d=112$ l/h), (250 r.p.m. -*- sim. -▲- exp.), (300 r.p.m. -◇- sim. -■- exp.) (350 r.p.m. +- sim. -●- exp.).

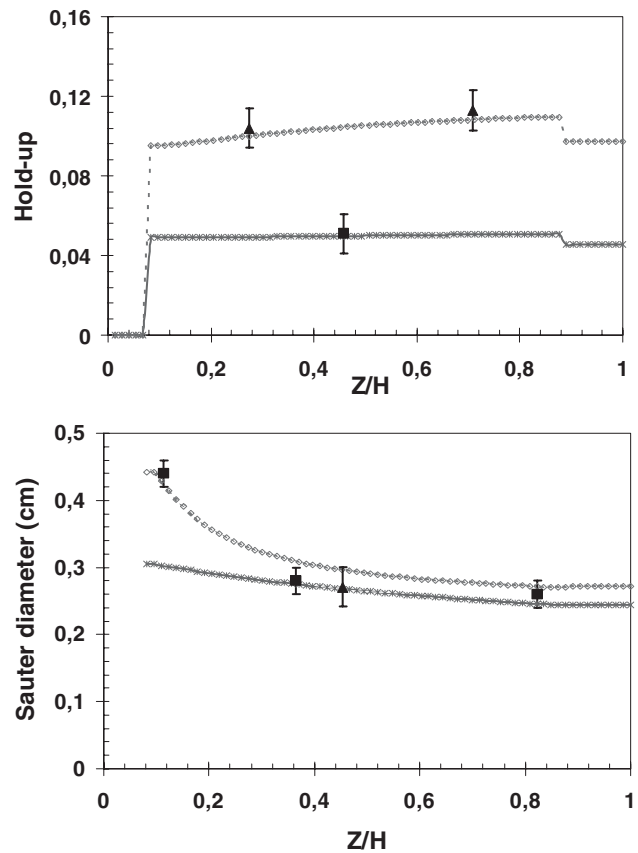


Figure 2. Comparison in RDC column of a simulated holdup and Sauter diameters with experimental data. Influence of solvent flow rate on holdup and Sauter diameters. (300 r.p.m.), ($Q_c=100$ L/h, $Q_d=112$ L/h -*- sim. -▲- exp., $Q_c=100$ L/h, $Q_d=56$ L/h -◇- sim. -■- exp.).

holdup and small Sauter diameter values, as shown in Fig. 1. In Fig. 2, it can be seen that an increase ($Q_d=56$ L/h, $Q_d=112$ L/h) in the solvent rate has also significant effects on the holdup and the Sauter diameter profiles. Higher dispersed phase flow rates result in higher holdup and higher Sauter diameters. From these figures, it can be concluded that the predicted results for the holdup and the Sauter diameter are in good agreement with the experimental values.

For the second part of the study, the case of an identical energy dissipation for both columns ($e=0.0788$ W/kg) has approximately the same throughput as in Fig. 1 and the same range of drop diameters is considered. Fig. 3 shows the holdup and the Sauter mean diameter plotted versus the dimensionless column height. It can be seen that the holdup profile is significantly more pronounced in the Kühni column than in the RDC. The Sauter mean diameter is smaller with the more efficient Kühni column, which is in good agreement with the experimental values [12, 23].

Fig. 4 shows the different dependence of the breakage probability $p/(1-p)$ on the modified Weber number. It indicated a realistic physical interpretation of breakup according to Eq. (8) and Eq. (15) for the RDC and the Kühni column, respectively, and the dependence of breakage on rotor Reynolds number and column dimensions can be tested. The cal-

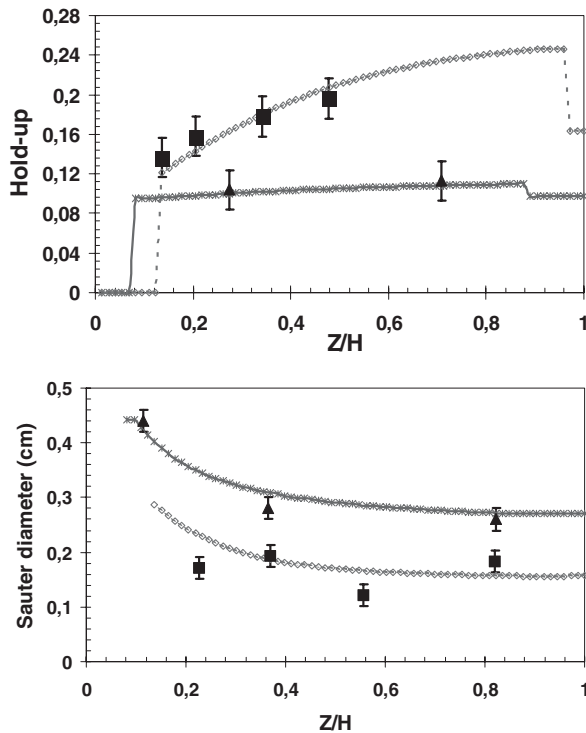


Figure 3. Holdup and Sauter diameters, comparison between a simulated holdup and experimental data, RDC (-* sim. -▲- exp.) and Kühni (-◇- sim. -■- exp.).

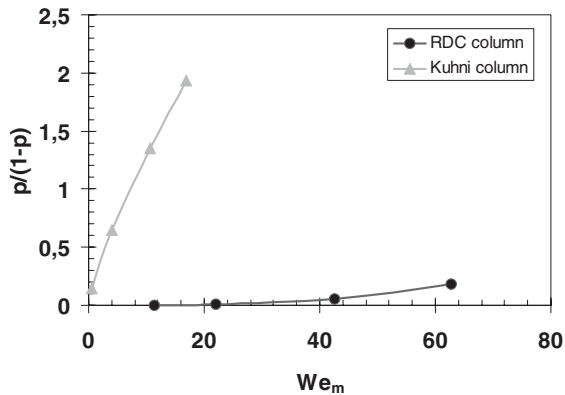


Figure 4. $p/(1-p)$ versus modified Weber number in RDC and Kühni columns.

culuation of the ratio (D_C/H_C) for both columns was found to be 0.2 and 0.45 for the RDC and the Kühni column, respectively, corresponding to a slope increase as shown in Fig. 4. The calculation of Re_R gives 20900 and 43900 for the Kühni and the RDC column, respectively, and the different flow intensity may be significant in the compartments which have different geometries (see Tab. 1). Fig. 4 shows that the slope for the Kühni column is greater than for the RDC one. It implies that the breakup is more important in the Kühni column, as also explained by the profiles shown in Fig. 3.

In the third part, the holdup and the Sauter diameter profiles are represented versus the dimensionless column height. Fig. 5 concerns the Kühni column for the case of de-

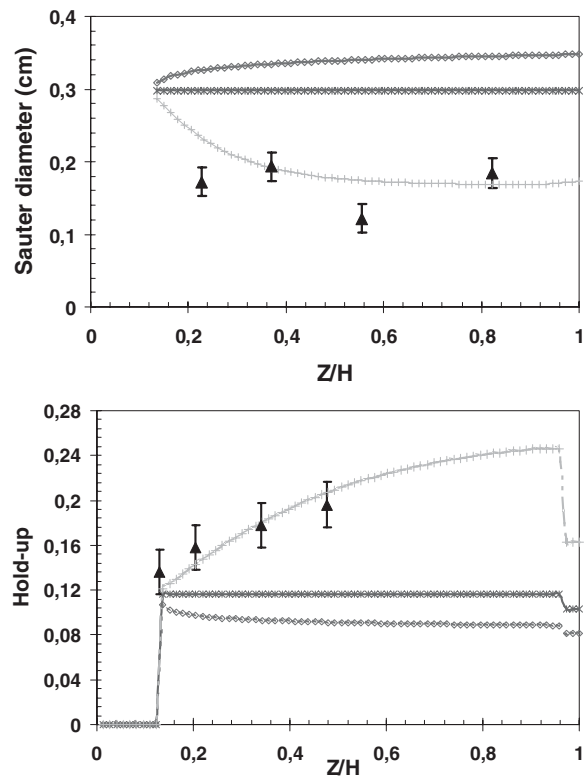


Figure 5. Influence of rupture and coalescence on holdup and Sauter diameters in the Kühni column. (+- sim. -▲- exp. breakup), (-◇- sim. coalescence), (-x- sim. no breakup and coalescence). $e = 0.0788$ W/kg, ($Q_c = 125$ L/h, $Q_d = 130$ L/h).

formable drops with partially mobile interfacial planar film. Figs. 6 and 7 concern the inertial case for the RDC for both deformable and undeformable drops with partially mobile interfacial film. Different situations such as solely breakup, solely coalescence, and no breakup and coalescence are considered. The results further can be regarded as a sensitivity analysis of the model based on the concept of a population balance with the parameters derived and the validation by experimental data. The first case with no coalescence and only breakup leads to smaller drops which have a smaller slip velocity and greater residence time. Therefore, the hold-up in the column increases and the Sauter diameter decreases. For the inverse case with the absence of breakup larger drops are present. This leads to a lower holdup and a higher Sauter diameter as shown in Figs. 5, 6, and 7.

4 Conclusions

The drop breakup correlations by shear flow previously determined from the single drop experiments for RDC and Kühni column geometries can be implemented into a drop population balance model. This gives an opportunity to simulate the hydraulic behavior of the pilot columns without adjustable parameters. The comparison between both types of columns in the range of the same energy dissipation gives a

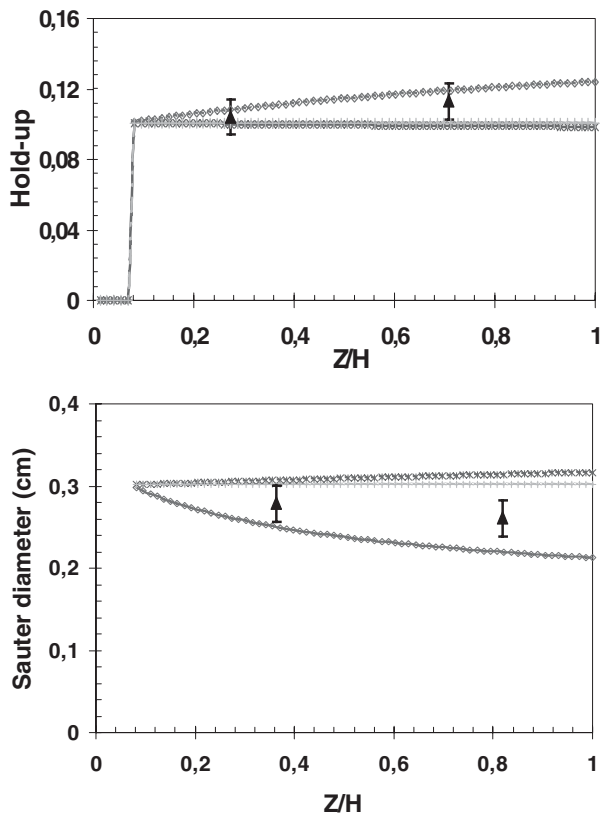


Figure 6. Influence of rupture and coalescence on holdup and Sauter diameters in the RDC column. $N = 300$ r.p.m. ($Q_c = 100$ L/h, $Q_d = 112$ L/h). (-◇- sim. -▲- exp. breakup), (-×- sim. coalescence), (-+- sim. no breakup and coalescence).

higher holdup for the Kühni column than for the RDC, inversely for the Sauter diameter. This can be explained by the fact that the efficiency of the Kühni turbines is higher than that of the RDC discs, which is reasonable.

The simulation of the hydrodynamics extraction columns requires the knowledge of axial dispersion, slip velocity of the phases in a certain column geometry, and the droplet interaction phenomena, i.e., breakage and coalescence. For a Kühni and a RDC extraction column the published standard hydrodynamic relationships for axial dispersion of both of the phases and the slip velocity have been used so far. The breakage of the droplets was calculated on the basis of a modified We-number by Cauwenberg et al. [14] adapted to the specific column geometry by Modes [12] and Simon et al. [15,25]. A new attempt was made to assess the droplet swarm hydrodynamics of this two stirred extraction columns on coalescence models based on the film drainage for undeformable and deformable drops with partially mobile interfaces, using the lubrication approximation of Chesters [8]. Within the range of experiments it has been found that mean values of the coalescence parameters describe the toluene/water system satisfactorily.

The assessment includes a comparison at similar throughputs respectively energy dissipation revealing the different efficiency of the two columns. A sensitivity analysis taking

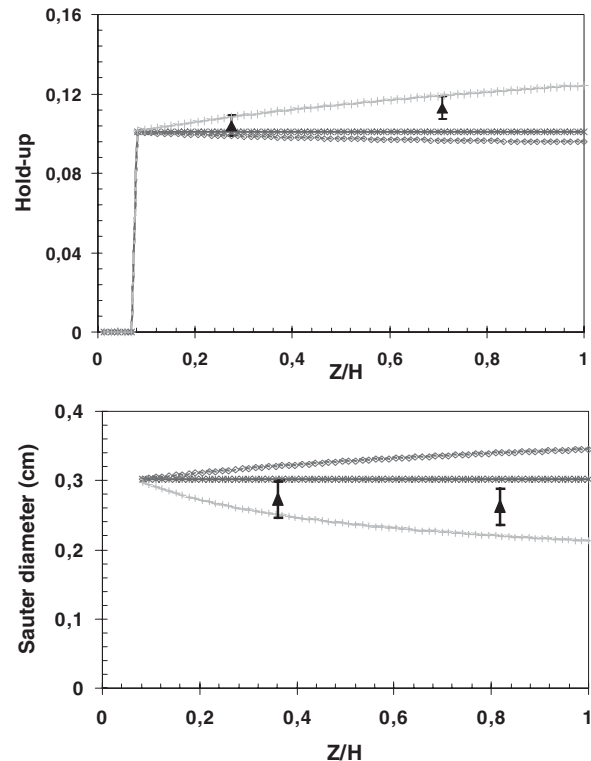


Figure 7. Influence of rupture and coalescence on holdup and Sauter diameters in the RDC column. $N = 300$ rpm. ($Q_c = 100$ L/h, $Q_d = 112$ L/h). (-+- sim. -▲- exp. breakup), (-◇- sim. coalescence), (-×- sim. no breakup and coalescence).

into account coalescence or breakage or neither of them reveals the influence of the chemical system used in two different geometries. However, further work is necessary to obtain a bigger data basis with different EFCE extraction test systems, where butylacetate/water is a candidate for low interfacial tension and isododecane/water one for high viscosity.

At present, this tool for simulation allows an interpretation and a comprehension of the various phenomena implied in the operation of liquid-liquid extraction columns essentially with the dimensioning of these apparatus.

Acknowledgement

The authors wish to thank M. Attarakih, M. Simon and S. A. Schmidt for their helpful discussions.

Received: December 15, 2004 [CET 7174]

Symbols used

a	[m]	reduced radius ($= r_1 r_2 / (r_1 + r_2)$)
A_k	[J]	Hamaker constant
C_1, C_2	[-]	collision frequency constants

C_3, C_4	[-]	coalescence efficiency constants
C_V	[-]	turbulence (damping) constant
D_{ax}	[m ² /s]	axial dispersion coefficient
D_C	[m]	column diameter
D_R	[m]	rotor diameter
D_S	[m]	stator diameter
d_1, d_2 , resp. d	[m]	drop diameter
d_{crit}	[m]	critical drop diameter for breakup
d_{eq}	[m]	equivalent radius
d_0	[m]	mother drop diameter
d_{32}	[m]	Sauter mean drop diameter
e	[-]	plate free area fraction
F, F_1	[N]	force
$g(z, d)$	[s ⁻¹]	breakup frequency
g	[m/s ²]	acceleration due to gravity
H_C	[m]	compartment height
$h(d_1, d_2)$	[m ³ /s]	collision frequency in unit volume
h_1, h_2, h	[m]	film thickness
N	[s ⁻¹]	rotor speed
N_P	[-]	power number ($= P/(N^3 D_R^5 \rho_c)$)
p	[m ⁻¹]	distribution density function
P	[W]	power input per compartment
$P(d)$	[-]	breakup probability for a drop of diameter d
Q	[m ³ /s]	phase flux)
Re_R	[-]	rotor Reynolds number ($= \frac{\rho_c R^2 N}{\mu_c}$)
r	[m]	radius
\bar{t}	[s]	average contact time
$V(d)$	[m ³]	drop volume with size d
v	[m/s]	phase velocity
v_r	[m/s]	relative velocity
v_T	[m/s]	terminal velocity
We_m	[-]	Weber modified number
We_R	[-]	rotor Weber number ($= \frac{\rho_c D_R^3 N^2}{\sigma}$)
x_m	[-]	mean number of daughter droplets
z	[m]	height

Greek symbols

$\beta(d_0, d)$	[m ⁻¹]	daughter drop size distribution
σ	[N/m]	interfacial tension
$\Delta\rho$	[kg/m ³]	density difference between phases
ε	[W/kg]	mechanical power dissipation per unit mass
μ	[Pa s]	dynamic viscosity
γ	[m ³ s ⁻¹]	kinematic viscosity
ρ	[kg/m ³]	density
$\bar{\tau}$	[s]	average coalescence time
ϕ	[-]	volume fraction holdup of the dispersed phase
σ	[N/m]	interfacial tension
$\lambda(d_1, d_2)$	[-]	coalescence probability
$\omega(d_1, d_2)$	[m ³ /s]	coalescence rate

Subscripts

c	continuous phase
crit	critical
d	dispersed phase
max	maximal

References

- [1] H. W. Brandt, K.-H. Reissinger, J. Schröter, *Chem. Ing. Tech.* **1978**, *50*, 345.
- [2] *Handbook of Solvent Extraction* (Eds: T. C. Lo, M. H. I. Baird, C. Hanson), J. Wiley & Sons, New York **1983**.
- [3] *Liquid-Liquid Extraction Equipment* (Eds: J. C. Godfrey, M. J. Slater), J. Wiley & Sons, Chichester **1994**.
- [4] L. A. Robins, R. W. Cusack, in *Perry's Chemical Engineers' Handbook* (Eds: R. H. Perry, D. W. Green), McGraw Hill, New York **1997**, 15/1.
- [5] T. Kronberger, A. Ortner, W. Zulehner, H. J. Bart, *Comp. Chem. Eng.* **1995**, *19*, 639.
- [6] C. Tsouris, L. L. Tavlarides, *AIChE J.* **1994**, *40*, 395.
- [7] C. Tsouris, L. L. Tavlarides, *Chem. Eng. Sci.* **1993**, *48*, 1503.
- [8] A. K. Chesters, *Trans. IChemE* **1991**, *69*, 259.
- [9] R. H. Davis, J. A. Schonberg, J. M. Rallison, *Phys. Fluids A1* **1989**, *77* (1).
- [10] M. Simon, H.-J. Bart, *Chem. Eng. Technol.* **2002**, *25*, 481.
- [11] R. Gayler, N. W. Roberts, H. R. C. Pratt, *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.* **1953**, *31*, 57.
- [12] G. Modes, *Grundsätzliche Studie zur Populationsdynamik Extraktionskolonne auf Basis von Einzeltröpfchenuntersuchungen*, Shaker Verlag, Aachen **2000**.
- [13] J. Fang et al., *Chem. Eng. Technol.* **1995**, *18*, 41.
- [14] V. Cauwenberg, J. Degreve, M. J. Slater, *Can. J. Chem. Eng.* **1997**, *75*, 1046.
- [15] M. Simon, S. A. Schmidt, H.-J. Bart, *Chem. Ing. Tech.* **2002**, *74* (3), 247.
- [16] A. M. Kamp, A. K. Chesters, C. Colin, J. Fabre, *Int. J. Multiphase Flow* **2001**, *27*, 1363.
- [17] C. A. Coulalougou, L. L. Tavlarides, *Chem. Eng. Sci.* **1977**, *32*, 1289.
- [18] R. M. Thomas, *Int. J. Multiphase Flow* **1981**, *7*, 709.
- [19] K. Shimizu, S. Takada, K. Minekawa, Y. Kawase, *Chem. Eng. J.* **2000**, *78*, 21.
- [20] A. Kumar, S. Hartland, *Ind. Eng. Chem. Res.* **1996**, *35*, 2682.
- [21] T. Misek, R. Berger, J. Schröter, *Standard Test Systems for Liquid Extraction*, The Inst. Chem. Engineers, Rugby **1978** (<http://www.icheme.org/learning/feb2002>).
- [22] H. J. Bart et al., in *Liquid-Liquid Extraction Equipment* (Eds: J. C. Godfrey, M. J. Slater), John Wiley & Sons, Chichester **1994**, 1.
- [23] Zamponi, *Das dynamische Verhalten einer gerührten Solventextraktionskolonne*, Shaker Verlag, Aachen **1996**.
- [24] M. M. Attarakih, H.-J. Bart, N. M. Faqir, in *Eur. Symp. on Computer Aided Process Engineering* (Eds: A. Kraslawski, I. Turunen), Elsevier, Amsterdam **2003**, *13*, 557.
- [25] M. Simon, S. A. Schmidt, H.-J. Bart, *Chem. Eng. Technol.* **2003**, *26* (7), 745. DOI: 10.1002/ceat.200306101.
- [26] H. H. Rosenbrock, *Comp. J.* **1960**, *175*.
- [27] L. Lagar Garcia, *Studienarbeit*, TU Kaiserslautern **2003**.
- [28] T. Tobin, D. Ramkrishna, *Can. J. Chem. Eng.* **1999**, *77*, 1090.
- [29] H. A. Sovova, *Chem. Eng. Sci.* **1983**, *38*, 1863.
- [30] V. Rod, *Coll. Czech. Chem. Commun.* **1968**, *33*, 2855.
- [31] A. Kumar, S. Hartland, in *Liquid-Liquid Extraction Equipment* (Eds: J. G. Godfrey, M. J. Slater), J. Wiley & Sons, Chichester **1994**, 625.
- [32] J. C. Godfrey, M. J. Slater, *Trans. IChemE* **1991**, *69*, 130.

ملخص:

إن هذا العمل يعتبر دراسة لنموذج تقييم باستخدام وسيطين هدرود يينا مكبين رئيسيين: الاحتباس للطور المبعثر وقطر Sauter . يتم ذلك لنوعين مختلفين من أعمدة الإستخلاص وهي عمود RDC و عمود Kühni , بإستعمال نماذج مختلفة للتفكك والالتصاق للقطرات في نموذج التوازن السكاني للقطرات. بناء على نماذج تصريف الفيلم للقطرات الكروية الشكل و الغير كروية الشكل مع قوارن متحركة جزئياً. أنجزت محاكات مختلفة والنتائج قورنت مع قيم تجريبية. الأتفاق كافي بين الملاحظة التجريبية والمحاكاة والنماذج المستعملة وتشجيع استخدام النماذج التي ثبت إنها ملائمة لتوقع منحني الاحتباس وقطر Sauter لنظام تولوين/ماء. نموذج التوازن السكاني هو اداة مفيدة للتخطيط والمنتبأ في مجموعة من العمليات التي تنطوي على أطوار متفرقة والجسيمات. الطريقة العكسية لمشكلة التوازن السكاني للقطرات قد استعملت لأوساط الالتصاق للنظام ثنائي الطور سائل - سائل ويتم ذلك على النظامين وهما التولوين/ماء و ن - بوتيل استات/ماء في عمود RDC باستخدام نموذج التوازن السكاني. غير انه, طريقة تقدير هذه المشكلة غالبا ماتستند إلى الحتمية الأمثل. هذه الأساليب تولد عدم الأستقرار قرب أدنى محلي يتطلب حتما معلومات عن المشتقات في كل التكرار. ولنتغلب على هذه الحدود, اقترحت طريقة تزود بتقدير أوساط الألتساق. وهي تقوم على بنية بسيطة ومكيفة من خوارزمي الوراثة, لهذه المشكلة. الإ تفاق بين الملاحظة التجريبية والمحاكاة مشجعة, وخصوصا النماذج المستخدمة التي أثبتت أنها مناسبة لتوقع منحنيات الإحتباس وقطر Sauter لهذين النظامين. وأخيرا هذه النتائج, تثبت أن الإجراء الأمثل هو مقترح مناسب جدا لتقدير أوساط الإلتصاق لأنظمة عمود الإستخلاص.

ABSTRACT

This work is a model assessment study considering two major hydrodynamic parameters: the hold-up of the dispersed phase and the Sauter diameter. This is done for two different types of extraction columns, namely the rotating disc contactor (RDC) and the Kühni column, using different drop break-up and coalescence models in a droplet population balance model. Based on the film drainage models for undeformable (spherical drops) and deformable drops with partially mobile interfaces, different simulations have been performed and the results compared with experimental values. The agreement between the experimental observation and the simulation is encouraging and the used models have proven to be suitable to predict hold-up and Sauter diameter profiles for the system toluene/water.

The population balance model is a useful tool for design and prediction in a range of processes that involve dispersed phases and particulates. Inverse problem method for droplet population balance model is applied to estimate coalescence parameters for two-phase liquid-liquid system. This is done for two systems, namely toluene/water and n-butyl acetate/water in a rotating disc contactor (RDC) using a droplet population balance model. In the open literature, the estimation procedure applied to this problem is often based on the deterministic optimization approach. These methods generate instabilities near a local minimum, requiring inevitably information about the derivatives at each iteration.

To overcome the above limitations, a method providing an estimate for coalescence parameters is proposed. It is based on a simple and adapted structure of the genetic algorithm, for this particular problem.

The agreement between the experimental observation and the simulations is encouraging and, particularly, the used models have proven to be suitable to predict hold-up and Sauter diameter profiles for these two systems.

Finally, these results demonstrate that the optimization procedure proposed is very convenient for estimating the coalescence parameters for extraction column systems.

Keywords : Extraction, Hold-up, Coalescence, Breakage, Sauter diameter, Efficacité, Drops