

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

**N° D'ORDRE:
SERIE:**

**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

OUTILI Nawel

Epouse Bouchloukh

**ETUDE EXPERIMENTALE ET MODELISATION
D'UNE COLONNE D'EXTRACTION A
GARNISSAGE**

- 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 D. BARKAT
Examineur

Professeur, Université de Biskra

Mr M. KADJA

Professeur, Université de Constantine

Examineur

...../...../2008

DEDI CACES

Je dédie ce que j'ai fait de mieux dans ma vie, à
ceux que j'ai de chers :

Ma Mère ;

Mon Père ;

Mes enfants : Selma et M^{ed} Haithem ;

Mon Mari : Djamel

Et toute ma FAMILLE

REMERCIEMENTS

Avant tout je remercie Dieu le tout puissant qui m'a permis de mener à terme ce travail;

Ma gratitude à mon encadreur Mr. A. H. MENI AI , pour toute sa contribution, ses encouragements et ses conseils assez utiles et fructueux, qu'il n'a pas hésité à m'accorder et qui m'ont aidé à la réalisation de ce travail. Qu'il reçoit l'expression de ma gratitude la plus sincère ;

Je tiens aussi à remercier le Professeur Bencheikh Lehocine Mossaab qui m'a honorée en acceptant de présider le jury;

Je remercie également les Professeurs M Omari et D. Barkat de l'université Mohamed Khider de Biskra ainsi que Mr Kadja Mahfoud, Professeur à l'Université de Constantine d'avoir accepté d'examiner mon travail ;

J'exprime ma reconnaissance au professeur J. H. Bart et Dr G. Gneist de l'Université de Kaiserslautern (Allemagne) de m'avoir

accueilli dans leur laboratoire et pour tous les moyens qu'ils ont mis à ma disposition.

Enfin, Je remercie ma famille pour leurs compréhension et soutien moral, j'espère que ce travail soit la bonne expression de ma gratitude.

SOMMAIRE

NOMENCLATURE	i
LISTE DES FIGURES	iv
LISTE DES TABLEAUX	vii
INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE 1: Recherche bibliographique	
1.1. Introduction	6
1.2. Etude expérimentale du coefficient de transfert de masse	7
1.3. Systèmes recommandés	9
1.4. Travaux déjà réalisés	10
1.5. Comparaison des modèles existants	15
1.6. Synthèses des observations expérimentales	17
1.7. Problèmes rencontrés avec les différents modèles et théories de transfert de matière	18
CHAPITRE 2: Hydrodynamique et modélisation des colonnes d'extraction	
2.1. Introduction	22
2.2. Vitesse terminale des gouttes	22

2.3. Diamètre critique de circulation	24
2.4. Comportement des gouttes	25
2.4.1. Effet de la viscosité de la phase dispersée	26
2.5. Les colonnes d'extraction liquide-liquide à garnissage	28
2.5.1. Garnissages	28
2.6. Hydrodynamique des colonnes d'extraction liquide-liquide	32
2.6.1. Taille des gouttes	32
2.6.2. Vitesse de glissement	33
2.6.3. Rétention de la phase dispersée	34
2.6.4. Aire interfaciale	35
2.6.5. La dispersion	35
2.7. Modélisation d'une colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage	36

CHAPITRE 3: Théories et corrélations de transfert de matière

3.1. Introduction	40
3.2. Le coefficient de transfert	41
3.3. Composition des résistances de transfert	41
3.4. Modèles de représentation du transfert entre phases	43
3.4.1. Expression des coefficients de transfert	43
3.4.2. Théorie des deux films	45
3.4.3. Théorie de Higbie	46
3.5. Modèles pour le cas de dispersion de gouttes	47
3.5.1. Théorie de Newman	48
3.5.2. Théorie de Kronig-Brink	48
3.5.3 Théorie de Handlos-Baron	49
3.5.4. Le modèle d'élongation de surface	50
3.5.5. Modèle de renouvellement de l'interface	50
3.6. Cas des colonnes d'extraction	51
3.7. Les différentes corrélation pour l'estimation du coefficient de TDM	51
3.8. Corrélations côté phase continue	51
3.8.1. Corrélations pour des gouttes rigides	51
3.8.2. Corrélations pour des gouttes à circulation interne	53
3.8.3. Corrélations pour des gouttes oscillantes	53

3.9. Corrélations côté phase dispersée	54
3.9.1. Corrélation pour des gouttes rigides	54
3.9.2. Corrélations pour des gouttes à circulation interne	55
3.9.3. Corrélations pour des gouttes oscillantes	55
3.9.4. Stagnant cap model	55
3.10. Cas des colonnes d'extraction liquide-liquide	57
3.10.1. Colonnes à pulvérisation	57
3.10.2. Colonnes garnies	57
4.10.3. Colonne RDC	58
3.11. Proposition de modèles uniformes pour chaque phase	59

CHAPITRE 4: Méthodes numériques

4.1. Introduction	61
4.2. Méthode des éléments finis	61
4.2.1. Discrétisation du domaine	62
4.2.2. Modèles d'interpolation	64
4.2.3. Polynôme d'interpolation linéaire en fonction des coordonnées globales	65
4.2.4. Polynôme d'interpolation linéaire en fonction des coordonnées naturelles	67
4.2.5. Fonction d'interpolation unidimensionnelle de Lagrange	70
4.2.6. Formulation des matrices et vecteurs caractéristiques de l'élément	70
4.2.7. Méthode de Galerkin	71
4.2.8. Assemblage des équations de l'élément	71
4.2.9. Incorporation des conditions aux limites	71
4.2.10. Solution du système d'équations des éléments finis	72
4.2.11. Traitement du problème transitoire	73
4.2.12. Oscillation et stabilité de la réponse transitoire	73
4.3. Méthodes d'approximation numérique	74
4.3.1. Méthode des moindres carrées	75
4.3.2. Méthode de simplexe	76

CHAPITRE 5: Résultats et discussions

5.1. Introduction	78
5.2. Systèmes utilisés pour le cas de goutte unique	79
5.3. Résultats expérimentaux pour systèmes à goutte unique	79

5.4. Combinaison des théories et corrélations existantes pour système à goutte unique	81
5.4.1. Résultats et discussions des combinaisons de théories et corrélations	82
5.4.2. Etude hydrodynamique des systèmes à goutte unique utilisés	86
5.5. Etude des coefficients de transfert	89
5.5.1. Corrélations coté phase continue	89
a. Comparaison des corrélations existantes	89
b. Nouvelles corrélations pour goutte unique	90
c. Nouvelle corrélation pour colonne d'extraction liquide-liquide	92
5.5.2. Corrélations coté phase dispersée	94
a. Nouvelle corrélation pour gouttes rigides et à circulation laminaire	95
b. Nouvelle corrélation pour gouttes à circulation turbulente	97
c. Corrélation pour colonne d'extraction liquide-liquide	98
5.5.3. Application des nouvelles corrélations	99
a. Système à goutte unique	100
b. Colonne d'extraction à garnissage	103
5.6. Modélisation de la colonne d'extraction à garnissage	107
5.6.1. Cas unidimensionnel avec dispersion axiale en régime permanent	107
5.6.2. Cas unidimensionnel avec dispersion axiale en régime transitoire	110
5.6.3. Cas bidimensionnel en régime permanent	112
a. Gradient nul à la paroi	113
b. Gradient non nul à la paroi	115
CONCLUSION GENERALE	119
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	121
ANNEXES	
ANNEXE 1. Valeurs propres des équations de Krong-Brink et Handlos-Baron	125
A.1. Tableau des valeurs propres du modèle de Kronig-Brink	125
A.2. Tableau des valeurs propres du modèle de Handlos-Baron	125
ANNEXE 2. Théorème de Green-Gauss	126
ANNEXE 3. Organigramme du programme des éléments finis	127
ANNEXE 4. Organigramme du programme des combinaisons des théories pour le K_{od}	128

ANNEXE 5. Organigramme du programme de la nouvelle corrélation coté phase continue

129

ANNEXE 6. Organigramme du programme de la nouvelle corrélation coté phase dispersée

130

NOMENCLATURE

- A : aire de l'élément triangulaire (m^2)
- A_n : valeurs propres dans l'équation de Kronig-Brink
- a : aire interfaciale entre les deux phases (m^2/m^3)
- a_p : surface spécifique du garnissage (m^2/m^3)
- C : concentration molaire (mol/m^3)
- C_D : coefficient de frottement
- C_n : valeurs propres dans l'équation de Handlos-Baron
- C_{IP} : coefficient d'instabilité interfaciale
- D : coefficient de diffusion (m^2/s)
- D_{eddy} : diffusion turbulente (m^2/s)
- D_{OE} : diffusion effective (m^2/s)
- d : diamètre de la goutte (m)
- d_{crit} : diamètre critique de début de circulation dans la goutte(m)
- d_p : diamètre du garnissage (m)
- d_{pc} : diamètre critique du garnissage (m)
- d_s : diamètre moyen de Sauter (m)
- E_r : coefficient de dispersion radiale (m^2/s)
- E_z : coefficient de dispersion axiale (m^2/s)
- $Eö$: nombre adimensionnel d'Eötvös ($\frac{g \Delta r d^2}{g}$)
- e : fraction de vide dans la colonne
- f_0 : fréquence d'oscillation de la goutte
- f_v : fraction du volume de goutte stagnant
- Fo : nombre adimensionnel de Fourier ($4 D_d t / d^2$)
- g : gravité (m^2/s)
- H : hauteur de la colonne (m)
- K_o : coefficient global de transfert de masse (m / s)
- k : coefficient de transfert de masse individuel (m/s)
- k_H : constante empirique de contamination
- l : longueur de l'élément unidimensionnel (m)
- L : coordonnée naturelle

Ms	: nombre adimensionnel de Stanton (k/V)
Mo	: nombre adimensionnel de Morton ($\frac{g \Delta r m_c^4}{r_c^2 g^3}$)
m	: coefficient de distribution
N_A	: taux de transfert de masse ($\text{mole}/\text{m}^2\text{s}$)
N_i	: fonction de forme
n_i	: nombre de gouttes
Pe	: nombre de Peclet, adimensionnel ($Re Sc$)
P_n	: Polynôme d'interpolation
r	: coordonnée radiale (m)
R	: rayon de la colonne (m)/ Rapport entre diffusion effective et moléculaire
Re	: nombre de Reynolds de la particule, adimensionnel ($d V_t \rho_c / \mu_c$)
S	: surface de l'élément différentiel (m^2)
Sc	: nombre de Schmidt, adimensionnel ($\mu / \rho D$)
Sh	: nombre de Sherwood, adimensionnel ($k d / D$)
T_n	: nombre de terme dans le polynôme d'interpolation
V	: vitesse superficielle d'une phase (m/s)/volume de l'élément différentiel (m^3)
V_g	: volume de la goutte (m^3)
V_{glis}	: vitesse de glissement (m/s)
V_k	: vitesse caractéristique (m/s)
V_t	: vitesse terminale (m/s)
We	: nombre adimensionnel de Weber ($\frac{r_c V_t^2 d}{g}$)
t	: temps (s)
x	: variable indépendante / fraction molaire du soluté en phase continue
y	: variable indépendante / fraction molaire du soluté en phase dispersée
z	: coordonnée axiale (m)

Lettres grecques

α, β	: constante de l'équation différentielle
λ_n	: valeur propre de l'équation de Kronig-Brink
φ	: variable champ
θ	: coefficient des algorithmes des différences finis / temps de contact de Higbie(s)

ϕ : rétention de la phase dispersée
 γ : tension interfaciale (N/m)
 κ : rapport des viscosités (μ_d/μ_c)
 δ_D : épaisseur du film de Withmann(m)
 μ : viscosité(kg/m s)
 ρ : densité (kg/m³)

Indices

A : composé A
B : composé B
c : phase continue
d : phase dispersée
e : entrée
s : sortie
w : eau
1 : phase 1
2 : phase 2
 ∞ : à l'infini

LISTE DES FIGURES

- Figure 1.1.** Une colonne pilote d'extraction liquide pour goutte unique [3]
- Figure 1.2.** Comparaison des différents modèles de transfert de matière [9]
- Figure 1.3.** Modes de transfert massique [10].
- Figure 2.1.** Mouvement interne des gouttes [17]
- Figure 2.2.** Effet de la viscosité sur le transfert de masse [22]
- Figure 2.3.** Colonne à garnissage
- Figure 2.4.** Garnissages en vrac traditionnels (1^{ère} et 2^{ème} génération) [23]
- Figure 2.5.** Garnissages en vrac nouvelle génération [23]
- Figure 2.6.** Garnissages à feuille métallique structurée [23]
- Figure 2.7.** Différents types de grilles [23]
- Figure 2.8.** Schéma de la colonne et élément différentiel
- Figure 3.1.** Potentiel de transfert
- Figure 3.2.** Représentation de la théorie des deux films
- Figure 3.3.** Représentation de la théorie de Higbie [27]
- Figure 3.4.** Diffusion à l'intérieur d'une sphère [24]
- Figure 3.5.** Circulation laminaire dans la goutte modélisée par Kronig-Brink [28]
- Figure 3.6.** Circulation turbulente dans la goutte modélisée par Handlos-Baron. [28]
- Figure 3.7.** Stagnant cap model
- Figure 4.1.** Formes d'éléments utilisés en discrétisation du domaine.
- Figure 4.2.** Variation de la variable champ dans un élément unidimensionnel
- Figure 4.3.** Variation de la variable champ dans un élément bidimensionnel
- Figure 4.4.** Élément unidimensionnel en coordonnées naturelles
- Figure 4.5.** L'élément bidimensionnel en coordonnées naturelles
- Figure 4.6.** Schéma de l'algorithme de simplexe
- Figure 5.1.** Colonne pilote utilisée pour les coefficients de TDM expérimentaux des systèmes à goutte unique [36]
- Figure 5.2.** Combinaison des corrélations et théories utilisées pour chaque phase
- Figure 5.3.** Comparaison des résultats des différentes combinaisons et la valeur expérimentale du K_{od} pour différents diamètres de goutte pour le système : Acétone/Toluène/Eau
- Figure 5.4.** Les différentes corrélations du nombre de Sherwood en phase continue

Figure 5.5. Comparaison du Sh_c des différentes corrélations et celui obtenu par les nouvelles corrélations pour le cas de: **a)** goutte rigide et **b)** goutte à circulation interne et oscillante

Figure 5.6. Comparaison de l'adaptation des nouvelles corrélations obtenues aux cas des colonnes à garnissage

Figure 5.7. Comparaison des Sh_c de la corrélation de Seibert et la nouvelle corrélation proposée pour colonne à garnissage.

Figure 5.8. Comparaison des corrélations et théories existantes pour le Sh_d

Figure 5.9. Corrélations du Sh_d pour gouttes rigides et à circulation laminaire

Figure 5.10. Nouvelle corrélation du Sh_d pour goutte rigide et à circulation laminaire

Figure 5.11. Nouvelle corrélation du Sh_d pour goutte à circulation turbulente

Figure 5.12. Nouvelle corrélation du Sh_d pour colonne à garnissage

Figure 5.13. Nouvelles combinaisons pour le calcul du coefficient global de transfert de matière

Figure 5.14. Comparaison des combinaisons des nouvelles corrélations avec les valeurs expérimentales du coefficient global coté phase dispersée pour le système : acétone/toluène/eau

Figure 5.15. Comparaison des combinaisons des nouvelles corrélations avec les valeurs expérimentales du coefficient global coté phase dispersée pour le système : butylacétate/acétone/eau

Figure 5.16. Comparaison du K_{oc} expérimental pour la colonne à garnissage et celui calculé par les nouvelles combinaisons pour différents points opératoires de la colonne (Système : acétone/toluène/eau)

Figure 5.17. Comparaison du K_{oc} expérimental pour la colonne à garnissage et celui calculé par les nouvelles combinaisons pour différents points opératoires de la colonne (Système : n-butanol/acide succinique/eau)

Figure 5.18 Discrétisation du domaine avec 12 éléments linéaires

Figure 5.19. Variation de la fraction molaire du soluté en phase dispersée le long de la colonne ($V_c=2.10\text{mm/s}$, $V_d=4.75\text{mm/s}$ et $E_z = 1.66 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ ou $Pe_d=0.023$)

Figure 5.20. Profil transitoire de la fraction molaire à la sortie de la colonne avec $\Delta t = 2\text{s}$

Figure 5.21. Profil transitoire le long de la colonne avec l'algorithme des différences en arrière avec $\Delta t = 2\text{s}$

Figure 5.22. Discrétisation du domaine par **a)** 36 éléments et **b)** 48 éléments

Figure 5.23. Profil bidimensionnel de la fraction molaire avec gradient nul à la paroi

Figure 5.24. Profil bidimensionnel de la fraction adimensionnelle avec gradient nul à la paroi

(48 éléments)

Figure 5.25. Profil bidimensionnel de la fraction molaire avec gradient non nul à la paroi

Figure 5.26. Profil bidimensionnel de la fraction adimensionnelle avec gradient non nul à la paroi (36 éléments)

Figure 5.27. Profil bidimensionnel de la fraction adimensionnelle avec gradient non nul à la paroi (48 éléments)

Figure 5.26. Influence des dispersions : axiale et radiale sur le profil axial

LISTE DES TABLEAUX

- Tableau 1.1.** Les systèmes dont le Sh_c expérimental a été utilisé par l'étude comparative [9]
- Tableau 5.1.** Propriétés physiques des systèmes chimiques considérés
- Tableau 5.2.** Résultats expérimentaux pour les systèmes chimiques considérés
- Tableau 5.3.** Comparaison des résultats des différentes combinaisons
- Tableau 5.4.** Comparaison entre la combinaison retenue et l'expérimental pour le système : Acétone/Toluène/Eau
- Tableau 5.5.** Hydrodynamique du système Acétone/Toluène/Eau
- Tableau 5.6.** Comparaison des vitesses terminales du système : Acétone/Toluène/Eau
- Tableau 5.7.** Hydrodynamique du système : Butylacétate/Acétone/Eau
- Tableau 5.8.** Comparaison des vitesses terminales du système: Butylacétate/Acétone/Eau
- Tableau 5.9.** Corrélations utilisées en phase continue pour le calcul de $Sh_{c-corrélations}$
- Tableau 5.10.** Comparaison entre nouvelles combinaisons et l'expérimental pour le système acétone/toluène/eau
- Tableau 5.11.** Comparaison entre nouvelles combinaisons et l'expérimental pour le système Butylacétate/Acétone/eau
- Tableau 5.12.** Propriétés physiques du système : n-butanol/acide succinique/eau
- Tableau 5.13.** Coefficient de TDM global K_{oc} donné par les différentes combinaisons et l'expérimental pour le système : acétone/toluène/eau
- Tableau 5.14.** Coefficient de TDM global K_{oc} donné par les différentes combinaisons et l'expérimental pour le système : n-butanol/acide succinique/eau
- Tableau 5.15.** Effet de la dispersion axiale sur le profil axiale de la fraction molaire
- Tableau 5.16.** Stabilité des algorithmes utilisés
- Tableau 5.17.** Profil bidimensionnel avec gradient nul à la paroi (36 éléments)
- Tableau 5.18.** Profil bidimensionnel avec gradient nul à la paroi (48 éléments)
- Tableau 5.19.** Profil bidimensionnel avec gradient non nul à la paroi (36 éléments)
- Tableau 5.20.** Profil bidimensionnel avec gradient non nul à la paroi (48 éléments)

INTRODUCTION
GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

Au cours des dernières décennies, l'extraction liquide-liquide ou extraction par solvant, s'est avérée l'un des procédés physico-chimiques ayant connu un développement assez constant, comparativement à d'autres techniques de séparation.

Son introduction et développement à l'échelle industrielle sont passés par plusieurs phases successives, permettant d'assurer des degrés de séparations jadis inaccessibles pour certains secteurs tels que les industries alimentaires, pharmaceutiques et même nucléaires. À partir des années 1955-1965, le développement d'autres activités industrielles tels que les industries pétrolières, pétrochimiques, et autres, a permis de raffermir encore plus l'importance et l'utilité de cette technique de séparation. Actuellement, l'extraction liquide-liquide connaît un nouvel essor dans le domaine des industries métallurgiques, suite à la hausse des cours des matières premières et à la nécessité permanente de protéger l'environnement.

L'avantage de l'extraction liquide-liquide 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. Cette technique de séparation des constituants d'un mélange est la plus utilisée, avec la distillation qu'elle dépasse même, dans certaines conditions technologiques ou pour certaines natures des systèmes considérés, à titre d'illustration on peut citer:

- La séparation de composés à fortes différences de solubilité (traitements des combustibles nucléaires irradiés);
- La séparation des composés à températures d'ébullition voisines (séparation des hydrocarbures aromatiques et aliphatiques) ;
- La séparation d'azéotropes eau - acides minéraux;
- La séparation de composés thermosensibles ou instables (obtention des antibiotiques) ;
- La concentration et la purification de solutions diluées, opérations souvent plus économiques que la distillation (cas des solutions diluées de sels métalliques tels que le cuivre, uranium, vanadium) ;
- La substitution à la cristallisation fractionnée ;

- La séparation d'éléments de propriétés chimiques voisines (séparation uranium - vanadium et hafnium - zirconium) ;
- L'obtention de produits de haute pureté (sels d'uranium de pureté nucléaire, sels de terres rares destinés à l'industrie optique ou électronique) ;

D'une manière générale, l'extraction liquide - liquide est une technique qui permet la séparation de deux ou plusieurs constituants en tirant profit des différences de leur distribution dans deux liquides pratiquement non miscibles. La procédure consiste à mettre en contact intime la solution d'alimentation, contenant les constituants à séparer (solutés) avec un autre liquide appelé solvant qui va extraire préférentiellement un ou plusieurs des solutés pour donner naissance à la phase extrait. La solution d'alimentation dépourvue d'une quantité des solutés est connue alors sous le terme de raffinat.

Le rapport de concentrations du soluté dans l'extrait et dans le raffinat à l'équilibre, appelé coefficient de distribution, donne une indication de l'affinité relative du soluté pour les deux phases, ainsi que la faisabilité de l'opération.

L'utilité de ce présent travail, peut apparaître dans le dimensionnement des colonnes d'extraction liquide-liquide, qui sont assez utilisées dans les procédés industriels. Cette tâche de design nécessite des modèles assez fiables avec des paramètres assez précis et pouvant être déterminés facilement. Par conséquent des programmes de recherche sont constamment élaborés, touchant les deux aspects: expérimental et modélisation. L'objectif principal est surtout la maîtrise du processus d'extraction liquide-liquide et aussi le calcul ou le design des équipements nécessaires. Ceci nécessite particulièrement une bonne compréhension du mécanisme de transfert de matière à travers l'interface séparant les différentes phases.

En effet plusieurs théories ont été mises en avant pour représenter ce qui se passe au niveau de cette région *i.e.* l'interface, et où l'une des plus simples est celle des deux films. Cette dernière est souvent utilisée dans la description de plusieurs opérations de génie chimique, telle que l'extraction liquide-liquide. Elle a été proposée par Whitman en 1923 et en dépit de sa simplicité, elle a été d'un grand intérêt pour le design de l'équipement d'extraction liquide-liquide, mais pas toujours adéquate. Ceci peut être surtout expliqué par un mouvement irrégulier de surface pouvant résulter en des variations de tensions interfaciales engendrées par des variations de concentrations interfaciales de soluté. En plus, d'autres phénomènes peuvent influencer le transfert de masse, particulièrement pour les régimes turbulents, et qui ne sont pas toujours pris en considération. Ceci a motivé le développement de différents modèles qui ont permis de représenter le transfert massique à

l'interface d'une manière raisonnable. Ces modèles sont généralement basés sur les aspects hydrodynamiques et de transfert de matière ainsi qu'une interaction entre les deux. Cependant ils n'ont pas encore permis une compréhension totale du phénomène à l'interface.

Généralement, les processus de transfert de matière ont lieu dans différents types de colonnes cylindriques. Le principe du procédé en colonne, consiste à disperser une phase (sous forme de gouttes) dans une autre (continue), dans le but de créer une grande surface d'échange pour le transfert de matière. Les colonnes diffèrent l'une de l'autre surtout par l'utilisation ou non d'éléments internes tels que des agitateurs, des disques, des couronnes, des plateaux ou des garnissages. Le présent travail concerne ce dernier type de colonnes qui représentent l'équipement d'extraction liquide-liquide le plus utilisé et ce, depuis longtemps. Différents types de remplissages existent dont les plus utilisés sont les anneaux Raschig.

Les colonnes à garnissage font toujours l'objet de travaux de recherches se basant sur des approches expérimentales, où l'objectif reste l'élaboration de modèles assez rigoureux décrivant leur comportement. Initialement il importait surtout de connaître les débits et les concentrations aux extrémités des colonnes. Ensuite certains travaux ont permis l'introduction du concept de paramètres clés tels que la hauteur d'unité de transfert (HTU), le nombre d'unités de transfert (NTU), ainsi que le coefficient de transfert de matière. A partir de ces derniers, les profils de concentrations le long de ces colonnes ont pu être déterminés et leurs mesures expérimentales ont montré des écarts à l'entrée même des colonnes, incorrectement attribués à l'augmentation du transfert massique. Danckwerts a montré que ceci est en fait une conséquence du mélange axial. Ce concept a révolutionné la compréhension des colonnes d'extraction et a permis l'écriture de nouvelles équations différentielles qui décrivent leurs performances.

Un autre concept, celui de la diffusion turbulente dans la phase dispersée a été associé au transfert de masse (1964). Ces raffinements devraient être inclus dans le modèle général mais les informations nécessaires ne sont pas toujours disponibles. La détermination expérimentale des différents paramètres est assez coûteuse et prend beaucoup de temps. Leur prédiction par des corrélations empiriques est aussi souvent incertaine. Bien que des programmes numériques sont maintenant disponibles et prennent en compte la variation des paramètres le long de la colonne, nous dépendons toujours des données expérimentales appropriées et d'une combinaison de l'intuition et du savoir-faire, soutenus par le calcul par ordinateur, dont les résultats doivent être appliqués avec beaucoup d'attention.

L'objectif de ce travail est l'estimation du coefficient de transfert de matière et la modélisation d'une colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage. Le nombre de travaux concernant ce coefficient est considérable et le choix d'une théorie ou corrélation devient difficile, d'autant plus que le coefficient global dans une phase est calculé en fonction des coefficients individuels des deux phases. Le modèle à choisir dépend de la taille de goutte et du mode de transfert de masse prépondérant : des petites gouttes ont un comportement de gouttes rigides et suivent par conséquent les modèles de transfert basés sur la diffusion moléculaire, à un certain diamètre critique une certaine circulation interne commence à l'intérieur de la goutte, d'abord laminaire ensuite devient turbulente jusqu'à oscillation même de la goutte et variation de sa forme. L'incompréhension des phénomènes à l'interface et le début de la circulation interne ainsi que son régime complique encore plus la tâche. Différents modèles ont été proposés par la littérature et pourtant l'estimation du coefficient avec précision reste difficile et le choix est de plus en plus compliqué. Nous allons donc proposer de trouver des équations représentant les comportements limites des gouttes ainsi que la région de transition en se basant sur les corrélations et théories existantes et qui ont déjà été largement utilisées, ceci nous permettra de réduire le nombre de modèles existants par ceux proposés pour les représenter. Le choix des corrélations et modèles utilisés pour atteindre cet objectif est dicté par une étude bibliographique assez importante sur les travaux déjà réalisés et les problèmes qui ont rendus leur utilisation assez diversifiante, ce qui a permis de définir la forme des corrélations à développer. Les nouvelles équations seront testées pour les deux cas de système à goutte unique et les colonnes à garnissage et comparé ensuite avec les données expérimentales. Le profil de concentration le long de la colonne est obtenu en résolvant les équations différentielles par la méthode numérique des éléments finis et en utilisant les modèles développés pour l'estimation du coefficient de transfert de matière global.

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, 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 regroupe les travaux déjà réalisés et récapitule les problèmes rencontrés avec l'utilisation des différents modèles et théories existants, on y donne aussi une synthèse des résultats obtenus par différents auteurs;

Le deuxième chapitre traite de l'hydrodynamique des systèmes à goutte unique et celle des colonnes d'extraction et introduit les différents nombres adimensionnels utilisés. La modélisation de la colonne et l'équation différentielle qui régit le comportement de la colonne sont données à la fin de ce chapitre;

Les différentes théories et corrélations données par la littérature sont présentées dans le troisième chapitre pour goutte unique et colonne d'extraction avec leurs conditions d'utilisation;

L'outil numérique consiste en la méthode des éléments finis pour la résolution de l'équation différentielle et l'obtention du profil de concentration le long de la colonne. Les méthodes d'approximation numérique utilisées sont celles des moindres carrés et des simplexes afin de représenter les corrélations de transfert par de nouvelles formules judicieusement choisies. Les aspects théoriques de toutes ces méthodes sont présentés dans le quatrième chapitre;

Les résultats obtenus par les différents programmes élaborés en Fortran et en Mathcad sont présentés au cinquième chapitre, avec leur discussion;

Enfin une conclusion générale est donnée à la fin résumant les objectifs fixés et les résultats obtenus ainsi que certaines recommandations concernant l'utilisation des corrélations obtenues.

CHAPITRE 1

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

1.1. Introduction

La grande majorité des travaux sur le transfert de matière, ont été initialement réalisés se basant sur le cas d'une goutte unique en mouvement vertical à travers une phase continue stagnante dans une colonne pilote. À partir de là, plusieurs résultats expérimentaux ont été obtenus pour un intervalle de taille de goutte donné pour des systèmes chimiques recommandés. A chaque fois un mécanisme de transfert apparaît comme dominant pour les conditions considérées, permettant de proposer une corrélation représentative des résultats expérimentaux. Cependant la difficulté réside dans le fait qu'il n'est toujours pas possible d'identifier le mécanisme de transfert de matière pour un système particulier dont le diamètre de goutte est donné. Généralement, il est supposé pour les petites gouttes un transfert par diffusion moléculaire, par contre pour les gouttes plus larges le comportement décrit par Handlos-Baron est suivi [1]. Aussi, les critères de transition entre les mécanismes de comportement basés sur les nombres adimensionnels de Re , We ou autres facteurs s'avèrent ne pas être fiables. [2]

Le développement de toute théorie de transfert de matière, vise en premier lieu à regrouper les différents aspects des mécanismes de transfert en un paramètre fondamental qui est le coefficient de transfert de matière. Un grand nombre de travaux de nature expérimentale ou de modélisation sont rapportés dans la littérature, comme décrit dans la section suivante.

La modélisation des colonnes d'extraction et l'obtention des profils de concentration le long de la colonne, n'a pas connu le même intérêt que le coefficient de transfert, particulièrement concernant les colonnes d'extraction liquide-liquide à garnissage, comparativement aux colonnes à plateaux. Les profils sont obtenus par résolution du modèle mathématique unidimensionnel dynamique et permanent par différentes méthodes numériques, tels que les différences finies, les volumes finis ou les éléments finis, etc. Les

résultats sont comparés aux valeurs issues de mesures expérimentales des concentrations en différents points de la colonne considérée. Le modèle bidimensionnel a été relativement peu utilisé et souvent, il a été supposé que la dispersion dans la direction radiale était négligeable.

1.2. Etude expérimentale du coefficient de transfert de matière

Un grand nombre d'études expérimentales ont été réalisées sur les coefficients de transfert de matière, dans le cas de l'extraction liquide-liquide et qui ont eu lieu dans différents types de colonnes pilotes de dimensions moyennes, fréquemment de 1m environ pour la hauteur et quelques centimètres pour le diamètre, mais qui peuvent varier selon l'objectif principal de chaque étude : goutte descendante, goutte ascendante, colonne sans ou avec internes, phase continue stagnante ou en écoulement, etc. A titre d'illustration, une colonne utilisée au laboratoire pour l'estimation du coefficient de transfert est donnée par la figure 1.1 suivante :

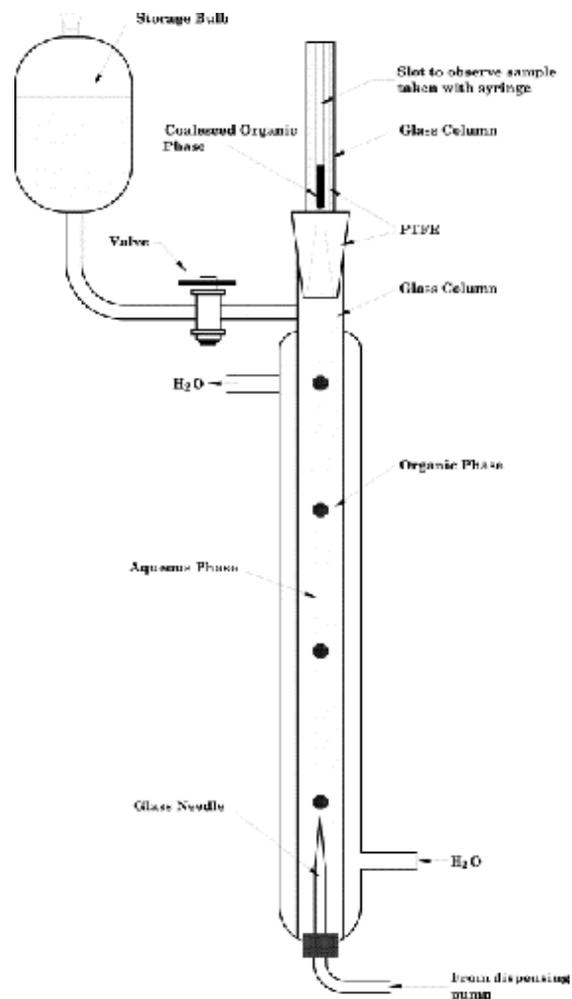


Figure 1.1. Une colonne pilote d'extraction liquide pour goutte unique [3]

A l'aide d'un dispositif approprié une goutte de diamètre bien défini, est produite en bas ou en haut de la colonne à un point qui est considéré comme étant l'origine spatiale ($z = 0$). La hauteur de la colonne est subdivisée en plusieurs points, où des soutirages sont effectués pour prélever la goutte à un temps t et un emplacement z . L'échantillon prélevé est analysé pour avoir la concentration $C(t,z)$, par le biais d'une méthode d'analyse qui dépend surtout de la nature du soluté. Finalement le coefficient de transfert de matière peut alors être calculé numériquement.

A titre d'exemple, le travail expérimental effectué par Huang et Lu et rapporté dans la littérature [4] peut être cité. Le système Eau/Isobutanol/Hydroxyde de Sodium est utilisé, où l'eau est la phase dispersée, l'isobutanol la phase continue et le NaOH est le soluté qui est transféré de la phase continue vers la phase dispersée, initialement libre de soluté. La concentration de NaOH, C_d , dans la phase dispersée est mesurée en collectant des gouttes à différentes distances de la colonne et en effectuant une analyse par titration avec le HCl. Il est observé que la résistance au transfert de matière réside dans la phase continue. Le coefficient de transfert dans la phase continue est déterminé se basant sur le fait que, durant un temps court, la masse de soluté gagnée par la goutte est égale à celle transférée à partir de la phase continue, donnant le bilan suivant :

$$\frac{d(V_g C_d)}{A dt} = K_c (C_{c,\infty} - C_c^*) \approx K_c C_{c,\infty} \quad (1.1)$$

Avec V_g : volume de la goutte (m^3)

C_d : concentration en soluté (mol/m^3)

A : Surface de la goutte (m^2)

K_c : Coefficient de transfert de matière global coté phase continue (m/s)

$C_{c,\infty}$ et C_c^* : les concentrations en phase continue, à l'infini et à l'équilibre respectivement (mol/m^3)

En supposant que $V_t \Delta t = \Delta z$, l'équation précédente devient :

$$\frac{K_c}{V_t} = \frac{d}{6 C_{c,\infty}} \frac{\Delta C_d}{\Delta z} \quad (1.2)$$

Avec d diamètre de la goutte et V_t sa vitesse terminale

Pour le coefficient de transfert de matière coté phase dispersée la méthode utilisée dans différents travaux [1] est aussi basée sur l'intégration de l'équation de bilan (Equation 1.1) appliquée à la phase dispersée, entre deux positions distinctes 1 et 2, pour aboutir à l'expression suivante :

$$K_d = -\frac{d_p}{6t} \ln \left(\frac{C_d^* - C_d^1}{C_d^* - C_d^2} \right) \quad (1.3)$$

Les deux exposants 1, 2 font référence aux deux positions z_1 et z_2

Le dispositif de base représenté par la figure 1.1, peut être utilisé pour l'estimation du coefficient de transfert de matière ainsi que le calcul d'autres paramètres comme la vitesse terminale des gouttes, le diamètre, le profil de concentration ...etc.

1.3. Systèmes recommandés

Des résultats de travaux de recherche expérimentaux réalisés durant les années 60, concernant les équipements d'extraction liquide-liquide, rapportés dans la littérature [5], n'ont pas permis de développer des modèles assez fiables et uniformes pouvant être utilisés fréquemment, de par la grande variété de systèmes chimiques de nature différente. Par conséquent pour remédier à ce problème, l'initiative a été prise par T.Misek, H.W Brandt et C. Hanson [5] en 1970, d'encourager la Fédération Européenne de Génie Chimique et Travaux sur la Distillation, l'Absorption et l'Extraction, à trouver des systèmes chimiques standards ayant des propriétés physiques et chimiques leur permettant d'être recommandés pour des études sur l'extraction liquide-liquide. Le travail a duré quelques années pour donner lieu à une publication par l'Institution de Génie Chimique de Londres d'un livre en 1978 [5], suivi d'une seconde édition légèrement modifiée et intitulée: Standard Test Systems for Liquid Extraction Studies (Misek, 1985). La première partie concerne la sélection de quelques systèmes qui peuvent être recommandés pour les études sur l'extraction liquide. La recommandation finale des systèmes est comme suit:

Eau / Acétone / Toluène	(tension interfaciale élevée)
Eau / Acétone / Acétate de butyle	(tension interfaciale moyenne)
Eau / Acide succinique / n-Butanol	(tension interfaciale faible)

A températures de 10, 20 et 30°C, ces systèmes ont un coefficient de distribution proche de 1.

Dans la première édition de 1978, le système Eau / Acide acétique / MIBK a été proposé parce qu'il a été très utilisé auparavant. Cependant, l'acide acétique forme un dimère dans la

phase organique et se dissocie dans la phase aqueuse. Le système peut montrer une turbulence interfaciale qui augmente le coefficient de transfert de matière de manière irrégulière, ce qui influence la coalescence, qui à son tour a un impact sur les performances de la colonne. Ce système n'est donc plus recommandé.

Toutefois, trois systèmes proposés sur la base de différence de tension interfaciale, de coefficients de distribution proches de 1 et des viscosités et densités moyennes, semblent être insuffisant pour une compréhension approfondie de tous les phénomènes influençant le transfert de masse, et donc il devient impératif d'avoir d'autres systèmes avec des propriétés différentes:

- Coefficients de distributions différents de 1
- Viscosité élevée de l'une des deux phases
- Des différences de densités élevées ou faibles
- Réactivité chimique.

H-J Bart, R. Berger et al [5] ont proposé d'autres systèmes avec des coefficients de distribution proches de 10 tels que les suivants:

- Eau / MIBK / toluène (tension interfaciale élevée)
- Eau / MIBK / acétate de butyle (tension interfaciale moyenne).

1.4. Travaux antérieurs

De par l'importance de l'estimation du coefficient de transfert de matière dans la conception et le design des appareils et contacteurs des différentes opérations de génie chimique, les travaux concernant ce paramètre clé sont très nombreux. La mesure expérimentale du coefficient de transfert de matière s'effectue dans des conditions assez simples, telles que file de gouttes largement espacées, de tailles uniformes et en mouvement à travers une phase continue statique ou en écoulement faible dans des colonnes pilotes. Parmi les pionniers dans ce type de travaux de recherche on peut citer: Sherwood et al, Garner et Skelland, Handlos et Baron, Johnson et Hamielec, etc. Les corrélations et théories qu'ils ont développées et qui ont trouvé une large utilisation seront présentées aux chapitres suivants. D'autres travaux plus récents ont été réalisés, et les exemples suivants peuvent être cités:

- Kumar et Hartland [1] ont proposé une nouvelle corrélation pour l'estimation du coefficient de transfert de matière pour goutte unique avec une erreur relative de 24.5% pour le coté phase dispersée et une erreur de 14.1% par rapport aux valeurs expérimentales coté phase continue. Ils ont utilisé 596 mesures prises de 10 travaux différents:

$$\frac{Sh_c - Sh_{c,rigid}}{Sh_{c,\infty} - Sh_c} = C_2 \text{Re}^{n_1} Sc_c^{n_2} \left(\frac{V_t m_c}{g} \right)^{n_3} \frac{1}{1 + k^{n_4}} \quad (1.4)$$

Avec $Sh_{c,\infty} = C_1 + \frac{2}{\sqrt{p}} (Pe_c)^{1/2}$, $C_1 = 50$, $C_2 = 5.26 \cdot 10^{-2}$, $n_1 = 1/3 + 6.59 \cdot 10^{-2} Re^{1/4}$, $n_2 = 1/3$, $n_3 = 1/3$ et $n_4 = 1$.

$$Sh_d = 17.7 + \frac{3.19 \cdot 10^{-3} (\text{Re} Sc_d^{1/3})^{1.7}}{1 + 1.43 \cdot 10^{-2} (\text{Re} Sc_d^{1/3})^{0.7}} \left(\frac{r_d}{r_c} \right)^{2/3} \frac{1}{1 + k^{2/3}} \quad (1.5)$$

κ est le rapport des viscosités des deux phases.

- Un nouveau modèle a été proposé par M J Slater [6] et qui prend en considération la présence de surfactants et nécessite l'utilisation d'une constante empirique obtenue expérimentalement k_H qui est liée à la concentration en surfactant. Le modèle de Newman a été utilisé avec une diffusivité effective exprimée par :

$$D_{eddy} = \frac{k_H d V_t}{2048 \left(1 + \frac{m_d}{m_c} \right)} \quad (1.6)$$

- L'étude expérimentale de Radu Z [7] de l'extraction liquide-liquide sur colonne agitée utilisant le système Eau/Acétone/Tetrachlorure de Carbone, a permis de développer une corrélation donnant le nombre de Sherwood sous la forme: $Sh = b Re^p Sc^m$. Ils ont trouvé que l'exposant m reste constant pour les deux phases et égal à 0.33, mais les valeurs de b et p dépendent de la nature de la phase considérée, aqueuse ou organique et aussi, de la direction du transfert: lorsque le transfert est: $c \rightarrow d$, $b = 2.3$ pour phase organique et 3 pour phase aqueuse et $p = 1.56$; pour un transfert $d \rightarrow c$, $b = 354$ pour phase organique et 333 pour la phase aqueuse et $p = 0.91$.
- Skelland et Wellek [8] ont trouvé, que les taux de transfert de matière expérimentaux pour des gouttes à circulation interne et non oscillantes étaient plus élevés que ceux donnés par le modèle de Kronig-Brink. Des données expérimentales du Sh pour 4

systèmes ont été représentées par des corrélations en fonction du Sc, We et Fo, avec une erreur relative de 34%, alors que les modèles de Kronig-Brink et Newman pour les mêmes conditions donnent une erreur relative de 46% et 54% respectivement.

- Ladislav Steiner [9] a utilisé l'équation de Newman pour calculer le coefficient de transfert de masse coté goutte, en remplaçant la diffusion moléculaire par une diffusion effective. L'évaluation de cette dernière a été effectuée à partir de plusieurs travaux expérimentaux pour différents systèmes. L'équation obtenue en fonction de certains nombres adimensionnels par régression n'a pas été satisfaisante pour certains systèmes, et il n'a été possible de proposer qu'une corrélation pour les faibles taux de transfert, où le rapport de diffusivité effective à la diffusion moléculaire est donné par :

$$R = \frac{D_{eddy}}{D_d} = 1 + 0.77 \operatorname{Re}^{0.43} \left(\frac{m_c}{m_c + m_d} \right)^{0.89} \operatorname{Sc} d^{0.23} \quad (1.7)$$

Cette équation ne peut être utilisée que pour des $R < 10$

- Pfennig [10] a aussi introduit une diffusivité effective pour le calcul du coefficient de transfert de matière pour les deux cotés. Lorsqu'il n'y a pas de raison hydrodynamique pour qu'il y ait turbulence, celle-ci est induite par le transfert de matière par instabilité interfaciale, où un paramètre d'instabilité noté C_{IP} peut être calculé expérimentalement. Ce modèle doit être utilisé seulement si les taux de transfert sont supérieurs à ceux du modèle de Kronig-Brink :

$$D_{eddy} = \frac{V_t d}{C_{IP} \left(1 + \frac{m_d}{m_c} \right)} \quad (1.8)$$

Il a été trouvé que pour certains systèmes le paramètre C_{IP} est proche de la valeur de 2048 comme déjà prévu par Handlos-Baron, et pour d'autres sa valeur est très différente.

- Une simulation numérique a été réalisée par Zai-Sha Mao [11], utilisant la méthode des volumes finis pour le calcul du coefficient de transfert de matière en phase

continue pour un régime laminaire. Les résultats obtenus sont proches de certaines corrélations déjà existantes et il a été trouvé que le nombre de Peclet était le facteur majeur de control du transfert de matière externe suivi du nombre de Reynolds et le nombre de Weber.

- Une autre simulation numérique a été réalisée par Adekojo [12] en utilisant la méthode des éléments finis pour l'estimation du coefficient de transfert côté phase continue, pour des $Re < 20$ et pour le cas où les résistances aux transfert sont dans les deux phases (problème conjugué). Les résultats montrent que le transfert de matière par combinaison de convection libre et forcée pour des gouttes ascendantes, est plus faible que celui pour gouttes descendantes. Les résultats de la simulation sont satisfaisants seulement dans l'intervalle de Re considéré ; pour des valeurs de Re supérieures, les auteurs recommandent de raffiner encore plus le maillage utilisé et de réduire le pas du temps.

En ce qui concerne les travaux consacrés à la modélisation des colonnes, quelques exemples tirés de la littérature peuvent être cités comme suit:

- Aly et Pibouleau [13], ont étudié une colonne de distillation à garnissage, en considérant un écoulement piston du liquide et de la vapeur, auquel ils ont superposé les phénomènes de dispersions axiale et radiale. Les équations différentielles ont été résolues par la méthode des éléments finis ainsi que les différences finies. Les profils de concentration obtenus en régime permanent ont permis de constater que la dispersion radiale n'avait pas d'effet sur le profil dans cette direction, étant donné que le gradient à la paroi était nul. Des expériences numériques en attribuant à ce gradient des valeurs arbitraires (n'ayant pas de sens physique) ont montré que l'effet de la dispersion radiale dépend de cette valeur et ils ont donc recommandé de changer la condition limite à la paroi de la colonne.
- L'utilisation de modèles mathématiques pour la résolution des équations différentielles, et l'obtention du profil de concentration en combinaison avec des mesures expérimentales de la concentration afin de déterminer les paramètres hydrodynamiques et de transfert de matière, est une méthode très fréquente, elle a été utilisée par Guangshing et al [14] sur une colonne pulsée à plateaux perforés d'extraction liquide, en considérant le profil axial avec dispersion:

$$\begin{aligned}
(1-f) \frac{H}{V_c} \frac{\partial x}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z} \left(x - \frac{1}{Pe_x} \frac{\partial x}{\partial z} \right) + N_{oc} (x - x^*) &= 0 \\
f \frac{H}{V_d} \frac{\partial y}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial z} \left(y + \frac{1}{Pe_y} \frac{\partial y}{\partial z} \right) + N_{oc} (x - x^*) \frac{V_c}{V_d} &= 0
\end{aligned} \tag{1.9}$$

Où: $Pe_x = H V_c / E_c$ représente le nombre de Peclet pour la phase x et E : le coefficient de dispersion, V_c : la vitesse superficielle de la phase continue et H la longueur de la colonne avec $z = h / H$.

N_{oc} est le nombre d'unités de transfert donné par: $N_{oc} = K_{oc} a H / U_{oc}$

Un système d'équations est obtenu en utilisant la méthode des différences finies et les paramètres Pe_x , Pe_y et N_{oc} sont évalués par optimisation des données mesurées expérimentalement.

- La méthode numérique des éléments finis a aussi été utilisée par Rajesh. K [15], pour la résolution des équations différentielles du modèle dynamique unidimensionnel, dans la simulation d'une colonne de distillation à garnissage, le modèle utilisé ne prend pas en considération la dispersion axiale et la solution analytique est facile à obtenir dans ce cas. Les résultats obtenus montrent que la méthode utilisée est plus précise que celle des différences finies et est recommandée pour ce type de problème.
- Le modèle de dispersion bidimensionnelle, a été utilisé par Mingzhai.Q et al [16] pour décrire le mélange turbulent dans une colonne d'extraction à plateaux perforés et déterminer les coefficients de dispersion dans les deux directions, en combinaison avec des mesures de concentration d'un traceur à hauteur fixe de la colonne et à trois points différents du diamètre. Dans cette étude le transfert massique est nul et le modèle est comme suit:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -V \frac{\partial C}{\partial z} + E_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} + E_r \left(\frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \right) \tag{1.10}$$

L'étude permet de trouver les trois paramètres suivants: la vitesse du traceur, V et les coefficients de dispersion dans les deux directions axiale et radiale respectivement: E_z et E_r . Les résultats ont montré que la dispersion radiale avait un effet sur le profil radial, cependant la concentration du traceur atteint un maximum après près de 80s, et l'effet s'annule en fonction du temps. Le coefficient de dispersion axiale était 30 fois

supérieur à celui dans la direction radiale mais les auteurs recommandent de le prendre en considération dans les études de simulation des différents types de colonnes.

1.5. Comparaison des modèles de transfert de matière existants

Ladislav Steiner [9] a effectué une étude comparative des modèles existants pour l'estimation du Sh côté phase continue, par le biais d'une base de données assez importante (tableau 1.1) et qui ont été reportées sur le graphe de la (figure 1.2). Les valeurs apparaissent divisées en deux groupes: l'un pour gouttes circulantes en haut, et l'autre pour gouttes sans circulation, en bas. La plupart des auteurs représentent le groupe de bas avec des corrélations sous la forme :

$$Sh_c = Re^n Sc^m \quad (1.11)$$

L'exposant du Sc est généralement égal à $1/3$, et celui du Re à $1/2$. Rowe et al [9], ont montré que les données expérimentales peuvent être corrélées avec presque la même certitude, pour un exposant du Re entre 0.4 et 0.6 . Ils ont cependant observé que cette valeur a tendance à augmenter en fonction du Re . Kinard et al [9], ont montré que la dépendance du $\log Sh$ au $\log Re$ n'était pas vraiment linéaire, ils ont alors proposé une nouvelle corrélation pour un Re moyen entre 10 et 1000 [9]:

$$Sh_{c-rigid} = 2.43 + 0.77Re^{1/2} Sc_c^{1/3} + 0.0103Re Sc_c^{1/3} \quad (1.12)$$

Cette équation pour un $Sc=1200$, est reproduite sur la (figure 1.2) par la ligne 4, la constante 2.43 peut être remplacée par sa valeur théorique de 2 ou enlevée complètement étant donné qu'elle ait peu d'influence dans l'intervalle considéré.

Les données montrent qu'il y a une transition régulière entre valeurs pour gouttes rigides et celles pour gouttes à circulation interne, lorsque Pe devient grand. Plusieurs corrélations pour le cas de gouttes à circulation interne sont disponibles dans la littérature mais aucune ne peut être utilisée sans risque car elles ne sont en accord avec l'expérimental que dans un intervalle restreint de Re . Steiner [9] a tenté de représenter la région de transition avec l'équation suivante:

$$\frac{Sh_c - Sh_{rigid}}{Sh_{cir} - Sh_{rigid}} = 1 - \exp\left(-4.18 \cdot 10^{-3} Pe^{0.42}\right) \quad (1.13)$$

Cette équation est représentée sur la (figure 1.2) par la ligne 5 et elle peut être utilisée pour un large intervalle de conditions hydrodynamiques (Re de 10 à 1200 et Sc de 190 à 241000), Steiner pense que d'autres raffinements de l'équation qu'il a proposé sont possibles étant donné que la région de transition soit dépendante aussi du rapport des viscosités et de la tension interfaciale.

Coté phase dispersée, le transfert de matière pour goutte rigide est représenté par le modèle de Newman et celui pour goutte à circulation interne laminaire par le modèle de Kronig-Brink (ce sont les seules situations pour lesquelles les modèles mathématiques ont trouvé des solutions représentatives). Il a été confirmé expérimentalement que les gouttes rigides obéissent au modèle de Newman et dans certains cas même l'équation de Kronig-Brink donne d'assez bons résultats pour ces mêmes gouttes, mais pour la majorité des gouttes les taux de transfert sont plus élevés, ce qui prouve un mouvement interne plus complexe. Le meilleur modèle pour représenter des gouttes à circulation interne turbulente est celui de Handlos-Baron. Il est largement utilisé, bien qu'il soit critiqué dans certains cas comme montré par Brunson et Wellek qui ont comparé les performances de 12 modèles en utilisant des données expérimentales et où les valeurs données par celui de Handlos-Baron étaient les moins précises.

Tableau 1.1. Les systèmes dont le Sh_c expérimental a été utilisé par l'étude comparative [9]

Phase dispersée	Phase continue	Références
Eau	Alcool isobutyle	Garner et Frood
Alcool isobutyle	Eau	Ruby et Elgin
Alcool benzénique	n-Hexane	Ruby et Elgin
Nitrobenzène	Ethylène glycol	Ruby et Elgin
Cyclohexanol	Eau	Griffith et Ward
Eau	Cyclohexanol	Ward et Trass
Acétate d'éthyle	Eau	Griffith et Ward
Furfural	Eau	Garner et Frood
Eau	Acétate d'éthyle	Garner et Frood
Alcool benzénique	Eau	Garner et Frood
o-nitrophénol	Eau	Thorson et Terjesen
2-ethylhexan-1,3-diol	Eau	Garner et Tayeban

Acide benzoïque	Eau	Rowe et Claxton
-----------------	-----	-----------------

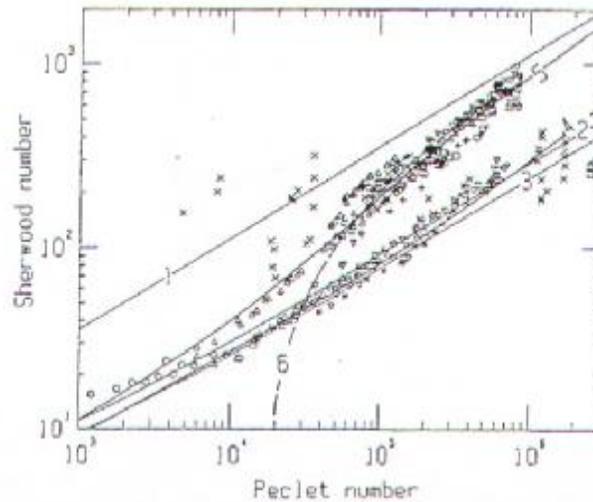


Figure 1.2. Comparaison des différents modèles de transfert de matière [9]

1.6. Synthèses des observations expérimentales

La revue des travaux décrits ci-dessus, permet de tirer certaines conclusions concernant le comportement des gouttes en mouvement vertical, comme suit:

- 1- Les petites gouttes ont un comportement de sphères rigides (stagnantes). Pour un régime d'écoulement 'creeping flow', Sh_c est proportionnel à $Pe_c^{0.33}$ et le taux de transfert de matière est contrôlé par diffusion moléculaire ;
- 2- Une circulation interne a lieu pour une certaine valeur critique du diamètre de la goutte dont l'expression a été proposée par Bond et Newton comme suit:

$$d_{crit} \approx \sqrt{\frac{g}{g \Delta r}} \quad (1.14)$$

- 3- Les gouttes larges sont supposées intérieurement bien mélangées, et donc un modèle basé sur les lignes toroïdales à l'intérieur de la goutte (Handlos et Baron), donne des résultats raisonnables bien qu'il soit physiquement peu réaliste ;

- 4- Dans un environnement turbulent, la théorie de pénétration peut servir de base acceptable pour l'estimation du coefficient de transfert de masse, où pour des conditions de turbulence intense, il peut être considéré que le coefficient de transfert de matière ne dépendra plus de la diffusivité moléculaire.
- 5- La présence de contaminants à la surface réduit la circulation interne dans la goutte et peut par conséquent gêner le transfert à travers la surface ;
- 6- Les coefficients de transfert de masse côté goutte, peuvent être beaucoup plus grands que s'ils sont estimés en supposant une circulation laminaire interne (Kronig et Brink) sous des conditions de non oscillation (strictement valides pour $Re < 1$ et qui persistent jusqu'à $Re = 50$) ;
- 7- Les coefficients de transfert côté phase continue ont une dépendance au Re plus complexe que $(Re \cdot Sc_c)^{0.5}$;
- 8- Il n'y a aucun saut évident du coefficient de transfert k_d , des conditions: stagnant, à Kronig et Brink à Handlos et Baron mais il peut y avoir un saut apparent dans k_c , entre les conditions de goutte rigide et goutte à circulation ;
- 9- Les gouttes oscillantes montrent une légère tendance à la circulation interne et le mélange est aléatoire. Le coefficient de transfert k_d est similaire aux valeurs du modèle Handlos-Baron.

1.7. Problèmes rencontrés avec les différents modèles et théories de transfert de matière

En dépit du grand nombre de travaux concernant le coefficient de transfert de matière, son estimation reste imprécise dans un grand nombre de cas. Ceci peut être expliqué par différents problèmes qui rendent les modèles imprécis ou incomplet.

Le premier problème rencontré, réside dans la compréhension des mécanismes de transfert, au fait, dans la sélection d'un modèle mathématique pour décrire le transfert de matière, la première question qui se pose concerne le régime d'écoulement à l'intérieur de la goutte et aussi à son extérieur, et souvent on suppose une couche limite externe laminaire (dans les colonnes pilotes utilisées expérimentalement le Re est proche de 500 et la couche limite est laminaire). Dans ce cas, et pour des systèmes où le rapport des viscosités des deux phases est proche de 1, l'écoulement à l'intérieur de la goutte induit par l'extérieur ne peut être que plus

faible ou, au plus, de même intensité que l'écoulement à l'extérieur. Donc il n'y a pas de force motrice hydrodynamique pour produire une certaine turbulence à l'intérieur de la goutte. Cependant plusieurs modèles de transfert de masse proposés par différents travaux, supposent pour des cas similaires un régime turbulent à l'intérieur de la goutte, décrit par une diffusion turbulente. Plusieurs modèles tels que ceux de Johnson et Hamielec, Boyadzhiev et al, de Steiner, de Slater et Hughes, et même celui de Handlos-Baron qui décrit le mieux les données expérimentales, supposent que le contenu de la goutte est complètement mélangé durant une période de circulation interne. Mersmann a aussi réalisé ce problème et conclue que le fait que l'équation de Handlos-Baron donne des résultats acceptables reste inexplicable. Donc la description mathématique du transfert de matière dans une goutte devrait prendre en considération les différents modes de transfert de masse représentés sur la figure (1.3):

- A. Transfert de masse par diffusion ;
- B. Transfert de masse par convection ;
 - B1. Induite par force motrice hydrodynamique;
 - B2. Induite par transfert de masse.

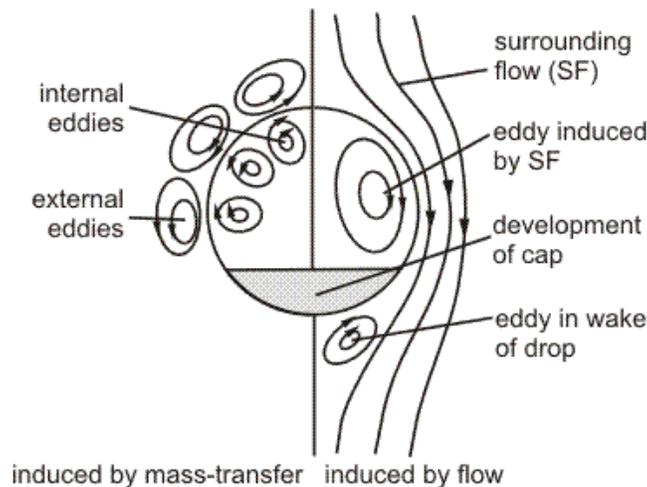


Figure 1.3. Modes de transfert massique [10].

Alors que les transferts de matière diffusif et convectif induits par l'hydrodynamique ont été traités par plusieurs travaux et trouvent des applications pratiques, il y a très peu de modèles et expériences qui concernent le mode convectif induit par transfert de masse. [10]

L'autre problème rencontré dans l'utilisation des modèles proposés, réside dans leurs domaines de validité. La forme de la goutte dépend surtout du nombre d' $E\ddot{o}$ et bien que les

intervalles pour le Re et We soient parfois cités, le nombre d' $Eö$ doit aussi être pris en considération.

La présence de surfactants dans les systèmes industriels peut réduire le mouvement interne jusqu'à l'annuler, et le transfert de matière se fera donc exclusivement par diffusion moléculaire, ce facteur aussi n'étant pas toujours pris en considération.

On remarque aussi une nette différence entre les valeurs du coefficient de transfert coté goutte k_d données par les différentes corrélations et théories existantes en fonction de la taille des gouttes, alors que ses valeurs expérimentales ne varient que légèrement entre les deux limites approximatives données par les équations de Newman et de Handlos-Baron [5].

Le coefficient de transfert de matière coté phase dispersée est dépendant du temps, bien que assez souvent ce caractère transitoire a été ignoré. Les conditions aux limites doivent être reconsidérées ce qui constitue une complexité supplémentaire du problème mathématique.

Enfin plusieurs auteurs ont noté que la qualité des données expérimentales pour systèmes à goutte unique est faible et il y a des différences parfois importantes entre les valeurs données par différents travaux pour le même système. Cependant établir une équation efficace pour la région de grands taux de transfert ne peut se réaliser que si de meilleures données seront disponibles.

Il n'est pas toujours facile de fournir des descriptions précises du procédé de transfert de masse, à cause de la difficulté des observations expérimentales et la complexité mathématique des systèmes. Il est utile de suivre de meilleurs modèles de comportement, mais l'incompréhension des phénomènes à l'interface ainsi que la diversité des natures des régions interfaciales, montrent qu'une description précise du phénomène n'a pas encore été atteinte. Il serait peut être utile et nécessaire de combiner les mesures expérimentales du taux de transfert de masse (avec un maximum de mesures pour établir les mécanismes gouvernants le transfert) avec des modèles physiques du processus de transfert de matière. Pour cela, les paramètres empiriques seront inévitables.

En conclusion, à travers cette revue bibliographique, il a pu être constaté que la détermination du coefficient de transfert de matière, que ce soit expérimentalement ou par le biais de modèles n'est pas assez simple. Ceci explique et motive même à ce jour le développement de programmes de recherches dans l'espoir d'uniformiser au maximum les théories de transfert de matière, en prenant en considération tous les paramètres influençant son mécanisme afin de réduire les problèmes de précision et du choix de la théorie la plus adéquate pour un système donné. C'est dans cette perspective, que s'inscrit ce présent travail,

en considérant en plus le problème de combinaisons de théories, pour le coefficient global dans le cas de l'extraction liquide-liquide. La conception et la modélisation des colonnes d'extraction dépendent beaucoup de la précision avec laquelle le coefficient global a été estimé mais aussi du modèle choisi pour représenter le comportement de la colonne et obtenir les profils de concentration. Les différents modèles : unidimensionnel, permanent et transitoire, et bidimensionnel seront traités (en appliquant les recommandations sur les conditions aux limites), une comparaison des résultats obtenus par chacun permettra de recommander le plus fiable pour le cas de colonnes d'extraction liquide-liquide à garnissage.

CHAPITRE 2

HYDRODYNAMIQUE ET MODELISATION DES COLONNES D'EXTRACTION

2.1. Introduction

L'étude de l'hydrodynamique d'un système d'extraction liquide-liquide dépend dans une large mesure du comportement des gouttes qui y sont générées. Ceci influence aussi l'étude de transfert de matière dont les modèles sont souvent classés, selon que les gouttes soient stagnantes, à circulation interne ou oscillante. Généralement ce comportement est décrit par certains paramètres et nombres adimensionnels tels que la vitesse terminale, le régime d'écoulement, le nombre d'Eötvös, etc. L'interaction de tous ces paramètres a rendu le problème assez complexe, nécessitant des simplifications tel que le fait de baser les études hydrodynamiques sur des systèmes de goutte seule dans un liquide stagnant. Au niveau des colonnes d'extraction le mouvement des gouttes est encore plus complexe, subissant en plus l'influence de la phase continue elle-même en mouvement, la présence d'éléments internes à la colonne, les phénomènes de rupture et de coalescence, etc.

2.2. Vitesse terminale des gouttes

C'est la vitesse d'une goutte unique ascendante ou descendante dans une phase continue stagnante. Plusieurs corrélations pour exprimer cette vitesse, sont disponibles dans la

littérature pour des tailles de goutte et des propriétés physiques données. L'expression la plus courante qui donne la vitesse terminale est donnée comme suit [5]:

$$V_t(d) = \left(\frac{4}{3} g \frac{\Delta r}{r_c} d \right)^{0.5} C_D^{-0.5} \quad (2.1)$$

Où C_D est le coefficient de frottement qui dépend du régime d'écoulement et de la déformation de la goutte. Généralement on distingue deux cas, selon que la goutte soit supposée rigide ou déformable. Pour cela il est d'abord nécessaire de définir les nombres adimensionnels suivants:

- Le nombre de Reynolds de la particule qui exprime le régime d'écoulement :

$$Re = \frac{r_c d V_t}{m_c} \quad (2.2)$$

- Le nombre d'Eötvös qui représente le rapport des forces de frottement aux forces résistives dues à la tension interfaciale du système:

$$Eo = \frac{g \Delta r d^2}{g} \quad (2.3)$$

- Le nombre de Weber qui représente le rapport des forces interfaciales aux forces résistives:

$$We = \frac{r_c V_t^2 d}{g} \quad (2.4)$$

- Le nombre de Morton qui décrit le comportement de goutte :

$$Mo = \frac{g \Delta r m_c^4}{r_c^2 g^3} \quad (2.5)$$

L'expression du coefficient de frottement C_D dépend du nombre de Mo et du régime d'écoulement, les différentes expressions proposées par la littérature sont résumées comme suit:

a) Sphères rigides

• Régime de Stokes: $10^{-4} < Re < 1$ $C_D = 24 / Re$ (2.6)

• Régime intermédiaire: $2 < Re < 500$ $C_D = 18.5 Re^{-0.6}$ (2.7)

• Régime turbulent: $10^3 < Re < 5 \cdot 10^5$ $C_D = 0.44$ (2.8)

b) Gouttes déformables

- Equations de Hu et Kintner

Si: $2 < C_D We Mo^{-0.15} < 70$ $C_D We Mo^{-0.15} = 1.33 (Re Mo^{0.15} + 0.75)^{1.275}$ (2.9)

Si: $C_D We Mo^{-0.15} > 70$ $C_D We Mo^{-0.15} = (0.045 Re Mo^{0.15} + 0.75)^{2.37}$ (2.10)

- Equations de Klee et Treybal: Dans ce cas un diamètre de goutte critique est défini comme suit:

$$d_{crit} = 7.25 \left(\frac{g}{\Delta r g Mo^{-0.15}} \right)^{0.5} \quad (2.11)$$

Si: $d < d_{crit}$: $Re = 22.2 C_D^{-5.18} We^{-0.169}$ (2.12)

Si: $d > d_{crit}$: $Re = 0.00418 C_D^{2.91} We^{-1.81}$ (2.13)

- Equation de Vignes

Si: $10 < Re < 1000$ $C_D = 5.6 Re We^{-1} Mo^{-1/3} (1-Eö/6)$ (2.14)

2.3. Diamètre critique de circulation

Le mouvement à l'intérieur d'une goutte est directement lié à sa taille et varie d'une circulation laminaire vers une autre de plus en plus vigoureuse, jusqu'à oscillation et déformation au fur et à mesure que le diamètre augmente, tel que montré par la figure 2.1.

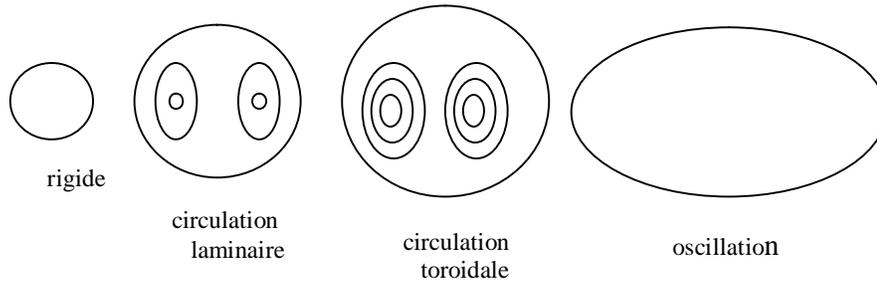


Figure 2.1. Mouvement interne des gouttes [17]

La circulation dépend du bilan de forces à l'interface de la goutte, telles que les forces de frottement et les forces de résistance de l'interface dues à la tension interfaciale d'où:

$$\pi d^3 g \Delta \rho / 6 = \gamma \pi d \quad (2.15)$$

Une circulation interne se développe à l'intérieur de la goutte à un certain diamètre critique et à partir de l'équation (2.15), il est donné comme suit:

$$d_{crit} = 6 \sqrt{\frac{g}{g \Delta r}} \quad (2.16)$$

Expérimentalement, le diamètre critique de circulation s'avère être beaucoup plus complexe que son expression par l'équation 2.16, car il dépend d'autres paramètres que la tension interfaciale et les masses volumiques des deux phases, d'où l'existence d'autres formules empiriques ou semi empiriques trouvées expérimentalement telle que l'équation 2.11.

2.4. Comportement des gouttes

Le comportement des gouttes n'est toujours pas bien maîtrisé et ne peut être lié qu'au seul facteur de leur taille, car le régime d'écoulement, les propriétés physiques des deux phases et la contamination, peuvent aussi avoir une influence directe sur leur mouvement interne.

La nature de la goutte est souvent liée au nombre de Morton et au régime d'écoulement comme suit [18] :

- Si $1/Mo > 10^{12}$: la déformation de la goutte est négligeable et la goutte est assimilée à une sphère rigide
- Si $1/Mo < 10^3$: la phase continue est très visqueuse et les gouttes seront déformées même en régime de Stokes ($Re < 1$).
- Si $10^7 < 1/Mo < 10^{11}$: la goutte peut être considérée comme sphère rigide seulement en régime laminaire.

Cependant il reste assez difficile de prédire les conditions du début de la circulation et si elle est laminaire ou turbulente. Peu de travaux considèrent ce point précis d'une façon généralisée et les corrélations proposées ne sont applicables que pour le système traité. Cependant la modélisation peut être basée sur les éléments importants suivants [19] :

- Généralement les gouttes sont supposées de petite taille avec un diamètre inférieur à 2 mm, et elles se comportent donc comme des sphères rigides. Lorsque la taille de la goutte augmente, une circulation interne se développe à l'intérieur et devient importante au fur et à mesure que la vitesse de la goutte augmente. A un certain diamètre (pour plusieurs systèmes il est supérieur à 6 mm) les gouttes commencent à osciller jusqu'à ce qu'elles se rompent et se divisent en petites gouttelettes ;
- Pour de petites gouttes, avec $Re < 1$ le transfert de matière se fait essentiellement par diffusion moléculaire ;
- Lorsque le diamètre de la goutte augmente et pour un $Re < 10$, une circulation interne se développe et le taux de transfert augmente. Johns et Beckmann [5] ont montré par

des calculs numériques que la transition des conditions entre goutte stagnante et circulante se fait à $Pe_d \approx 200$;

- Lorsque la goutte devient plus large, la circulation à l'intérieur devient turbulente ;
- Bond et Newton [5], estiment que la circulation commence à $Eö > 4$, Grace et al montrent que les gouttes se rompent si $Eö > 16$ et ceci en l'absence d'agitation ;
- Le début de l'oscillation de la goutte n'est pas encore connu avec précision, Winnikow et Chao [5], trouvent que l'oscillation à l'intérieur des gouttes des systèmes purs commence à $We \approx 4$ et $Re > 200$;
- Grace et al [5], ont proposé une équation pour la vitesse terminale maximale pour des gouttes légèrement contaminées comme suit:

$$V_{tm} = 19.84 (\mu_c / \rho_c d) Mo^{-0.149} \quad (2.17)$$

Avec

$$Re_m = 19.84 Mo^{-0.149} \quad (2.18)$$

Ce qui donne un Re_m de l'ordre de 100 à 300, pour des propriétés physiques typiques. Le début de l'oscillation prend place à un Re de 150 et plus et vraisemblablement influence le taux de transfert. Schroeder et Kintner[5], observent que l'oscillation de la goutte commence lorsque la vitesse terminale atteint le point maximale ou juste après.

2.4.1. Effet de la viscosité de la phase dispersée

Dans tous les nombres adimensionnels utilisés pour décrire le comportement des gouttes par leurs vitesse terminale et diamètre critique de circulation, qui est un paramètre clé dans la détermination du mécanisme de transfert de matière, on note l'absence de la viscosité de la phase dispersée. Il y a eu très peu de travaux sur l'effet de la viscosité sur le transfert de masse dans les colonnes d'extraction, or plusieurs systèmes industriels ont des viscosités des deux phases très différentes. Cette propriété ne peut pas, ne pas avoir d'effet sur le comportement des gouttes, et certains travaux l'ont confirmé.

- Des expériences numériques sur CFD effectuées par A. Pfennig [20], ont montré que la vigueur de la circulation interne de la goutte dépend aussi bien du rapport des viscosités des deux phases (μ_d / μ_c) que du Re . Plus ce rapport augmente et moins est la circulation interne. Des particules avec un rapport inférieur à 0.02 se comportent comme des bulles, et ceux avec un rapport supérieur à 50 ont un comportement de sphère rigide.
- Bhavasar et al [21], ont mesuré les vitesses terminales des gouttes d'un diamètre de 1 à 2,5 mm dans des systèmes diphasiques aqueux, ils ont proposé une corrélation qui

couvre les Mo de 0.002 à 11050 et les $Eö$ de 0.09 à 288, où le nombre de Mo utilisé était fonction de la viscosité de la phase dispersée et non de celle de la phase continue, les deux viscosités apparaissaient donc dans la corrélation.

- Une étude de l'effet de la viscosité sur le transfert de masse dans des colonnes d'extraction à plateaux perforés pulsées a été réalisée par Wagner [22]. Deux systèmes à viscosités de la phase dispersée élevées ont été utilisés: eau/propanol/nonylalcool à $\mu_d=15,1$ mPas et eau/propanol/tridécylalcool à $\mu_d= 41.9$ mPas et pour les deux systèmes la phase organique est dispersée dans l'eau. Les valeurs des coefficients de transfert coté phase dispersée ont été comparées à ceux des systèmes standards recommandés (figure 2.2). Cette figure montre un faible taux de transfert de masse pour les systèmes à μ_d élevée par rapport aux autres systèmes.

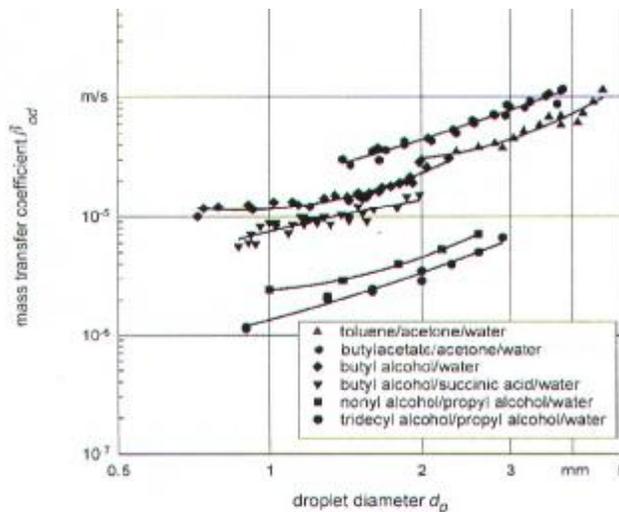


Figure 2.2. Effet de la viscosité sur le transfert de masse. [22]

Donc, pour faire apparaître l'effet de la viscosité de la phase dispersée nous avons utilisé le rapport des viscosités des deux phases pour la vitesse terminale, le diamètre critique de circulation et aussi dans les corrélations développées pour représenter le coefficient de transfert de matière coté phase dispersée.

2.5. Les colonnes d'extraction liquide-liquide à garnissage

Dans ce travail, le type de colonnes considéré est celui à garnissages et par conséquent, il est peut être utile de les décrire plus en détail. L'utilisation des éléments solides appelés garnissages, remplissages ou 'packing', aux formes et aux dimensions judicieusement choisies, permet de réaliser un contact continu entre les deux phases pour

assurer un bon transfert de matière. L'échange des constituants entre les phases se fait d'autant mieux que la surface de contact est grande et la turbulence importante. Le remplissage peut donc jouer le rôle de promoteur de turbulence et aussi un moyen de créer l'aire d'échange. A titre d'illustration, la figure 2.3 montre schématiquement ce type de colonne avec les différents courants:

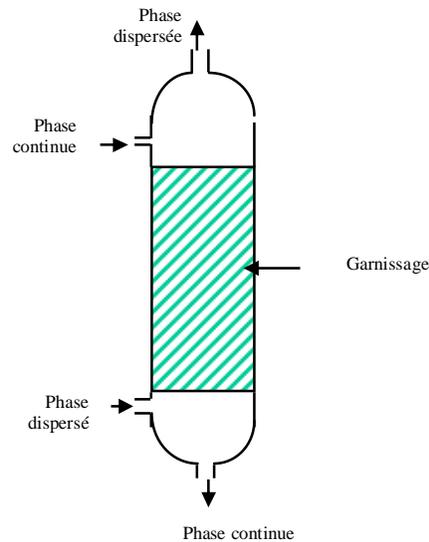


Figure 2.3. Colonne à garnissage

2.5.1. Garnissages

Pour faciliter le transfert de matière, il est souhaitable que la phase liquide mouille le garnissage et s'étale par la suite sur toute sa surface. Le garnissage doit avoir une grande surface de transfert par unité de volume. La surface volumique du garnissage est presque toujours plus grande que l'aire interfaciale réellement produite entre les phases. Les garnissages devraient aussi posséder des caractéristiques hydrauliques adaptées, la fraction de l'espace vide dans le lit garni devrait être suffisamment importante pour permettre la circulation des phases liquide et vapeur, tout en produisant une grande surface de contact entre les deux. Les garnissages sont généralement divisés en trois classes :

a. Garnissage en vrac

Ce sont des pièces de garnissage avec une certaine forme géométrique spécifique, empilées dans la colonne de manière aléatoire. Historiquement, il y a eu trois générations dans l'évolution du garnissage en vrac. La première génération a produit deux formes de base, les

anneaux Raschig et les selles de Berl. La seconde génération a introduit d'autres formes géométriques assez utilisées: les anneaux Pall, qui sont issus des anneaux Raschig et les selles Intalox qui sont une variante des selles de Berl. La troisième génération a produit une multitude de géométrie, la plupart découlant des anneaux Pall et selles Intalox. Des exemples de garnissages en vrac sont montrés sur les figures 2.4 et 2.5.

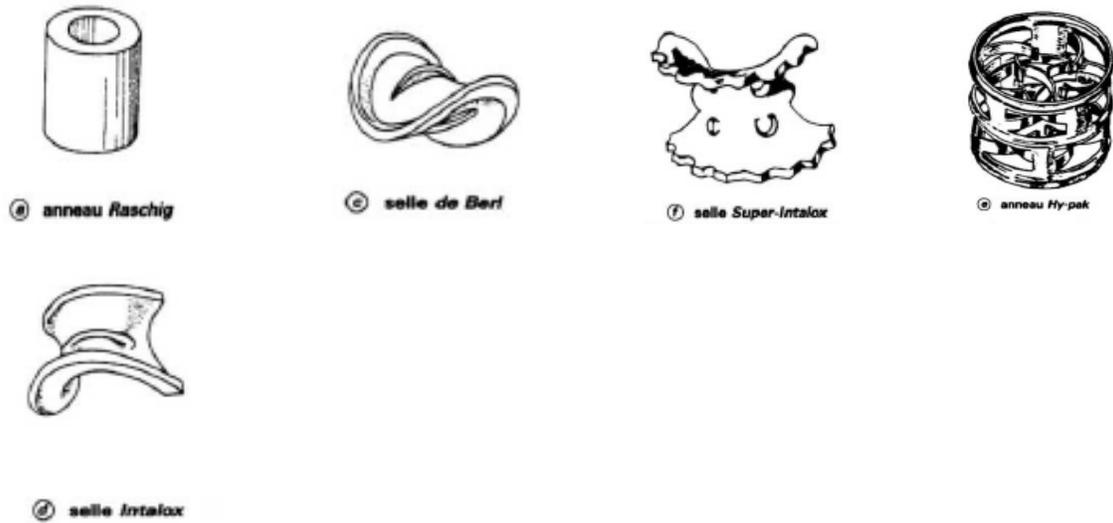


Figure 2.4. Garnissages en vrac traditionnels (1^{ère} et 2^{ème} génération) [23]



Selles IMTP



Anneaux de Nutter



Mini Anneaux de cascade

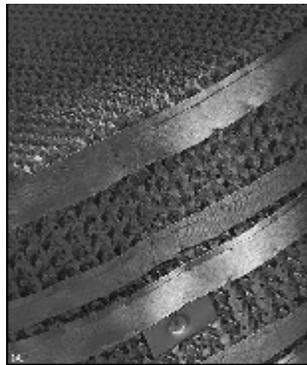


Anneaux Pall (plastique et métal)

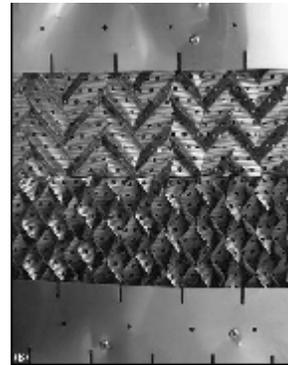
Figure 2.5. Garnissages en vrac nouvelle génération [23]

b. Garnissages en toiles et feuilles métalliques structurées

Les garnissages structurés ont une architecture géométrique régulière, comme montré par la (figure 2.6). Par opposition aux garnissages en vrac, ils sont fabriqués et adaptés soigneusement aux dimensions de la colonne. Ils sont disponibles en différents types (toile et plaque) et aussi en une grande variété de matériaux tel que les métaux, les plastiques, les céramiques et le carbone. La toile structurée est généralement utilisée dans les colonnes travaillant sous vide, et dans lesquelles il est essentiel de réduire la chute de pression, le temps de contact ou la température de la colonne.



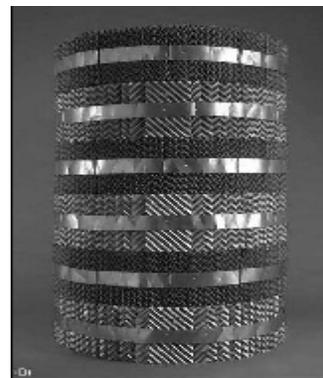
Intalox



Flexeramic



Gemak



MAX-PAC

Figure 2.6. Garnissages à feuille métallique structurée [23]

c. Grilles

Ce sont aussi des garnissages structurés, sauf que ceux là utilisent des structures à réseaux ouverts. Des grilles en bois et en plastique, semblables à ceux utilisées dans des tours de refroidissement, ont été employées dans la distillation et l'absorption pendant des décennies. La première grille moderne, était la grille de GLITSCH, montrée par la figure 2.7.

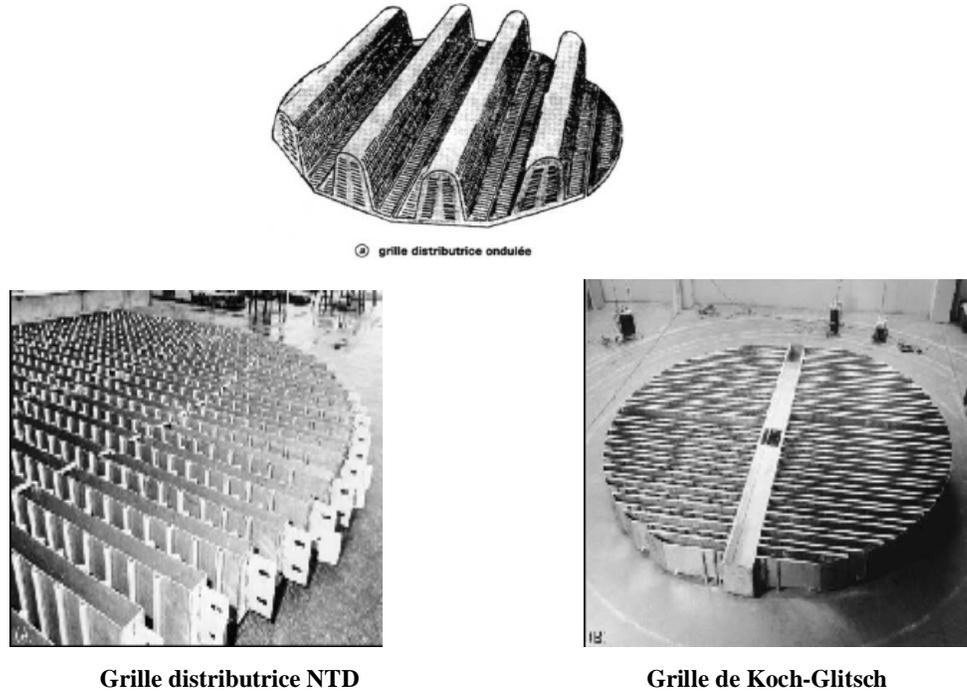


Figure 2.7. Différents types de grilles [23]

2.6. Hydrodynamique des colonnes d'extraction liquide-liquide

Lorsque le contact entre les deux phases est réalisé dans un contacteur ou une colonne, les paramètres hydrodynamiques et les caractéristiques de l'appareil auront une influence directe sur le transfert de matière, et doivent par conséquent être pris en considération lors de l'estimation des coefficients de transfert.

2.6.1. Taille des gouttes

Dans un contacteur, tel qu'une colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage, la taille moyenne des gouttes est contrôlée par les phénomènes de rupture et de coalescence. Ces derniers dépendent de plusieurs paramètres tels que les propriétés physiques du système utilisé et aussi la nature de l'écoulement. D'après Sauter [24], un équilibre dynamique est établi en permanence entre ces deux phénomènes et la taille de la population des gouttes évoluant dans la colonne est quantifiée par un diamètre moyen connu sous son nom :

$$d_s = \frac{\sum n_i d_i^3}{\sum n_i d_i^2} \quad (2.21)$$

Où n_i est le nombre de particules de diamètre d_i par unité de volume [24].

Ce diamètre moyen dépend aussi dans le cas de colonnes à garnissage de la taille de celui-ci, Lewis et al [18] ont montré expérimentalement que cette dépendance s'annule à partir d'un certain diamètre critique du garnissage, donné par l'expression :

$$d_{pc} = 2.42 \left(\frac{g}{\Delta r g} \right)^{1/2} \quad (2.22)$$

Ils ont proposé pour l'estimation du diamètre moyen des gouttes pour les systèmes aqueux/organiques la corrélation suivante:

$$d = 0.92 \left(\frac{g}{\Delta r g} \right)^{1/2} \quad (2.23)$$

2.6.2. Vitesse de glissement

Dans la colonne, les gouttes ne se déplacent pas indépendamment. En notant V_c et V_d les débits des phases continue et dispersée (rapportés à l'unité de section), envoyées dans une colonne où elles circulent en courants parallèles, f la rétention, et en tenant compte de l'influence d'une phase exercée sur l'autre, les vitesses des phases continue et dispersée sont données respectivement par :

$$\frac{V_c}{1-f} \quad \text{et} \quad \frac{V_d}{f} \quad (2.24a)$$

La vitesse relative des deux phases appelée aussi vitesse de glissement est donnée comme suit [24]:

$$V_{glis} = \frac{V_d}{f} - \frac{V_c}{1-f} \quad (2.24b)$$

Avec V_c et V_d de même signe dans un écoulement à co-courant et de signe contraire à contre courant. Pour une colonne à garnissage avec une fraction de vide e , et où l'écoulement est à contre courant l'équation devient [24]:

$$V_{glis} = \frac{V_d}{ef} - \frac{V_c}{e(1-f)} \quad (2.25)$$

Cette vitesse relative est fonction de la rétention. Lorsque f tend vers 0, pour la vitesse d'une particule isolée dans la phase continue V_t , Wallis a proposé la relation suivante [24]:

$$V_{glis} = V_t (1-f)^n \quad (2.26)$$

L'exposant n ayant différentes valeurs suivant le type de dispersion et pour une dispersion gaz-liquide ou liquide-liquide, $n = 1$

Toutefois Loutaty [18], a montré que pour des dispersions liquide-liquide la vitesse de glissement peut être exprimée comme suit :

$$V_{glis} = 0.725 V_t (1-f) \quad f > 0.1 \quad (2.27)$$

Il existe une variété d'équations pour relier la vitesse de glissement à la rétention dans la phase continue $(1-f)$, particulièrement celles impliquant la vitesse caractéristique V_k , qui tient en considération le fait que les gouttes sont périodiquement stoppées à cause des collisions avec les éléments du garnissage, avant de reprendre une certaine accélération et ainsi de suite :

$$V_{glis} = V_k (1-f) \quad (2.28)$$

La vitesse caractéristique peut être estimée graphiquement comme suggéré dans la référence [18], ou calculée pour des colonnes garnies avec un garnissage de taille supérieure à la taille critique citée précédemment, selon la relation suivante:

$$V_k = C \left(\frac{a_p r_c}{e^3 \Delta r} \right)^{-1/2} \quad (2.29)$$

Avec a_p la surface spécifique du garnissage, e le degré de vide dans la colonne et où $C = 0.683$ dans le cas où il n'y a pas de transfert de matière, $C = 0.637$ dans le cas d'un transfert $c \rightarrow d$ et $C = 0.820$ dans le cas d'un transfert $d \rightarrow c$.

Godfrey et Slater [5], ont obtenu une corrélation pour un garnissage en anneaux Raschig en vrac, donnée comme suit :

$$\frac{V_k}{V_t} = \left[1 - \left(\frac{d}{d_p} \right)^{0.6} \right]^{1.5} \quad (2.30)$$

Avec d le diamètre moyen des gouttes et d_p la taille du garnissage.

On peut aussi citer la corrélation de Steiner [25] pour la vitesse de glissement et qui a donné les résultats les plus proches des valeurs expérimentales pour le cas des colonnes à garnissage:

$$V_{glis} = \left[1.71 \frac{\Delta r d g}{r_c} \left(\frac{1-f}{1+f^{1/3}} \right)^{1.72} \right]^{1/2} \quad (2.31)$$

2.6.3. Rétention de la phase dispersée

La rétention est le paramètre fondamental conditionnant la performance d'une colonne d'extraction liquide-liquide. C'est essentiellement le volume total de certaines gouttes piégées lors de leur déplacement à l'intérieur du contacteur. Pour une opération permanente de la colonne, c'est la rétention opérationnelle de la phase dispersée qui sera drainée si l'opération d'alimentation de la colonne s'arrête, elle contribue au transfert de matière et commande l'aire interfaciale. Kumar et Hartland [26] ont examiné plusieurs colonnes à garnissage opérant sous différentes conditions opératoires et ont proposés la corrélation suivante :

$$f = \left[V_d \left(\frac{r_c}{g} \right)^{1/4} \right]^{1.03} \exp \left[5.06 V_c \left(\frac{r_c}{g} \right)^{1/4} \right] C \left(\frac{\Delta r}{r_c} \right)^{-0.58} \left(\frac{m_d}{m_w} \right)^{0.1} \frac{2.43}{e} \left[\frac{1}{a_p} \left(\frac{r_c}{g} \right)^{1/2} \right]^{-0.75} \quad (2.32)$$

$C = 1.2$ dans le cas d'un transfert $c \rightarrow d$

$C = 0.71$ dans le cas d'un transfert $d \rightarrow c$

2.6.4. Aire interfaciale

Pour augmenter le flux de transfert de matière entre deux phases, la procédure consiste à augmenter l'aire interfaciale, d'où l'utilisation des différentes techniques de dispersion d'un fluide dans l'autre, tel que la pulvérisation des fluides en petites gouttes, l'utilisation des garnissages à grande surface sur lesquels le liquide ruisselle en film mince, etc. L'efficacité globale de l'extracteur dépend exclusivement du produit du coefficient de matière et de l'aire interfaciale, ka .

Dans le cas d'une phase dispersée sous forme de gouttes de diamètre d avec une rétention f (fraction volumique de phase dispersée) l'aire interfaciale par unité de volume de dispersion est donnée par:

$$a = \frac{f}{d^3} p d^2 = \frac{6f}{d} p \quad (2.33)$$

2.6.5. La dispersion

La différence de comportement des deux phases, induit des fluctuations dans les concentrations causant des taux de transfert du soluté proportionnels au gradient de concentration. Aussi, il existe des flux additionnels dans la direction opposée, dus à la dispersion causée par la distribution de la vitesse, ce taux est proportionnel au gradient négatif de la concentration par analogie à la diffusion moléculaire. Le coefficient de dispersion E , a la même dimension que la diffusivité mais sa valeur dépend non seulement des propriétés physiques, mais aussi de l'hydrodynamique du système. La dispersion axiale doit être prise en

considération pour la modélisation des colonnes à garnissage. Gayler et Pratt [5] ont montré que le backmixing de la phase dispersée, n'est pas aussi important que celui de la phase continue. Watson et McNeese [5], ont proposé la relation suivante pour le coefficient côté continue, exprimé en terme du nombre adimensionnel de Peclet et qui a aussi été utilisée en phase dispersée:

$$\frac{e V_c d_p}{E_c} = 7.8 \times 10^{-3} \left[1.435 + \left(\frac{d_p V_c r_c}{y m_c} \right)^{0.1} \left(\frac{V_c}{V_d} \right)^{0.2} \right] \left(\frac{d_p V_c r_c}{y m_c} \right)^{0.25} \left(\frac{V_c}{V_d} \right)^{0.8} \quad (2.34)$$

Où ψ est la sphéricité du garnissage (c'est la surface d'une sphère de même volume que le garnissage/surface du garnissage).

Pour des nombres de Re élevés, le rapport de dispersion axiale par dispersion radiale approche la valeur de 5 [27].

Aussi, la distribution des vitesses de la phase continue peut différer d'une région à une autre, à cause de la présence des zones stagnantes ou chemins préférentiels, où l'entraînement dans le sillage des gouttes d'une fraction de la phase continue est une cause essentiel du mélange axial qui conduit à une discontinuité de la concentration.

2.7. Modélisation d'une colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage

La modélisation des colonnes d'extraction liquide-liquide est généralement décrite selon trois modèles différents :

- Le modèle piston (Plug flow) : Ce modèle considère la phase dispersée comme pseudo continue en contre courant.
- Le modèle de mélange axial : qui est basé sur le modèle piston pour l'hydrodynamique mais pour le transfert de matière, le mélange axial est pris en considération comme une contribution pseudo-diffusive.
- Le modèle de bilan de population : il est basé sur la distribution des tailles de gouttes et prend en considération les phénomènes de rupture et de coalescence. L'écoulement des deux phases est décrit par un modèle piston ou de dispersion axiale.

Dans ce présent travail nous avons choisi le modèle de dispersion axiale. Un bilan de matière sur un élément différentiel de la colonne comme montré sur la (figure 2.8) et en l'absence de toute réaction chimique s'écrit littéralement comme suit :

$$\left(\begin{array}{l} \text{Quantité de matière} \\ \text{entrant dans l'élément} \end{array} \right) - \left(\begin{array}{l} \text{Quantité de matière} \\ \text{sortant de l'élément} \end{array} \right) = \left(\begin{array}{l} \text{Variation de la} \\ \text{matière dans l'élément} \end{array} \right)$$

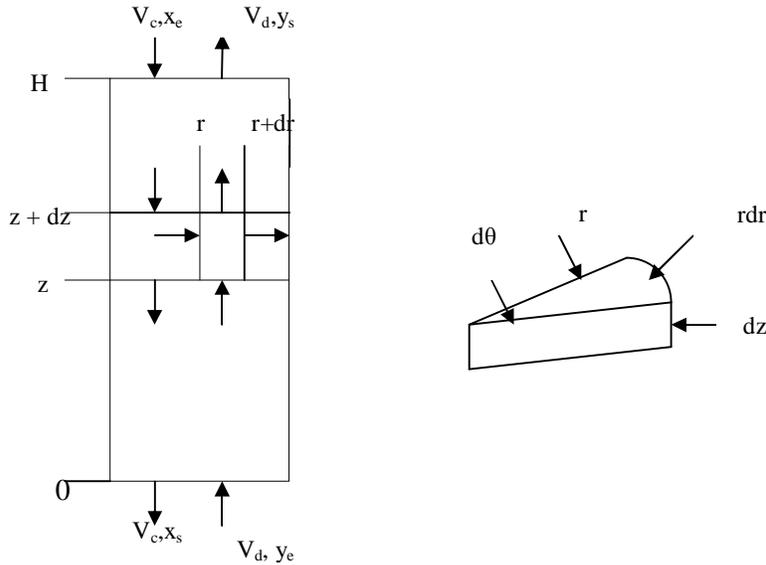


Figure 2.8. Schéma de la colonne et élément différentiel

$$\text{Explicitement: Ce qui entre} = fV_d dS y|_z - E_z f dS \frac{\partial y}{\partial z} \Big|_z - E_r f dS \frac{\partial y}{\partial r} \Big|_r \quad (2.35)$$

$$\text{Ce qui sort} = fV_d dS y|_{z+dz} - E_z f dS \frac{\partial y}{\partial z} \Big|_{z+dz} - E_r f dS \frac{\partial y}{\partial r} \Big|_{r+dr} \quad (2.36)$$

$$\text{La variation} = fV_d dV \frac{\partial y}{\partial t} \quad (2.37)$$

$$\text{Où: } dV = r dr d\theta dz, \quad dS = r dr d\theta \Big|_z \quad \text{et} \quad dS = r dz d\theta \Big|_r$$

$$\text{Notant que la quantité transférée est: } K_{od} a (y-y^*) \quad (2.38)$$

L'équation différentielle globale bidimensionnelle et transitoire qui modélise la colonne est donnée donc pour la phase dispersée par:

$$-fV_d \frac{\partial y}{\partial z} + E_z f \frac{\partial^2 y}{\partial z^2} + E_r f \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial y}{\partial r} \right) - K_{od} a (y - y^*) = fV_d \frac{\partial y}{\partial t} \quad (2.39)$$

Avec la relation d'équilibre : $y^* = m x$ (2.40)

Où m est la constante d'équilibre

Un bilan de matière sur la partie inférieure de la colonne donne:

$$(1-f) V_c x + f V_d y_e = f V_d y + (1-f) V_c x_s f \quad (2.41)$$

et $x = \frac{f V_d}{1-f V_c} (y - y_e) + x_s$ (2.42)

En remplaçant les équations (2.40) et (2.42) dans (2.39) on obtient:

$$-fV_d \frac{\partial y}{\partial z} + E_z f \frac{\partial^2 y}{\partial z^2} + E_r f \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial y}{\partial r} \right) - K_{od} a (a y + b) = fV_d \frac{\partial y}{\partial t} \quad (2.43)$$

Avec: $a = 1 - m \frac{f V_d}{1-f V_c}$ et $b = m \frac{f V_d}{1-f V_c} y_e - m x_s$ (2.44)

Pour le cas le plus simple: unidimensionnel, sans dispersion et en régime permanent, l'équation (2.43) se réduit à:

$$-fV_d \frac{\partial y}{\partial z} = K_{od} a (a y + b) \quad (2.45)$$

Cette équation différentielle admet une solution analytique par simple intégration et par incorporation de la condition limite:

$$\text{À } z = 0 : y = y_e \quad (2.46)$$

On obtient la solution suivante:

$$y = \left(y_e + \frac{b}{a} \right) \exp \left(- \frac{K_{od} a a}{V_d f} z \right) - \frac{b}{a} \quad (2.47)$$

Les conditions aux limites utilisés pour la résolution de l'équation différentielle globale sont données comme suit :

$$\text{À } z = 0, y = y_e \text{ et à } z = H, \frac{\partial y}{\partial z} = 0 \quad (2.48)$$

La symétrie axiale impose les conditions aux limites suivantes, dans la direction radiale:

$$\text{À } r = 0, \frac{\partial y}{\partial r} = 0 \text{ et sur la paroi à } r = R, \frac{\partial y}{\partial r} = 0 \quad (2.49)$$

Le travail réalisé par [13], en utilisant ces conditions aux limites, a montré que les profils radiaux étaient plats à cause de l'utilisation d'un gradient nul à la paroi, surtout pour les cas où le diamètre de la colonne n'est pas élevé, en effet, en réalisant des expériences numériques en attribuant à ce gradient des valeurs arbitraires, ils ont trouvé que l'allure du profil changeait en augmentant ces valeurs, et ont donc recommandé de changer cette condition limite. Certains auteurs [5,13], ont proposé de travailler avec la condition limite suivante, pour le cas de colonne d'extraction liquide-liquide :

$$\left. \frac{dy}{dr} \right|_{r=R} = -\frac{K_{od}}{E_r} (y - y_\infty) \quad (2.50)$$

Avec y_∞ : fraction obtenue à hauteur infinie de la colonne

CHAPITRE 3

THEORIES ET CORRELATIONS DE TRANSFERT DE MATIERE

3.1. Introduction

Les opérations de séparation telles que la distillation, l'absorption des gaz, l'extraction par solvant, etc., font appel au transfert de matière entre phases, qui peuvent être liquides ou vapeurs, et qui sont mises en contact de manière adéquate dans des appareils telles que les colonnes de distillation (à plateaux ou à garnissage), des colonnes d'extraction liquide-liquide (avec ou sans agitation mécanique), les colonnes d'absorption (à plateaux ou à garnissage), etc.

En réalité, pour un mode de contact donné, la vitesse du transfert est limitée et dépend principalement des facteurs suivants:

- Facteurs moléculaires : les solutés diffusent dans un fluide par suite de l'agitation moléculaire ;
- Facteurs hydrodynamiques agissant à deux niveaux :
 - Transport de matière par convection ;

- Création d'une aire interfaciale plus ou moins importante en dispersant une des phases sous forme de gouttes ou de bulles, ou en l'étalant sur la surface des éléments d'un garnissage.

L'intensité du transfert de matière entre phases est, le plus souvent, caractérisée par un coefficient de transfert de matière qui peut être mis sous forme adimensionnelle, en introduisant le nombre d'unités de transfert qui fait intervenir le produit du coefficient de transfert par l'aire interfaciale.

3.2. Le coefficient de transfert

Dans la majorité des opérations de séparation, le système considéré est constitué par un ensemble de deux phases, dont l'une est dispersée sous forme de gouttes, bulles, de particules solides ou de films, etc., et l'autre est continue. Dans un tel système, le mouvement des fluides est extrêmement complexe, nécessitant le recours à des modèles pour représenter au mieux les caractéristiques du transfert.

Pour caractériser le transfert dans une phase, un coefficient de transfert est défini en rapportant le flux interfacial à une différence de concentration caractéristique. Il est exprimé comme suit:

$$k = \frac{N_{Ai}}{\Delta C_A} \quad (3.1)$$

Avec ΔC_A la différence entre la concentration moyenne du constituant A dans la phase considérée et sa concentration à l'interface ($\Delta C_A = C_A - C_{Ai}$). Cette différence de concentration est similaire à une différence de potentiel pour le transfert. L'inverse de k est la résistance au transfert. Il est souvent intéressant de l'utiliser sous forme adimensionnelle, pour obtenir le nombre de Sherwood, comme suit:

$$Sh = \frac{k L}{D} \quad (3.2)$$

Avec L une longueur caractéristique du système étudié qui peut être le diamètre d'une goutte ou d'une bulle, la taille d'un élément de remplissage, etc.

En le rapportant à une vitesse caractéristique du fluide, on obtient le nombre de Margoulis (connu aussi comme le nombre de Stanton dans la littérature anglo-saxonne), et est exprimé comme suit:

$$Ms = \frac{k}{V} \quad (3.3)$$

Le rapport de Sh sur Ms donne le nombre de Peclet, exprimé comme suit:

$$N_A = k (C_{A0} - C_{Ai}) = k' m (C_{Ai}' - C_{A0}') / m = k' (C_{Ai} - C_{A0}^*) / m = K_1 (C_{A0} - C_{A0}^*) \quad (3.7)$$

D'où la relation entre les différents coefficients de transfert de matière suivante:

$$\frac{1}{K_1} = \frac{1}{k} + \frac{m}{k'} \quad (3.8)$$

La différence $(C_{A0} - C_{A0}^*)$ est le potentiel de transfert global rapporté à la phase 1 et ne dépend que des concentrations opératoires C_{A0} et C_{A0}' . K_1 est le coefficient de transfert global rapporté à la phase 1, tandis que k et k'/m sont les coefficients de transfert individuels rapportés à la même phase. La relation (3.8) exprime l'additivité des résistances de transfert. De la même façon, un coefficient de transfert global par rapport à la phase 2, peut être défini comme suit:

$$\frac{1}{K_2} = \frac{1}{k'} + \frac{1}{m k} \quad (3.9)$$

Lorsque m est très petit, le constituant A est très peu soluble dans la phase 1 et $1/K_1$ est sensiblement égal à $1/k$ si les coefficients de transfert k et k' sont du même ordre de grandeur : la résistance globale est égale dans ce cas à la résistance dans la phase où le soluté est très peu soluble.

3.4. Modèles de représentation du transfert entre phases

Les coefficients de transfert de matière dépendent évidemment des propriétés physico-chimiques du système et des conditions hydrodynamiques. Plusieurs modèles de prévision des coefficients de transfert de matière entre deux phases ont été élaborés. Nous passerons en revue quelques uns des plus importants pour les deux cotés : phase continue et goutte.

3.4.1. Expression des coefficients de transfert

Par définition, le coefficient de transfert en un point d'une interface est [24] :

$$k = \frac{N_{Ai}}{\Delta C_A} \quad (3.10)$$

$$\text{D'après la loi de Fick : } N_{Ai} = -D \left[\frac{\partial C_A}{\partial z} \right]_i + C_{Ai} (V_A N_{Ai} + V_B N_{Bi}) \quad (3.11)$$

Les valeurs de la concentration et du gradient de concentration à l'interface s'obtiennent en résolvant l'équation de bilan :

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C_A}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_A}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C_A}{\partial z^2} \right) - v^* \text{grad} C_A \quad (3.12)$$

Dans laquelle la vitesse moyenne v^* doit être déterminée à partir des équations du mouvement du fluide. L'équation 3.12 peut s'écrire sous forme adimensionnelle en rapportant les coordonnées à une longueur caractéristique L du système étudié, la vitesse v^* à une vitesse caractéristique V et en utilisant une concentration réduite : $x = \frac{C_A - C_{Ai}}{C_{A0} - C_{Ai}}$ (en supposant que

les concentrations C_{A0} et C_{Ai} sont constantes) ainsi qu'un temps adimensionnel : $q = \frac{V}{L} t$.

En incorporant ces variables réduites, l'équation 3.12 devient comme suit :

$$\frac{\partial x}{\partial q} = \frac{1}{Pe} \left(\frac{\partial^2 x}{\partial x'^2} + \frac{\partial^2 x}{\partial y'^2} + \frac{\partial^2 x}{\partial z'^2} \right) - \frac{v^*}{V} \text{grad}' x \quad (3.13)$$

$$\text{Avec : } x' = \frac{x}{L} \quad y' = \frac{y}{L} \quad z' = \frac{z}{L} \quad \text{grad}' = \left(\frac{\partial}{\partial x'}, \frac{\partial}{\partial y'}, \frac{\partial}{\partial z'} \right)$$

A un point de l'interface, et à un instant donné, le coefficient de transfert sera:

$$k = \frac{N_{Ai}}{C_{A0} - C_{Ai}} = -\frac{D}{L} \left[\frac{\partial x}{\partial z'} \right]_i + C_{Ai} \frac{V_A N_{Ai} + V_B N_{Bi}}{C_{A0} - C_{Ai}} \quad (3.14)$$

Dans le cas d'une extraction de A dans B par un solvant immiscible B: $N_{Bi} = 0$

En posant :

$$b = \frac{V_A N_{Ai}}{V_A N_{Ai} - V_B N_{Bi}} \quad (3.15)$$

Le coefficient de transfert devient alors:

$$k = \frac{-\frac{D}{L} \left[\frac{\partial x}{\partial z'} \right]_i}{1 - \frac{V_A C_{Ai}}{b}} \quad (3.16)$$

Et le nombre de Sherwood:

$$Sh = \frac{k L}{D} = \frac{-\left[\frac{\partial x}{\partial z'} \right]_i}{1 - \frac{V_A C_{Ai}}{b}} \quad (3.17)$$

Lorsque $C_{Ai} \rightarrow 0$, $Sh \rightarrow Sh_0 = -\left[\frac{\partial x}{\partial z'} \right]_i = Sh_0 (Re, Pe)$ (3.18)

Dans le cas général
$$Sh = \frac{Sh_0(Re, Pe)}{1 - \frac{V_A C_{Ai}}{b}} \quad (3.19)$$

En régime stationnaire, Sh dépend du point de l'interface considéré. Une valeur moyenne est généralement utilisée sur une étendue finie (la surface d'une goutte ou d'une bulle, par exemple). En régime transitoire, le transfert sera évalué pendant le temps de contact entre les deux phases, pour déterminer un nombre de Sherwood moyen pendant cette durée.

3.4.2. Théorie des deux films

Lewis et Whitman [24], supposent l'existence d'une couche ou film à travers laquelle s'effectue le transfert de masse, au voisinage de l'interface. Dans ce film d'épaisseur δ , l'écoulement est laminaire avec une vitesse parallèle à l'interface et ne dépendant que de la distance de cette dernière, comme montré dans par la figure 3.2. Il peut aussi être noté qu'au delà de l'épaisseur du film, le régime d'écoulement devient turbulent.

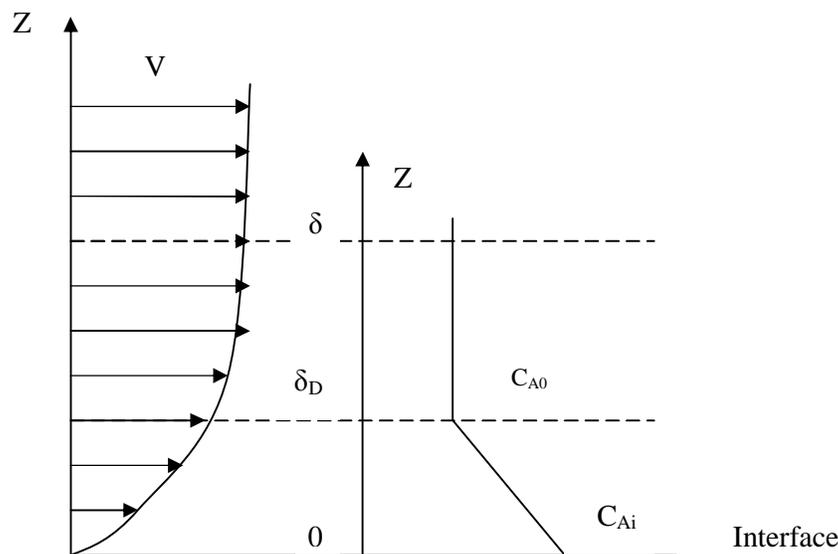


Figure 3.2. Représentation de la théorie des deux films

De même, la concentration du constituant A est uniforme, jusqu'à une certaine distance δ_D de l'interface à partir de laquelle elle varie jusqu'à la concentration interfaciale C_{Ai} . Dans ce film de diffusion, le transfert de masse résulte de la diffusion moléculaire. Donc d'après la loi de Fick et avec l'hypothèse de faibles gradients de concentration, le gradient de concentration est

constant. En posant $\frac{z}{d} = z'$ et $\frac{dx}{dz'} = \frac{x}{z'} = 1$ (ζ étant la concentration réduite défini au paragraphe précédent)

Le profil de concentration est donc linéaire ($\xi = z'$), et le coefficient de transfert est donné par l'expression suivante:

$$k = \frac{D}{d_D} \frac{1}{1 - \frac{V_A C_{Ai}}{b}} \quad (3.20)$$

Dans le cas où la solution est très diluée en A, la relation (3.20) se réduit à l'expression

$$\text{suivante : } k = \frac{D}{d_D} \quad (3.21)$$

L'épaisseur δ_D du film est donnée par la relation suivante [27]:

$$d = \left(\frac{3m_c V_t}{r_c g} \right)^{1/2} \quad (3.22)$$

Ce modèle fournit un coefficient de transfert proportionnel à D . C'est un cas limite, puisque l'expérience donne des coefficients de transfert proportionnels à D^n , avec n compris entre 0.5 et 0.9 [28], quand seuls les phénomènes de diffusion limitent le transfert.

3.4.3. Théorie de Higbie

Higbie suggère que généralement le temps d'exposition au transfert de masse est assez court pour que le gradient permanent de concentration de la théorie des deux films puisse se développer [24]. Il a proposé un modèle où le liquide est en contact avec la bulle de gaz pendant un temps θ , nécessaire au liquide pour glisser sur une distance égale au diamètre de la bulle, comme montré par la figure 3.3.a. Une extension aux cas où le liquide est en mouvement turbulent, est montrée sur la figure 3.3.b, où des paquets de liquides s'exposent pendant un temps θ au contact du gaz pour retourner ensuite au cœur du liquide.

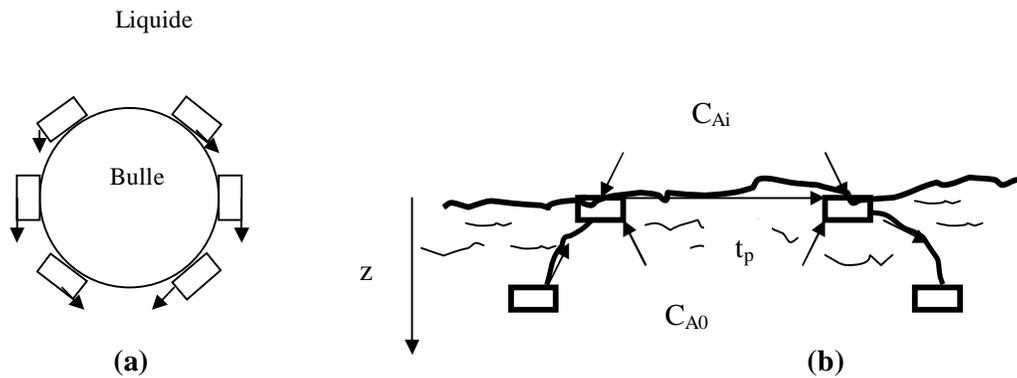


Figure 3.3. Représentation de la théorie de Higbie [27]

Selon cette théorie, le temps d'exposition est constant pour toutes les particules liquides (Figure 3.3). Durant le temps θ , la particule liquide subit une diffusion transitoire ou une pénétration du soluté dans la direction z . La résolution de l'équation de bilan, après une adaptation à cette théorie, donne un coefficient de transfert moyen:

$$k = \sqrt{\frac{D}{p q}} \quad (3.23)$$

Le modèle de la pénétration fournit un coefficient de transfert proportionnel à $D^{1/2}$. Il est caractéristique des systèmes dans lesquels, les échanges s'effectuent par des contacts de courte durée.[28]

3.5. Modèles pour le cas de dispersion de gouttes

Les modèles de transfert de matière entre deux phases, représentés dans les paragraphes précédents, supposent que les volumes des deux phases sont très grands (infiniment pour les calculs), devant les volumes concernés par la pénétration du soluté échangé. Ils supposent également que les cœurs des phases sont parfaitement agités. Ces hypothèses ne sont pas satisfaites lorsque l'une des deux phases est dispersée sous forme de bulles ou de gouttes, le transfert à l'intérieur d'une particule, a un caractère non stationnaire. On définit le potentiel de transfert comme la différence entre la concentration interfaciale C_{Ai} , et la concentration moyenne à un instant donné C_A , de la particule. Dans une particule sphérique, en l'absence de recirculation interne, le transfert a lieu par diffusion moléculaire uniquement, comme montré dans la figure 3.4. Lorsque la concentration interfaciale C_{Ai} est uniforme et constante, le calcul permet d'évaluer le nombre de Sherwood qui est, dans ce cas,

une fonction du temps. En considérant une particule sphérique de rayon R , sans mouvement intérieur, et à la surface de laquelle la concentration du constituant A est constante et égale à C_{Ai} , et en supposant que le système est à symétrie sphérique, l'équation de bilan s'écrit:

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 N_A) = 0 \quad (3.24)$$

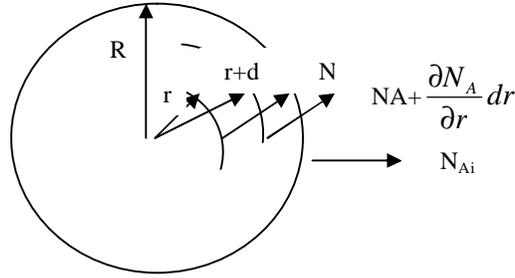


Figure 3.4. Diffusion à l'intérieur d'une sphère [24]

3.5.1 Théorie de Newman

Cette théorie concerne surtout les gouttes rigides, où le transfert de matière est contrôlé par une diffusion moléculaire transitoire sans circulation interne, et donne l'expression du coefficient de transfert de matière suivante :

$$k_d = -\frac{d}{6t} \ln \left\{ \frac{6}{p^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left(-\frac{4n^2 p^2 D t}{d^2} \right) \right\} \quad (3.25)$$

Pour le cas particulier d'un long temps de contact, l'expression du coefficient se réduit à :

$$k_d = 6.58 \frac{D}{d} \quad (3.26)$$

3.5.2. Théorie de Kronig-Brink

Ce modèle suppose que le transfert se fait par diffusion laminaire avec circulation à l'intérieur de la goutte, induite par un mouvement relatif à la phase continue. La figure 3.5 représente les lignes de courant dans la goutte, Kronig et Brink proposent que les concentrations sont uniformes sur chaque ligne de courant, la diffusion se produit entre lignes de courant adjacentes et ils donnent un coefficient de transfert exprimé comme suit:

$$k_d = -\frac{d}{6t} \ln \left\{ \frac{3}{8} \sum_{n=1}^{\infty} A_n^2 \exp \left(\frac{-64 I_n D t}{d^2} \right) \right\} \quad (3.27)$$

Les valeurs propres A_n et λ_n sont généralement tabulées [27], le tableau des valeurs est donné en annexe1 (tableau A.1).

Pour de longs temps de contact, le coefficient devient : $k_d = 17.90 \frac{D}{d}$ (3.28)

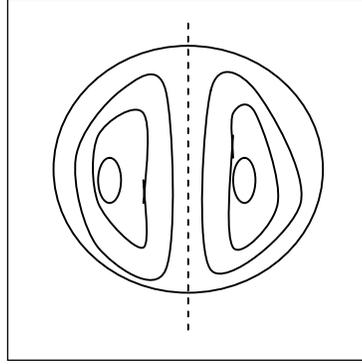


Figure 3.5. Circulation laminaire dans la goutte modélisée par Kronig-Brink[28]

3.5.3 Théorie de Handlos-Baron

Ce modèle est utilisé dans le cas de circulation turbulente à l'intérieur de la goutte, le transfert de masse est contrôlé par une diffusion turbulente. Selon Handlos et Baron, la diffusion turbulente est telle qu'une particule demeure sur la même ligne de courant (figure 3.6), le temps d'effectuer un tour complet, avant de se fondre avec les particules voisines. Le coefficient de transfert de masse est alors donné par l'expression suivante:

$$k_d = -\frac{d}{6t} \ln \left\{ 2 \sum_{n=1}^{\infty} C_n \exp \left(\frac{-16 I_n D t d V_t}{2048 d^2 D \left(1 + \frac{m_d}{m_c} \right)} \right) \right\} \quad (3.30)$$

Les valeurs propres C_n et λ_n sont généralement tabulées [20], le tableau des valeurs est donné en annexe 1 (tableau A.2).

Pour un long temps de contact, l'équation se réduit à l'expression suivante:

$$k_d = \frac{0.00375 V_t}{1 + \frac{m_d}{m_c}} \quad (3.31)$$

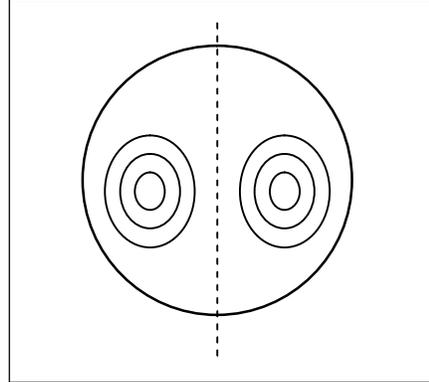


Figure 3.6. Circulation turbulente dans la goutte modélisée par Handlos-Baron.[28]

3.5.4. Le modèle d'élongation de surface

Lorsque la goutte devient oscillante, sa forme change en fonction du temps. Ce modèle suppose que tous les éléments de surface restent à la surface pendant un cycle d'oscillation, une extension de la surface aura lieu à cause de l'étirement. En conséquence, le coefficient de transfert de masse est exprimé comme suit:

$$\frac{k_d A}{A_0} = 2 \sqrt{\frac{D f_0}{p} \left(1 + e + \frac{3}{8} e^2 \right)} \quad (3.32)$$

$$f_0: \text{est la fréquence d'oscillation } f_0 = \left[\frac{48 g C_1}{p^2 d^3 (2r_c + 3r_d)} \right]^{1/2} \quad (2.33)$$

C_1 : facteur de correction $C_1 = 2.27 d^{0.225}$

La valeur de ε est proche de 0.3 pour plusieurs systèmes

A_0 : aire d'une sphère de même volume qu'une goutte

$k_d A$: produit moyen du coefficient de transfert de matière et de l'aire de la goutte oscillante

3.5.5 Modèle de renouvellement de l'interface

Ce modèle suppose que des éléments frais sont apportés à la surface lorsque la goutte subit un étirement, tandis que les précédents sont éliminés (renouvelés) lors de sa contraction, ce qui mène à l'expression suivante du coefficient de transfert de masse :

$$\frac{k_d A}{A_0} = 2 \sqrt{\frac{D f_0}{p}} (1 + 0.687 e) \quad (3.34)$$

3.6. Cas des colonnes d'extraction

Les modèles cités ci-dessus concernent le cas de goutte unique en mouvement dans un liquide continu, pour le calcul des coefficients de transfert dans les colonnes d'extraction, l'utilisation de ces modèles est possible avec des modifications qui feront apparaître l'hydrodynamique et les caractéristiques de la colonne (rétention, fraction de vide, aire interfaciale, etc.), à travers l'utilisation de la vitesse de glissement à la place de la vitesse terminale, et le diamètre moyen des gouttes à la place du diamètre de la goutte unique.

3.7. Les différentes corrélation pour l'estimation du coefficient de transfert de matière

La résolution des équations de diffusion et des équations d'écoulement, conduisant à l'évaluation des profils de concentration et des coefficients de transfert, n'est possible que dans un nombre limités de cas (écoulement laminaire sur une plaque plane, diffusion à l'intérieur d'une sphère sans circulation, diffusion à l'extérieur d'une sphère dans un fluide stagnant ou en écoulement visqueux, etc.). Dans la plupart des situations rencontrées dans les appareils de séparation, on a souvent recours à des relations empiriques ou semi-empiriques pour évaluer les coefficients de transfert. Ces relations indiquent une influence du nombre de Schmidt, tandis que la fonction reliant le nombre de Sherwood au nombre de Reynolds dépend du type d'écoulement réalisé.

3.8. Corrélations côté phase continue

Le transfert de masse dans la phase continue autour d'une goutte, est généralement affecté par la combinaison des mécanismes de diffusion moléculaire, convection naturelle et forcée dans la phase continue. Le coefficient de transfert dépendra du comportement de la goutte, si elle est rigide ou stagnante, à circulation interne ou oscillante.

3.8.1. Corrélations pour des gouttes rigides

Des expressions du coefficient de transfert ont été obtenues en utilisant l'équation de continuité pour un écoulement autour d'une sphère, en supposant des propriétés physiques constantes. Pour une goutte rigide, et lorsque la vitesse de la phase continue est nulle, l'expression du coefficient de transfert côté phase continue est donné par:

$$k_c = 2 \frac{D_c}{d} \quad (3.35)$$

Ou on peut l'écrire sous sa forme adimensionnelle:

$$Sh_c = 2 \quad (3.36)$$

L'expérience a montré que les valeurs données par cette équation sont très limites, car un faible mouvement de la phase continue, conduirait à des valeurs supérieures.

Une multitude de travaux expérimentaux ont conduit à une variété de corrélations empiriques à différentes conditions d'utilisation, toutefois on peut noter que la majorité des travaux produisent des équations sous la forme:

$$Sh_c = C_1 Re^{n_1} Sc_c^{n_2} \quad (3.37)$$

D'autres auteurs ont représentés leurs données expérimentales par une addition directe du terme représentant le transfert par diffusion moléculaire pure et celui de la convection forcée, sous la forme:

$$Sh_c = 2 + C_1 Re^{n_1} Sc_c^{n_2} \quad (3.38)$$

Cette forme se réduit à l'équation (3.36) lorsque $Re \rightarrow 0$.

Plusieurs corrélations ont été décrites dans la littérature, leur nombre et intervalles d'utilisation rendent le choix d'une relation adéquate assez difficile, dans ce présent travail, nous avons choisi quelques unes de façon à balayer le maximum de conditions d'utilisation exprimées en terme de Re , Pe et Sc , proposées par différentes références [1],[2],[3],[5]...etc

a) Corrélation de Friedlanker

Pour le cas de $Pe_c > 100$ et $Re < 1$, Friedlanker, Braid et Hamlielec, proposent la relation suivante pour le coefficient de TDM côté phase continue :

$$Sh_c = 0.99 Pe_c^{1/3} \quad (3.39)$$

b) Corrélation de Clift

Clift décrit la relation qui suit pour tout Pe_c en régime de Stocks:

$$Sh_c = 1 + (1 + Pe_c)^{1/3} \quad (3.40)$$

c) Corrélation de Brauer

Pour des sphères rigides et à des nombres de Reynolds intermédiaires, entre 1 et 100 Brauer propose la relation empirique suivante:

$$Sh_c = 2 + \left[\frac{0.66}{1 + Sc_c} + \frac{Sc_c}{2.4 + Sc_c} \left(\frac{0.79}{Sc_c^{1/6}} \right) \right] \frac{Pe_c^{1.7}}{1 + Pe_c^{1.2}} \quad (3.41)$$

d) Corrélation de Lochiel

Pour des nombres de Reynolds élevés, Lochiel et Calderbank proposent la corrélation suivante:

$$Sh_c = 0.7 Re^{1/2} Sc_c^{1/3} \quad (3.42)$$

e) Deuxième corrélation de Clift

Pour: $100 < Re < 2000$ et $Sc_c > 200$, Clift a proposé une corrélation qui représente le mieux ses données expérimentales:

$$Sh_c = 1 + 0.724 Re^{0.48} Sc_c^{1/3} \quad (3.43)$$

3.8.2. Corrélations pour des gouttes à circulation interne

Pour ce cas aussi, plusieurs corrélations ont été proposées et le choix dépend du Pe_c , Re et les viscosités des deux phases.

a) Corrélation de Griffith

Pour $Re < 1$ et $Sc_c \geq Pe_c \geq 2.4 (3k+1)^2 (k+1)$ où: $k = \frac{m_d}{m_c}$

Griffith propose:
$$Sh_c = 0.65 \sqrt{\frac{Pe_c}{1+k}} \quad (3.44)$$

b) Corrélation de Boussinesq

Pour des nombres de Reynolds élevés, la corrélation de Boussinesq donne le nombre de Sherwood suivant:

$$Sh_c = \frac{2}{\sqrt{p}} Pe_c^{1/2} \quad (3.45)$$

c) Corrélation de Weber

Pour $Re > 70$, $\kappa \leq 2$ et $\rho_d/\rho_c \leq 4$ Weber propose:

$$Sh_c = 2 \left(\frac{Pe_c}{p} \right)^{1/2} \left[1 - \frac{1}{Re^{1/2}} (2.89 + 2.15 k^{0.64}) \right]^{1/2} \quad (3.46)$$

d) Corrélation de Clift

Pour $10 < Re < 100$ et $\kappa < 2$:

$$Sh_c = 2 \left(\frac{Pe_c}{p} \right)^{1/2} \left[1 - \frac{\frac{2+3k}{3(1+k)}}{\left[1 + \left\{ \frac{(2+3k)Re^{1/2}}{(1+k)(8.67 + 6.45k^{0.64})} \right\}^{n1} \right]^{1/n1}} \right]^{1/2} \quad (3.47)$$

Où: $n_l = 4/3 + 3 \kappa$

3.8.3. Corrélations pour des gouttes oscillantes

Pour les gouttes oscillantes, différents modèles et corrélations ont été reportés dans la littérature sans spécifications sur les conditions d'utilisation:

- Garner et Tayban : $Sh_c = 50 + 8.5 \times 10^{-3} Re Sc_c^{0.7}$ (3.48)

- Hughmark : $Sh_c = 2 + 0.084 \left[Re^{0.484} Sc_c^{0.339} \left(\frac{d g^{1/3}}{D_c^{2/3}} \right)^{0.072} \right]^{1.5}$ (3.49)

- Yamaguchi et al : $Sh_c = 1.4 \left(\frac{d^2 f_0 r_c}{m_c} \right)^{0.5} Sc_c^{0.5}$ (3.50)

- Clift et al : $Sh_c = \frac{1.2}{\sqrt{D_c}} \left[\frac{48 g d}{p^2 (2r_c + 3r_d)} \right]^{1/4}$ (3.51)

3.9. Corrélations côté phase dispersée

Dans la phase dispersée, le transfert de masse est à caractère plus complexe que dans la phase continue puisque le processus est transitoire. Des modèles mathématiques ont été développés, des solutions particulières ont été obtenus pour des gouttes rigides et à circulation laminaire, présentées par Newman et Kronig-Brink et qui sont bien connues. Expérimentalement, il a été confirmé que les gouttes rigides obéissaient au modèle de Newman, pour celles à circulation interne laminaire l'équation de Kronig-Brink donne de bons résultats. Cependant, dans la majorité des cas traités, les taux de transfert de matière sont beaucoup plus élevés, ce qui implique que le mouvement à l'intérieur des gouttes est plus complexe et le modèle le plus utilisé pour des gouttes à circulation turbulente est celui de Handlos-Baron, en dépit de l'évidence de son manque de fiabilité.

Dans l'absence de modèles théoriques fiables pour le transfert de matière à l'intérieur des gouttes, des tentatives ont été réalisées pour trouver des approches empiriques suite à des travaux expérimentaux. Dans ce sens, plusieurs formules ont été proposées, toutefois la qualité des données expérimentales disponibles pour des systèmes de goutte unique mène à des différences importantes dans l'estimation du taux de transfert avec les différentes formules pour le même système [9].

3.9.1. Corrélation pour des gouttes rigides

Pour ce cas précis la théorie de Newman est en général très fiable, d'où le peu de relations empiriques le concernant, on peut citer l'équation de Skelland et Conger[29] :

$$k_d = -\frac{d}{6t} \ln \left(1 - \frac{p D_d^{0.5} t^{0.5} d}{0.5} \right) \quad (3.52)$$

3.9.2. Corrélations pour des gouttes à circulation interne

Rozen et Bezzubova, proposent deux corrélations pour des gouttes à taille moyenne et des gouttes à diamètre élevé, respectivement:

$$Sh_d = 0.32 \text{ Re}^{0.63} Sc_d^{0.5} \left(1 + \frac{m_d}{m_c} \right)^{-0.5} \quad (3.53)$$

$$Sh_d = 7.5 \cdot 10^{-5} \text{ Re}^{2.0} Sc_d^{0.56} \left(1 + \frac{m_d}{m_c} \right)^{-0.5} \quad (3.54)$$

Treybal propose pour des gouttes à circulation interne l'utilisation de la relation suivante:

$$Sh_d = 31.4 \text{ Fo}^{-0.34} \left(\frac{m_d}{r_d D_d} \right)^{-0.125} \text{ We}^{0.37} \quad (3.55)$$

Où Fo est le nombre adimensionnel représentant le temps: $Fo = \left(\frac{4 D_d t}{d^2} \right)$

3.9.3 Corrélations pour des gouttes oscillantes

Pour des gouttes oscillantes, lorsque la viscosité et la tension interfaciale sont faibles Skelland et Conger proposent de travailler avec:[18]

$$Sh_d = 0.142 \text{ Fo}^{-0.141} \text{ We}^{0.769} \text{ Mo}^{-0.285} \quad (3.56)$$

Clift et al notent que les modèles pour phase continue, peuvent être adaptés à la phase dispersée, et que des résultats satisfaisants ont été obtenus en appliquant l'équation suivante [1]:

$$Sh_d = \frac{1.4}{\sqrt{D_d}} \left[\frac{48 d g}{p^2 (2 r_c + 3 r_d)} \right]^{1/4} \quad (3.57)$$

3.9.4. Stagnant cap model

Etant donné que les contaminants sont toujours présents dans les systèmes techniques, Slater [2] a développé un nouveau modèle qui prend en considération la contamination par les surfactants. Dans ce modèle on suppose que la matière adsorbée s'accumule à l'arrière de la

goutte formant une partie stagnante (stagnant cap), réduisant ainsi le volume concerné par la circulation (Figure 3.1)

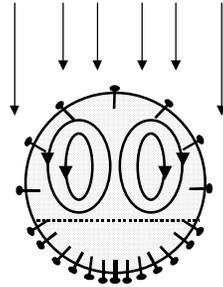


Figure 3.7. Stagnant cap model

La présence de surfactants, peut donc réduire le mouvement interne de la goutte et par conséquent, le transfert de masse devient dans ce cas contrôlé essentiellement par diffusion moléculaire. D'autre part certains travaux expérimentaux, ont prouvé que lorsqu'on remplace la diffusion moléculaire par une « eddy diffusivity » dans le modèle de Newman, les valeurs de k_d deviennent proches de celles calculées par le modèle de Handlos-Baron. Cette diffusion turbulente est exprimée selon Handlos-Baron par:

$$D_{eddy} = \frac{d V_t}{2048 \left(1 + \frac{m_d}{m_c} \right)} \quad (3.58)$$

Cette similitude entre les modèles implique qu'une diffusion effective - qui prend en considération le mouvement interne dans la région de circulation exprimée par l'eddy diffusivité et l'effet de la contamination, qui implique un contrôle par diffusion moléculaire dans la région stagnante - peut être utilisée dans l'équation de Newman pour donner de meilleurs résultats [2] :

$$D_{OE} = f_v D + (1 - f_v) (D_{eddy} + D) \quad (3.59)$$

Le facteur f_v est la fraction de volume de goutte qu'on peut considérer comme étant stagnant, il est fonction de la taille de goutte et du degré de contamination qu'on ne peut quantifier qu'expérimentalement.

Beaucoup de travaux ont été réalisés pour l'estimation des coefficients expérimentaux nécessaires à l'application de ce modèle, tel que f_v et d'autres facteurs impliquant son estimation. Savic [30] a développé une expression de la fraction du volume stagnant à partir de résultats numériques pour des conditions de faibles Re :

$$f = 1 - \exp\left[(-0.098 E_{\sigma} K)^{-2.21}\right] \quad (3.60)$$

Où K représente la différence de tension interfaciale due au gradient à l'interface.

Il a trouvé que pour des systèmes de faible tension interfaciale les gouttes sont petites et presque rigides, avec f_v proche de 1, et pour des systèmes à tension interfaciale élevée les gouttes sont larges et généralement la circulation est importante d'où l'influence de K devient négligeable.

3.10. Cas des colonnes d'extraction liquide-liquide

Les coefficients de transfert de matière dans les colonnes d'extraction, sont généralement obtenus à partir des mesures expérimentales effectuées sur les profils de concentration, et différentes corrélations sont alors obtenues pour chaque type de colonne et souvent pour des systèmes bien définis. Les corrélations citées ci-dessus, peuvent également être utilisées en remplaçant la vitesse terminale et le diamètre de la goutte par la vitesse de glissement et le diamètre moyen des gouttes respectivement [1].

3.10.1. Colonnes à pulvérisation

Sur la base de données sur des systèmes à basse tension interfaciale, obtenus par Ruby et Elgin, Treybal [5] a suggéré la corrélation suivante pour des gouttes à circulation interne :

$$Sh_c = 0.725 Re^{0.57} Sc_c^{0.42} (1-f) \quad (3.61)$$

Steiner a obtenu une corrélation pour le coefficient de transfert côté goutte en utilisant l'équation de Kronig-Brink en remplaçant la diffusion moléculaire par la diffusivité turbulente: $D_{eddy} = R D$ et il a proposé :

$$R = 5.56 \times 10^{-5} \left(\frac{2 Re}{1+k} \right)^{1.42} \left(\frac{g \Delta r d_{32}^2}{g} \right)^{0.12} Sc_d^{0.67} (1-f) \quad (3.62)$$

3.10.2. Colonnes garnies

En phase continue, Seibert et Fair [29] proposent une équation similaire à celle pour colonnes à pulvérisation :

$$Sh_c = 0.698 Re^{0.5} Sc_c^{0.4} (1-f) \quad (3.63)$$

Et en phase dispersée, ils ont proposé deux équations en fonction de la valeur de la constante A calculée par :

$$A = \frac{\sqrt{Sc_d}}{1 + \frac{m_d}{m_c}} \quad (3.64)$$

Pour $A > 6 : k_d = 0.023 \frac{V_{glis}}{\sqrt{Sc_d}}$ (3.65)

$$A < 6 : k_d = 0.00375 \frac{V_{glis}}{1 + \frac{m_d}{m_c}} \quad (3.66)$$

Cette dernière équation correspond à la relation de Handlos-Baron pour un long temps de contact adaptée au cas de colonne d'extraction.

Shulman et al ont proposé une corrélation pour les coefficients de transfert dans chacune des phases, en phase liquide côté continue: [24]

$$Sh_c = 25.1 Re^{0.45} Sc^{1/2} \quad (3.67)$$

Avec

$$Re = \frac{V d_p}{\nu} \quad (3.68)$$

Où V est le débit liquide rapporté à l'unité de section de colonne vide, d_p est le diamètre équivalent d'un élément de garnissage (diamètre de la sphère ayant même surface qu'un élément) et ν est la viscosité cinématique du liquide. Dans cette dernière corrélation, le nombre de Sherwood est proportionnel à la racine carrée du nombre de Schmidt, en accord avec le modèle proposé par Danckwerts.

En phase dispersée, de même que pour les colonnes à pulvérisation, ils ont obtenu une corrélation du facteur R qui sera utilisé dans l'équation de Kronig-Brink pour le cas de garnissage ordonné :

$$R = 1 + 0.177 Re^{0.43} Sc_d^{0.23} \left(\frac{1}{1+k} \right)^{0.89} \quad (3.69)$$

4.10.3. Colonne RDC

Zhang et al, proposent une équation empirique pour l'estimation du coefficient de transfert global, K_{od} en fonction du coefficient de transfert global pour goutte rigide, $K_{od,rigide}$ comme suit :

$$\frac{K_{od}}{K_{od,rigide}} = 0.941 + 0.231(Pe_d \times 10^{-4}) + 0.0132(Pe_d \times 10^{-4})^2 \quad (3.70)$$

Dans laquelle $K_{od,rigide}$ est calculé en fonction de k_c et k_d donnés par les équations de Clift et Kronig-Brink respectivement. Selon ses auteurs cette équation est valable pour les deux directions de transfert de matière.

3.11. Proposition de modèles uniformes pour chaque phase

En passant en revue toutes les corrélations et modèles proposées par différents auteurs, pour l'estimation du coefficient de transfert de matière en phase continue et aussi en phase dispersée, on note, en plus des problèmes résumés dans le chapitre 1, la grande diversité des formes utilisées dans les différentes formules proposées, et ce surtout pour le cas de la phase dispersée, ceci constitue un problème de plus dans le choix et la précision de la corrélation adéquate.

En effet, en phase continue, une corrélation uniforme existe, et a déjà été très utilisée dans la littérature, donnant le nombre de Sherwood par l'équation (3.37) et qu'on peut aussi exprimer en terme de Peclet comme suit:

$$Sh_c = C_1 Re^{n_1} Pe_c^{n_2} \quad (3.80)$$

Et si le problème d'uniformité, ne se pose pas pour la phase continue, le nombre de corrélations proposées, pour chaque intervalle de validité différent, en est un. On propose dans ce présent travail, de couvrir un large intervalle de conditions d'utilisation avec une équation uniforme (3.80), et ceci par optimisation des résultats donnés par les différentes corrélations, afin de trouver les coefficients de la formule : $C_1, n_1, et n_2$.

Pour la phase dispersée, le problème est plus complexe, les différentes corrélations et modèles proposés, sont à chaque fois recommandés pour un type de mécanisme de transfert précis, selon la nature de la goutte: rigide, à circulation interne ou oscillante, ne donnant souvent pas d'indication sur les intervalles de validité. Etant donné que le début de la circulation interne et sa nature, ne soient encore pas déterminés avec précision, le choix du modèle à utiliser pour un système donné reste difficile. L'idée de base développée dans ce présent travail, est d'uniformiser l'équation à utiliser. On propose donc de trouver une formule du Sherwood coté phase dispersée, qui regroupe tous les nombres adimensionnels qui apparaissent séparément dans les corrélations proposées. Le modèle proposé en phase dispersée sera donc comme suit:

$$Sh_d = A Re^B Fo^C Mo^D Sc_d^E We^F (1 + \mu_d / \mu_c)^G \quad (3.81)$$

Dans les corrélations et modèles cités ci-dessus, ces nombres adimensionnels n'apparaissent pas ensemble dans une même formule, or chacun a prouvé son influence sur le transfert massique dans l'une ou l'autre.

Le caractère transitoire du transfert dans cette phase a déjà été démontré, et le nombre de Fourier représentant le facteur temps, doit donc apparaître dans la formule. Dans le chapitre 2, nous avons présenté des travaux sur l'influence du rapport de viscosité sur le transfert de matière, ce qui justifie l'utilisation de ce facteur dans le modèle. Les autres nombres adimensionnels représentent la forme de la goutte, l'hydrodynamique ainsi que les propriétés physiques du système et influencent directement le taux de transfert.

De même que pour la phase continue, nous allons utiliser les résultats donnés par les différents modèles existants et obtenir par optimisation numérique les coefficients de la formule (3.81).

Le coefficient global de transfert de matière dans une phase implique le calcul des coefficients individuels dans les deux phases, équations (3.8 et 3.9), et par conséquent, le choix d'un modèle à utiliser pour chaque phase. Une combinaison adéquate de corrélations ou théories pour un cas bien précis devient compliquée si le nombre de celles-ci est élevé, le choix sera difficile. La réduction du nombre de modèles proposés par les différents travaux en un nombre restreint d'équations uniformes, facilitera la tâche et réduira le nombre de combinaisons à utiliser.

CHAPITRE 4

METHODES NUMERIQUES

4.1. Introduction

Les méthodes numériques sont un outil indispensable à la résolution d'un problème scientifique, un système physique, chimique, biologique,... peut se concevoir comme étant une relation entre des causes (ou variables d'entrée) et des conséquences (ou variables de sortie). Les méthodes numériques s'intéressent donc à trouver une approximation de :

- Problèmes dont on ne connaît pas l'expression analytique, comme par exemple : l'intégration d'équations différentielles partielles dans un domaine à contour quelconque, ou la recherche de l'optimum d'une fonction dans un domaine donné.
- Problèmes dont la solution analytique est inconnue ou inexploitable, des méthodes numériques peuvent conduire à une approximation de la solution.

4.2. Méthode des éléments finis

La modélisation des phénomènes de transfert dans de nombreuses opérations de génie chimique, conduit à la résolution de systèmes d'équations aux dérivés partielles. Compte tenu de la complexité des mécanismes mis en jeu, les équations présentent généralement un caractère non linéaire, et il est rare que l'on puisse déterminer une solution analytique, on a donc recours à des méthodes numériques fondées sur des approximations visant à transformer le système différentiel en un système algébrique.

La technique des éléments finis, est une méthode numérique qui peut être utilisée pour obtenir une solution assez précise de certains problèmes complexes des sciences et de l'ingénierie. Initialement la méthode a été développée en 1956 par Turner, Clough, Martin et Topp pour des problèmes du domaine de l'aviation [31].

Au fil des années, cette méthode a montré depuis, des capacités à résoudre différents types de problèmes de science appliquée ou d'engineering. Elle est aujourd'hui considérée comme l'un des meilleurs outils de résolution d'un grand nombre de problèmes pratiques.

L'idée de base de cette méthode, est de trouver la solution d'un problème complexe en le remplaçant par un autre plus simple, où le domaine de la solution est discrétisé par plusieurs sous domaines appelés éléments finis. Ceci permettra de trouver une solution approximative, proche de la solution exacte.

Bien que la méthode ait été utilisée surtout dans le domaine de la mécanique structurelle, elle a été aussi appliquée avec succès pour résoudre d'autres types de problèmes d'engineering tels que la conduction de chaleur, la dynamique des fluides, les problèmes électriques et magnétiques. Généralement dans le cas où cette méthode peut être adaptée, certaines étapes bien définies peuvent être suivies et qui sont:

- Discrétisation du domaine du problème;

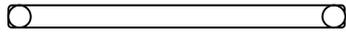
- Sélection d'un modèle d'interpolation pour représenter la variable champs dans chaque élément;
- Dérivation des matrices et vecteurs caractéristiques de l'élément;
- Assemblage des matrices et vecteurs caractéristiques pour obtenir les équations globales;
- Résolution du système d'équations obtenu.

4.2.1. Discrétisation du domaine

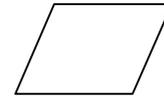
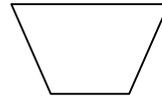
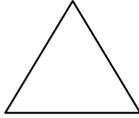
Cette étape consiste en la division du domaine du problème, en plusieurs sous domaines, et l'obtention donc d'un maillage d'éléments finis de taille et forme judicieusement choisies, où la variable champ sera représentée par des équations beaucoup plus simples que le problème initial. La précision de la solution va dépendre du nombre d'éléments utilisé, plus le maillage est raffiné plus la précision augmente.

a. Formes des éléments

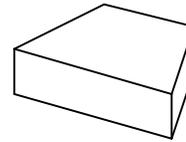
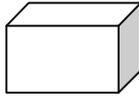
Généralement la forme de l'élément à utiliser est dictée par la géométrie du domaine, et le type de problème à traiter: uni-bi ou tridimensionnel. Parmi ceux les plus communément utilisées, certaines sont montrées sur la figure 4.1. Dans l'analyse bidimensionnelle, le triangle est l'élément de base le plus adopté. Certains problèmes ne peuvent pas être représentés par l'assemblage d'un seul type d'éléments, dans ce cas on peut utiliser deux ou plusieurs types d'éléments pour discrétiser le domaine.



a) Eléments unidimensionnels



b) Eléments bidimensionnels



c) Eléments tridimensionnels

Figure 4.1. Formes d'éléments utilisés en discrétisation du domaine.

b. Taille des éléments

La taille des éléments a une influence directe sur la convergence de la méthode, et doit donc être choisie avec soin. Plus les éléments sont petits et plus la solution est précise. Dans certains cas la nature du problème nécessite l'utilisation d'éléments de différentes tailles, où le maillage devient raffiné lorsque les variations des fonctions sont assez rapides. Le rapport d'aspect est un autre facteur qui influence la solution, il représente le rapport de la plus grande dimension de l'élément sur la plus petite. Les éléments avec un rapport d'aspect proche de l'unité donnent souvent de meilleurs résultats. D'après certains auteurs [32], ce rapport dépend du champ à étudier, on donne comme exemple : pour analyse de contraintes, le rapport est inférieur ou égal à 3 et pour analyse de déplacement, il est de 10.

c. Nombre des éléments

Le nombre des éléments à utiliser pour discrétiser le domaine du problème dépend de la précision requise. La précision est d'autant plus meilleure que le nombre d'éléments

augmente, dans certains cas, il existe un certain nombre limite au dessus duquel la précision reste constante.

4.2.2. Modèles d'interpolation

L'idée de base de la méthode est de représenter la solution exacte par une approximation en fonctions simples dans chaque élément. Il est donc nécessaire de bien choisir ces fonctions d'interpolation ou d'approximation, les fonctions polynomiales sont les modèles les plus utilisés pour les deux raisons suivantes:

- Facilité de formulation et de programmation des équations de l'élément finis (intégration et dérivation)
- Possibilité d'améliorer la précision du résultat en augmentant l'ordre du polynôme.

a. Cas unidimensionnel

La forme générale d'un polynôme d'approximation d'ordre n, pour une seule variable indépendante x est:

$$P_n(x) = \sum_{i=0}^{T_n^{(1)}} a_i x^i \quad (4.1)$$

Où le nombre de termes dans le polynôme est: $T_n^{(1)} = n + 1$

$$\text{Pour } n = 1: P_1(x) = \alpha_0 + \alpha_1 x$$

$$\text{Pour } n = 2: P_2(x) = \alpha_0 + \alpha_1 x + \alpha_2 x^2$$

Avec $\alpha_0, \alpha_1, \dots$ des constantes.

b. Cas bidimensionnel

Dans ce cas on a deux variables indépendantes x et y et la forme générale du polynôme est:

$$P_n(x, y) = \sum_{k=1}^{T_n^{(2)}} a_k x^i y^j, \quad i+j \leq n \quad (4.2)$$

Le nombre de termes dans le polynôme est: $T_n^{(2)} = (n+1)(n+2)/2$

$$\text{Pour } n = 1: P_1(x, y) = \alpha_1 + \alpha_2 x + \alpha_3 y$$

$$\text{Pour } n = 2: P_2(x, y) = \alpha_1 + \alpha_2 x + \alpha_3 y + \alpha_4 xy + \alpha_5 x^2 + \alpha_6 y^2$$

c. Cas tridimensionnel

On a trois variables indépendantes x, y et z, le polynôme sera de la forme générale:

$$P_n(x, y, z) = \sum_{l=1}^{T_n^{(3)}} a_l x^i y^j z^k \quad , \quad i+j+k \leq n \quad (4.3)$$

Le nombre de termes dans le polynôme est: $T_n^{(3)} = \frac{(n+1)(n+2)(n+3)}{6}$

Pour $n = 1$: $P_1(x, y, z) = \alpha_1 + \alpha_2 x + \alpha_3 y + \alpha_4 z$

Pour $n = 2$: $P_2(x, y, z) = \alpha_1 + \alpha_2 x + \alpha_3 y + \alpha_4 z + \alpha_5 x y + \alpha_6 x z + \alpha_7 y z + \alpha_8 x^2 + \alpha_9 y^2 + \alpha_{10} z^2$

4.2.3. Polynôme d'interpolation linéaire en fonction des coordonnées globales

a. Élément unidimensionnel

On considère un élément unidimensionnel de longueur l , avec deux nœuds i et j , on note les variables champs aux nœuds par φ_i et φ_j comme montré sur la figure 4.2.

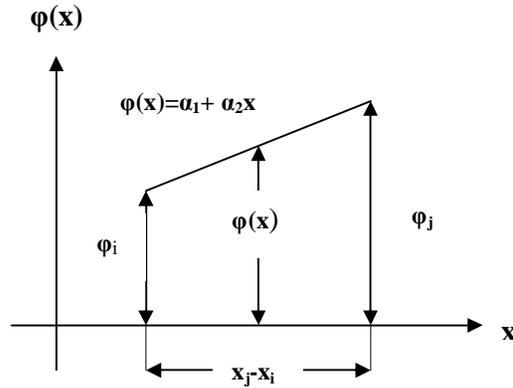


Figure 4.2. Variation de la variable champ dans un élément unidimensionnel

On suppose une variation linéaire de la variable φ à l'intérieur de l'élément e , d'où:

$$\varphi(x) = \alpha_1 + \alpha_2 x \quad (4.4)$$

Avec α_1 et α_2 des coefficients définis à partir des conditions aux nœuds:

$$\text{À } x = x_i, \varphi(x) = \varphi_i \quad \text{et} \quad \text{à } x = x_j, \varphi(x) = \varphi_j$$

$$\text{On obtient donc: } \alpha_1 = \frac{j_i x_j - j_j x_i}{l} \quad \text{et} \quad \alpha_2 = \frac{j_j - j_i}{l} \quad (4.5)$$

Avec l : la longueur de l'élément e

En substituant les équations (4.5) dans (4.4) on obtient:

$$j(x) = \left(\frac{j_i x_j - j_j x_i}{l} \right) + \left(\frac{j_j - j_i}{l} \right) x \quad (4.6)$$

Cette équation peut être écrite sous la forme matricielle suivante:

$$j(x) = N_i(x) j_i + N_j(x) j_j = N(x) j^{(e)} \quad (4.7)$$

Où: $N(x) = \begin{bmatrix} N_i(x) \\ N_j(x) \end{bmatrix}$ et $\mathbf{j}^{(e)} = \begin{bmatrix} j_i \\ j_j \end{bmatrix}$: vecteur des inconnues aux nœuds de l'élément e

$$N_i(x) = \frac{x_j - x}{l} \quad \text{et} \quad N_j(x) = \frac{x - x_i}{l} \quad (4.8)$$

b. Élément bidimensionnel

On choisit comme élément bidimensionnel un triangle isocèle avec trois nœuds: i, j, k auxquels correspondent trois variables φ_i, φ_j et φ_k respectivement, comme montré sur la figure (4.3). La variation linéaire de la variable champ dans l'élément e est:

$$\varphi(x, y) = \alpha_1 + \alpha_2 x + \alpha_3 y \quad (4.9)$$

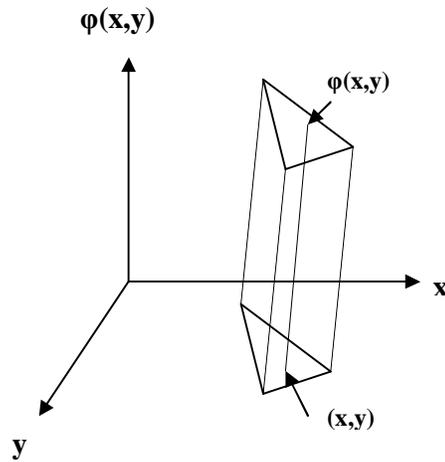


Figure 4.3. Variation de la variable champ dans un élément bidimensionnel

Les conditions aux nœuds sont:

$$\begin{aligned} \text{À } x = x_i \text{ et } y = y_j : \varphi(x,y) &= \varphi_i \\ \text{À } x = x_j \text{ et } y = y_j : \varphi(x,y) &= \varphi_j \\ \text{À } x = x_k \text{ et } y = y_k : \varphi(x,y) &= \varphi_k \end{aligned} \quad (4.10)$$

On obtient:

$$\begin{aligned} a_1 &= (a_j j_i + a_j j_j + a_k j_k) / 2A \\ a_2 &= (b_j j_i + b_j j_j + b_k j_k) / 2A \\ a_3 &= (c_j j_i + c_j j_j + c_k j_k) / 2A \end{aligned} \quad (4.11)$$

Où A est l'aire du triangle $i j k$ donné par:

$$A = \frac{1}{2} \begin{vmatrix} 1 & x_i & y_i \\ 1 & x_j & y_j \\ 1 & x_k & y_k \end{vmatrix} = \frac{1}{2} (x_i y_j + x_j y_k + x_k y_i - x_i y_k - x_j y_i - x_k y_j) \quad (4.12)$$

Avec: $a_i = x_j y_k - x_k y_j$, $a_j = x_k y_i - x_i y_k$, $a_k = x_i y_j - x_j y_i$

$$b_i = y_i - y_k, \quad b_j = y_k - y_i, \quad b_k = y_i - y_j \quad (4.13)$$

$$c_i = x_k - x_j, \quad c_j = x_i - x_k, \quad c_k = x_j - x_i$$

La substitution des équations et le réarrangement nous donne la forme matricielle suivante:

$$\varphi(x,y) = N_i(x,y) \varphi_i + N_j(x,y) \varphi_j + N_k(x,y) \varphi_k = N(x,y) \varphi^{(e)} \quad (4.14)$$

Où: $N(x, y) = \begin{bmatrix} N_i(x, y) \\ N_j(x, y) \\ N_k(x, y) \end{bmatrix}$ et $j^{(e)} = \begin{bmatrix} j_i \\ j_j \\ j_k \end{bmatrix}$: vecteur des inconnues aux nœuds de l'élément e

Avec: $N_i(x,y) = (a_i + b_i x + c_i y) / 2A$

$$N_j(x,y) = (a_j + b_j x + c_j y) / 2A \quad (4.16)$$

$$N_k(x,y) = (a_k + b_k x + c_k y) / 2A$$

4.2.4. Polynôme d'interpolation linéaire en fonction des coordonnées naturelles

Le système de coordonnées naturelles est un système qui relie la géométrie de l'élément à des coordonnées variant entre zéro et l'unité. Une coordonnée d'un tel système a la propriété d'avoir la valeur unitaire à un nœud de l'élément et zéro aux autres. L'avantage de l'utilisation de ce système est de dériver des fonctions d'interpolation dont l'intégration et la différentiation ont des formules spécifiques plus faciles que pour le cas des coordonnées globales. Notons que les coordonnées naturelles sont en fonction des coordonnées cartésiennes globales qui définissent l'élément.

a. Élément unidimensionnel

Un point P de l'élément e est défini en fonction de deux coordonnées naturelles L_1 et L_2 comme suit:

$$L_1 = \frac{l_1}{l} = \frac{x_2 - x}{x_2 - x_1}, \quad L_2 = \frac{l_2}{l} = \frac{x - x_1}{x_2 - x_1} \quad (4.17)$$

Donc: $L_1 + L_2 = 1$ et $x = x_1 L_1 + x_2 L_2$ (4.18)

On peut écrire:

$$\varphi(x) = \varphi_1 L_1 + \varphi_2 L_2 \quad (4.19)$$

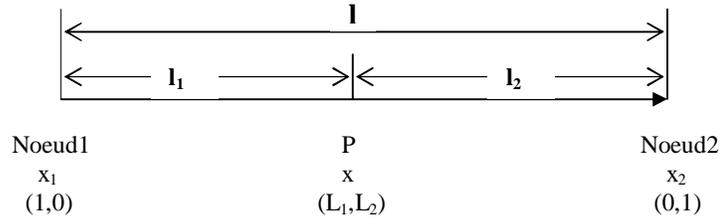


Figure 4.4. Elément unidimensionnel en coordonnées naturelles

Par comparaison avec l'équation (4.8) on a : $L_1 = N_1$ et $L_2 = N_2$

La relation entre coordonnées globales et naturelles est donnée par:

$$\begin{Bmatrix} 1 \\ x \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} 1 & 1 \\ x_1 & x_2 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_1 \\ L_2 \end{Bmatrix} \quad \text{où:} \quad \begin{Bmatrix} L_1 \\ L_2 \end{Bmatrix} = \frac{1}{(x_2 - x_1)} \begin{bmatrix} x_2 & -1 \\ -x_1 & 1 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 \\ x \end{Bmatrix} \quad (4.20)$$

La dérivée de $\varphi(x)$ par rapport à x est:

$$\frac{dj}{dx} = \frac{\partial j}{\partial L_1} \frac{\partial L_1}{\partial x} + \frac{\partial j}{\partial L_2} \frac{\partial L_2}{\partial x} \quad (4.21)$$

$$\text{Où:} \quad \frac{\partial L_1}{\partial x} = -\frac{1}{x_2 - x_1} \quad \text{et} \quad \frac{\partial L_2}{\partial x} = \frac{1}{x_2 - x_1} \quad (4.22)$$

L'intégration des termes du polynôme en coordonnées naturelles se calcule par la formule suivante [33]:

$$\int_{x_1}^{x_2} L_1^a L_2^b dx = \frac{a! b! l}{(a + b + 1)} \quad (4.23)$$

b. Elément bidimensionnel

Le point P de l'élément bidimensionnel est défini en fonction de trois coordonnées naturelles L_1 , L_2 et L_3 comme suit:

$$L_1 = A_1/A \quad , \quad L_2 = A_2/A \quad , \quad L_3 = A_3/A \quad (4.24)$$

Où: A_1 est l'aire du triangle P23, A_2 l'aire du triangle P13 et A_3 celle du triangle P12 (figure 4.5) et donc : $A_1 + A_2 + A_3 = 1$ (4.25)

La relation entre coordonnées naturelles et cartésiennes est donnée par:

$$\begin{aligned} x &= x_1 L_1 + x_2 L_2 + x_3 L_3 \\ y &= y_1 L_1 + y_2 L_2 + y_3 L_3 \end{aligned} \quad (4.26)$$

$$\begin{cases} 1 \\ x \\ y \end{cases} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ x_1 & x_2 & x_3 \\ y_1 & y_2 & y_3 \end{bmatrix} \begin{cases} L_1 \\ L_2 \\ L_3 \end{cases}$$

Où:
$$\begin{cases} L_1 \\ L_2 \\ L_3 \end{cases} = \frac{1}{2A} \begin{bmatrix} (x_2 y_3 - x_3 y_2) & (y_2 - y_1) & (x_3 - x_2) \\ (x_3 y_1 - x_1 y_3) & (y_3 - y_1) & (x_1 - x_3) \\ (x_1 y_2 - x_2 y_1) & (y_1 - y_2) & (x_2 - x_1) \end{bmatrix} \begin{cases} 1 \\ x \\ y \end{cases} \quad (4.27)$$

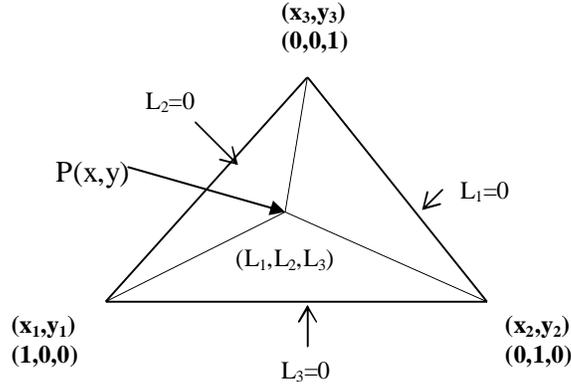


Figure 4.5. L'élément bidimensionnel en coordonnées naturelles

A est l'aire du triangle 123 donnée par :

$$A = \frac{1}{2} \begin{vmatrix} 1 & x_1 & y_1 \\ 1 & x_2 & y_2 \\ 1 & x_3 & y_3 \end{vmatrix} \quad (4.18)$$

$$j(x) = j_1 L_1 + j_2 L_2 + j_3 L_3 \quad (4.19)$$

La dérivation de $\varphi(x)$ est :

$$\frac{dj}{dx} = \frac{\partial j}{\partial L_1} \frac{\partial L_1}{\partial x} + \frac{\partial j}{\partial L_2} \frac{\partial L_2}{\partial x} + \frac{\partial j}{\partial L_3} \frac{\partial L_3}{\partial x} \quad (4.20)$$

$$\frac{dj}{dy} = \frac{\partial j}{\partial L_1} \frac{\partial L_1}{\partial y} + \frac{\partial j}{\partial L_2} \frac{\partial L_2}{\partial y} + \frac{\partial j}{\partial L_3} \frac{\partial L_3}{\partial y} \quad (4.21)$$

Où :

$$\begin{aligned} \frac{\partial L_1}{\partial x} &= \frac{y_2 - y_3}{2A} & , & & \frac{\partial L_1}{\partial y} &= \frac{x_3 - x_2}{2A} \\ \frac{\partial L_2}{\partial x} &= \frac{y_3 - y_1}{2A} & , & & \frac{\partial L_2}{\partial y} &= \frac{x_1 - x_3}{2A} \end{aligned} \quad (4.22)$$

$$\frac{\partial L_3}{\partial x} = \frac{y_1 - y_2}{2A} \quad , \quad \frac{\partial L_3}{\partial y} = \frac{x_2 - x_1}{2A}$$

L'intégration des termes du polynôme en coordonnées naturelles se calcule par la formule suivante [33] :

$$\int_{x_1}^{x_2} L_1^a L_2^b L_3^g dA = \frac{a! b! g!}{(a + b + g + 2)} 2A \quad (4.23)$$

4.2.5. Fonction d'interpolation unidimensionnelle de Lagrange

La construction des fonctions d'interpolation aux nœuds suivant la procédure décrite dans le paragraphe 4.3.4 est compliquée, l'obtention directe de ces fonctions peut se faire d'une manière plus simple en utilisant les coordonnées naturelles ou les polynômes d'interpolation classiques dont le polynôme de Lagrange défini par :

$$L_k(x) = \prod_{\substack{m=0 \\ m \neq k}}^n \frac{x - x_m}{x_k - x_m} = \frac{(x - x_0) \dots (x - x_{k-1})(x - x_{k+1}) \dots (x - x_n)}{(x_k - x_0) \dots (x_k - x_{k-1})(x_k - x_{k+1}) \dots (x_k - x_n)} \quad (4.24)$$

$$j(x) = \sum_{i=0}^n j_i L_i(x) = [L] \{j\} \quad (4.25)$$

$$\text{Où : } L_i(x) = N_i(x) \quad (4.26)$$

4.2.6. Formulation des matrices et vecteurs caractéristiques de l'élément

La méthode des résidus pondérés est une technique très utilisée pour obtenir une solution approximative des équations différentielles linéaires ou non linéaires. Les équations des éléments finis peuvent être dérivées directement à partir des équations différentielles régissant le système. Soit un problème donné, défini par l'équation différentielle :

$$F(\varphi) = G(\varphi) \quad (4.27)$$

Où F et G des fonctions de la variable champ.

La première étape de la méthode est d'approximer le comportement général de la variable champ, d'une façon à satisfaire l'équation différentielle donnée ainsi que les conditions aux limites, φ est alors approchée par la formule suivante :

$$\tilde{f}(x) = \sum_{i=1}^n C_i f_i(x) \quad (4.28)$$

Où les C_i sont des constantes et les $f_i(x)$ des fonctions linéairement indépendantes choisies de manière à satisfaire les conditions aux limites.

Cette approximation mène à une certaine erreur par rapport à la solution exacte dite résidu exprimé comme suit :

$$R = G(\tilde{f}) - F(\tilde{f}) \quad (4.29)$$

La seconde étape est de minimiser la fonction pondérée du résidu : $\omega f(R)$, où ω est la fonction de poids tel que :

$$\int_V \omega f(R) dV = 0 \quad (4.30)$$

4.2.7. Méthode de Galerkin

Dans l'approche des résidus pondérés, différentes procédures sont utilisées afin de dériver les équations de l'élément, dont la méthode de Galerkin. Afin de minimiser les difficultés de convergence et de stabilité dans le système, cette méthode suppose que les poids ω_i , sont les fonctions de forme $N_i(x)$ définies précédemment :

$$\int_V N_i R dV = 0 \quad i = 1, 2, \dots, n \quad (4.31)$$

Avec n : le nombre des inconnues.

Après intégration on écrit l'équation caractéristique de l'élément e sous la forme :

$$[K^{(e)}] \mathcal{J}^{(e)} = \bar{P}^{(e)} \quad (4.32)$$

Où $K^{(e)}$ est la matrice caractéristique de l'élément e , $P^{(e)}$ est le vecteur caractéristique et φ est le vecteur des inconnues aux nœuds.

4.2.8. Assemblage des équations de l'élément

Une fois les matrices et vecteurs de l'élément obtenus, l'étape suivante est d'établir les équations globales définissant le système :

$$[K] = \sum_{e=1}^E [K^{(e)}] \quad et \quad \bar{P} = \sum_{e=1}^E \bar{P}^{(e)} \quad (4.33)$$

E est le nombre total des éléments dans le domaine du système.

Si M est le nombre total des nœuds dans le domaine du problème et n le nombre de nœuds dans un élément, l'assemblage consiste à étendre les matrices et vecteurs caractéristiques d'un élément de l'ordre $n \times n$ et $n \times 1$, respectivement aux ordres $M \times M$ et $M \times 1$ en incluant des termes nuls et en sommant les termes correspondants aux nœuds de connexion des éléments qui se joignent au même nœud.

4.2.9. Incorporation des conditions aux limites

Après assemblage, on ne peut résoudre l'équation (4.32) qu'après incorporation des conditions aux limites selon les étapes suivantes :

- Si j_j^* est la condition spécifiée, le vecteur caractéristique \bar{P} est modifié tel que :

$$P_i = P_i - K_{ij} j_j^* \quad \text{pour: } i = 1, 2, \dots, M \quad (4.34)$$

- Les termes de la colonne et la ligne correspondant à j_j^* sont nuls sauf les termes de la diagonale qui auront la valeur unité :

$$K_{ij} = K_{ji} = 0 \quad \text{pour } i = 1, 2, \dots, M \quad \text{et } K_{jj} = 1 \quad (4.35)$$

- La valeur de la condition limite est insérée dans le vecteur caractéristique tel que :

$$P_j = j_j^* \quad (4.36)$$

Cette procédure se répète autant de fois que les conditions sont spécifiées. Dans le cas où les conditions spécifiées sont sous forme de gradients ou autre, ils sont inclus directement dans les matrices et vecteurs caractéristiques par les termes représentant les contours les concernant et qui apparaissent en appliquant le théorème de Green-Gauss donné en annexe 2.

4.2.10. Solution du système d'équations des éléments finis

Une fois la forme des équations de la matrice et le vecteur obtenus, on résout le système d'équations (4.32) par une méthode numérique. L'une des méthodes directes utilisée pour les éléments finis est la méthode d'élimination de Gauss, dont l'objectif est de transformer le système donné en un système équivalent triangulaire à partir duquel la solution est facilement obtenue. Soit le système d'équations suivant :

$$[A] X = B \quad (4.37)$$

La triangularisation du système s'obtient comme suit :

$$\begin{aligned} a_{ij}^{(k)} &= a_{ij}^{(k-1)} - \left(a_{ik}^{(k-1)} \cdot a_{kj}^{(k-1)} / a_{kk}^{(k-1)} \right) \\ b_i^{(k)} &= b_i^{(k-1)} - \left(a_{ik}^{(k-1)} \cdot b_k^{(k-1)} / a_{kk}^{(k-1)} \right) \end{aligned} \quad (4.38)$$

En utilisant la procédure précédente n fois, on peut avoir :

$$x_n = b_n^{(n-1)} / a_{nn}^{(n-1)} \quad (4.39)$$

Les a_{ij} sont les éléments de la matrice A , les b_i ceux du vecteur B et les x_i ceux du vecteur des inconnues X , l'exposant k fait référence à l'étape de l'itération.

Les autres valeurs peuvent être obtenues par régression :

$$x_k = \frac{b_k^{(k-1)}}{a_{kk}^{(k-1)}} - \sum \frac{a_{kj}^{(k-1)}}{a_{kk}^{(k-1)}} x_j \quad (4.40)$$

4.2.11. Traitement du problème transitoire

La forme matricielle d'un problème transitoire s'écrit :

$$[K]\bar{J} + [C]\bar{J}^* = \bar{R}(t) \quad (4.41)$$

La technique la plus utilisée dans l'analyse par éléments finis de ce type de problème est l'approximation par différences finies. La procédure consiste à dériver des formules de récurrence qui relient les valeurs de φ à un temps t aux valeurs de φ au temps $t + \Delta t$, où Δt est le pas par rapport au temps. On définit un temps t_{n+1} comme suit :

$$t_{n+1} = t_n + \Delta t \quad (4.42)$$

On introduit un paramètre θ tel que :

$$t_{n+1} = t_n + \theta \Delta t \quad \text{où : } 0 \leq \theta \leq 1 \quad (4.43)$$

L'équation (4.41) s'écrit alors : $[K]\bar{J}_q + [C]\bar{J}_q^* = \bar{R}(t_q) \quad (4.44)$

On introduit les approximations suivantes :

$$\bar{J}_q^* = \frac{\bar{J}_{n+1} - \bar{J}_n}{\Delta t} \quad \text{et} \quad \bar{J}_q = (1-q)\bar{J}_n + q\bar{J}_{n+1} \quad (4.45)$$

$$\bar{R}(t_q) = (1-q)\bar{R}_n + q\bar{R}_{n+1} \quad (4.46)$$

En remplaçant les équations précédentes dans l'équation (4.44) on obtient :

$$\left[q[K] + \frac{1}{\Delta t}[C] \right] \bar{J}_{n+1} = \left[-(1-q)[K] + \frac{1}{\Delta t}[C] \right] \bar{J}_n + (1-q)\bar{R}_n + q\bar{R}_{n+1} \quad (4.47)$$

- Si $\theta = 0$: l'algorithme est dit d'Euler
- Si $\theta = 1/2$: l'algorithme est de Crank-Nicholson
- Si $\theta = 2/3$: l'algorithme est de Galerkin
- Si $\theta = 1$: l'algorithme de différences en arrière (backward)

4.2.12. Oscillation et stabilité de la réponse transitoire

L'approximation par différences finies induit des erreurs numériques dans l'estimation de la réponse transitoire, la solution sera d'autant plus exacte que Δt tend vers zéro, par contre pour des pas élevés, la réponse transitoire simulera un comportement irréaliste avec des oscillations ou des valeurs n'ayant pas de sens physique. Comprendre la tendance d'oscillation et l'instabilité de la réponse transitoire est d'une grande importance pratique.

En admettant une erreur d'estimation nulle, on peut écrire la relation (4.44) comme suit, pour les éléments diagonaux:

$$K_{ii}\bar{J}_i + C_{ii}\bar{J}_i^* = 0 \quad (4.48)$$

On définit la valeur propre : $\lambda_i = K_{ii}/C_{ii} \quad (4.49)$

En utilisant l'équation de récurrence (4.47) on peut écrire:

$$\left[q K_{ii} + \frac{1}{\Delta t} C_{ii} \right] \bar{J}_i^{n+1} = \left[-(1-q)K_{ii} + \frac{1}{\Delta t} C_{ii} \right] \bar{J}_i^n \quad (4.50)$$

Puisque les coefficients sont scalaires, on peut écrire la formule de récurrence suivante en utilisant la définition de λ_i :

$$\bar{J}_i^{n+1} = r_i \bar{J}_i^n \quad \text{avec: } r_i = \frac{1 - (1-q) I_i \Delta t}{1 + q I_i \Delta t} \quad (4.51)$$

Pour des systèmes réels, la réponse transitoire se dégrade en fonction du temps, ce qui limite l'intervalle de r_i et les valeurs admises de Δt , en effet si: $|r_i| > 1$, la réponse croît avec le temps et devient illimitée. Si $-1 < r_i < 0$, la réponse oscille entre valeurs négatives et positives et ce caractère oscillatoire ne représente pas le comportement réel du système. La condition à vérifier pour une réponse stable est: $|r_i| < 1$ et si cette contrainte est imposée à l'équation (4.51), on obtient ce qui suit:

$$I_i \Delta t (2q - 1) > -2 \quad (4.52)$$

Cette condition est toujours satisfaite si $q \geq \frac{1}{2}$ et les algorithmes correspondants sont inconditionnellement stables. Pour $q < \frac{1}{2}$ les algorithmes correspondants doivent satisfaire une limite maximale pour le pas du temps, imposée par le critère de stabilité de l'équation (4.52) et qui est donnée par [33]:

$$\Delta t_{crit} = \frac{2}{(1 - 2q) I_i} \quad (0 \leq q < \frac{1}{2}) \quad (4.53)$$

Un programme mathcad a été développé pour résoudre l'équation différentielle partielle qui modélise la colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage par la méthode des éléments finis et dont l'organigramme est présenté dans l'annexe 3.

4.3. Méthodes d'approximation numérique

Lorsque la connaissance fondamentale d'un phénomène donné est possible, le comportement de celui-ci est décrit par un modèle mathématique précis mais le plus souvent et dans différents domaines, le comportement des phénomènes n'est décrit qu'à partir de données ou mesures expérimentales, on peut alors proposer un modèle statistique, dont on cherchera à estimer les paramètres à partir de l'échantillon des mesures, et c'est l'objectif des méthodes numériques d'approximation, dans ce présent travail nous avons utilisé deux d'entre elles : la méthode des moindres carrées et celle de simplexe.

4.3.1. Méthode des moindres carrées

Quand on approxime une fonction réelle continue $y(x)$ ou un ensemble de données numériques $y(x_i)$, $i=1, n$ par une fonction analytique $y^*(x)$ ou $y^*(x_i)$, l'objectif de l'approximation est de minimiser l'écart $(y - y^*)$, cet écart entre la fonction réelle y et son modèle y^* peut être mesurée par la norme des moindres carrés pondérés de Legendre donnée par :

$$\|y - y^*\| = \sum_{i=1}^n (y_i - y_i^*)^2 w_i \quad \text{où : } w_i \geq 0, i = 1, n \quad (4.54)$$

a. Modèle linéaire

On propose le modèle linéaire en terme de coefficients inconnus C_j , $j=1, m$

$$y_i^* = C_1 f_1(x_i) + C_2 f_2(x_i) + \dots + C_m f_m(x_i) \quad i = 1, n \quad (4.55)$$

L'erreur commise au point I, en approximant la valeur mesurée y_i par y_i^* , s'écrit [34]:

$$e_i = y_i - y_i^*$$

Combinant les relations (4.54) et (4.55), on a :

$$e_i = y_i - \sum_{j=1}^m C_j f_j(x_i) \quad (4.56)$$

Ce système de n équations à $(m+n)$ inconnues (C_j , $j=1, m$; e_i , $i=1, n$) admet une infinité de solutions. Parmi toutes les solutions possibles, on définit la meilleure comme celle qui rend minimale la quantité scalaire :

$$z = \sum_{i=1}^n e_i^2 w_i \quad (4.57)$$

On cherche à minimiser z en réglant la valeur des paramètres $[C_1, C_2, \dots, C_m]$. Autrement dit on cherche à définir le minimum de la fonction z dans l'espace $[C_1, C_2, \dots, C_m]$ des paramètres, pour ceci une condition est nécessaire pour atteindre ce minimum :

$$\frac{\partial z}{\partial C_k} = 0 \quad k = 1, m \quad (4.58)$$

Après transformations mathématiques on obtient :

$$\sum_{j=1}^m C_j \sum_{i=1}^n w_i f_j(x_i) f_k(x_i) = \sum_{i=1}^n w_i y_i f_k(x_i) \quad k = 1, m \quad (4.59)$$

$$\text{Définissant : } b_k = \sum_{i=1}^n w_i y_i f_k(x_i) \quad \text{et} \quad a_{kj} = \sum_{i=1}^n w_i f_j(x_i) f_k(x_i) \quad (4.60)$$

Le système (4.52) peut alors s'écrire :

$$\sum_{j=1}^m a_{kj} C_j = b_k \quad k=1, m \quad (4.61)$$

L'approximation au sens des moindres carrées, d'un ensemble de n valeurs numériques y_i par un modèle linéaire (4.59) se réduit à la résolution d'un système linéaire d'ordre m (4.61) et l'obtention donc des m inconnues : $[C_1, C_2, \dots, C_m]$.

4.3.2. Méthode de simplexe

Par définition, un simplexe est une figure géométrique formée de $N+1$ points dans un espace à N dimensions. Chaque point est aussi appelé un vertex, et un simplexe est formé de $N+1$ vertex. Par exemple, pour deux facteurs, une séquence de trois essais choisis au hasard forme un simplexe ; d'un point de vue géométrique c'est un triangle (figure 4.6). Le démarrage de cette méthode, consiste à effectuer un premier simplexe, choisi au hasard, qui permet de récolter une première séquence de résultats que l'on trie par ordre croissant. Pour faire progresser la recherche, on part du principe que l'optimum doit se situer à l'opposé du point ayant donné le plus mauvais résultat. Le raisonnement est simple : il est logique de penser qu'en se déplaçant dans la direction opposée au mauvais point, on va améliorer la réponse et finalement atteindre l'optimum. [35]

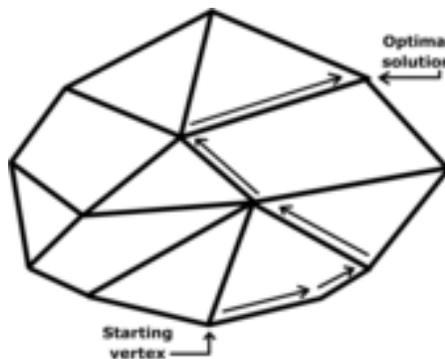


Figure 4.6. Schéma de l'algorithme de simplexe

Dans ce présent travail nous avons utilisé l'algorithme de Nelder-Mead pour une minimisation directe et sans contraintes d'une fonction $f(x)$. Cet algorithme maintient les approximations du simplexe à un point optimal. On suppose que les vertex $\{x_j\}_{j=1}^{N+1}$ sont obtenus suivant les valeurs de la fonction objective :

$$f(x_1) \leq f(x_2) \leq \dots \leq f(x_{N+1}) \quad (4.62)$$

On attribue à x_j le meilleur vertex et x_{N+1} le mauvais point. L'algorithme tend à changer le mauvais point par un meilleur comme suit :

$$x(d) = (1+d)\bar{x} - d x_{N+1} \quad (4.63)$$

Où \bar{x} est le centre de gravité des vertex $\{x_j\}_{j=1}^{N+1}$

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i \quad (5.64)$$

Ce centre permet de calculer le point réfléchi, s'il est mauvais il sera remplacé sinon l'optimum est atteint et le calcul est donc itératif.

CHAPITRE 5

RESULTATS ET DISCUSSIONS

5.1 Introduction

Dans ce chapitre sont présentés les résultats obtenus ainsi que leurs discussions pour les deux cas étudiés : système à goutte unique et colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage. Les systèmes et les résultats expérimentaux des coefficients de transfert de matière utilisés pour valider les modèles élaborés pour système à goutte unique, sont présentés en premier. Ensuite différentes combinaisons des théories et corrélations existantes sont introduites afin de trouver la meilleure pouvant donner des résultats assez proches des valeurs expérimentales. Un grand nombre de corrélations et théories sont disponibles et le nombre de combinaisons pouvant être générées est très important, donc pour le design ou le calcul des équipements de transfert de matière, le problème du choix de la meilleure combinaison se posera souvent avec acuité. Par conséquent, et comme mentionné auparavant, l'initiative a été prise dans cette étude de proposer de nouvelles corrélations par approximations numériques de celles déjà existantes, pour l'estimation du coefficient de transfert de masse, afin de réduire d'une manière réaliste et raisonnable leur nombre. Ces corrélations seront présentées et utilisées pour un système à goutte unique et adaptées ensuite au cas des colonnes d'extraction liquide-liquide à garnissage. Pour ce dernier cas aussi des résultats expérimentaux seront présentés afin de valider l'utilisation des nouvelles corrélations adaptées aux colonnes à garnissage. La comparaison des résultats permettra de recommander une combinaison pour les cas étudiés.

Enfin une combinaison des nouvelles corrélations est utilisée pour calculer le coefficient de transfert global et modéliser la colonne à garnissage par le biais de la méthode des éléments finis. Des profils de concentrations le long de la colonne sont obtenus, en régime

permanent et transitoire, en superposant les phénomènes de dispersion axiale et radiale afin de vérifier leur effet sur l'opération d'extraction.

5.2. Systèmes utilisés pour le cas de goutte unique

Malgré le nombre de travaux sur le transfert de matière sur l'extraction liquide-liquide, il est toujours difficile de trouver des données expérimentales, concernant les coefficients de transfert de matière, que ce soit en fonction de la taille de goutte ou des paramètres hydrodynamiques, et ce, pour des systèmes à propriétés physiques différentes. Le choix des systèmes utilisés a donc été guidé par la disponibilité des données expérimentales. Dans ce travail, un usage a été fait des résultats expérimentaux obtenus au cours d'un stage au laboratoire de génie chimique de l'université de Kaiserslautern en Allemagne, sur des systèmes recommandés par la fédération internationale de génie chimique, à savoir : Acétone/Toluène/Eau recommandé pour sa tension interfaciale élevée ($\gamma=0.0231$ N/m) et Butylacétate/Acétone/Eau à tension interfaciale moyenne ($\gamma=0.012$ N/m) et ceci dans le cas de systèmes à goutte unique. Les propriétés physiques des deux systèmes sont données dans le tableau 5.1

Tableau 5.1. Propriétés physiques des systèmes chimiques considérés

Système chimique	Propriété physique	Phase continue	Phase dispersée
Acétone/Toluène/Eau	Masse volumique ρ (kg/m ³)	998	864
	Viscosité μ (kg/m s)	$1.13 \cdot 10^{-3}$	$5.7 \cdot 10^{-4}$
	Diffusion D (m ² /s)	$1.1 \cdot 10^{-9}$	$2.7 \cdot 10^{-9}$
Butylacétate/Acétone/Eau	Masse volumique ρ (kg/m ³)	997.7	881.3
	Viscosité μ (kg/m s)	$1.04 \cdot 10^{-3}$	$0.73 \cdot 10^{-3}$
	Diffusion D (m ² /s)	$1.18 \cdot 10^{-9}$	$2.21 \cdot 10^{-9}$

5.3. Résultats expérimentaux pour systèmes à goutte unique

Le coefficient de transfert global coté phase dispersée a été mesuré en utilisant la colonne pilote montrée sur la figure 5.1 où, pour le premier système, le toluène est dispersé sous forme de gouttes et l'eau est la phase continue, l'acétone étant le soluté transféré de la

phase continue vers la phase dispersée. La méthode expérimentale pour l'estimation du coefficient global de transfert de matière est celle déjà expliquée au chapitre 1 et les résultats

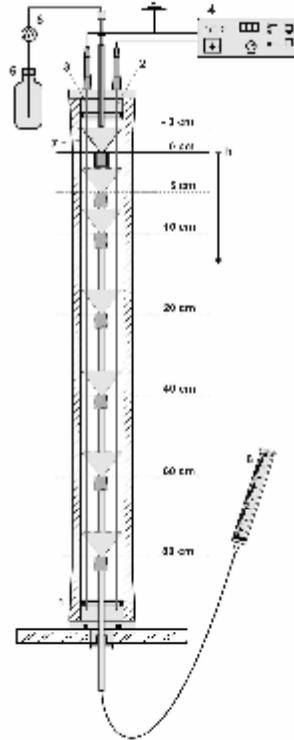


Figure 5.1 Colonne pilote utilisée pour les coefficients de TDM expérimentaux des systèmes à goutte unique [36]

obtenus pour quatre valeurs différentes du diamètre des gouttes sont montrés sur le tableau 5.2. Pour le deuxième système, le Butylacétate constitue la phase dispersée et l'eau la phase continue, le soluté qui est l'acétone est transféré de la phase dispersée vers la phase continue, les résultats expérimentaux obtenus pour deux tailles de goutte sont donnés dans le tableau 5.2.

Tableau 5.2. Résultats expérimentaux pour les systèmes chimiques considérés

Système Chimique	d (mm)	V_t (m/s)	K_{od} (m/s)
Acétone/Toluène/Eau	0.77	0.042	$1.9 \cdot 10^{-5}$
	1.54	0.07	$3.88 \cdot 10^{-5}$
	1.62	0.056	$5.58 \cdot 10^{-5}$
	3.00	0.106	$1.06 \cdot 10^{-4}$
Butylacétate/Acétone/Eau	1.50	0.078	$5.04 \cdot 10^{-5}$
	3.00	0.098	$1.26 \cdot 10^{-4}$

5.4. Combinaison des théories et corrélations existantes pour système à goutte unique

Dans le chapitre 2, les différentes corrélations et théories pour l'estimation du coefficient de transfert de masse pour chaque coté de la goutte ont été présentées, avec certaines conditions de leur utilisation. Cependant, à ce stade, le premier problème qui se pose est celui du choix de la meilleure combinaison de théories et corrélations pour assurer une conception de la colonne d'extraction qui soit assez fiable. Ceci ne semble pas être une tâche facile vu le nombre de modèles proposés dans la littérature. Afin de résoudre ce problème, un code en Fortran a été développé, qui pour un système donné, génère une matrice dont les éléments sont les coefficients de transfert de masse globaux, obtenus par différentes combinaisons de théories et modèles pour chaque phase, et ceci en fonction du diamètre de goutte. L'organigramme du programme est donné en annexe 4. Ce code utilise les cinq corrélations ou théories les plus fréquentes, pour chaque phase et génère donc au total vingt cinq combinaisons, comme montré par le schéma de la figure 5.2 suivante:

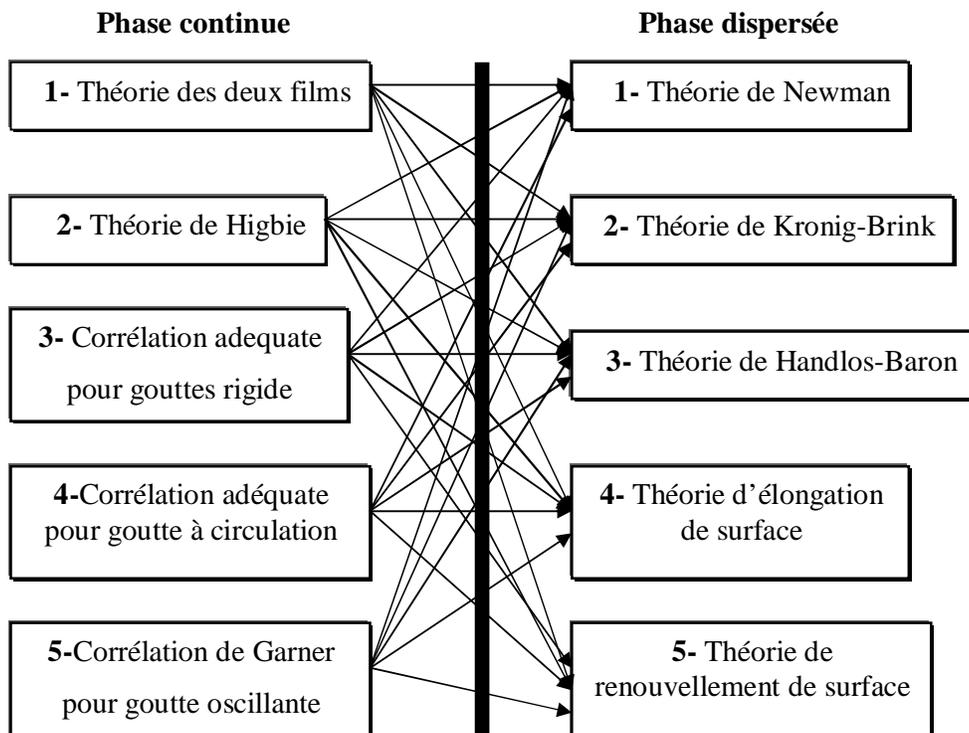


Figure 5.2. Combinaison des corrélations et théories utilisées pour chaque phase

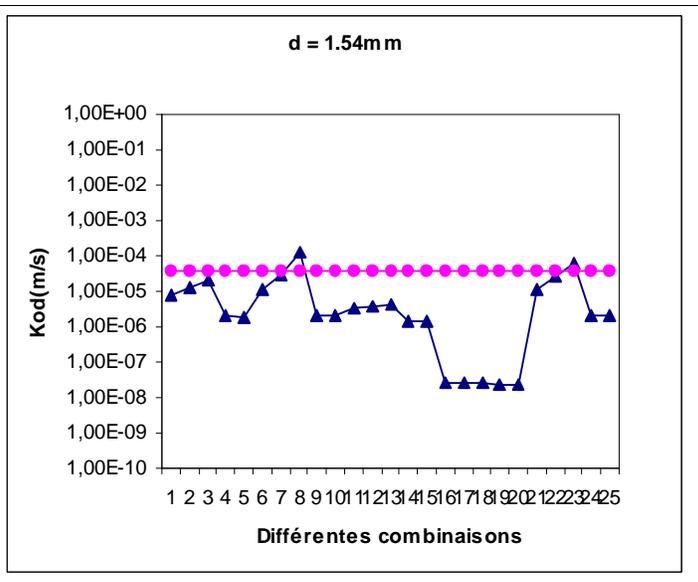
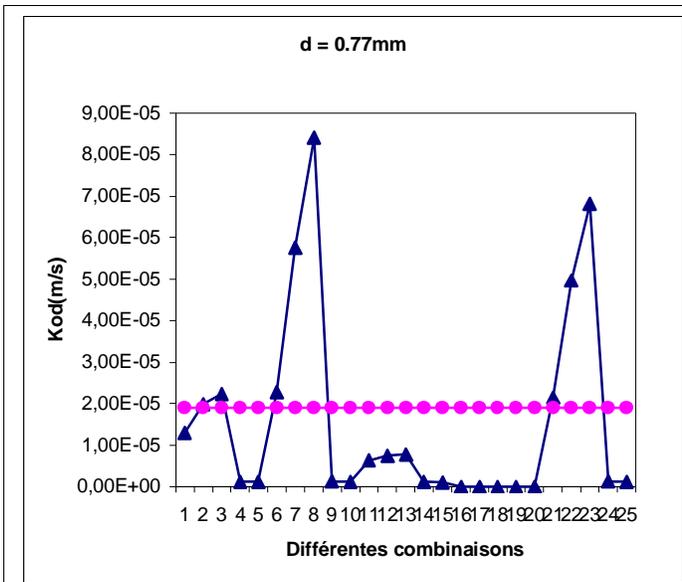
5.4.1. Résultats et discussions des combinaisons de théories et corrélations

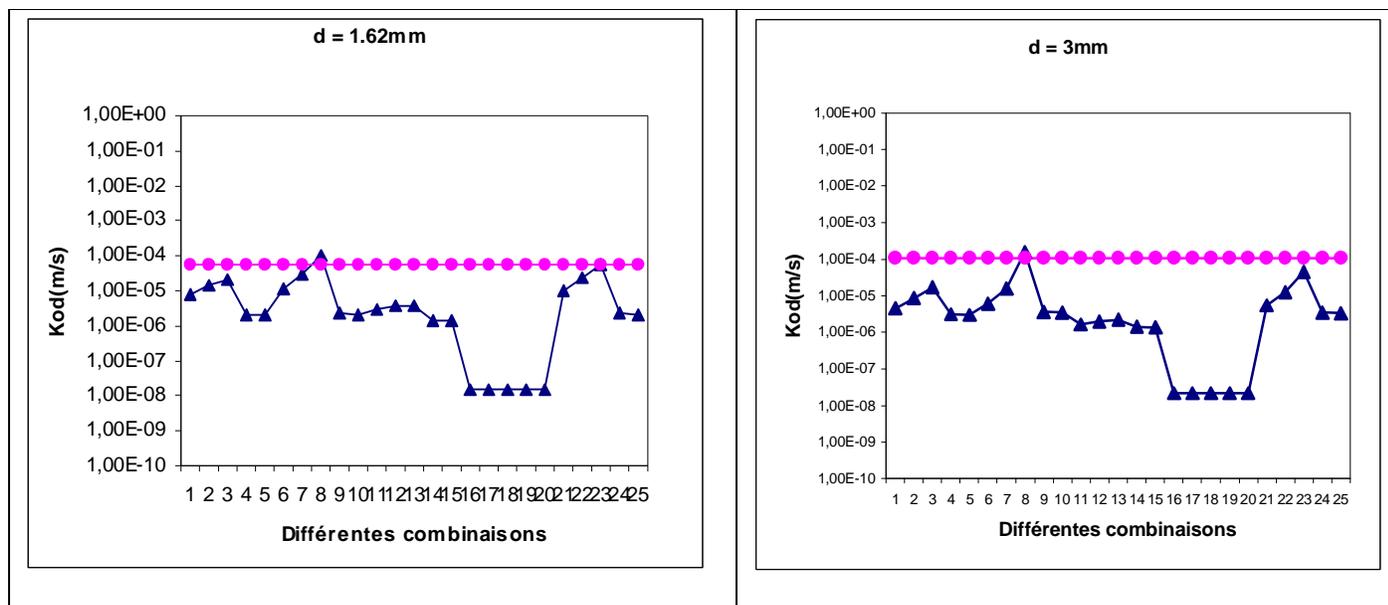
Le système Acétone/Toluène/Eau est utilisé pour valider les résultats obtenus par le programme. Sur le tableau 5.3 et la figure 5.3, sont présentées les valeurs du coefficient de transfert global coté phase dispersée obtenues par les différentes combinaisons ainsi que les valeurs expérimentales correspondantes pour quatre diamètres de goutte différents. En premier lieu, il convient de remarquer la grande divergence qui existe entre les valeurs données par les théories et corrélations pour un même diamètre de goutte, ce qui rend le choix de la bonne combinaison à utiliser très difficile. Cependant, il existe au moins une combinaison qui donne un résultat très proche de la valeur expérimentale pour une goutte de diamètre donné.

Tableau 5.3. Comparaison des résultats des différentes combinaisons et la valeur expérimentale du K_{od} pour différents diamètres de goutte (système: Acétone/Toluène/Eau)

Combinaison (kc,kd)	d= 0.77mm		d= 1,54mm	
	Kod(calc)	Kod(exp)	Kod(calc)	Kod(exp)
(1,1)	1,30E-05	1,90E-05	7,76E-06	3,88E-05
(1,2)	1,99E-05	1,90E-05	1,32E-05	3,88E-05
(1,3)	2,23E-05	1,90E-05	1,96E-05	3,88E-05
(1,4)	1,19E-06	1,90E-05	1,98E-06	3,88E-05
(1,5)	1,14E-06	1,90E-05	1,89E-06	3,88E-05
(2,1)	2,28E-05	1,90E-05	1,16E-05	3,88E-05
(2,2)	5,76E-05	1,90E-05	3,03E-05	3,88E-05
(2,3)	8,41E-05	1,90E-05	1,23E-04	3,88E-05
(2,4)	1,24E-06	1,90E-05	2,16E-06	3,88E-05
(2,5)	1,18E-06	1,90E-05	2,06E-06	3,88E-05
(3,1)	6,27E-06	1,90E-05	3,19E-06	3,88E-05
(3,2)	7,52E-06	1,90E-05	3,84E-06	3,88E-05
(3,3)	7,85E-06	1,90E-05	4,25E-06	3,88E-05
(3,4)	1,08E-06	1,90E-05	1,45E-06	3,88E-05
(3,5)	1,04E-06	1,90E-05	1,40E-06	3,88E-05
(4,1)	1,68E-08	1,90E-05	2,49E-08	3,88E-05
(4,2)	1,68E-08	1,90E-05	2,49E-08	3,88E-05
(4,3)	1,68E-08	1,90E-05	2,50E-08	3,88E-05
(4,4)	1,66E-08	1,90E-05	2,47E-08	3,88E-05
(4,5)	1,66E-08	1,90E-05	2,47E-08	3,88E-05
(5,1)	2,14E-05	1,90E-05	1,07E-05	3,88E-05
(5,2)	4,97E-05	1,90E-05	2,48E-05	3,88E-05
(5,3)	6,82E-05	1,90E-05	6,49E-05	3,88E-05
(5,4)	1,23E-06	1,90E-05	2,13E-06	3,88E-05
(5,5)	1,18E-06	1,90E-05	2,03E-06	3,88E-05

Combinaison	d=1,62mm		d=3 mm		
	(kc,kd)	Kod(calc)	Kod(exp)	Kod(calc)	Kod(exp)
(1,1)		7,78E-06	5,58E-05	4,57E-06	1,06E-04
(1,2)		1,38E-05	5,58E-05	8,68E-06	1,06E-04
(1,3)		2,10E-05	5,58E-05	1,69E-05	1,06E-04
(1,4)		2,07E-06	5,58E-05	3,08E-06	1,06E-04
(1,5)		1,98E-06	5,58E-05	2,96E-06	1,06E-04
(2,1)		1,10E-05	5,58E-05	6,02E-06	1,06E-04
(2,2)		2,86E-05	5,58E-05	1,60E-05	1,06E-04
(2,3)		1,01E-04	5,58E-05	1,57E-04	1,06E-04
(2,4)		2,25E-06	5,58E-05	3,68E-06	1,06E-04
(2,5)		2,14E-06	5,58E-05	3,51E-06	1,06E-04
(3,1)		2,98E-06	5,58E-05	1,65E-06	1,06E-04
(3,2)		3,58E-06	5,58E-05	1,99E-06	1,06E-04
(3,3)		3,93E-06	5,58E-05	2,24E-06	1,06E-04
(3,4)		1,45E-06	5,58E-05	1,41E-06	1,06E-04
(3,5)		1,41E-06	5,58E-05	1,38E-06	1,06E-04
(4,1)		1,59E-08	5,58E-05	2,19E-08	1,06E-04
(4,2)		1,59E-08	5,58E-05	2,19E-08	1,06E-04
(4,3)		1,59E-08	5,58E-05	2,20E-08	1,06E-04
(4,4)		1,58E-08	5,58E-05	2,18E-08	1,06E-04
(4,5)		1,58E-08	5,58E-05	2,18E-08	1,06E-04
(5,1)		1,02E-05	5,58E-05	5,50E-06	1,06E-04
(5,2)		2,36E-05	5,58E-05	1,27E-05	1,06E-04
(5,3)		5,75E-05	5,58E-05	4,49E-05	1,06E-04
(5,4)		2,21E-06	5,58E-05	3,48E-06	1,06E-04
(5,5)		2,11E-06	5,58E-05	3,33E-06	1,06E-04





●: Valeur expérimentale

▲: Les différentes combinaisons, chaque point correspond à une combinaison de théories présentées dans la figure (5.3) : 1 c'est la combinaison (1,1), 2 : (1,2), 3 : (1,3), etc.

Figure 5.3. Comparaison des résultats des différentes combinaisons et la valeur expérimentale du K_{od} pour différents diamètres de goutte (système : Acétone/Toluène/Eau)

Pour chaque diamètre de goutte, la combinaison donnant l'erreur relative la plus faible par rapport à la valeur expérimentale est retenue comme étant la meilleure combinaison. Le tableau 5.4 indique directement, pour le diamètre de goutte considéré, la combinaison de transfert de matière retenue et à recommander.

Tableau 5.4 Comparaison entre la combinaison retenue et l'expérimental pour le système : Acétone/Toluène/Eau

Diamètre (mm)	$K_{od}(cal)$ (m/s)	$K_{od}(exp)$ m/s	Combinaison retenue (kc, kd)	Erreur Relative
0.77	1.99E-05	1.90E-05	(Deux films, Kronig-Brink)	4.91E-02
1.54	3.03E-05	3.88E-05	(Higbie, Kronig-Brink)	2.19E-01
1.62	5.75E-05	5.58E-05	(Garner, Handlos-Baron)	3.01E-02
3	1.57E-04	1.06E-04	(Higbie, Handlos-Baron)	4.76E-01

D'après ces résultats, il peut être clairement constaté que les combinaisons retenues diffèrent d'une taille de goutte à l'autre. On peut aussi noter ce qui suit :

- **Coté phase continue** : la plus petite taille de goutte 0.77 mm, suit le modèle des deux films, le transfert est donc contrôlé par pure diffusion moléculaire comme prévu. Ensuite en augmentant la taille des gouttes on passe au modèle de Higbie, qui est recommandé pour des gouttes à circulation interne, mais pour un diamètre relativement faible de 1.54 mm. Le modèle de Garner proposé surtout pour goutte à oscillation apparaît pour un diamètre de 1.62 mm qui est aussi considéré comme une valeur relativement faible (on note aussi que sa valeur expérimentale semble être non précise vu la différence en la comparant avec celle du diamètre très proche de 1.54 mm. Même pour la vitesse terminale qui augmente en fonction du diamètre de goutte, la valeur pour la goutte de 1.62 mm n'est pas raisonnable), et d'après ce qui a été déjà développé dans la partie recherche bibliographique, les gouttes oscillantes suivent souvent les modèles à circulation interne turbulente. Pour une goutte ayant un diamètre élevé de 3 mm, la combinaison retenue est raisonnable, étant donné que les deux théories utilisées admettent une circulation turbulente, ce qui est le cas [37, 38].

- **Coté phase dispersée** : On voit qu'il n'y a que les deux théories de Kronig-Brink et Handlos-Baron qui apparaissent. Ceci confirme certaines observations expérimentales notant qu'il n'y a pas un saut apparent entre les valeurs données par les théories pour gouttes rigides, à circulation laminaire et turbulente en phase dispersée. Les résultats de certains travaux pour gouttes rigides sont donc confirmés où, les deux théories de Newman et Kronig-Brink donnent les mêmes résultats.

D'après les résultats montrés ci-dessus, il est clair que le phénomène de transfert varie en fonction de la taille des gouttes. Cependant, il se peut qu'il ne soit pas seul facteur permettant de retenir ou rejeter une combinaison de théories ou de corrélations de transfert de matière. Cependant, le passage attendu en fonction de la taille de goutte, à savoir contrôle par diffusion, contrôle par circulation laminaire ensuite turbulente et enfin oscillation (surtout pour des diamètres intermédiaires entre les deux limites : rigide et à circulation turbulente), n'a pas eu lieu. Or si on examine les propriétés physiques des deux phases rapportées dans le tableau 5.1, on remarque qu'elles sont proches sauf pour la viscosité où, la phase continue est deux fois plus visqueuse que la phase dispersée, la viscosité peut donc constituer un facteur déterminant pour le choix de la théorie ou corrélation à retenir, d'autant plus que cette propriété physique n'apparaît pas dans les nombres adimensionnels qui représentent la forme de la goutte et sa vitesse terminale, comme mentionné au chapitre 2. Par conséquent, une

étude hydrodynamique s'avère nécessaire pour mieux comprendre le comportement des gouttes.

5.4.2. Etude hydrodynamique des systèmes à goutte unique utilisés

Dans ce paragraphe certains paramètres hydrodynamiques sont calculés, afin de mieux comprendre le comportement des gouttes ainsi que les modes de transfert prépondérants en fonction de la taille de goutte. Les paramètres hydrodynamiques pour la compréhension du comportement des gouttes sont calculés et donnés sur le tableau 5.5 pour le système : Acétone/Toluène/Eau.

Tableau 5.5 Hydrodynamique du système: Acétone/Toluène/Eau

d(mm)	Re	We	Pe_d	Eö	Paramètres indépendants du diamètre
0.77	28.14	0.05	$1.2 \cdot 10^4$	0.032	$Mo = 1.78 \cdot 10^{-10}$
1.54	93.8	0.324	$3.99 \cdot 10^4$	0.128	$d_{crit}(Bond-Newton) = 4.289 \text{ mm}$
1.62	78.94	0.218	$3.36 \cdot 10^4$	0.1426	$d_{crit}(Klee-Treybal) = 5.78 \text{ mm}$
3.00	276.7	1.44	$1.78 \cdot 10^5$	0.489	$Re_m = 564.142$

En se référant au paragraphe où le comportement des gouttes a été résumé, il est noté que plusieurs conditions résultant de travaux expérimentaux ne sont pas vérifiées:

- § La transition goutte stagnante à circulation apparaît à $Pe_d = 200$, or la valeur du Peclet pour notre système est très supérieure à celle-ci, même pour des gouttes à diamètre très faible et ayant un comportement de sphère rigide ;
- § D'après Bond et Newton, la circulation commence à $Eö > 4$, et pour ce système la valeur d' $Eö$ est inférieure à 1, même pour des gouttes larges ayant un comportement de circulation interne turbulente ;
- § D'après Winnikao et Chao, l'oscillation a lieu à We proche de 4 et $Re > 200$, ces conditions ne sont pas vérifiées;
- § D'après Grace et al, la circulation commence à $Re > 150$, cette condition est vérifiée, et si on calcule le diamètre correspondant pour une vitesse terminale moyenne de 0.05 m/s on trouve 3mm ce qui est le cas pour ce système. Même la condition pour le Re maximum pour qu'il y ait oscillation est satisfaite, cette valeur correspondrait à un

diamètre de 1.2 cm, et il a été observé que pour plusieurs systèmes la goutte commence à osciller à un diamètre supérieur à 6mm.

§ Le $1/Mo$ est égal à $5.72 \cdot 10^9$, donc d'après ce résultat la goutte peut être considérée comme sphère rigide seulement en régime laminaire. S'il est admis que la transition des régimes se fait à Re proche de 100 comme indiqué dans [9] ceci est alors vérifié.

D'après ces observations, on peut noter certaines déviations de ce qui a été recommandé par la littérature, et une parfaite connaissance du début de la circulation n'a pas encore été atteinte. Ceci est dû essentiellement au fait que le début de circulation n'est pas calculé avec précision par les corrélations proposées pour l'estimation du diamètre de circulation et qui est toujours très supérieur aux observations expérimentales. Il est remarqué que si le diamètre critique de circulation proposée par Bond et Newton est multiplié par le rapport des viscosités μ_d/μ_c , on obtient un diamètre de 2.11mm. Cette valeur est plus proche des résultats expérimentaux obtenus par d'autres travaux [37, 38] où, les gouttes de 3mm de diamètre pour ce même système obéissaient aux modèles de circulation interne turbulente. Donc le début de circulation interne se fait à des diamètres inférieurs à 3 mm, alors que les diamètres critiques de début de circulation de Bond et Newton et celui de Klee et Treybal sont très différents des observations expérimentales.

En comparant la vitesse terminale expérimentale et celle calculée par l'équation de Vignes pour notre système, on peut aussi remarqué un écart par rapport au résultat expérimental, qui sera minimisé si on utilise le facteur $(\mu_d/\mu_c)^{-1}$. Ces résultats sont montrés sur le tableau 5.6 suivant :

Tableau 5.6. Comparaison des vitesses terminales du système : Acétone/Toluène/Eau

d (mm)	V_t exp (m/s)	V_t Vignes (m/s)	V_t^* Vignes (m/s)	Erreur relative	Erreur relative *
0.77	0.042	0.02	0.041	0.515	0.041
1.54	0.07	0.04	0.08	0.427	0.08
1.62	0.056	0.042	0.084	0.249	0.084
3.00	0.106	0.073	0.147	0.309	0.147

*Utilisation du facteur de correction du rapport des viscosités

L'influence de la viscosité de la phase dispersée, représentée par le rapport des viscosités des deux phase, apparaît clairement pour les deux paramètres clés de l'hydrodynamique :

diamètre de début de circulation et vitesse terminale. On se propose de vérifier ces résultats pour le deuxième système : Butylacétate/Acétone/Eau.

Les paramètres hydrodynamiques et les calculs des vitesses terminales sont donnés sur les tableaux 5.7 et 5.8, respectivement.

Tableau 5.7. Hydrodynamique du système : Butylacétate/Acétone/Eau

d(mm)	Re	We	Pe _d	Eö	Paramètres indépendants du diamètre
1.5	112.35	0.76	5.3 10 ⁴	0.214	Mo = 7.73 10 ⁻¹⁰ d _{crit} (Bond-Newton) = 3.24 mm d _{crit} (Klee-Treybal) = 4.87 mm Re _m = 452
3	282.31	2.39	1.33 10 ⁵	0.856	

Tableau 5.8. Comparaison des vitesses terminales du système: Butylacétate/Acétone/Eau

d(mm)	V _t exp (m/s)	V _t Vignes (m/s)	Vt* Vignes (m/s)	Erreur relative	Erreur relative*
1.5	0.078	0.037	0.052	0.52	0.32
3	0.098	0.066	0.093	0.33	0.048

Pour ce système aussi, les mêmes remarques sur l'étude hydrodynamique sont valables, le 1/Mo est du même ordre que pour le système précédent : 1.29 10⁹. La différence de viscosité ne peut pas être négligée, et la vitesse terminale calculée par la corrélation corrigée est plus proche des valeurs expérimentales. De même pour le diamètre de début de circulation corrigé et qui est de 2.27mm où, pour ce système aussi et d'après des mesures expérimentales [22], des gouttes de 3mm de diamètre, suivent le modèle de circulation interne turbulente.

On peut conclure donc que pour un système où, il y a une différence de viscosités des deux phases, le rapport des viscosités doit être pris en considération, toutefois, ce résultat ne peut être généralisé que si on arrive à le vérifier pour d'autres systèmes à propriétés physiques différentes. Cependant peu de travaux ont considéré l'effet des viscosités des deux phases sur le transfert de masse (Chapitre 2).

5.5. Etude des coefficients de transfert

Comme montré au chapitre 2, le nombre de corrélations proposées par la littérature complique le choix du modèle et de la combinaison adéquate à retenir. Se basant sur le seul facteur de taille des gouttes, peut pour certains systèmes, ne pas être suffisant. La viscosité de la phase dispersée n'est généralement pas prise en considération, ce qui peut influencer sur les résultats comme montré ci-dessus. Il serait donc très utile de proposer une ou deux

corrélations uniformes applicables dans un large intervalle de conditions, réduisant ainsi le grand nombre existant. Pour cela dans cette étude, il est tenté, se basant sur des approximations numériques, de proposer de nouvelles corrélations à recommander pour chaque phase dans le cas de systèmes à goutte unique et les adapter ensuite au cas des colonnes à garnissage, en se basant sur les plus utilisées parmi celles proposées dans la littérature.

5.5.1. Corrélations coté phase continue

Les corrélations du nombre de Sherwood pour la phase continue sont proposées pour des intervalles d'utilisation bien précis. Il est tenté de trouver selon le comportement de la goutte une équation qui couvre un large intervalle de Re et qui aura la forme du Sh proposée dans la littérature :

$$Sh_c = a Re^b Pe_c^c \quad (5.1)$$

a. Comparaison des corrélations existantes

Les corrélations choisies pour cette phase sont représentées sur un même graphe en fonction du Reynolds pour un Sc_c de 1050 (Figure 5.4) afin de pouvoir les comparer. D'après ce graphe, il y a une grande différence entre les valeurs du Sh_c données par les différentes corrélations pour un même Sc_c . Les courbes peuvent être séparés en deux groupes : l'un pour goutte rigide, l'autre pour goutte à circulation interne et oscillante. Ceci a été vérifié par Steiner [9] dans son étude comparative des données expérimentales (Figure 1.2). Deux nouvelles corrélations du Sh_c peuvent être proposées : une pour le cas de goutte rigide et une autre pour goutte à circulation interne et oscillante.

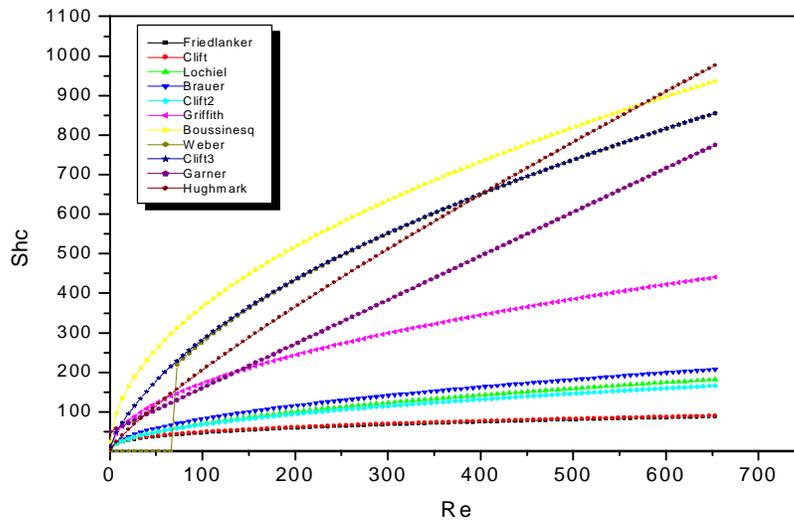


Figure 5.4. Les différentes corrélations du nombre de Sherwood en phase continue

b. Nouvelles corrélations pour goutte unique

La procédure de calcul du programme élaboré et dont l'organigramme est donné en annexe 5, pour générer les nouvelles corrélations est comme suit :

- § Suivant le comportement de la goutte, le nombre de Re est varié (en variant le diamètre de goutte) et pour chaque Re , un Sh_c est calculé avec la corrélation adéquate (selon son intervalle d'utilisation) noté $Sh_{c-corrélations}$ (Tableau 5.9).

Tableau 5.9. Corrélations utilisées en phase continue pour le calcul de $Sh_{c-corrélations}$

Goutte rigide	Intervalle d'utilisation	Goutte à circulation interne et oscillante	Intervalle d'utilisation
Friedlanker(3.39)	$Pe_c > 100$ et $Re < 1$	Griffith (3.44)	$Re < 1$
Clift (3.40)	$Re < 1$	Boussinesq (3.45)	Re élevé
Brauer (3.41)	$1 < Re < 100$	Weber (3.46)	$Re > 70$
Lochiel (3.42)	Re élevé	Clift (3.47)	$10 < Re < 100$
Clift (3.43)	$100 < Re < 2000$ et $Sc_c > 200$	Garner (3.48)	
		Hughmark (3.49)	

- § Les valeurs du Sh_c stockées dans le vecteur $Sh_{c-corrélations}$, seront approximées par la méthode des Simplexes, afin d'avoir la forme de l'équation (5.1), le programme retourne les valeurs des coefficients a, b, et c.

Les résultats obtenus sont comme suit :

- Pour goutte rigide : **a= 2.326, b= 0.268 et c=0.2**
- Pour gouttes à circulation interne et oscillante : **a=1.728, b=0.341 et c=0.3**

On obtient donc deux nouvelles corrélations recommandées pour les deux comportements de gouttes, et qui donnent des résultats très proches des différentes corrélations proposées par la littérature (Figure 5.5), et on peut donc dire que l'utilisation des onze corrélations montrées sur le tableau 5.9 se réduit à l'utilisation des deux corrélations suivantes :

$$\S \quad Sh_{c-rig} = 2.326 Re^{0.268} Pe_c^{0.2} \quad (5.2)$$

$$\S \quad Sh_{c-cir} = 1.728 Re^{0.341} Pe_c^{0.3} \quad (5.3)$$

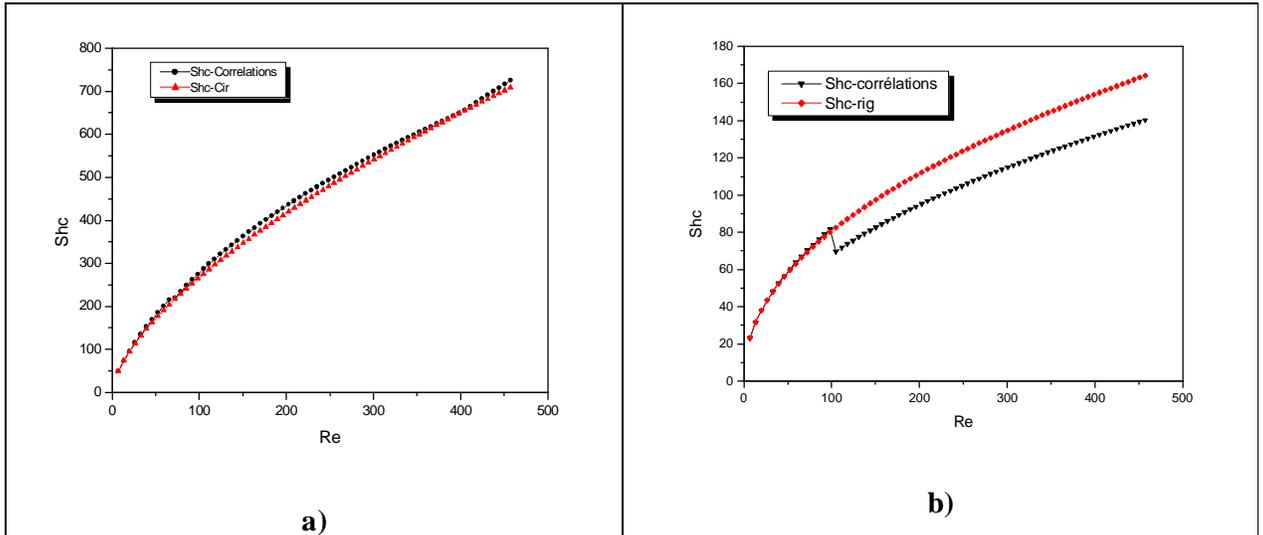


Figure 5.5. Comparaison du Sh_c des différentes corrélations et celui obtenu par les nouvelles corrélations pour le cas de: **a)** goutte rigide et **b)** goutte à circulation interne et oscillante

Discussion des résultats obtenus :

- § Les exposants des Re et Pe_c augmentent en passant de goutte rigide à goutte à circulation, ce qui a été observé dans plusieurs travaux expérimentaux;
- § A un certain Re de près de 100, le $Sh_{c-rigid}$ dévie des valeurs des corrélations, alors que le Sh_{c-circ} y est très proche, ce résultat peut être interprété en faisant le lien avec

l'étude hydrodynamique citée ci-dessus, et on peut conclure que la circulation commence à un Re proche de 150, pour des systèmes ayant un Sc_c proche de 1000;

- § Pour la plupart des corrélations proposées par la littérature, les exposants du Re et Pe_c , varient autour de 0.3 pour gouttes rigides et autour de 0.5 pour gouttes à circulation interne et oscillante. Dans les nouvelles corrélations proposées, ils varient autour de 0.2 et 0.3 respectivement, ceci peut être dû aux propriétés physiques du système utilisé. Donc ces corrélations sont recommandées pour des systèmes ayant un Sc_c proche de 1000.

c. Nouvelle corrélation pour colonne d'extraction liquide-liquide

Les nouvelles corrélations obtenues ci-dessus sont adaptées au cas de colonnes d'extraction liquide-liquide à garnissage. Cette extrapolation à l'échelle industrielle constitue le but essentiel de tous les travaux réalisés sur des systèmes à goutte unique et sur des colonnes pilotes. On remplace la vitesse terminale par la vitesse de glissement (on introduit la rétention de la colonne utilisée) et le diamètre de goutte par le diamètre moyen des gouttes (Chapitre 2). On compare l'utilisation des corrélations obtenues et adaptées avec la corrélation de Seibert et Fair [29] pour colonne à garnissage (3.63), (on utilise les propriétés de la colonne à garnissage décrite au dessous). Pour de faibles valeurs de Re , la corrélation (5.2) donne une bonne approximation du Sh_c jusqu'à près de 60, à partir d'un Re de 160 la corrélation pour gouttes circulantes et oscillantes (5.3) devient la plus précise (Figure 5.6). Entre ces deux limites les valeurs restent intermédiaires. Cette valeur du Re constitue donc le régime de transition entre les deux comportements limites de la goutte, ce qui confirme le résultat obtenu précédemment.

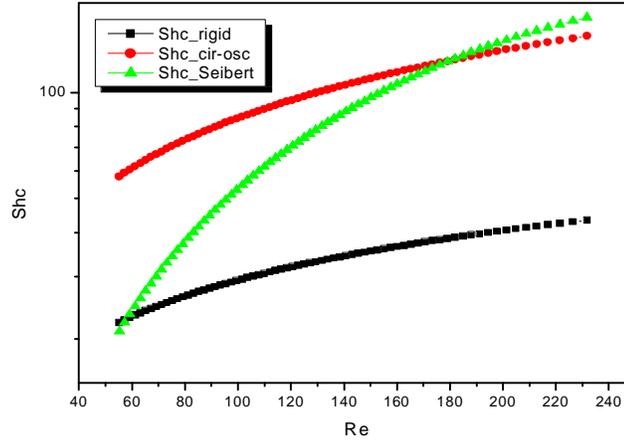


Figure 5.6. Comparaison de l'adaptation des nouvelles corrélations obtenues aux cas des colonnes à garnissage

Il est proposé de trouver une corrélation unique pour représenter les deux limites de comportements des gouttes afin de minimiser l'écart montré sur la figure 5.6, et s'approcher des valeurs données par la corrélation de Seibert. On adopte la forme suivante qui a été utilisée par Steiner [9] :

$$\frac{\frac{Sh_c}{(1-f)} - Sh_{c-cir}}{Sh_{c-cir} - Sh_{c-rig}} = 1 - \exp(A Pe_c^B) \quad (5.4)$$

Le programme Simplexe retourne les coefficients suivants : **A = 2 et B = -0.15**

Cette nouvelle corrélation est très proche de celle de Seibert [29] pour le cas des colonnes d'extraction (Figure 5.7). Donc la nouvelle corrélation proposée par le présent travail, recommandée pour le calcul du Sh_c dans le cas de colonne d'extraction à garnissage et pour des systèmes ayant un Sc_c autour de 1000 couvrant un large intervalle de Re : de 1 à 1000, est la suivante :

$$\frac{\frac{Sh_c}{(1-f)} - Sh_{c-cir}}{Sh_{c-cir} - Sh_{c-rig}} = 1 - \exp(2 Pe_c^{-0.15}) \quad (5.5)$$

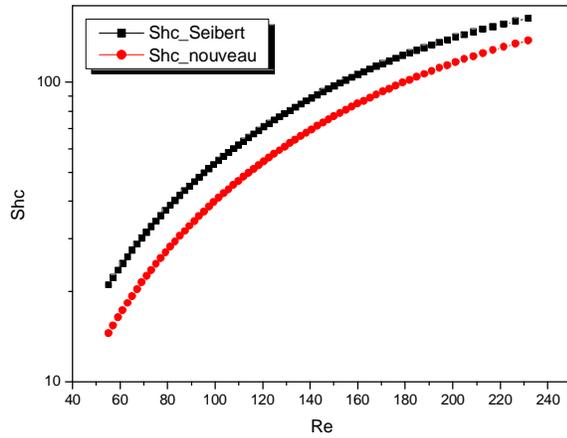


Figure 5.7. Comparaison des Sh_c de la corrélation de Seibert et la nouvelle corrélation proposée pour colonne à garnissage.

5.5.2. Corrélations coté phase dispersée

Dans cette partie nous allons procéder de la même manière que précédemment afin de proposer des corrélations uniformes pour chaque cas de comportement de goutte, et les adapter ensuite aux colonnes à garnissage. Sur le graphe de la figure 5.8, sont présentées les différentes corrélations et théories utilisées pour l'estimation du Sh coté goutte.

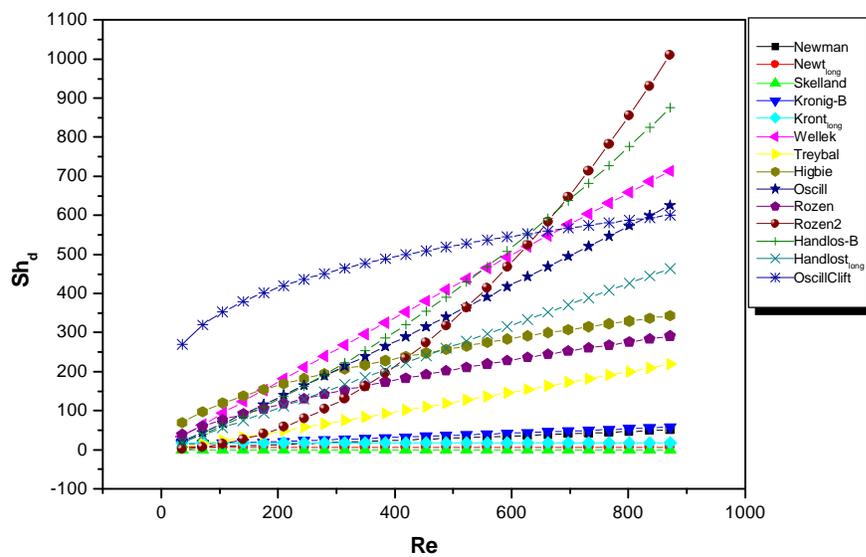


Figure 5.8. Comparaison des corrélations et théories existantes pour le Sh_d

On remarque que pour cette phase aussi, les valeurs données par les différentes théories et corrélations sont divisées en deux groupes distincts : un groupe pour goutte rigide et à circulation laminaire, et un autre pour des gouttes à circulation turbulente et oscillantes. Les valeurs sont très variées, et les corrélations proposées pour gouttes oscillantes sont très proches ou confondues avec celles proposées pour gouttes à circulation interne (différents auteurs ont noté que les gouttes oscillantes obéissaient parfois aux modèles de la goutte à circulation turbulente). On note aussi que pour des valeurs de Re très élevées, la théorie de Handlos-Baron en fonction du temps se démarque nettement du deuxième groupe, ce qui explique le fait que la théorie donne de bons résultats pour certaines situations et s'éloigne beaucoup des valeurs expérimentales pour d'autres, de même que pour la deuxième corrélation de Rozen. Le modèle de Clift pour goutte oscillante a une allure très différente des autres courbes, et pour des valeurs de Re élevées, les résultats sont confondues avec ceux des modèles à circulation turbulente. Ces dernières théories ne seront donc pas retenues pour les calculs.

On propose pour la phase dispersée de trouver deux nouvelles corrélations : une pour gouttes rigides et à circulation laminaire et l'autre pour gouttes à circulation turbulente. Le choix du modèle à utiliser a déjà été discuté au chapitre 3, les corrélations à développer auront donc la forme suivante :

$$Sh_d = A Re^B Fo^C Mo^D Sc_d^E We^F (1 + \mu_d/\mu_c)^G \quad (5.6)$$

a. Nouvelle corrélation pour gouttes rigides et à circulation laminaire

Contrairement au côté continue, les corrélations proposées pour le côté goutte sont séparés en fonction du comportement des gouttes sans indications sur les conditions d'utilisation. La procédure de calcul du programme Mathcad élaboré et dont l'organigramme est présenté en annexe 6, sera donc différente et se résume comme suit :

- § Pour chaque cas de comportement de goutte, on calcule une moyenne du Sh_d des différentes corrélations retenues pour le cas considéré;
- § Les valeurs moyennes du Sh_d ainsi obtenues, seront approximées par le modèle linéaire de la méthode des moindres carrées, pour obtenir les coefficients de l'équation (5.6), ceci après linéarisation de cette dernière équation sous la forme :

$$\ln (Sh_d)= A+ B \ln(Re)+C \ln(Fo)+D \ln(Mo)+E \ln(Sc_d)+F \ln(We)+G \ln(1+\mu_d/ \mu_c) \quad (5.7)$$

On représente sur la figure 5.9, le groupe de bas pour goutte rigide et circulation laminaire qui n'apparaît pas bien sur le graphe précédent.

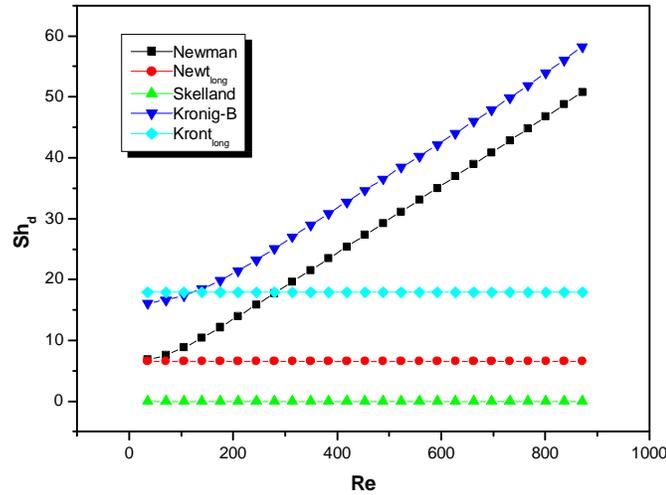


Figure 5.9. Corrélations du Sh_d pour gouttes rigides et à circulation laminaire

Ce graphe va nous permettre de choisir les corrélations à retenir pour avoir la moyenne à utiliser en approximation. La corrélation de Skelland ne sera pas retenue étant donné qu'elle donne des valeurs très inférieures à celles de Newman qui constitue la limite inférieure pour les gouttes rigides. On retiendra donc les deux théories de Newman et Kronig-Brink en fonction du temps. Ces deux modèles ont déjà prouvé leur fiabilité dans le cas des gouttes rigides et à circulation laminaire et cette étape d'interpolation nous permettra d'étudier la variation des différents exposants des nombres adimensionnels représentant l'effet des propriétés physiques et l'hydrodynamique du système et aussi d'uniformiser les équations à proposer. Le résultat donné par le programme pour le comportement rigide et à circulation laminaire est comme suit :

$$Sh_{d_rig} = Re^{3.01} Fo^{0.438} Mo^{0.176} Sc_d^{-1.34} We^{-1.45} (1+\mu_d/\mu_c)^{0.691} \quad (5.8)$$

L'influence de tous les nombres adimensionnels apparaît clairement dans cette dernière équation et aucun terme ne sera négligé, on remarque que le Sherwood est très dépendant du nombre de Re .

On représente sur le graphe de la figure 5.10, la nouvelle corrélation et les deux théories de Newman et Kronig-Brink en fonction du nombre de Reynolds.

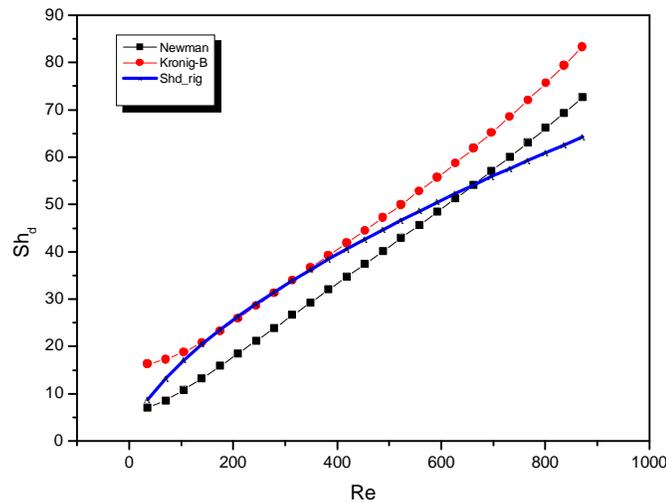


Figure 5.10. Nouvelle corrélation du Sh_d pour goutte rigide et à circulation laminaire

b. Nouvelle corrélation pour gouttes à circulation turbulente

En se basant sur le graphe de comparaison des différentes théories et corrélations de la figure 5.8, on retient pour le cas de goutte à circulation turbulente et oscillante les modèles suivants : Handlos-Baron à long temps de contact, Wellek, Treybal, Higbie, Rozen, et la corrélation de Skelland pour goutte oscillante étant donné qu'elle ait été utilisée pour goutte turbulente avec succès dans certains cas. Comme précédemment, une approximation de la moyenne des théories et corrélations citées ci-dessus, nous donne le résultat suivant :

$$Sh_{d_cir} = 44.3 Re^{0.272} Fo^{0.092} Mo^{0.038} Sc_d^{0.236} We^{0.75} (1 + \mu_d / \mu_c)^{-1.34} \quad (5.9)$$

Les nombres adimensionnels portant des exposants de l'ordre de 0.092 et 0.038 ne seront pas négligés comme cela a été fait par certains travaux [8], car leur influence sur le Sh_d est importante ($Mo^{0.038} = 0.43$ et $Fo^{0.092}$ varie de 1 jusqu'à 0.56 pour des diamètres de gouttes de 0.4mm à 1cm). Sur le graphe de la figure 5.11, on représente la nouvelle corrélation avec les théories et modèles existants.

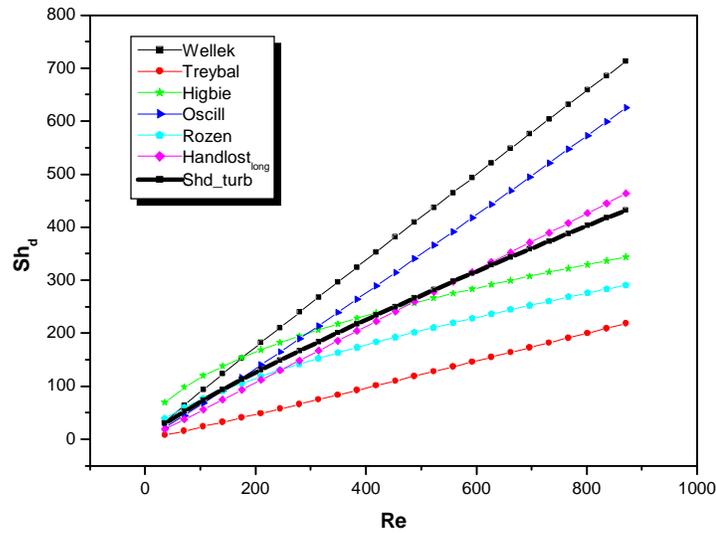


Figure 5.11. Nouvelle corrélation du Sh_d pour gouttes à circulation turbulente

c. Nouvelle corrélation pour colonne d'extraction liquide-liquide

Comme pour le cas du coté phase continue, on adapte les nouvelles corrélations obtenues pour cette phase au cas des colonnes d'extraction liquide-liquide, et on compare le résultat avec les corrélations de Seibert et Fair [29] proposées par la littérature (équations 3.65 et 3.66). Le résultat donné par la figure 5.11, montre que la corrélation de Seibert donne des valeurs plus élevées que la limite supérieure proposée pour gouttes à circulation turbulente, notons aussi que coté goutte, plusieurs auteurs [37] et [38] recommandent l'utilisation de la théorie de Handlos-Baron à long temps de contact adaptée aux colonnes, cette théorie a été prise en considération pour l'approximation qui a donné lieu à la corrélation pour gouttes à circulation turbulente. Pour ceci et étant donné le manque de modèles pour coté phase dispersée dans le cas de colonnes à garnissage, on a proposé de représenter les deux limites de comportement de goutte ainsi que la région de transition par une équation analogue à celle proposée pour le coté phase continue. Le programme retourne le résultat suivant et qui est représenté sur la figure 5.12 par $Sh_{d-colonne}$:

$$\frac{Sh_d - Sh_{d-cir}}{Sh_{d-cir} - Sh_{d-rig}} = 1 - \exp\left(2 Pe_d^{-0.12}\right) \quad (5.10)$$

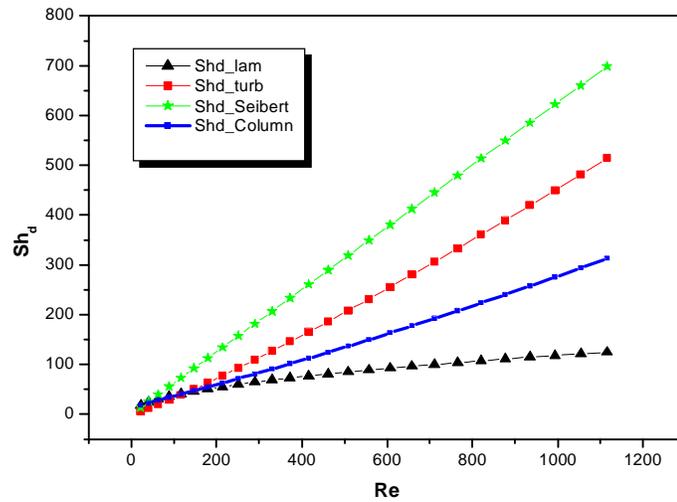


Figure 5.12..Nouvelle corrélation du Sh_d pour colonne à garnissage

5.5.3. Application des nouvelles corrélations

Dans cette partie, les nouvelles corrélations obtenues pour le calcul du coefficient global de transfert de matière seront appliquées pour système à goutte unique et colonne d'extraction à garnissage, on utilisera des combinaisons entre corrélations coté phase continue et corrélations coté phase dispersée, et étant donné qu'on ait proposé deux corrélations pour chaque phase, au total quatre combinaisons différentes, montrées par le schéma de la figure 5.13 seront testées. En comparant avec la figure 5.2, le nombre de combinaisons s'est réduit et le choix sera donc beaucoup plus facile.

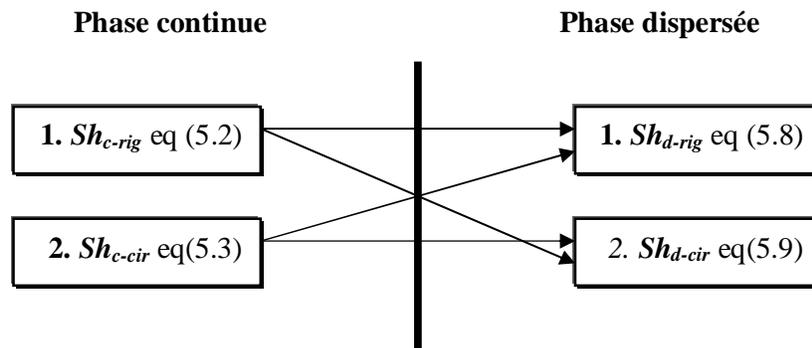
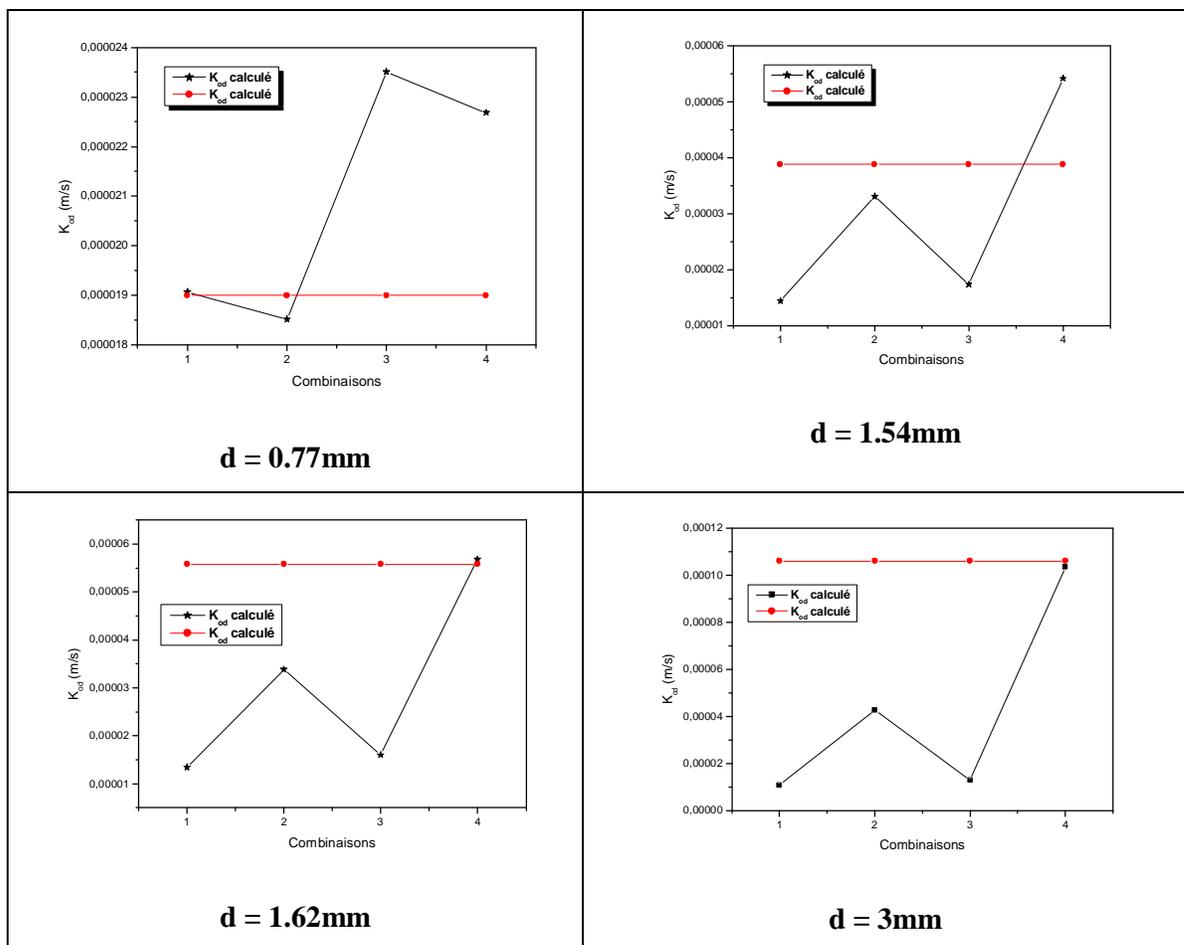


Figure 5.13. Nouvelles combinaisons pour le calcul du coefficient global de transfert de matière

a. Système à goutte unique

Nous allons tester la validité des corrélations obtenues et leurs combinaisons pour le calcul du coefficient global de transfert de matière, pour les deux systèmes à goutte unique dont on a les valeurs expérimentales à savoir : acétone/toluène/eau et butylacétate/acétone/eau. Pour ceci un programme Mathcad a été élaboré pour calculer en fonction du diamètre de goutte, la vitesse terminale avec la formule corrigée par le facteur des viscosités et combine les nouvelles corrélations obtenues dans le présent travail afin de calculer le coefficient de transfert global coté phase dispersée K_{od} . Les résultats obtenus sont montrés sur les graphes des figures 5.14 et 5.15 pour les deux systèmes respectivement.



La combinaison 1 correspond à (k_{c-rig}, k_{d-rig}) , 2 : (k_{c-rig}, k_{d-turb}) ,...etc

Figure 5.14. Comparaison des combinaisons des nouvelles corrélations avec les valeurs expérimentales du coefficient global coté phase dispersée pour le système : acétone/toluène/eau

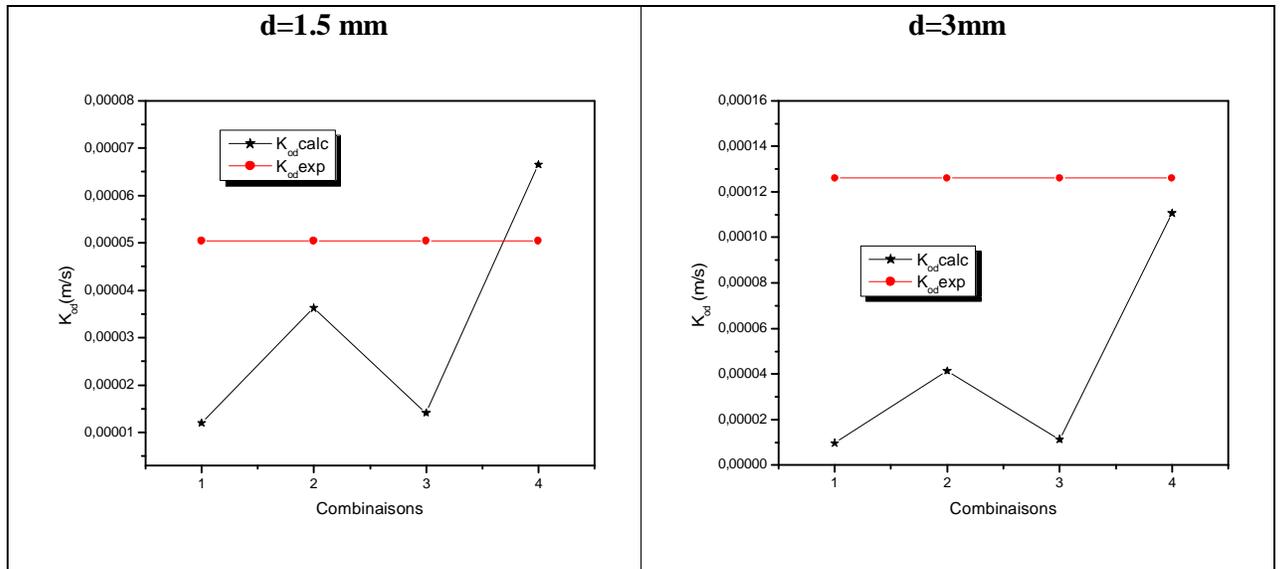


Figure 5.15. Comparaison des combinaisons des nouvelles corrélations avec les valeurs expérimentales du coefficient global coté phase dispersée pour le système : butylacétate/acétone/eau

Les figures montrent que pour chaque diamètre de goutte une des combinaisons utilisées s'approche de la valeur expérimentale et est donc à retenir. Les valeurs obtenues ainsi que les erreurs relatives par rapport à ceux de l'expérimental sont données aux tableaux 5.10 et 5.11 pour les deux systèmes.

Tableau 5.10. Comparaison entre nouvelles combinaisons et l'expérimental pour le système acétone/toluène/eau

Diamètre (mm)	$K_{od}(cal)$ (m/s)	$K_{od}(exp)$ m/s	Combinaison retenue (kc,kd)	Erreur Relative
0.77	$1.907 \cdot 10^{-5}$	$1.90 \cdot 10^{-5}$	(1,1)	$3.68 \cdot 10^{-3}$
1.54	$3.30 \cdot 10^{-5}$	$3.88 \cdot 10^{-5}$	(1,2)	0.149
1.62	$5.68 \cdot 10^{-5}$	$5.58 \cdot 10^{-5}$	(2,2)	0.018
3	$1.03 \cdot 10^{-4}$	$1.06 \cdot 10^{-4}$	(2,2)	0.028

Tableau 5.11. Comparaison entre nouvelles combinaisons et l'expérimental pour le système Butylacétate/Acétone/eau

Diamètre (mm)	$K_{od}(cal)$ (m/s)	$K_{od}(exp)$ m/s	Combinaison retenue (kc,kd)	Erreur Relative
1.5	$3,63 \cdot 10^{-5}$	$5.04 \cdot 10^{-5}$	(1,2)	0.28
3	$1.10 \cdot 10^{-4}$	$1.26 \cdot 10^{-4}$	(2,2)	0.12

D'après ces résultats on peut dire que la combinaison des nouvelles corrélations donne de meilleurs résultats que celle des théories et corrélations existantes montrée au paragraphe 5.4 et ceci pour le premier système. Le résultat est plus précis surtout pour des gouttes dont le comportement suit le modèle attendu, à savoir les gouttes très petites de 0.77 mm de diamètre, avec un comportement de goutte rigide, le coefficient global est calculé donc avec une combinaison entre corrélations pour gouttes rigides pour les deux phases. De même pour les gouttes à diamètre élevé de 3mm et qui est supérieur au diamètre critique de circulation, le coefficient global est calculé avec précision avec la combinaison des corrélations pour circulation interne turbulente pour les deux cotés. Pour les deux diamètres intermédiaires de 1.54 mm et 1.62 mm, le résultat pour le premier est obtenu avec combinaison des deux comportements : rigide pour la phase continue et à circulation turbulente pour la phase dispersée, les deux diamètres sont très proches, et on devrait s'attendre à des valeurs des coefficients qui soient aussi très proches, on remarque que dans ce cas la valeur à retenir serait $3.38 \cdot 10^{-5}$ m/s donnée par la combinaison (1,2) qui représente un résultat plus logique or, la valeur expérimentale de ce diamètre est très supérieure à celle d'une goutte à 1.54 mm de diamètre. Même en retenant la combinaison (1,2) pour le troisième diamètre de goutte le résultat reste satisfaisant avec une moyenne de l'erreur relative de 14.4%. La transition entre comportement de goutte rigide à goutte à circulation interne turbulente est respectée si on se réfère au diamètre critique de circulation corrigé par le facteur de rapport des viscosités et qui est pour ce système de 2.11mm.

Pour le deuxième système le résultat est comparable au premier et étant donné qu'on ait seulement deux diamètres de goutte différents, le comportement de goutte large est représenté par combinaison de corrélations pour goutte à circulation interne turbulente. Pour goutte à diamètre moyen, le meilleur résultat a été obtenu en combinant, corrélation pour goutte rigide en phase continue et celle pour goutte à circulation turbulente pour phase dispersée. Le diamètre critique de circulation corrigé par le facteur : rapport des viscosités est de 2.27 mm.

En résumé pour un système à goutte unique, la combinaison à utiliser dépend du diamètre de la goutte et est directement liée au diamètre critique de circulation, plus ce diamètre est estimé avec précision et plus la combinaison retenue donnera un résultat précis. Toutefois, les deux cas limites de comportement de goutte, impliquent l'utilisation de corrélations spécifique au comportement pour les deux phases, alors que pour des diamètres intermédiaires, notre étude a montré que la combinaison à retenir est : corrélation pour goutte rigide en phase continue et celle pour goutte à circulation turbulente en phase dispersée. Ce

résultat peut être expliqué par le fait que la transition entre mécanismes en phases dispersée se fait plus rapidement que celle en phase continue (figures 5.4 et 5.8) et traduit par la séparation des groupes de corrélations en deux, en phase continue : groupe pour goutte rigide et un pour goutte à circulation, et en phase dispersée : groupe pour goutte rigide et à circulation laminaire et un autre pour goutte à circulation turbulente. Un autre facteur, ayant une influence directe sur le diamètre critique de circulation et aussi sur le transfert de masse peut influencer le choix de la combinaison, à savoir la différence des viscosités des deux phases, en effet pour les deux systèmes considérés, la phase continue est plus visqueuse que celle dispersée. Sur ce, on propose d'utiliser les combinaisons comme suit :

$$\S \text{ Si } d \ll d_{crit} : \quad k_c (Sh_{c-rig}), k_d (Sh_{d-rig})$$

$$\S \text{ Si } d \gg d_{crit} : \quad k_c (Sh_{c-cir}), k_d (Sh_{d-cir})$$

$$\S \text{ Si } d < d_{crit} : \quad k_c (Sh_{c-rig}), k_d (Sh_{d-cir})$$

b. Colonne d'extraction à garnissage

De même que pour les systèmes à goutte unique, les corrélations obtenues et leurs combinaisons seront testées pour le cas de colonnes à garnissage, et les valeurs des coefficients globaux de transfert de matière obtenues seront comparées à celles de l'expérimental. Pour ce cas nous avons utilisé deux systèmes, le premier : acétone/toluène/eau et le deuxième : n-butanol/acide succinique/eau. Ces deux systèmes ont été recommandés par la fédération européenne de génie chimique, le premier est un système à haute tension interfaciale qui se disperse en gouttes relativement larges, le deuxième se disperse en fines gouttelettes à cause de sa faible tension interfaciale ($\gamma=0.0015$ N/m). Les propriétés physiques du premier système ont déjà été données au tableau 5.1, celles du deuxième sont résumées sur le tableau 5.12 suivant:

Tableau 5.12. Propriétés physiques du système : n-butanol/acide succinique/eau

Propriété physique	Phase continue (Eau)	Phase dispersée (Acide succinique)
Masse volumique ρ (kg/m ³)	988	852
Viscosité μ (kg/m s)	$1.45 \cdot 10^{-3}$	$3.41 \cdot 10^{-4}$
Diffusion D (m ² /s)	$2.3 \cdot 10^{-9}$	$0.55 \cdot 10^{-9}$

Pour le cas de colonnes à garnissage nous avons utilisé les résultats expérimentaux de Seibert et Humphrey [37] pour les deux systèmes cités ci-dessus. La colonne utilisée est une colonne à garnissage de 1.524 m de hauteur et de 10.2 cm de diamètre, remplie d'anneaux Raschig de 1.27 cm de diamètre avec une aire interfaciale de $347.72 \text{ m}^2/\text{m}^3$ et un facteur de vide de 0.64. Les résultats expérimentaux des coefficients globaux de transfert de matière coté phase continue sont donnés pour différents points opératoires de vitesses superficielles des deux phases : V_c et V_d .

Dans ce cas les corrélations à utiliser seront adaptées en utilisant : vitesse de glissement, le diamètre moyen des gouttes, rétention de la phase dispersée, propriétés du garnissage...etc. Et en plus des quatre combinaisons déjà citées ci-dessus, on ajoute celle proposée pour colonne à garnissage (équations 5.5 et 5.10). Les résultats expérimentaux disponibles sont en fonction des points opératoires de la colonne et pour un diamètre moyen de goutte fixe et calculé pour chaque système. Le premier système se disperse en gouttes d'un diamètre moyen de 3.94 mm et le deuxième en fines gouttes de 0.97 mm de diamètre.

Les résultats obtenus pour les deux systèmes par les différentes combinaisons sont présentés sur les graphes des figures 5.16 et 5.17 où, chaque point opératoire correspondant à (V_c, V_d) est représenté par un point en abscisse, les valeurs calculées et expérimentales sont données sur les deux tableaux 5.13 et 5.14 respectivement.

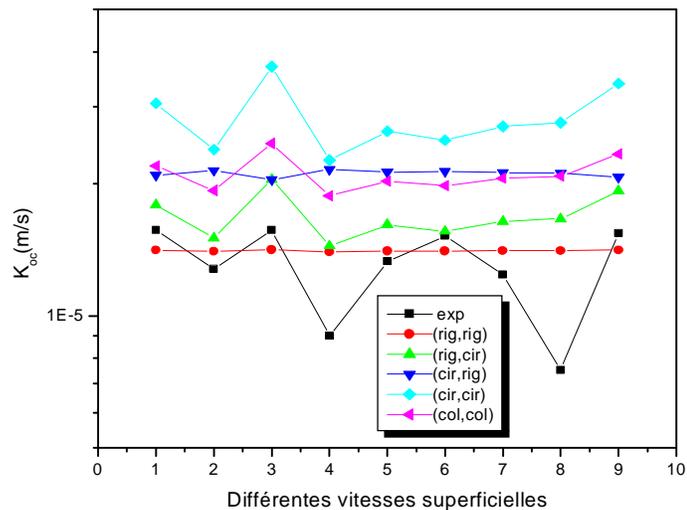


Figure 5.16. Comparaison du K_{oc} expérimental pour la colonne à garnissage et celui calculé par les nouvelles combinaisons pour différents points opératoires de la colonne

(Système : acétone/toluène/eau)

Tableau 5.13. Coefficient de TDM global K_{oc} donné par les différentes combinaisons et l'expérimental pour le système : acétone/toluène/eau

Vd mm/s	Vc mm/s	Re	(rig,rig) m/s	(rig,cir) m/s	(cir,rig) m/s	(cir,cir) m/s	(col _c ,col _d) m/s	Exp m/s
2.62	2.10	208.81	1,41E-5	1,78E-5	2,09E-5	3,05E-5	2,19E-5	1,57E-5
4.75	2.10	176.27	1,40E-5	1,50E-5	2,14E-5	2,39E-5	1,93E-5	1,28E-5
0.93	1.97	239.89	1,41E-5	2,04E-5	2,04E-5	3,70E-5	2,47E-5	1,57E-5
5.30	2.10	169.65	1,39E-5	1,44E-5	2,15E-5	2,26E-5	1,87E-5	8,98E-6
3.82	2.10	188.43	1,40E-5	1,61E-5	2,12E-5	2,63E-5	2,02E-5	1,33E-5
3.82	4.90	182.35	1,40E-5	1,55E-5	2,13E-5	2,51E-5	1,98E-5	1,52E-5
3.52	2.29	191.92	1,40E-5	1,64E-5	2,12E-5	2,70E-5	2,05E-5	1,24E-5
3.59	0.59	194.53	1,40E-5	1,66E-5	2,11E-5	2,75E-5	2,07E-5	7,52E-6
1.56	1.85	224.91	1,41E-5	1,92E-5	2,06E-5	3,38E-5	2,33E-5	1,54E-5

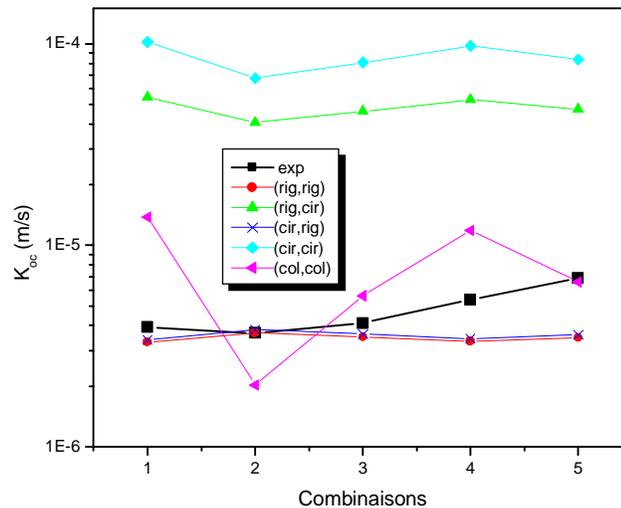


Figure 5.17. Comparaison du K_{oc} expérimental pour la colonne à garnissage et celui calculé par les nouvelles combinaisons pour différents points opératoires de la colonne (Système : n-butanol/acide succinique/eau)

Tableau 5.14. Coefficient de TDM global K_{oc} donné par les différentes combinaisons et l'expérimental pour le système : n-butanol/acide succinique/eau

Vd (mm/s)	Vc (mm/s)	Re	(rig,rig) m/s	(rig,cir) m/s	(cir,rig) m/s	(cir,cir) m/s	(col _c ,col _d) m/s	Exp m/s
0.92	2.09	22.51	3,30 10 ⁻⁶	5,44 10 ⁻⁵	3,39 10 ⁻⁶	1,02 10 ⁻⁴	1,37 10 ⁻⁵	3,91 10⁻⁶
2.72	2.09	15.43	3,67 10 ⁻⁶	4,07 10 ⁻⁵	3,81 10 ⁻⁶	6,75 10 ⁻⁵	2,02 10 ⁻⁶	3,67 10⁻⁶
2.1	2.09	18.10	3,51 10 ⁻⁶	4,62 10 ⁻⁵	3,63 10 ⁻⁶	8,07 10 ⁻⁵	5,62 10 ⁻⁶	4,10 10⁻⁶
1.23	0.89	21.58	3,34 10 ⁻⁶	5,27 10 ⁻⁵	3,44 10 ⁻⁶	9,76 10 ⁻⁵	1,18 10 ⁻⁵	5,37 10⁻⁶
1.29	4.13	18.70	3,48 10 ⁻⁶	4,74 10 ⁻⁵	3,59 10 ⁻⁶	8,37 10 ⁻⁵	6,58 10 ⁻⁶	6,85 10⁻⁶

Pour les deux systèmes, à diamètre fixe, le coefficient global varie en fonction des vitesses superficielles des deux phases, et donc du nombre de Reynolds.

Pour le premier système, les gouttes sont relativement larges et il peut être remarqué que le résultat donné par la combinaison des nouvelles corrélations (équations 5.5 et 5.10) est proche de celui donné par [37] et les points qui montrent des écarts importants à savoir le 4 et le 8 correspondent à des vitesses superficielles très élevées de l'une des deux phases. On note aussi que pour ce système l'application de la nouvelle combinaison (rigide, rigide) donne un meilleur résultat, ceci peut être dû, au fait que le Re soit celui d'un régime plutôt laminaire.

Ce qui confirme des observations notées par certains auteurs concernant les valeurs expérimentales des coefficients de transferts de matière dans le cas des colonnes, et qui sont très inférieures à ceux calculées par différentes corrélations et théories existantes [5].

Pour le deuxième système, les gouttes sont très fines, et le résultat obtenu est exactement celui auquel on s'attendait : c'est la nouvelle combinaison (rigide, rigide) qui donne un résultat très satisfaisant, avec une erreur relative moyenne de 23.2% cette combinaison peut être retenue pour ce cas limite de comportement de goutte étant donné la taille moyenne des gouttes et aussi le Re qui varie entre 15.5 et 22.5.

Le régime d'écoulement est un facteur très important dans le choix de la combinaison adéquate, lorsque le diamètre de goutte est supposé moyen et est égal à une valeur moyenne.

Donc en résumé, la combinaison à retenir pour système à goutte unique peut s'avérer ne pas être adéquate dans le cas de colonne à garnissage.

5.6. Modélisation de la colonne d'extraction à garnissage

Dans cette partie nous allons modéliser une colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage et obtenir les profils des concentrations le long de la colonne, en considérant les différents cas suivants: unidimensionnel avec dispersion axiale en régime permanent et transitoire, et bidimensionnel avec dispersion axiale et radiale en régime permanent.

Le système utilisé est : acétone/toluène/eau, où le transfert de l'acétone se fait de la phase dispersée (organique) vers la phase continue (aqueuse). La phase dispersée entre avec une certaine fraction molaire du soluté, notée y_e de 0.0553, et la fraction à la sortie de la colonne est obtenue expérimentalement par analyse et est notée y_s , la phase continue entre pure en soluté et sort avec une fraction molaire de x_s de 0.0456. La colonne utilisée est celle décrite dans la section précédente. Le coefficient de transfert global en phase dispersée est calculé par la nouvelle combinaison retenue. Les résultats expérimentaux de Seibert et Humphrey [37], ne donnent pas la variation de la concentration ou des fractions molaires le long de la colonne mais uniquement la fraction molaire à la sortie de la colonne y_s , et la validité des résultats obtenus dans ce présent travail ne concernera donc que cette dernière valeur. La résolution de l'équation différentielle du cas considéré est obtenue en utilisant la méthode des éléments finis et un code Mathcad dont l'organigramme est donné en annexe 3, a été utilisé. La validité des résultats et la précision de la méthode utilisée ont déjà été testées en comparant le résultat analytique du problème simplifié à celui donné par le programme [39]. Nous allons donc étudier l'effet de la dispersion sur les profils axial et radial, ainsi que l'effet du changement des conditions aux limites à la paroi.

5.6.1. Cas unidimensionnel avec dispersion axiale en régime permanent

On résout l'équation différentielle obtenue pour le cas permanent en prenant en considération la dispersion axiale, ce qui se résume en l'équation différentielle suivante :

$$-fV_d \frac{\partial y}{\partial z} + E_z f \frac{\partial^2 y}{\partial z^2} - K_{od} a(a y + b) = 0 \quad (5.10)$$

Avec E_z , est le coefficient de dispersion en phase dispersée exprimée en terme de nombre adimensionnel de Pe_d et qu'on calcule en fonction du point opératoire considéré : V_c , V_d .

Les conditions limites utilisées sont comme suit:

$$\text{À } z = 0, y = y_e \text{ et à } z = H, \frac{\partial y}{\partial z} = 0 \quad (5.11)$$

On utilise 12 éléments linéaires avec deux nœuds par élément (Figure 5.18) et un polynôme de Lagrange du premier degré. En régime permanent, la variation de la fraction molaire le long de la colonne est montrée sur le graphe de la figure 5.19. Elle diminue en fonction de la hauteur de la colonne.

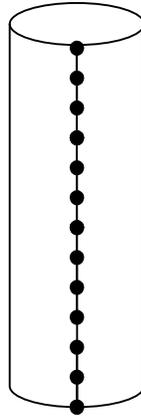


Figure 5.18 Discrétisation du domaine avec 12 éléments linéaires

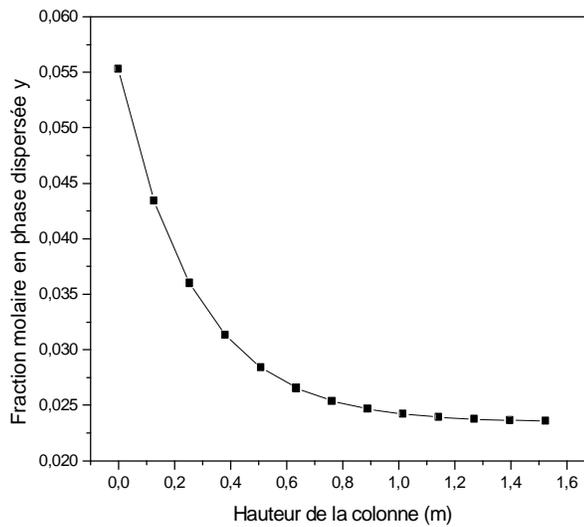


Figure 5.19 Variation de la fraction molaire du soluté en phase dispersée le long de la colonne ($V_c=2.10\text{mm/s}$, $V_d=4.75\text{mm/s}$ et $E_z = 1.66 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ ou $Pe_d=0.023$)

Afin d'étudier l'effet de la dispersion axiale sur le profil de la fraction molaire le long de la colonne, on compare le résultat obtenu avec celui dans le cas où la dispersion axiale est considérée nulle. Pour ce dernier cas l'équation différentielle est simplifiée et une solution analytique donnant la variation de la fraction molaire en fonction de la hauteur de la colonne est donnée par :

$$y = \left(y_e + \frac{b}{a} \right) \exp\left(-\frac{K_{od} a a}{V_d f} z \right) - \frac{b}{a} \quad (5.12)$$

Les valeurs obtenues sont données au tableau 5.15. D'après ces résultats, les fractions molaires augmentent légèrement en présence de dispersion axiale le long de la colonne, mais son effet est considéré négligeable et s'annule même lorsqu'on s'approche de la sortie de la colonne. L'erreur relative entre valeur expérimentale de la fraction molaire et calculée à la sortie de la colonne est de: 28%

Tableau 5.15. Effet de la dispersion axiale sur le profil axiale de la fraction molaire

Hauteur (m)	Fractions molaires du soluté dans la phase dispersée	
	Sans dispersion (analytique)	Avec dispersion axiale
0	0,0553	0,0553
0,127	0,04339062	0,04344338
0,254	0,03593471	0,03600168
0,381	0,03126692	0,03132914
0,508	0,02834463	0,02839757
0,635	0,02651512	0,02655552
0,762	0,02536976	0,02540146
0,889	0,02465269	0,02467429
1,016	0,02420378	0,02422119
1,143	0,02392273	0,02393264
1,27	0,02374678	0,02375658
1,397	0,02363662	0,02363985
1,524	0,02356766	0,02357419

y_s (exp)	0.0328
-------------	--------

5.6.2. Cas unidimensionnel avec dispersion axiale en régime transitoire

On cherche le profil de la fraction molaire le long de la colonne en fonction du temps, en prenant en considération la dispersion axiale, on résout donc l'équation différentielle suivante:

$$-fV_d \frac{\partial y}{\partial z} + E_z f \frac{\partial^2 y}{\partial z^2} - K_{od} a(a y + b) = fV_d \frac{\partial y}{\partial t} \quad (5.13)$$

En plus des conditions aux limites utilisées ci-dessus, on utilise la condition initiale :

$$\text{À } t=0 : y = y_e$$

Dans le domaine du temps, la méthode des différences finies est utilisée avec les algorithmes d'Euler, de Crank-Nicholson, de Galerkin et des différences finies en arrière (Backward). Ceux d'Euler et de Crank-Nicholson se sont avérés inadéquats donnant des résultats physiquement inacceptables (fractions négatives ou très supérieures à zéro, de l'ordre de 10^{20} et plus), la stabilité de la réponse des différents algorithmes est donnée sur le tableau 5.16. Nous avons donc représenté la fraction molaire à la sortie de la colonne donnée par l'algorithme de Galerkin et celui des différences finies en arrière (backward) sur la figure 5.20, avec un pas de 2s (on utilise les mêmes conditions opératoires que précédemment). Les deux algorithmes tendent vers la même valeur caractérisant le régime permanent mais l'algorithme des différences en arrière est plus stable et converge beaucoup plus vite. La figure 5.21, montre que le régime permanent est atteint pour tous les points de la colonne en utilisant l'algorithme backward et avec un pas de 2s. Après près de 10s, les fractions molaires sont exactement les mêmes obtenues en régime permanent et données au tableau 5.15, donc même sur le profil transitoire l'effet de la dispersion axiale est négligeable.

Tableau 5.16. Stabilité des algorithmes utilisés

Algorithme	Euler $\theta=0$	Crank-Nicholson $\theta=0.5$	Galerkin $\theta=2/3$	Backward $\theta=1$
Δt_{crit}	-0.5	indéterminé	1.5	0.5
Stabilité	Très instable	Très instable jusqu'à	Oscille jusqu'à	Oscille jusqu'à

	$\forall \Delta t$	$\Delta t=5$	$\Delta t=\Delta t_{crit}$	$\Delta t=0.4$
--	--------------------	--------------	----------------------------	----------------

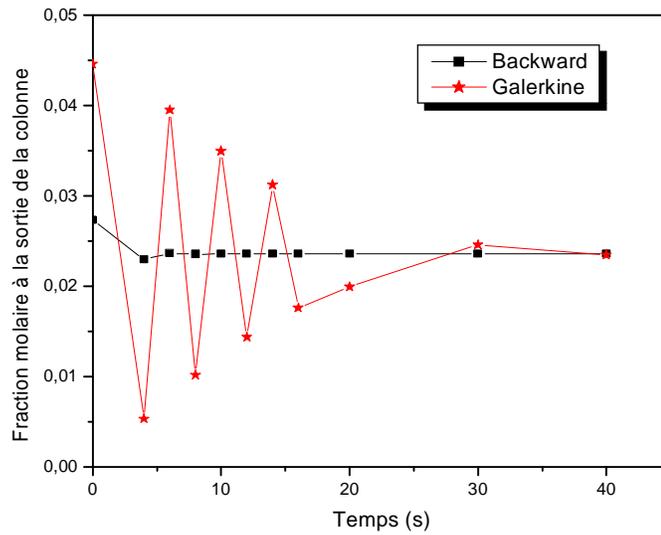


Figure 5.20. Profil transitoire de la fraction molaire à la sortie de la colonne avec $\Delta t = 2s$

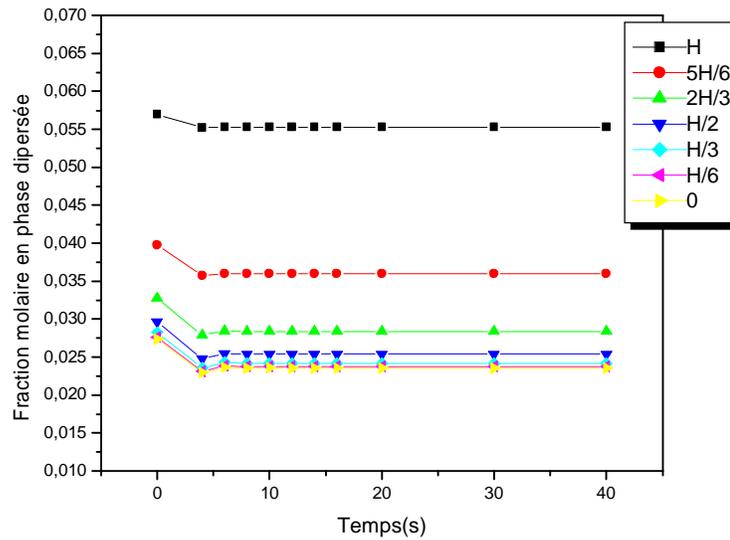


Figure 5.21. Profil transitoire le long de la colonne avec l'algorithme des différences en arrière avec $\Delta t = 2s$

5.6.3. Cas bidimensionnel en régime permanent

Le traitement du problème bidimensionnel permet d'étudier l'effet de la dispersion radiale sur le profil de la concentration le long de la colonne. L'équation différentielle à résoudre est :

$$-fV_d \frac{\partial y}{\partial z} + E_z f \frac{\partial^2 y}{\partial z^2} + E_r f \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial y}{\partial r} \right) - K_{od} a(a y + b) = 0 \quad (5.14)$$

La dispersion radiale E_r a souvent été négligée, car les profils obtenus radialement étaient plats, et ce résultat a été attribué par [13] lors de leur modélisation d'une colonne de distillation, au fait qu'on ait utilisé des conditions aux limites sur les gradients de concentrations à la paroi et à l'axe de la colonne nuls :

$$\text{À } r = 0, \quad \frac{\partial y}{\partial r} = 0 \quad \text{et sur la paroi à } r = R, \quad \frac{\partial y}{\partial r} = 0 \quad (5.15)$$

En effectuant des expériences numériques et en attribuant au gradient à la paroi des valeurs différentes de zéro (sans sens physique), ils ont trouvé que le profil radial n'était plus plat et la concentration changeait radialement en fonction des valeurs de la limite imposée.

Dans le cas de l'extraction liquide-liquide le gradient à la paroi est différent de zéro et est donné par certains auteurs [5, 13], comme suit :

$$\left. \frac{dy}{dr} \right|_{r=R} = -\frac{K_{od}}{D_r} (y - y_\infty) \quad (5.16)$$

Avec y_∞ : fraction obtenue à hauteur ∞ de la colonne (considérée nulle)

Nous avons testé l'utilisation des deux conditions limites proposées, afin de voir leur influence sur le profil radial.

Le maillage du domaine est discrétisé par des éléments triangulaires linéaires, en coordonnées naturelles pour simplifier la différentiation et l'intégration des termes des matrices et vecteurs caractéristiques des éléments. On a utilisé 36 éléments triangulaires linéaires (avec 3 éléments pour le rayon et 7 éléments pour la hauteur) et 48 éléments (on a augmenté le nombre d'éléments utilisé radialement). La figure 5.22, montre les maillages utilisés pour discrétiser la colonne.

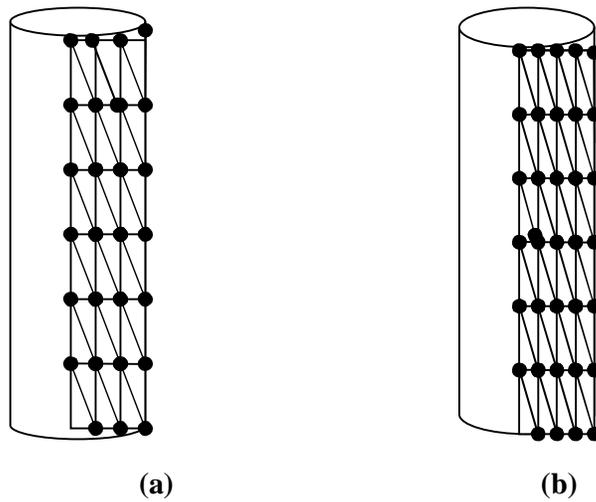


Figure 5.22. Discretisation du domaine par **a)** 36 éléments et **b)** 48 éléments

a. Gradient nul à la paroi

Sur les tableaux 5.17 et 5.18 sont montrés les résultats obtenus en utilisant 36 éléments et 48 respectivement, et ceci pour le cas où le gradient à la paroi est considéré nul. Le changement de la fraction molaire dans la direction radiale existe mais il est négligeable même en augmentant le nombre d'éléments dans cette direction on obtient le même résultat. On note par contre une variation des fractions molaires à l'axe de la colonne, par rapport à ceux du cas unidimensionnel. L'erreur relative entre valeur expérimentale de la fraction molaire et calculée à la sortie de la colonne est de: 23% pour les deux maillages considérés.

Si on trace le profil radial de la fraction molaire on obtiendrait des profils plats, où la variation n'apparaît pas (Figure 5.23), pour cette raison pour mieux la montrer, nous avons choisi de tracer la variation d'une certaine fraction adimensionnelle donnée comme suit :

$$\frac{y|_r - y|_{r=0}}{y|_{r=0}} \quad (5.17)$$

Le profil obtenu avec cette dernière fraction adimensionnelle montre la variation radialement

même si elle est considérée négligeable (Figure 5.24), et qui est la même pour les deux maillage utilisés. Donc on peut dire que la dispersion radiale n'a pas d'effet sur le profil radial mais elle influe sur le profil axial et ceci en utilisant un gradient nul à la paroi.

Tableau 5.17. Profil bidimensionnel avec gradient nul à la paroi (36 éléments)

Hauteur (m)	Fraction molaire analytique	Fraction molaire à différents points radiaux			
		0	R/3	2R/3	R
0	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553
0.254	0.03593	0.041957	0.041962	0.041968	0.041974
0.508	0.02833	0.034209	0.034213	0.034216	0.034219
0.762	0.02536	0.029709	0.029711	0.029713	0.029715
1.016	0.02419	0.027113	0.027114	0.027115	0.027115
1.27	0.02374	0.025688	0.025688	0.025688	0.025688
1.524	0.02356	0.025201	0.025204	0.025207	0.02521

Tableau 5.18. Profil bidimensionnel avec gradient nul à la paroi (48 éléments)

Hauteur (m)	Fraction molaire analytique	Fraction molaire à différents points radiaux				
		0	R/4	R/2	3R/4	R
0	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553
0.254	0.03593	0.04196	0.041963	0.041966	0.041969	0.041972
0.508	0.02833	0.034211	0.034213	0.034215	0.034217	0.034219
0.762	0.02536	0.02971	0.029711	0.029712	0.029713	0.029714
1.016	0.02419	0.027113	0.027114	0.027114	0.027115	0.027115
1.27	0.02374	0.025688	0.025688	0.025688	0.025688	0.025688
1.524	0.02356	0.025202	0.025204	0.025206	0.025207	0.025209

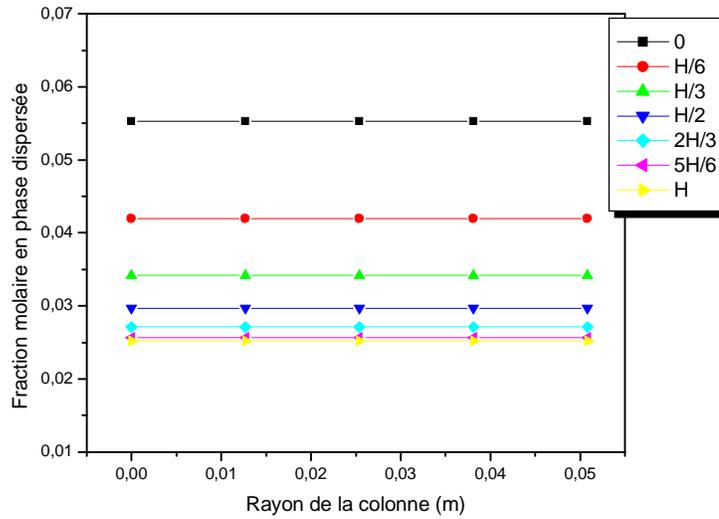


Figure 5.23 Profil bidimensionnel de la fraction molaire avec gradient nul à la paroi (48 éléments)

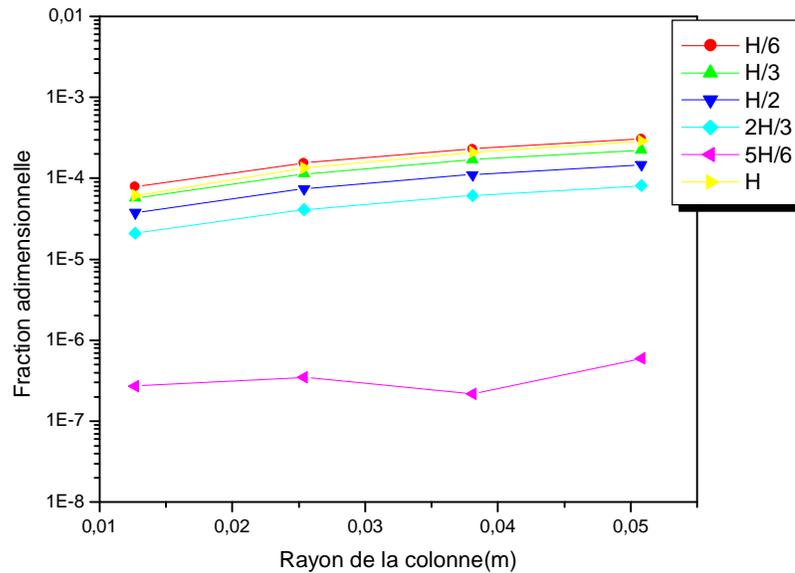


Figure 5.24 Profil bidimensionnel de la fraction adimensionnelle avec gradient nul à la paroi (48 éléments)

b. Gradient non nul à la paroi

Sur les tableaux 5.19 et 5.20, sont montrés les résultats obtenus en utilisant un gradient non nul comme condition limite à la paroi de la colonne pour les deux maillages montrés ci-dessus. La variation radiale reste faible mais elle est plus importante que pour le

cas précédent, et en plus il y a aussi une différence en augmentant le nombre d'éléments radialement. Le profil bidimensionnel en fonction de la fraction molaire (figure 5.25) est presque plat, comparé à celui de la figure 5.23, une légère variation apparaît vers la paroi et la sortie de la colonne. Les profils, en fonction de la fraction molaire adimensionnelle comme définie précédemment, sont montrés sur les graphes des figures : 5.26 et 5.27. Par contre, on remarque que radialement, l'influence de la dispersion radiale est importante et l'erreur relative entre la valeur de la fraction molaire à la sortie donnée par ce modèle est celle expérimentale se réduit à 3.6%.

Tableau 5.19. Profil bidimensionnel avec gradient non nul à la paroi (36 éléments)

Hauteur (m)	Fraction molaire analytique	Fraction molaire à différents points radiaux			
		0	R/3	2R/3	R
0	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553
0.254	0.03593	0.046771	0.046835	0.04698	0.04722
0.508	0.02833	0.041437	0.041494	0.041626	0.041839
0.762	0.02536	0.037995	0.038048	0.038167	0.038361
1.016	0.02419	0.035798	0.035846	0.035957	0.03614
1.27	0.02374	0.034484	0.034529	0.034636	0.034811
1.524	0.02356	0.033997	0.03405	0.034167	0.034353

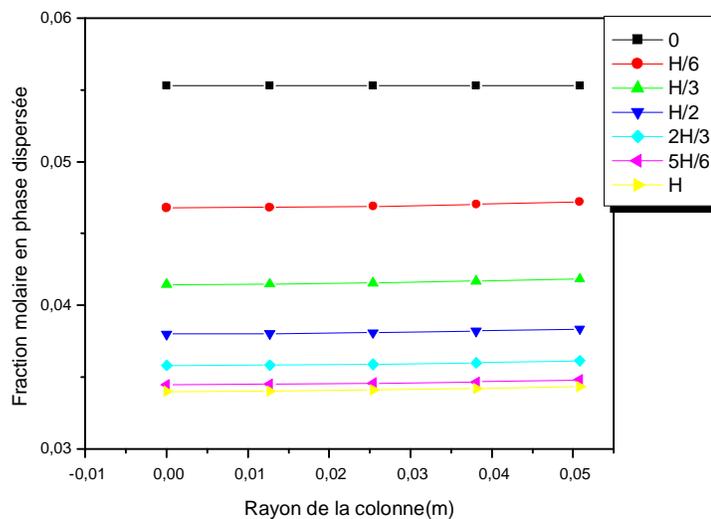


Figure 5.25. Profil bidimensionnel de la fraction molaire avec gradient non nul à la paroi (48 éléments)

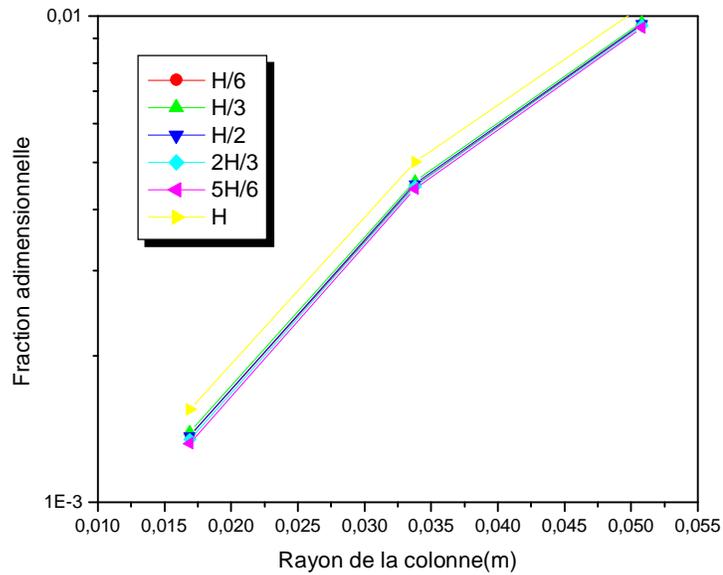


Figure 5.26. Profil bidimensionnel de la fraction adimensionnelle avec gradient non nul à la paroi (36 éléments)

Tableau 5.20. Profil bidimensionnel avec gradient non nul à la paroi (48 éléments)

Hauteur (m)	Fraction molaire analytique	Fraction molaire à différents points radiaux				
		0	R/4	R/2	3R/4	R
0	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553	0.0553
0.254	0.03593	0.0467841	0.0468202	0.0469016	0.0470344	0.0472216
0.508	0.02833	0.0414485	0.0414811	0.0415549	0.0416744	0.041841
0.762	0.02536	0.0380059	0.0380352	0.0381022	0.0382111	0.038363
1.016	0.02419	0.035807	0.0358342	0.0358968	0.0359987	0.0361412
1.27	0.02374	0.0344921	0.0345177	0.0345775	0.0346752	0.0348119
1.524	0.02356	0.0340092	0.0340389	0.0341049	0.0342088	0.0343517

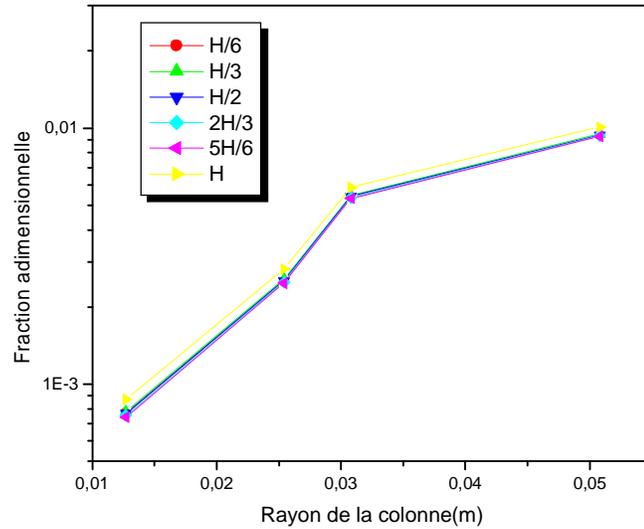


Figure 5.27. Profil bidimensionnel de la fraction adimensionnelle avec gradient non nul à la paroi (48 éléments)

On arrive donc au résultat suivant : le modèle bidimensionnel avec gradient non nul à la paroi comme condition limite à la paroi, est celui qui régit le mieux le comportement de la colonne, même si l'effet de la dispersion radiale ne se manifeste pas beaucoup radialement, elle doit être prise en considération lors de la modélisation des colonnes car son influence est considérable sur le profil axial, cet effet est représenté sur le graphe de la figure 5.28.

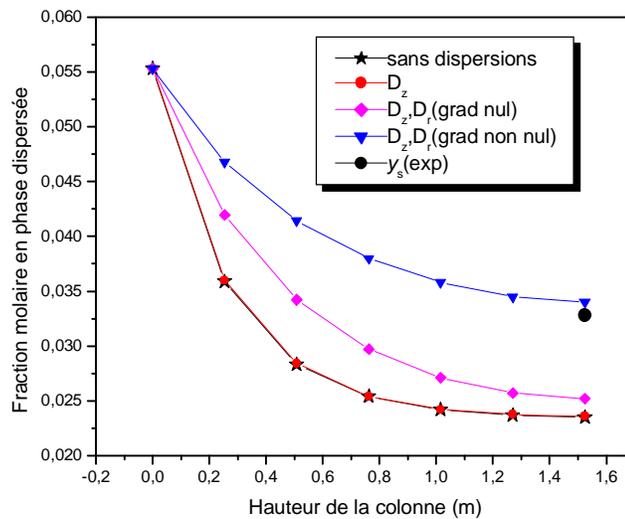


Figure 5.28. Influence des dispersions : axiale et radiale sur le profil axial

CONCLUSION GENERALE

Le travail réalisé est constitué de deux parties, la première concerne l'étude du transfert de matière et la proposition de nouveaux modèles pour représenter le coefficient de transfert pour chaque phase, dans le but d'uniformiser le type de corrélations à proposer, d'y inclure tous les paramètres pouvant influencer le taux de transfert, et de réduire le nombre de modèles proposés dans la littérature afin de simplifier le choix d'une combinaison adéquate. La deuxième, concerne la modélisation de la colonne d'extraction à garnissage, en utilisant le modèle bidimensionnel, prenant ainsi en considération la dispersion dans les deux directions : axiale et radiale, ainsi que l'utilisation d'un gradient non nul comme condition limite à la paroi. Les deux parties sont liées par l'utilisation de la combinaison adéquate pour le calcul du coefficient global de transfert de matière, dans l'équation différentielle représentant le comportement de la colonne.

Pour la première partie, nous avons commencé par une comparaison des corrélations et théories existantes, en les combinant pour calculer le coefficient de TDM global, en effet, pour chaque diamètre de goutte, il est possible de trouver une combinaison très proche du résultat expérimental, toutefois, la recommandation d'une combinaison adéquate pour une taille de goutte donnée reste difficile, les résultats obtenus ne suivent pas toujours la transition entre les modèles suivant la taille de la goutte, ceci est dû d'une part, au nombre important de modèles utilisés et d'une autre, au manque de paramètres pris en considération par ceux-ci. Cette première étude nous a permis de noter que pour un système de viscosités très différentes entre les deux phases, le rapport de celles-ci peut avoir une influence et doit par conséquent être pris en considération. En effet, en l'introduisant dans les équations du diamètre critique de circulation et de la vitesse terminale, les résultats obtenus sont mieux interprétés, toutefois cette correction ne peut être généralisée sauf si elle peut être vérifiée pour d'autres systèmes à propriétés physiques différentes des deux phases.

Cette comparaison nous a conduit à proposer l'approximation des corrélations et théories existantes par de nouvelles formules pour les deux phases, qui auraient pour la phase

continue la forme la plus recommandée par la littérature à savoir: $Sh_c = A Re^B Pe_c^C$, qui a déjà prouvé son efficacité. En revanche, en phase dispersée il y a plus de problèmes et plus de modèles divergents. D'après les corrélations proposées par différents travaux, on a remarqué que les équations n'avaient pas toutes une forme uniforme, en effet, certains nombres adimensionnels sont présents dans certaines équations et pas dans d'autres. L'idée donc, et de proposer pour la phase dispersée, une formule regroupant tous les nombres adimensionnels ayant une influence sur le taux de transfert de matière prouvée par leur utilisation séparément. La forme du nombre de Sherwood adoptée est alors : $Sh_d = A Re^B Fo^C Mo^D Sc_d^E We^F (1 + \mu_d / \mu_c)^G$. Les équations développées ont été testées pour systèmes à goutte unique et ont donné des résultats satisfaisants, et ce pour les deux systèmes : toluène/acétone/eau et butylacétate/acétone/eau, les gouttes de ces deux systèmes, suivent les modèles recommandés pour les cas limites : rigide et à circulation turbulente. Pour la phase de transition, le modèle à suivre dépend du diamètre critique de début de circulation et du rapport des viscosités, en effet, une étude hydrodynamique sur les deux systèmes utilisés, a montré qu'en utilisant un facteur du rapport des viscosités pour corriger les équations du diamètre critique et de la vitesse terminale, les résultats obtenus sont plus proches de l'expérimental. Les combinaisons recommandées dépendent donc de ce diamètre critique.

Les formes adaptées aux cas des colonnes ont été utilisées pour une colonne d'extraction à garnissage, les résultats obtenus pour les deux systèmes : toluène/acétone/eau et n-butanol/acide succinique/eau, sont proches de ceux donnés par l'expérimental pour certaines combinaisons. On a montré aussi que les combinaisons recommandées pour système à goutte unique ne sont pas valables pour le cas des colonnes d'extraction, même pour un même système.

Dans la deuxième partie, les résultats de la modélisation de la colonne, ont montré que la dispersion radiale n'a pas d'effet sur le profil radial, mais le profil axial y est très dépendant. Le modèle bidimensionnel, tenant en compte la dispersion dans les deux directions, avec un gradient non nul comme condition limite à la paroi, est celui qui représente le mieux le comportement de la colonne.

Le manque de données expérimentales sur différents systèmes et pour différentes propriétés physiques des deux phases, ne permet pas une généralisation systématique des résultats obtenus. Cependant les programmes développés sont assez flexibles et offrent la possibilité de changer les propriétés physiques des deux systèmes ainsi que les propriétés du garnissage et les dimensions de la colonne par le biais de différentes expériences numériques.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] A. Kumar and S. Hartland. "Correlations for prediction of mass transfer coefficients in single drop systems and liquid-liquid extraction columns". *Trans IchemE*, vol77, Part A, July (1999);
- [2] M.J.Slater ; M.H.I.Baird; T.B.Liang. «Drop Phase Mass Transfer Coefficients For Liquid-Liquid Systems and the Influence of Packing» *Chem. Eng. Scien*, Vol 43,N°2 (1988);
- [3] M.J.Brodkorb; D.Bosse; C.Von Reden and M.J.Slater. "Single Drop Mass Transfer In Ternary and Quaternary Liquid-Liquid Extraction Systems". *Chem. Eng and Process*. Vol 42. Issue 11. November (2003);
- [4] YI-YOU Huang and S.M.Lu « Continuous Phase Mass Transfer Coefficient for Single Droplets Moving in an Infinite Droplet Chain » *Chem. Eng. Comm*. Vol. 171. pp: 181-194. (1999);
- [5] J.C. Godfrey and M.J.Slater. "Liquid-Liquid extraction equipment" . John Wiley and Sons Ltd. (1994);
- [6] M.J.Slater. "A Combined Model of Mass Transfer Coefficients For Contaminated Drop Liquid-Liquid Systems". *The Canadian Journal Of Chemical Engineering*. Vol.73.(1995);
- [7] Radu Z. Tudose, Gabriela Apreotesei. «Mass Transfer Coefficients in Liquid-Liquid Extraction ». *Chem. Eng. Process*. Vol 40. (2001);
- [8] A.H.P.Skelland; R.M. Wellek. «Resistance to Mass Transfer Inside Droplets» *A.I.Ch.E. Journal*. Vol.10, N°4. (1964);
- [9] Ladislav Steiner. " Mass Transfer Rates From Single Drops And Drop Swarms". *Chem. Eng. Scien*. Vol 41. N°8. (1986);

- [10] Andreas Pfennig et Martin Henschke. "Mass Transfer Enhancement in Single Drop Extraction Experiments". *AIChE Journal*. Oct. Vol 45. N°10. (1999);
- [11] Zai-Sha Mao, Tianwen Li et Jiayong Chen. « Numerical Simulation of Steady and Transient Mass Transfer to a Single Drop Dominated by External Resistance ». *International Journal of Heat and Mass Transfer*. Vol.44. Issue 6. (2001);
- [12] M. Adekoko W; Andreas Pfennig et Martin Henschke. "Mass Transfer by Free and Forced Convection Liquid Drops". *International Journal of Heat and Mass Transfer*. Vol.45. (2002);
- [13] S. Aly., L. Pibouleau et S. Domenech. « Traitement par une Méthode d'Eléments Finis de Modèles de Colonnes de Réctification discontinue à Garnissage », *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, Vol 65, Décembre. (1987) ;
- [14] L. Guangshing, L. Hangbo, F. Weiyang. "A simplified Correlation Of Mass Transfer In a Pulsed Sieve Plate Extraction Columns". *Chem. Eng. Technol.* 21.(1998);
- [15] K. Rajesh Srivastava et J. Babu. "Simulation of Packed bed Separation Process Using Orthogonal Collocation". *Computers and Chemical Engineering*. Vol 8. N° 1. (1984);
- [16] Qi. Mingzhai, L. Markus and A. Vogelpohl. "Mathematical Solution of The Two Dimensional Dispersion Model". *Chem. Eng. Technol.* 25. (2002);
- [17] L. Steiner; H. Bertshmann and S. Hartland. "A Model for Simulation of Hydrodynamics and Mass Transfer in Extraction Columns". *Trans IChemE*. Vol 73, Juillet (1995);
- [18] G. Casamata, C. Gourdon. " Modeling Simulation and Control Processing". Chapter IV: "Liquid-Liquid Extraction", ENSIGC, Toulouse (1993) ;
- [19] Wesselingh, J.A. and A.M. Bollen, « Single Particles, Bubbles and Drops: Their Velocities and Mass Transfer Coefficients. » *Trans. Inst. Chem. Eng.* 77 .p 89-96.(1999) ;
- [20] A. Pfennig. "Modelling Mass Transfer and Equilibria at Liquid-Liquid interfaces". Conference on Transport Phenomena with moving Boundaries. 11th-12th October, Berlin, Germany (2001);

- [21] M. Bhavasar; K.R.Jafarabad; A.B.Pandit et al. "Drop Volumes and Terminal Velocities in Aqueous Two Phase Systems". The Canadian Journal of Chemical Engineering. Vol 74. December. **(1996)**;
- [22] Ingo Wagner and Joham Stichlman. "The Effect of Viscosity on Mass Transfer in Pulsed Sieve Tray Extraction Column" Chem. Eng. Technol.24. **(2001)**;
- [23] L.J. Humphrey; G.E.Keller. «Procédés de Séparation. Techniques, Sélection et Dimensionnement». Edition Dunod. Paris **(2001)**;
- [24] D.Defives, A.Rojey, *Transfert de matière. Efficacité des opérations de séparation*, Edition Technip.**(1976)**;
- [25] J.C. Godfrey et M.J.Slater."Slip Velocity Relationships For Liquid-Liquid Extraction Columns" TransICHEME, Vol 69, Part A **(1991)**;
- [26] A. Kumar and S. Hartland." A Unified Correlation For The Prediction of Dispersed Phase Hold-Up in Liquid-Liquid Extraction Columns". American Chemical Society **(1995)**;
- [27] E. Robert. Treybal."Mass transfer Operations". Mc Graw Hill. Third edition. **(1980)**;
- [28] C. Lorrain. "Extraction Liquide-Liquide". Techniques de l'ingénieur. J2755-1_J2757-13 ;
- [29] H.A.Kooijman ; R. Taylor. «Technical Documentation » Copyright ©. **(1998)**;
- [30] M.J.Slater. «Mass Transfer To Single Drops In Liquid-Liquid Extraction Columns» 2nd internat. Conf. Sep. Scie. Canada **(1989)**;
- [31] K.H.Huebner., E.A.Thornton. " The Finite Element Method For Engineers". Second Edition, A Wiley Interscience Publication, **(1982)**;

- [32] Alaa Chateaneuf. « Comprendre les éléments finis, Principes, formulations et exercices corrigés » Edition Technosup . Paris (2005);
- [33] S.S.Rao. “The Finite Element Method in Engineering”, First Edition, Pergamon Edition Press, (1982);
- [34] M.Boumahrat, A.Gourdin, « Méthodes Numériques Appliquées », Office Des Publications Universitaires (1993);
- [35] Max Feinberg. « La Validation Des Méthodes d’Analyse » Edition Masson Paris (1996) ;
- [36] G.Gneist ; H-J.Bart.”influence of High-Frequency AC Field on Mass Transfer in Solvent Extraction” Journal of electrostatics ELSAT 1741. (2003);
- [37] A.F.Seibert, J.L.Humphrey et J.R.Fair. “Evaluation of Packings for Use in Liquid-Liquid Extraction Columns”, Separation Science and Technology, (1987);
- [38] I. Komasaawa et J.Ingham. ,« Effect of System Properties on the Performance of Liquid-Liquid Extraction Columns-III », Chemical Engineering Science, Vol 33, (1978);
- [39] N.Outili, « Modélisation d’une colonne d’extraction liquide-liquide à garnissage, Etude hydrodynamique et transfert de matière » Thèse de Magister, Université Mentouri Constantine (1999).

ANNEXE 1

VALEURS PROPRES DES EQUATIONS DE KRONIG-BRINK ET HANDLOS-BARON

A.1 Tableau des valeurs propres du modèle de Kronig-Brink

Sh_c	λ_1	λ_2	λ_3	A_1	A_2	A_3
3.20	0.262	4.24		1.49	0.107	
5.33	0.386					
8.00	0.534					
10.7	0.680	4.92		1.49	0.300	
16.0	0.860	5.26		1.48	0.382	
21.3	0.982	5.63		1.47	0.428	
26.7	1.082	5.90	15.7	1.49	0.495	0.205
53.3	1.324	7.04	17.5	1.43	0.603	0.298
107	1.484	7.88	19.5	1.39	0.603	0.384
213	1.560	8.50	20.8	1.31	0.588	0.396
320	1.600	8.62	21.3	1.31	0.583	0.391
∞	1.656	9.08	22.2	1.29	0.596	0.386

A2. Tableau des valeurs propres du modèle de Handlos-Baron

Sh_c	λ_1	λ_2	λ_3	λ_4	C_1	C_2	C_3	C_4
4	2.029	4.913	7.979	11.086	0.159	0.00634		
6	2.289	5.087	8.096	11.173	0.153	0.0109		
8	2.456	5.233	8.205	11.256				
10	2.570	5.354	8.303	11.335	0.142	0.0179	0.00408	
12	2.654	5.454	8.391	11.409				
14	2.717	5.538	8.470	11.477	0.134	0.0220	0.00600	
16	2.765	5.608	8.541	11.541				
18	2.804	5.667	8.603	11.599	0.129	0.0242	0.0119	0.00291
20	2.836	5.717	8.659	11.653				
22	2.863	5.761	8.708	11.703	0.125	0.0255	0.00858	0.00359
32	2.948				0.118			
42	2.993							
62	3.041				0.111			
82	3.080							
102	3.080				0.107			

ANNEXE 2

THÉOREME DE GREEN-GAUSS

Dans la dérivation des équations des éléments finis pour les problèmes bidimensionnels, on a souvent besoin d'évaluer des intégrales du type :

$$\iint_A \mathbf{y} \frac{\partial j}{\partial x} dx dy \quad (1)$$

Où A est la surface d'intégration.

On peut intégrer l'équation précédente par parties pour obtenir :

$$\iint_A \mathbf{y} \frac{\partial j}{\partial x} dx dy = - \iint_A \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial x} j dx dy + \int_{y_1}^{y_2} (\mathbf{y} j) \Big|_{x_1}^{x_2} dy \quad (2)$$

Avec $dy = dC l_x$ où C est la courbe qui délimite la surface A et l_x est le cosinus de l'angle

entre la normale n et la direction x (figure A.1), donc : $\int_{y_1}^{y_2} (\mathbf{y} j) \Big|_{x_1}^{x_2} dy = \oint_C (\mathbf{y} j) dC l_x \quad (3)$

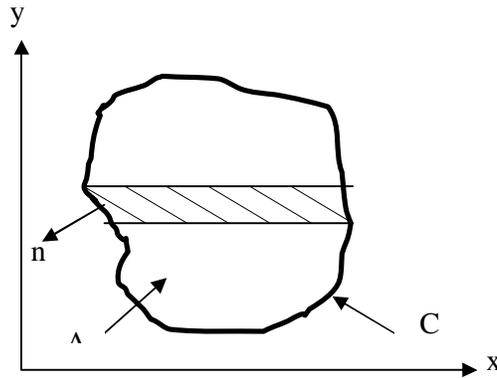


Figure A.1. Courbe limitante de la surface d'intégration

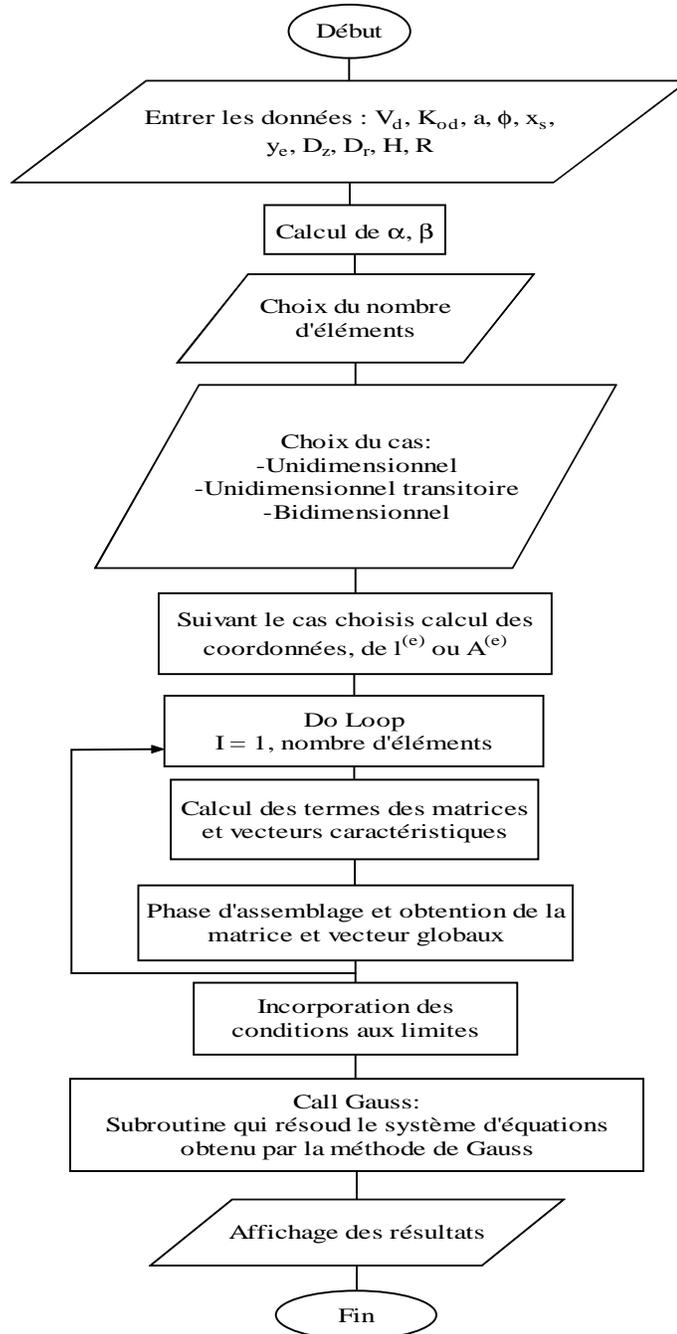
L'intégrale de l'équation (2) devient alors :

$$\iint_A \mathbf{y} \frac{\partial j}{\partial x} dx dy = - \iint_A \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial x} j dx dy + \oint_C (\mathbf{y} j) dC l_x \quad (4)$$

Les conditions aux limites sur le contour de la surface considérée apparaissent dans le terme de l'intégrale de la courbe.

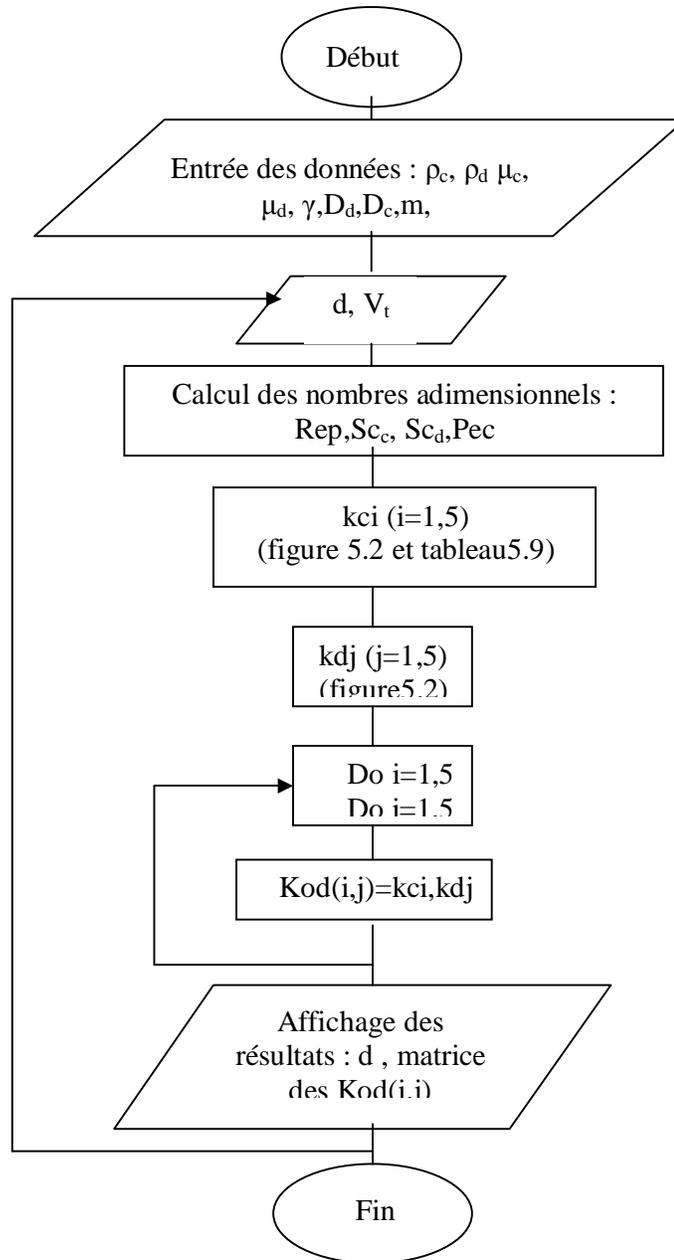
ANNEXE 3

ORGANIGRAMME DU PROGRAMME DES ELEMENTS FINIS

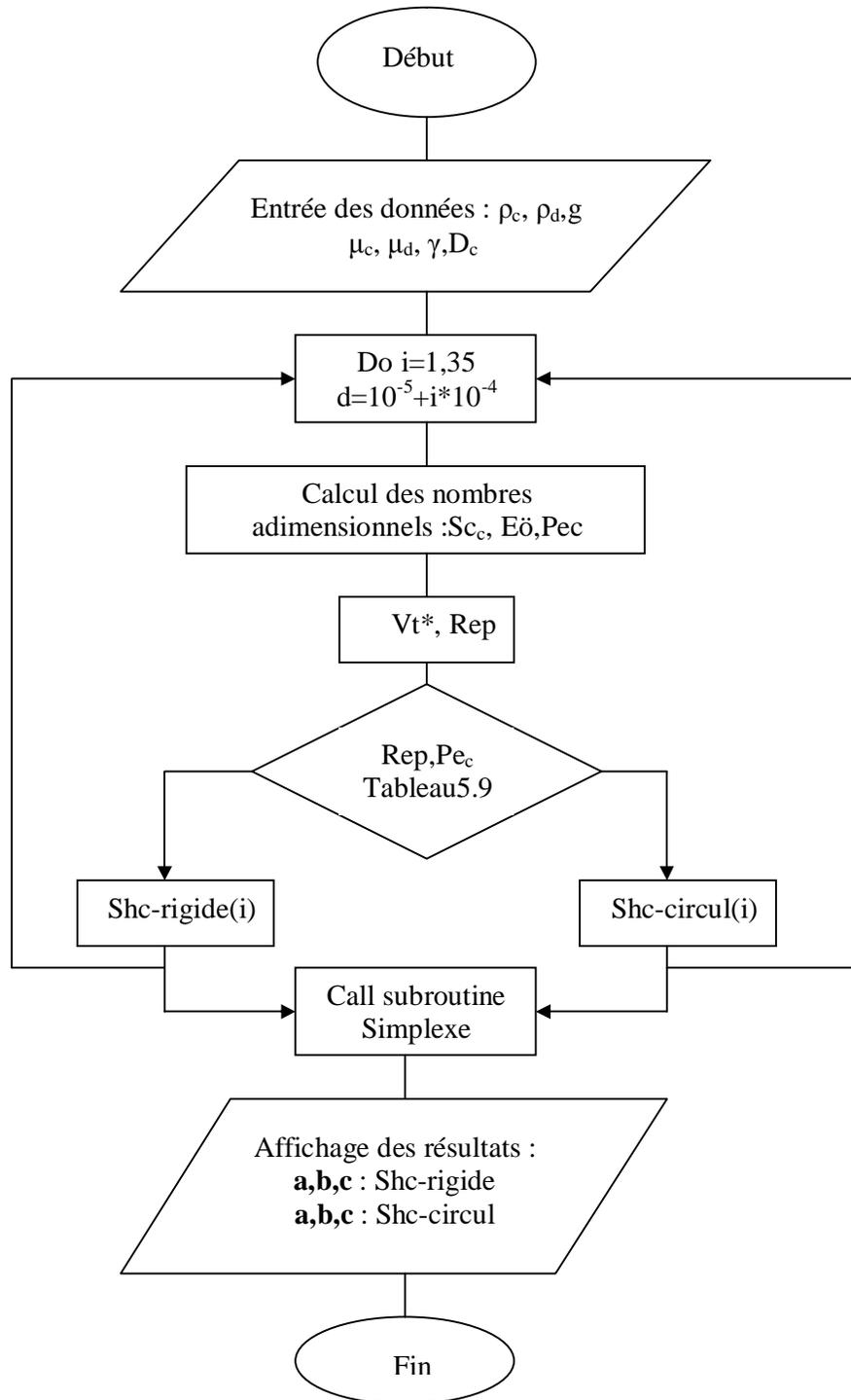


ANNEXE 4

ORGANIGRAMME DU PROGRAMME DES COMBINAISONS DES THEORIES EXISTANTES POUR LE CALCUL DE K_{od}

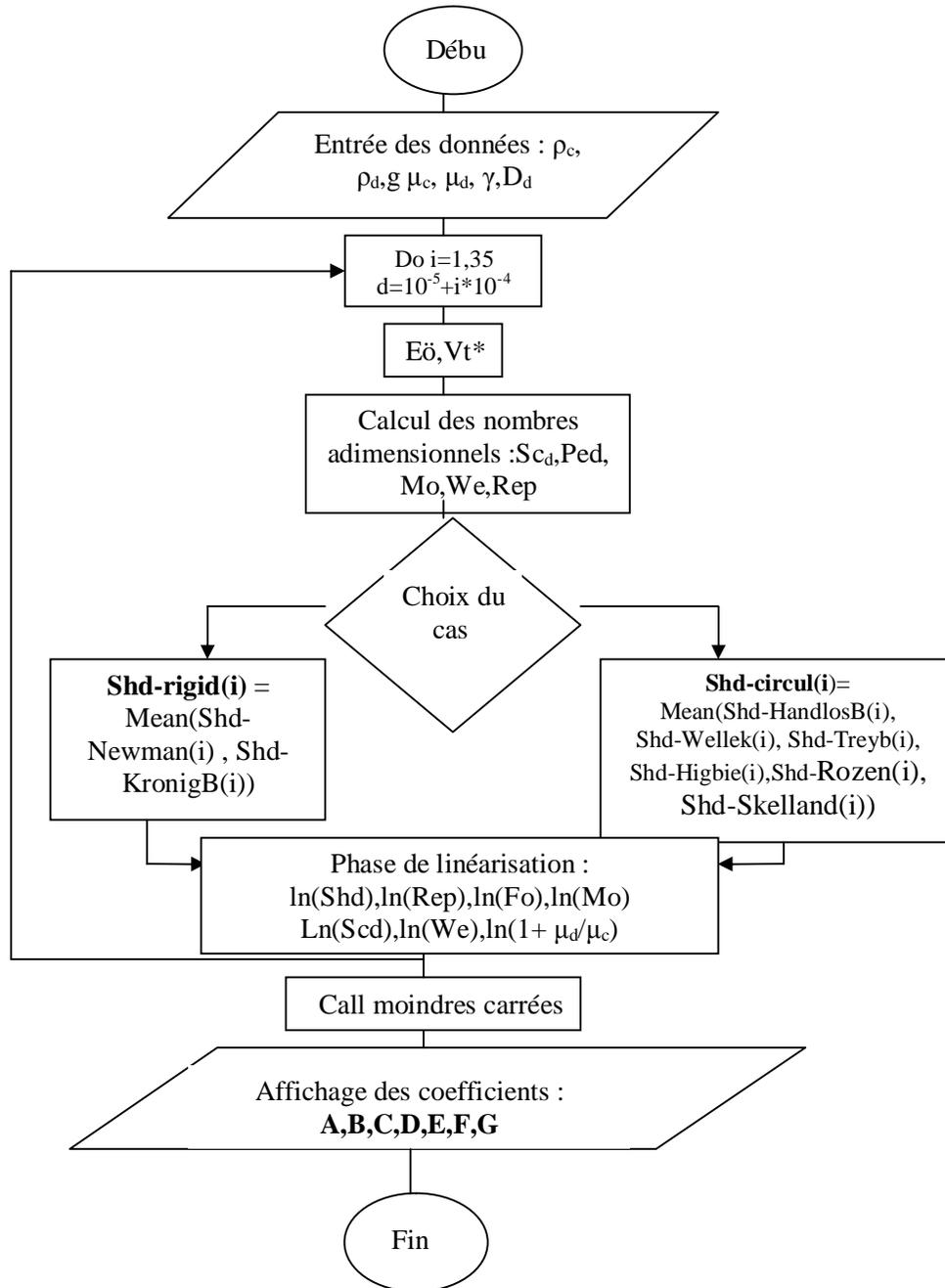


ANNEXE 5
ORGANIGRAMME DU PROGRAMME DE LA NOUVELLE CORRELATION
COTE PHASE CONTINUE



ANNEXE 6

ORGANIGRAMME DU PROGRAMME DE LA NOUVELLE CORRELATION COTE PHASE DISPERSÉE



ملخص

تلقي الأعمدة المعبئة استعمالات كبيرة في عمليات الاستخلاص سائل-سائل غير أن دراسة هذا النوع من الأعمدة لم يحضى باهتمام كبير إذا ما قورن بلاعمدة ذات الطبقات. يعتبر معامل انتقال المادة عنصر أساسى فى دراسة و محاكاة هذه الأعمدة لكن الظواهر الصطحية و عدم التمكن من معرفتها جيداً يجعل حساب هذا المعامل أكثر تعقيداً حتى على مستوى المخبر بالنسبة لنظام ذو القطرة الواحدة. استقطب هذا المجال العديد من البحوث و الأعمال التطبيقية نتجت عنها الكثير من النظريات و العلاقات لحساب هذا المعامل و هذا ما زاد عملية اختيار النموذج المناسب تعقيداً حيث نجد لنفس النظام اختلاف كبير فى القيم المعطاة من مختلف النماذج. كرس القسم الأول من هذا العمل الى حساب معامل-انتقال المادة و هذا بمقارنة مختلف النماذج الموجودة و تم اقتراح علاقات جديدة لاستعمالها فى حالة-أنظمة ذات القطرة الواحدة و ضبطها بعد ذلك على أنظمة الأعمدة المعبئة.

فى القسم الثانى من العمل تم انجاز نموذج رياضى لمحاكاة عمود الاستخلاص باستعمال الطريقة العددية للعناصر الدقيقة و الحصول على تغيرات التركيز على طول العمود و هذا فى حالة الوحدات الأحادية و الثنائية و كذلك فى حالة تغير الزمن.

تم استعمال نظامين مقترحين من طرف الفيدرالية الأوروبية للهندسة الكيميائية و هما أسيتون/طوليان/ماء , بيتانول/حمض-السكسينيك/ماء و فى كلتا الحالتين تكون الطبقة المبعثرة على شكل قطرات و النتائج المحصل عليها قريبة جداً من النتائج التجريبية و هذا بالنسبة للقطرة الواحدة و للعمود المعبئ.

البرامج المعدة و المستعملة للحصول على النتائج المقدمة توفر امكانية استبدال النظام و أبعاد العمود و خصائصه و الحصول على نتائج جديدة.

RESUMÉ

Les colonnes à garnissage trouvent une large application comme contacteur pour systèmes liquide-liquide, telle les processus d'extraction par solvant. Dans la littérature, la modélisation de ce type d'équipement a reçu moins d'attention en comparaison avec les systèmes à étages.

Le coefficient de transfert de masse est un paramètre clé dans l'étude et la modélisation de ce type de colonne, les phénomènes interfaciales rendent l'estimation de ce paramètre difficile même à l'échelle pilote et pour systèmes à goutte unique. Ce sujet a fait l'objet de beaucoup de travaux de recherche et le nombre de corrélations et théories qui ont été proposées par différents travaux compliquent encore plus le choix du modèle à utiliser pour chaque phase.

Dans la première partie de ce présent travail nous nous sommes intéressé au calcul du coefficient de transfert de matière en comparant les modèles existants et en proposant de nouvelles corrélations comme résultat des différents travaux couvrant un large intervalle d'utilisation. Les modèles sont ensuite adaptés au cas des colonnes d'extraction à garnissage. Les résultats obtenus sont satisfaisants pour les deux cas de systèmes : à goutte unique et en colonnes.

En deuxième partie un modèle mathématique de simulation de colonne a été développé en utilisant la méthode des éléments finis et en adoptant le modèle de remélange axial (backmixing). Des profils de concentration sont obtenus le long de la colonne : profil axial en prenant en compte la dispersion axiale en régime permanent et transitoire, profil bidimensionnel avec dispersion dans les deux directions radiale et axiale, le modèle utilise les paramètres hydrodynamiques et de transfert de matière obtenus dans la première partie.

Trois systèmes standards recommandés par la fédération européenne de génie chimique: toluène /acétone /eau , butylacétate/acétone/eau et n butanol/acide succinique/eau, ont été utilisés pour valider les résultats obtenus dans la première étude hydrodynamique et de transfert de matière. Les résultats donnés, sont proches de ceux de l'expérimental dans le cas de système à goutte unique et aussi pour colonne à garnissage.

Dans chaque partie, des programmes ont été développés et qui offrent la possibilité de changer les données d'entrée, à savoir les propriétés physiques des deux phases ainsi que les propriétés du garnissage et les dimensions de la colonne.

Mots clés : Extraction; Transfert de matière; Goutte; Phase dispersée; Continue; Coefficient de transfert, modélisation des colonnes garnies; mélange axial

ABSTRACT

The packed columns find a large application like contactor for liquid-liquid systems such process of solvent extraction. In the literature, the modeling of this type of equipment received less attention in comparison with the stage systems.

The mass transfer coefficient is a key parameter in the study and the modeling of this type of column. The interfacial phenomena return the estimate of this parameter so difficult even on a pilot scale and for the single drop systems. This was the subject of many research tasks and the number of correlations and theories which were proposed by various work complicate even more the choice of the model to be used for each phase with an aim of a good estimate of the global mass transfer coefficient, more especially as for the same system the difference between the values given by various models is sometimes very significant.

In the first part of this present work we were interested in calculation of the mass transfer coefficient by comparing the existing models and by proposing new correlations like result of various work and covering a broad interval of use. The models are then adapted to the case of the packed columns of extraction and the results are satisfactory for the two cases of systems: with single drop and in columns.

In second part a mathematical model of simulation of column was developed by using the finite element method by adopting the backmixing model and concentration profiles are obtained along the column: axial profile by taking of account axial dispersion in steady and transitory operation and two-dimensional profile with dispersion in the two directions radial and axial, the model uses the hydrodynamic the mass transfer parameters obtained in the first part.

A standard system recommended by European federation of chemical engineering: toluene/acetone/water, butyle acetate/acetone/water and n butanol / succinic acid / water, where the dispersed phase is injected in the form of drops, were used to validate the results obtained in the first hydrodynamic and mass transfer study and also to validate the mathematical model, the results given are close to those experimentally obtained in the case of single drop system and also for packed column.

In each part, programs were developed and which make possible to change the data input, namely the physical properties of the two phases as well as the properties of the packing and dimensions of the column.

Key words : Extraction; Mass transfer ; Drop; Dispersed phase ; Continuous phase ; transfer coefficient, packed column modelisation ; axial mixing

TRAVAUX PUBLIES

Simulation d'une colonne d'extraction liquide-liquide avec la méthode numérique des éléments finis

N. Outili, A-H. Meniai*, M. Bencheikhelhocine, A. Boucherit

***Laboratoire de l'ingénierie des procédés d'environnement. Département de Chimie industrielle, Faculté des ingénieurs Université Mentouri, Constantine.**

Résumé

Un modèle numérique utilisant la méthode numérique des éléments finis a été développé afin de simuler des profils de concentration le long d'une colonne d'extraction liquide-liquide à garnissage. Le modèle utilise la méthode de Galerkin pour la formulation des matrices et vecteurs caractéristiques, le polynôme d'interpolation de Lagrange et offre la possibilité d'augmenter le nombre d'éléments afin de tester l'exactitude de la méthode.

L'étude traite le problème unidimensionnel avec et sans dispersion dans le cas permanent et transitoire ainsi que le problème bidimensionnel pour vérifier l'effet de la dispersion radiale sur le profil axiale de la concentration le long de la colonne.

Mots clés : Modélisation des colonnes, colonnes à garnissage, dispersion, extraction liquide-liquide, méthode des éléments finis.

ETUDE DE TRANSFERT DE MATIERE DANS UNE COLONNE D'EXTRACTION LIQUIDE-LIQUIDE A GARNISSAGE

N.Outili, A-H. Meniai,*

**Departement de chimie industrielle. Constantine. E-mail : N_outili@yahoo.fr*

Résumé

Il existe plusieurs théories qui permettent de calculer le coefficient de transfert individuel et chacune a un domaine d'application bien précis qui dépend de la nature de la phase : continue ou dispersée et de la taille des gouttes dans le cas d'une phase dispersée. Chaque théorie est fondée sur un mode de transfert différent, pour la phase dispersée il dépend essentiellement du comportement des gouttes, qui est directement lié a leur taille. Cependant une estimation précise du coefficient de transfert global dépendra du choix de la théorie a utiliser afin de calculer le coefficient individuel côté phase continue et celui de la phase dispersée. Dans ce présent travail nous avons proposé plusieurs combinaisons pour le calcul du coefficient global pour deux systèmes différents : Acétone/ toluène/ eau et n-butanol/ acide succénique/ eau, dont le premier se disperse en gouttes de taille relativement grande et le deuxième en petites gouttes.

Mots clés : Extraction; Transfert de matière; Goutte; Phase dispersée; Continue;

Coefficient de transfert, modélisation des colonnes garnies

CONTINUOUS PHASE MASS TRANSFER COEFFICIENT CORRELATION FOR SINGLE DROPS SYSTEMS AND LIQUID- LIQUID EXTRACTION COLUMNS

N.Outili*, A-H. Meniai,

*Departement de chimie industrielle. Constantine. E-mail : N_outili@yahoo.fr

Abstract

A large number of theories are reported in the literature for the calculation of individual mass transfer coefficients and each has a well defined application range, which depends on the nature of the phase and the transfer mode which depends essentially on the drop behaviour. The reliability of the design of any liquid-liquid extraction equipment depends upon the accuracy of the correlation chosen for the calculation of the coefficient; the designer is very often faced with the problem of choosing the most appropriate one. In the present work, different correlations for the calculation of the Sherwood number for the continuous phase are compared and new correlations are developed numerically for rigid drops, circulating and oscillating drops in single drops systems. For liquid-liquid extraction packed columns, a correlation is obtained which combined the different transfer mode. The values of the individual mass transfer coefficients in the continuous phase were correlated and expressed in the form of criterial equation: $Sh_c = A Re^B Pec^C$. The values calculated by these correlations are very close to the values using the adequate correlation chosen from a large number of those proposed in the literature.

Keywords: Mass transfer coefficient, Liquid-liquid extraction, Sherwood number, continuous phase mass transfer