





MASTER SCIENCE DE LA MATIÈRE École Normale Supérieure de Lyon Université Claude Bernard Lyon I Stage 2019–2020 Eden DZIK M2 Physique

Écoulements gaz-liquide dans une mousse solide à cellules ouvertes.

Résumé : Les mousses solides à cellules ouvertes sont des matériaux nouvellement envisagés en chimie industrielle pour la catalyse. L'étude de l'écoulement d'eau et d'air à travers un tel matériau dans une cellule à géométrie 2D permet d'établir son efficacité en terme de surface de contact gaz-liquide. On étudie notamment l'effet de la flottabilité en changeant l'inclinaison de la cellule, et cette du débit d'air. Un transition de régime hydrodynamique à un angle $\alpha = 75^{\circ}$ pour tous les débits est mise en évidence, et un modèle est proposé, qui s'appuie sur une étude de la répartition des diamètres et des vitesses des bulles dans la cellule. Le modèle reproduit la transition, bien qu'à un angle plus faible, et l'écart avec les valeurs expérimentales est expliqué par l'approximation faite sur les diamètres des bulles.

Mots clés :mousse solide, Hele-Saw, écoulements conjoints, bulles, transition

Stage encadré par : Valérie VIDAL valerie.vidal@ens-lyon.fr Laboratoire de Physique, ENS de Lyon-CNRS



Remerciements

D'abord, j'aimerais beaucoup remercier Valérie Vidal, mon encadrante de stage, qui m'a soutenu pendant ces 4 mois sans jamais me lâcher. Elle a été très compréhensive et elle a réussi à me faire faire de la physique sans stress et avec plaisir, alors que ma vie a été très compliquée ces temps-ci. Ce stage a vraiment été une bouffée d'air frais dans ma vie. Ensuite, merci à Caroline Crauste, qui m'a supporté et encouragé pendant le stage (et depuis très longtemps). Je pense que je jamais je n'aurais pu aller au bout du M2 sans elle. Je remercie aussi mes compagnes de salle de manip, Chaimae et Alice, qui ont rendu l'ambiance au travail très sympa. Merci à Denis Bartolo pour m'avoir aider à surmonter les problèmes liés à mon parcours et à l'administratif. Et merci au laboratoire de m'avoir accueilli avec autant de chaleur et de bonne ambiance.

Table des matières

1	Introduction	4
2	Dispositif expérimental	5
	2.1 Montage	5
	2.2 Protocole	6
	2.3 Traitement des images	7
3	Analyse globale	8
	3.1 Observations et grandeurs d'intérêt	8
	3.2 Surfaces spécifiques	8
	3.3 Cartes de mélange et de mouvement d'interface	11
4	Analyse locale	14
	4.1 Modèle de la transition	14
	4.2 Diamètre des bulles	14
	4.3 Vitesse des bulles	15
	4.4 Comparaison entre le modèle et l'expérience	18
5	Conclusions	20

Liste des symboles

α	angle de la cellule	0
ϵ	fraction surfacique de gaz totale	_
ϵ_b	fraction surfacique d'une bulle	_
γ	rapport des diamètres des 2 populations de bulles	_
ξ	fraction de bulles de diamètre d_1 dans le modèle modifié	_
a^{gb}	surface spécifique des grosses bulles	m^{-1}
a^{gb}_{app}	surface spécifique apparente des grosses bulles	m^{-1}
a_{peri}^{gb}	surface spécifique périmétrique des grosses bulles	m^{-1}
a^{pb}	surface spécifique des petites bulles	m^{-1}
$a_{peri,0}$	surface spécifique périmétrique du gaz à interfaces immobiles	m^{-1}
$a_{peri,c}$	surface spécifique périmétrique du gaz à interfaces mobiles	m^{-1}
$a_{peri,c}^{modele}$	^e Surface spécifique périmétrique calculée par le modèle du gaz à interfaces mobiles	${\rm m}^{-1}$
a_R	surface spécifique hors apparente	m^{-1}
a_{tot}	surface spécifique totale	m^{-1}
c	facteur multiplicatif de $a_{peri,c}^{modele}$ pour obtenir $a_{peri,c}$	_
d	diamètre d'une bulle	m
e	épaisseur de la cellule (gap)	m
I_{gaz}	carte de probabilité p_{gaz} de présence de gaz	_
I_i	carte de probabilité p_i de mouvement d'interface	_
L	hauteur de la cellule	m
N_b^*	nombre de bulles total dans le modèle avec dédoublement	_
N_b	nombre de bulles total dans le modèle sans dédoublement	_
N_b^i	nombre de bulles par injecteur	_
N_i	nombre d'injecteurs	_
n_i	fraction de bulles de diamètre d_i par rapport à N_b dans le modèle avec dédoublement	nt —
P_b	périmètre d'une bulle	m
Q_G	débit de gaz	$\rm mLmin^{-1}$
Q_L	débit de liquide	$\rm mLmin^{-1}$
S^{gb}	surface d'une grosse bulle	m^2
S_{peri}^{gb}	surface périmétrique d'une grosse bulle	m^2
S^{pb}	surface d'une petite bulle	m^2
S_{app}	surface apparente d'une bulle	m^2
$S_{cellule}$	surface de la cellule	m^2
v	vitesse d'une bulle	ms^{-1}
$V_{cellule}$	volume de la cellule	m^3
W	largeur de la cellule	m

1 Introduction

Les écoulements multiphasiques en milieux poreux confinés se rencontrent souvent dans la nature et dans l'industrie. En géophysique, on les retrouve par exemple dans les problèmes de remontée de magma [16] ou de pompage du pétrole [2]. La compréhension plus fine de ces écoulements permettrait alors de mieux prévenir des catastrophes naturelles ou d'optimiser l'exploitation de gisements. En génie chimique, ils sont souvent utilisés pour optimiser des réactions entre plusieurs phases. Pour les réactions en catalyse hétérogène, c'est-à-dire quand des réactifs fluides sont en présence d'un catalyseur solide qui accélère la réaction, l'industrie utilise deux grandes classes de réacteurs [12] : les lits mobiles (colonnes à bulles), qui brassent de manière turbulente réactifs et catalyseur, et les lits fixes, où le catalyseur est fixé tandis que l'ont fait s'écouler les réactifs au travers. On s'intéressera ici aux lits fixes, qui sont généralement composés de milieux granulaires (lits de billes) ou de monolithes. Ils ont l'avantage d'offrir de grandes surfaces de contact entre phases mais entraînent des pertes de débit importantes à cause de la densité du milieu.

L'efficacité de chaque réacteur est déterminée de manière très empirique par les industriels. C'est pour cela qu'une approche hydrodynamique, qui permet d'être plus prédictifs sur les écoulements à l'intérieur des réacteurs, est nécessaire dans cette recherche de performance. Les écoulements confinnés multiphasiques sont bien décrits dans la littérature [10], de même que les écoulements confinés dans les milieux granulaires [13, 1]. Les études expérimentales identifient différents régimes selon la prédominance de la viscosité, des vitesses des fluides, de la gravité, du confinement, du milieu poreux utilisé. L'étude des écoulements multiphasiques en milieu poreux fixe peut être faite en "boite noire", en regardant des propriétés générales de l'écoulement, et des mesures en entrée en sortie de cellule. On utilise notamment la loi de Darcy [9] pour les milieux granulaires, qui relie gradient de pression et vitesse du fluide, et ses corrections à haut Reynolds que sont les lois d'Ergun et de Forchheimer [5, 7]. Pour les applications chimiques, il est aussi intéressant d'étudier le transport d'un réactif à travers le milieu. Des modèles [8, 14] ont été proposés pour tenir compte du caractère non Fickien (ne suivant pas la loi de Fick) des écoulements en milieu poreux. Comme le milieu piège les fluides, on peut le décrire comme une suite de réacteurs parfaitement agités (transport Fickien) associés à des zones mortes (sans mouvement), avec un terme d'échange entre eux.

Jusqu'à maintenant, les principales études de ces écoulements et leur application à la chimie industrielle se sont faites avec des lits de billes. Durant ce stage, j'ai mené l'étude sur une mousse solide à cellules ouvertes (Figure 1). Les mousses solides sont solides et légères, et elles sont très utilisées dans l'industrie, par exemple comme materiau d'isolation ou filtres [11]. Pour la catalyse à l'échelle industrielle, ces matériaux sont nouveaux. Leur avantage principal sur les lits de billes serait leur grande porosité (plus de 90% de vide) couplée à une grande surface de contact. La comparaison a déjà été menée dans la thèse de Marion Serres [11] pour les écoulements confinés à une dimension, en boite noire et par visualisation directe. Le confinement dans un canal microfluidique correspond à une géométrie de réacteur rencontrée régulièrement dans l'industrie. Il a été montré que, dans cette géométrie, ces mousses ne modifient pas notablement les efficacités des réactions chimiques gaz-liquide, mais permettent de gagner un facteur 100 sur l'énergie nécessaire pour forcer les écoulements gaz-liquide dans le milieu poreux. L'étude dans les écoulements à deux dimensions (géométrie courante aussi) par visualisation directe a été initiée par Thomas Busser [4, 3] et Sylvio Rossetti [15]. Mon stage permet d'approfondir cette étude. Je me concentre notamment sur l'effet de la flottabilité et des débits de fluides sur le contact entre phases et la transition entre les différents régimes hydrodynamiques observés.



FIGURE 1 – Photo de la mousse solide NiCrFeAl grossie 50x [4].

2 Dispositif expérimental

2.1 Montage

Le montage, déjà présent lors de la thèse de Marion Serres et modifié lors du stage de Sylvio Rossetti, consiste en une cellule de Hele-Shaw contenant une plaque de mousse solide à la base de laquelle se trouvent des injecteurs d'eau déionisée et d'air (Figure 2).

La cellule est constituée d'un cadre en PEEK¹ maintenant deux plaques de verre trempé (410 x $210 \times 6 \text{ mm}^3$) espacées de 1,75 mm. L'écartement et l'étanchéité sont assurés par un joint en silicone et un vissage dynamométrique de 21 vis. Elle peut être inclinée jusqu'à l'horizontale, et l'angle α est mesuré avec un inclinomètre². Au bas de la cellule se trouvent neuf injecteurs de gaz régulièrement espacés alimentés par un contrôleur de débit³. Chaque injecteur est précédé d'une vanne et d'une vanne pointeau pour contrôler le nombre de d'injecteurs et homogénéiser le débit. L'alimentation en eau se fait aussi par le bas, grâce à une pompe⁴ couplée à un contrôleur de débit⁵. Le cadre est creusé de telle sorte qu'avant de rentrer dans la cellule, l'eau passe dans une chambre qui permet d'homogénéiser l'écoulement en entrée. Pour gagner en visibilité, on ajoute du colorant alimentaire bleu (0.2 % de la fraction volumique totale)⁶ à l'eau déionisée, ce qui ne perturbe pas l'écoulement.

Derrière la cellule se trouve un panneau LED⁷ qui assure un éclairage homogène, relié à une alimentation stabilisée⁸. Fixé devant la cellule, un cadre en profilés soutient une caméra⁹ reliée à un ordinateur et contrôlée par le logiciel PYLON VIEWER ou par Matlab. Cela permet de garder la caméra fixe par rapport à la cellule, même lorsqu'on l'incline.

On utilise une plaque de mousse rigide en alliage de nickel, chrome, fer et aluminium ¹⁰ de taille $300 \times 200 \times 1.7 \text{ mm}^3$. Sa porosité est de 90% et la taille caractéristique de ses pores est $580 \,\mu\text{m}$ (Figure 1).

^{1.} polyétheréthercétone, matériau facilement usinable et inerte chimiquement

^{2.} RS Stock number 667-3916

^{3.} Système Instrumentation Alicat MC-5SLM-D/CM-C2M, 0-5L/min puis Bronkhorst DMFC D-6311 DR

^{4.} Bronkhorst Tuthill DXS1.6PPT2NNM103

^{5.} Bronkhorst CORI-FLOW

^{6.} Colorant liquide alimentaire hydrosoluble E133, Selectarôme

^{7.} Dalle LED, Euroshopled

^{8.} TENMA 72-10505 (0-30V,3A)

^{9.} Basler, caméra monochrome CMOS 1" (20148 x 2048 pixels), objectif 16 mm monture C F1.4-16, fréquence d'acquisition 100 fps

^{10.} ALANTUM



FIGURE 2 – Schéma du montage expérimental vu de face et de côté [4].

2.2 Protocole

Pour chaque série à α fixé de 8 débits de gaz (de 100 à 1500 mL/min par pas de 200 mL/min), on commence par remplir la cuve à un débit liquide faible $Q_L = 30 \text{ mL/min}$. Si l'angle est faible (moins de 50°), le remplissage se fait à cet angle directement. Sinon, on remplit la cuve à un angle faible, puis on la penche doucement jusqu'à l'angle souhaité. Cela permet d'avoir une condition initiale reproductible, sans bulles piégées dans la mousse. En effet, on cherche à avoir l'image du fond la plus propre possible, pour faciliter le traitement ensuite. De plus, on ne peut pas reprendre le même fond pour toutes les séries, car changer l'angle de la cellule peut décaler suffisamment la caméra par rapport à la cellule pour que le traitement soit impossible si on prend un fond d'une série différente. Cette étape est lente, car même en prenant toutes les précautions possibles, des bulles peuvent remonter dans la mousse, il faut parfois recommencer un grand nombre de fois. Après avoir enregistré le fond, on monte le débit liquide à $Q_L = 100 \text{ mL/min}$. Ce paramètre reste fixé dans toutes les expériences.

Pour chaque débit de gaz Q_G , on commence par attendre après avoir réglé le débit pour que l'écoulement devienne stationnaire. D'après Thomas Busser [3], la stationnarité est établie après quelques minutes. Une expérience préliminaire a permis d'estimer que 3 min suffisent. Ensuite, on filme la cellule en prenant des images en niveaux de gris avec un temps d'exposition de 2 ms, qui fait un compromis entre luminosité et netteté des bulles. Pour faire l'analyse globale, on veut pouvoir avoir des bulles différentes à chaque image. On prend donc une image toute les 5 s, et on en prend 50. Pour obtenir les vitesses des bulles, on filme plutôt à 100 images par seconde, et on prend 500 images, pour avoir une centaine d'images par trajectoire de bulle.

On change Q_G à α fixé toujours selon une rampe montante car, si on passe d'un grand débit à un plus petit, des bulles plus grosses que celles normalement produites au petit débit peuvent rester coincées (même après une longue attente) et fausser les résultats. Une rampe montante permet d'éviter ce problème, et de ne pas devoir remplir à nouveau la cuve à chaque débit. Pour vérifier cela, on compare les surfaces de gaz moyennes à $Q_L = 1500 \text{ mL/min}$ (resp. $Q_L = 100 \text{ mL/min}$) en partant d'une condition initiale reproductible ou d'une condition initiale où on a d'abord pris un film à $Q_L = 100 \text{ mL/min}$ (resp. $Q_L = 1500 \text{ mL/min}$). On trouve une différence inférieure au pourcent pour $Q_L = 1500 \text{ mL/min}$, mais plus de 10% de différence pour $Q_L = 100 \text{ mL/min}$, ce qui valide le protocole en rampe montante. Dans la partie 4.3, le premier contrôleur de débit de gaz étant cassé, on en prend un autre ¹¹ qui n'a pas de mesure intégrée de température de de pression, et ne peut donc pas ajuster le débit en fonction. Les débits données par le nouveau contrôleur sont donc en millilitres normaux par minutes, soit les débits données pour une température T = 0 °C et une pression P = 1013,25 hPa. La température de la pièce étant de T = 22 °C en général, le facteur de conversion pour revenir en mL/min vaut 1.4. On corrige donc les débits de gaz par ce facteur.

Chaque série de films est obtenue en 1h30 environ, et on fait en tout deux séries pour $\alpha = 0, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 75, 80, 85, 90^{\circ}$, une pour l'analyse globale, et une pour obtenir les vitesses des bulles.

2.3 Traitement des images

Le code de traitement a été développé par T. Busser et S.Rossetti, et légèrement modifié pendant mon stage. On divise toutes les images du film par une image du fond prise au préalable. On remarque deux types de bulles : celles qui collent à la paroi de devant de la cellule (côté caméra) et apparaissent claires par rapport au fond, et celles qui passent par derrière et apparaissent foncées. Il faut donc faire deux détections séparées, avec des seuillages différents, pour avoir toutes les bulles. Je détermine les seuils à l'œil pour chaque série. Ensuite on additionne les deux contributions. Les zones de gaz détectées sont, à ce stade, très peu lisses, ce qui n'est pas physique. De plus, le programme détecte aussi quelques pixels isolés comme étant des bulles. Pour régler ces problèmes, on à l'image applique des opérations morphologiques (érosion, dilatation, remplissage) qui permettent de retrouver des contours de bulles plus physiques. Les étapes du traitement sont résumées sur la Figure 3.



FIGURE 3 – Étapes du traitement des images.

^{11.} Bronkhorst DMFC D-6311 DR $\,$

3 Analyse globale

3.1 Observations et grandeurs d'intérêt

Sur la Figure 4, on peut comparer des images traitées issues de différents films. Avant $\alpha = 75^{\circ}$, les films se ressemblent : des colonnes de bulles de plus en plus grosses au fur et à mesure qu'on augmente le débit. À partir de $\alpha = 75^{\circ}$, des poches de gaz se forment, reliées entre elles par des cheminées. À la transition, les cheminées sont instables et se cassent souvent en trainées de bulles avant de se reformer, et les poches de gaz pulsent fort et changent lentement de position et de forme, tout se stabilise très vite en augmentant α .



FIGURE 4 – Images de toute la cellule traitées pour différents angles et débits. De gauche à droite, $\alpha = 0, 40, 75, 85^{\circ}$. De haut en bas : $Q_G = 100, 1500 \text{ mL/min}$.

Dans l'objectif d'optimiser des réactions en catalyse hétérogène, on souhaite augmenter le plus possible la surface de contact entre les phases et la vitesse à laquelle ces interfaces se renouvellent. Selon la réaction, le rôle des films de lubrification entre les bulles et les parois sera plus ou moins important. Par exemple, si le film de lubrification est pauvre en réactif parce qu'il ne se renouvelle pas assez vite, on ne le compte pas dans la surface de contact effective. L'optimisation de la surface de contact se fera donc de manière différente selon la réaction chimique. Afin de prendre en compte toutes les applications éventuelles, nous définissons dans la suite l'ensemble des grandeurs d'intérêt que l'on peut déterminer dans nos expériences.

3.2 Surfaces spécifiques

Définitions Pour étudier la surface de contact eau-air en fonction du débit et de l'angle, on pose d'abord quelques définitions.

Pour une bulle b, on note P son périmètre et S_{app} sa surface apparente, c'est-à-dire la surface détectée à l'intérieur du contour de la bulle. Sa fraction surfacique est $\epsilon_b = S_{app}/S_{cellule}$, avec $S_{cellule} = LW$. Le diamètre équivalent d'une bulle est défini comme $d = \sqrt{\frac{4}{\pi}S_{app}}$. On distingue les petites bulles, telles que leur diamètre est inférieur à l'épaisseur de la cellule, qui sont sphériques, et les grosses bulles, telles que d > e.



FIGURE 5 – Définition des surfaces périmétriques et apparentes d'une grosse bulle.

La surface d'une petite bulle est définie par :

$$S^{pb} = \pi d^2 = 4S_{app} \tag{1}$$

Pour les grosses bulles, on distingue deux surfaces : la surface correspondant aux films de lubrification, qui vaut deux fois la surface apparente, et la surface périmétrique, celle du tour de la bulle (Figure 5) :

$$S^{gb} = 2S_{app} + S^{gb}_{peri} \tag{2}$$

$$S_{peri}^{gb} = P_b e \tag{3}$$

On définit la surface spécifique totale de gaz et sa fraction surfacique, qui sont des grandeurs classiques en génie des procédés. Une surface spécifique est normalisée par le volume de la cellule et s'exprime donc en m^{-1} :

$$a_{tot} = \frac{S_{tot}}{V_{cellule}} = \frac{\sum_{gb} S_{tot}^{gb} + \sum_{pb} S^{pb}}{LWe}$$
(4)

$$\epsilon_b = \frac{\sum_{bulles} S_{app}}{S_{cellule}} = \frac{\sum_{bulles} S_{app}}{LW} \tag{5}$$

On peut séparer a_{tot} en $a^{gb} + a^{pb} = a^{gb}_{app} + a^{gb}_{peri} + a^{pb}$ (Figure 5). La contribution des petites bulles est négligeable devant celle des grosses bulles, et est plus sensible aux artefacts issus du traitement des images. La surface apparente est plus importante que la surface périmétrique. Cependant, selon que l'on néglige ou non les films de lubrification entre les bulles et les parois dans la surface de contact, on ne comptera que la surface périmétrique, ou on prendra la surface totale. Il est donc important de regarder les deux contributions.

Résultats On peut tracer la surface spécifique totale en fonction de l'angle pour chaque débit de gaz (Figure 6). On observe l'optimum de a_{tot} se trouve pour Q_G maximal et $\alpha = 90^{\circ}$. Cependant, la pente en α est modifiée entre 70° et 80°. On décompose donc a_{tot} en ses composantes, et on observe des plateaux avec une cassure nette à 75° pour a_{peri}^{gb} et a^{pb} (Figures 7a et 7b). L'optimum de surface périmétrique et de surface des petites bulles, contrairement à celui de la surface apparente, se situe à faible α . Il n'y a pas d'ordre en Q_G pour a^{pb} , mais il y a un maximum du premier plateau situé entre $Q_G = 1100 \text{ mL/min et } 1300 \text{ mL/min pour } a_{peri}^{gb}$. À $Q_L = 300 \text{ mL/min}$, Thomas Busser [3] avait observé un optimum de surface périmétrique à $\alpha = 0^{\circ}$ pour $Q_G = 1100 \text{ mL/min}$. On le retrouve ici, mais de façon assez peu peu marquée, et il n'est pas constant avec l'angle.

Ainsi, selon que le film de lubrification est important ou non dans l'application que l'on considère, on choisira de pencher totalement la cellule (film important) ou de la garder verticale (film négligeable). De même on prendra Q_G maximal ou un peu moindre.



FIGURE 6 – Surface spécifique totale en fonction de l'angle pour différents débits de gaz.



FIGURE 7 – Surfaces spécifiques présentant des comportements très différents avant et après la transition à $\alpha = 75^{\circ}$ en fonction de l'angle pour différents débits de gaz. (b) Surface spécifique périmétrique des grosses bulles. (b) Surface spécifique des petites bulles. Le code couleur est identique à la Figure 6.

Si on trace a_{tot} en fonction de la fraction de gaz totale ϵ pour différents Q_G , on peut s'attendre à trouver une pente 2/e, si les autres termes ne sont pas trop sensibles à Q_G . En effet :

$$a_{app}^{gb} = 2\epsilon/e \tag{6}$$

$$a_{tot} = 2\epsilon/e + a_{peri}^{gb} + a^{pb} = 2\epsilon/e + a_R \tag{7}$$

 a_R , d'après les Figures 7a et 7b, est une constante qui peut prendre deux valeurs selon que $\alpha < 75^{\circ}$ ou non, et qui dépend faiblement de Q_G (valeurs un peu différente pour $Q_G < 300 \,\mathrm{mL/min}$). La Figure 8 montre le très bon accord entre les droites $y = 2\epsilon/e + a_{Ri}$, où a_{R1} et a_{R2} sont les valeurs moyennes des plateaux selon Q_G , et les données.

Ces comportements sont des indices d'une transition de régime hydrodynamique, que l'on avait déjà deviné à l'œil. Pour mieux quantifier l'activité des bulles, on s'intéresse aux cartes de mélange et de mouvement d'interface.



FIGURE 8 – Surface spécifique totale en fonction de la fraction surfacique de gaz pour différents débits de gaz (Équation 7). Insert : Surface spécifique hors apparente.

3.3 Cartes de mélange et de mouvement d'interface

Carte de mélange On définit une zone de mélange dans la cellule quand la phase présente à cet endroit n'est ni juste de l'air (bulles détectées à cet endroit plus de 70% du temps) ni juste de l'eau (moins de 30%). Pour cela, on somme toutes les images I_n (première étape de la première ligne sur la Figure 9), et on normalise l'image obtenue par le nombre d'images N (2^e étape). On obtient la carte I_{gaz} de la probabilité p_{gaz} de présence de gaz :

$$I_{gaz} = \frac{\sum_{n=1}^{N} I_n}{N} \tag{8}$$

Puis on trinarise I_{gaz} (3^e étape) : pour un pixel, si $p_{gaz} < 0.3$, c'est en moyenne un pixel de liquide, si $p_{gaz} > 0.7$, c'est du gaz, et sinon c'est mélangé.



FIGURE 9 – Construction des cartes de mélange et de mouvement d'interface.

Carte de mouvement d'interface On définit une zone de mouvement d'interface aux endroits où, en moyenne, la surface des bulles ne reste pas stable (soit que les bulles bougent, soit qu'elles changent de forme). Pour cela, on prend la somme des valeurs absolues des différences d'images successives $|I_{n+1} - I_n|$ (première étape de la deuxième ligne sur la Figure 9), et on normalise l'image obtenue par le nombre d'images (2^e étape). On obtient la carte I_i de probabilité p_i de mouvement d'interface.

$$I_i = \frac{\sum_{n=1}^{N} |I_{n+1} - I_n|}{N}$$
(9)

Enfin, on binarise I_i avec un seuil arbitraire de 0.2 (3^e étape). On peut construire une troisième carte à partir des deux autres : la carte de gaz piégé (intersection des zones de gaz et des zones sans mouvement d'interface). Ces trois cartes permettent de reconstituer l'activité moyenne des bulles pour un angle et un débit donné.

On peut ensuite tracer les fractions surfaciques de mouvement d'interface (ϵ_i), de mélange (ϵ_m) et de gaz piégé (ϵ_g) en fonction de l'angle et du débit (Figures 10a, 10c, 10e). On constate qu'après la transition, il y a brusquement beaucoup moins de mélange et de mouvement d'interface. C'est particulièrement visible sur les cartes en α et Q_G (Figure 10b et 10d), où on voit le très net changement de couleur (de bleu-vert à bleu foncé) autour de $\alpha = 75^{\circ}$. On passe de bulles qui bougent seules ou en ligne sur un chemin préférentiel à de grosses poches de gaz qui pulsent reliées par des cheminées, et c'est d'autant plus flagrant pour les gros débits. La fraction de gaz piégé par rapport à la surface totale augmente rapidement mais continument avec l'angle et le débit. Cependant, si on la compare la fraction de gaz dans le système (Figure 10g), elle augmente linéairement avec l'angle jusqu'à la transition, où il y a une cassure, puis un plateau après 80°. Là encore, cette fracture est d'autant plus visible sur la Figure 10h par rapport à la Figure 10f.

En conclusion, après la transition il n'y a presque plus de mouvement d'interfaces. Les fluides continuent de s'écouler, mais séparément, en restant toujours dans des cheminées fixes, ce qui fait qu'on ne voit pas de mouvement sur les films. Cette situation est mauvaise si on veut utiliser le système pour une réaction chimique, car il y a besoin de renouveler régulièrement les interfaces pour ne pas tomber à court de réactifs dans la zone où se fait la réaction.



FIGURE 10 – Fractions surfaciques de mouvement d'interface (a, b), de mélange (c, d), de gaz piégé par rapport à la surface totale (e, f) ou par rapport à la fraction surfacique de gaz totale ϵ (g, h) en fonction de α pour différents Q_G (a, c, e, g) ou en couleur sur une carte (α , Q_G) (b, d, f, h).

4 Analyse locale

4.1 Modèle de la transition

Pour comprendre d'où vient la transition observée, j'ai repris en partie le modèle de Thomas Busser [3] (Figure 11), adapté au fait que l'on étudie l'effet de l'angle de la cellule. Il a été initialement créé pour expliquer, sur le même dispositif expérimental, mais la cellule toujours à la verticale, l'optimum de a_{peri}^{gb} selon Q_G à $\alpha = 0^\circ$ et $Q_L = 300 \text{ mL/min}$. À $Q_L = 100 \text{ mL/min}$, on n'observe pas cet optimum de façon claire (Figure 7a). On peut par contre implémenter le modèle en incluant l'influence de l'inclinaison, pour voir si on retrouve la transition observée.

Dans ce modèle, chaque injecteur de gaz a un débit de gaz $Q_i = Q_G/N_i$, avec N_i le nombre d'injecteurs, et il produit une colonne de bulles. Le nombre de bulles produites par un injecteur est appelé N_b^i , et le nombre total de bulles est donc $N_b = N_b^i N_i$.

On note d et v le diamètre et la vitesse typiques des bulles. La vitesse due au débit de liquide est $v_L = \frac{Q_L}{eW} = 0.5 \text{ cm/s}$, et est en général environ 100 fois plus faible que la vitesse totale des bulles On la néglige dans la suite. On note λ la distance entre deux bulles consécutives :

$$\lambda = \frac{V_b v}{Q_i} = \frac{N_i \pi d^2 e v}{4Q_G} \tag{10}$$

avec $V_b = \pi d^2/4e$ le volume d'une bulle. On a $N_b^i \simeq L/\lambda$ et le périmètre total de l'interface gaz/liquide est donc :

$$P = N_b^i N_i \pi d = \frac{4Q_G L}{e dv} \tag{11}$$

Les surfaces spécifiques s'écrivent :

$$a_{peri} = \frac{eP}{LWe} = \frac{4Q_GL}{edvLW} \tag{12}$$

$$a_{app} = \frac{\pi d^2 N_b}{4LWe} = \frac{Q_G}{We^2 v} \tag{13}$$

On considère de plus qu'il y a une certaine fraction du gaz qui est piégée dans la mousse. On note $a_{peri,0}$ et $a_{app,0}$ les aires apparentes et périmétriques de celle-ci, et leur valeur sont fournies par l'expérience.

Dans le cas $\alpha = 0^{\circ}$, le modèle peut ensuite être affiné en prenant deux diamètres typiques de bulles d_1 et d_2 , avec une proportion de bulles de diamètre d_1 approximée avec les données expérimentales. Comme ici on fait varier l'angle en plus du débit, on ne peut pas reprendre cette partie là du modèle.

Pour pouvoir tracer a_{peri} , il faut la vitesse des bulles selon d et α . L'article [3] propose $v \simeq \sqrt{gd}$. Cette loi permet au modèle d'être assez fidèle aux données expérimentales, malgré sa simplicité. Cependant, avant d'utiliser cela tel quel, on va d'abord vérifier les lois empiriques que suivent d et v.

4.2 Diamètre des bulles

Ici, on utilise les films à une image toutes les 5s pour ne pas compter plusieurs fois les mêmes bulles dans les statistiques. Sur la Figure 12, on trace en couleur l'histogramme des diamètres de bulle pondéré par leur fraction volumique en fonction de $1/\cos \alpha$ pour un débit donné. À l'ordre zéro, on peut supposer que le diamètre suit une rampe montante jusqu'à $\alpha_c = 75^{\circ}$ puis atteint un plateau. On note d_0 le diamètre moyen majoritaire à $\alpha = 0^{\circ}$ et d_p la valeur du plateau. En pointant d_0 et d_p pour tous les débits, on remarque qu'ils dépendent linéairement de Q_G :

$$d_i = AQ_G + B_i \tag{14}$$

avec $A = 5.5 \text{ mm}(\text{mL}/\text{min})^{-1}$, $B_1 = 0.8 \text{ cm}$ et $B_2 = d_{min} = 13.6 \text{ cm}$. Cela nous donne donc le diamètre en fonction de α et Q_G à la fois. On n'utilisera donc pas le calcul pour deux populations de bulles. On remarque cependant que la qualité de cette approximation des diamètres se dégrade pour les petits débits, surtout $Q_G = 140 \text{ mL}/\text{min}$.



FIGURE 11 - Schéma du modèle.



FIGURE 12 – Histogramme des diamètres moyens de bulle pondérée par leur fraction volumique (couleur saturée à 5%) en fonction de $1/\cos \alpha$, pour différents Q_G . Les lignes rouges correspondent à la loi empirique de d. La qualité de la loi empirique se dégrade pour les petits débits.

4.3 Vitesse des bulles

Méthode de tracking La méthode décrite ici a été écrite dans le cadre de mon stage.

Pour connaitre la vitesse d'une bulle, il faut reconstituer sa trajectoire. On prend donc des films plus courts mais avec un nombre d'images par seconde beaucoup plus grand (voir la section 2.2). Après traitement des images (cf Section 2.3), on vient chercher toutes les bulles de toutes les images, dont on enregistre les propriétés : aire, périmètre, centroïde, diamètre apparent, fraction surfacique. On les trie aussi en fonction de leur taille (petite ou grosse bulle). Ensuite, pour chaque bulle b_i , on trouve dans l'image précédente la bulle b_{i-1} qui lui ressemble le plus. Il y a plusieurs critères (Figure 13) :

- On ne considère pas les bulles qui s'approchent à moins de $d_{gd} = 1 \text{ cm}$ des bords gauche et droite (certaines bulles très déformées suivent les bords) et à moins de $d_{hb} = 2 \text{ cm}$ des bords haut et bas (on évite les bulles en train de se former et celles qui sortent de la mousse).
- b_{i-1} doit être à une distance comprise entre $d_{min} = 0,01$ cm et $d_{max} = 1$ cm de b_i . Elle doit être

à une distance pas trop grande, sinon, au vu de l'ordre de grandeur de la vitesse (estimation à l'œil de 10 cm/s), ce n'est plus la même bulle. De plus, si elle ne bouge pas assez, c'est qu'elle est restée coincée, d'où le pas minimal.

- La bulle doit toujours monter. On donne une tolérance aux erreurs de détection du centroïde $d_{tol} = 0.1$ cm.
- La bulle doit monter plus vite qu'elle ne bouge à l'horizontale.
- On choisit, parmi les bulles dans la zone définie par les premiers critères, la bulle b_{i-1} dont la fraction surfacique est la plus proche de b_i . On change de bulle si b_{i-1} coalesce avec une autre ou si elle se fragmente.

On impose encore d'autres critères sur les trajectoires ainsi trouvées :

- La variation totale de fraction volumique doit être inférieure à $\Delta \epsilon = 10\%$.
- La longueur de la trajectoire doit être d'au moins 5 points (occurrences de la bulle dans 5 images successives) et de longueur minimale $d_{tot} = 1$ cm.



FIGURE 13 – Schéma de la zone de recherche du centroïde de b_{i-1} par rapport à la bulle b_i . En bleu, les endroits autorisés; en rouge les endroits interdits.

Résultats On obtient jusqu'à 250 trajectoires de bulles selon les films (Figure 14). Plus l'angle est grand, moins on récupère de trajectoires. On n'en a plus du tout à partir de $\alpha = 80^{\circ}$. En effet, l'air passe majoritairement dans des cheminées à interface fixe après la transition, alors que le programme ne récupère que des bulles qui bougent suffisamment.



FIGURE 14 – Trajectoires de bulles trouvées pour $\alpha = 20^{\circ}$ et $Q_G = 1100 \text{ mL/min}$.

On note en passant que chaque injecteur ne produit pas sa colonne de bulle. Il y a entre une et trois colonnes en moyenne, donc on fixe $N_i = 2$ au lieu de 9. En effet, une poche de gaz se forme à

l'entrée de la mousse entre les injecteurs, et elle relâche des bulles dans la mousse indépendamment de la position des injecteurs.

On trace la vitesse des bulles pour tous les débits en fonction du diamètre pour différents angles. On compare ces données au modèle donné par Filella et al. [6] pour une bulle unique dans une cellule de Hele-Shaw sans débit d'eau à l'entrée et à grand nombre de Reynolds :

$$v \simeq 0.75 (e/d)^{1/6} \sqrt{gd}$$
 (15)

Dans notre cas, on remplace g par une gravité effective $g_{eff} = g \cos \alpha$. De plus, on s'attend à ce que les bulles aillent un peu moins vite que ce que prédit Filella et al. car la mousse solide oppose une résistance. Sur la Figure 15, on ttrace en représentation boxplot la distribution de vitesse tous débits confondus en fonction du diamètre pour plusieurs angles. Les bords des boites représentent les premiers et troisième quartiles, le centre est à la moyenne, et la barre rouge à la médiane. Les lignes noires pointillées représentent la déviation standard. On remarque que la tendance n'est pas claire : il y a effectivement des bulles qui vont un peu moins vite, et d'autres qui vont deux fois plus vite avec un diamètre similaire. Leur vitesse élevée serait due aux interactions entre bulles. En effet, sur les films, on note qu'il y a des chemins préférentiels, des colonnes de bulles. Les bulles de tête sont freinées par la mousse, mais les bulles de queue profitent de la trainée des bulles précédentes. On peut voir sur les films des interactions à 2 ou 3 bulles, où la bulle de tête est rattrapée et coalesce avec les autres. On note que pour les petits angles, cette loi sous-estime la vitesse sur une grande gamme de diamètres. Cependant, à l'ordre zéro, comme il est très difficile de trouver une loi simple pour v, on va prendre la loi de Filella et al. qui, au moins, donne le bon ordre de grandeur.



FIGURE 15 – Vitesse moyenne des bulles en fonction de leur diamètre, pour tous les Q_G , pour quelques α , en représentation boxplot. Le centre de chaque boite représente la moyenne, les bords les premier et troisième quartiles, la barre rouge la médiane. Les barres en pointillés représentent la déviation standard. La ligne en pointillés rouges représente la loi donnée par Filella et al. avec gravité effective.

4.4 Comparaison entre le modèle et l'expérience

Puisqu'on a désormais les lois empiriques de d et v nécessaires à l'utilisation du modèle, on peut calculer a_{peri}^{modele} pour en vérifier la justesse (Équation 13).

Sur la Figure 16a, on trace la surface périmétrique des bulles (hors gaz sans mouvement d'interface) calculée avec le modèle $a_{peri,c}^{modele}$ en fonction de l'angle pour différents débits. Les courbes de différents diamètres sont toutes assez proches, à l'exception de $Q_G = 100 \,\mathrm{mL/min}$, mais on rappelle que la loi empirique est moins fiable sur ce débit. On voit aussi que la tendance change vers $\alpha = 75^{\circ}$, l'angle de la transition. Cependant, après la transition, le modèle prédit une remontée de la surface spécifique, alors qu'expérimentalement, elle diminue brutalement (Figure 6). Cela peut s'expliquer en remarquant qu'à grand angle, quand l'angle augmente, le diamètre n'augmente plus (voir la loi empirique de d sur la Figure 12) alors que la vitesse diminue, donc le nombre de bulles augmente. La différence avec l'expérience vient probablement du fait qu'on fait une approximation grossière sur les vitesses, qu'on ne prend pas en compte les coalescences et fragmentations de bulles. De plus, à grand angle, comme il y a très peu de bulles (le modèle prédit une fraction de bulle par colonne) mais qu'elles sont très grosses , on est très sensible aux effets de bords (sur les films, on voit les bulles toucher parfois le haut et le bas de la mousse à la fois).

Ensuite, si l'ordre de grandeur est assez bon, le modèle sous-estime quand même les valeurs de $a_{peri,c}$. Sur la Figure 16b, on trace les valeurs expérimentales de $a_{peri,c}$ en fonction des valeurs du modèle, on trouve un facteur 7 entre le modèle et les données, à 30% près. On peut supposer que ne prendre que le diamètre majoritaire induit des grosses erreurs sur le calcul du périmètre, puisqu'on oublie beaucoup de bulles plus petites que les bulles majoritaires (voir distribution de diamètre sous la loi empirique (en rouge) sur la Figure 12). Pour savoir combien de bulles plus petites rajouter pour obtenir ce facteur c = 7, on suppose qu'on rajoute N_i colonnes de bulles. Les N_i premières colonnes sont constituées de bulles de diamètre majoritaire d_1 , et les N_i suivantes contiennent des bulles de diamètre d_2 plus petites. Ces $2N_i$ colonnes se partagent le débit Q_G . Les variables relatives au modèle à deux populations sont notées avec un astérisque *. On note ξ la proportion de bulles de diamètre d_1 , $\gamma = d_1/d_2$ le rapport des diamètres, N_b^* le nombre de bulles total avec les deux populations et $n = N_b^*/N_b$ le rapport avec le nombre de bulles avec une seule population. On souhaite que la surface périmétrique a^* obtenue en rajoutant une autre population de bulles soit c fois plus importante que la surface périmétrique a avec une population, tout en gardant le même débit.

Surface périmétrique. On exprime d'abord a comme précédemment dans le modèle :

$$a = \pi d_1 e N_b \tag{16}$$

Ensuite, on exprime a^* comme la somme des surfaces périmétriques des bulles de diamètres d_1 et d_2 , qui sont en quantité $N_b^*\xi$ et $N_b^*(1-\xi)$:

$$a^* = \pi d_1 e N_b^* \xi + \pi d_2 e N_b^* (1 - \xi) \tag{17}$$

Enfin, on veut obtenir $a^* = ca$, ce qui nous donne :

$$\xi = \frac{c\gamma/n - 1}{\gamma - 1} \tag{18}$$

<u>Débit.</u> Le débit pour le cas à une population s'écrit :

$$Q_G = \frac{V_{b,1} v_1 N_b}{L} \tag{19}$$

avec $V_{b,1} = \pi e d_2^2/4$ le volume d'une bulle de diamètre d_1 et $v_1 = \simeq 0.75 (e/d_1)^{1/6} \sqrt{g d_1 \cos \alpha}$ sa vitesse. Dans le deuxième cas, c'est la somme des débits pour les deux populations :

$$Q_G = \frac{V_{b,1}v_1N_b^*\xi}{L} + \frac{V_{b,2}v_2N_b^*(1-\xi)}{L}$$
(20)

avec $V_{b,2}$ et v_2 le volume et la vitesse d'une bulle de diamètre d_2 . Les deux expressions précédentes étant égales, cela nous donne :

$$n = \frac{\gamma^{5/2} + \xi}{1 - \xi} \tag{21}$$

On calcule $\xi(c, \gamma)$ et $n(c, \gamma)$, et on obtient les proportions n_1 et n_2 de bulles de diamètre d_1 et d_2 par rapport au nombre initial de bulles N, que l'on trace Figure 17. Pour multiplier $a_{peri,c}^{modele}$ par 7, en rajoutant une deuxième population de bulles plus petites, le nombre de bulles de diamètre d_1 reste identique, et on rajoute un nombre important de bulles de diamètre $d_2 = d_1/8.5$ (~ 50N). On vérifie ces chiffres sur le film à $\alpha = 0^\circ$ et $Q_G = 100 \text{ mL/min}$: le nombre de bulles au diamètre typique d = 0.8 cm à 5% près est 20 fois inférieur au nombre de bulles de diamètre inférieur. Le nombre calculé de bulles de petite taille est trop grand mais reste dans le bon ordre de grandeur. La différence peut s'expliquer par le fait que calcul n'est mené que pour une seule autre population de bulles. On peut en conclure que l'écart entre le modèle initial et les données est au moins en partie causé par le fait qu'on s'est placé à l'ordre 0 en ne prenant que les bulles de diamètre majoritaire alors qu'il y a beaucoup de bulles de plus petit diamètre (Figure 12).



FIGURE 16 – (a) Surface périmétrique (hors interface immobiles) $a_{peri,c}^{modele}$ calculée avec le modèle en fonction de l'angle pour différents débits. (b) Surface périmétrique (hors interfaces immobiles) du modèle $a_{peri,c}^{modele}$ par rapport aux données expérimentales. Les lignes rouges représente la pente $7 \pm 30\%$. Les couleurs représentent les différents débits. On ne montre pas les points à $a_{peri,c}^{modele} = 0 \,\mathrm{m}^{-1}$, car on ne compte que les situations où il y a au moins une bulle dans la cellule.



FIGURE 17 – Proportion n_1 (a) et n_2 (b) de bulles de diamètre d_1 et d_2 en prenant en compte le dédoublement de colonne par rapport au nombre de bulles initial en fonction du rapport des diamètres γ , pour quelques c (couleur). Les solutions ne sont valables que pour γ assez grand ($\gamma > 4.5$ pour c = 2) car ξ est négatif pour les petits γ , ce qui n'est pas physique. La solution c = 7 est indiquée en ligne solide, car elle correspond au calcul pour le facteur multiplicatif effectivement trouvé entre a et a^* .

5 Conclusions

Mon stage a permis d'étudier l'effet de la flottabilité et du débit d'air dans un écoulement conjoint eau-air dans une mousse solide en configuration Hele-Shaw, ce qui aurait des applications notamment en chimie industrielle. L'analyse globale de mes expériences a mis en évidence une transition de régime à $\alpha = 75^{\circ}$: les colonnes de bulles deviennent des cheminées avec des interfaces fixes quand on penche la cellule, ce qui fait chuter drastiquement la surface périmétrique, tandis que la surface apparente augmente. Selon la réaction chimique en jeu, l'angle optimal sera donc différent. J'ai utilisé un modèle inspiré par celui de Thomas Busser pour décrire la transition, qui a nécessité de d'étudier les distributions de diamètre et de vitesse en fonction de l'angle et du débit d'air. L'allure générale est correcte, et les différences observées sont explicables, notamment par les approximations faites sur les diamètres et les vitesses.

Cependant, il reste encore beaucoup de choses à explorer et améliorer. Les vitesses ont été approximées par une loi pour des bulles isolées alors que des travaux sur les colonnes de bulles permettraient d'affiner l'approximation. Ensuite, le modèle pourrait être travaillé pour mieux inclure la totalité de la distribution de bulles, qui reste aussi à expliquer. Pour aller encore plus loin, on pourrait étudier l'influence de la géométrie de la cellule qui impacte notamment les résultats aux grands angles, de la porosité en changeant de mousse et de la mouillabilité par l'introduction d'autres fluides. On pourrait enfin introduire une réaction chimique dans la cellule pour étudier l'influence de la mousse sur son efficacité et sa vitesse.

Références

- Y.Shibano, A.Namiki, and I.Sumita. Experiments on upward migration of a liquid-rich layer in a granular medium : Implications for a crystalline magma chamber. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 13(3), 2012.
- [2] A. Babchin, I. Brailovsky, P. Gordon, and G. Sivashinsky. Fingering instability in immiscible displacement. *Phys. Rev. E*, 77 :026301, Feb 2008.
- [3] K. Pangarkar, T.J. Schildhauer, J. R. van Ommen, J. Nijenhuis, F. Kapteijn, and J. A. Moulijn. Structured packings for multiphase catalytic reactors. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 47(10):3720-3751, 2008.
- [4] M.T. Kreutzer, F.Kapteijn, J.A. Moulijn, and J.J. Heiszwolf. Multiphase monolith reactors : Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels. *Chemical Engineering Science*, 60(22) :5895 - 5916, 2005. 7th International Conference on Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Reactor Engineering.
- [5] B. Sandnes, E.G. Flekkøy, H.A. Knudsen, K.J. Måløy, and H. See. Patterns and flow in frictional fluid dynamics. *Nature Communications*, 2011.
- [6] A. Attou, C. Boyer, and G. Ferschneider. Modelling of the hydrodynamics of the cocurrent gas-liquid trickle flow through a trickle-bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 54(6):785-802, 1999.
- [7] H.Darcy. Les Fontaines publiques de la ville de Dijon. Dalmont, 1856.
- [8] S. Ergun and A. A. Orning. Fluid flow through randomly packed columns and fluidized beds. Industrial & Engineering Chemistry, 41(6):1179-1184, 1949.
- [9] P. Forchheimer. Wasserbewegung durch boden. Wasserbewegung Durch Boden, pages 1782–1788, 1901. Cited By :21.
- [10] R. Haggerty, S.A. McKenna, and L.C. Meigs. On the late-time behavior of tracer test breakthrough curves. Water Resources Research, 36(12):3467–3479, 2000.
- [11] M. Sardin, D. Schweich, F. J. Leij, and M. Th. van Genuchten. Modeling the nonequilibrium transport of linearly interacting solutes in porous media : A review. *Water Resources Research*, 27(9) :2287–2307, 1991.
- [12] M.Serres. Hydrodynamic study of a gas-liquid flow in a confined porous medium. Theses, Université de Lyon, June 2017.
- [13] T. Busser, M. Serres, R. Philippe, and V. Vidal. Hydrodynamics of gas-liquid co-current flow through a thin sheet of highly porous open cell solid foam. *Chemical Engineering Science*, 2020. in revision.
- [14] T. Busser, M. Serres, R. Philippe, and V. Vidal. Bubbles properties for a gas-liquid vertical flow through a confined, highly porous open cell solid foam. *Physical Review E*, 2020. in preparation.
- [15] S.Rossetti. Étude d'écoulements diphasiques gaz-liquide en milieux confinés, 2019.
- [16] A. Filella, P. Ern, and V. Roig. Oscillatory motion and wake of a bubble rising in a thin-gap cell. Journal of Fluid Mechanics, 778 :60–88, 2015.