THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité :

Dynamique des fluides

Présentée et soutenue par :

Mme ELISE ALMERAS

le mardi 9 décembre 2014

Titre :

ETUDE DES PROPRIETES DE TRANSPORT ET DE MELANGE DANS LES ECOULEMENTS A BULLES

Ecole doctorale :

Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :

Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (I.M.F.T.)

Directeur(s) de Thèse :

MME VERONIQUE ROIG

M. FREDERIC RISSO

Rapporteurs :

M. MICHEL LANCE, ECOLE CENTRALE DE LYON

M. MICKAEL BOURGOIN, INP DE GRENOBLE

Membre(s) du jury :

M. HUAI-ZHI LI, UNIVERSITE DE LORRAINE, Président

M. FRÉDÉRIC AUGIER, IFPEN, Membre

M. FREDERIC RISSO, INP TOULOUSE, Membre

Mme CECILE PLAIS, IFPEN, Membre

Mme VERONIQUE ROIG, INP TOULOUSE, Membre

M. RODNEY FOX, IOWA STATE UNIVERSITY, Membre

Résumé

Les réacteurs chimiques impliquant une phase liquide et une phase gazeuse sont couramment utilisés dans l'industrie pétrochimique et biologique car les écoulements à bulles ont de très bonnes propriétés de transfert et de mélange. Cela permet de mêler intimement différents composés et d'optimiser les réactions chimiques. Néanmoins, les mécanismes et les phénomènes mis en jeu dans le mélange au sein d'un écoulement à bulles restent encore mal connus. Ce travail a donc consisté à identifier les différents mécanismes de mélange en écoulement à bulles pour réviser le modèle physique de transport des espèces chimiques. Afin de distinguer et séparer les différents mécanismes, le mélange d'un traceur passif a été étudié dans différentes configurations expérimentales. Premièrement, l'étude du mélange dans un écoulement à bulles fortement confiné dans une cellule de Hele-Shaw a permis de mettre en évidence le mélange par capture du traceur dans les sillages. Ce mécanisme de mélange, fortement intermittent et convectif, s'est révélé être incompatible avec un processus purement diffusif. Deuxièmement, l'étude du mélange dans un essaim de bulles homogène tridimensionnel a été entreprise. Au contraire du cas confiné, le mélange, qui est causé par l'agitation induite par les bulles dans le liquide, est bien de nature diffusive. Nous avons donc pu mesurer les coefficients de diffusion effectifs en fonction de la fraction volumique de gaz. Ces coefficients sont différents dans les directions verticale et horizontale, ce qui traduit le caractère anisotrope du mélange. De plus, ils deviennent constants au-delà d'une certaine valeur de fraction volumique. Pour finir, nous avons considéré le mélange dans un essaim inhomogène de bulles, où se développe une boucle de recirculation du liquide. Dans le cas d'une recirculation modérée, la dispersion du traceur peut être estimée en combinant le mélange résultant de l'agitation des bulles avec l'advection par le mouvement moyen du fluide.

Mots-Clés

Ecoulement à bulles, mélange, LIF, coefficient de diffusion.

Abstract

Bubble columns are commonly used for chemical processes because of their good mixing and transfer capabilities. This work aims at understanding and modelling the mixing induced by bubbles. In order to distinguish the differents mixing mechanisms, the dispersion of a low-diffusive scalar has been investigated in various experimental configurations. The first one is a bubbly flow in a Hele-Shaw cell where the confinement prevents from the developpement of turbulence. In this case, the mixing is controlled by the capture and the transport by the bubble wakes. This mechanism, which cannot be described by an effective diffusivity, has been modelled by considering the intermittent transport of finite volumes of dye. The second configuration is a homogeneous swarm of rising bubbles where the mixing results from the dispersion by the bubble-induced turbulence. It can therefore be modelled by an anistropic effective diffusivity, which becomes independent of the gas volume fraction beyond a certain value. Finally, an inhomogenous bubbly flow, where a liquid recirculation loop is present, has been considered. In the case of a moderate inhomogeneity, shear induced-turbulence is not generated by the gradients of the mean flow and the mixing can be modelled by the sum of the bubble-induced dispersion and the advection by the mean flow.

Key-Words

Bubbly flow, mixing, LIF, Diffusivity.

à mon père,

Remerciements

Cette thèse est le fruit d'une très fructueuse collaboration scientifique mais aussi d'une très belle expérience humaine entre l'IFPEn et l'IMFT. Chaque établissement ayant des savoirs-faire spécifiques, c'est le mélange de ces compétences qui ont rendu, à mon sens, cette thèse aussi riche. Étudier des mécanismes fondamentaux sans en oublier l'applicatif, voilà un des plus beaux enseignements que j'ai pu tirer de cette thèse. Merci donc à mes directeurs de thèse, Véronique et Frédéric R. de m'avoir guidée au jour le jour sur les chemins de la recherche académique, et merci à mes promoteurs de thèse Cécile et Frédéric A. de m'avoir menée jusqu'à l'applicatif. La confiance que vous m'avez accordée pendant ces trois ans m'a été très précieuse et elle m'a permis de m'accomplir dans la recherche. Ce fut un réel plaisir de travailler avec vous.

Je souhaite aussi tout naturellement remercier les rapporteurs de ce manuscrit, Michel Lance et Mickaël Bourgoin pour leur relecture attentionnée, leurs interrogations mais aussi leurs suggestions. J'adresse également mes sincères remerciements aux autres membres du jury : à Huai - Zhi Li, pour avoir présidé ma soutenance, à Rodney Fox pour avoir accepté de faire partie de mon jury. Je vous suis reconnaissante d'avoir rendu ma soutenance un moment d'échange constructif et agréable.

Cette thèse n'aurait sûrement pas été ce qu'elle est sans le support technique efficace présent à l'IMFT. Je pense bien sûr à Greg, avec qui j'ai planté 1800 capillaires dans le but de donner naissance à la très belle colonne à bulles qu'est Octopussy, à Jean-Marc, Jean-Pierre et Laurent, toujours prêts à faire des pièces supplémentaires pour la manipe et à Ruddy qui m'a fourni de l'eau distillée pendant plus d'un an. Sans oublier l'ensemble du groupe "Signaux et Images" pour l'accueil chaleureux et les gâteaux. Merci donc à Moïse, Maëlle et Jean-Felix.

Au cours de ces trois années, j'ai été amenée à faire beaucoup de développement de technique de mesure dans des écoulements rendus optiquement denses de part la présence des bulles. Il a alors fallu faire preuve d'originalité, d'ingéniosité et de persévérance pour parvenir à faire des mesures rigoureuses et valides. Ceci a en grande partie été rendu possible grâce à l'aide de Sébastien. Merci Sébastien pour toutes les discussions que nous avons eues durant ses trois ans, pour avoir eu la patience de (re)régler les caméras sur ma manipe, et surtout pour m'avoir transmis un vaste savoir-faire et une grande rigueur expérimentale.

Même après trois ans de thèse, l'administration et en particulier les demandes d'achats restent quelques choses d'obscure à mes yeux. C'est à ce titre que je remercie Marie-Hélène Manzato et Céline Perles à l'IMFT et Claire Herri-Mongardien à l'IFPEn pour leur gen-

tillesse et leur patience.

Il règne à l'IMFT et particulièrement dans le groupe Interface une ambiance chaleureuse et conviviale qui a fortement contribué à mon bien-être tout au long de ses trois années. Je souhaite à cet effet remercier l'ensemble des membres permanents du groupe Interface, et notamment Catherine, qui s'est révélée être une excellente guide à Jeju, et Patricia qui nous a fait goûté les meilleures pizzas de Rome. Mais c'est aussi auprès des doctorants et des stagiaires de l'IMFT que j'ai partagé d'excellents moments, que ce soient ceux du groupe Interface ou de Doct'eau. Merci donc à Auriane pour toutes nos discussions en rentrant du labo, à Jérôme pour son sweet à Rome, à Nicolas et Jean-Lou pour avoir soutenu mes goûts musicaux dans le Hall Bouasse (vive Aqua !), à Mathieu pour les Michokos, à Blaise pour avoir été un secrétaire exemplaire. C'est sans oublier Marie pour son accueil toujours au top, René pour m'avoir fait découvrir la culture mexicaine, Maxime et Edouard pour m'avoir encouragée à prendre la présidence de Doct'eau, Mélanie pour m'avoir invité à prendre le thé. J'ajoute une mention particulière à Audrey qui m'a acheté du chocolat (noir bien sûr !) et plus généralement qui a partagé dans le même bureau les peines et les joies du quotidien. Un merci spécial à Thomas pour m'avoir fait découvrir toute une "culture" cinématographique.

Je tiens aussi à remercier l'ensemble du groupe R12, pour leur accueil chaleureux lors de mes visites ponctuelles à l'IFPEn et en particulier Cécile Barrère-Tricca pour ses délicates intentions toute au long de ma thèse alors même qu'elle n'était plus chef de département.

Je remercie chaleureusement Françoise Roulleau qui m'a transmis sa passion pour la physique il y a maintenant 10 ans, et Dominique Legendre qui m'a donné suffisamment confiance pour que je me lance dans cette thèse expérimentale.

Merci à mes amies de longue date, Marine, Myriam, Camille et Sabine et à tous les copains de l'N7 pour tous les excellents moments passés ensemble.

Merci à Greg et Mutia, à Papy et Mamie, à Corinne et Philippe, à Anne-Lise et Alex, à Pierre et Anne-So, à Antoine-Nicolas, à Maxime, à Georgette, à Régine et Daniel. De part votre présence, vous constituez un important soutien.

Merci à ma p'tite sœur Pauline pour sa relecture du manuscrit mais aussi pour me faire découvrir quotidiennement de nouveaux horizons à travers la boxe, la Gendarmerie et la sociologie.

Merci à mes parents de m'avoir transmis le goût d'apprendre, la rigueur et plein d'autres belles valeurs encore. Mais un grand merci aussi pour votre soutien constant et vos encouragements quels que soient les projets que j'entreprenne. Sachez que vous êtes très chers à mes yeux.

Merci à Paul pour le réconfort quotidien et pour être parti vivre le rêve néerlandais avec moi !

Table des matières

Introduction générale **5**

I Mélange dans un essaim de bulles confiné **9**

1 Présentation de la cellule de Hele-Shaw et de l'écoulement **11**
1.1 Présentation de la cellule de Hele-Shaw 11
1.2 Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement en cellule de Hele-Shaw 12
1.3 Expérience de mélange en cellule de Hele-Shaw 14

2 Technique de mesure de concentration en écoulement à bulles confiné **17**
2.1 Principe général de la fluorescence induite 17
2.1.1 Les phénomènes de fluorescence et d'absorption 17
2.1.2 Protocole de mise en œuvre de la fluorescence induite 18
2.2 Mesure de concentration locale résolue en temps par LIF et spectrométrie . 20
2.2.1 Présentation de la technique et de la chaîne de mesure 20
2.2.2 Compréhension du signal mesuré par LIF et par spectrométrie . . . 22
2.2.3 Correction du signal mesuré 25
2.2.4 Méthodologie de mise en œuvre de la fluorescence induite par laser 27
2.3 Mesure de concentration par visualisation de la lumière absorbée 30
2.3.1 Présentation de la technique et de la chaîne de mesure 30
2.3.2 Etalonnages en concentration et en intensité 30
2.3.3 Présentation du traitement de l'image 32
2.4 Conclusion du chapitre 34

3 Physique du mélange dans un écoulement à bulles confiné **35**
3.1 Premières visualisations du mélange dans un écoulement à bulles confiné . 35
3.2 Interprétation physique de la mesure de concentration par LIF et spectrométrie 37
3.2.1 Décomposition du signal de concentration mesuré par LIF et spectrométrie 37
3.2.2 Effet collectif des bulles 38
3.2.3 Effets individuels des bulles 40
3.3 De la mesure locale de concentration à la mesure globale 43
3.3.1 Influence de la taille du domaine d'observation 43
3.3.2 Influence de la forme du domaine 43
3.4 Modélisation du mélange en cellule de Hele-Shaw 45
3.4.1 Modèle de transport intermittent et convectif 45

3.4.2 Présentation des grandeurs issues de l'expérience pour une confrontation au modèle . . . 48
3.4.3 Confrontation du modèle théorique aux données expérimentales . . 49
3.5 Analyse physique du mélange par le modèle de transport . . . 54
3.5.1 Analyse dimensionnelle . . . 54
3.5.2 Propriétés statistiques de la distribution 1D de colorant . . . 54
3.5.3 Sensibilité paramétrique . . . 59
3.6 Conclusion du chapitre . . . 60

II Mélange dans un essaim de bulles tridimensionnel 63

4 Présentation de la colonne à bulles et de l'écoulement 65
4.1 Présentation de la colonne à bulles 3D . . . 65
4.2 Vérification de l'homogénéité de l'essaim tridimensionnel . . . 67
4.3 Propriétés hydrodynamiques d'un essaim de bulles homogène en ascension 68
4.4 Expérience de mélange dans l'essaim de bulles tridimensionnel . . . 70

5 Technique de visualisation du mélange dans un essaim de bulles tridimensionnel 73
5.1 Présentation de la technique et de la chaîne de mesure . . . 73
5.2 Quantification de l'effet des bulles sur la mesure . . . 75
5.2.1 Identification des difficultés de mesure liées à la présence des bulles 75
5.2.2 Présentation des tests . . . 76
5.2.3 Modélisation de la distorsion optique induite par un essaim de bulles homogène par un filtre gaussien . . . 77
5.3 Correction du signal de fluorescence . . . 81
5.3.1 Principe général du traitement de l'image . . . 81
5.3.2 Validation du postraitement . . . 86
5.4 Méthodologie de mise en œuvre de la fluorescence . . . 90
5.4.1 Étalonnage en concentration . . . 90
5.4.2 Étalonnage en intensité . . . 91
5.4.3 Homogénéité de l'éclairement . . . 92
5.5 Conclusion du chapitre . . . 93

6 Description statistique du mélange dans un essaim de bulles homogène 95
6.1 Equation de transport d'un soluté par diffusion dans un milieu fini 3D . . . 95
6.1.1 Solution de l'équation de diffusion d'un scalaire à partir d'un point source en milieu infini 3D . . . 96
6.1.2 Solution de l'équation de diffusion d'un traceur à partir d'un point source avec des conditions aux limites de flux nul . . . 96
6.1.3 Champ de concentration intégré dans une direction . . . 98
6.2 Mesure de coefficients de diffusion effectifs horizontal et vertical . . . 99
6.2.1 Evolution temporelle de la position du barycentre de la distribution de colorant . . . 99
6.2.2 Approximation de la distribution spatiale de concentration par la solution de l'équation de diffusion bidimensionnelle en milieu confiné 99
6.2.3 Evolution temporelle de la masse de colorant mesurée . . . 103

6.2.4 Évolution temporelle des variances de la distribution de concentration dans les directions horizontale et verticale 104
6.2.5 Évolution du coefficient de diffusion avec la fraction volumique de gaz 105
6.3 Vers une interprétation physique du coefficient de diffusion diphasique . . . 107
6.3.1 Proposition d'un modèle pour le coefficient de diffusion 107
6.3.2 Généralisation du modèle du coefficient de diffusion effectif 112
6.4 Discussion sur les coefficients de diffusion effectifs 113
6.5 Conclusion du chapitre 115

7 Analyse du transport et du mélange dans un écoulement à bulles inhomogène 117
7.1 Présentation des écoulements inhomogènes 117
7.2 Mécanismes de transport et de mélange en écoulement inhomogène 121
7.2.1 Description de l'expérience de mélange 122
7.2.2 Premières observations des mécanismes de mélange en écoulement inhomogène 122
7.2.3 Mesure du temps de mélange macroscopique 127
7.2.4 Découplage des mécanismes de transport et prédiction du temps de mélange 128
7.3 Conclusion du chapitre 131

Conclusion générale 133

A Simulation numérique Euler-Euler du mélange dans un écoulement à bulles 143
A.1 Description des expériences de mélange de l'IFPEN 143
A.1.1 Configuration expérimentale et protocole d'injection 143
A.1.2 Mesure de temps de mélange 145
A.2 Modélisation Euler-Euler du mélange en écoulement à bulles 147
A.2.1 Equations locales multiphasiques 147
A.2.2 Mise en œuvre sous Fluent 148
A.2.3 Validation du modèle hydrodynamique 150
A.3 Prédiction du mélange par simulation numérique Euler-Euler 152
A.4 Conclusion du chapitre 154

B Article soumis au J. Fluid Mech., *Mixing by bubble-induced turbulence* 155

Introduction générale

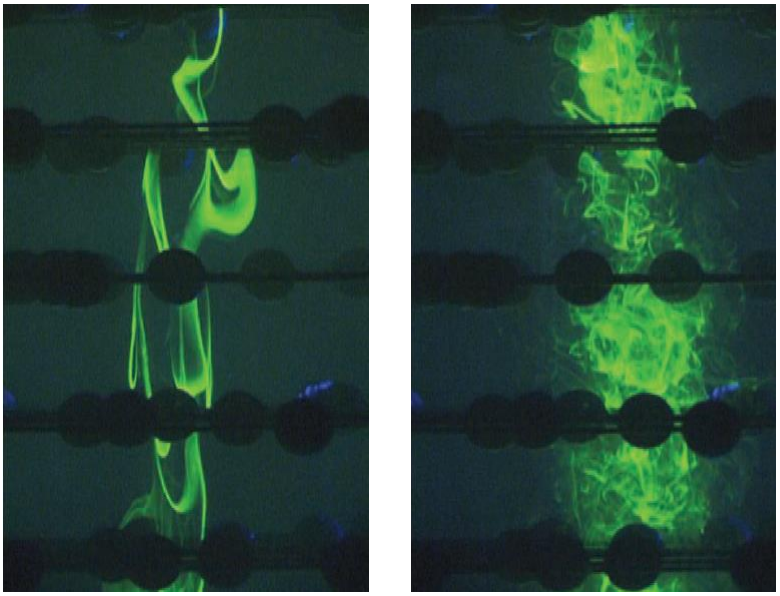
Les réacteurs chimiques impliquant l'écoulement d'une phase continue liquide et d'une phase dispersée gazeuse, communément appelés écoulements à bulles sont très couramment utilisés dans l'industrie pétrochimique (procédé Fischer-Tropsch, oxydation d'hydrocarbures, oligomérisation de l'éthylène), biologique (fermentations aérobies), ou dans le traitement de l'eau (ozonation, traitement des boues). En effet, les écoulements à bulles possèdent de très bonnes propriétés de transfert et de mélange ce qui permet de mêler intimement deux ou plusieurs composés en phase liquide et de produire une réaction chimique. Bien que présents dans de nombreuses applications industrielles, les mécanismes et les phénomènes mis en jeu dans le mélange en écoulement à bulles demeurent encore mal connus aujourd'hui. En effet, il est toujours difficile de prédire la dispersion d'un traceur dans une colonne à bulles de diamètre et de hauteur donnés car l'hydrodynamique et le mélange sont très sensibles aux dimensions de la colonne. Ce qui est traditionnellement fait dans l'industrie pour dimensionner des colonnes à bulles est donc une caractérisation très macroscopique du mélange à l'échelle du réacteur par des expériences de traçage et des mesures de temps de séjours pour différentes tailles de pilotes, allant de l'échelle du laboratoire à l'échelle industrielle. Puis, une extrapolation est faite pour caractériser l'ensemble des tailles de colonne. Mais ces expériences de traçage restent coûteuses en temps et financièrement. Parallèlement, des modèles numériques pour la prédiction locale des écoulements en moyenne statistique de type Euler-Euler sont en développement. Ces simulations numériques locales utilisent des modèles eulériens à deux fluides pour les milieux denses avec des lois de fermeture de la turbulence basées sur un modèle du type Reynolds Averaged Navier Stokes (RANS) et développées à la base pour les écoulements monophasiques turbulents. Quant à la dispersion des constituants chimiques, elle est décrite par un terme diffusif dont le coefficient de diffusion effectif D_t est calculé à partir d'un nombre de Schmidt turbulent et de la viscosité turbulente ($D_t = \frac{\nu_t}{Sc_t}$). Dans un écoulement monophasique en turbulence homogène isotrope, ce nombre de Schmidt turbulent vaut 0.9 mais il arrive que pour les écoulements à bulles, celui-ci varie entre 0.2 et 2.2 car il est adapté aux données expérimentales (Radl & Khinast, 2010, Colombest *et al.*, 2011). Cette méthode, bien que pratique et rapide à mettre en place reste peu prédictive. Il est aussi légitime de s'interroger sur la qualité de ces simulations numériques réalisées à partir de modèles fortement inspirés de la turbulence monophasique. En premier lieu, nous pouvons nous demander si la modélisation de la dispersion d'espèces chimiques par un processus diffusif est toujours valide pour les écoulements à bulles. En effet, la théorie de Taylor, 1921, suppose une hypothèse forte de continuité des mouvements pour obtenir un processus diffusif. Or, dans un écoulement à bulles, les mouvements sont discontinus, ce qui peut remettre en cause l'hypothèse d'un processus diffusif. A ce jour, il n'existe pas à notre connaissance de preuves théoriques permettant d'affirmer que le mélange dans un écoulement à bulles est

un processus diffusif dont le flux turbulent de concentration peut être modélisé par une loi de Fick. Il faudra donc dans un premier temps vérifier cette hypothèse. Nous pouvons aussi nous interroger sur l'estimation de ce coefficient de diffusion effective à partir d'une modélisation issue de la turbulence de cisaillement. En effet, ce coefficient de diffusion résulte des propriétés de dispersion de l'agitation dans la phase liquide et il est maintenant bien connu que l'agitation induite par les bulles dans le liquide, aussi appelée pseudo-turbulence, diffère de la turbulence de cisaillement. Une description plutôt complète de cette agitation pseudo-turbulente est désormais accessible grâce à plusieurs études expérimentales réalisées dans des écoulements à bulles homogènes au sein desquels il n'y a pas de recirculation de liquide à grandes échelles et donc pas de turbulence de cisaillement (Martínez-Mercado *et al.*, 2007 ; Martínez-Mercado *et al.*, 2010 ; Riboux *et al.*, 2010 ; Mendez-Diaz *et al.*, 2013). Cette agitation pseudo-turbulente se décompose essentiellement en deux contributions. La première correspond à l'agitation générée par les sillages proches des bulles et la seconde est liée aux interactions non-linéaires qui se développent entre les sillages (Risso & Ellingsen, 2002, Roig & Larue de Tournemine, 2007). Cependant, les sillages n'ont qu'une faible contribution sur l'agitation totale qui est donc principalement dominée par les interactions de sillages (Riboux *et al.*, 2009). Concernant le mélange d'espèces par l'agitation pseudo-turbulente, nous nous attendons à retrouver ces deux contributions mais beaucoup de questions restent sans réponse à ce jour car hormis une étude préliminaire de Mareuge & Lance, 1995, peu d'investigations expérimentales du mélange dans les écoulements à bulles ont été réalisées. L'objectif de ce travail de recherche consiste donc à étudier le mélange d'espèces chimiques par l'agitation pseudo-turbulente en présence ou non de turbulence de cisaillement et d'en comprendre les mécanismes fondamentaux.

L'étude du mélange dans un écoulement à bulles est un vaste problème puisque quatre paramètres adimensionnels le caractérisent, à savoir :

- la fraction volumique du gaz α
- le nombre de Reynolds $Re = \frac{Vd}{\nu}$ basé sur le diamètre d des bulles, la vitesse des bulles V et la viscosité cinématique du liquide ν
- le nombre de Schmidt du traceur passif $Sc = \frac{\nu}{D}$ où D est la diffusivité moléculaire
- le nombre de Weber $We = \frac{\rho V^2 d}{\sigma}$ où σ est la tension de surface

Malgré cette grande variété paramétrique, peu d'études expérimentales sont dédiées à ce problème, même dans la gamme de nombres adimensionnels correspondant aux applications industrielles et à notre étude, c'est-à-dire celle à grands nombres de Reynolds et de Schmidt et à des nombres de Weber modérés. La difficulté de faire des mesures de mélange dans les écoulements à bulles est sûrement une des raisons qui expliquent ce faible engouement pour l'investigation expérimentale d'un tel problème. En effet, la présence intermittente des bulles rend tout accès d'instrumentations optiques complexe et une très bonne résolution temporelle des matériels est nécessaire pour capturer les phénomènes physiques. Cependant, une approche fructueuse pour analyser les mécanismes de mélange dans un écoulement à bulles tout en contournant ces difficultés métrologiques est l'étude du mélange dans des réseaux aléatoires d'obstacles. En effet, au sein d'un réseau de sphères de diamètre 2 cm, de fraction volumique 2 % et à un nombre de Reynolds proche du nombre de Reynolds dans un écoulement à bulles homogène ($Re = 700$), Risso *et al.*, 2010 ont montré que l'agitation générée dans le réseau est représentative de celle produite par pseudo-turbulence dans un essaim de bulles homogène à une fraction volumique de 2 %. L'agitation dans le réseau présente également deux contributions, l'une des sillages proches



(a) Re = 100. (b) Re = 1000.

FIGURE 1 – Mécanismes de mélange dans un réseau de sphères à $\alpha = 2\%$. Besnaci, 2012.

et l'autre des interactions entre les sillages. L'étude du mélange dans cette agitation de réseau pour des nombres de Reynolds variant de 100 à 1000 a ainsi permis d'identifier deux principaux mécanismes élémentaires du mélange (Besnaci, 2012). Le premier mécanisme de mélange est celui produit par l'interaction du colorant avec les sphères et en particulier par capture du colorant dans les sillages proches. Ce mécanisme est particulièrement présent à faible nombre de Reynolds (figure 1 a, Besnaci, 2012). Quant au deuxième mécanisme de mélange observé dans le réseau de sphères à grand nombre de Reynolds, c'est celui généré par l'agitation créée par les sillages en interaction (figure 1 b, Besnaci, 2012). Besnaci, 2012 a aussi montré que le mélange dans la direction horizontale est un processus diffusif quel que soit le nombre de Reynolds et a mesuré un coefficient de diffusion effectif. Ces deux mécanismes de mélange avaient déjà été observés dans des réseaux aléatoires de cylindres circulaires pour des nombres de Reynolds variant entre 10 et 1000 et pour une fraction volumique inférieure à 1% par White & Nepf, 2003 et Tanino & Nepf, 2007. En faisant l'hypothèse d'un processus de mélange diffusif et en calculant une diffusivité propre à chaque contribution élémentaire, White & Nepf, 2003 ont aussi calculé une diffusivité effective totale. Cette diffusivité a été confrontée à des résultats expérimentaux et évolue de manière non monotone avec le nombre de Reynolds.

Les deux mécanismes de mélange présentés précédemment ont aussi pu être observés dans des écoulements à bulles. En effet, le mécanisme de mélange par capture du colorant dans les sillages a pu être observé dans un écoulement à bulles confiné entre deux plaques planes à grand nombre de Reynolds et de Schmidt par Bouche *et al.*, 2012. Cette étude a permis de montrer que le mélange par capture du colorant dans les sillages des bulles n'est pas un processus diffusif quelle que soit la fraction volumique entre 1 et 7 %. Au contraire, dans un écoulement à bulles homogène tridimensionnel à grand nombre de Reynolds et de Schmidt, Mareuge & Lance, 1995 ont montré dans une étude pionnière que le mélange d'un traceur passif à faible fraction volumique ($\alpha \approx 0.2\%$) est un processus diffusif. De plus, ils

ont constaté qu'à cette fraction volumique, le mélange est anisotrope. En effet, la diffusivité effective dans la direction verticale est deux fois plus grande que celle dans la direction horizontale. Une étude plus récente concernant le transfert de masse et le mélange d'oxygène dissout dans des écoulements à bulles à grand nombre de Reynolds et de Schmidt a été menée par Abbas *et al.*, 2009. Dans ces travaux, les auteurs ont montré que le modèle de diffusion est acceptable et que la diffusivité effective dans la direction horizontale évolue de manière non monotone avec la fraction volumique et ce pour des fractions volumiques allant jusqu'à 12%.

L'ensemble de ces études font ressortir que le mélange dans des écoulements à bulles a principalement deux origines. La première est l'interaction du colorant avec l'écoulement fortement perturbé au voisinage des bulles. En particulier, le colorant peut être capturé dans les sillages, y rester piégé avant d'être relâché. Le second mécanisme de mélange résulte de la turbulence générée par les interactions de sillages. Ces deux mécanismes dépendent à la fois de la fraction volumique et du nombre de Reynolds. Bien que riches en enseignement, ces études laissent néanmoins des zones d'ombre : quel est le rôle de la mobilité des bulles ? Quelle est l'influence de la fraction volumique ? Quelles sont les différences majeures entre le mélange dans la direction du mouvement des bulles et dans la direction perpendiculaire ? Nous souhaitons apporter des éléments de réponse à ces questions afin de proposer une modélisation robuste du mélange dans un écoulement à bulles. Dans le but d'isoler et d'étudier séparément les différents mécanismes de mélange présentés précédemment, nous avons étudié le mélange d'un traceur passif dans différentes configurations d'écoulement à bulles. Dans un premier temps, nous avons étudié le mélange par capture du colorant dans les sillages des bulles dans un écoulement à bulles confiné entre deux plaques planes. Dans cet écoulement confiné, les interactions non-linéaires entre les sillages ne peuvent pas se développer à cause du frottement aux parois important et seule l'agitation produite par les sillages proches est présente. Nos travaux font suite à ceux de Bouche *et al*, 2012 qui avaient étudié le mélange dans le même dispositif expérimental en mesurant le champs de concentration par fluorescence induite par laser plane (PLIF) à basse cadence. Dans un deuxième temps, nous avons investigué le mélange induit par l'agitation pseudo-turbulente dans un écoulement à bulles tridimensionnel homogène. Dans cet écoulement, l'agitation du liquide est produite à la fois par les sillages proches des bulles et par les interactions non-linéaires qui se développent entre les sillages. Pour finir, nous avons étudié le mélange en présence d'agitation pseudo-turbulente et de turbulence de cisaillement. Ce type d'agitation se retrouve dans des écoulements à bulles tridimensionnels inhomogènes, c'est-à-dire des écoulements à bulles au sein desquels est présente une recirculation du liquide.

Ce manuscrit est scindé en deux parties, chaque partie analysant le mélange dans une configuration expérimentale particulière. Ainsi, la première partie traite du mélange en écoulement à bulles confiné, la seconde du mélange en écoulement à bulles tridimensionnel homogène et inhomogène. Cette thèse ayant nécessité un développement métrologique important, chaque partie se décompose en trois temps présentant tout d'abord la configuration expérimentale, puis la technique de mesure et pour finir une description physique du mélange. Le lecteur souhaitant connaître les détails techniques concernant la mesure de concentration en écoulement à bulles est donc invité à lire les chapitres 2 et 5 alors que le lecteur préférant accéder à l'analyse physique du mélange lira les chapitres 3, 5 et 6.

Première partie

Mélange dans un essaim de bulles confiné

Chapitre 1

Présentation de la cellule de Hele-Shaw et de l'écoulement

Dans le but de comprendre la contribution des sillages sur le mélange, nous avons étudié le mélange d'un traceur peu diffusif dans un écoulement à bulles confiné au sein d'une cellule de Hele-Shaw. Cet écoulement présente des propriétés hydrodynamiques originales et intéressantes permettant d'étudier le mélange par capture du colorant dans les sillages. En effet, dans un tel écoulement, les sillages sont instables et fortement atténués par le frottement aux parois qui empêche le développement d'interactions non-linéaires entre les sillages. Dans un premier temps, nous commencerons pas décrire la cellule de Hele-Shaw. Puis nous donnerons les principales propriétés hydrodynamiques des écoulements à bulles confinés. Cela nous permettra de comprendre quelle est la nature de l'agitation générée dans de tels écoulements. Puis nous terminerons en présentant l'expérience de mélange.

1.1 Présentation de la cellule de Hele-Shaw

La cellule de Hele-Shaw est composée de deux plaques de verre de 800×400 mm^2, séparées par un interstice e de 1 mm (figure 1.1). La cellule est remplie d'une solution aqueuse de sulfate de magnésium ($MgSO_4$) à une concentration de 5×10^{-2} mol/L. La présence de sel inhibe la coalescence des bulles sans pour autant modifier les propriétés physiques de l'écoulement. Les bulles sont générées par 15 tubes capillaires de diamètre intérieur 0.6 mm situés au bas de la cellule. Le fait que le diamètre des capillaires est identique permet d'assurer une faible polydispersité des tailles de bulles. Les capillaires sont alimentés par un réservoir d'air suffisamment grand pour assurer un débit d'air stationnaire. La fraction volumique de gaz peut être fixée entre 1 % et 10 %. Le diamètre équivalent des bulles générées ($d = \sqrt{\frac{4}{\pi}A}$, où A est l'aire projetée dans le plan de la cellule) varie entre 3.9 et 4.5 mm et augmente lorsque la fraction volumique augmente de 1.4 à 16.6 % (Bouche *et al.*, 2012). De plus, vu que le diamètre des bulles est très grand devant la largeur de l'interstice ($\frac{e}{d} \ll 1$), les bulles sont aplaties. L'écoulement fortement confiné peut donc être considéré comme bidimensionnel.

Par la suite, la direction horizontale est appelée x et la direction verticale y. L'ensemble des résultats présentés est moyenné dans l'épaisseur de l'interstice, c'est-à-dire dans la direction z. Nous travaillons uniquement dans le plan $(x; y)$.

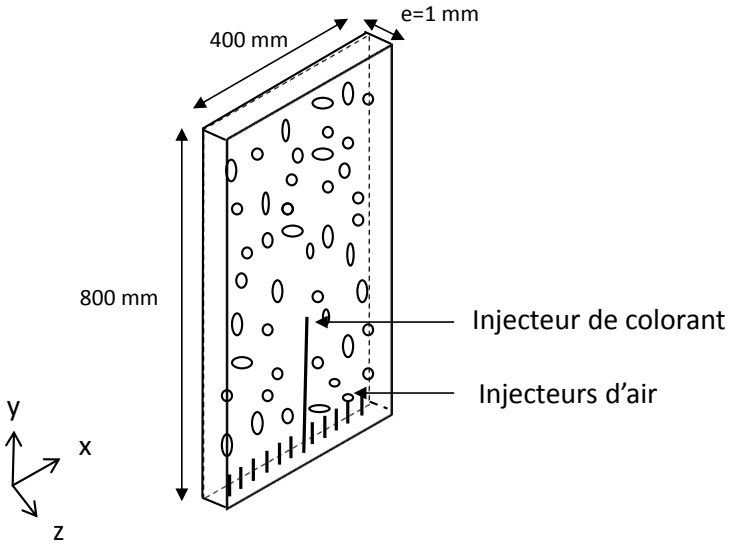


FIGURE 1.1 – Schéma de la cellule de Hele-Saw

1.2 Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement en cellule de Hele-Shaw

Dans cet écoulement à bulles homogène confiné, le diamètre des bulles d évolue avec la fraction volumique. Par conséquent, pour des fractions volumiques comprises entre 1.4 et 13.6 %, le nombre de Bond varie entre 1.7 et 3.2 ($Bo = \frac{\rho g d^2}{\sigma}$ avec ρ la masse volumique, σ la tension superficielle et g l'accélération de pesanteur) et le nombre d'Archimède entre 650 et 1100 ($Ar = \frac{\sqrt{gd}d}{\nu}$ avec ν la viscosité cinématique). Quant au nombre de Reynolds ($Re = \frac{V_0 d}{\nu}$ où V_0 est la vitesse moyenne d'ascension des bulles), il évolue entre 300 et 600. Ainsi, dans ces gammes de nombres adimensionnels, Roig *et al.*, 2011 ont montré qu'une bulle isolée en ascension a une forme ellipsoïdale de rapport d'aspect compris entre 1 et 1.3 et qu'elle a un sillage instable avec des lâchers tourbillonnaires périodiques qui sont à l'origine d'une trajectoire oscillante. La vorticité et le sillage se trouvent fortement atténués par le frottement aux parois et décroissent exponentiellement avec une échelle de temps caractéristique constante donnée par $T_\nu = \frac{e^2}{\nu} \approx 1$ s (avec e l'épaisseur de l'interstice de la cellule de Hele-Shaw). En particulier, le déficit de vitesse à l'arrière de la bulle évolue avec la position x par rapport à la bulle en $V_0 exp(\frac{-x}{l_w})$ avec $l_w = T_\nu \frac{V_0}{7}$.
Dans un essaim de bulles confiné dans lequel la fraction volumique évolue entre 1 et 13%, Bouche *et al.*, 2014 ont aussi constaté que les perturbations induites par les bulles restent localisées et que le déficit de vitesse à l'arrière des bulles décroit exponentiellement, comme dans le cas de la bulle isolée. Pour des fractions volumiques inférieures à 1.2%, les sillages restent identiques à celui de la bulle isolée car il y a peu d'interaction entre les bulles et c'est la dissipation par le frottement aux parois qui pilote la longueur caractéristique des sillages. Puis, lorsque la fraction volumique augmente au delà de 1.2%, la longueur caractéristique de la décroissance exponentielle du déficit de vitesse diminue jusqu'à obtenir un plateau à partir de 2% de gaz. Pour les fractions volumiques supérieures à 2%, il est possible de

considérer que la perturbation induite par le sillage est négligeable au delà de 5 diamètres de bulles. Les perturbations induites par les sillages restent donc localisées à proximité de la bulle et très peu d'interactions entre les sillages se développent. Des interactions de courtes distances sont néanmoins possibles et des sillages peuvent se recombiner dans le cas des fortes fractions volumiques (Bouche *et al.*, 2014). L'effet localisé de la perturbation induite par les bulles est particulièrement visible sur la figure 1.2 issue de Bouche *et al.*, 2014 où il est possible de distinguer des zones de liquide totalement au repos.
L'origine des fluctuations de vitesse du liquide et du gaz provient de mécanismes totalement différents selon les directions horizontale et verticale (Bouche *et al.*, 2014). Ainsi, dans la direction verticale, il y a un couplage fort entre les agitations du liquide et des bulles puisque celles-ci possèdent les mêmes propriétés statistiques (Bouche *et al.*, 2012 ; Bouche *et al.*, 2014). L'écart-type des fluctuations de vitesse des bulles et du liquide dans la direction verticale augmente avec la fraction volumique à la puissance 0.46 et les densités de probabilité des fluctuations de vitesse des bulles et du liquide sont toutes deux asymétriques, non gaussiennes pour les plus faibles fractions volumiques, et deviennent gaussiennes lorsque la fraction volumique augmente. Au contraire dans la direction horizontale, les fluctuations de vitesse du liquide et des bulles sont totalement découplées. En effet, l'écart-type des fluctuations de vitesse du liquide dans la direction horizontale augmente avec la fraction volumique à la puissance 0.38 alors que celui des bulles ne dépend pas de la fraction volumique car il a pour origine les instabilités de sillages. Les densités de probabilité des vitesses présentent elles aussi des caractéristiques différentes : celle du liquide est symétrique et devient gaussienne lorsque la fraction volumique augmente alors que celle des bulles présente deux pics à faible fraction volumique qui sont toujours liés aux instabilités de sillages. A forte fraction volumique, la densité de probabilité du gaz devient gaussienne car les interactions hydrodynamiques entre les bulles font perdent la cohérence temporelle de celles-ci.
Cet écoulement en cellule de Hele-Shaw présente des spectres spatiaux des fluctuations de vitesse du liquide similaires dans les directions horizontale et verticale (Bouche *et al.*, 2014) et une fois adimensionnés par la variance des fluctuations du liquide, ces derniers deviennent indépendants de la fraction volumique. Ces spectres exhibent un comportement en Λ^3 (où Λ est la longueur d'onde) sur des gammes de longueur d'onde comprises entre d et $5d$ avec une échelle de longueur intégrale de l'ordre de 20 mm indépendante de la fraction volumique. Cette pente peut théoriquement être expliquée par le modèle développé par Risso, 2011 pour le spectre de l'agitation spatiale dans un essaim de bulles. En effet, ce modèle indique que sous les hypothèses suivantes : *(i)* les perturbations induites ont un motif lisse et régulier *(ii)* la distribution spatiale, la taille et l'intensité des perturbations sont aléatoires *(iii)* la taille des perturbations est uniformément distribuée entre Λ_{min} et Λ_{max} , le spectre de l'agitation généré a une pente en λ^3 sur des gammes de longueur d'onde comprises entre Λ_{min} et Λ_{max}. En cellule de Hele-Shaw, nous nous trouvons bien dans le cadre des hypothèses de ce modèle.
L'écoulement en cellule de Hele-Shaw présente donc des propriétés hydrodynamiques intéressantes. En effet, dû au confinement, peu d'interactions entre des sillages distants se développent et seule la perturbation induite par les bulles dans leur voisinage local existe. La turbulence ne peut pas se développer. Cela permet donc d'étudier le mélange dans une configuration d'écoulement où le rôle des sillages individuels des bulles est dominant.

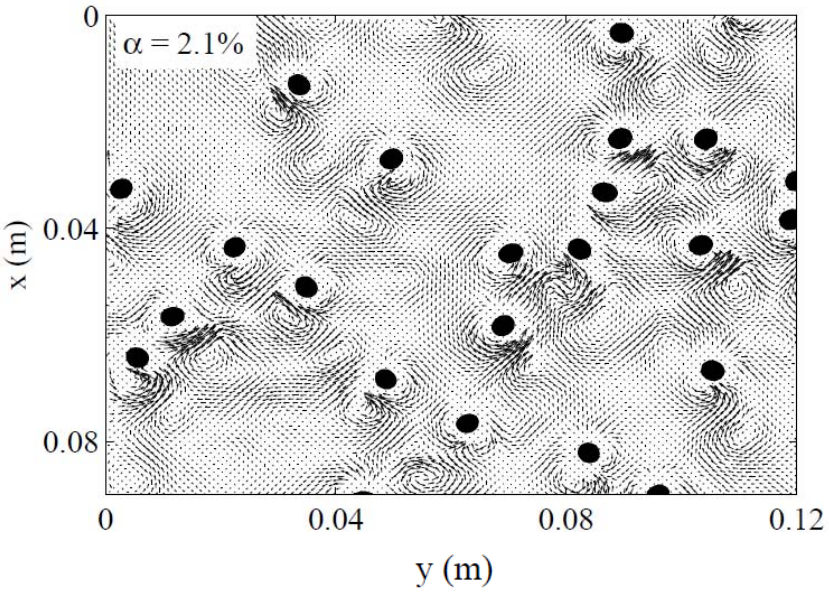


FIGURE 1.2 – Agitation dans le liquide à $\alpha = 2.1\%$. (Bouche *et al.*, 2014)

1.3 Expérience de mélange en cellule de Hele-Shaw

Dans la cellule de Hele-Shaw, nous injectons un traceur passif fluorescent à grand nombre de Schmidt, la rhodamine WT, à une concentration $C_0 = 10^{-4}$ mol/L grâce à un long tube capillaire de diamètre intérieur 0.5 mm. L'injection de colorant est ponctuelle et réalisée à une hauteur de 30 à 40 cm au dessus des injecteurs d'air afin que le nuage de bulles soit homogène et que les propriétés hydrodynamiques soient uniformes. L'injection est produite par un pousse-seringue de la marque Haward et d'une seringue à gaz de 100 mL auxquels nous imposons un débit de 30 mL/min et un volume injecté de 1 ml. L'injection du colorant dure donc 2 s environ. Pendant la durée de l'injection, un jet de colorant se forme en sortie de l'injecteur et celui-ci interagit avec les bulles. Une fois l'injection terminée (figure 1.3), le jet met environs 1 s pour s'atténuer. En effet, la durée caractéristique d'atténuation du jet peut être estimée par le temps de dissipation visqueuse : $T_\nu = \frac{e^2}{\nu} = 1$ s. Il faut donc attendre 1 s après la fin de l'injection pour étudier le mélange uniquement induit par les bulles. Il n'y a alors plus d'effet mémoire des conditions d'injection. En pratique, nous étudions la propagation du colorant au minimum 4 s après le début de l'injection.

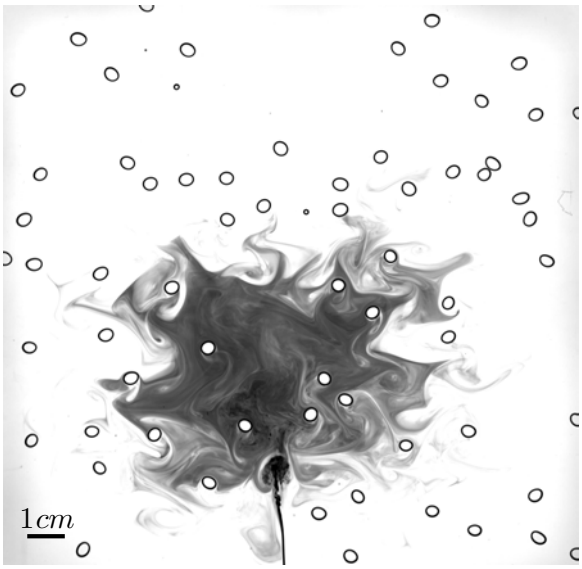


FIGURE 1.3 – Injection de traceur passif en cellule de Hele-Shaw à la fin de l'injection. $\alpha = 5.6\%$.

Chapitre 2

Technique de mesure de concentration en écoulement à bulles confiné

Nous détaillons dans ce chapitre les différentes techniques développées au cours de cette thèse pour mesurer la concentration au sein d'un nuage de bulles confiné. Dans cet écoulement confiné, deux types de mesure ont été réalisées permettant toutes deux de mesurer la concentration à une fréquence de 250 Hz. La première technique permet de mesurer la concentration sur un grand champ par visualisation de la lumière absorbée par le traceur fluorescent à l'aide d'une caméra. Quant à la seconde technique, elle permet de mesurer localement la concentration par fluorescence induite par laser (LIF) couplée à de la spectrométrie. Cette technique de mesure a nécessité quelques développements métrologiques pour arriver à une bonne compréhension et interprétation du signal mesuré. Nous présenterons donc les différentes étapes de développement et de validation de cette mesure. Mais avant de détailler ces deux techniques de mesure spécifiquement, nous allons expliquer le principe général de la fluorescence et de l'absorption d'un traceur fluorescent et en donner les caractéristiques principales. Cela nous permettra de mieux comprendre le principe de fonctionnement de chaque technique de mesure, mais aussi de justifier le choix des sources d'excitation et des traceurs utilisés.

2.1 Principe général de la fluorescence induite

2.1.1 Les phénomènes de fluorescence et d'absorption

Le phénomène de fluorescence consiste en une émission spontanée de lumière à la suite de l'excitation d'une molécule fluorescente par une source lumineuse. Quelle que soit la nature de la source, il est nécessaire de choisir la longueur d'onde d'excitation de la source en fonction des propriétés d'absorption du traceur. En effet, pour que la molécule soit excitée par la source lumineuse, il faut que les longueurs d'onde de la source lumineuse correspondent aux fréquences propres d'excitation de la molécule. Celles-ci sont connues grâce au spectre d'absorption de la molécule (figure 2.1). Une fois excitée, la molécule cherche à retrouver un état énergétique de plus bas niveau et émet des photons dont les longueurs d'onde constituent son spectre d'émission (figure 2.1). Comme le photon absorbé par la molécule possède une énergie plus grande que le photon émis, le spectre d'émission

de la molécule est décalé vers les plus grandes longueurs d'onde par rapport au spectre d'absorption.

L'intensité de lumière fluorescée, notée $F(\vec{x},t)$ dépend à la fois de la concentration locale $C(\vec{x},t)$, de l'intensité locale de la source lumineuse $I(\vec{x},t)$ mais aussi du pH et de la température. A température et pH constant, le signal de fluorescence F s'écrit, d'après Crimaldi, 2008 :

$$F = KIC \tag{2.1}$$

où K est une constante d'étalonnage. Cette relation linéaire est valable dans une certaine gamme de concentration et d'intensité de la source. Au delà d'un certain seuil, des effets non linéaires en concentration et en intensité sont observés. Il est possible de prendre en compte les non-linéarités en intensité grâce à la formule suivante (Crimaldi, 2008) :

$$F \propto \frac{I}{1+\frac{I}{I_{sat}}C} \tag{2.2}$$

où I_{sat} est la saturation en intensité du traceur. Quant aux effets de non-linéarité en concentration, ceux-ci se produisent à cause du phénomène d'absorption de type Beer-Lambert qui modifie localement la valeur de l'intensité d'excitation. En effet, lorsqu'un faisceau lumineux d'intensité I traverse une solution à la concentration C sur une distance dl, celui-ci voit son intensité diminuer de dI du fait de l'absorption de la lumière incidente par le fluorophore :

$$\frac{dI}{I} = -\epsilon C dl \tag{2.3}$$

où ϵ est le coefficient d'absorption du traceur.
L'intensité de la source I à la position y vaut alors :

$$I(y) = I(y_0) exp\left(-\epsilon \int_{y_0}^{y} C(y)dy\right) \tag{2.4}$$

Si la concentration est homogène dans le domaine, la décroissance de l'intensité de la lumière incidente décroît exponentiellement avec la distance parcourue .

2.1.2 Protocole de mise en œuvre de la fluorescence induite

La fluorescence induite par laser est une technique de mesure permettant de mesurer la concentration à partir de l'intensité de lumière fluorescée émise par le traceur. Pour cela, il est nécessaire d'isoler la lumière fluorescée de la source d'excitation par filtrage. La source

d'excitation doit donc à la fois exciter la molécule fluorescente dans son spectre d'absorption mais ne pas émettre de longueurs d'onde dans le spectre d'émission de la molécule pour ne pas perturber la mesure. C'est pour cette raison que généralement, il est utilisé une source d'excitation de bande étroite, à savoir un laser.
Une fois la source d'excitation et le traceur choisis, il faut déterminer les seuils de non linéarité en concentration et en intensité. Habituellement, des étalonnages en concentration et en intensité sont réalisés et consistent à faire varier indépendamment la concentration et l'intensité de la source lumineuse. Cela permet aussi de déterminer la constante d'étalonnage de l'équation 2.1. Les mesures sont ensuite effectuées généralement dans les conditions où la fluorescence est proportionnelle à la concentration et à l'intensité de la source.

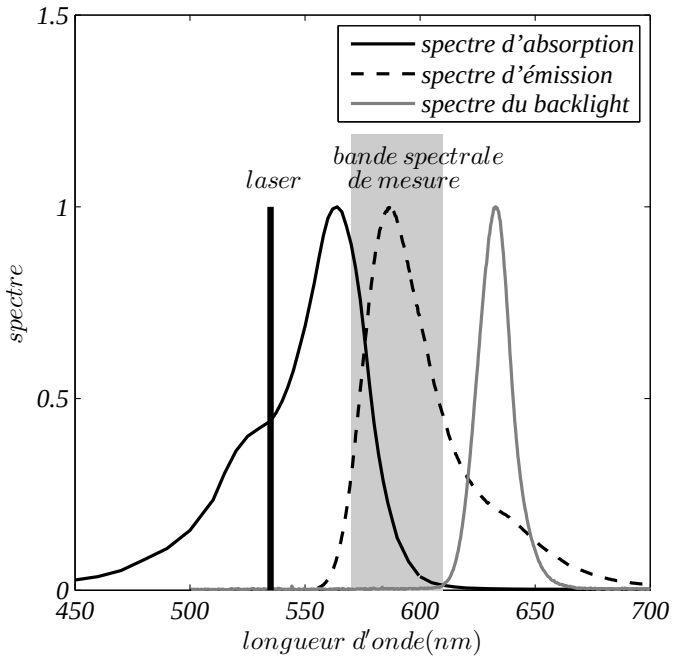


FIGURE 2.1 – Spectre d'absorption et d'émission de la rhodamine WT. Spectre du panneau de LED rouge. Raie spectrale du laser.

2.2 Mesure de concentration locale résolue en temps par LIF et spectrométrie

Cette technique de mesure s'appuie sur le principe de fluorescence induite par laser (LIF). Nous utilisons un spectromètre dans le but d'acquérir le spectre de la lumière collectée dans un petit volume de mesure à haute fréquence. En isolant les longueurs d'onde de la lumière fluorescée, nous pouvons ainsi déterminer la concentration du traceur fluorescent dans le volume de mesure. Néanmoins, la présence des bulles perturbe la mesure en réfléchissant la lumière ou en l'occultant. Ces phénomènes d'occultation et de réflexion sont facilement identifiables sur le signal, encore faut-il comprendre la nature du signal mesuré. Pour comprendre la nature du signal mesuré par spectrométrie, mais aussi pour quantifier les perturbations induites par les bulles, nous avons synchronisé la mesure locale de concentration à une technique d'ombroscopie qui permet de déterminer la distribution spatiale des bulles autour du volume de mesure. La synchronisation des deux systèmes de mesure a nécessité de prendre quelques précautions pour que la mesure par ombroscopie ne perturbe pas la mesure de concentration locale. Nous présenterons donc en détails l'ensemble de l'étude qui nous a permis de comprendre la nature du signal mesuré et de valider la technique de mesure de concentration locale résolue en temps.

2.2.1 Présentation de la technique et de la chaîne de mesure

Dans le but de réaliser une mesure de concentration locale résolue en temps, nous avons couplé la technique de LIF à de la spectrométrie. Pour cela, le traceur passif fluorescent injecté, la rhodamine WT, est excité par un laser YAG532, 10 MW, Lasiris. Ce laser est placé d'un côté de la cellule Hele-Shaw et éclaire un volume cylindrique, dit *volume éclairé*, de 0.5 mm de diamètre par 1 mm de profondeur (figure 2.2). La rhodamine WT ayant un spectre d'absorption compris entre 480 et 590 nm (figure 2.1), elle peut donc être excitée par un laser 532 nm. Une fois excitée, la rhodamine WT fluoresce sur des longueurs d'onde comprises entre 560 et 680 nm (figure 2.1). La lumière fluorescée est alors collectée dans un volume cylindrique, dit *volume d'observation*, de 3 mm de diamètre traversant l'épaisseur de l'interstice, par une fibre optique collimatée placée de l'autre côté de la cellule de Hele-Shaw (figure 2.2). Afin de protéger la fibre optique du faisceau laser, nous avons disposé devant elle un filtre passe-haut de longueur d'onde de coupure 570 nm (OG570, Melles Griot). Cette fibre optique est reliée à un spectromètre USB2000+, développé par Ocean Optics qui permet d'échantillonner la lumière collectée à une fréquence maximale de 1000 Hz. En pratique, la fréquence d'acquisition est limitée par le nombre de photons collectés par la fibre optique, celui-ci devant être suffisamment important pour que le spectre de la lumière collectée ne soit pas bruité. A chaque pas de temps, le spectre de la lumière collectée dans le volume d'observation est enregistré (figure 2.3 a). Il permet de dissocier la lumière fluorescée du reste de la lumière par séparation des longueurs d'onde et ainsi de mesurer la concentration par intégration du spectre sur la gamme de longueur d'onde du spectre d'émission de la rhodamine WT (figure 2.3 b). Dans certaines conditions de concentration et d'intensité de laser que nous préciserons ultérieurement, la concentration mesurée est alors calculée ainsi :

$$c(t) = K \int_{\lambda=570nm}^{\lambda=610nm} E(\lambda, t) d\lambda \tag{2.5}$$

où K est un coefficient déterminé par un étalonnage.

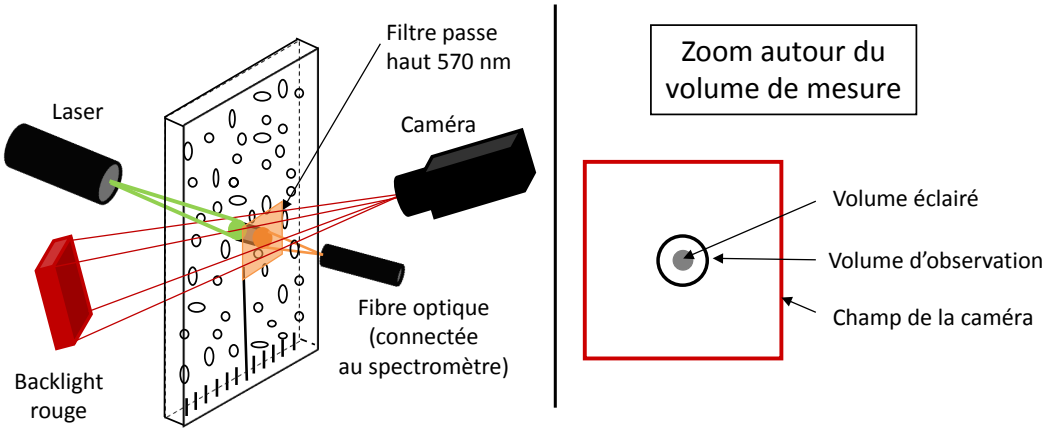
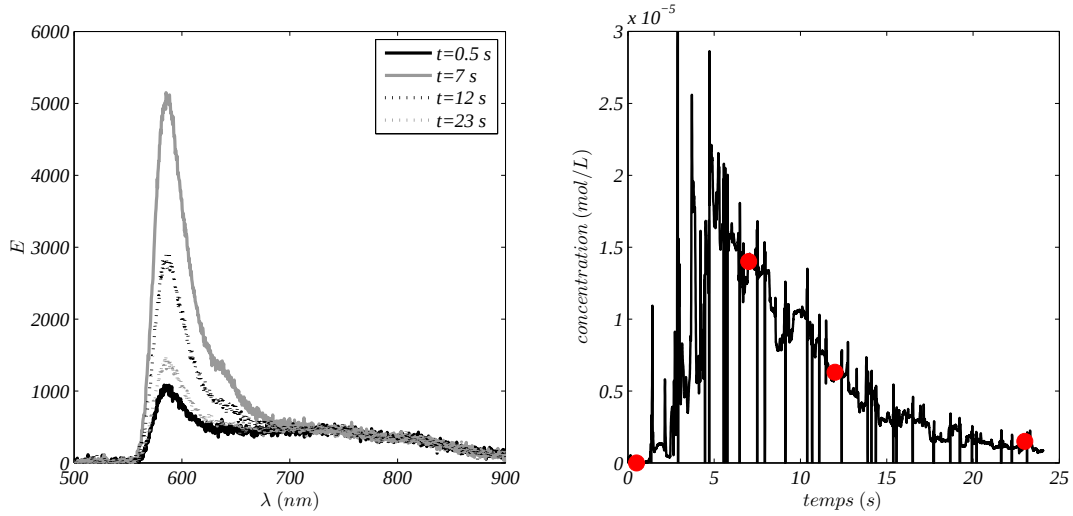


FIGURE 2.2 – Configuration expérimentale pour la mesure de concentration locale résolue en temps en cellule Hele-Shaw. Synchronisation avec de l'ombroscopie

La figure 2.3 présente un exemple de signal de concentration mesuré par LIF couplée à la spectrométrie (figure 2.3 b) ainsi que quatre spectres instantanés de lumière collectée pris à quatre instants différents et repérés sur la figure 2.3 b (figure 2.3 a). Ce signal de concentration a été enregistré à une fréquence d'acquisition de 250 Hz lors d'une expérience de mélange en écoulement à bulles à une fraction volumique de 2.8 %. Cette fréquence d'acquisition permet d'obtenir un spectre de la lumière collectée non bruité sur toute la durée de l'enregistrement (figure 2.3 b). Nous pouvons ainsi constater que le signal de concentration mesuré comprend deux phases (figure 2.3 a). Dans une premier temps, la concentration augmente entre 1 et 6 s, ce qui correspond à l'arrivée du colorant. Puis la concentration diminue de 7 à 25 s à cause du mélange induit par les bulles. Néanmoins, nous pouvons remarquer que le signal mesuré par spectrométrie est un signal complexe dont l'interprétation physique est rendue difficile par la présence de pics d'amplitude significative. Vu que la durée moyenne des pics est de l'ordre de 0.05 s et que le temps de passage d'une bulle est de l'ordre de $T_b = \frac{d}{V} \approx 0.04$ s, nous pouvons supposer que ces pics sont la signature du passage de bulles dans le volume éclairé, encore faut-il prendre le soin de s'en assurer. Entre les pics, nous pouvons aussi constater la présence de fluctuations intenses, en particulier entre la 5ième et la 10ième secondes. Nous pouvons nous demander dans quelle mesure ces fluctuations de concentration sont révélatrices d'un mécanisme de mélange propre à cet écoulement confiné et ne sont pas du bruit de mesure.



(a) Spectres instantanés à différents instants

(b) Signal de concentration typique

FIGURE 2.3 – Mesure de la concentration à partir des spectres instantanés de la lumière collectée par la fibre optique

2.2.2 Compréhension du signal mesuré par LIF et par spectrométrie

Synchronisation de la mesure locale par spectrométrie à de l'ombroscopie

Dans le but de mieux comprendre l'origine physique des fluctuations et des pics, nous avons synchronisé la mesure locale par spectrométrie à de l'ombroscopie. Pour cela, deux systèmes de mesure de concentration totalement indépendants ont été synchronisés à la fréquence de 250 Hz (figure 2.2). Le premier système, présenté précédemment est composé d'un laser 532 nm, de la fibre optique et du spectromètre. Le deuxième système est constitué d'une caméra (Photron APX RS300, optique de 105 mm) qui filme un champ de 2×2 cm^2 autour du volume d'observation. Le champ est éclairé par un panneau de LED rouges qui émet des longueurs d'onde supérieures à 610 nm (figure 2.1). Il ne peut donc ni exciter la rhodamine WT ni se superposer à la lumière fluorescée dans la gamme de longueur d'onde où nous faisons la mesure de concentration, à savoir 570-610 nm. Un filtre passe-haut de longueur d'onde de coupure 540 nm est disposé devant la caméra afin de la protéger du faisceau laser.
La synchronisation du spectromètre et de la caméra nous permet d'accéder à deux types d'informations simultanément. Elle permet de détecter la distribution spatiale des bulles autour du volume d'observation et de mesurer la concentration dans le volume d'observation par deux techniques de mesure indépendantes, l'une étant la spectrométrie, l'autre l'intégration des niveaux de gris filmés par la caméra sur le volume d'observation. Cela nous permettra de comprendre l'origine physique des fluctuations et des pics présents sur le signal mesuré par LIF et spectrométrie.

Origine physique des fluctuations du signal mesuré

La figure 2.4 superpose le signal de concentration mesuré par spectrométrie (en gris) et l'intégrale des niveaux de gris dans le volume d'observation filmés par la caméra (en noir). Une fois normalisés par leur maximum, les deux signaux mesurés se superposent très bien. De cette manière, nous pouvons vérifier que hormis les pics très intenses, les fluctuations du signal mesurées par spectrométrie correspondent à des variations d'émission de fluorescence du traceur mesurées par la caméra et donc à des variations de concentration. Les fluctuations observées ont donc un vrai sens physique.

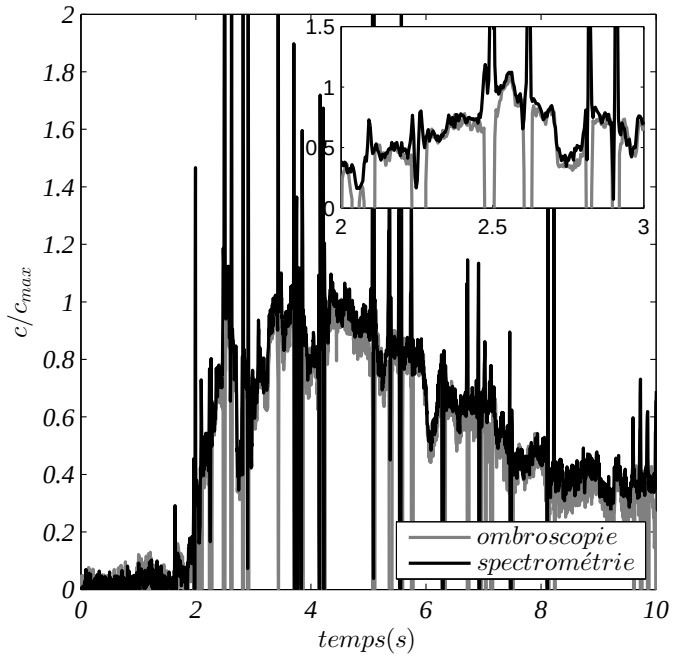
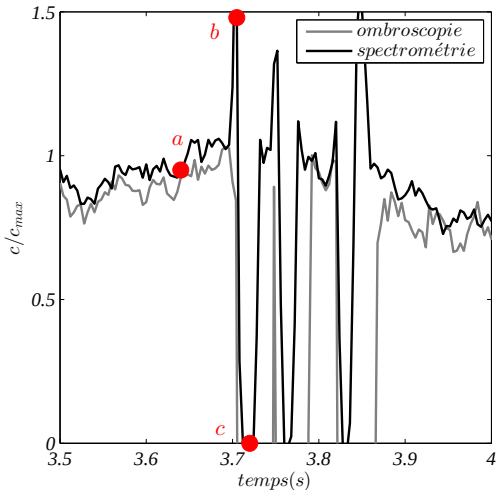


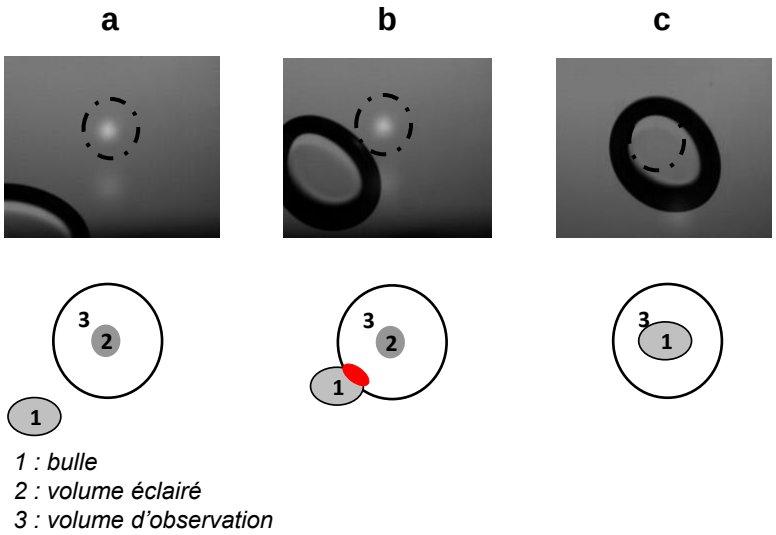
FIGURE 2.4 – Comparaison du signal de concentration mesuré par le spectromètre et par ombroscopie avec la caméra

Origine physique des pics présents sur le signal mesuré

La figure 2.5 présente à la fois les enregistrements simultanés de la chaîne de mesure spectrométrique et de la mesure des niveaux de gris de la caméra sur le volume d'observation (figure 2.5 a) ainsi que les visualisations de la caméra aux trois instants repérés sur la figure 2.5 b). Les trois instants ont été choisis de telle manière que nous puissions distinguer les cas où il n'y a pas de pics d'intense amplitude (cas a) de ceux où les pics d'intense amplitude sont présents (cas b et c). Ainsi, dans le cas a, le signal de concentration mesuré (figure 2.5 (a) a) ne présente pas de pic d'intense amplitude et nous pouvons alors observer qu'aucune bulle est présente dans le volume d'observation du spectromètre. Dans ce cas ci, il n'y a aucune perturbation du signal mesuré et nous mesurons alors bien une concentration. Au contraire, quand une bulle traverse le volume éclairé, cela produit des pics d'intense amplitude sur le signal mesuré par LIF couplée à la spectrométrie (cas b et c). Différents pics sont observables : des maxima à cause des réflexions de la lumière fluo-

rescée sur l'interface de la bulle (figure 2.5 (b) b) et des minima lorsque le volume éclairé est totalement occulté par la bulle (figure 2.5 (b) c). Ces pics maximaux et minimaux n'ont donc pas de sens physique en terme de concentration, ils ont pour origine le passage de bulles au sein du volume de mesure.





(b) Visualisation par ombroscopie

FIGURE 2.5 – Effet d'une bulle traversant le volume éclairé. a) Bulle en dehors du volume d'observation. b) Réflexion de lumière fluorescée sur l'interface de la bulle. c) Occultation du volume éclairé par la bulle.

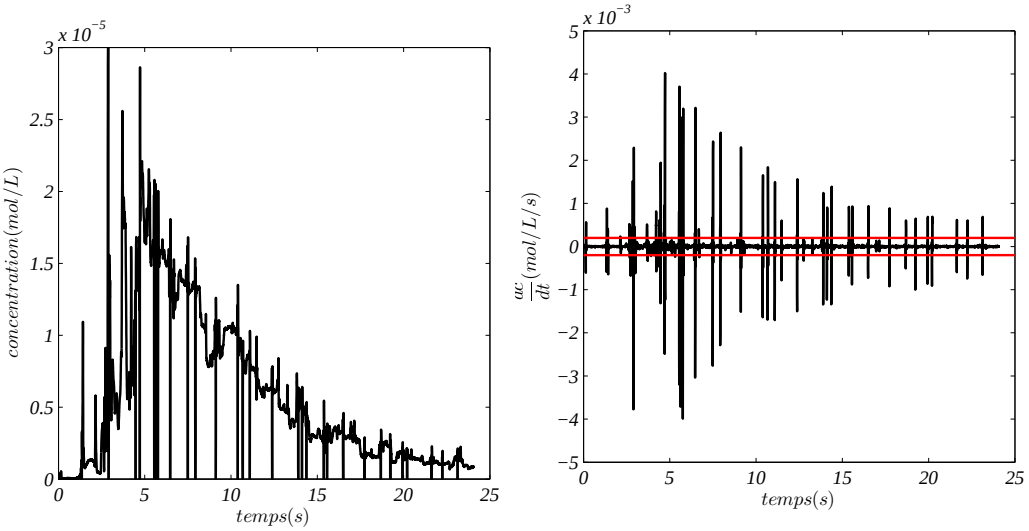
2.2.3 Correction du signal mesuré

Présentation du traitement du signal

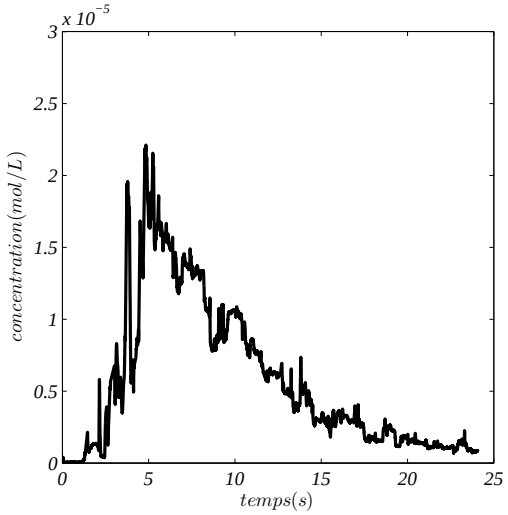
Les pics maximaux et minimaux n'ayant aucun sens physique en terme de concentration, il est important de les supprimer à l'aide d'un traitement du signal. Cela nécessite tout d'abord d'identifier les instants correspondant à ces pics maximaux et minimaux (figure 2.6 a). Cette opération est réalisée en considérant la dérivée temporelle du signal mesuré (figure 2.6 b). Il est clairement visible sur la figure 2.6 b qu'il y a une nette séparation d'amplitude entre les gradients temporels liés aux fluctuations de concentration qui sont peu intenses, et ceux liés aux passages de bulles qui sont très intenses. Il est donc possible d'identifier les instants correspondant aux pics maximaux et minimaux par un simple écrêtage de la dérivée temporelle du signal de concentration. Le choix du seuil a été déterminé de manière à détecter les pics liés aux passages de bulles sans pour autant éliminer les fluctuations. Il est pris égal à $\pm 2 \times 10^{-4}$ (figure 2.5 b). Une fois les instants correspondant aux pics maximaux et minimaux localisés, nous élargissons légèrement la gamme temporelle détectée de ± 0.012 s dans le but de repérer aussi le début et la fin des pics. Pour finir, nous interpolons linéairement le signal de concentration sur l'ensemble des gammes temporelles détectées. Nous pouvons constater sur la figure 2.6 c qu'après traitement du signal, la plupart des pics maximaux et minimaux ont été supprimés.

Limites du traitement du signal

La présence de bulles au sein de l'écoulement induit des perturbations sur la mesure de concentration locale puisque les bulles peuvent réfléchir la lumière fluorescée ou l'occulter. Or nous avons vu précédemment que le volume éclairé par le laser est un cylindre de 0.5 mm de diamètre traversant l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw alors que le volume d'observation est un cylindre de 3 mm de diamètre traversant l'épaisseur de l'interstice. De ce fait, trois cas de figure se présentent lorsqu'une bulle est en ascension dans la cellule de Hele-Shaw (figure 2.7). Dans le cas a (figure 2.7 a), la bulle ne traverse ni le volume éclairé ni le volume d'observation et elle ne perturbe pas la mesure de concentration. Dans le cas b, la bulle traverse à la fois le volume éclairé et le volume d'observation (figure 2.7 b). Cela va avoir pour effet d'occulter le volume éclairé et donc de générer des pics de grandes amplitudes qui sont facilement identifiables sur le signal de concentration mesuré. Le dernier cas, le cas c, est celui d'une bulle traversant le volume d'observation sans traverser le volume éclairé (figure 2.7 c). Ce cas est le plus critique car il est à l'origine de réflexions de lumière fluorescée tout en pouvant rester difficilement identifiable sur le signal de concentration mesuré. Il est donc nécessaire de quantifier l'effet de ces réflexions sur la mesure de concentration.



(a) Signal de concentration sans traitement (b) Dérivée temporelle du signal de concentration



(c) Signal de concentration avec traitement

FIGURE 2.6 – Description du traitement du signal

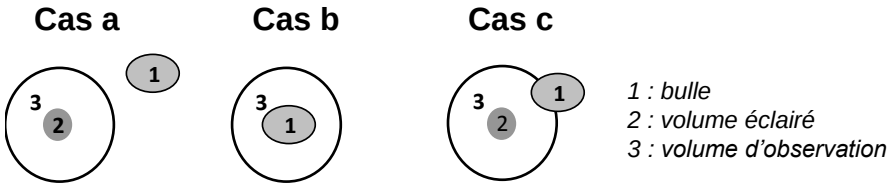


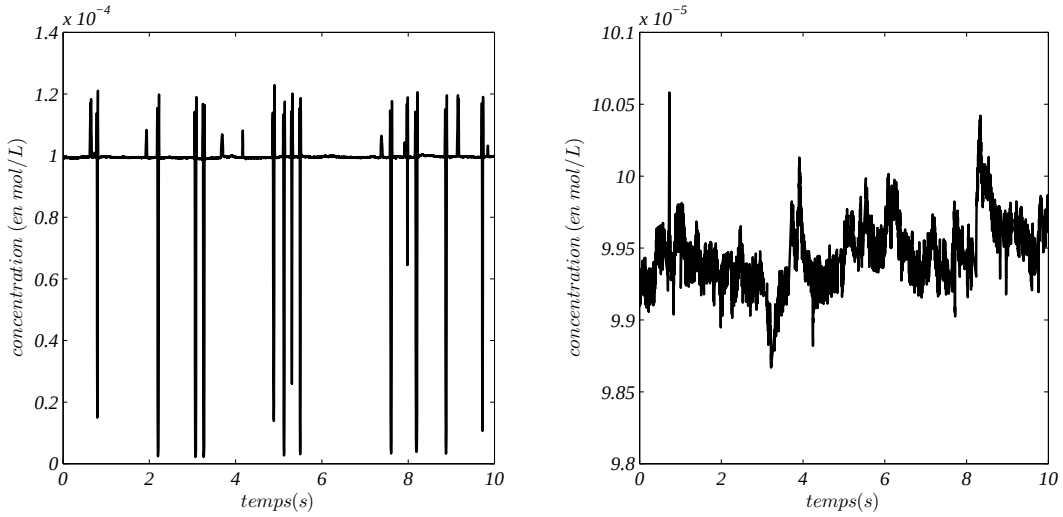
FIGURE 2.7 – Différents scenarii d'une bulle en ascension à proximité de la zone de mesure. a) Bulle sans influence. b) Bulle traversant le volume éclairé. c) Bulle traversant le volume observé.

Quantification de l'effet des bulles sur la mesure de concentration

Dans le but de quantifier l'effet des réflexions sur la mesure de concentration, nous avons appliqué notre traitement du signal au cas où la cellule de Hele-Shaw est remplie avec une concentration homogène de 10^{-4} mol/L. Le signal de concentration mesuré par spectrométrie présente de fortes variations (figure 2.8 a) à cause de la présence de bulles traversant le volume d'observation. Une fois que le traitement d'écrêtage des pics a été mis en œuvre(figure 2.8 b), le signal est beaucoup plus régulier mais présente toujours des variations qui ne sont pas associées à des fluctuations de concentration puisque la concentration est homogène dans la cellule. Ces fluctuations sont donc du bruit de mesure lié à des rééclairements par les interfaces des bulles. Ce bruit est difficile à discriminer sur le signal du spectromètre mais il peut être caractérisé par l'écart-type du signal de concentration homogène après traitement(figure 2.8 (b)). Pour les cas les plus critiques de notre étude, à savoir une solution à la concentration maximale C_0 ($C_0 = 10^{-4}$ mol/L) et une fraction volumique supérieure à 5 %, nous mesurons un écart type de $2.1{\times}10^{-7}$ mol/L, ce qui représente $2{\times}10^{-3}C_0$ et peut donc être considéré comme négligeable. Notre technique de mesure et le traitement du signal associé permet donc une mesure robuste de la concentration dans un écoulement à bulles confiné.

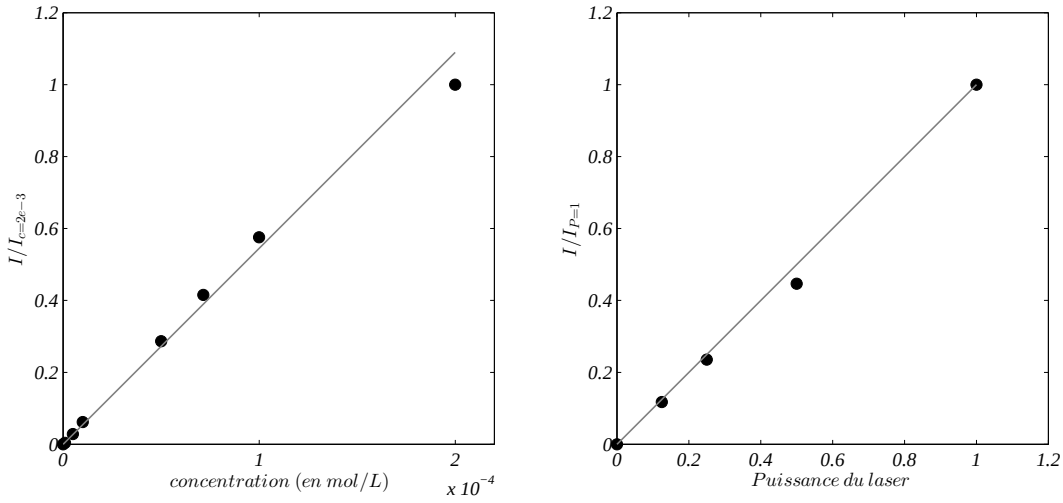
2.2.4 Méthodologie de mise en œuvre de la fluorescence induite par laser

La fluorescence émise par un traceur excité par un laser est proportionnelle à la concentration et à l'intensité du laser dans une certaine gamme de concentration et d'intensité du laser qu'il faut déterminer. Nous avons donc vérifié que nous trouvions bien cette relation de proportionnalité pour nos gammes d'utilisation. Nous avons réalisé deux étalonnages, l'un en concentration et l'autre en intensité. Il est important de noter que la fluorescence émise par le traceur dépend non seulement de la concentration et de l'intensité de la source d'excitation, mais aussi de la température et du pH du milieu. Or pour chaque expérience de mélange, nous réalisons le même protocole expérimental : le sel de magnésium est dissous dans de l'eau distillée à l'aide d'un agitateur magnétique, puis nous filtrons l'eau dans le but d'éliminer le solide résiduel. Nous considérons donc que nous travaillons à pH constant. Quant à la température, celle-ci peut varier au cours de la journée de plus ou moins 1°C, avec une température moyenne de 20.5°C. Nous avons vérifié, a posteriori, que les maxima de fluorescence atteint lors des différentes expériences de mélange atteignent des niveaux similaires, ce qui indique une faible influence de la température.



(a) Signal de concentration sans traitement (b) Signal de concentration après traitement

FIGURE 2.8 – Evolution temporelle de la concentration dans une solution de rhodamine WT homogène. Quantification de l'effet des bulles passant dans le volume d'observation



(a) Etalonnage en concentration (b) Etalonnage en intensité

FIGURE 2.9 – Etalonnage en concentration et en intensité de la LIF couplée à la spectrométrie.

Etalonnage en concentration

Pour réaliser l'étalonnage en concentration, nous avons rempli la cellule de Hele-Shaw avec des solutions homogènes à différentes concentrations. Le traceur est excité par le laser à puissance maximale et nous mesurons par spectrométrie le niveau de fluorescence pour les différentes concentrations. Nous notons alors $I_{C=2e-3}$ le niveau de fluorescence atteint à la concentration maximale ($C = 2 \times 10^{-4}$). Il s'avère que la concentration évolue linéairement avec la fluorescence émise pour des valeurs inférieures à $C_0 = 10^{-3}$ mol/L (figure 2.9 a). De ce fait, pour avoir la meilleure dynamique, nous injectons le traceur à la concentration C_0.

Etalonnage en intensité

Quant à l'étalonnage en intensité du laser, il a été réalisé avec une solution en rhodamine WT homogène à la concentration d'injection $C_0 = 10^{-4}$ mol/L. Nous avons disposé entre le laser et la cellule de Hele-Shaw des densités optiques qui ont permis de faire varier l'intensité de la lumière incidente. Nous avons ainsi vérifié la linéarité de la réponse en fluorescence jusqu'à l'intensité lumineuse à laquelle nous travaillons,, qui est noté $I_{P=1}$ (Figure 2.9 b).

2.3 Mesure de concentration par visualisation de la lumière absorbée

Cette technique de mesure consiste à mesurer le champ de concentration au cours du temps à l'aide d'un panneau de LED qui éclaire la cellule de Hele-Shaw et d'une caméra qui filme la lumière transmise dans la gamme de longueurs d'onde du spectre d'absorption du traceur. Cette technique nécessite peu de précautions de mise en œuvre, un étalonnage en concentration et en intensité étant suffisants. Un traitement de l'image a été développé dans le cadre du stage de 2 mois à l'IMFT de Mickaël Bazin que j'ai encadré. Il consiste à détecter la position des bulles et à convertir les niveaux de gris en concentration à l'aide des étalonnages. Dans un premier temps, nous présenterons la chaîne de mesure, puis les différents étalonnages que nous avons réalisés. Nous finirons par exposer le traitement de l'image que nous avons mis en place.

2.3.1 Présentation de la technique et de la chaîne de mesure

Dans le but de mesurer un champ de concentration résolu en temps, nous avons réalisé des mesures par absorption. Pour cela, un panneau de LED blanc (PHLOX SLLUB) de taille 200×200 mm^2 et de puissance maximale 35000 cd/m^2 éclaire la cellule de Hele-Shaw (figure 2.10). Une partie de la lumière incidente est absorbée par le traceur fluorescent, la rhodamine WT dont le spectre d'absorption a été présenté à la figure 2.1. De l'autre côté de la cellule de Hele-Shaw, nous avons disposé une caméra rapide haute définition de type DIMAX S4 fabriquée par PCO dont les réglages sont les suivants :

- Objectif Nikon de focale 105 mm et d'ouverture f/D=4
- Temps d'exposition de 1.25 ms
- Fréquence d'acquisition de 250 Hz
- Taille de champs : 148×150 mm

Devant l'objectif de la caméra, nous avons placé un filtre passe-bande 535 nm (Lavision, ref VZ07 -0058/80). De cette manière, la caméra ne filme que la lumière absorbée par la rhodamine WT. Une fois les étalonnages en concentration et en intensité réalisés, nous parvenons à mesurer la concentration sur l'ensemble du champ de visualisation de la caméra.

2.3.2 Etalonnages en concentration et en intensité

Un étalonnage en concentration pour cinq puissances différentes du panneau de LED a été réalisé. La figure 2.11 présente les différents points d'étalonnage en concentration et en intensité que nous avons réalisés expérimentalement. A puissance de panneau de LED fixée, nous pouvons constater que les niveaux de gris décroissent exponentiellement avec la concentration et ce pour toutes les puissances. Ainsi les niveaux de gris, notés NVG, peuvent être reliés à la concentration, notée c, par la relation suivante :

$$NVG(c) = NVG(c = 0)exp(-\frac{c}{\epsilon}) \tag{2.6}$$

avec $\epsilon = 3.6 \times 10^{-4}$ L/mol. Le coefficient d'absorption ϵ est indépendant de la puissance du panneau de LED. Sur la figure 2.11, nous avons tracé en plus des données expérimentales présentées avec les symboles la relation d'étalonnage présentée à l'équation 2.6 en

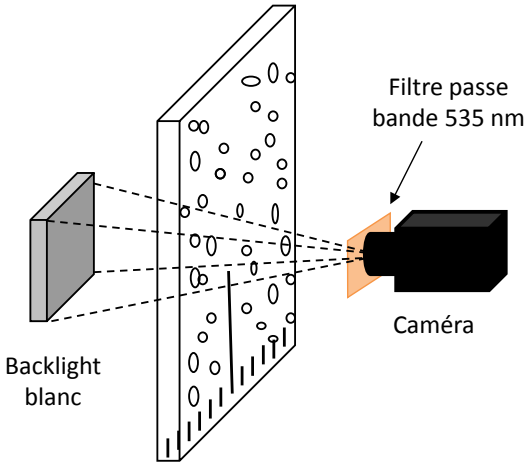


FIGURE 2.10 – Configuration expérimentale pour l'étude du mélange par absorption

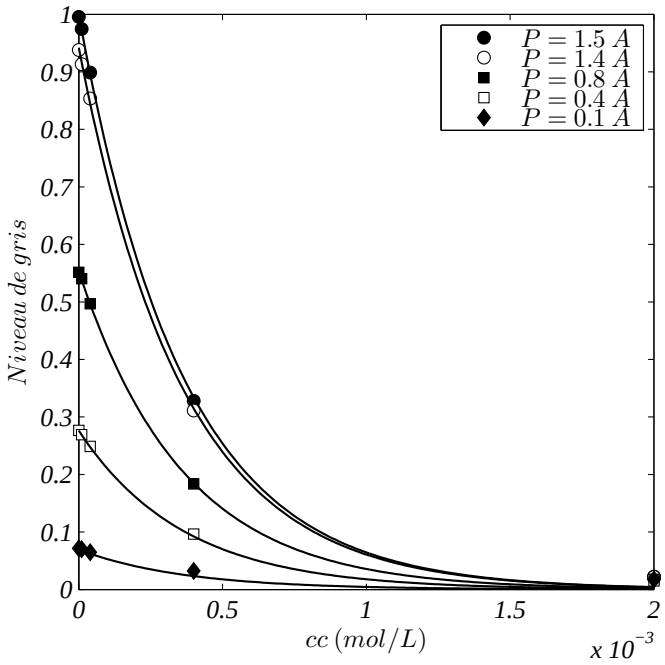


FIGURE 2.11 – Etalonnage en concentration et en intensité pour la technique de mesure en absorption. Symboles : données expérimentales. Trait continu : approximation par une fonction exponentielle décroissante.

trait continu. Nous constatons donc que la relation d'étalonnage analytique permet de bien approximer les données expérimentales et ce pour toutes les puissances considérées. Nous utiliserons donc par la suite cette relation d'étalonnage pour calculer le champ de concentration à partir des niveaux de gris mesurés par la caméra.

2.3.3 Présentation du traitement de l'image

Les images filmées par absorption de la lumière incidente nécessitent quelques traitements avant obtention d'un champ de concentration. En effet, en observant une image avant traitement lors d'une expérience de mélange à α =5.3 % et 3 s après le début de l'injection (figure 2.12 a), nous pouvons constater qu'il est nécessaire dans un premier temps de corriger les inhomogénéités d'éclairement du panneau de LED, principalement présentes sur les bords et dans les coins de l'image. Pour corriger ces inhomogénéités d'éclairement, nous réalisons l'opération suivante :

$$I = \frac{I_b \times moyenne(Fond)}{Fond} \tag{2.7}$$

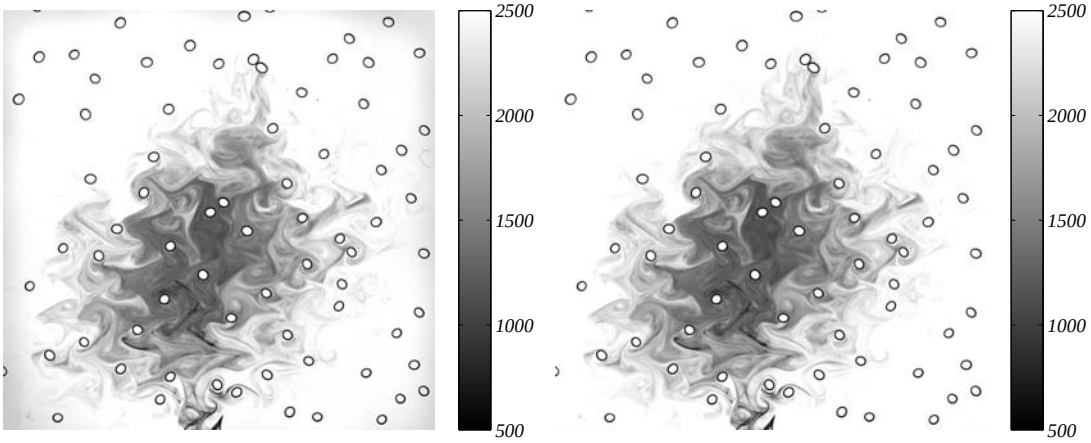
où I_b est l'image à traiter et $Fond$ est l'image du panneau de LED en l'absence de bulles. Après correction de l'image par le fond, nous pouvons constater que l'image corrigée I (figure 2.12 b) ne présente plus d'inhomogénéité d'éclairement.

Dans un deuxième temps, nous cherchons à détecter la position des bulles puisque celles-ci ne correspondent pas à un signal de concentration. Pour cela, nous avons recours au gradient spatial de l'image I (figure 2.12 c). Nous pouvons constater que sur l'image du gradient spatial, les pixels localisés sur le contour des bulles présentent des niveaux de gris plus de 10 fois plus intenses que les autres. Il est donc possible de localiser les bulles par un seuillage de l'image du gradient spatial. Le seuil est pris de telle manière à détecter l'ensemble des contours des bulles et vaut en pratique 200. Une fois l'image du gradient spatial seuillé (figure 2.12 d), nous appliquons successivement quatre opérations avant d'obtenir un masque des bulles (figure 2.12 e). La première opération consiste à remplir l'intérieur des bulles en blanc. Puis, nous détectons les objets qui ont un diamètre plus petit que 0.8 mm et une aire plus petite que 2.4 mm^2. Cela permet de localiser les petits objets dus aux forts gradients de concentration du traceur présents sur l'image du gradient. Ces objets sont alors considérés comme étant du fond et deviennent de la même couleur que celui-ci, à savoir noir. La troisième opération consiste à dilater le contour des bulles sur 5 pixels pour que celles-ci masquent l'ensemble du contour de la bulle. Pour finir, nous échangeons les pixels noirs en pixels blancs et vice versa. Nous obtenons alors un masque des bulles (figure 2.12 e) que nous appliquons à l'image corrigée par le fond I.

Nous pouvons alors convertir en concentration les niveaux de gris de chaque pixel présent dans le liquide, et ce par la relation d'étalonnage présentée à l'équation 2.6. Le préfacteur de la relation d'étalonnage $NVG(c = 0)$ est calculé à partir des niveaux de gris des pixels dans le liquide avant injection du colorant. Nous obtenons ainsi un champ de concentration du traceur résolu en temps (figure 2.12 f).

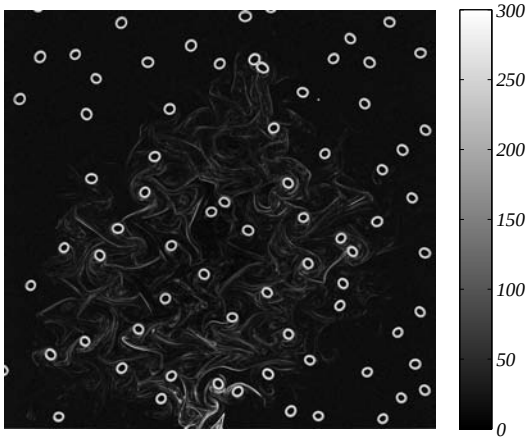
Il est aussi possible de calculer la masse de colorant contenu dans chaque pixel m grâce à la formule suivante :

$$m = c \times M \times V_p \tag{2.8}$$

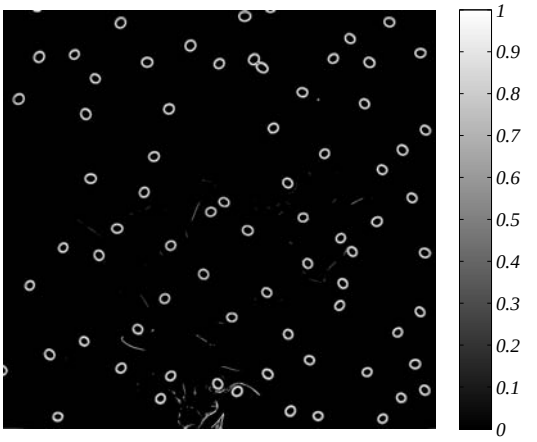


(a) Image avant traitement (en NVG)

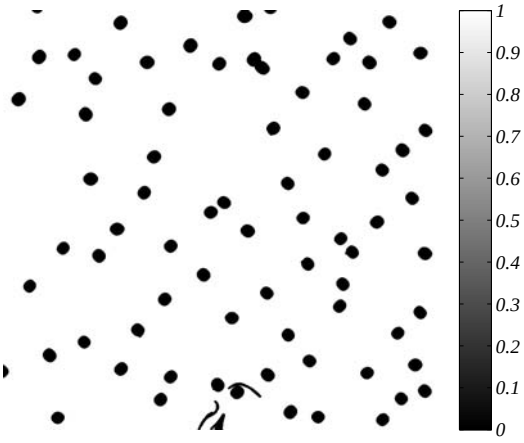
(b) Image après correction du fond



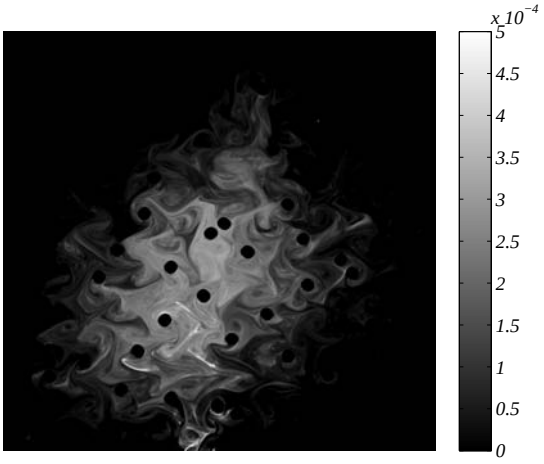
(c) Gradient spatial



(d) Gradient spatial après seuillage



(e) Masque des bulles



(f) Champ de concentration

FIGURE 2.12 – Description du traitement de l'image. α = 5.3%. 3 s après le début de l'injection

avec c la concentration dans le pixel, M la masse molaire de la rhodamine WT (M = 567 g/mol) et V_p le volume d'un pixel ($V_p = e \times l_{pix}^2$, où e est l'épaisseur de la cellule et l_{pix} est la longueur d'un pixel).

2.4 Conclusion du chapitre

L'analyse du mélange en écoulement à bulles confiné a été réalisée par deux techniques de mesure différentes, toutes deux étant résolues en temps. La première technique que nous avons développée permet de mesurer localement la concentration par de la fluorescence induite par laser (LIF) couplée à de la spectrométrie. Au cours de la thèse, nous avons développé cette technique de mesure uniquement en écoulement à bulles confiné mais cette technique de mesure présente un grand intérêt car elle pourrait permettre d'effectuer des mesures de concentration localement dans des écoulements denses et difficiles d'accès optique, comme dans des écoulements à bulles tridimensionnels. L'interprétation du signal de concentration mesuré par spectrométrie est rendue difficile par la présence de bulles au sein du volume d'observation qui réfléchissent la lumière fluorescée sur leurs interfaces ou occultent le volume éclairé. Cela a pour effet de générer des pics de grande amplitude sur le signal mesuré par spectrométrie. Il est néanmoins possible de traiter ce signal et d'en extraire un signal de concentration pertinent. De plus, nous avons montré que les éventuels bruits de mesure résiduels après traitement restent négligeables. Grâce à cette technique de mesure, nous parvenons à mesurer la concentration dans un volume d'observation cylindrique de 3 mm de diamètre traversant l'interstice à une fréquence de 250 Hz. Cette fréquence d'acquisition permet de mesurer des fluctuations de concentration au sein d'un écoulement à bulles confiné. La deuxième technique que nous avons mise en œuvre pour l'étude du mélange en écoulement à bulles confiné permet quant à elle de mesurer un champ de concentration de 150×150 mm^2 par visualisation de la lumière absorbée par le traceur à l'aide d'une caméra. Cette technique de mesure permet d'accéder à de nombreuses informations puisqu'elle permet d'avoir une mesure résolue en temps sur un grand champ de visualisation.

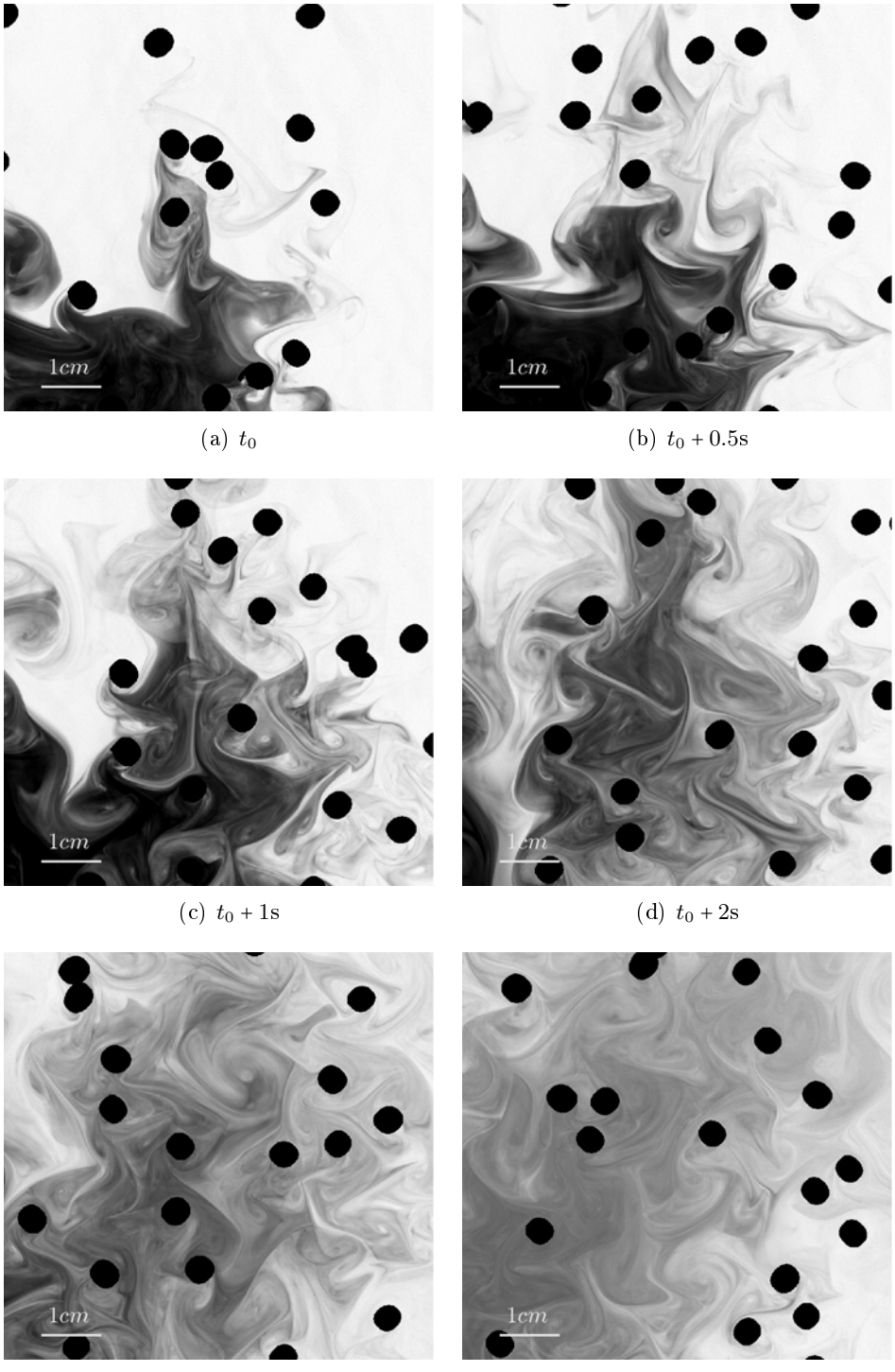
Chapitre 3

Physique du mélange dans un écoulement à bulles confiné

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser au mécanisme de mélange d'un traceur passif au sein d'un écoulement à bulles homogène confiné en cellule de Hele-Shaw. Une étude précédente réalisée par Bouche *et al.*, 2013, a permis d'identifier le principal mécanisme de mélange dans un écoulement à bulles confiné, à savoir le mélange par capture du colorant dans les sillages. En effet, dans la cellule de Hele-Shaw, les sillages derrière les bulles sont très localisés et sont capables de piéger du colorant et de le transporter sur une certaine longueur. Cette étude réalisée par PLIF avec deux traceurs n'avait néanmoins pas permis de mesurer des fluctuations de concentration puisque la mesure n'était pas résolue en temps. Dans notre étude, nous avons donc mesuré la concentration avec une résolution temporelle de 250 Hz grâce à deux techniques de mesure, la première étant une méthode par LIF couplée à de la spectrométrie et la seconde une méthode par absorption lumineuse. Ces deux types de mesure permettent des analyses complémentaires du mélange en donnant accès à la dynamique des fluctuations de concentration et à la propagation globale de la concentration de colorant. A partir de ces observations expérimentales, nous proposerons une modélisation 1D du mélange dans un écoulement à bulles confiné.

3.1 Premières visualisations du mélange dans un écoulement à bulles confiné

Afin d'identifier les principaux mécanismes de mélange dans un écoulement confiné, nous allons examiner qualitativement des champs instantanés de la zone occupée par le colorant à différents instants. Sur la figure 3.1, nous avons représenté un même champ de présence du traceur de 7.2×7.2 cm^2 à différents instants considérés à partir de la fin de l'injection t_0. Quel que soit l'instant considéré, nous pouvons percevoir une topologie du champ de présence du colorant particulièrement marquée par des modulations spatiales correspondant à des mises en mouvement du traceur par des sillages individuels. Ces mises en mouvement du colorant par les bulles sont localisées au voisinage des bulles et en dehors de ces zones de mise en mouvement dans le voisinage des bulles, le champ de présence du colorant est rapidement figé à cause du frottement aux parois. Cette atténuation des mouvements a pour effet la persistance de certains motifs du champ de présence du colorant au cours du temps. La distribution de colorant est donc essentiellement déformée, étirée ou



(a) t_0 (b) $t_0 + 0.5$s

(c) $t_0 + 1$s (d) $t_0 + 2$s

(e) $t_0 + 3$s (f) $t_0 + 5$s

FIGURE 3.1 – Illustration du mécanisme de mélange en écoulement à bulles confiné par transport dans les sillages. ($\alpha = 5.4\%$)

capturée dans les sillages lors des passages des bulles. Ce sont donc les interactions directes du champ de colorant avec l'écoulement dans le voisinage proche des bulles qui assurent le transport de colorant. En ce sens le mécanisme de mélange est tout à fait similaire à celui observé dans le réseau de sphères par Besnaci, 2012 lorsque la turbulence de réseau n'est pas encore développée.
De manière schématique, nous pouvons considérer que le colorant est capturé dans les sillages, transporté sur une certaine longueur par chaque bulle, puis redéposé plus loin.

3.2 Interprétation physique de la mesure de concentration par LIF et spectrométrie

Durant les expériences de mélange en écoulement à bulles confiné, nous injectons pendant 2 s 1 mL de traceur passif fluorescent (Paragraphe 1.3). Nous mesurons par LIF couplée à de la spectrométrie la concentration de traceur dans un volume d'observation cylindrique de 3 mm de diamètre traversant l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw (Paragraphe 2.2). Le volume d'observation est situé à la verticale de l'injecteur de colorant à des distances de H=5, 10 et 15 cm. Trois fractions volumiques ont été investiguées (α=1.4, 2.8 et 5.4 %).

3.2.1 Décomposition du signal de concentration mesuré par LIF et spectrométrie

Commençons par observer un signal de concentration représentatif de ce que nous pouvons mesurer expérimentalement. La figure 3.2 montre l'évolution temporelle de la concentration au sein du volume d'observation cylindrique de 3 mm de diamètre pour un essai donné à α = 2.8% et à une hauteur H = 10 cm. Nous pouvons remarquer sur ce signal que la concentration ne commence à augmenter qu'à partir de 2.5 s après le début de l'injection. C'est le temps nécessaire pour transporter le colorant de la zone d'injection à la zone d'observation. Puis de 2.5 à 5 s environ, la concentration augmente jusqu'à atteindre un maximum à 5 s. La concentration maximale reste néanmoins 5 fois plus faible que la concentration injectée qui vaut $C_0 = 10^{-4}$mol/L. Du fait que l'injection s'effectue pendant une durée finie, la concentration décroît ensuite jusqu'à atteindre la concentration finale à l'équilibre correspondant à un mélange homogène. Nous limiterons l'étude et l'interprétation des signaux de concentration aux temps où la concentration décroit. L'instant à partir duquel le signal de concentration commence à décroître dépend à la fois de la position du volume de mesure H et de la fraction volumique α. Cet instant est donc déterminé au cas par cas par rapport à la position du maximum.
Lors de la décroissance de la concentration dans le volume de mesure, nous observons la présence de deux échelles de temps distinctes (figure 3.2). En effet, le signal de concentration présente à la fois de rapides et intenses fluctuations, dont le temps caractéristique T_f est de l'ordre de 0.5 s et une décroissance globale bien plus lente dont l'échelle de temps caractéristique de décroissance, notée T_m de l'ordre de la dizaine de secondes. Cette décroissance globale apparaît comme un transitoire déterministe puisqu'il est reproductible entre des essais successifs et peut être calculé à partir de la moyenne d'ensemble des différents essais. Il est donc naturel de dissocier ces deux phénomènes avec d'un côté une concentration moyenne notée $< c >$ qui évolue lentement avec le temps, et de l'autre des fluctuations,

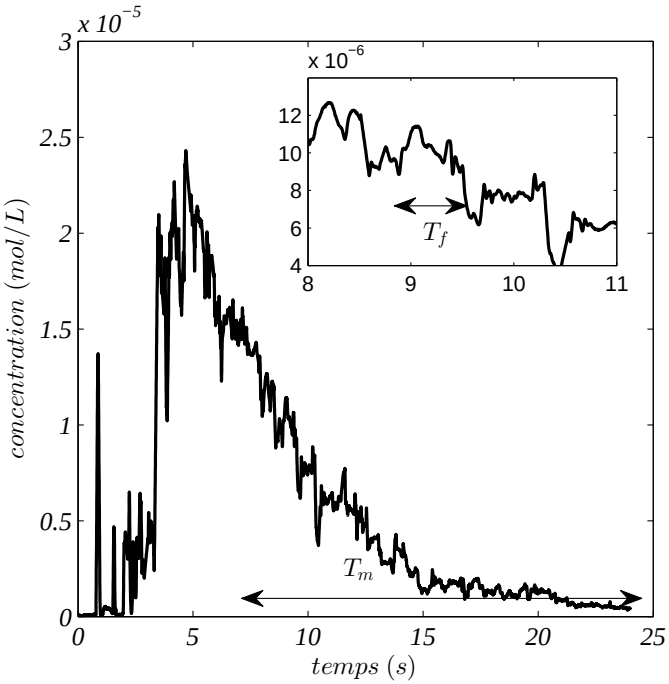


FIGURE 3.2 – Exemple d'évolution temporelle de concentration (α = 2.8%, H = 10 cm)

notées c', autour de cette moyenne évolutive. La signal de concentration instantané c peut s'écrire sous la forme suivante :

$$c(t) =< c > (t) + c'(t) \tag{3.1}$$

Ces deux phénomènes qui ont des échelles de temps distinctes, ont des origines différentes : les fluctuations ont pour origine la contribution individuelle des bulles alors que la décroissance globale est due à un effet collectif des bulles.

3.2.2 Effet collectif des bulles

Pour commencer, nous allons nous intéresser à la partie déterministe du signal de concentration, c'est-à-dire à l'évolution de la concentration moyenne $< c > (t)$. Sur la figure 3.3, nous avons tracé en échelle semi-logarithmique l'évolution temporelle du signal de concentration pour un essai donné à α = 2.8% et à une hauteur H = 10 cm. Nous pouvons remarquer que la décroissance globale de la concentration est remarquablement bien décrite par une fonction exponentielle décroissante dont la formulation est la suivante : $< c > (t) = A * exp(-\frac{t}{T_m})$ où T_m est un temps caractéristique de décroissance. Le fait que la décroissance moyenne de la concentration suive une loi exponentielle signifie que le processus de mélange en écoulement confiné n'est pas un processus diffusif. Ce résultat marquant a déjà été mis en évidence par Bouche *et al*, 2013 pour une fenêtre d'observation de 115 × 70 mm^2. Il s'explique par le fait que le traceur se mélange par capture du colorant

dans les sillages des bulles. Ce mécanisme de mélange, qui est fortement intermittent et convectif ne peut donc pas être modélisé par un processus diffusif.

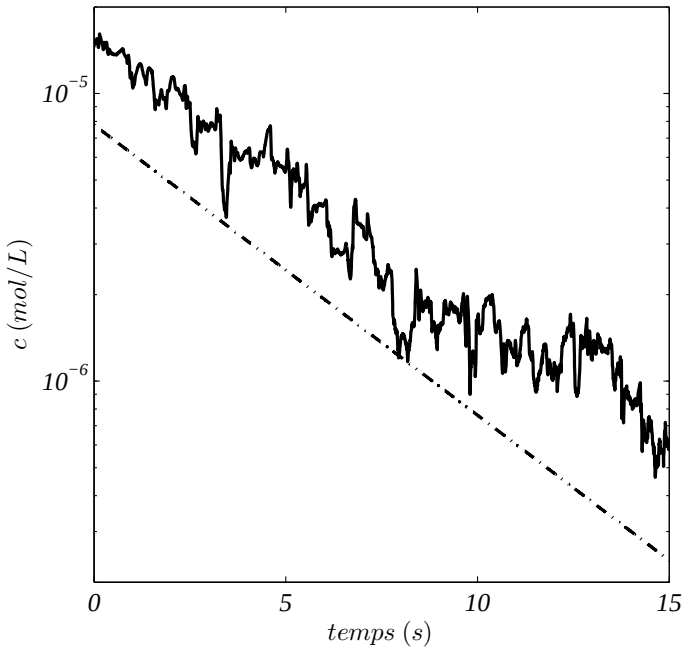


FIGURE 3.3 – Décroissance de la concentration expérimentale pour un essai à α = 2.8%, H = 10 cm (trait continu). Fonction exponentielle décroissante de pente identique (trait pointillé).

Nous avons mesuré les temps caractéristiques de décroissance pour chacun des essais qui ont été effectués à différentes fractions volumiques et hauteurs. Pour chaque fraction volumique et hauteur fixées, nous avons réalisé 5 essais dans le but d'assurer une convergence statistique suffisante. Cela nous a permis de mesurer le temps caractéristique de décroissance moyenné sur les 5 essais, en fonction de la fraction volumique et de la hauteur. Sur la figure 3.4, nous avons tracé avec des symboles les temps caractéristiques de décroissance moyennés en fonction de la fraction volumique pour différentes positions du volume de mesure. Nous pouvons constater que le temps caractéristique de décroissance dépend à la fois de la fraction volumique et de la hauteur. A une hauteur H fixée, le temps caractéristique de décroissance dépend de la fraction volumique à la puissance -1. En effet, sur la figure 3.4, nous avons tracé en plus des données expérimentales, les fonctions $f(\alpha) = \frac{k}{\alpha}$ en trait pointillé (k = 16.4 s pour H = 5 cm, k = 21.9 s pour H = 10 cm et k = 33.3 s pour H = 15 cm et α en %). Nous trouvons un bon accord entre les données expérimentales et l'approximation en α^{-1} pour toutes les hauteurs H considérées. Cette loi d'échelle est donc robuste. Quant à la position du volume de mesure par rapport à l'injecteur, elle influence de manière importante la mesure du temps caractéristique de décroissance. Le temps caractéristique de décroissance est multiplié par un facteur deux entre les mesures réalisées à H =5 cm à H =15 cm. Cette dépendance du temps caractéristique

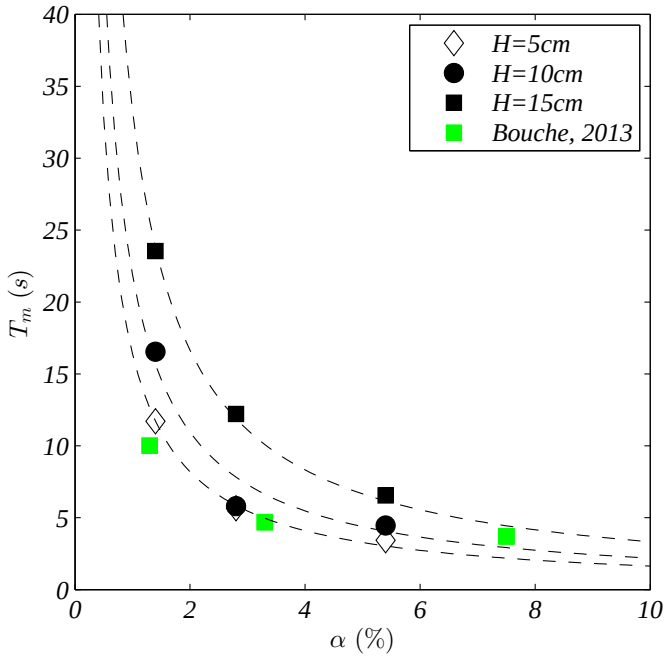
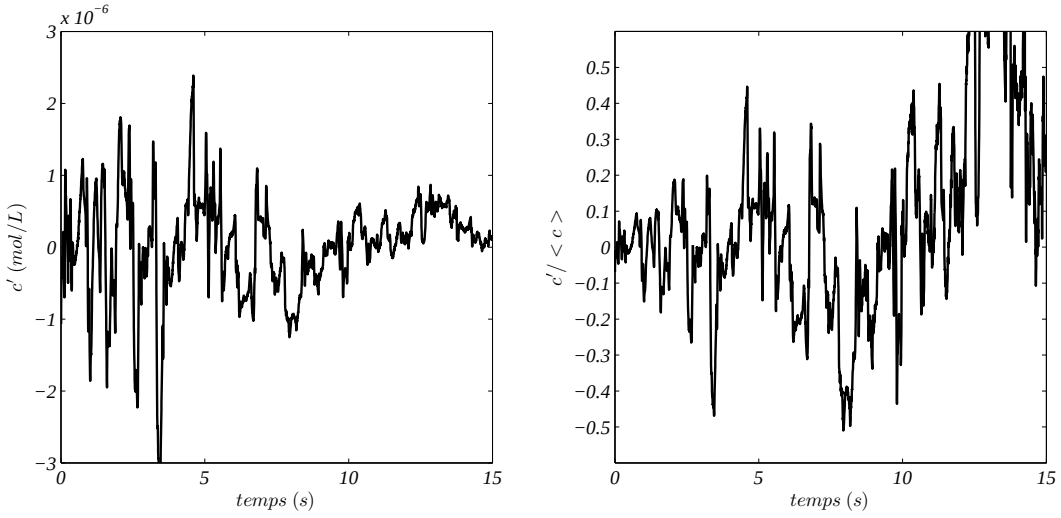


FIGURE 3.4 – Temps caractéristiques de décroissance expérimentaux en fonction de la fraction volumique pour différentes hauteurs. Approximation par des lois en $\frac{1}{\alpha}$ (Traits pointillés).

de décroissance avec la position du volume d'observation est à prendre en compte lors de la comparaison de nos données avec les résultats de Bouche *et al.*, 2013 (figure 3.4). En effet, Bouche *at al.*, 2013 ont mesuré des temps caractéristiques de décroissance en mesurant la décroissance de la concentration dans un volume de 115×70 mm^2 positionné 4 cm au dessus de l'injecteur. Or nous constatons bien sur la figure 3.4 que les temps caractéristiques de décroissance mesurés par Bouche *et al.*, 2013 sont en accord avec les temps caractéristiques de décroissance que nous avons mesurés à H=5 cm par LIF couplée à la spectrométrie.

3.2.3 Effets individuels des bulles

Ayant discuté la partie déterministe du signal de concentration, nous nous attachons désormais à décrire les fluctuations de concentration. Celles-ci sont calculées par soustraction de l'approximation exponentielle du signal moyen au signal de concentration instantané. La figure 3.5 a montre l'évolution temporelle des fluctuations de concentration pour un essai à α = 2.8% et à H = 10 cm. Deux éléments intéressants apparaissent sur ce signal. Le premier est la décroissance de l'amplitude des fluctuations avec le temps ; le second est le contenu fréquentiel des fluctuations, qui n'évolue pas de manière significative avec le temps. Concernant la décroissance de l'amplitude des fluctuations, nous observons que celle-ci est due à la décroissance du niveau moyen de la concentration, suite à l'homogénéisation du traceur. En effet, si nous traçons les fluctuations de concentration normalisées par la concentration moyenne (figure 3.5 b), nous voyons que l'amplitude des fluctuations

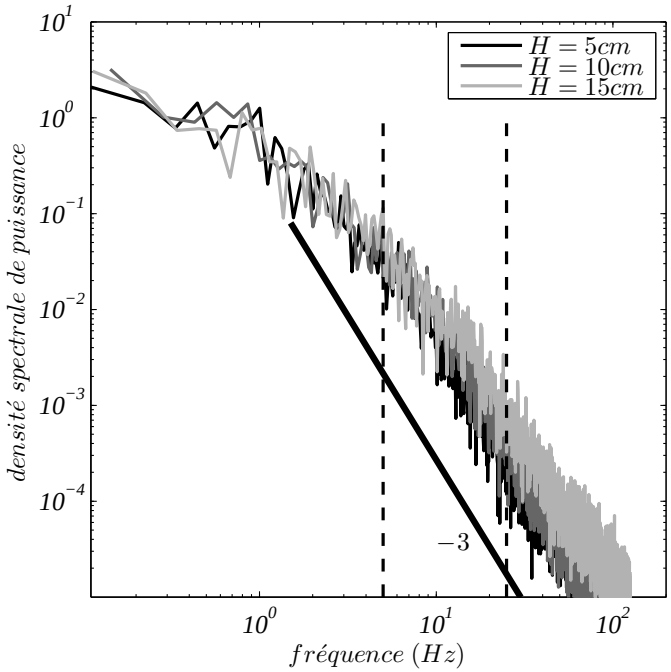


(a) (b)

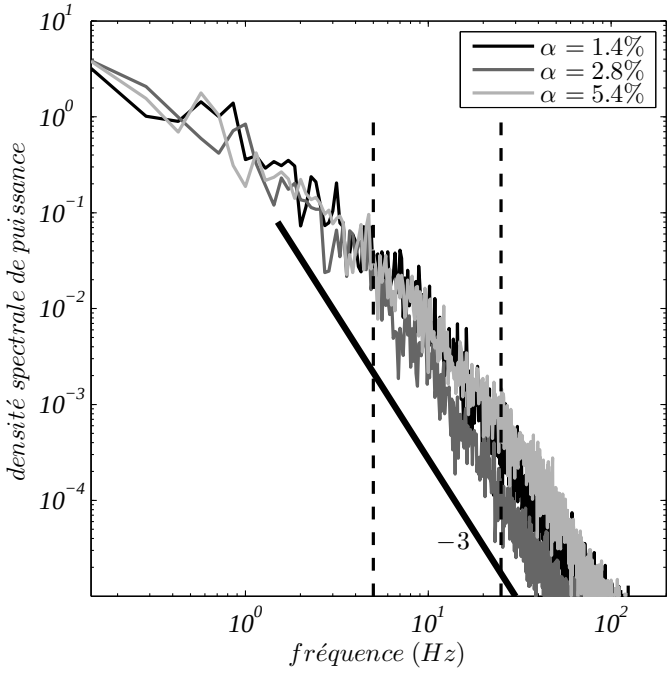
FIGURE 3.5 – Fluctuations temporelles de la concentration pour $\alpha = 2.8\%$, $H = 10$ cm

normalisées varie peu au cours du temps.

Pour connaître la fréquence des fluctuations de concentration, une analyse spectrale du signal des fluctuations de concentration normalisées a été réalisée. Une sensibilité à la hauteur (figure 3.6 a) et à la fraction volumique (figure 3.6 b) montre que quelles que soient la hauteur et la fraction volumique considérées, la densité de puissance spectrale reste la même. Une légère déviation pour les hautes fréquences est visible dès lors que la fraction volumique et la hauteur augmentent. Nous ne sommes néanmoins pas dans la capacité de déterminer si cela est un effet physique dû au niveau de bruit. Quelles que soient la position et la fraction volumique, nous observons un spectre continu qui décroit comme la puissance -3 de la fréquence sur une ou deux décades. Il est alors intéressant de comparer le spectre fréquentiel des fluctuations de concentration à celui de l'agitation dans le liquide mesuré par Bouche *et al.*, 2014. Les auteurs ont montré que l'agitation en phase liquide contient une gamme d'échelles de longueur d'onde λ comprise entre $d \approx 5$ mm et $5d \approx 20$ mm sur laquelle le contenu spectral est continu avec une décroissance à la puissance -3 du nombre d'onde. Cette gamme de longueurs d'onde correspond à des fréquences comprises entre 5 et 25 Hz ($\frac{V}{d} \approx 5$ à $\frac{V}{5d} \approx 25$ Hz). Ces bornes sont matérialisées sur la figure 3.6 par les traits pointillés. Nous pouvons constater que pour des fréquences comprises entre 5 et 25 Hz, le spectre des fluctuations de concentration décroit lui aussi à la puissance -3. Cela confirme donc bien le fait que le mélange est totalement gouverné par l'agitation générée par la phase liquide. Le modèle proposé par Risso, 2010 s'applique aussi bien au spectre des fluctuations de vitesse qu'à celui des fluctuations de concentration. En effet, le transport des concentrations est gouverné lui aussi par des passages aléatoires de sillages qui ont des longueurs de perturbation finies.



(a) Influence de la hauteur. $\alpha = 2.8\%$.



(b) Influence de la fraction volumique. $H = 10$ cm.

FIGURE 3.6 – Densité spectrale de puissance des fluctuations de concentration

3.3 De la mesure locale de concentration à la mesure globale

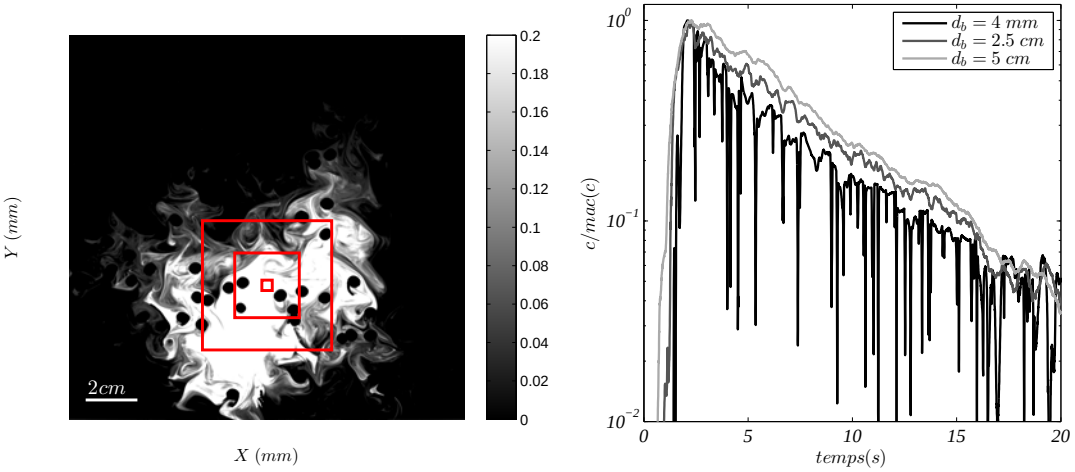
Nous avons vu précédemment que la mesure de temps caractéristique de décroissance dépend de la position du volume d'observation. Plus le volume de mesure est loin de la zone d'injection de concentration initiale, plus le temps caractéristique de décroissance devient important. Nous pouvons aussi nous demander dans quelle mesure le temps caractéristique de décroissance dépend de la taille de la zone d'observation puisque les mesures de concentration réalisée par LIF couplée à de la spectrométrie sont des mesures locales. Nous allons donc étudier quelle est l'influence de la taille et de la forme du domaine d'observation. Cela nous permettra de comprendre dans quelle mesure le temps caractéristique de décroissance est un paramètre robuste pour caractériser le mélange. Pour cela, nous avons analysé les expériences réalisées par absorption de la lumière incidente sur un champ de visualisation de 15×15 cm^2 (Paragraphe 2.3).

3.3.1 Influence de la taille du domaine d'observation

Pour étudier l'influence de la taille du domaine d'observation, nous avons considéré 3 tailles de domaine d'observation, carré et centré sur un point situé à 5.2 cm au dessus de l'injecteur (figure 3.7 a). Le premier domaine fait 4 mm de côté, ce qui est du même ordre de grandeur que le diamètre des bulles et que le volume d'observation des mesures par LIF couplée à la spectrométrie. Le second domaine, quant à lui fait 2.5 cm de côté et le troisième 5 cm. Il y a donc un rapport 100 entre la surface du plus petit domaine et le plus grand. Une fois chaque domaine délimité, nous avons calculé la concentration moyenne dans chaque domaine au cours du temps. Sur la figure 3.7 b, nous avons tracé en échelle semi-logarithmique l'évolution temporelle de la concentration dans chaque domaine adimensionnée par son maximum. Nous pouvons voir que pour le domaine de 4 mm de côté, nous retrouvons des pics intenses mais aussi les fluctuations de concentration. Ces pics et ces fluctuations ont les mêmes origines physiques que ceux observés par LIF couplée à de la spectrométrie. Les pics vers le bas ne correspondent pas à un signal de concentration, ils sont la signature d'une atténuation liée au passage des bulles dans le domaine de mesure. Les fluctuations sont quant à elles, liées aux passages des paquets de colorant. Au contraire, dès lors que le domaine d'intégration devient plus grand que la taille des bulles, nous n'observons plus ni les pics liés aux passages des bulles ni les fluctuations de concentration. Néanmoins, nous pouvons constater que les temps caractéristiques de décroissance mesurés sont identiques quel que soit la taille du domaines car les trois courbes ont les mêmes pentes. Cela signifie donc que le temps caractéristique de décroissance est sensible à la position de la zone de mesure mais pas à la taille du domaine quand celle-ci évolue dans un rapport de 1 à 100.

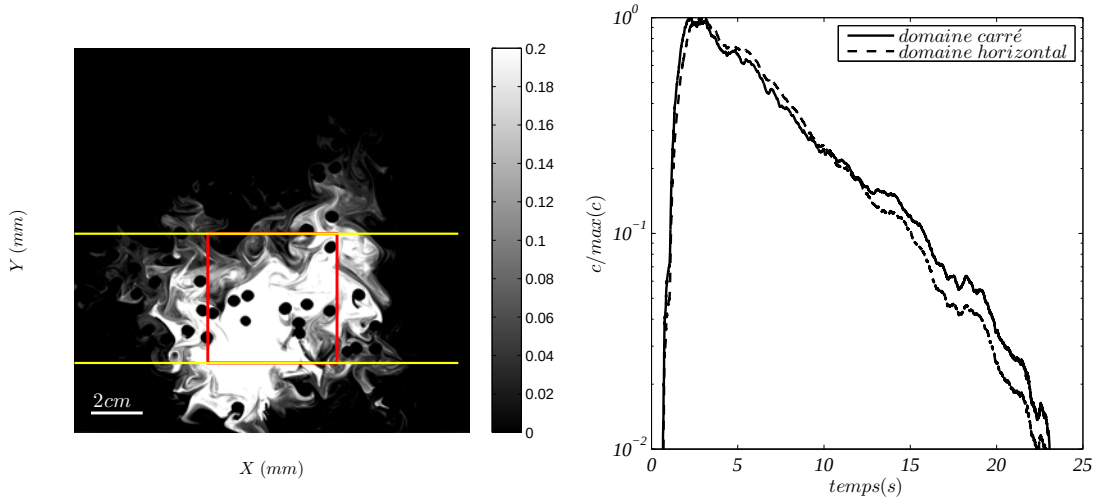
3.3.2 Influence de la forme du domaine

Nous avons testé l'influence de la forme du domaine en considérant deux domaines différents (figure 3.8 a). Le premier est un domaine carré de 5 cm de côté dont le centre est positionné à 5.2 cm au dessus de l'injecteur. Quant au deuxième domaine, il est rectangulaire, de hauteur 5 cm et de largeur la totalité du champ d'observation, soit 15.3 cm. Les deux domaines sont positionnés à la même hauteur. Nous pouvons alors comparer l'évolution temporelle de la concentration dans chaque domaine adimensionnée par son maximum (3.8 b). Nous constatons qu'il y a peu voire pas d'influence de la forme du domaine sur



(a) Champ de concentration (mmol/L) (b) Evolution temporelle de la concentration

FIGURE 3.7 – Influence de la taille du champ d'observation sur l'évolution temporelle de la concentration ($\alpha = 9.7\%$)



(a) Champ de concentration (mmol/L) (b) Evolution temporelle de la concentration

FIGURE 3.8 – Influence de la forme du champ d'observation sur l'évolution temporelle de la concentration ($\alpha = 9.7\%$)

l'évolution temporelle de la concentration. Or, avec ces deux domaines, nous ne mesurons pas exactement les mêmes flux de concentration. En effet, avec le domaine rectangulaire, nous mesurons principalement le flux de concentration dans la direction verticale puisqu'il y a très peu de traceur sortant du domaine d'observation dans la direction horizontale. Au contraire, avec le domaine carré, nous mesurons indifféremment le flux de concentration dans la direction horizontale et celui dans la direction verticale. Vu que nous ne voyons pas de différence significative sur l'évolution temporelle de la concentration entre les deux domaines, nous pouvons donc considérer que le flux de concentration dans la direction horizontale est négligeable par rapport au flux vertical.

3.4 Modélisation du mélange en cellule de Hele-Shaw

Nous avons vu précédemment que le principal mécanisme de mélange dans un écoulement à bulles confiné est la capture de colorant dans les sillages des bulles et que par conséquent, le mélange n'est pas un processus diffusif. Nous avons développé un modèle 1D de transport intermittent et convectif qui tient compte uniquement du transport par les sillages dans la direction verticale vers le haut. Dans un premier temps, nous présenterons le modèle de transport ainsi que les expériences de référence qui serviront au calage des paramètres du modèle. Cela nous permettra alors de comparer le modèle de transport aux expériences et ainsi d'extraire du modèle des grandeurs physiques pertinentes.

3.4.1 Modèle de transport intermittent et convectif

Le modèle physique de transport

Le modèle de transport 1D pour décrire le mélange en cellule de Hele-Shaw a été conçu à partir du mécanisme de transport observé expérimentalement, à savoir le transport par piégeage du colorant dans les sillages. Ce modèle est donc basé sur l'hypothèse que chaque bulle de l'essaim, de diamètre d, de volume $A_b \times e = e\frac{\pi}{4}d^2$, en ascension à la vitesse V, capture et transporte avec elle un volume de fluide $A_t \times e$ sur une longueur L avant de le relarguer (figure 3.9). A un instant aléatoire $t = t_i$, une bulle à la cote z capture dans son sillage du fluide à la concentration $c(z; t_i)$. La bulle transporte alors ce paquet de colorant sur une distance L sans qu'il n'y ait d'échange avec le liquide extérieur. A l'instant $t = t_i + T$ avec $T = \frac{L}{V}$, la bulle est à la cote $z + L$ et effectue simultanément une opération de relargage et de capture. La bulle dépose le paquet de colorant à la concentration $c(z; t_i)$ et capture du liquide frais à la concentration $c(z + L; t_i + T)$. Une hypothèses forte est alors faite, à savoir que l'homogénéisation de la concentration se fait instantanément à la cote $z + L$. De plus, nous supposons que les bulles transportent des volumes de fluide indépendants les uns des autres. De ce fait, il est possible de sommer la contribution individuelle de chaque bulle.

Le modèle de transport a donc 4 paramètres physiques qui sont les suivants :

1. la vitesse d'ascension des bulles V
2. la densité de bulles N^*, qui représente le nombre de bulles par unité de surface
3. le volume de colorant transporté $A_t e$ (avec e=1 mm)
4. la longueur sur laquelle est transportée le colorant L

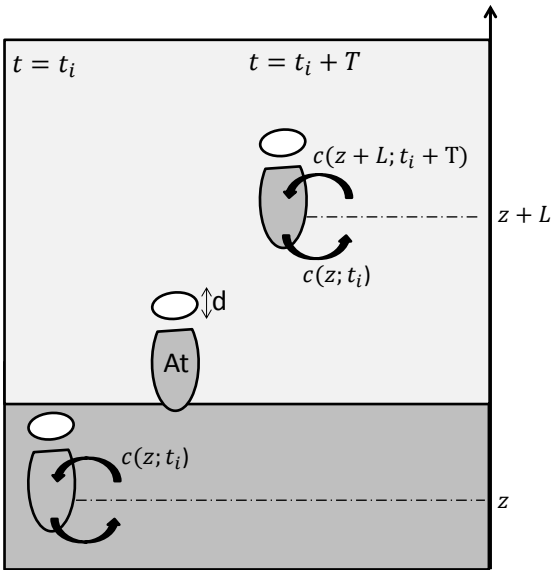


FIGURE 3.9 – Modélisation d'une bulle en ascension transportant du colorant dans son sillage

Parmi ces 4 paramètres, seuls le volume transporté A_t et la longueur L sur laquelle est transporté le colorant ne sont pas connus expérimentalement. Ils seront donc déterminés et calés à partir de données expérimentales de référence.

Mise en œuvre numérique du modèle de transport

Nous allons maintenant développer la méthode numérique retenue pour résoudre le modèle de transport intermittent et convectif présenté précédemment. Le modèle numérique que nous proposons est un modèle 1D dans la direction verticale.

Le problème numérique équivalent est présenté sur la figure 3.10. Dans la direction verticale, le domaine est discrétisé en mailles de hauteur $\Delta z = \frac{L}{N_z}$ où N_z représente le raffinement spatial. Nous avons pris un raffinement spatial N_z de 1. De ce fait, nous avons un pas d'espace égal à la longueur de transport ($\Delta z = L$). Dans la direction horizontale, nous considérons une longueur a le long de laquelle la concentration est homogène. Nous avons choisi $\Delta z = L = a$, de telle sorte que l'hypothèse d'homogénéisation instantanée de la concentration sur l'ensemble du volume de la maille reste valide. Si la largeur du domaine est prise trop petite ($a << \Delta z$), le nombre de bulles présentes dans le domaine n'est pas suffisant pour avoir une estimation pertinente de la concentration. Au contraire, si nous prenons une largeur a telle que $a >> \Delta z$, le nombre de bulles présentes dans le domaine devient important et vu que le pas de temps est choisi pour qu'il n'y ait pas deux opérations de relargage-capture au même pas de temps, le pas de temps doit être pris très petit. Prendre $\Delta z = L = a$ semble donc être un bon compromis et un choix pertinent. L'avancement en temps est réalisé avec un pas de temps $\delta t = \frac{L/V}{N_t}$, où N_t représente le raffinement

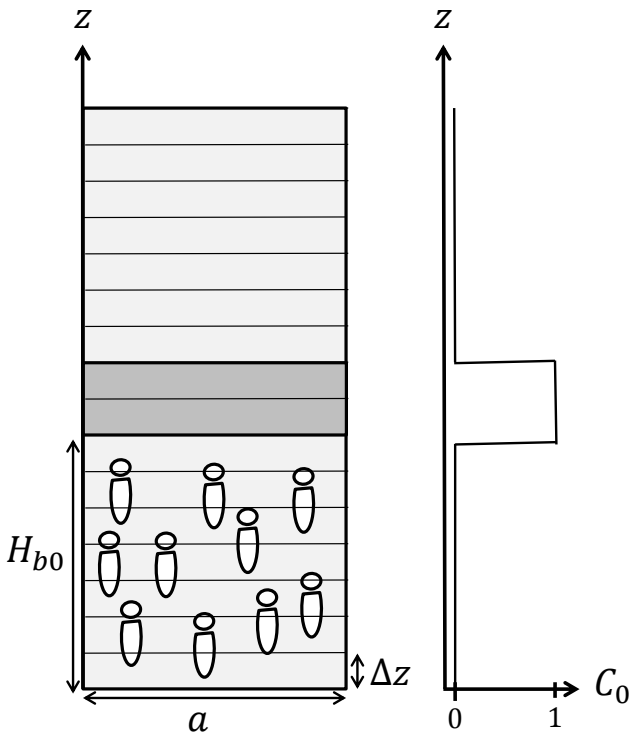


FIGURE 3.10 – Discrétisation numérique du modèle de transport

temporel. Un test de convergence du pas de temps a été réalisé dans le but de déterminer le raffinement temporel nécessaire et a montré qu'il faut prendre $N_t = 60$ pour qu'il y ait convergence numérique.

L'initialisation du modèle consiste à donner un champ de concentration et un champ de distribution des bulles. Le champ de concentration est initialisé en imposant un profil de concentration $C_0(z)$ (figure 3.10). Quant à l'initialisation du champ de bulles, elle est plus complexe. Les bulles sont initialement présentes dans un volume de hauteur H_{b0} et de largeur a (figure 3.10). Le choix de la hauteur H_{b0} est arbitraire et n'influence en rien le calcul puisque c'est la densité de bulles N^* qui est imposée. Tout d'abord, il faut calculer le nombre de bulles N_b à disposer dans ce volume à partir de la densité de bulles connue N^* ($N_b = N^* a H_{b0}$). Une fois le nombre de bulles connu, leur cote est tirée aléatoirement sur une hauteur d'extension H_{b0} (figure 3.10). Chaque cote est ensuite projetée sur le maillage. Afin d'éviter que toutes les bulles ne fassent pas l'opération de relargage et capture aux mêmes instants, ce qui ne serait pas représentatif de la physique du mélange, chaque bulle se trouve attribuée une phase temporelle ϕ tirée aléatoirement dans l'intervalle $[0; \frac{L}{V}]$. Pour finir l'initialisation, il faut que la concentration du volume transporté par chaque bulle soit initialisée. Celle-ci est prise égale à la concentration du fluide à l'endroit où est située la

bulle.

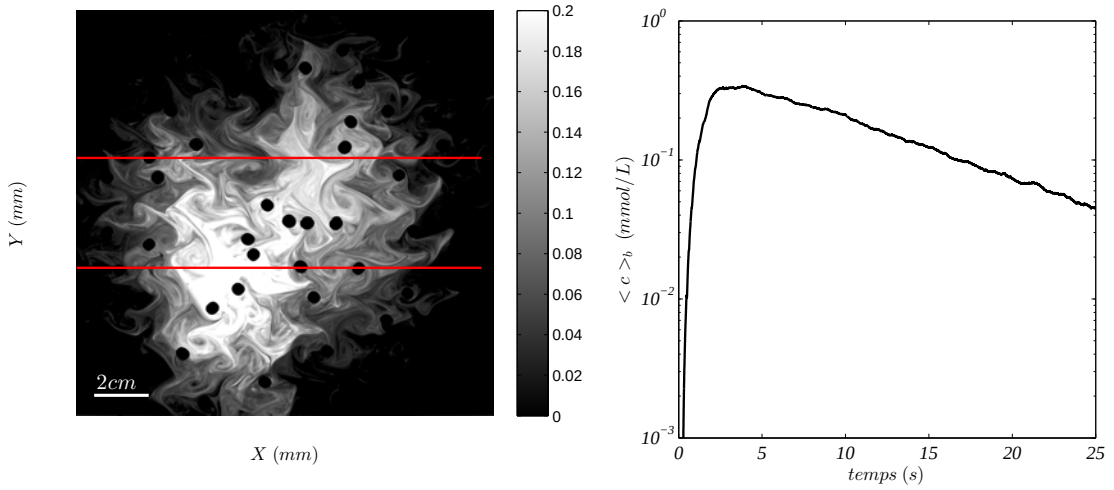
Désormais, nous allons nous intéresser à l'avancement en temps. A chaque pas de temps, la nouvelle position des bulles est calculée à partir de la vitesse d'ascension des bulles. Pendant chaque pas de temps δt, chaque bulle avance donc de $V\delta t$. Puis, une fois la nouvelle position des bulles calculée, un test sur la phase de chaque bulle est réalisé. Ainsi, à l'itération k en temps, les bulles dont la phase temporelle $(\phi + k\delta t)$ est un multiple entier de $\frac{L}{V}$ relarguent et capturent simultanément du colorant par le mécanisme que nous avons présenté précédemment (figure 3.9).

3.4.2 Présentation des grandeurs issues de l'expérience pour une confrontation au modèle

Nous avons vu précédemment que deux paramètres physiques du modèle, le volume transporté A_t et la longueur de transport L ne sont pas connus a priori. Nous allons donc les estimer en comparant le modèle numérique proposé précédemment aux expériences que nous avons réalisées en cellule de Hele-Shaw par absorption de la lumière incidente (Paragraphe 2.3). Grâce à ces expériences, nous pouvons mesurer à la fois des temps caractéristiques de décroissance à différentes positions mais aussi des distributions spatiales de colorant à différents instants et comparer ces grandeurs aux prédictions du modèle. Néanmoins, des précautions sont à prendre pour faire ces comparaisons. Nous allons présenter ici en détail comment nous avons extrait les grandeurs physiques issues des expériences en vue de les comparer au modèle numérique.

Temps caractéristique de décroissance

Le premier paramètre sur lequel nous pouvons ajuster le modèle est le temps caractéristique de décroissance T_m de la concentration dans un volume d'observation. Or nous avons vu précédemment que ce temps dépend de la position de la zone d'observation mais est insensible à l'aire et à la forme de la zone d'observation. Lors de la comparaison des expériences au modèle, il est donc important de positionner les domaines d'observation au même endroit. Nous avons choisi de comparer les temps caractéristiques de décroissance en considérant des domaines d'observation situés juste à la frontière supérieure de la zone d'injection du colorant. Expérimentalement, nous avons considéré une zone d'observation de hauteur 4.0 cm, de largeur la totalité du champ soit 15.3 cm. La limite basse du domaine est située à 5.5 cm de l'injecteur, ce qui correspond à la frontière de la zone occupée par le traceur en fin d'injection. Cette zone est matérialisée par les traits de couleur sur la figure 3.11 a. Nous avons choisi de prendre la totalité de la largeur du champ dans le but d'être certain de mesurer uniquement le flux de concentration dans la direction verticale, ce qui est plus cohérent avec le modèle de transport qui ne prend en compte que le flux de concentration vertical. Une fois la zone d'observation délimitée, nous calculons l'évolution temporelle de la concentration au sein de ce domaine, concentration que nous notons $< c >_b$ (figure 3.11 b). C'est donc à partir de la décroissance de ce signal de concentration $< c >_b$ que nous mesurons le temps caractéristique de décroissance expérimental.



(a) Champ de concentration (mmol/L)

(b) Evolution temporelle de la concentration dans la zone centrale

FIGURE 3.11 – Extraction des temps caractéristiques de décroissance pour $\alpha = 5.4\%$

Distribution spatiale de colorant

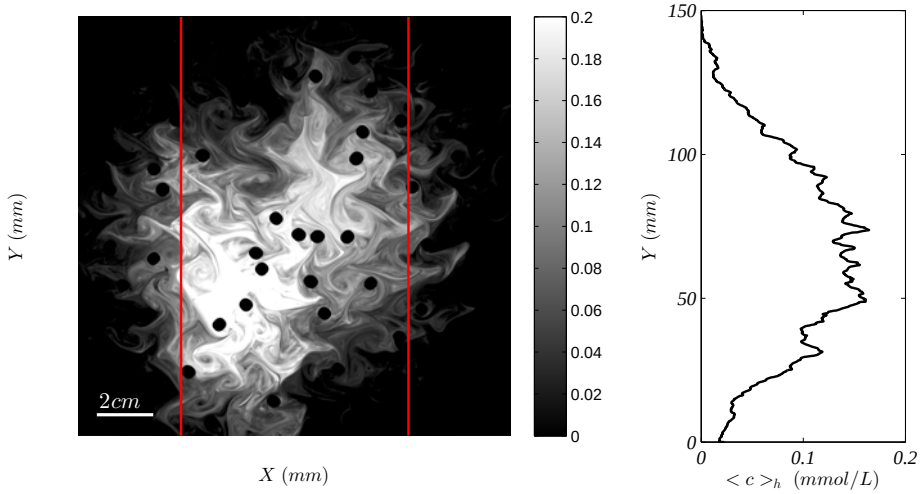
Nous pouvons aussi comparer à différents instants les distributions spatiales 1D de colorant expérimentales et numériques dans la direction verticale. Pour cela, nous avons choisi de prendre la moyenne spatiale du champ expérimental de concentration dans la direction horizontale sur une épaisseur $a = 20d = 8.0$ cm, cette épaisseur correspondant à la largeur de la maille dans le modèle (figure 3.12 a). Ainsi, à chaque instant, nous obtenons un profil de concentration $< c >_h$ en fonction de la hauteur y (figure 3.12 b). Il est important de souligner que l'épaisseur d'intégration a n'est pas déterminante.

3.4.3 Confrontation du modèle théorique aux données expérimentales

La confrontation du modèle de transport aux données expérimentales exige de déterminer le volume de transport A_t et la longueur de transport L. La détermination de ces valeurs a nécessité la mise au point d'une méthode présentée dans ce qui suit. Puis, nous présenterons les résultats issus de la comparaison du modèle aux résultats expérimentaux.

Démarche pour le calage des paramètres

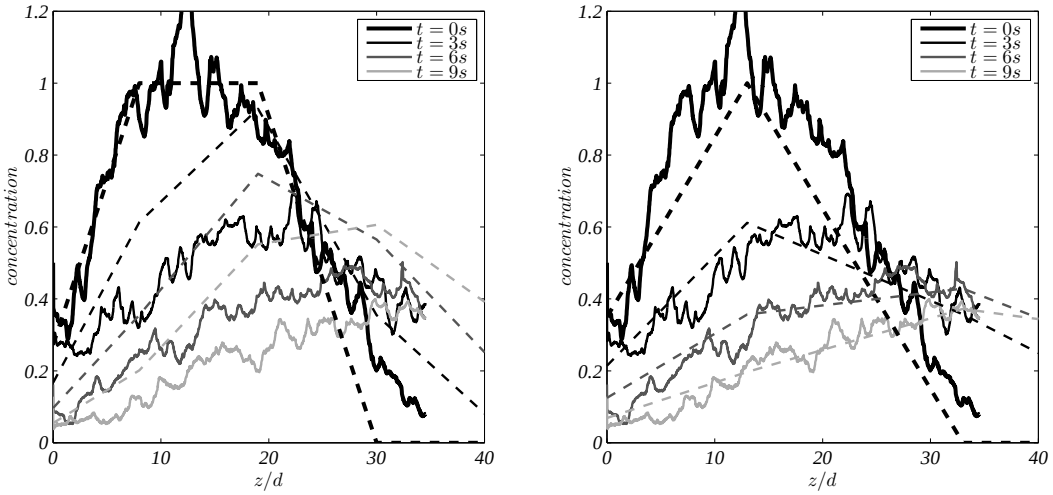
Pour comparer le modèle aux données expérimentales, il est nécessaire de trouver un couple volume transporté et longueur de transport $(A_t; L)$ permettant à la fois de restituer le temps caractéristique de décroissance expérimental à une position donnée mais aussi la distribution spatiale de traceur à différents instants. Dans le but d'expliquer la démarche mise en place, nous considérons la fraction volumique $\alpha = 9.7\%$, dont le temps caractéristique de décroissance expérimental déterminé selon le protocole présenté précédemment est de 5.4 s. Dans un premier temps, nous avons déterminé le couple $(A_t; L)$ qui permet de retrouver le temps caractéristique T_m de décroissance expérimental. Mais il s'avère que nous pouvons trouver une multitude de couples différents répondant au critère du temps carac-



(a) Champ de concentration (mmol/L)

(b) Profil de concentration intégré horizontalement sur a

FIGURE 3.12 – Extraction du profil de concentration spatial pour $\alpha = 5.4\%$



(a) $A_t = 0.8A_b$, $L = 11d$

(b) $A_t = 2A_b$, $L = 23d$

FIGURE 3.13 – Influence des paramètres $(A_t; L)$ sur les profils spatiaux de concentration pour $\alpha = 9.7\%$. Profils expérimentaux (trait plein). Profils issus du modèle (trait pointillé).

téristique de décroissance. En effet, dans le tableau 3.1, nous avons présenté deux couples $(A_t; L)$ qui permettent de trouver des temps caractéristiques de décroissance identiques, proches du temps caractéristique de décroissance expérimental. Le critère de temps caractéristique de décroissance n'est donc pas suffisant pour différentier les couples $(A_t; L)$. Nous avons donc eu recours dans un deuxième temps aux profils spatiaux de concentration à différents instants. Sur la figure 3.13, nous avons tracé les profils spatiaux de concentration à différents instants pour les deux couples $(A_t; L)$ déterminés précédemment et répondant au critère de temps caractéristique de décroissance. Nous voyons alors que les profils spatiaux 1D permettent de différentier les couples $(A_t; L)$. En effet, le couple $(A_t; L) = (0.8A_b; 11d)$ ne permet pas de restituer les profils spatiaux de concentration expérimentaux et ce quel que soit l'instant considéré (figure 3.13 a). Au contraire pour le couple $(A_t; L) = (2A_b; 20d)$, nous parvenons à restituer fidèlement les profils de concentration expérimentaux, à la précision du pas d'espace du modèle près ($\Delta z = L$). Cela valide notre modèle de transport 1D et par cette méthode, nous déterminons le couple $(A_t; L)$ des expériences de mélange en cellule de Hele-Shaw pour une fraction volumique donnée.

	Expérience	$(0.8A_b; 11d)$	$(2.0A_b; 20d)$
Temps caractéristique de décroissance	5.4 s	5.4 s	5.5 s

TABLE 3.1 – Comparatif des temps caractéristiques de décroissance pour différents couples $(A_t; L)$ pour $\alpha = 9.7\%$

Confrontation du modèle aux expériences

Pour les 4 fractions volumiques qui ont été investiguées expérimentalement par absorption de la lumière incidente, la vitesse et le diamètre des bulles estimés par Bouche *et al.*, 2012 ont été imposés dans le modèle. Nous avons alors appliqué la méthode présentée précédemment pour déterminer les couples $(A_t; L)$ permettant de restituer à la fois le temps caractéristique de décroissance (figure 3.14) et les profils spatiaux de concentration 1D à différents instants (figure 3.15). Le tableau 3.2 présente les couples $(A_t; L)$ que nous avons déterminés pour les différentes fractions volumiques étudiées. Nous pouvons constater que le volume transporté est indépendant de la fraction volumique alors que la longueur de transport diminue avec la fraction volumique. Le fait que le volume transporté soit indépendant de la fraction volumique est cohérent avec les observations de Bouche *et al.*, 2014 sur la nature des sillages en cellule de Hele-Shaw. En effet, les auteurs ont montré qu'au-delà d'une fraction volumique de 3%, la longueur caractéristique de la décroissance exponentielle du déficit de vitesse est indépendante de la fraction volumique et est de l'ordre de $2.5d$. Quant à la longueur de transport, elle diminue entre 25 et 14 diamètres de bulles lorsque la fraction volumique de gaz augmente. A faible fraction volumique, cette longueur est proche de la longueur visqueuse $\frac{Ve^2}{\nu} \approx 25d$ où V est la vitesse d'ascension des bulles, e est la largeur de l'interstice de la cellule de Hele-Shaw et ν est la viscosité cinématique (Roig *et al.*,2012). A grande fraction volumique, la présence des bulles a pour effet d'écranter cette longueur de transport, d'où la diminution de la longueur de transport avec la fraction volumique.

α	3%	5.3%	9.7%	14%
Longueur de transport	$25d$	$23d$	$20d$	$14d$
Volume de transport	2.0 A_b	2.0 A_b	2.0 A_b	2.0 A_b

TABLE 3.2 – Volume transporté (A_t) et longueur de transport (L) en fonction de la fraction volumique

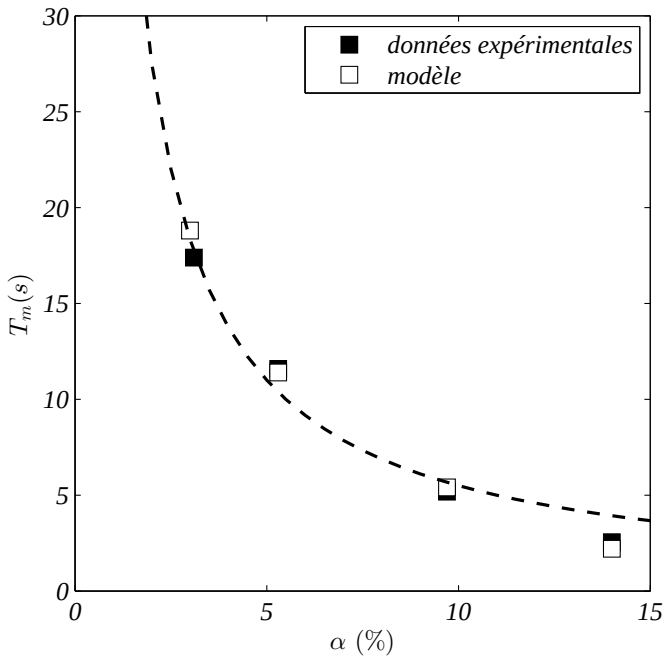
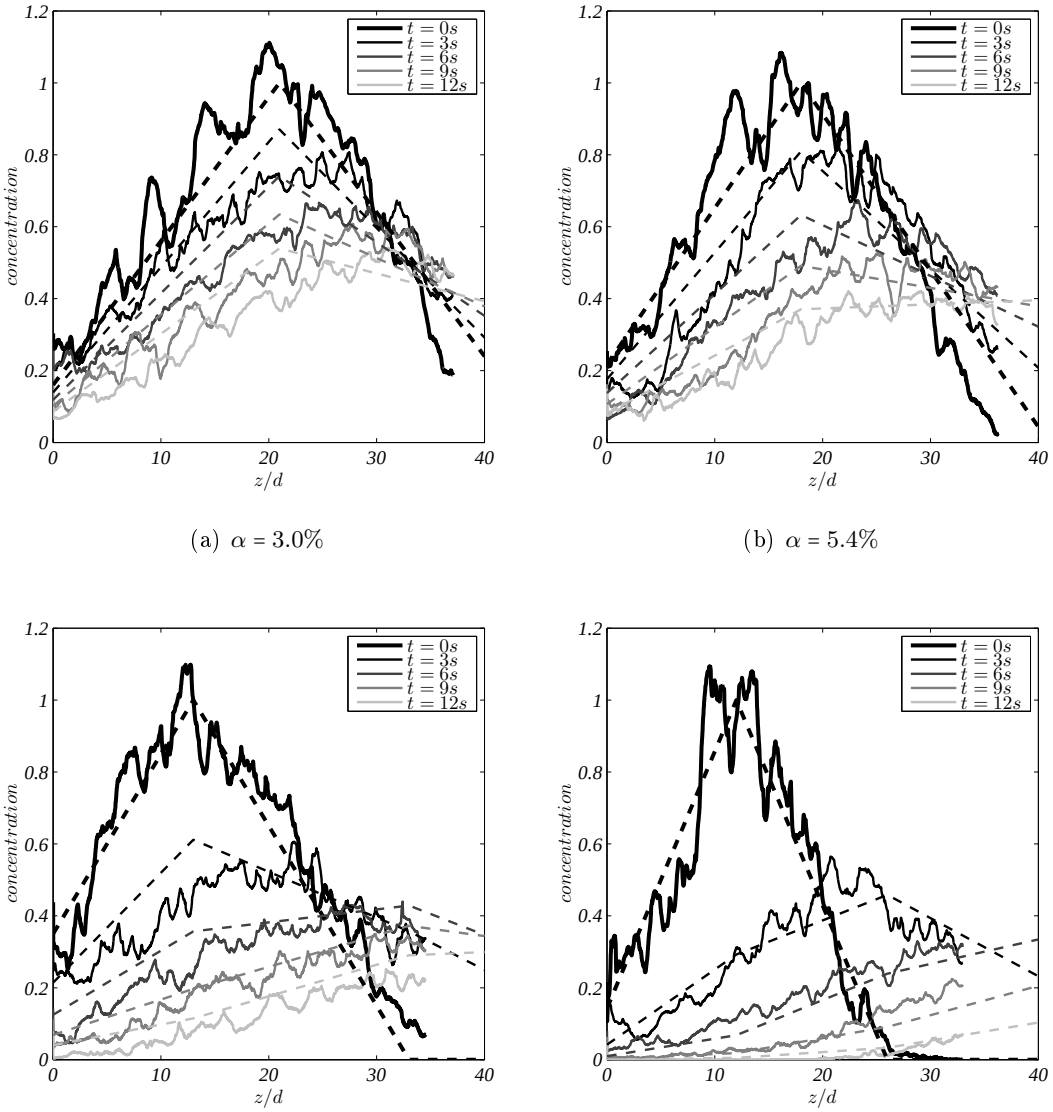


FIGURE 3.14 – Confrontation des temps caractéristiques de décroissance obtenus par le modèle aux résultats expérimentaux pour différentes fractions volumiques. Approximation des données expérimentales par une relation en $\frac{1}{\alpha}$ (en pointillé).



(a) α = 3.0%

(b) α = 5.4%

(c) α = 9.7%

(d) α = 14.0%

FIGURE 3.15 – Confrontation des profils de concentration spatiaux obtenus par le modèle (en pointillé) aux profils expérimentaux (en trait plein) pour différentes fractions volumiques.

3.5 Analyse physique du mélange par le modèle de transport

Une fois la longueur de transport et le volume transporté déterminés, nous avons réalisé une analyse physique du mélange en écoulement à bulles confiné à l'aide du modèle de transport intermittent et convectif pour les 4 fractions volumiques que nous avons investiguées expérimentalement. En particulier, nous nous sommes intéressés aux propriétés statistiques de la distribution 1D de colorant en calculant les moments d'ordre 1 à 3. Cela nous a permis de donner une description physique des propriétés de mélange et de tester la sensibilité de ces propriétés aux différents paramètres du modèle.

3.5.1 Analyse dimensionnelle

Le problème du mélange en écoulement à bulles confiné est régi par 4 paramètres dimensionnels, à savoir la vitesse des bulles V, le volume transporté A_t, la longueur de transport L et la densité de bulles N^*. Il est donc possible de bâtir deux nombres sans dimension ; le premier étant une fraction volumique efficace qui est égale à $\alpha_t = N^* \times A_t$; le second étant un paramètre dynamique L^* donné par $L^* = \frac{L}{\sqrt{A_t}}$. La dépendance de ces deux nombres adimensionnels à la fraction volumique a été calculée (figure 3.16). Nous constatons que la fraction volumique efficace transportée (α_t) augmente linéairement avec la fraction volumique de gaz avec un coefficient directeur de 2 (figure 3.16 a). Cela vient du fait que pour toutes les fractions volumiques considérées, le volume transporté est égal à deux fois le volume de la bulle. Par la suite nous préférons considérer comme paramètre adimensionnel la fraction volumique de gaz plutôt que la fraction volumique efficace. Le paramètre dynamique, quant à lui, diminue lorsque la fraction volumique augmente (figure 3.16 b).

3.5.2 Propriétés statistiques de la distribution 1D de colorant

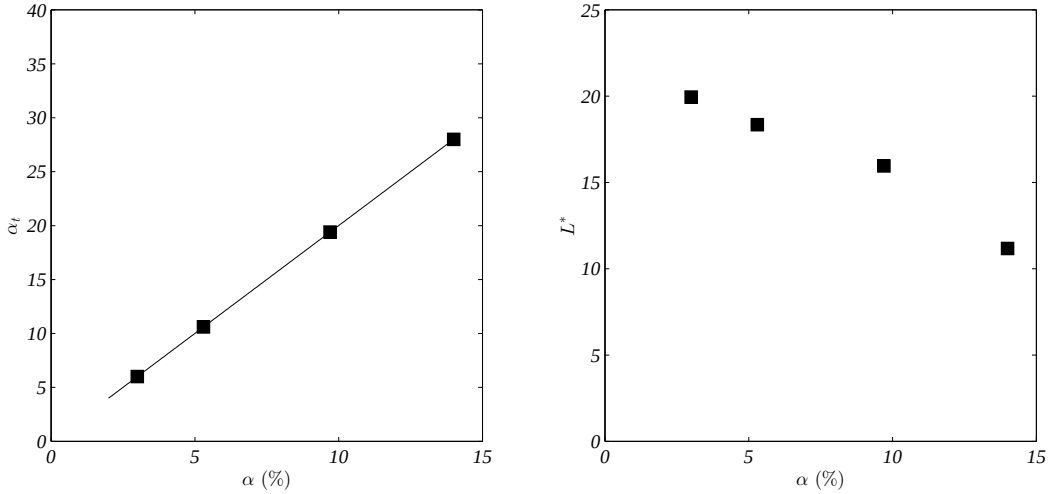
Grâce aux différents moments statistiques d'ordre 1 à 3, il est possible de déterminer à la fois le mouvement d'ensemble de la distribution de colorant, mais aussi de connaître comment celle-ci s'étale au cours du temps et comment évoluent ses propriétés de symétrie. Nous allons donc successivement nous intéresser à ces trois propriétés statistiques.

Mouvement d'ensemble de la distribution initiale de colorant

Le mouvement d'ensemble de la distribution de colorant peut être évalué en calculant la position du barycentre de la distribution de colorant z_b au cours du temps. Le barycentre, ou moment d'ordre 1 est calculé à partir de la formule suivante :

$$z_b = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} zC(z)dz}{\int_{-\infty}^{+\infty} C(z)dz} \tag{3.2}$$

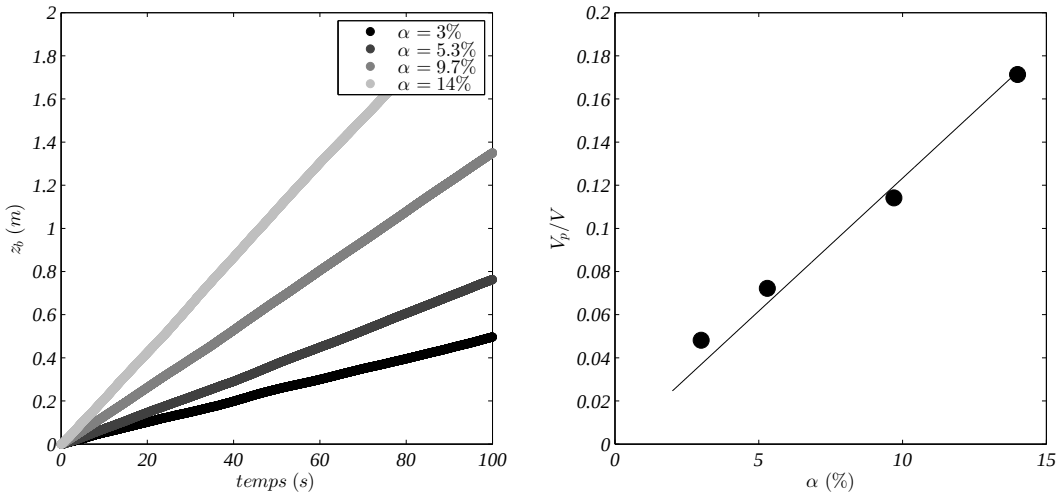
Sur la figure 3.17 a, nous avons tracé la position du barycentre z_b au cours du temps pour différentes fractions volumiques et nous constatons que la position du barycentre



(a) Fraction volumique efficace

(b) Paramètre dynamique

FIGURE 3.16 – Paramètres adimensionnels du problème de mélange en fonction de la fraction volumique



(a) Déplacement du barycentre en fonction du temps

(b) Vitesse de propagation adimensionnée

FIGURE 3.17 – Etude du déplacement du barycentre de la distribution de colorant pour différentes fractions volumiques

évolue linéairement avec le temps. Il est donc possible d'estimer une vitesse de propagation globale de la distribution de colorant $V_p = \frac{dz_b}{dt}$ pour les quatre fractions volumiques étudiées. Or l'analyse dimensionnelle indique que cette vitesse de propagation s'écrit de manière générale ainsi : $V_p = V\ f(L^*;\alpha)$, où V est la vitesse des bulles mesurée expérimentalement par Bouche *et al.*, 2012. Sur la figure 3.17 b, nous avons tracé la vitesse de propagation adimensionnée par la vitesse des bulles en fonction de la fraction volumique et nous voyons que la vitesse de propagation de la distribution de colorant adimensionnée par la vitesse des bulles augmente linéairement avec la fraction volumique. Il est donc possible d'estimer la vitesse de propagation de la distribution de colorant de la manière suivante :

$$V_p = kV\alpha \tag{3.3}$$

avec $k = 0.0123$. Il est intéressant de noter que cette vitesse de propagation V_p reste très en deçà de la vitesse d'ascension des bulles puisqu'elle est environ 10 fois plus faible que la vitesse d'ascension des bulles.

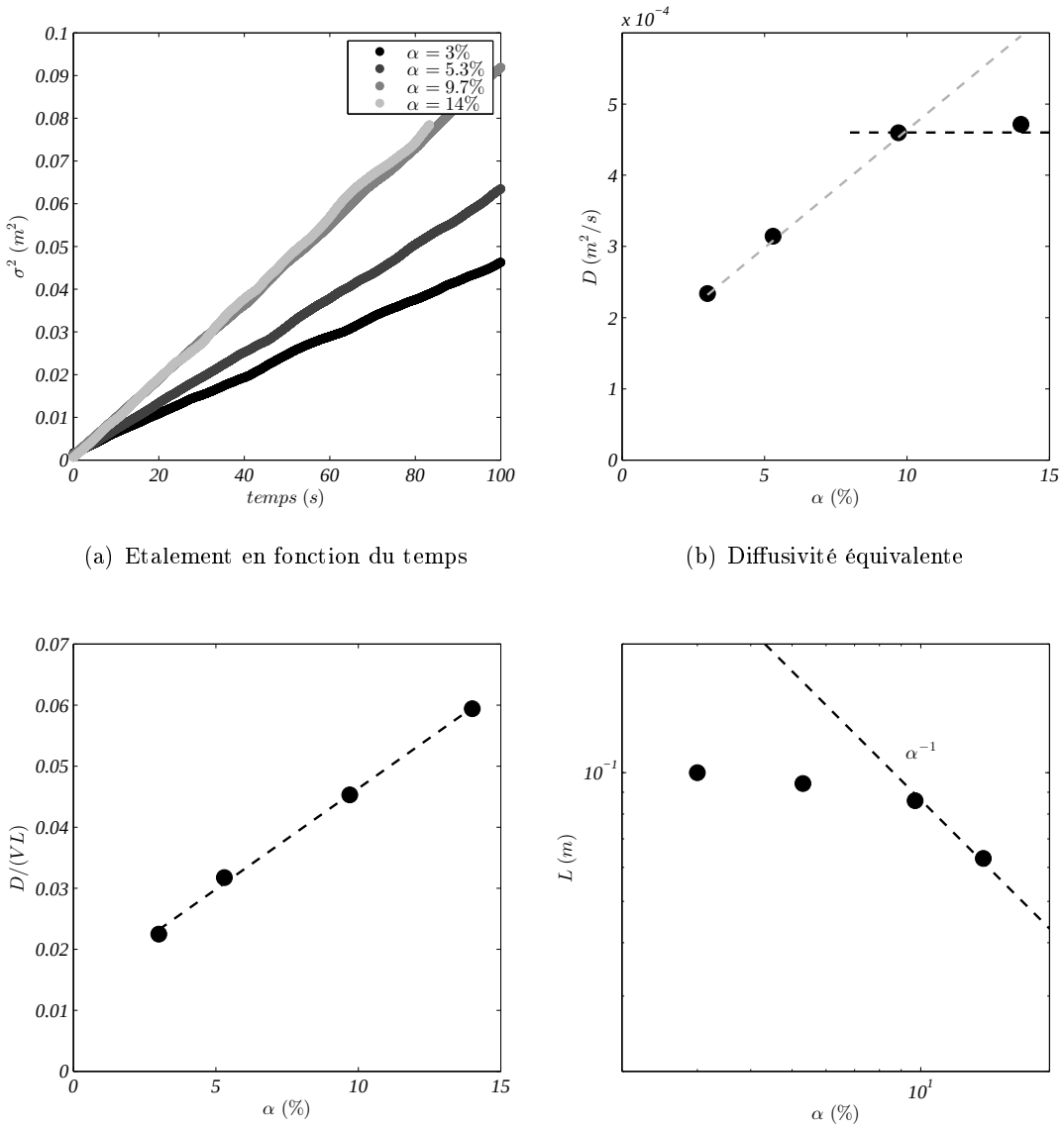
Il est délicat d'interpréter cette vitesse de propagation et de conclure sur son origine. Nous pouvons nous demander si cette vitesse de propagation est liée à une vitesse moyenne du liquide non nulle dans la cellule de Hele-Shaw. Une étude par PIV menée par Bouche *et al.*, 2014 permet néanmoins d'apporter quelques éléments de réponse. En effet, les auteurs ont constaté qu'après exclusion de la zone proche des bulles pour supprimer les vecteurs faux proches de l'interface des bulles, la vitesse moyenne du liquide est nulle. Cela signifie donc qu'il n'y pas de recirculation du liquide à grandes échelles dans la zone de mesure. Mais il est pour l'instant impossible d'exclure qu'une vitesse moyenne du liquide non nulle soit produite par la contribution des régions proches des bulles.

Etalement de la distribution initiale de colorant

L'étalement de la distribution de colorant peut être évalué en considérant le moment centré d'ordre 2 de la distribution de colorant. Celui-ci est donné par la formule suivante :

$$\sigma^2 = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} (z - z_b)^2 C(z) dz}{\int_{-\infty}^{+\infty} C(z) dz} \tag{3.4}$$

Sur la figure 3.18 a, nous avons tracé l'évolution temporelle de la variance de la distribution de colorant au cours du temps. Nous constatons alors que la variance de la distribution de colorant évolue linéairement avec le temps pour toutes les fractions volumiques considérées. Nous pouvons donc calculer un coefficient de diffusion effectif à partir de la formule suivante : $D = \frac{1}{2}\frac{d\sigma^2}{dt}$ pour les quatre fractions volumiques étudiées. La figure 3.18 b montre l'évolution du coefficient de diffusion effectif avec la fraction volumique. Celui-ci n'a pas une évolution monotone avec la fraction volumique et devient indépendant de la fraction volumique au-delà de $\alpha = 10\%$.



(a) Etalement en fonction du temps

(b) Diffusivité équivalente

(c) Diffusivité équivalente adimensionnée

(d) Echelle de longueur L

FIGURE 3.18 – Etude de l'étalement de la distribution de colorant pour différentes fractions volumiques

D'après l'analyse dimensionnelle, nous savons que la diffusivité effective dépend des deux paramètres adimensionnels (L^* et α) et s'écrit comme le produit d'une vitesse par une longueur. Il est donc possible d'exprimer la diffusivité de la manière suivante : $D = VL\ f(L^*;\alpha)$. Sur la figure 3.18 c, nous avons tracé la diffusivité effective adimensionnée par VL en fonction de la fraction volumique et nous constatons qu'elle dépend linéairement de celle-ci. Il est donc possible de modéliser la diffusivité effective de la manière suivante :

$$D \propto VL\alpha \tag{3.5}$$

A partir de ce modèle 3.5, il est possible de comprendre l'origine de la saturation de la diffusivité efficace avec la fraction volumique. Pour faciliter le raisonnement, nous considérons que la vitesse des bulles est indépendante de la fraction volumique puisque celle-ci évolue entre 10.4 et 12.6 cm/s sur l'ensemble de la gamme de fraction volumique étudiée. Si nous regardons l'évolution de l'échelle de longueur de transport L avec la fraction volumique α (figure 3.18 d), nous distinguons deux régimes. Pour les fractions volumiques inférieures à 10%, la longueur de transport est quasiment constante. En considérant le modèle donné à l'équation 3.5 avec V et L constant, nous voyons bien que la diffusivité efficace augmente linéairement avec la fraction volumique. Cette relation linéaire, matérialisée en trait pointillé gris sur la figure 3.18 b représente bien l'évolution de la diffusivité avec la fraction volumique, tant que la fraction volumique est inférieure à 10 %. Au-delà, il faut prendre en compte le fait que la longueur de transport diminue avec la fraction volumique en $\frac{1}{\alpha}$ (figure 3.18 d, où les traits pointillés représentent la loi en α^{-1}). D'après la relation 3.5, nous trouvons alors que la diffusivité effective est indépendante de la fraction volumique. Cette relation où la diffusivité est constante est tracée en trait pointillé noir sur la figure 3.18 b et reproduit bien l'évolution de la diffusivité efficace au-delà de $\alpha = 10\%$. Nous constatons alors que la saturation de la diffusivité effective avec la fraction volumique vient du raccourcissement de la longueur de transport lorsque la fraction volumique augmente.

Etude de la symétrie de la distribution de colorant

Il est possible d'évaluer les propriétés de symétrie de la distribution de colorant à partir du moment centré d'ordre 3 de la distribution de colorant. Celui-ci est donné par l'équation suivante :

$$\gamma_1 = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} (z - z_b)^3 C(z) dz}{\int_{-\infty}^{+\infty} C(z) dz} \tag{3.6}$$

Il est néanmoins plus couramment d'utiliser le critère de symétrie, noté Sym et calculé de la manière suivante :

$$Sym = \frac{\gamma_1}{\sigma^3} \tag{3.7}$$

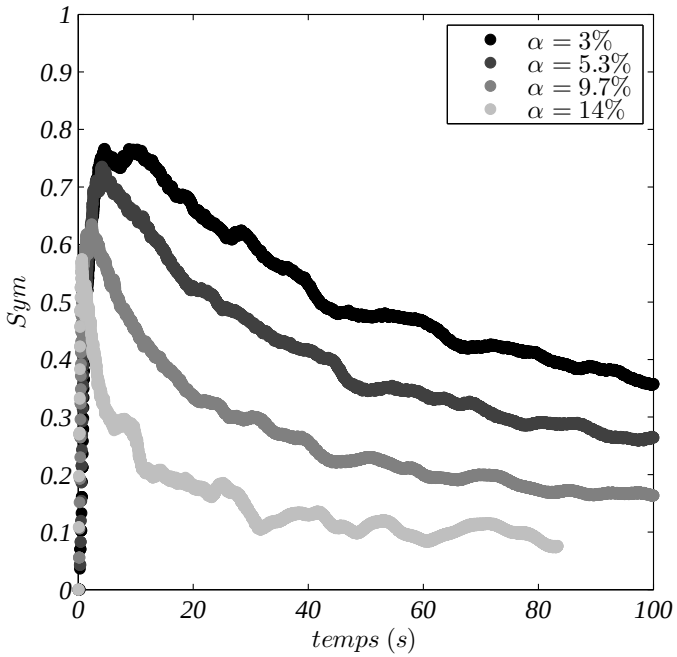


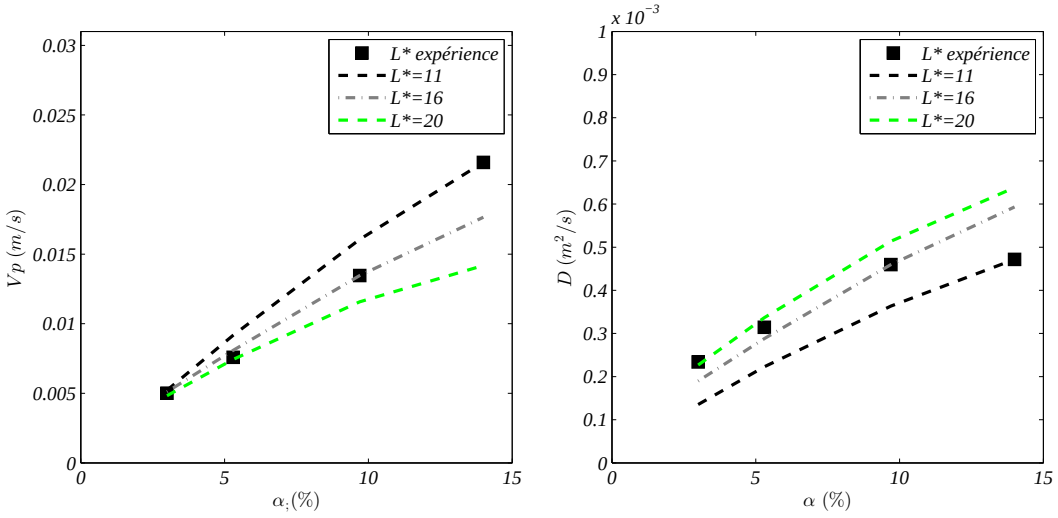
FIGURE 3.19 – Evolution temporelle de la symétrie de la distribution de colorant pour différentes fractions volumiques

Le critère de symétrie a les propriétés suivantes : il est nul lorsque la distribution de colorant est symétrique par rapport au barycentre, positif (*resp.* négatif)lorsque la distribution est décalée à gauche (*resp.* à droite) de la médiane.

Sur la figure 3.19, nous avons tracé l'évolution temporelle de ce critère de symétrie pour les quatre fractions volumiques étudiées. Nous constatons que bien que le profil de concentration initial soit symétrique, celui-ci se dissymétrise dès le lancement de la simulation. Cette dissymétrie atteint un maximum entre 1 et 20 s selon la fraction volumique. Puis la dissymétrie de la distribution de colorant tend à diminuer mais semble tendre vers un plateau non nul, ce qui signifie que la distribution de colorant reste dissymétrique même aux temps longs. Cette information permet de conforter l'idée que le mélange en cellule de Hele-Shaw n'est pas un processus diffusif.

3.5.3 Sensibilité paramétrique

Pour finir cette étude du mélange en cellule de Hele-Shaw, nous avons étudié la sensibilité des propriétés physiques du mélange, à savoir la vitesse de propagation et la diffusivité efficace au paramètre dynamique L^*. Pour réaliser ce test de sensibilité, nous avons gardé les mêmes diamètres et les même vitesses de bulles que ceux des expériences de mélange et nous avons fait varier uniquement le paramètre dynamique L^* entre 11 et 20. Cette gamme de paramètre dynamique correspond aux valeurs extrêmes trouvées dans les expériences de mélange, la valeur de 11 correspondant au paramètre dynamique à $\alpha = 14\%$ et celle de



(a) Vitesse de propagation

(b) Diffusivité équivalente

FIGURE 3.20 – Influence de L^* sur la vitesse de propagation et la diffusivité effective en fonction de la fraction volumique

20 à α = 3%. Nous avons représenté les valeurs de vitesse de propagation (3.20 a) et de diffusivité efficace (3.20 b) en fonction de la fraction volumique pour 3 différentes valeurs de paramètre dynamique. Nous pouvons constater que la vitesse de propagation est particulièrement sensible au paramètre dynamique lorsque la fraction volumique est élevée alors que la diffusivité efficace est sensible au paramètre dynamique quelle que soit la fraction volumique. Cela indique donc que le paramètre dynamique L^* est un paramètre clé pour la modélisation.

3.6 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'étude du mélange dans un écoulement à bulles confiné. Dans cet écoulement, l'agitation du liquide est originale puisqu'à cause du frottement aux parois, la turbulence ne peut pas se développer et l'agitation ne résulte que des perturbations induites autour des bulles, notamment dans leur sillage. Le mélange d'un traceur passif est donc essentiellement dû au mélange par capture de colorant dans les sillages. Ce mécanisme de mélange s'est révélé être fortement convectif et intermittent puisque l'évolution temporelle de la concentration dans un volume d'observation décroit exponentiellement. Nous avons donc proposé un modèle de transport 1D qui modélise le flux de concentration dans la direction verticale vers le haut. Ce modèle est basé sur l'hypothèse qu'un volume A_t de colorant est transporté par les sillages des bulles sur une certaine longueur L avant d'être déposé. Après avoir déterminé la valeur du volume transporté et celle de la longueur de transport grâce à des expériences, nous avons montré que ce modèle permet de restituer fidèlement les temps caractéristiques de décroissance et les distributions spatiales de colorant à différents instants. Nous avons alors pu mené une analyse physique du mélange à partir du modèle de transport. En calculant les moments statistiques à l'ordre 1 à 3, nous avons estimé une vitesse de propagation de la distribution de colorant, une

diffusivité effective et un coefficient de dissymétrie comme fonction de la fraction volumique, de la vitesse d'ascension des bulles et de la longueur de transport. L'interprétation de la diffusivité effective nécéssite de prendre des précautions lors de la modélisation. En effet, outre la présence d'une advection moyenne, les distributions spatiales de concentration présentent des dissymétries importantes entre le haut et le bas. Cela confirme le fait que le mélange en écoulement à bulles confiné n'est pas un processus purement diffusif. Il met en jeu des flux convectifs qui impliquent notamment des mécanismes dispersifs qui pourraient être décrits par des dérivées spatiales de la concentration du troisième ordre.

Deuxième partie

Mélange dans un essaim de bulles tridimensionnel

Chapitre 4

Présentation de la colonne à bulles et de l'écoulement

Nous allons maintenant nous intéresser aux mécanismes de mélange dans des écoulements à bulles au sein desquels des interactions entre les sillages peuvent se développer. Pour cela, nous avons étudié le mélange d'un constituant peu diffusif dans un essaim de bulles tridimensionnel. Nous avons conçu au cours de cette thèse une colonne à bulles permettant de générer deux types d'écoulement à bulles tridimensionnel. Le premier est un essaim de bulles homogène en ascension dans de l'eau au repos. Cet écoulement permet d'étudier le mélange induit par la seule contribution des bulles et notamment les interactions avec leurs sillages en interaction. Le second écoulement qui peut être généré est un écoulement inhomogène avec une recirculation du liquide produite par une inhomogénéité de fraction volumique au bas de la cuve. Cette configuration permet d'étudier le mélange en présence de l'agitation induite par les bulles à laquelle une recirculation de liquide et éventuellement des grandes échelles de la turbulence par cisaillement sont ajoutées. Nous commencerons par décrire la colonne à bulles ainsi que son fonctionnement. Puis nous présenterons quelques spécificités hydrodynamiques des écoulements à bulles homogènes tridimensionnels pour mieux comprendre la nature de l'agitation générée par les bulles et leurs sillages en interaction. Pour finir, nous présenterons le principe des expériences de mélange réalisées dans l'essaim de bulles tridimensionnel.

4.1 Présentation de la colonne à bulles 3D

La colonne à bulles est décrite en figure 4.1. Celle-ci est composée d'une cuve en verre de 300×150×1000 mm^3 remplie d'eau au repos. Au bas de la cuve se trouve un réseau de 30×60 tubes capillaires en inox de longueur 15 cm et de diamètre intérieur 0.2 mm. Imposer le diamètre intérieur des capillaires permet d'assurer une faible polydispersité de la distribution des diamètres de bulles pour une fraction volumique donnée (Riboux, 2007). Les capillaires sont alimentés en air comprimé par deux chambres séparées, elle-même alimentées par un débit en air stationnaire. Cette manière de générer les bulles ne permet pas d'assurer un diamètre de bulles (d) et une vitesse de bulles (V) constants lorsque la fraction volumique augmente.

Le diamètre et la vitesse d'ascension des bulles ont été mesurés par fibre optique double (RBI) dont le fonctionnement et le traitement ont été détaillés par Riboux, 2007. Le tableau

4.1 présente en détail le diamètre et la vitesse des bulles en fonction de la fraction volumique de gaz dans l'écoulement à bulles homogène.

α (en %)	d (en mm)	V (en mm/s)	Re
1.3	2.3	296	693
3.0	2.7	273	751
4.5	3.0	256	771
6.8	3.3	239	787
9.8	3.6	225	804
13.0	3.9	216	851

TABLE 4.1 – Propriétés hydrodynamiques des bulles en écoulement homogène en fonction de la fraction volumique α. Diamètre des bulles (d). Vitesse d'ascension des bulles (V).

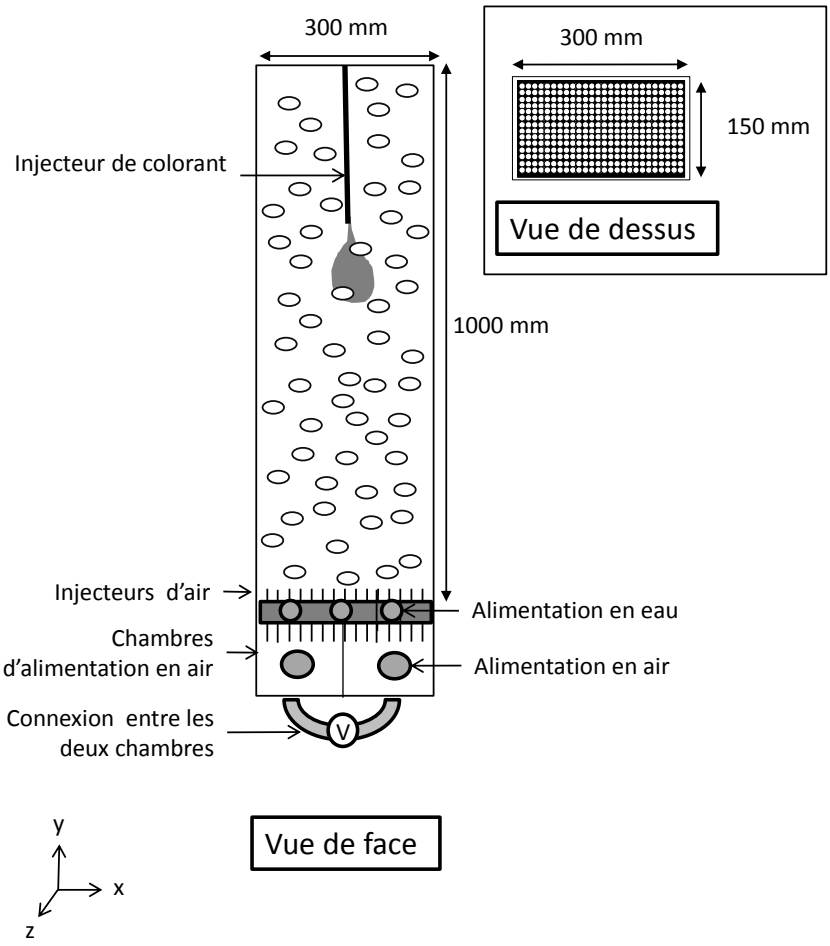


FIGURE 4.1 – Schéma du dispositif expérimental

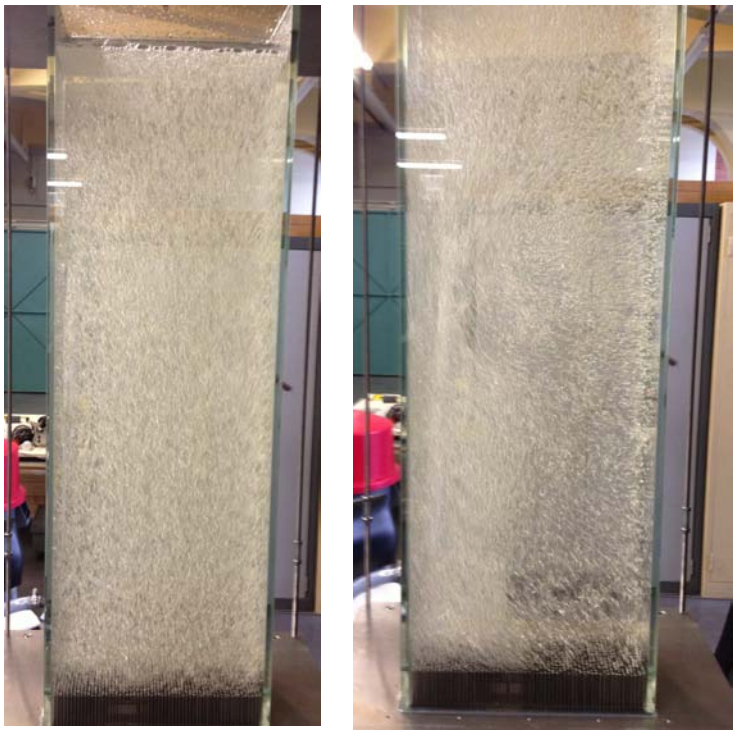


FIGURE 4.2 – Ecoulement homogène *(à gauche)* et avec recirculation *(à droite)* dans la colonne à bulles

Les deux chambres peuvent être connectées entre elles, ou non, grâce à l'ouverture ou la fermeture d'une vanne. Cela permet de générer les deux types d'écoulement désirés (figure 4.2). Lorsque les deux chambres sont connectées, un écoulement homogène est créé et il est alors possible de modifier la fraction volumique de gaz entre 1 et 15 % en faisant varier le débit de gaz. Au contraire, quand les deux chambres sont séparées (la vanne est fermée) et qu'un débit de gaz différent est envoyé dans chacune d'elle, un gradient de fraction volumique à l'injection est généré. Une recirculation à grande échelle est alors produite dans la cuve. Il est possible de régler à la fois la fraction volumique dans la jambe montante et le différentiel de pression entre les deux chambres, ce qui nous permet d'étudier une recirculation plus ou moins intense et complexe.

Par la suite, la direction verticale sera appelée y et le plan horizontal $(x; z)$. La direction x est dirigée selon la plus grande largeur de la cuve et z selon la profondeur. L'origine des axes est positionnée juste au-dessus des capillaires, au centre de la cuve dans le plan horizontal.

4.2 Vérification de l'homogénéité de l'essaim tridimensionnel

L'élaboration d'un essaim de bulles homogène tridimensionnel nécessite de prendre de nombreuses précautions car cet écoulement se déstabilise facilement et peut générer une recirculation du liquide. En premier lieu, il faut s'assurer que la distribution des diamètres de bulles soit peu dispersée. Cela est en partie garanti par des capillaires de diamètre

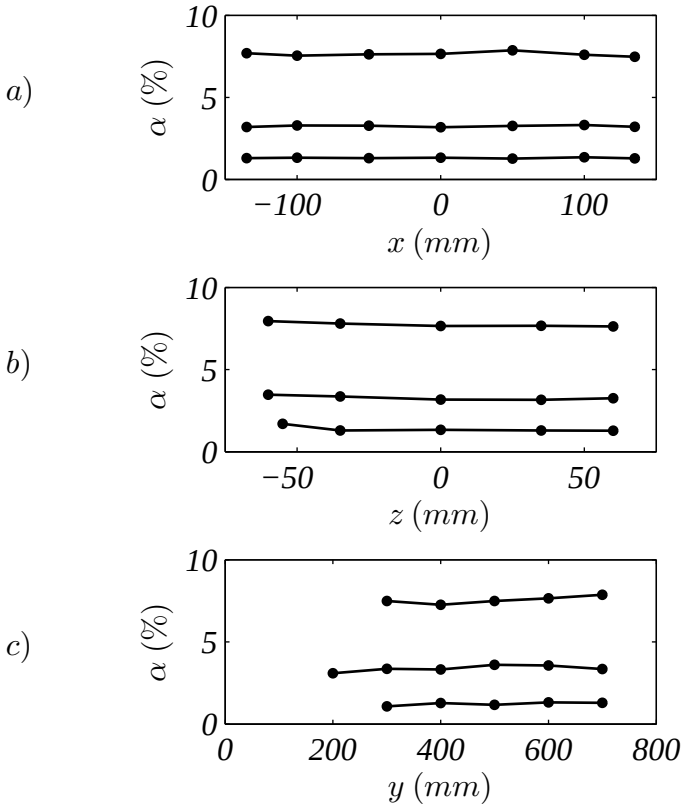


FIGURE 4.3 – Homogénéité de l'essaim dans la configuration homogène. a) Profil horizontal selon la largeur x. b) Profil horizontal selon la profondeur z. c) Profil vertical selon la direction y.

identique. De plus, nous avons disposé les capillaires selon un réseau spatialement régulier, ce qui permet d'avoir une répartition spatiale des bulles la plus homogène possible.
Nous avons vérifié que l'essaim de bulles est homogène une fois l'écoulement établi en réalisant des profils horizontaux et verticaux de fraction volumique locale grâce à la fibre optique (RBI) pour trois fractions volumiques différentes (α =1.3 %, 3.1 %, 7.6 %) (figure 4.3). Au delà de 200 mm au-dessus des injecteurs, nous constatons que l'effet de mémoire de la génération des bulles est oublié et l'essaim est homogène. Lors de l'étude du mélange dans l'essaim homogène, nous n'étudierons donc le mélange qu'au-delà de cette distance d'établissement de l'écoulement.

4.3 Propriétés hydrodynamiques d'un essaim de bulles homogène en ascension

Dans la colonne à bulles, les bulles générées ont des diamètres compris entre 2.2 et 3.7 mm. De ce fait, le nombre de Reynolds est compris entre 630 et 740 ($Re = \frac{Vd}{\nu}$ avec V la vitesse d'ascension des bulles, d le diamètre des bulles et ν la viscosité cinématique de l'eau). Contrairement à ce que nous avons pu voir en cellule de Hele-Shaw, des interactions entre les sillages se développent à de tels nombres de Reynolds dans les écoulements à bulles

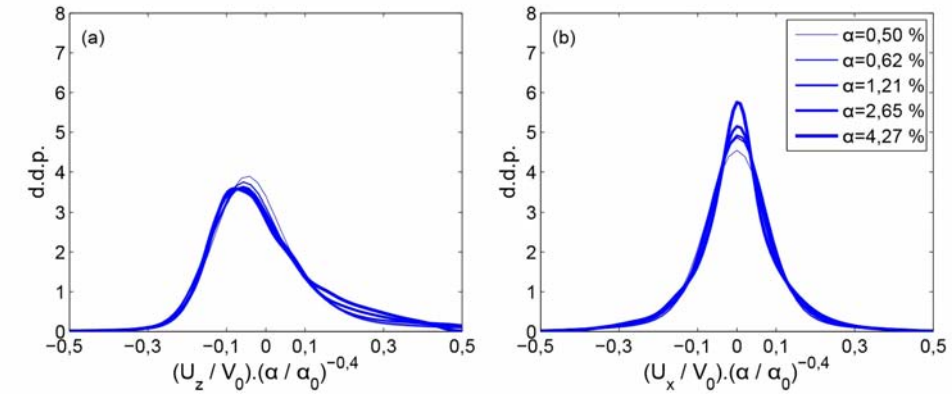


FIGURE 4.4 – Fonction de densité de probabilité des fluctuations de vitesse verticales (a) et horizontales (b) du liquide normalisées par $V_0(\alpha/\alpha_0)^{0.4}$ avec V_0 la vitesse d'ascension d'une bulle isolée et $\alpha_0 = 1\%$ (Riboux, 2007)

tridimensionnels. La présence d'interactions non-linéaires entre les sillages a en particulier été observée par Risso & Ellingsen, 2002 dans le cas d'écoulement à bulles à grand nombre de Reynolds. En comparant le sillage d'une bulle isolée à celui dans un essaim de bulles dilué ($0.5\% < \alpha < 1.05\%$), les auteurs ont pu observer une forte atténuation des sillages par les interactions de sillages non-linéaires. En effet, dans le cas de la bulle isolée, le sillage est encore perceptible à 150 diamètres de bulle alors que dans l'essaim de bulles dilué, le sillage n'est plus discernable à partir de 10 diamètres de bulle. Cette atténuation des sillages a aussi été observée par Roig & Larue de Tournemine, 2007 dans des écoulements à bulles à grand nombre de Reynolds et pour des fractions volumiques allant jusqu'à 15%. En particulier, les auteurs ont mesuré une décroissance exponentielle des sillages, avec une longueur caractéristique qui diminue lorsque la fraction volumique augmente. La comparaison dans Risso & Ellingsen, 2002 entre la bulle isolée et l'essaim de bulles dilué a également permis d'identifier deux régions distinctes au voisinage de la bulle. A une distance inférieure à 5 diamètres de bulle, l'écoulement est proche de celui induit par une bulle isolée et est contrôlé par le sillage. De ce fait, les fluctuations de liquide générées dans cette région sont indépendantes de la fraction volumique. Entre 5 et 10 diamètres de bulle, les interactions non-linéaires deviennent significatives. Cela provoque une décroissance rapide de la perturbation induite par le passage de la bulle. Les fluctuations dans cette zone sont alors auto-similaires avec la fraction volumique à la puissance 0.4. Les auteurs ont aussi montré que même à des fractions volumiques faibles, la contribution du voisinage proche des bulles sur l'agitation totale est faible. En effet, les densités de probabilité des fluctuations du liquide présentent une auto-similarité en $\alpha^{0.4}$ qui est la signature des interactions de sillages. Cette auto-similarité des densités de probabilité des fluctuation du liquide a pu être étendue à des fractions volumiques allant jusqu'à 14% par Riboux *et al.*, 2009 (figure 4.4, issue de Riboux *et al.*, 2009). Riboux *et al.*, 2009 ont aussi montré que, quelle que soit la fraction volumique, la présence des sillages proches est à l'origine du comportement non-gaussien des densités de probabilité des fluctuations de vitesse du liquide. En l'absence de la contribution des sillages proches, l'agitation produite par les interactions de sillages retrouve un comportement gaussien. La description de l'agitation en deux régions s'étend donc à des fractions volumiques plus élevées.

4.4 Expérience de mélange dans l'essaim de bulles tridimensionnel

Pour caractériser le mélange d'un traceur passif injecté à partir d'un point source, deux expériences de mélange sont classiquement réalisées (Davidson, 2003). Elles permettent de répondre à deux problèmes distincts, le premier ayant été posé par Taylor en 1921 et le second par Richardson en 1926. La première expérience consiste à injecter en continu le traceur et de regarder la propagation de la distribution de colorant et en particulier de son barycentre. Cette expérience permet de répondre à la question du problème de Taylor qui est : quelle distance en moyenne aura parcouru une particule fluide pendant un certain intervalle de temps ? Cette expérience est particulièrement pertinente pour l'étude de la dispersion de polluant. La deuxième expérience modèle est réalisée à partir d'une injection de traceur pendant une durée finie. Une fois les conditions d'injection oubliées, la taille de la distribution spatiale de colorant augmente sous l'action de l'agitation turbulente. Le taux de croissance de cette distribution spatiale est alors étudié. Ce problème, posé par Richardson, s'intéresse donc à la séparation de deux particules fluides initialement proches sous l'action de l'agitation turbulente. Dans le cas de notre étude du mélange induit par les bulles, nous nous intéressons au problème posé par Richardson puisque nous souhaitons étudier le taux de croissance d'une distribution de colorant par l'agitation générée par les bulles. A partir de ce taux de croissance, nous souhaitons mesurer un coefficient de diffusion effectif représentatif du mélange induit par les bulles.
L'injection d'un volume fini de traceur passif fluorescent se fait au sein même du nuage de bulles avec un capillaire de diamètre intérieur 0.5 mm pour ne pas déstabiliser l'écoulement homogène. Elle est contrôlée et réalisée par un pousse-seringue de la marque Haward et une seringue à gaz Hamilton de 100 mL, de diamètre intérieur 23 mm. Un volume de 1 mL de fluorescéine à une concentration $C_0 = 5{\times}10^{-3}$mol/L est injecté à un débit de 30 mL/min. La figure 4.5 montre la distribution spatiale de colorant formée par notre système d'injection à la fin de l'injection et en l'absence de bulles. En sortie de capillaire, nous observons la formation d'un jet. Lors des expériences de mélange dans l'écoulement à bulles, le mélange sera donc dû dans un premier temps à l'interaction du jet avec les bulles. Nous étudierons donc le mélange 10 s après le début de l'injection pour ne pas prendre en compte cette phase.



FIGURE 4.5 – Distribution spatiale de colorant générée en l'absence de bulles à la fin de l'injection

Chapitre 5

Technique de visualisation du mélange dans un essaim de bulles tridimensionnel

Nous détaillerons ici la technique d'imagerie développée pour l'étude du mélange dans un écoulement à bulles tridimensionnel. Elle a pour objectif de visualiser la propagation du colorant sous l'action des bulles en mesurant à chaque instant la distribution de concentration du colorant. Pour effectuer cette mesure, nous avons développé une technique de visualisation basée sur la fluorescence d'un traceur passif excité par un éclairage en volume à l'aide de tubes au néon UV et sur l'enregistrement de la lumière fluorescée par une caméra. En effet, dans certaines conditions de concentration et de puissance lumineuse, la concentration de colorant est proportionnelle à la lumière fluorescée émise par le traceur. En visualisant le champ de lumière fluorescée émise par le traceur, il est donc possible d'accéder au champs de concentration par une relation de proportionnalité. Mais la présence des bulles rend complexe l'interprétation du signal de lumière fluorescée enregistré par la caméra. A cause des réflexions multiples et des occultations par les bulles de la lumière fluorescée émise par le colorant, le signal de lumière fluorescée enregistré par la caméra n'est pas aisé à relier à la distribution spatiale du traceur fluorescent. Par conséquent, nous avons mis au point un traitement de l'image permettant de restituer le champ de lumière fluorescée émis par le traceur à partir du signal de lumière fluorescée enregistré par la caméra. Nous présenterons ce postraitement ainsi que les tests qui ont permis de le valider et de déterminer ses limites d'utilisation. Nous développerons également la méthodologie de mise en œuvre de la technique de fluorescence en testant la réponse en fluorescence du traceur à des variations de la concentration et de la puissance lumineuse des néons. Cela nous permettra de déterminer les conditions pour lesquelles nous pouvons mesurer la distribution de concentration à partir du champ de lumière fluorescée émis par le traceur.

5.1 Présentation de la technique et de la chaîne de mesure

Dans le but de visualiser le mélange d'un traceur passif, nous avons injecté au sein d'un nuage de bulles un traceur passif fluorescent, la fluorescéine sodium, par un capillaire de diamètre intérieur 0.5 mm. La fluorescéine sodium a la propriété d'absorber les longueurs

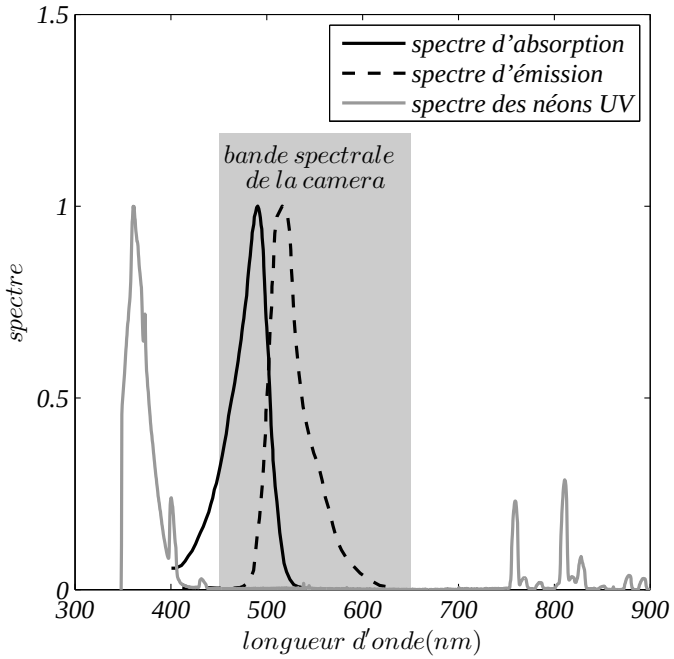


FIGURE 5.1 – Spectres d'absorption et d'émission de la fluorescéine sodium. Spectre de la lumière émise par les tubes au néon UV

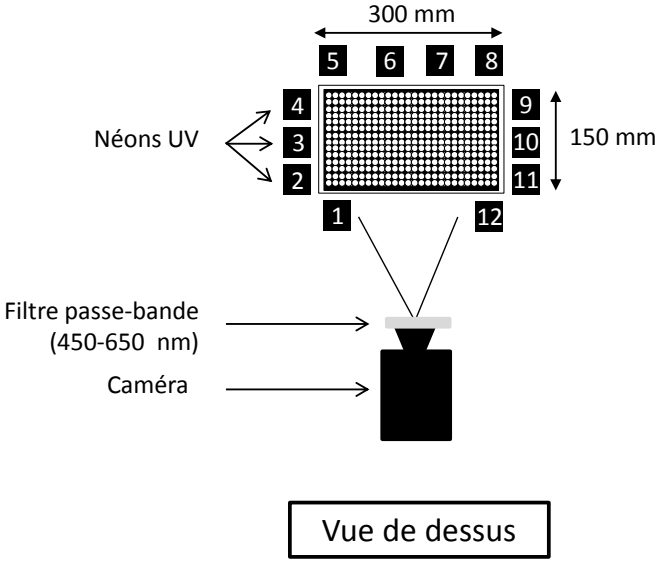


FIGURE 5.2 – Dispositif expérimental pour la visualisation du mélange 3D

d'onde comprises entre 400 et 550 nm avec un pic d'absorption à 496 nm et d'émettre de la lumière fluorescée entre 490 et 600 nm avec un pic d'émission à 520 nm. Les spectres d'absorption et d'émission de la fluorescéine sont présentés figure 5.1.
Pour exciter les molécules de fluorescéine, nous avons éclairé l'écoulement uniformément en volume sur une hauteur de 600 mm en positionnant 12 tubes au néon UV autour de la colonne (figure 5.2). Les néons UV excitent la fluorescéine à des longueurs d'onde inférieures à 440 nm (figure 5.1). Quelques longueurs d'onde entre 750 et 900 nm sont aussi émises par les néons mais elles ne permettent pas d'exciter la fluorescéine. L'uniformité de l'éclairement par les tubes au néon UV est nécessaire puisqu'elle permet d'assurer une excitation homogène de la fluorescéine. Celle-ci a été vérifiée et sera présentée ultérieurement.
Nous avons utilisé une caméra sCMOS (PCO) et nous avons disposé devant son objectif un filtre passe-bas de longueur d'onde de coupure 650 nm (Melles Griot) et un filtre passe-haut de longueur d'onde de coupure 450 nm(OD>4 Edmund). De cette manière, la bande de sensibilité spectrale du capteur est restreinte à la bande d'émission du fluorophore et les résidus d'émission des néons UV sont filtrés (figure 5.1). Selon la configuration étudiée (écoulement homogène ou avec recirculation), les réglages de la caméra diffèrent.

Cas de l'écoulement homogène
— Objectif Nikon de focale 85 mm, avec une ouverture f/D=2.8
— Temps d'exposition de 10 ms
— Fréquence d'acquisition de 49 Hz
— Taille de champ : 280×370 mm
Cas de l'écoulement inhomogène
— Objectif Nikon de focale 85 mm, avec une ouverture f/D=2
— Temps d'exposition de 6 ms
— Fréquence d'acquisition de 49 Hz
— Taille de champ : 419×188 mm

5.2 Quantification de l'effet des bulles sur la mesure

La lumière fluorescée émise par le traceur peut à la fois être réfléchie, réfractée et occultée par la présence des bulles. De ce fait, le signal de lumière fluorescée enregistré par la caméra n'est pas représentatif de la distribution spatiale du traceur dans l'écoulement. Il est donc nécessaire de bien identifier les perturbations induites par les bulles afin de comprendre qualitativement et quantitativement l'effet des bulles sur la lumière fluorescée émise par le traceur.

5.2.1 Identification des difficultés de mesure liées à la présence des bulles

Commençons par observer une image brute obtenue lors d'une expérience de mélange (figure 5.3 a). Sur cette image brute, il est difficile de distinguer la distribution spatiale de lumière fluorescée émise par le traceur. Les bulles peuvent réfléchir la lumière fluorescée émise par le traceur sur leur interface, l'occulter ou la réfracter. Par conséquent, la lumière fluorescée enregistrée par la caméra ne coïncide pas avec la distribution réelle de lumière fluorescée. La lumière fluorescée émise à l'intérieur de la zone de présence du traceur symbolisée par l'ellipse sur la figure 5.3 b, est occultée partiellement par la présence des bulles.

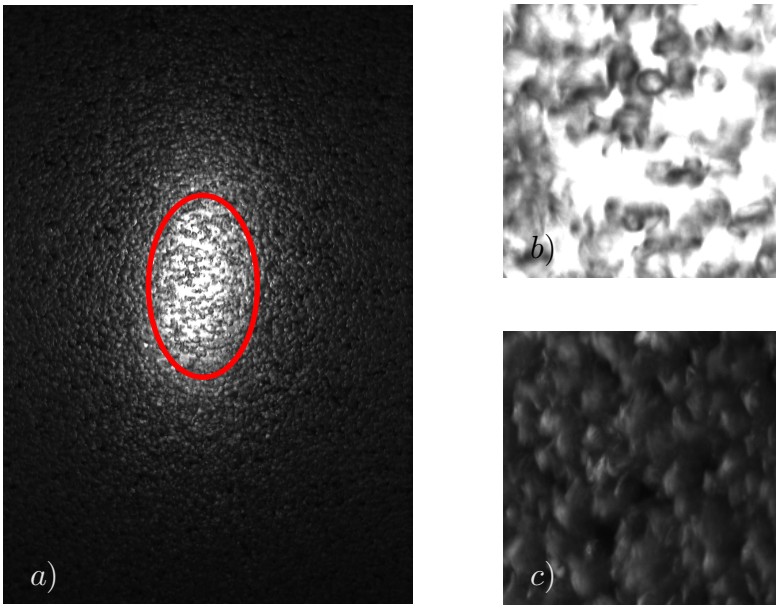


FIGURE 5.3 – a) Visualisation d'une distribution spatiale de colorant dans un écoulement à bulles homogène à $\alpha = 4.5\%$. b) Masquage de la lumière fluorescée par les bulles dans la zone de présence du traceur. c) Réflexions multiples sur l'interface des bulles à l'extérieur de la zone de présence du traceur.

L'intensité de lumière fluorescée enregistrée par la caméra est donc atténuée par rapport à l'intensité de la lumière fluorescée émise par le colorant. Au contraire, à l'extérieur de la zone de présence du traceur, les bulles réfléchissent la lumière fluorescée émise par le traceur (figure 5.3 c). Dans cette zone, la caméra mesure la présence de lumière fluorescée alors qu'il n'y a pas de traceur présent. Le post-traitement développé au cours de cette thèse a pour but de déterminer la distribution spatiale de lumière fluorescée émise par le traceur afin de déterminer le transport du colorant au cours du temps.

5.2.2 Présentation des tests

Dans le but de quantifier la distorsion induite par les bulles sur la distribution spatiale de la lumière fluorescée émise par le colorant, nous avons utilisé des sources de lumière dont la distribution spatiale est connue en l'absence de bulles. Puis, nous les avons observées à travers le nuage de bulles homogène. Cela nous a permis de caractériser entièrement l'effet des bulles sur la lumière émise par une source connue, et ce pour des fractions volumiques allant de 0 à 15 %. Deux sources lumineuses ont été considérées. La première est un panneau de LED blanches disposé derrière la cuve et dont la taille (50×50 mm^2, 120×160 mm^2, 200×200 mm^2) et la puissance lumineuse (de 20 à 100% de la puissance maximale) ont été variées. Ce test présente l'intérêt d'avoir une source lumineuse spatialement homogène dont les rayons sont quasiment parallèles à l'axe optique de la caméra. De plus, le panneau de LED étant disposé à l'extérieur de la cuve, ce test est non intrusif. Toute déformation de

l'image perçue par la caméra par rapport à la source de référence est donc due au passage de la lumière à travers le nuage de bulles. La deuxième source que nous avons étudiée est une source de lumière fluorescée excitée par les néons UV, plongée au cœur de l'écoulement. Pour cela, nous avons rempli une sphère étanche transparente de 5 cm de diamètre avec de la fluorescéine sodium à une concentration donnée et nous l'avons introduite au sein de l'écoulement. Ce test est donc plus représentatif des expériences de mélange puisque la source lumineuse est plongée dans l'écoulement et son émission lumineuse, isotrope, est induite par fluorescence. Nous avons aussi pu connaitre la réponse de notre système à des variations de concentration du colorant (entre 0 et 5 mmol/L, la concentration à l'injection) et d'intensité lumineuse en changeant le nombre de néons qui éclairent la sphère (0, 4, 6, 8 ou 12 néons).
Les deux sources étudiées sont donc complémentaires. Les tests avec le panneau de LED blanches permettent de caractériser rigoureusement l'effet des bulles sur un signal lumineux quasi unidirectionnel. Quant aux tests réalisés avec la sphère, ils sont plus proches des expériences de mélange et permettent de caractériser plus finement la mesure de mélange.

5.2.3 Modélisation de la distorsion optique induite par un essaim de bulles homogène par un filtre gaussien

Nous avons souligné précédemment que la distribution spatiale de la lumière fluorescée émise par le traceur diffère du signal de lumière fluorescée enregistrée par la caméra à travers le nuage de bulles car les bulles ont pour effet de réfléchir et d'occulter la lumière fluorescée émise par le traceur. Nous allons désormais chercher à quantifier ces effets d'étalement et d'occultation avec un panneau de LED blanche situé derrière la cuve (figure 5.4). La caméra filme la lumière émise par le panneau de LED à travers le nuage de bulles. La lumière enregistrée par la caméra est notée s par la suite. Avant de passer à travers le nuage de bulles, la lumière émise par le panneau de LED, notée e, est homogène spatialement et directionnelle. L'essaim de bulles, quant à lui, est considéré comme un filtre linéaire, noté h. Ce filtre permet de passer de la distribution spatiale émise par le panneau de LED au signal mesuré par la caméra grâce à la relation de convolution suivante : $e(y) * h(y) = s(y)$
L'image instantanée du panneau de LED filmée par la caméra étant perturbée par le passage successif des bulles, nous travaillerons par la suite uniquement sur une image obtenue en retenant la valeur médiane du niveau de gris de chaque pixel sur 150 images. Ceci permet d'obtenir une image du panneau de LED à travers le nuage de bulles convergée, non bruitée et représentative des niveaux de gris vus par la caméra. Le filtrage temporel associé à la prise de la valeur médiane sur 3 s n'est pas gênant puisque l'objet filmé est fixe et de luminosité invariante. De plus, la déformation du signal lumineux émis par le backlight étant identique dans les directions horizontale et verticale, nous travaillons sur des profils 1D d'intensité lumineuse, pris dans la direction verticale.

Nous faisons l'hypothèse que le filtre h est gaussien et que sa fonction de transfert s'écrit sous la forme

$$h(y) = \frac{k_f}{\sqrt{2\pi}\sigma_f} exp(-\frac{y^2}{2\sigma_f^2}) \tag{5.1}$$

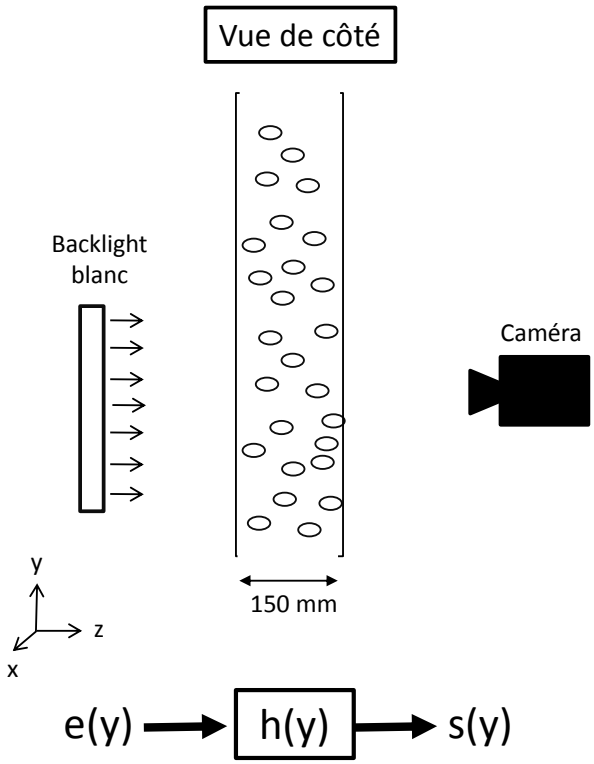


FIGURE 5.4 – Dispositif expérimental pour la modélisation de la distorsion optique induite par l'essaim de bulles

avec k_f le coefficient d'absorption du filtre et σ_f l'étalement du filtre. Nous vérifierons *a posteriori* que cette hypothèse de modélisation de l'essaim de bulles par un filtre gaussien est valide et nous pourrons alors caractériser les propriétés d'étalement et d'atténuation du filtre en fonction de la fraction volumique.
Le coefficient d'absorption du filtre k_f est calculé grâce à la formule analytique suivante :

$$k_f = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} s(y)dy}{\int_{-\infty}^{+\infty} e(y)dy} \tag{5.2}$$

Quant à l'étalement σ_f, il est adapté afin que l'écart entre le signal mesuré expérimentalement et le signal calculé par convolution soit minimal. De plus, lors du calcul du produit de convolution $e * h$, nous approximons le profil d'intensité lumineuse émis par le backlight par un échelon équivalent dans le but de limiter la formation de bruit lors de l'opération de convolution.

La figure 5.5 confronte les profils d'intensité lumineuse enregistrés par la caméra à travers le nuage de bulles (en noir) avec ceux calculés par convolution (en gris) du filtre

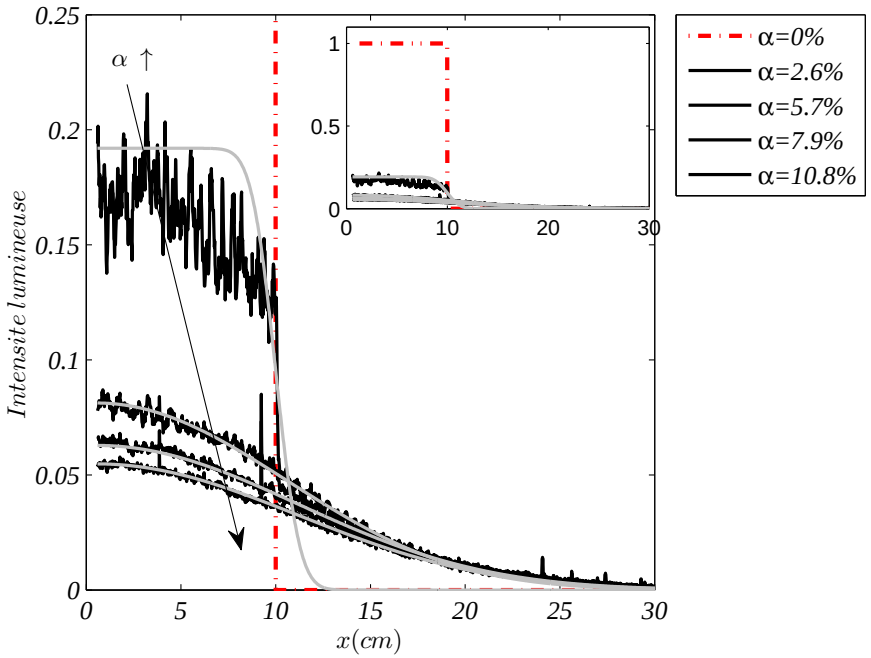
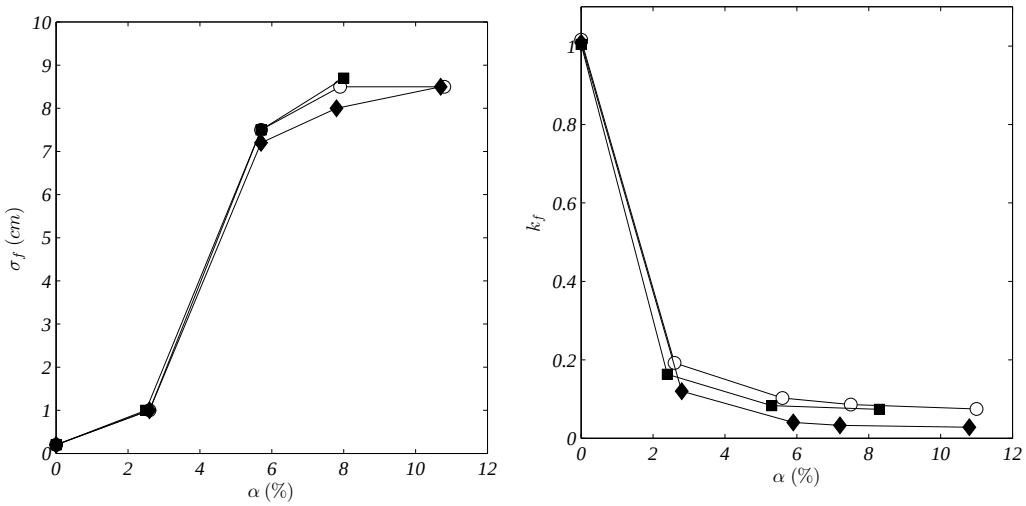


FIGURE 5.5 – Modélisation optique de l'essaim de bulles par un filtre gaussien. En noir : Profils d'intensité lumineuse filmés à travers le nuage de bulles et adimensionnés par l'intensité d'émission du backlight. En gris : Profils calculés par convolution avec le profil d'émission du backligth et adimensionnés par l'intensité d'émission du backlight.

gaussien avec le profil d'intensité lumineuse d'émission du backlight 200×200 mm^2 à la puissance maximale (en pointillé rouge). Au-delà d'une fraction volumique de 5%, le modèle de filtre gaussien donne des résultats tout à fait satisfaisants alors que pour les fractions volumiques plus faibles, ce modèle ne fonctionne plus. En effet, ce modèle est valable uniquement si chaque faisceau lumineux traversant l'essaim est dévié par un nombre suffisant de bulles. De ce fait, pour que le modèle de filtre gaussien fonctionne, il faut soit que la fraction volumique de gaz soit suffisamment élevée, soit que l'épaisseur de bulles à traverser soit suffisamment importante. Travaillant à épaisseur constante, la fraction volumique est un paramètre clé.
La figure 5.6 indique les valeurs d'étalement σ_f et d'absorption k_f du filtre en fonction de la fraction volumique et ce pour les 3 tailles différentes de backlight à la puissance maximale. Nous pouvons remarquer que les valeurs d'étalement et d'absorption sont identiques quelle que soit la taille du backlight (50×50 mm^2, 120×160 mm^2 et 200×200 mm^2) et quelle que soit l'intensité du backlight de 20% à 100% de la puissance maximale (résultats non présentés sur la figure). De plus, pour $\alpha > 7\%$, les propriétés d'étalement et d'absorption semblent devenir indépendants de la fraction volumique. Il est important de noter que ces valeurs d'étalement et d'absorption ne peuvent pas être utilisées pour les expériences de mélange car l'épaisseur de bulles traversée est différente. En effet, le panneau de LED est placé à l'arrière de la cuve alors que le traceur est injecté au milieu de la cuve. Or nous avons vu précédemment que l'épaisseur de bulles traversée peut jouer un rôle dans la pos-

sibilité de modéliser ou non l'essaim de bulles par un filtre gaussien.



(a) Etalement (b) Absorption

FIGURE 5.6 – Propriétés d'étalement et d'absorption du filtre gaussien qui modélise l'essaim de bulles. Backlight 20×20 cm^2 (○). Backlight 12×16 cm^2 (■). Backlight 5×5 cm^2 (⧫))

Nous avons aussi essayé de convoluer par un filtre gaussien la distribution spatiale 1D de la lumière fluorescée émise par la sphère remplie de colorant en l'absence de bulles dans le but de retrouver les profils d'intensité de lumière fluorescée enregistrés par la caméra à travers l'essaim. Sur la figure 5.7, nous présentons les profils horizontaux d'intensité de lumière fluorescée enregistrés par la caméra au travers de l'essaim. Ces profils ont été calculés à partir de l'image obtenue en retenant la valeur médiane du niveau de gris de chaque pixel sur 150 images. Il est clairement visible qu'au-delà de $\alpha > 7\%$, chaque faisceau de lumière fluorescée a été suffisamment dévié par les bulles pour que le profil enregistré par la caméra soit lisse au point de ne plus pouvoir localiser la sphère. Au contraire pour les fractions volumiques plus faibles, il est encore possible de localiser la sphère de colorant par la présence d'un très fort gradient. Quelle que soit la fraction volumique considérée, il n'a pas été possible de trouver le paramètre d'étalement du filtre gaussien permettant de retrouver les profils 1D de lumière fluorescée enregistrée par la caméra à travers le nuage de bulles. En effet, pour y parvenir, il fallait mettre un paramètre d'étalement tellement grand que nous ne parvenions alors plus à retrouver le maximum d'intensité de lumière fluorescée enregistrée par la caméra. Cela indique donc que dans ce cas-ci, il n'est pas possible de modéliser l'essaim de bulles par un filtre gaussien. Cela est sûrement dû au fait que dans le cas de l'émission par fluorescence, la lumière émise est isotrope et non directionnelle.

Un filtre gaussien représente bien la distorsion optique induite par un essaim de bulles dans le cas d'une lumière directionnelle pourvu que la fraction volumique soit suffisante. Dans le cas des expériences de mélange, la lumière fluorescée est émise de manière isotrope dans toutes les directions. La distorsion induite par l'essaim de bulles ne peut plus être décrite correctement par un filtre gaussien. Nous avons donc développé un traitement de

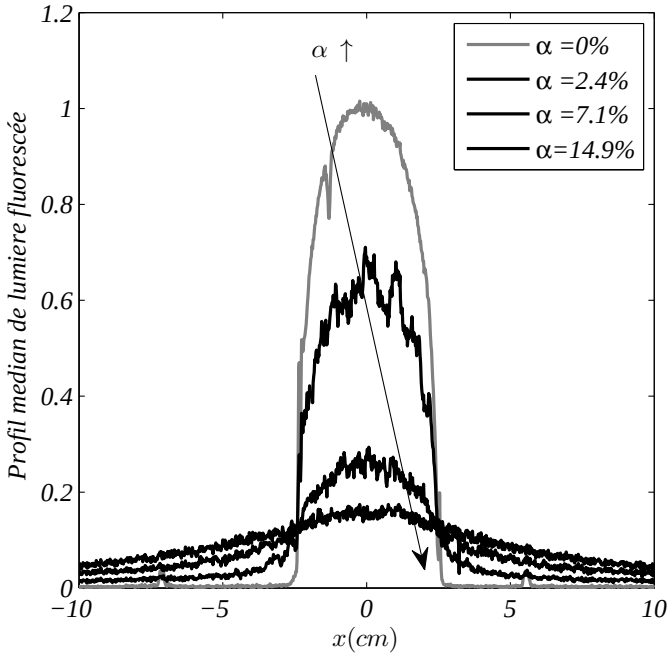


FIGURE 5.7 – Profil horizontal de fluorescence émis par la sphère positionnée en z =0 cm vu au travers de l'essaim de bulles pour différentes fractions volumiques.

l'image qui n'est pas basé sur la convolution pour accéder à la distribution spatiale de lumière fluorescée émise par le traceur.

5.3 Correction du signal de fluorescence

Nous avons vu précédemment que les bulles ont pour effet d'étaler et d'occulter la lumière fluorescée émise par le colorant. Dans le but de s'affranchir de ces deux effets, nous avons mis au point un traitement de l'image capable de restituer au mieux la distribution spatiale de lumière fluorescée émise par le traceur à partir du signal de lumière fluorescée enregistré par la caméra. Nous présenterons tout d'abord le principe général du traitement de l'image puis nous l'appliquerons au cas de la sphère. Cela permettra à la fois de valider notre traitement de l'image mais aussi d'en connaître ses limites. Nous le mettrons ensuite en œuvre sur des expériences de mélange.

5.3.1 Principe général du traitement de l'image

Le traitement de l'image que nous avons développé traite simultanément les problèmes d'étalement et d'occultation de la lumière fluorescée émise par le traceur. Mais avant de commencer à expliquer le traitement de l'image, il est nécessaire de détailler les propriétés de la lumière fluorescée enregistrée par la caméra en distinguant la lumière émise dans la zone de présence du colorant de celle à l'extérieur de la zone de présence du traceur. Dans la zone de présence du colorant (figure 5.3 b), il y a en permanence de la lumière fluorescée qui

est émise par le traceur et qui atteint le capteur CCD de la caméra. En effet, cette lumière n'est que partiellement occultée par les bulles. Au contraire, en dehors de la zone de présence du traceur (figure 5.3 c), la lumière fluorescée enregistrée par la caméra est localisée à cause des réflexions sur la surface des bulles. Ces réflexions et occultations ont la particularité d'avoir des temps caractéristiques liés au temps de passage des bulles, c'est-à-dire de l'ordre de $T = d/V = 0.01$ s où V la vitesse d'ascension des bulles et d le diamètre des bulles.

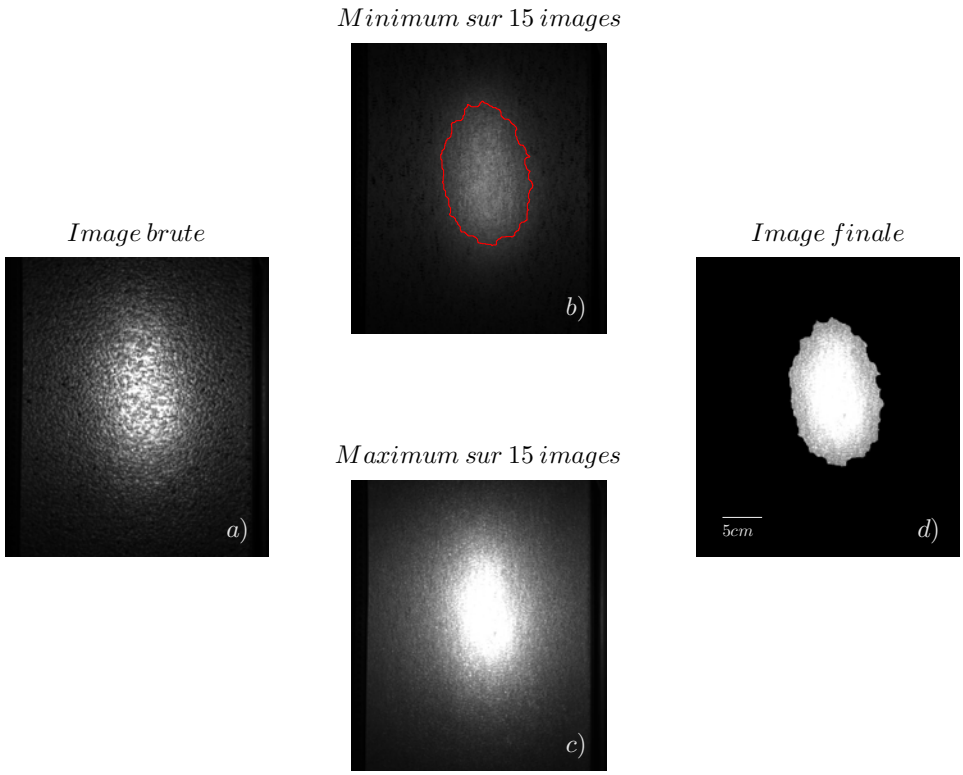


FIGURE 5.8 – Principe général du traitement de l'image appliqué à l'image brute pour $\alpha = 6.8\%$

Pour déterminer le contour de la zone de présence du traceur et ainsi traiter le problème d'étalement du signal de fluorescence, nous calculons, pour chaque instant, le minimum de niveau de gris de chaque pixel sur 15 images (figure 5.8 b) et l'appelons I_{min}. Ce nombre de 15 images est discuté ultérieurement. Cela permet de séparer la zone où la caméra enregistre par intermittence de la lumière fluorescée de celle où la lumière fluorescée est permanente. Nous appliquons alors un seuil afin de créer une image binaire, appelée masque, dont les pixels valent 1 dans la zone de présence du traceur et 0 en dehors. Ce masque révèle le contour de la zone de présence du traceur (en rouge sur la figure 5.8 b).
Une fois que le colorant est localisé et les réflexions multiples extérieures éliminées, le problème d'occultation de la lumière fluorescée émise par l'essaim de bulles peut être appréhendé. Pour cela, nous calculons à chaque instant le maximum de niveau de gris de chaque pixel sur 15 images, appelé I_{max} (figure 5.8 c). Cela permet de conserver uniquement les niveaux de lumière fluorescée les plus élevés, qui correspondent aux rayons lumineux

les moins déviés ou occultés par les bulles. Pour finir, le masque est appliqué à l'image du maximum I_{max} (figure 5.8 d). Nous obtenons l'image traitée finale, I_f, qui représente la distribution spatiale de la lumière fluorescée émise par le traceur.
Etant donné que nous nous intéressons exclusivement aux profils 1D de la distribution de colorant dans les directions horizontale et verticale, nous calculons le maximum spatial sur une bande d'épaisseur 21 pixels soit 3.36 mm. Cette bande reste petite devant les dimensions de la distribution de colorant puisque celle-ci a une taille minimale de l'ordre de 5 cm. Cette dernière opération permet d'améliorer la qualité des profils.

Les paramètres ajustables du traitement de l'image sont au nombre de trois et sont *1)* le nombre d'images sur lequel nous calculons le maximum de niveau de gris de chaque pixel, *2)* celui sur lequel nous calculons le minimum et *3)* le seuil qui permet la localisation du colorant. Les nombres d'images sur lesquels nous calculons le maximum et le minimum sur chaque pixel doivent être suffisamment petits pour mesurer la propagation du colorant mais suffisamment grands pour s'affranchir des évènements singuliers du type réflexions et occultations. Ces évènements singuliers, liés aux passages des bulles ont des temps caractéristiques de l'ordre de $T = d/V = 0.01$s et sont aussi à relier à la fraction volumique de gaz. Dans le cas des fortes fractions volumiques, il est nécessaire d'avoir un grand nombre d'images pour le calcul du maximum et du minimum de niveau de gris sur chaque pixel car il y a statistiquement plus d'évènements singuliers. Un temps de 0.3 s, correspondant à 15 images, s'est révélé être un bon compromis pour le calcul du maximum et du minimum de chaque pixel. De plus, filmant à 49 Hz avec la caméra, cela permet bien de mesurer l'étalement du colorant puisque celui-ci se propage de 3 à 6 cm^2/s selon la fraction volumique. Le seuil appliqué à I_{min} pour calculer le masque sert à déterminer le niveau de gris en deçà duquel la mesure du minimum sur 15 images n'est plus pertinente. Sur la figure 5.9 qui montre des profils horizontaux de I_{min} pour la sphère remplie de colorant à différentes fractions volumiques (figure 5.9 a) et à différentes concentrations (figure 5.9 b), nous voyons clairement qu'il est nécessaire d'adapter le seuil en fonction de la concentration et de la fraction volumique. En premier lieu, nous pouvons constater que le rehaussement des niveaux de gris de I_{min} à l'extérieur de la sphère dépend fortement de la fraction volumique (figure 5.9 a). A $\alpha = 2.4\%$, le profil de I_{min} présente très peu de rehaussement en dehors de la sphère localisée entre $x = -2.5$ et 2.5 cm alors qu'à $\alpha = 14.9\%$, le profil de I_{min} devient lisse car l'étalement en dehors de la sphère est très important. Quant à l'intensité de la lumière fluorescée émise par la sphère (figure 5.9 b), elle fixe l'amplitude du profil de I_{min} et doit donc être aussi prise en compte dans le calcul du seuil. Il est important de noter qu'à cause du phénomène d'absorption que nous aborderons plus tard, la sphère remplie à une concentration de 5×10^{-3} mol/L émet moins de lumière fluorescée que celle à 5×10^{-5} mol/L. Néanmoins, l'intensité de la lumière fluorescée n'a pas d'effet sur l'étalement du profil de I_{min} en dehors de la sphère. En effet, sur la figure 5.10, nous avons tracé les mêmes profils de I_{min} que précédemment, à $\alpha = 7.1\%$ et pour différentes concentrations, mais ils sont adimensionnés par la valeur maximale de I_{min}. Nous constatons alors que l'étalement du profil de I_{min} est identique quelle que soit la concentration. Cela signifie que l'étalement du profil de I_{min} dépend uniquement de la fraction volumique. Son amplitude est fixée par l'intensité de la lumière fluorescée. Le seuil peut donc être calculé de la manière suivante : $seuil = A(\alpha) \times max(I_{min})$ avec A un coefficient ne dépendant que de la fraction volumique et prenant en compte le fait que plus la fraction volumique est importante, plus l'étalement du profil de I_{min} est grand. Le coefficient A a été déterminé à partir d'une série de tests

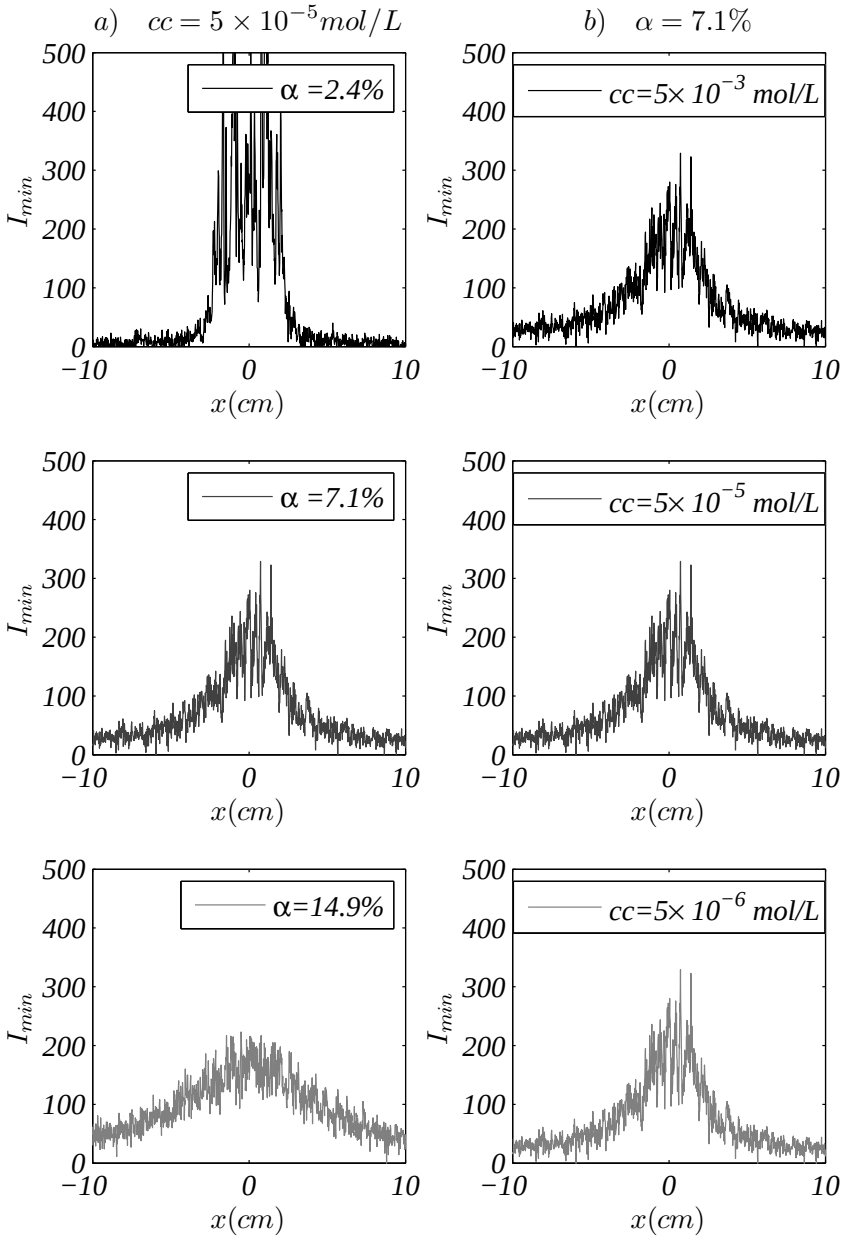


FIGURE 5.9 – Profil horizontal du minimum de niveau de gris sur 15 images dans le cas de la sphère pour une concentration fixée à 5×10^{-5} mol/L pour différents α (à gauche) et à $\alpha = 7.1\%$ fixé pour différentes concentrations (à droite)

sur la sphère remplie de fluorescéine qui sera présenté ultérieurement (figure 5.11). Puis, le coefficient A a été extrapolé sur une gamme de fraction volumique continue dans le but de pouvoir traiter l'ensemble des expériences de mélange (figure 5.11).

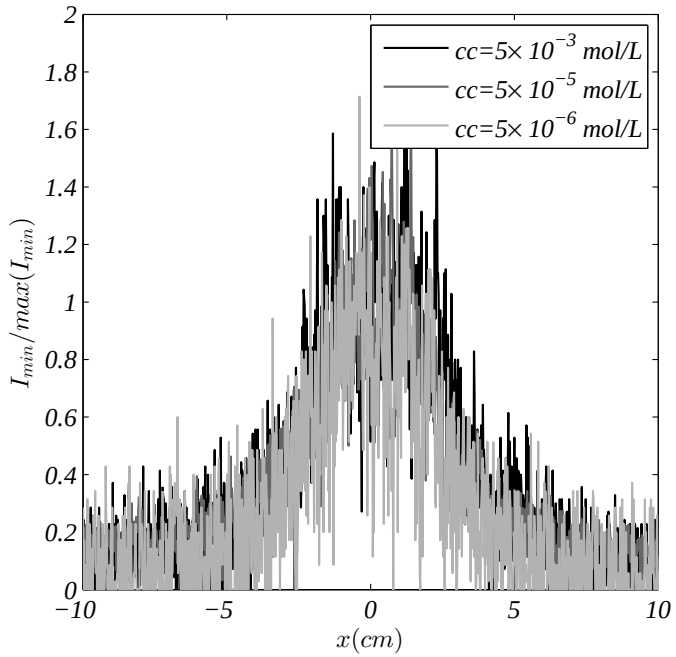


FIGURE 5.10 – Profil horizontal du minimum de niveau de gris sur 15 images adimensionné par son maximum dans le cas de la sphère à $\alpha = 7.1\%$ fixé pour différentes concentrations

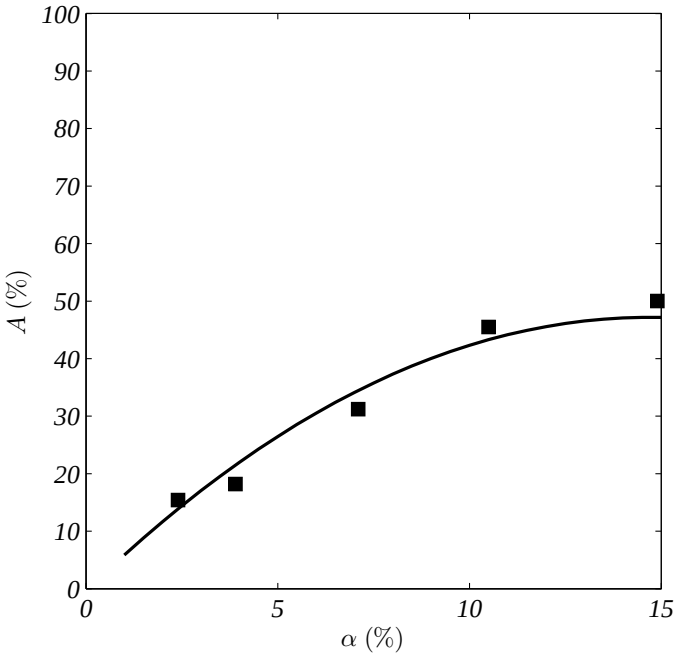


FIGURE 5.11 – Calcul du seuil. Détermination du seuil à parir de l'étude sur la sphère (■). Extrapolation du seuil (Trait continu).

5.3.2 Validation du postraitement

Le traitement présenté précédemment a été validé par une série de tests réalisés sur la sphère remplie de colorant pour des fractions volumiques allant jusqu'à 15 %. Puis, le traitement de l'image a été appliqué aux expériences de mélange.

Validation du traitement de l'image sur le cas de la sphère

Dans le but de valider le traitement de l'image, nous l'appliquons au cas de la fluorescence émise par la sphère en faisant varier l'intensité de lumière fluorescée. Pour cela, nous pouvons faire varier soit la concentration de la solution contenue dans la sphère, soit la puissance lumineuse des néons. Nous avons décidé de ne présenter que les résultats concernant les variations de la concentration, les résultats obtenus en faisant varier la puissance des néons UV étant similaires. Cela nous permettra de connaitre les limites du traitement de l'image que nous avons développé en terme d'intensité de lumière fluorescée.
Nous présentons sur la figure 5.12 trois cas de validation correspondant à trois concentrations différentes, à savoir la concentration injectée dans les expériences de mélange (figure 5.12 a), un centième (figure 5.12 b) et un millième de celle-ci (figure5.12 c). Dans les trois cas présentés, la puissance d'excitation des néons n'a pas été modifiée ; elle est à puissance maximale. Afin de faciliter la comparaison entre les différents cas de validation, l'ensemble des profils a été adimensionné par le maximum de lumière fluorescée émise par la sphère remplie à la concentration de 5×10^{-5} mol/L, à pleine puissance d'éclairement et $\alpha = 0\%$. Dans le cas b, la sphère est remplie avec de la fluorescéine concentrée à $cc = 5 \times 10^{-5}$ mol/L et la distribution spatiale de lumière fluorescée est une demie-ellipse. Nous constatons qu'avant traitement (cas 1b), la présence des bulles atténue de manière conséquente l'intensité de lumière fluorescée émise par le traceur. Seuls quelques faisceaux de lumière fluorescée émis parviennent à traverser l'essaim dans le cas des faibles fractions volumiques, d'où la présence de pics. Après traitement de l'image (cas 2b), nous parvenons à restituer la distribution spatiale de la lumière fluorescée émise par la sphère pour les fractions volumiques allant jusqu'à 10.5% incluses. A $\alpha = 14.9\%$, l'essaim est trop opaque pour que des faisceaux de lumière fluorescée traversent l'essaim de bulles en 0.3 s, durée sur laquelle nous prenons le maximum de niveau de gris sur chaque pixel. Jusqu'à 15% de fraction volumique, nous parvenons néanmoins à déterminer le contour de la sphère. Dans le cas a (figure 5.12 a), la sphère est remplie de fluorescéine à la concentration injectée lors des expériences de mélange (5×10^{-3} mol/L). La distribution spatiale de lumière fluorescée émise par la sphère est alors étonnante. Elle présente des niveaux de lumière fluorescée plus faibles au centre que sur les bords de la sphère ; l'intensité de lumière fluorescée au centre de la sphère étant alors plus de deux fois plus faible que dans le cas b. La forme de ce profil est due au phénomène d'absorption au sein de la sphère. Les rayons lumineux émis par les néons UV sont absorbés par la solution fortement concentrée et ne parviennent pas jusqu'au cœur de la sphère. La solution en périphérie est donc excitée par une lumière plus intense et émet plus de lumière fluorescée. Cet effet d'absorption sera discuté ultérieurement. Nous pouvons constater sur la figure 5.12 2a que, par traitement de l'image, nous parvenons à restituer la distribution spatiale de lumière fluorescée émise par la sphère, bien que les niveaux d'intensité de lumière fluorescée recherchés soient plus faibles que dans le cas b et ce pour toutes les fractions volumiques inférieures à 15%. Pour finir, nous allons traiter un cas bien plus critique, celui de la sphère remplie à une concentration 1000 fois diluée par rapport à celle injectée (figure 5.12 c). La distribution spatiale de lumière émise

par la sphère est bien visible (figure 5.12 1c) et les niveaux d'intensité de lumière fluorescée à restituer sont alors cinq fois plus faibles que dans le cas b. C'est pour cette raison que pour les fractions volumiques supérieures à 8%, le traitement de l'image ne parvient plus à restituer la distribution spatiale de lumière fluorescée émise Par conséquent, nous ne pouvons pas tracer ce profil. Néanmoins, pour les fractions volumiques plus faibles que 8%, le traitement de l'image parvient à bien reconstituer la distribution spatiale de lumière fluorescée émise.

Le traitement de l'image que nous avons développé permet de reconstituer la distribution spatiale de la lumière fluorescée émise par la sphère sur une large gamme de concentrations et de fractions volumiques. L'unique cas critique que nous avons pu observer est celui de la sphère remplie à une concentration de 5×10^{-6} mol/L. Or, nous injectons la solution de fluorescéine à une concentration de 5×10^{-3} mol/L. Il faut donc que la distribution initiale de colorant voit son rayon initial croitre d'un rapport 10 pour atteindre ces niveaux de concentration. Nous ne mesurons l'étalement de la distribution de colorant que lorsque celle-ci fait une dizaine de centimètres. Nous pouvons estimer que nous atteignons très rarement une concentration de 5×10^{-6} mol/L , éventuellement en fin d'expérience. Notre traitement de l'image est par conséquent adapté à notre configuration expérimentale.

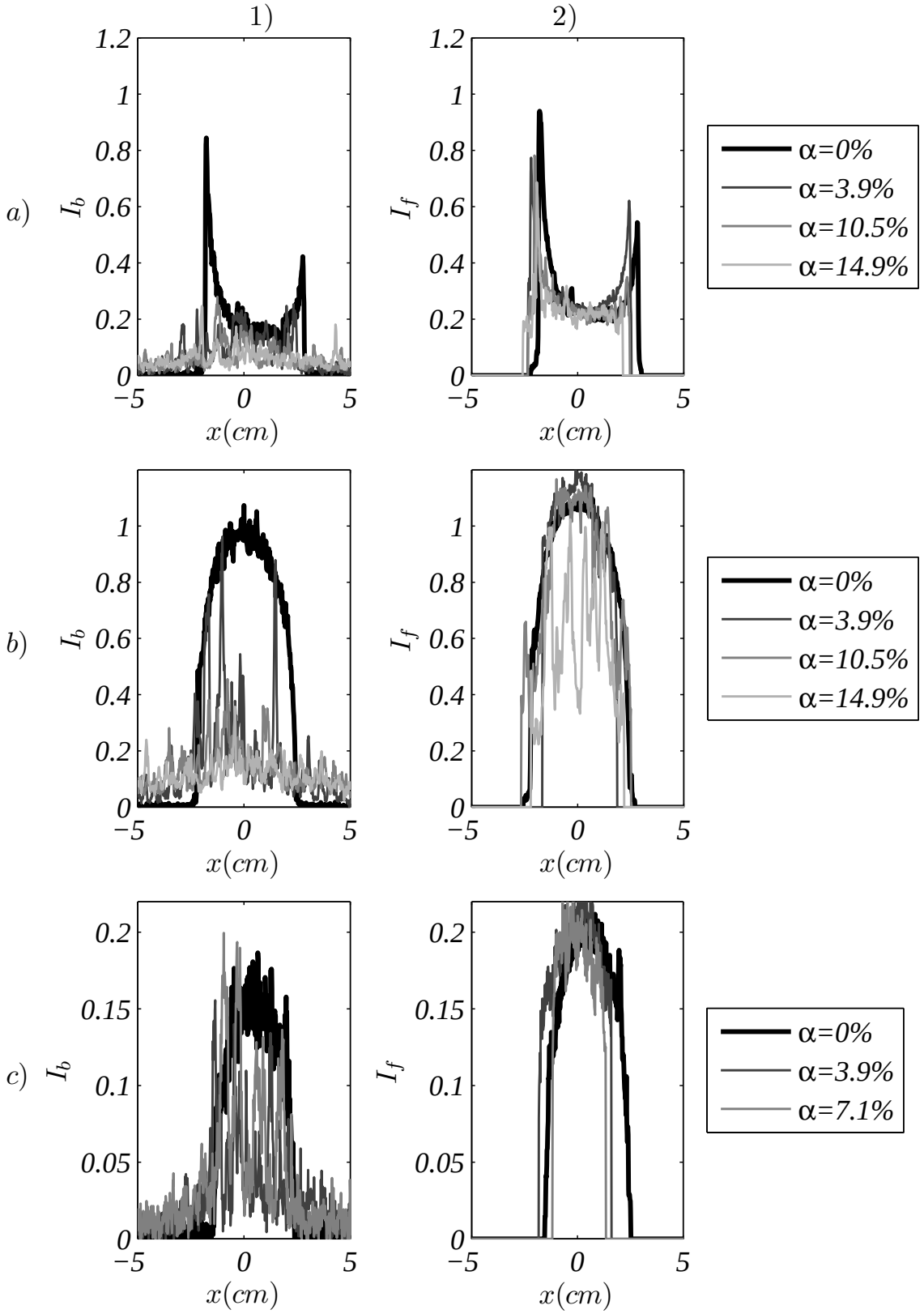


FIGURE 5.12 – Validation du postraitement sur le cas de la sphère a) pour une concentration de 5×10^{-3} mol/L avec 12 néons, b) pour une concentration de 5×10^{-5} mol/L avec 12 néons, c)pour une concentration de 5×10^{-6} mol/L avec 12 néons. 1) Profil de fluorescence horizontal avant traitement. 2)Profil de fluorescence après traitement de l'image.

Illustration du traitement de l'image sur des expériences de mélange

Notre traitement de l'image ayant été validé sur des cas de fluorescence au sein d'une sphère remplie de colorant, nous appliquons ce même traitement sur une image issue d'une expérience de mélange à $\alpha = 3.0\%$ et 10 secondes après le début de l'injection. La figure 5.13 compare une image instantanée enregistrée par la caméra appelée I_b (figure 5.13 a) à celle obtenue après traitement notée I_f (figure 5.13 b). Nous présentons aussi sur le graphique de la figure 5.13 les profils horizontaux de lumière fluorescée enregistrée par la caméra avant traitement (I_b), les profils horizontaux de lumière fluorescée après traitement (I_f) et celui du minimum glissant sur 15 images I_{min}. La proximité des maxima de I_b avec la courbe de I_f sur toute la largeur des profils présentés montre que la procédure de traitement permet d'approcher I_f de manière robuste.
La limitation de l'information sur I_f à la zone définie par le masque entre -7.5 et $+7.5$ cm sur la figure 5.13 c) n'est pas génante dans notre étude. En effet, nous utilisons cette information robuste et tronquée en espace pour déterminer l'étalement du colorant par une procédure de lissage par une solution modèle et non pas par une procédure de calcul direct de la variance des concentrations qui demanderait de connaître la concentration en périphérie.

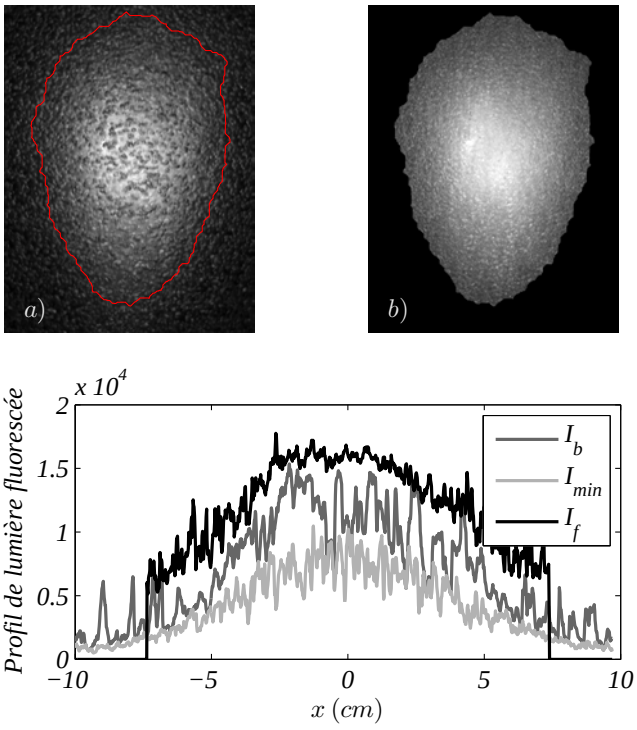


FIGURE 5.13 – Illustration du traitement de l'image dans le cas d'une expérience de mélange à $\alpha = 3.0\%$, 10 secondes après le début de l'injection

5.4 Méthodologie de mise en œuvre de la fluorescence

La lumière fluorescée émise par un traceur fluorescent dépend à la fois de sa concentration et de l'intensité de la source lumineuse d'excitation. Pour certaines gammes de concentration et d'intensité, la lumière fluorescée est proportionnelle à la concentration. Il est alors aisé de mesurer la distribution de concentration à partir du champ de lumière fluorescée émise. Nous avons donc réalisé différents étalonnages dans le but de mieux connaître la réponse de notre mesure à différentes variations de la concentration et de l'intensité d'éclairement des néons. Nous avons aussi vérifié que l'éclairement émis par les néons UV est homogène dans la cuve, ce qui permet d'assurer que les variations d'intensité de lumière fluorescée observées sont uniquement dues à des variations de la distribution de la concentration. L'ensemble des résultats présentés par la suite est obtenu par fluorescence au sein de la sphère sans bulles. Les images sont calculées en prenant la valeur médiane des niveaux de gris de chaque pixel sur 150 images.

5.4.1 Étalonnage en concentration

Pour commencer, nous avons réalisé un étalonnage en concentration à la puissance lumineuse des néons maximale. Pour cela, nous avons rempli la sphère avec différentes concentrations de solution de fluorescéine, allant de la concentration injectée à un millième de celle-ci. Sur la figure 5.14, nous avons tracé les profils de lumière fluorescée émise par la sphère adimensionnés par le maximum de lumière fluorescée émise par la sphère remplie avec une concentration de 5×10^{-5} mol/L. Pour les concentrations les plus élevées (à savoir 5×10^{-3} et 5×10^{-4} mol/L), nous observons un minimum d'intensité de lumière fluorescée au centre de la sphère, alors que l'intensité de lumière fluorescée est maximale sur les bords de la sphère. Ceci est la signature du phénomène d'absorption de l'énergie des néons UV par la fluorescéine. L'énergie des néons UV ayant été partiellement absorbée, la fluorescéine au cœur de la sphère est moins excitée et fluoresce moins, voire pas du tout. Notons que l'absorption dépend à la fois de la concentration et de l'épaisseur de fluide traversé. Plus l'épaisseur de fluide et la concentration augmentent, plus le phénomène d'absorption devient important. C'est pour cette raison que nous observons un minimum de lumière fluorescée plus faible lorsque la concentration augmente. Au contraire, pour des concentrations inférieures ou égales à 5×10^{-5} mol/L, le phénomène d'absorption n'est plus présent. Pour de telles concentrations, la quantité de lumière fluorescée émise par le traceur est donc proportionnelle à la concentration lorsque l'intensité lumineuse est constante.

Il faut néanmoins garder à l'esprit que le phénomène d'absorption est largement plus important dans le cas de la sphère que dans le cas des expériences de mélange. En effet, le colorant au sein de la sphère est confiné dans un volume. De plus, nous étudions le mélange 10 secondes après le début de l'injection. Il y a donc déjà eu en partie dilution. Nous avons choisi la concentration injectée au-delà du seuil de linéarité dans le but de pouvoir mesurer le phénomène physique étudié sur une gamme de temps pertinente, c'est-à-dire après oubli des conditions d'injection, et suffisamment longue. Nous avons veillé à effectuer les mesures sur les intervalles de temps où l'absorption n'affecte pas la mesure. Sur ces intervalles de temps, nous mesurons donc la distribution de concentration à partir de la distribution de lumière fluorescée.

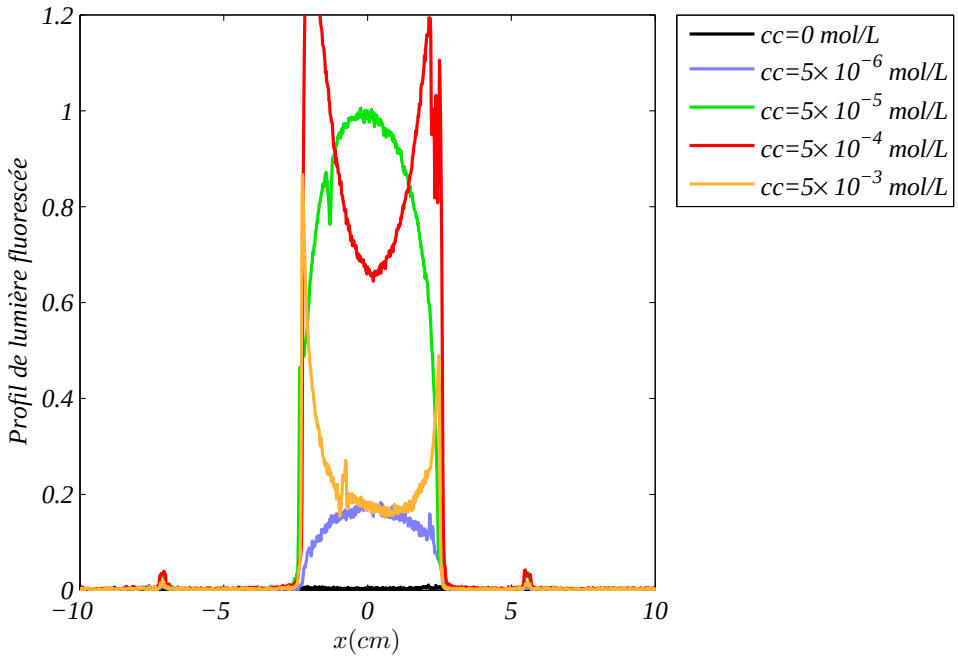


FIGURE 5.14 – Etalonnage en concentration réalisé dans le cas de la sphère éclairée avec 12 néons en l'absence de bulles. Profils de fluorescence adimensionnés par le maximum de fluorescence émis par la sphère remplie à une concentration de 5×10^{-5} mol/L.

5.4.2 Étalonnage en intensité

L'étalonnage en intensité a été réalisé avec la sphère remplie à une concentration de 5×10^{-5} mol/L en éteignant certains néons car il est impossible de diminuer la puissance des néons. Ainsi, nous avons varié le nombre de néons entre 0 et 12 néons en laissant allumés 4 néons (sur la figure 5.2, les numéros 1/6/7/12), puis 6 néons (les numéros 1/3/6/7/10/12) et 8 néons (les numéros 1/2/4/6/7/9/11/12). Nous avons veillé à conserver une symétrie de l'éclairement pour réaliser ce test.
La figure 5.15 montre le maximum de lumière fluorescée émise au centre de la sphère adimensionné par le maximum de lumière fluorescée émise par la sphère éclairée par 12 néons et ce en fonction du nombre de néons. Nous voyons que l'intensité de lumière fluorescée est linéaire en fonction de la puissance lumineuse des néons UV.

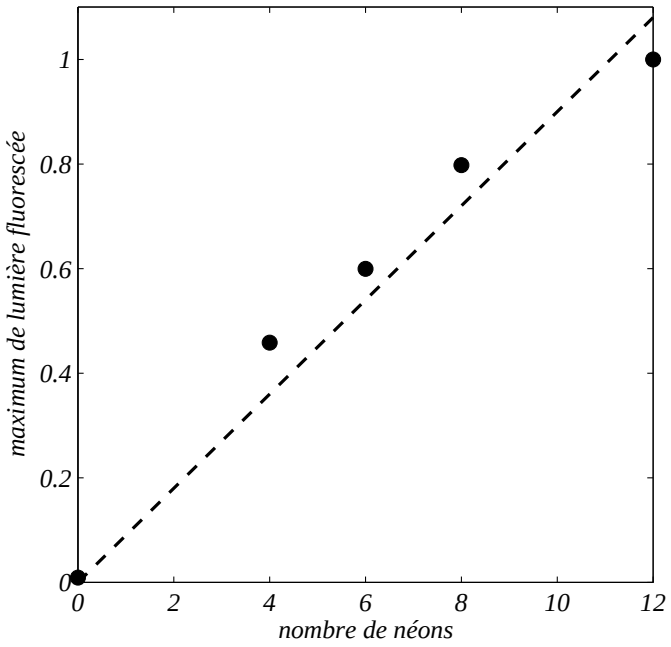
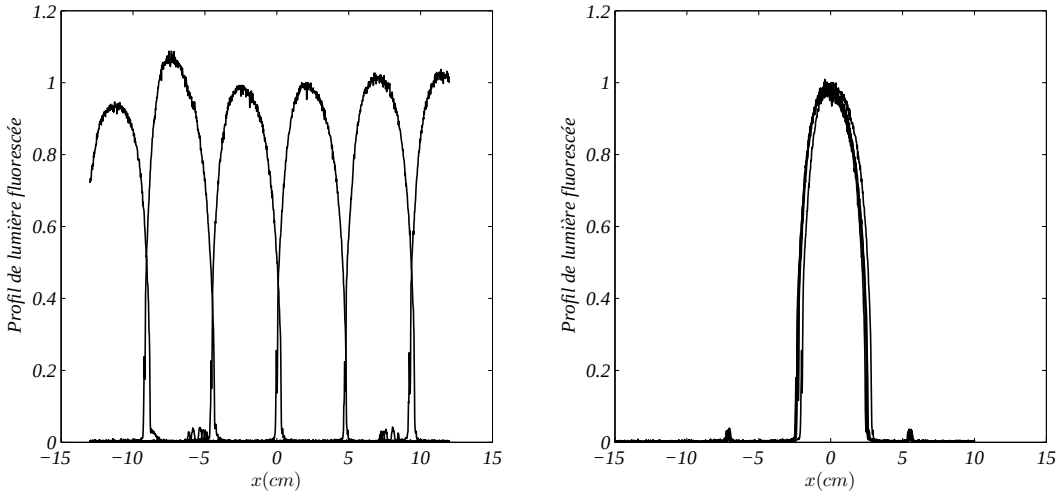


FIGURE 5.15 – Etalonnage en intensité réalisé sur le cas de la sphère remplie à une concentration de 5×10^{-5} mol/L en l'absence de bulle. Maximum de fluroscence émis par la sphère adimensionné par le maximum de fluorescence de la sphère excitée avec 12 néons.

5.4.3 Homogénéité de l'éclairement



(a) Sphère en $(x, z = 0)$ (b) Sphère en $(x = 0, z)$

FIGURE 5.16 – Homogénéite de l'éclairement par néons UV. Profil horizontal de fluorescence dans le cas de la sphère à une concentration de 5×10^{-5} mol/L en l'absence de bulles pour différentes positions du centre de la sphère.

Nous avons également vérifié que l'éclairement produit par les 12 néons est homogène dans le volume de la cuve. Pour cela, nous avons rempli la sphère d'une solution de fluorescéine à 5×10^{-5} mol/L et nous l'avons déplacée dans le plan horizontal, selon la longueur x en $z = 0$ (5.16 a) et selon la profondeur z en $x = 0$ (figure 5.16 b). Nous observons que les profils de lumière fluorescée sont quasiment identiques quelle que soit la position de la sphère dans le plan horizontal. L'éclairement en volume par les néons UV est bien homogène, ce qui garantit que les variations de lumière fluorescée mesurées correspondent à des variations de concentration et non d'intensité lumineuse d'éclairement.

5.5 Conclusion du chapitre

L'analyse du mélange dans un essaim de bulles tridimensionnel est réalisée par fluorescence induite par des néons UV en éclairant en volume la colonne à bulles sur une hauteur de 600 mm. De la fluorescéine sodium est injectée au sein de l'écoulement par un capillaire. La lumière fluorescée émise par le traceur est filmée par une caméra. Mais la présence des bulles a pour effet d'occulter et de réfléchir la lumière fluorescée émise par le traceur. La mesure de l'intensité lumineuse de la lumière fluorescée enregistrée par la caméra n'est alors pas représentative de la distribution spatiale de la lumière fluorescée émise par le traceur. Nous avons donc mené une étude approfondie de l'effet des bulles sur une source lumineuse dont la distribution spatiale sans bulles est connue. Nous avons ainsi montré que dans le cas d'une lumière directionnelle parallèle à la direction de la caméra (lumière issue d'un panneau LED par exemple), l'essaim de bulles peut être modélisé par un filtre gaussien dont l'étalement et l'absorption dépendent uniquement de la fraction volumique. Néanmoins, ce modèle de filtre est valable uniquement si les faisceaux lumineux incidents sont déviés un nombre suffisant de fois par les bulles. Cela implique que ce modèle est valable pour des fractions volumiques ou des épaisseurs de bulles suffisamment importantes (de l'ordre de 5% dans notre cas). Dans le cas d'une source lumineuse isotrope (fluorescence au sein de la sphère), le modèle de filtre gaussien ne fonctionne plus. Il a alors fallu développer un traitement de l'image basé sur une autre méthode que la convolution.
Le traitement de l'image que nous avons développé est basé sur l'aspect intermittent et local des réflexions et des occultations de la lumière fluorescée émise par le traceur. Nous regardons simultanément le maximum et le minimum glissant des niveaux de gris sur 0.3 s, ce qui permet de remonter à la distribution spatiale de la lumière fluorescée émise par le traceur. Ce traitement de l'image est valable pour une vaste gamme de concentrations (de la concentration à l'injection à un centième de celle-ci) et de fractions volumiques (de 0 à 15%). En deçà d'un millième de la concentration injectée, il devient difficile de connaître la distribution spatiale de traceur avec notre système de mesure. Néanmoins, en évaluant la concentration finale à partir de la concentration initiale et de la distribution spatiale finale, nous pouvons estimer que ces niveaux de concentration ne sont atteints qu'à des temps plus longs que ceux sur lesquels nous faisons notre mesure de propagation du colorant.
Dans le but de faire des mesures de propagation du traceur sur des gammes de temps suffisamment longues après l'oubli des conditions d'injection, nous injectons le traceur à une concentration de 5×10^{-3} mol/L. A cette concentration, le phénomène d'absorption de l'énergie lumineuse des néons par la fluorescéine est important et l'intensité de lumière fluorescée émise par le traceur n'est plus proportionnelle à la concentration. Cependant, nous arriverons à déterminer expérimentalement le temps à partir duquel le phénomène d'absorption devient négligeable grâce à un bilan matière. Par la suite, nous mesurons donc

la propagation du colorant une fois l'injection de traceur oubliée et l'absorption négligeable et ce tant que la concentration reste suffisamment élevée (supérieure 5×10^{-6} mol/L) pour que notre mesure soit suffisamment précise. Nous arrivons ainsi à mesurer la propagation du colorant sur 15 s.

Chapitre 6

Description statistique du mélange dans un essaim de bulles homogène

Dans ce chapitre, nous nous intéressons au mélange d'un traceur passif dans un essaim de bulles homogène en ascension dans de l'eau au repos dans lequel les sillages des bulles en interaction produisent toute l'agitation au sein du liquide. Deux mécanismes de mélange sont pressentis comme présents dans cet écoulement. Le premier est le transport par les sillages des bulles, mécanisme que nous avons étudié en cellule de Hele-Shaw. Nous avons montré précédemment qu'en cellule de Hele-Shaw, ce mécanisme de mélange par capture dans les sillages est fortement intermittent et convectif. Le second mécanisme de mélange présent dans cette configuration homogène tridimensionnelle est le mélange par la turbulence générée par les interactions de sillages. Nous cherchons dans ce chapitre à déterminer la contribution de chaque mécanisme sur le mélange et plus particulièrement à voir si un des mécanismes est dominant. Cela nous permettra de répondre à la question suivante : le mélange dans un écoulement à bulles tridimensionnel est-t-il diffusif ? Nous proposerons aussi une modélisation physique du mélange adaptée aux écoulements diphasiques. Avant tout, nous allons nous intéresser à la solution théorique d'une équation de diffusion d'un point source dans un milieu tridimensionnel de taille finie avec des conditions aux limites de flux nul. La comparaison des expériences à ce modèle permettra en effet d'analyser si le mélange se fait par diffusion.

6.1 Equation de transport d'un soluté par diffusion dans un milieu fini 3D

La solution d'une équation de diffusion d'un point source dans un milieu infini est analytiquement connue. Nous commencerons par la présenter. Puis nous examinerons la solution analytique obtenue pour les conditions aux limites de flux nul dues à la présence de parois comme dans l'expérience de mélange dans notre cuve. Pour finir, nous utiliserons cette solution analytique pour calculer un champ de concentration vu par la caméra qui a une vision intégrée de ce champ. Cela nous permettra de vérifier qu'une telle vision peut donner accès aux diffusivités horizontale et verticale.

6.1.1 Solution de l'équation de diffusion d'un scalaire à partir d'un point source en milieu infini 3D

Considérons un point source localisé en (x_0,y_0,z_0) qui injecte une masse M de traceur à un instant $t_0 = 0$ s dans un domaine infini. Le traceur s'étale par diffusion et le champ de concentration du traceur à chaque instant t ($t > t_0$) est décrit par une gaussienne tridimensionnelle dont l'équation est la suivante (Socolofsky& Jirka, 2005) :

$$c(x;y;z;t) = \frac{M}{(4\pi t)^{3/2}\sqrt{D_{xx}D_{yy}D_{zz}}} exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{4D_{xx}t} - \frac{(y-y_0)^2}{4D_{yy}t} - \frac{(z-z_0)^2}{4D_{zz}t}\right) \tag{6.1}$$

D_{xx}, D_{yy} et D_{zz} sont les coefficients de diffusion dans la direction x, y et z.

6.1.2 Solution de l'équation de diffusion d'un traceur à partir d'un point source avec des conditions aux limites de flux nul

Lors de nos expériences de mélange dans la colonne à bulles, nous injectons en un point un traceur passif dans un milieu fini de dimensions 300×150×1000 mm^3. Les parois verticales imposent des conditions aux limites de flux nul dans les deux directions horizontales. Dans la direction verticale, nous considérons que le domaine est infini vue la hauteur de la colonne. Nous allons donc nous intéresser à l'effet des conditions de flux nul aux parois sur un problème de diffusion d'un point source.

Pour simplifier la démarche, nous ne considérons dans un premier temps qu'une seule dimension, la direction x et une seule paroi située à w_x du point source localisé en x_0.
En milieu infini, c'est-à-dire en l'absence de paroi, le champ de concentration est donné par l'équation suivante (figure 6.1) :

$$c(x;t) = \frac{M}{\sqrt{4\pi t D_{xx}}} exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{4D_{xx}t}\right) \tag{6.2}$$

avec D_{xx} le coefficient de diffusion dans la direction x.
En présence d'une seule paroi située à w_x, la condition limite de flux nul peut être traitée par un problème équivalent contenant deux points sources situés de part et autre de la paroi, à x_0 et x_0+2w_x (figure 6.1) car le problème de diffusion d'une espèce est un problème linéaire. La solution du problème avec une seule condition de flux nul est donc la somme des deux distributions de concentration qui sont solution de l'équation de diffusion en milieu infini et dont les points sources sont localisés en x_0 et $x_0 + 2w_x$. La solution s'écrit ainsi (Socolofsky& Jirka, 2005) :

$$c(x;t) = \frac{M}{\sqrt{4\pi t D_{xx}}} exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{4D_{xx}t} - \frac{(x-(x_0+2w_x))^2}{4D_{xx}t}\right) \tag{6.3}$$

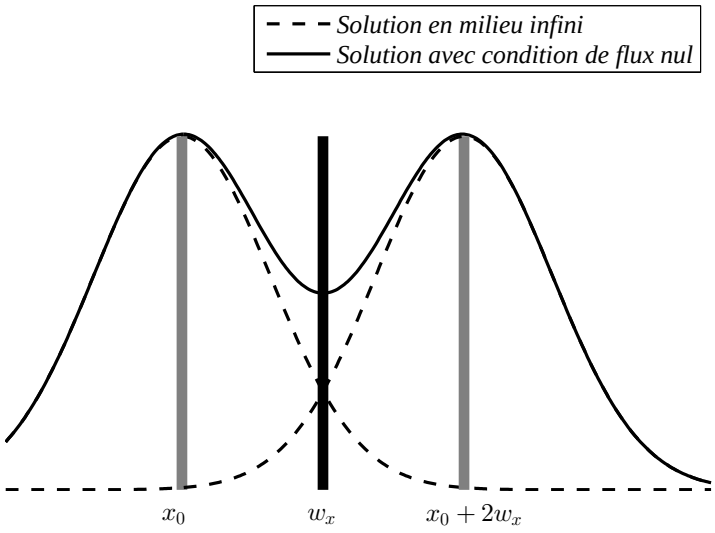


FIGURE 6.1 – Solution de l'équation de diffusion d'un scalaire à partir d'un point source avec une condition limite de flux nul à la paroi

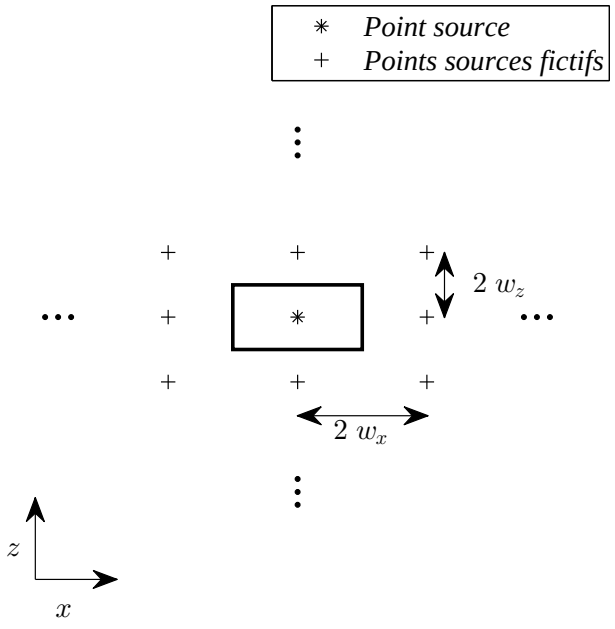


FIGURE 6.2 – Problème équivalent de la solution de l'équation de diffusion avec des conditions aux limites de flux nul dans le plan horizontal

Dans un domaine confiné entre plusieurs parois, la solution est obtenue en sommant plusieurs sources virtuelles. La distribution spatiale des sources virtuelles est fixée par la position des parois et permet de satisfaire la condition de flux nul pour chaque source virtuelle.

Revenons à notre configuration expérimentale dans laquelle nous avons quatre conditions de flux nul dans le plan horizontal (x, z). Le problème de diffusion équivalent est la somme d'une infinité de points sources virtuels dans le plan horizontal (figure 6.2) localisés en $x = 2nw_x$ et $z = 2mw_z$ $((n; m) \in \mathbb{N})$ dont chaque champ de concentration est la solution de l'équation de diffusion en milieu infini (équation 6.1). Nous supposons que le coefficient de diffusion est identique dans le plan horizontal ($D_{xx} = D_{zz}$ et $D_{xz} = 0$) et l'injection de traceur se fait en (0,0,0). La solution de l'équation de diffusion d'un scalaire en 3D dans notre configuration s'écrit de la manière suivante :

$$C(x;y;z;t) = \frac{M}{(4\pi t)^{3/2} D_{xx}\sqrt{D_{yy}}} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} \sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} exp\left(-\frac{(x+2nw_x)^2}{4D_{xx}t} - \frac{y^2}{4D_{yy}t} - \frac{(z+2mw_z)^2}{4D_{xx}t}\right) \tag{6.4}$$

avec w_x=15 cm (resp w_z=7.5 cm) la distance entre le point d'injection et le mur dans la direction x (resp. z), et M la masse de traceur injectée.

6.1.3 Champ de concentration intégré dans une direction

La caméra filme un champ de concentration 2D dans le plan $(x; y)$ et a une vision intégrée sur la profondeur z. De ce fait, le champ de concentration $c(x; y; t)$ filmé par la caméra est l'intégrale du champ de concentration tridimensionnel $C(x; y; z; t)$ donné par l'équation 6.4 selon la profondeur z entre $-w_z$ et w_z.
Il faut donc calculer :

$$c(x;y;t) = \int_{-w_z}^{w_z} C(x;y;z;t)dz \tag{6.5}$$

Après calculs, nous trouvons :

$$c(x;y;t) = \frac{M}{4\pi t\sqrt{D_{xx}D_{yy}}} \underbrace{\lim_{m\to+\infty}\left(erf\left(\frac{(2m+1)w_z}{\sqrt{4D_{xx}t}}\right)\right)}_{=1} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} exp\left(-\frac{(x+2nw_x)^2}{4D_{xx}t} - \frac{y^2}{4D_{yy}t}\right)$$

$$c(x;y;t) = \frac{M}{4\pi t\sqrt{D_{xx}D_{yy}}} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} exp\left(-\frac{(x+2nw_x)^2}{4D_{xx}t} - \frac{y^2}{4D_{yy}t}\right) \tag{6.6}$$

Nous avons ainsi accès à la distribution de concentration analytique au sein de la cuve telle qu'elle est perçue par la caméra. L'estimation du coefficient de diffusion dans les directions horizontale et verticale ne se trouve en aucun cas influencée par la diffusion dans la direction z.

6.2 Mesure de coefficients de diffusion effectifs horizontal et vertical

En approximant la distribution spatiale de concentration du colorant par la solution analytique de l'équation de diffusion bidimensionnelle en milieu confiné (équation 6.6), nous pouvons mesurer à la fois l'évolution temporelle de l'étalement de la distribution de colorant dans les directions horizontale et verticale et celle de la masse mesurée. L'information sur l'étalement de la distribution spatiale de colorant nous permet d'estimer les coefficients de diffusion alors que celle sur la masse mesurée nous renseigne sur la plage temporelle pendant laquelle le phénomène d'absorption par le traceur est négligeable.

6.2.1 Evolution temporelle de la position du barycentre de la distribution de colorant

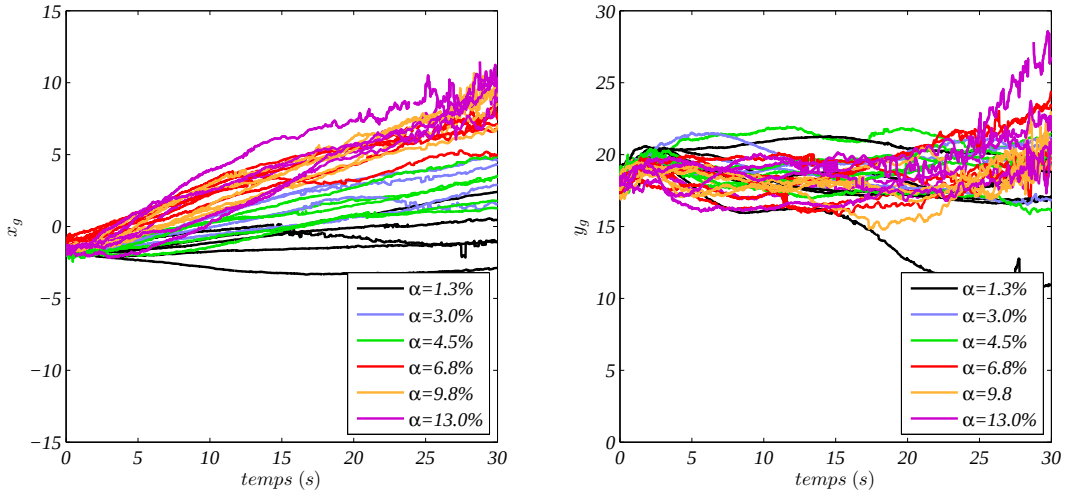
Avant d'approximer la distribution spatiale de colorant par la solution de l'équation de diffusion bidimensionnelle en milieu confiné, nous cherchons à localiser le barycentre de la distribution spatiale de colorant. Celui-ci est calculé uniquement sur les niveaux de gris dont les iso-contours sont fermés dans notre champs d'observation. Sur la figure 6.3, nous avons représenté l'évolution temporelle de la position du barycentre de la distribution spatiale de colorant dans les directions horizontale (figure 6.3 a) et verticale (figure 6.3 b). Nous constatons que dans la direction horizontale, le barycentre a tendance à se déplacer de manière systématique vers la droite, à savoir dans la direction des $x > 0$. L'origine de cette déviation systématique demeure mal connue mais ne provient pas d'une inhomogénéité de fraction volumique puisque l'homogénéité de l'écoulement a été vérifiée jusqu'à une fraction volumique de 9%. Pour l'ensemble des fractions volumiques considérées, ce déplacement reste néanmoins inférieur à 5 cm sur les gammes de temps où nous faisons les mesures de mélange. En effet, nous faisons les mesures de mélange de 15 à 30 s environ pour les fractions volumiques inférieures à 5% et entre 10 et 20 s pour les fractions volumiques plus élevées. Quant à la direction verticale, le mouvement du barycentre n'excède pas 5 cm et il n'y a pas de mouvement moyen du barycentre dans la direction verticale vers le haut.

6.2.2 Approximation de la distribution spatiale de concentration par la solution de l'équation de diffusion bidimensionnelle en milieu confiné

Une fois le barycentre de la distribution spatiale de concentration du colorant estimé, nous mesurons l'étalement de cette distribution dans le référentiel du barycentre en faisant l'hypothèse que la distribution spatiale de concentration expérimentale est la solution de l'équation de diffusion bidimensionnelle en milieu confiné (équation 6.6). Le champ de lumière fluorescée émis par le traceur f est égal à :

$$f(x;y) = \frac{M}{2\pi\sigma_x\sigma_y} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} exp\left(-\frac{(x+2nw_x)^2}{2\sigma_x^2} - \frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \tag{6.7}$$

avec σ_x et σ_y les écarts-types de la solution de l'équation de diffusion en milieu confiné dans la direction horizontale (resp. verticale) et M la masse de traceur mesurée. Les écarts-types σ_x et σ_y et la masse M sont les trois paramètres qui sont ajustés à la distribution



(a) Direction horizontale

(b) Direction verticale

FIGURE 6.3 – Evolution temporelle de la position du barycentre de la distribution spatiale de colorant

de concentration expérimentale à chaque instant.

Pour plus de souplesse lors de l'approximation de la distribution de concentration expérimentale par l'équation 6.7, nous avons préféré travailler sur des profils 1D de concentration pris dans les directions horizontale et verticale et passant par le barycentre. Dans un premier temps, nous estimons l'étalement de la distribution de concentration dans la direction horizontale σ_x en approximant le profil horizontal de fluorescence par l'équation :

$$f(x; y = 0) = A_x \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} exp\left(-\frac{(x + 2nw_x)^2}{2\sigma_x^2}\right) \tag{6.8}$$

L'équation 6.8 présente une somme infinie de points sources dans la direction horizontale. Nous avons testé la convergence de cette somme pour estimer le nombre de points sources à considérer dans notre cas. Pour cela, nous avons calculé l'aire sous la courbe de l'équation 6.8 en prenant A_x = 1 et en faisant varier le nombre de points sources (n =0, 1, 3 et 10) et l'écart-type (σ_x =5, 10, 15 et 20 cm). Les aires obtenues sont présentées dans le tableau 6.1. Dans nos expériences de mélange, nous mesurons des écarts-types dans la direction horizontale inférieurs à 15 cm sur toute la durée de l'expérience. Nous pouvons donc ne prendre que 3 points sources au total, c'est à dire $-1 \leq n \leq 1$.

		$n = 0$	$n = 1$	$n = 3$	$n = 10$
σ_x (en cm)	5	12.49	12.53	12.53	12.53
	10	21.71	25.06	25.06	25.06
	15	25.66	37.49	37.59	37.59
	20	27.40	48.90	50.1326	50.1326

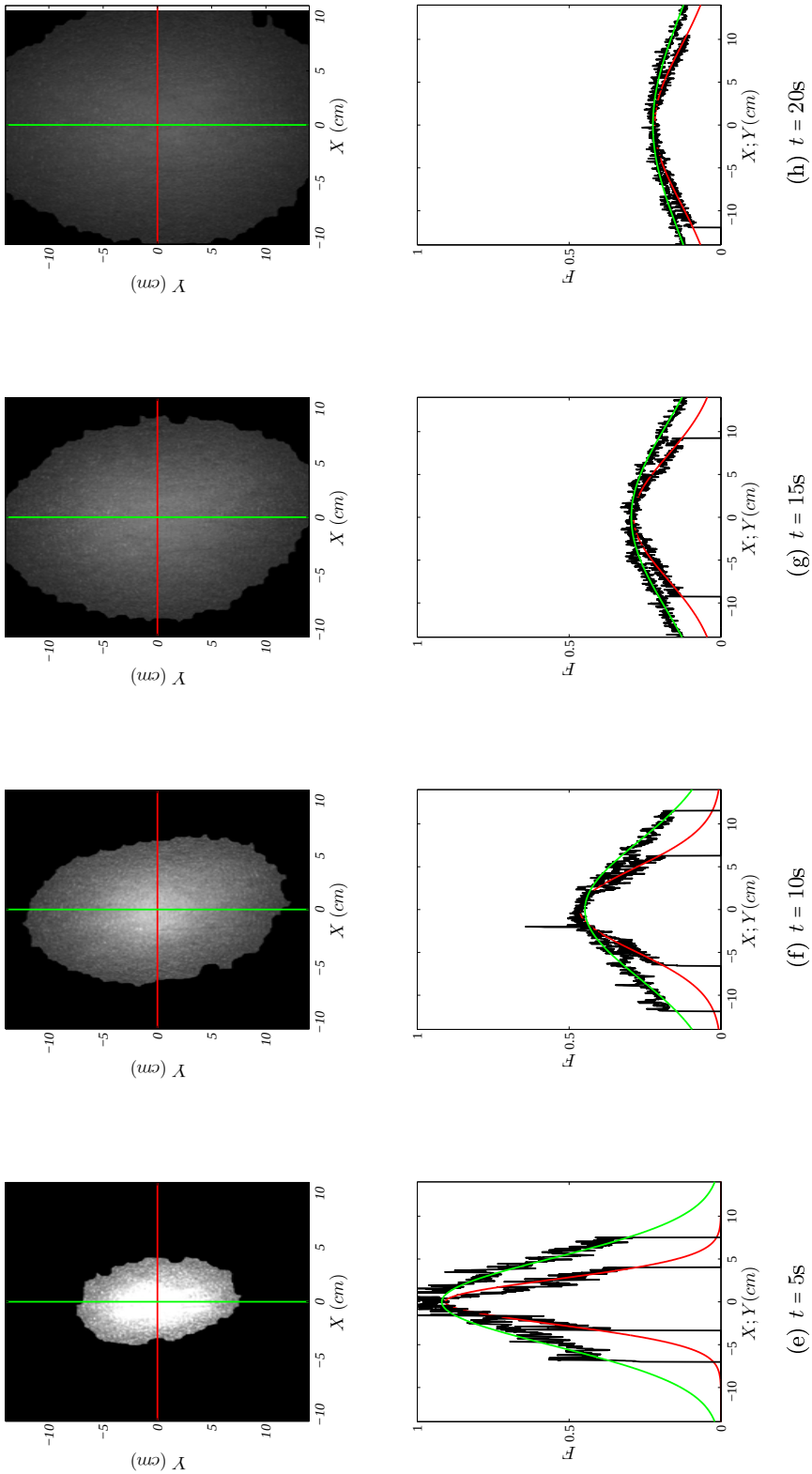
TABLE 6.1 – Convergence de l'aire sous la courbe définie par l'équation 6.8 pour différents nombres de points sources (en cm^2)

Une fois l'étalement horizontal estimé, nous pouvons déterminer l'étalement vertical σ_y en ajustant le profil vertical de niveau de gris par l'équation :

$$f(x = 0; y) = A_y exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right)\left(1 + 2exp\left(-\frac{(2w_x)^2}{2\sigma_x^2}\right)\right) \tag{6.9}$$

Il est important de noter que les coefficients A_x et A_y sont ajustés indépendamment selon les directions horizontale et verticale. Nous vérifions *a posteriori* qu'ils sont égaux.

La figure 6.4 représente des profils de lumière fluorescée expérimentaux dans les directions horizontale et verticale (en noir) ainsi que leur approximation par la méthode précédente (en vert : direction verticale, en rouge : direction horizontale) à différents instants compris entre 5 et 20 secondes après le début de l'injection pour α=4.5 %. Les niveaux de fluorescence sont adimensionnés par le maximum de lumière fluorescée mesuré à $t = 5$ s. Nous vérifions ainsi la qualité de l'approximation de la distribution de concentration par la solution l'équation de diffusion bidimensionnelle en milieu confiné dans les directions horizontale et verticale sur l'ensemble de la gamme de temps étudiée. Le mélange dans un écoulement à bulles est donc un processus diffusif. Il est important de souligner que dans la direction verticale, la distribution de lumière fluorescée est symétrique entre le haut et le bas. Cela indique que, contrairement à ce que nous avons observé en cellule de Hele-Shaw, les sillages transportent peu et ont une faible contribution sur le mélange. Deux diffusivités, l'une horizontale et l'autre verticale, permettront donc de caractériser le mélange dans un essaim de bulles homogène tridimensionnel. Pour les estimer, nous allons nous intéresser aux écarts-types horizontal et vertical de la distribution spatiale de la concentration.



(e) t = 5s (f) t = 10s (g) t = 15s (h) t = 20s

FIGURE 6.4 – Evolution temporelle de la distribution de concentration à partir de 5 s après l'injection pour α=4.5%. En noir : Profils de concentration expérimentaux. En couleur : Approximation par la solution de diffusion en milieu confiné dans les directions verticale (en vert) et horizontale (en rouge)

6.2.3 Evolution temporelle de la masse de colorant mesurée

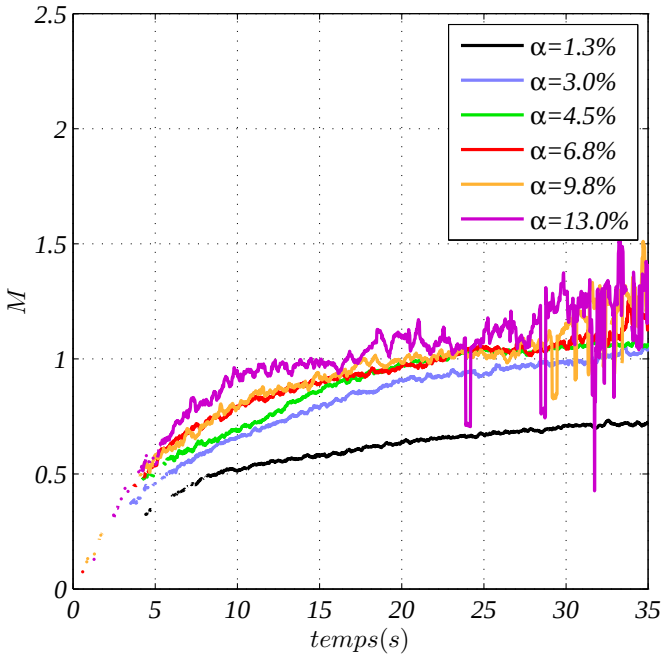
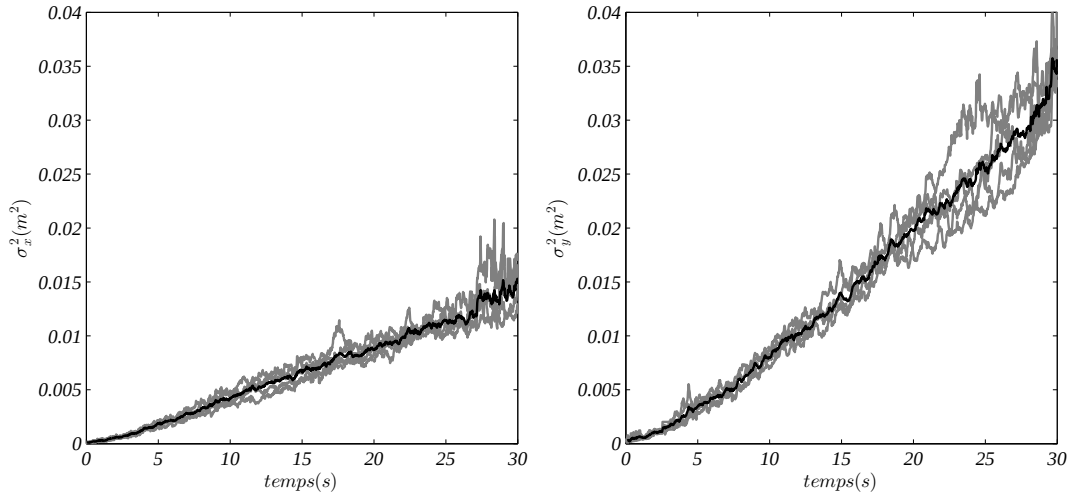


FIGURE 6.5 – Evolution temporelle de la masse mesurée moyennée sur l'ensemble des essais

A partir de l'approximation précédente, nous pouvons estimer la masse de fluorescéine de la manière suivante : $M = k_e \frac{(A_x + A_y)}{2} 2\pi\sigma_x\sigma_y$ avec k_e est un coefficient d'étalonnage. La figure 6.5 montre l'évolution de la masse mesurée au cours du temps pour des fractions volumiques allant de 1.3% à 13.0% de gaz. Durant les 10 s après le début de l'injection, il est difficile de calculer la masse. En effet, l'équation 6.6 est théoriquement valable pour une injection ponctuelle à un instant donné. Or la distribution de colorant que nous formons initialement par l'injection a une forme complexe et a une largeur finie de l'ordre de 5 cm. Il faut donc attendre environ 10 s pour que la mémoire de l'injection soit oubliée et pour que l'équation 6.6 s'applique. Par ailleurs, les phénomènes d'absorption sont particulièrement importants au début, lorsque le colorant est fortement concentré. Cela fausse la mesure de la masse en la minimisant sur une gamme de temps plus ou moins longue selon la fraction volumique. Plus la fraction volumique est faible, plus le colorant reste concentré longtemps et plus le phénomène d'absorption perdure longtemps. Au contraire, pour les fractions volumiques plus élevées, la distribution de colorant se déploie très rapidement et donc l'absorption devient très vite négligeable.
Une fois l'injection oubliée et les phénomène d'absorption négligeables, la masse mesurée est quasiment conservée pendant environ 15 secondes et ce pour toutes les fractions volumiques comprises entre α=1.3% à α=13.0%. Cela nous assure que sur ces gammes de temps, la lumière fluorescée émise par le traceur est bien proportionnelle à la concentration. Par conséquent, nous veillerons à ne considérer que ces gammes de temps. Il est aussi important

de noter que la mesure de la masse est absolue. Elle est donc plus sensible aux perturbations, ce qui a pour conséquence la présence de bruit plus ou moins important sur la mesure de la masse. Cela ne perturbera néanmoins pas la mesure de la diffusivité effective car celle-ci est calculée à partir de l'évolution temporelle de la variance de la solution de l'équation de diffusion en milieu confiné qui est une mesure relative et indépendante de la mesure de la masse.

6.2.4 Évolution temporelle des variances de la distribution de concentration dans les directions horizontale et verticale

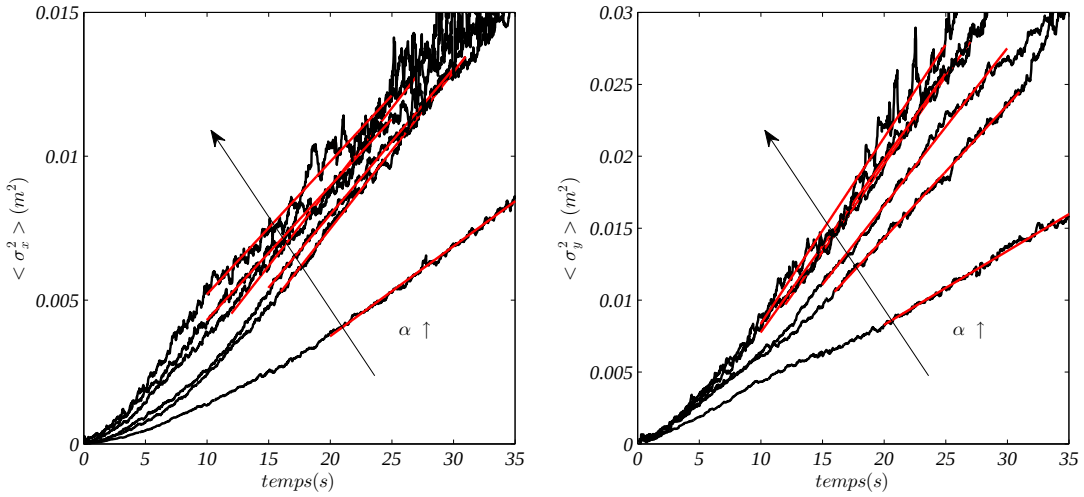


(a) Direction horizontale (b) Direction verticale

FIGURE 6.6 – Convergence statistique des variances horizontale et verticale de la distribution de concentration pour α=9.8%. Essais indépendants (en gris). Moyenne sur tous les essais (en noir)

Nous allons désormais nous intéresser à l'évolution temporelle de l'étalement du colorant de la distribution de colorant et en particulier aux variances horizontale et verticale de celle-ci. Sur la figure 6.6, nous avons représenté l'évolution temporelle des variances verticale et horizontale de la distribution de concentration pour α=9.8% avec en gris les essais individuels et en noir la moyenne sur l'ensemble des essais réalisés. Le faible écart entre les évolutions temporelles des différents essais montre que le phénomène que nous mesurons est reproductible. Nous pouvons donc réaliser la moyenne statistique sur l'ensemble des essais, notée $< \cdot >$. Nous travaillerons par la suite sur les signaux moyennés sur cinq essais.

Sur la figure 6.7, nous avons tracé les évolutions temporelles des variances moyennées sur tous les essais pour différentes fractions volumiques comprises entre 1.3% et 13.0%. Il s'avère que pour n'importe quelle fraction volumique, la variance évolue linéairement en fonction du temps. Le mélange induit par les bulles peut donc être représenté par une diffusivité effective. Cela est en accord avec le fait qu'à chaque instant, la distribution spatiale de traceur peut être approximée par la solution de l'équation de diffusion en milieu confiné. Néanmoins, nous avons vu précédemment qu'il est important de considérer uniquement la plage temporelle où la masse mesurée se conserve et où le signal est d'une



(a) Direction horizontale

(b) Direction verticale

FIGURE 6.7 – Evolution temporelle de la variance pour α=1.3%, 3.0%, 4.5%, 6.8%, 9.8%, 13.0%

qualité suffisante. Nous nous limitons donc à étudier l'évolution temporelle des variances horizontale et verticale sur des plages temporelles de 15 secondes. Les régressions linéaires réalisées sur des gammes de temps différentes selon la fraction volumique de gaz sont représentées en rouge sur la figure 6.7. A partir de ces approximations linéaires, nous déterminerons les coefficients de diffusion. Nous pouvons déjà noter l'anisotropie de la diffusivité que révèlent les pentes contrastées des évolution des variances en fonction du temps dans les directions horizontale et verticale.

6.2.5 Évolution du coefficient de diffusion avec la fraction volumique de gaz

La théorie lagrangienne du mélange d'un traceur injecté depuis une source ponctuelle dans un écoulement monophasique indique que le coefficient de diffusion peut être calculé de la manière suivante (Taylor, 1921, Hinze, 1959) :

$$D_{jj} = \frac{1}{2}\frac{d}{dt}\left(\overline{y_j^2}(t)\right) \tag{6.10}$$

où $\overline{y_j^2}$ représente la variance des déplacements successifs des molécules de traceur dans la direction j. Dans notre cas, nous souhaitons estimer les coefficients de diffusion à partir des étalements relatifs de la distribution spatiale de concentration. Le coefficient de diffusion que nous mesurons peut être calculé à partir de l'expression :

$$D_{jj} = \frac{1}{2}\frac{d}{dt}\left(\sigma_j^2(t)\right) \tag{6.11}$$

avec σ_j l'écart-type de la distribution spatiale de concentration dans la direction j. Les variances horizontale et verticale évoluant linéairement par rapport au temps, nous pouvons en déduire que le mélange induit par les bulles dans un écoulement homogène est un processus diffusif. Les coefficients de diffusion peuvent donc être estimés à partir des pentes des variances horizontale et verticale, et en particulier des régressions linéaires présentées sur la figure 6.7.

La figure 6.8 représente les coefficients de diffusion effectifs horizontal et vertical mesurés dans un écoulement à bulles homogène en fonction de la fraction volumique. A en juger par les valeurs de diffusivité effective liées au mélange par les bulles qui sont de l'ordre de 5×10^{-4} m^2/s, le mélange induit par les bulles est bien plus efficace que le mélange par diffusion moléculaire qui est de l'ordre de 5×10^{-10} m^2/s. Néanmoins, cette efficacité du mélange induit par les bulles reste modérée puisque si nous considérons une colonne à bulles de hauteur $H = 1$ m, il faut alors plus de $t = \frac{H^2}{D} \approx 15$ min pour obtenir l'homogénéisation du traceur au sein de la cuve. Le deuxième phénomène remarquable est l'anisotropie du mélange entre la direction horizontale et verticale, avec un rapport d'anisotropie entre les deux directions de l'ordre de 2. Nous n'avons cependant pas observé de dissymétrie du mélange dans la direction verticale entre le bas et le haut. Cela permet d'affirmer que le mélange par transport dans les sillages n'est pas prépondérant. Un autre résultat tout aussi important est la saturation du coefficient de diffusion effectif en fonction de la fraction volumique au-delà d'une certaine fraction volumique, aussi bien dans les directions horizontale que verticale.

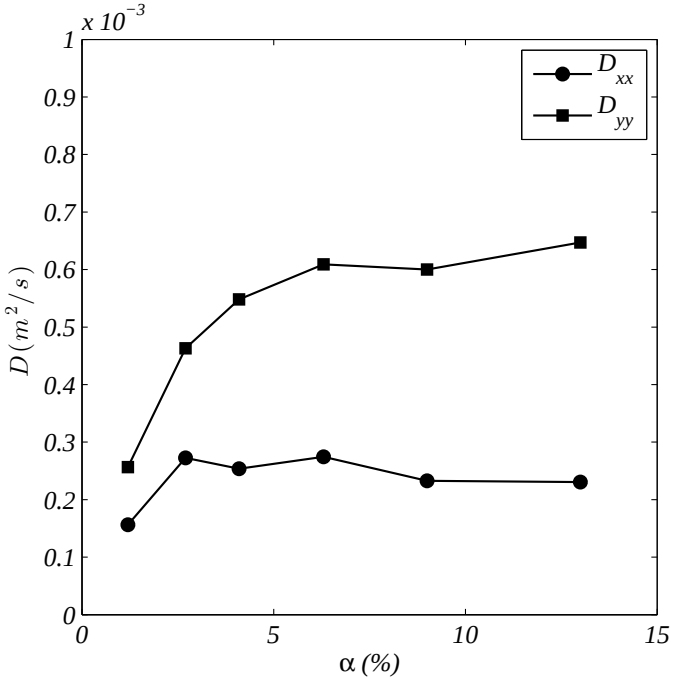


FIGURE 6.8 – Evolution des diffusivités effectives expérimentales dans les directions verticale et horizontale en fonction de la fraction volumique

6.3 Vers une interprétation physique du coefficient de diffusion diphasique

Précédemment, nous avons mis en évidence trois propriétés importantes du mélange induit par les bulles. Premièrement, le mélange dans un essaim de bulles homogène est diffusif puisque nous pouvons à la fois approximer la distribution de concentration par la solution de l'équation de diffusion en milieu fini à chaque instant et que la variance de la distribution de concentration évolue linéairement avec le temps. Deuxièmement, le mélange est anisotrope entre les directions horizontale et verticale, mais reste symétrique entre le haut et le bas. Pour finir, nous avons pu voir qu'au-delà d'une certaine fraction volumique, l'efficacité du mélange est insensible à la fraction volumique. Ces deux dernières propriétés peuvent s'expliquer par un modèle issu de la théorie lagrangienne du mélange monophasique mais qui prend en compte l'aspect diphasique de l'écoulement. Nous allons donc proposer ce modèle et le confronter à nos résultats expérimentaux.

6.3.1 Proposition d'un modèle pour le coefficient de diffusion

La théorie de Taylor, 1921 en écoulement turbulent homogène isotrope (THI) propose d'écrire le coefficient de diffusion turbulent en fonction de la variance des vitesses lagrangiennes $\overline{u_L'^2}$ et de l'échelle intégrale de temps lagrangienne des vitesses notée T_L. Le coefficient de diffusion D en THI s'écrit alors :

$$D = \overline{u_L'^2} T_L \tag{6.12}$$

Dans un écoulement à bulles tridimensionnel homogène, le mélange est aussi un processus diffusif. Le coefficient de diffusion effectif peut s'écrire de la même manière qu'en THI comme le produit de la variance de vitesses lagrangiennes du liquide par un temps caractéristique de corrélation lagrangienne des vitesses. La variance des vitesses lagrangiennes du liquide $\overline{u_L'^2}$ peut être assimilée à la variance des vitesses eulériennes du liquide, notée $\overline{u'^2}$ car l'écoulement est homogène et incompressible (Tennekees & Lumley, 1972). Quant à l'échelle intégrale lagrangienne de temps T_L, elle peut être estimée à partir du rapport de l'échelle de longueur eulérienne Λ et de l'écart-type des fluctuations de vitesse $\sqrt{\overline{u_L'^2}}$ ($T_L = \Lambda/\sqrt{\overline{u_L'^2}}$) car l'écoulement est homogène (Corsin, 1963). Par conséquent, le coefficient de diffusion effectif en écoulement à bulles peut s'écrire ainsi :

$$D_{ii} = k_s \sqrt{\overline{u_i'^2}} \Lambda \tag{6.13}$$

Le coefficient k_s est une constante d'ordre 1. La loi d'échelle de la variance des fluctuations de vitesse est donnée par Riboux *et al.*, 2010 et vaut :

$$\sqrt{\overline{u_i'^2}} = \gamma_i V_0 (\alpha/\alpha_0)^{0.4 \pm 0.02} \tag{6.14}$$

avec γ_i un coefficient qui marque l'anisotropie des fluctuations de vitesse du liquide entre la direction horizontale et verticale (γ_x=0.12 et γ_y=0.18), α_0=0.01 et V_0 la vitesse d'ascension de la bulle isolée (V_0 = 320 mm/s). L'échelle de longueur intégrale eulérienne a été estimée par Riboux *et al.*, 2010 à l'arrière d'un essaim de bulles homogène et vaut 7.7 mm quelle que soit la fraction volumique de gaz. Sur la figure 6.9, nous comparons le modèle théorique présenté à l'équation 6.13 avec k_s = 0.65 (trait pointillé) aux données expérimentales. Nous voyons alors que ce modèle théorique reproduit bien l'augmentation des diffusivités expérimentales avec la fraction volumique mais ne permet pas de restituer la saturation du coefficient de diffusion avec la fraction de volumique.

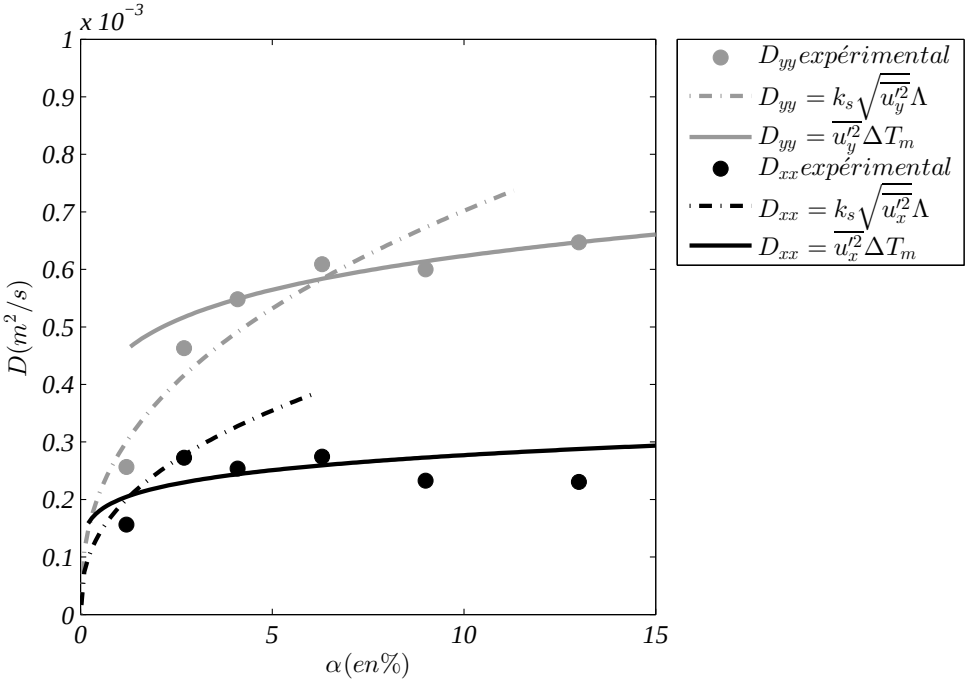


FIGURE 6.9 – Confrontation du modèle du coefficient de diffusion horizontale et verticale aux résultats expérimentaux

Il est important de noter que l'échelle de longueur eulérienne estimée par Riboux *et al.*, 2010 a été mesurée à l'arrière d'un essaim, dans un domaine où l'agitation est générée par les bulles mais où il n'y a pas de bulles qui viennent décorréler le mouvement des particules fluides. En présence de bulles, le mouvement d'une particule fluide est très fortement perturbé par les passages successifs des bulles dans son voisinage. C'est cet évènement qui va décorréler le mouvement de cette particule fluide. Nous allons donc nous intéresser au temps moyen entre deux passages successifs de bulles en un point (ΔT).

Le temps moyen entre deux passages successifs de bulles en un point (ΔT) peut être mesuré expérimentalement grâce à la sonde optique. Sur la figure 6.10, nous avons tracé la fonction de distribution expérimentale des intervalles de temps entre deux bulles consécutives en un point pour différentes fractions volumiques en trait pointillé. Nous l'avons aussi comparée à la fonction de distribution F d'un processus de Poisson (en trait plein)

qui s'écrit ainsi :

$$F(\Delta t) = 1 - exp\left(-\frac{\Delta t}{\Delta T}\right) \tag{6.15}$$

avec Δt le temps de passage entre deux bulles consécutives et ΔT la moyenne des temps entre deux passages consécutifs de bulles mesurés expérimentalement par sonde optique.

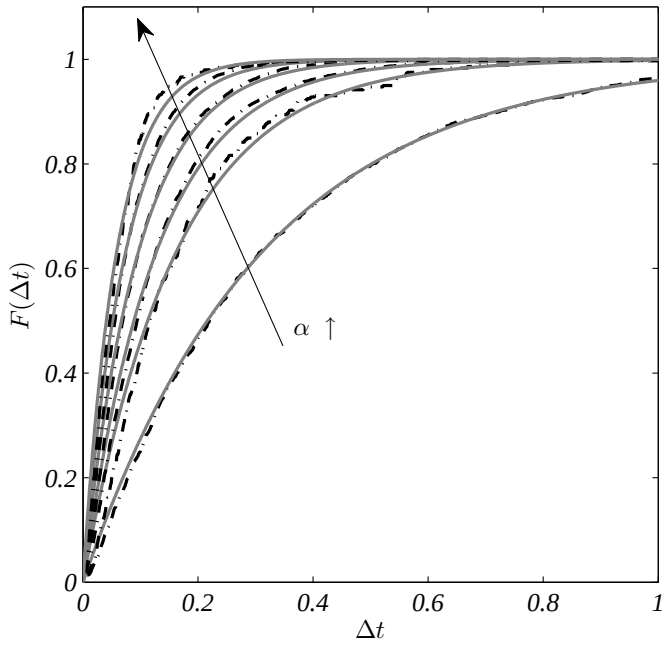


FIGURE 6.10 – Fonction de distribution des intervalles de temps entre deux bulles consécutives pour α=1.3, 3.0, 4.5, 6.8, 9.8, 13.0 %. Mesure par sonde optique (en trait pointillé). Loi de Poisson (en trait plein).

La distribution des intervalles de temps entre deux bulles suit bien une loi de Poisson. Cela signifie que les positions des bulles sont statistiquement indépendantes et que le nuage de bulles est statistiquement bien homogène et sans formation d'amas. Nous pouvons constater néanmoins une légère divergence de la fonction de distribution à la loi de Poisson à cause de la condition de non pénétration des bulles à petite distance. Ceci a déjà été observé pour des fractions volumiques inférieures à 1 % par Ellingsen, 2001. De cette manière, nous avons mesuré expérimentalement le temps moyen de passages entre deux bulles successives (figure 6.11).

Désormais, nous allons chercher à modéliser ce temps moyen de passage entre deux bulles. Pour cela, nous considérons deux bulles ellipsoïdales, de petit axe a, de rapport de forme χ (χ = 1.7, Riboux *et al.*, 2011), de volume $V_{bulle} = 4/3\pi a^3\chi^2$ (figure 6.12). Le diamètre équivalent de la bulle est noté d et vaut $d = 2a\chi^{2/3}$. Les deux bulles sont en

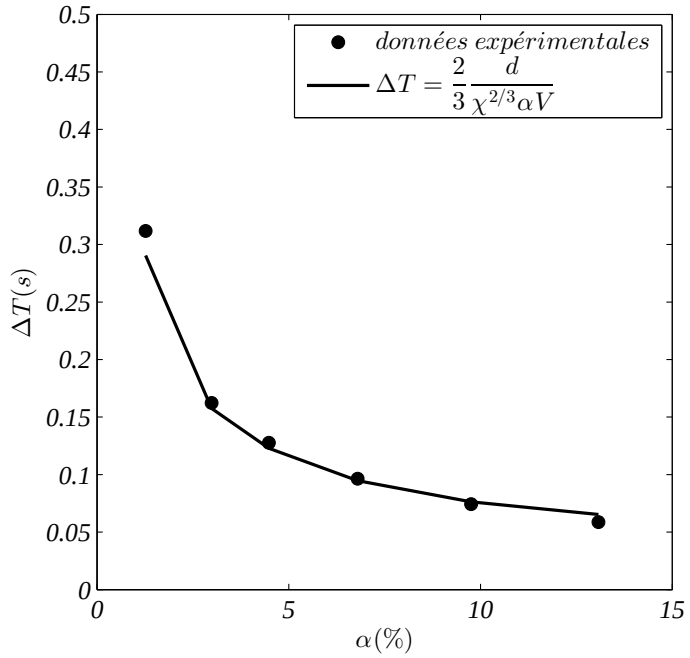


FIGURE 6.11 – Intervalle de temps moyen entre deux bulles en fonction de α.

ascension à la vitesse V l'une derrière l'autre et sont séparées verticalement d'une distance $V\Delta T$. Les bulles étant distribuées aléatoirement, la fraction volumique dans le cylindre de hauteur $V\Delta T$ et de base de rayon χa est donc égale à :

$$\alpha = \frac{V_{bulle}}{\pi\chi^2 d^2 V\Delta T} = \frac{4}{3}\frac{a}{V\Delta T} \tag{6.16}$$

Le temps moyen entre deux passages successifs de bulles s'écrit ainsi :

$$\Delta T = \frac{4}{3}\frac{a}{V\alpha} = \frac{2}{3}\frac{d}{\chi^{2/3}V\alpha} \tag{6.17}$$

Sur la figure 6.11, nous comparons le temps moyen entre deux passages de bulles mesurés expérimentalement par sonde optique au modèle proposé par l'équation 6.17. Nous trouvons un très bon accord entre le modèle exprimé par la relation 6.17 avec les temps moyens de passages entre deux bulles mesurés expérimentalement. En réalité, une bulle en ascension perturbe un volume plus grand que le volume de la bulle. En faisant le même raisonnement que précédemment avec un diamètre du volume perturbé égal à δd, nous trouvons un temps de décorrélation des fluctuation de vitesse du liquide par le passage successif des bulles qui s'écrit $\Delta T_m = \frac{1}{\delta^3}\Delta T$. Il est alors possible d'écrire le coefficient de diffusion de la manière suivante :

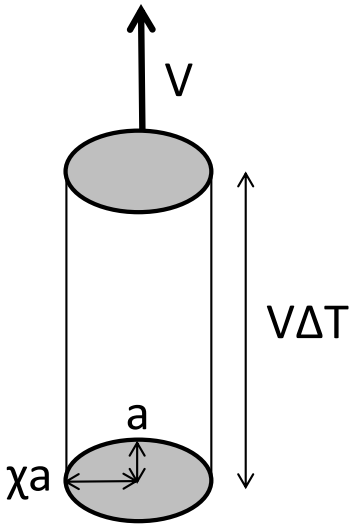


FIGURE 6.12 – Schéma explicatif pour l'écriture du temps moyen de passages successifs entre bulles

$$D_{ii} = \overline{u_i'^2}\Delta T_m = \frac{2}{3}\frac{1}{\delta^3}\frac{d}{\chi^{2/3}\alpha V}\overline{u_i'^2} \tag{6.18}$$

Sur la figure 6.9, nous confrontons les résultats expérimentaux au modèle de coefficient de diffusion où l'échelle intégrale de temps prend en compte les interruptions par les bulles (équation 6.18). Nous voyons alors qu'en prenant $\delta = 1.35$, ce modèle restitue fidèlement les propriétés de saturation du coefficient de diffusion mais ne permet pas de modéliser le comportement du coefficient de diffusion à faible fraction volumique. La saturation du coefficient de diffusion vient du fait que l'augmentation de l'intensité de l'agitation générée par les bulles avec la fraction volumique est compensée par la décroissance du temps de passage entre deux bulles.

La modélisation du coefficient de diffusion comprend donc deux régimes. A faible fraction volumique, l'échelle de temps de corrélation peut être estimée à partir de l'échelle eulérienne de longueur mesurée en l'absence de bulles (équation 6.13). Cela permet de restituer la croissance du coefficient de diffusion avec la fraction volumique. A forte fraction volumique, l'échelle de temps de corrélation est donnée par le temps moyen de passage entre deux bulles en un point (équation 6.18). Cette modélisation permet de retrouver le phénomène de saturation du coefficient de diffusion. Le passage d'un modèle à l'autre se fait plus tôt dans la direction horizontale que dans le direction verticale (figure 6.9). Il est important de noter que quel que soit le régime considéré, nous pouvons constater que l'anisotropie du mélange découle directement de l'anisotropie des fluctuations de vitesse du liquide.

6.3.2 Généralisation du modèle du coefficient de diffusion effectif

Le modèle de coefficient de diffusion effectif proposé précédemment s'exprime quelle que soit la fraction en volumique en fonction de la variance des fluctuations de vitesse du liquide. Pour utiliser ce modèle, il est donc nécessaire de connaître les fluctuations de vitesse. De manière à rendre ce modèle suffisamment générique pour pouvoir être implanté dans des codes de simulation numérique, nous avons réécrit le modèle de diffusion en fonction des grandeurs physiques basées sur la fraction volumique de gaz α, le diamètre des bulles d, la vitesse relative des bulles par rapport au liquide notée V.

Riboux, 2010 a constaté que dans un essaim de bulles homogène, la variance des fluctuations de vitesse du liquide peut s'exprimer de manière équivalente en fonction de la vitesse relative grâce à la relation suivante :

$$\sqrt{\overline{u_i'^2}} = \gamma_{0i} V \alpha^{0.5} \tag{6.19}$$

avec γ_{0x}=1.29 et γ_{0y}=1.94.

Il est alors possible de réécrire le modèle de coefficient de diffusion de la manière suivante :

$$D_{ii} = k_s \Lambda \gamma_{0i} V \alpha^{0.5} \quad pour\ \alpha < \alpha_{ci} \tag{6.20}$$

$$D_{ii} = \frac{2}{3} \frac{\gamma_{0i}^2}{\delta^3 \chi^{2/3}} V d \quad pour\ \alpha > \alpha_{ci} \tag{6.21}$$

avec

- γ_{0x} et γ_{0y}, préfacteurs qui prennent en compte l'anisotropie du liquide et qui dépendent du diamètre des bulles (dans notre cas, γ_{0x}=1.29 et γ_{0y}=1.94)
- δ qui correspond au ratio entre le diamètre du volume perturbé et du diamètre de la bulles (δ=1.3)
- χ le rapport d'aspect des bulles
- k_s=0.63
- Λ, l'échelle intégrale eulérienne de longueur (dans notre cas, $\Lambda = 7.7 \times 10^{-3}$ m)
- V la vitesse relative des bulles
- d le diamètre des bulles
- α la fraction volumique de gaz
- α_{ci} les fractions volumiques critiques qui dépendent de la direction considérée

Après réécriture du modèle de coefficient de diffusion, nous pouvons constater qu'à forte fraction volumique, celui-ci dépend uniquement de la vitesse relative des bulles V et de leur diamètre d alors qu'à faible fraction volumique, il ne dépend que de la fraction volumique à la puissance 0.5. Ce sont ces observations qui nous ont amené à proposer le modèle de coefficient de diffusion généralisé suivant :

$$D_{ii} = a_i \alpha^{0.5} \quad pour\ \alpha < \alpha_{ci} \tag{6.22}$$

$$D_{ii} = \beta_i V d \quad pour\ \alpha > \alpha_{ci} \tag{6.23}$$

avec

- les fractions volumiques critiques, $\alpha_{cx} = 2.7\%$ et $\alpha_{cy} = 4.1\%$
- $\beta_x = 0.36$ et $\beta_y = 0.81$
- $a_i = \beta_i V(\alpha_{ci}) d(\alpha_{ci}) \alpha_{ci}^{-0.5}$, de telle sorte que le coefficient de diffusion soit une fonction continue de la fraction volumique.

Ce modèle de diffusivité effective généralisé a été implémenté dans le code numérique Ansys Fluent puis validé sur des écoulements à bulles inhomogènes complexes dans le cadre du stage de fin d'étude de Florian Euzenat à l'IFPEN. Ce travail montre qu'en ajoutant une contribution des bulles via le modèle de diffusion généralisé proposé ci-dessus, il est possible de prédire le temps de mélange du traceur en prenant un nombre de Schmidt turbulent constant compris entre 0.7 et 1. L'apport de ce modèle de diffusion généralisé semble être tout à fait significatif. Plus de renseignements concernant la configuration de l'écoulement et la conduite des simulations numériques sont disponibles dans l'annexe A.

6.4 Discussion sur les coefficients de diffusion effectifs

Un des premiers modèles de diffusivité effective induite par les bulles a été proposé par Sato & Sadatomi, 1981. Ce modèle propose une diffusivité longitudinale évoluant en $\frac{K_{y;y}}{(Vd)} = c_1\alpha$ avec c_1 une constante établie à partir d'expériences d'écoulement à bulles en conduite cylindrique, V la vitesse relative des bulles, d le diamètre moyen des bulles. Ce modèle se révèle être inadapté à décrire le mélange induit par les bulles (figure 6.13). En effet, dans la configuration étudiée par Sato & Sadatomi, l'agitation induite par le cisaillement aux parois est prépondérante. Une autre étude pionnière concernant le mélange en écoulement à bulles a été réalisée par Mareuge & Lance, 1995. Celle-ci a permis de mesurer des coefficients de diffusion horizontal et vertical dans des écoulements à bulles fortement dilués ($\alpha = 0.2\%$). Les coefficients de diffusion mesurés par Mareuge & Lance semblent être cohérents avec les tendances que nous observons puisque nous retrouvons les mêmes rapports d'anisotropie entre les deux directions. Néanmoins, nous ne pouvons pas réaliser de comparaison plus fine du fait de la très faible fraction volumique considérée. Des expériences de mélange d'oxygène dissous dans des écoulements homogènes à bulles ont été menées par Abbas *et al.*, 2009. Des coefficients de diffusion horizontaux ont ainsi été mesurés et se trouvent être en accord avec nos résultats. En effet, Abbas *et al.* avaient déjà observé une saturation du coefficient de diffusion effectif à partir de $\alpha = 5\%$ environ. Pour des fractions inférieures à 4%, nous retrouvons les même ordres de grandeur du coefficient de diffusion adimensionné par Vd. Par contre, pour les fractions volumiques plus élevées ($\alpha = 4.88$ et 12%), nous observons une certaine divergence dans les résultats. Il est important de noter que dans cette étude, un séparateur au bas de la colonne à bulles est présent, induisant une inhomogéneité au niveau hydrodynamique. Cette inhomogénéité est particulièrement marquée à forte fraction volumique.

Nous allons aussi comparer nos travaux sur le mélange dans un essaim de bulles avec ceux menés dans un réseau de sphères par Besnaci, 2011. Cette étude a permis d'analyser les mécanismes de mélange dans un réseau de sphères de diamètre 2 cm, à $\alpha = 2\%$, en faisant varier le nombre de Reynolds de 100 à 1100. Au sein de cet écoulement qui présente une agitation assez représentative de celle d'un essaim de bulles à nombre de Reynolds et à fraction volumique semblables ($Re = 700$ et $\alpha = 2\%$) (Amoura, 2008), Besnaci, 2011 a mesuré une diffusivité effective dans la direction horizontale. Si nous comparons directement les diffusivités effectives mesurées dans le réseau et dans la colonne à bulles

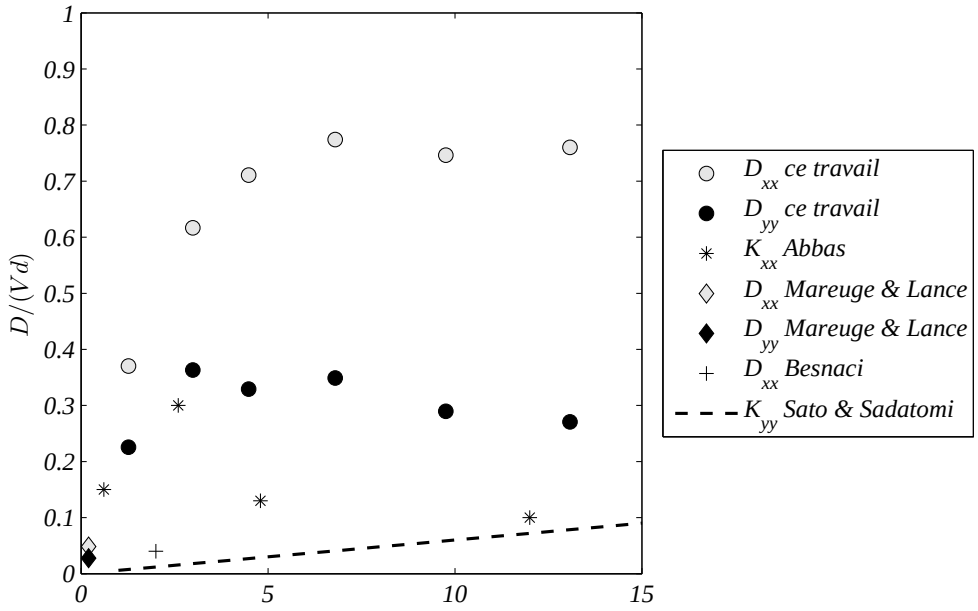
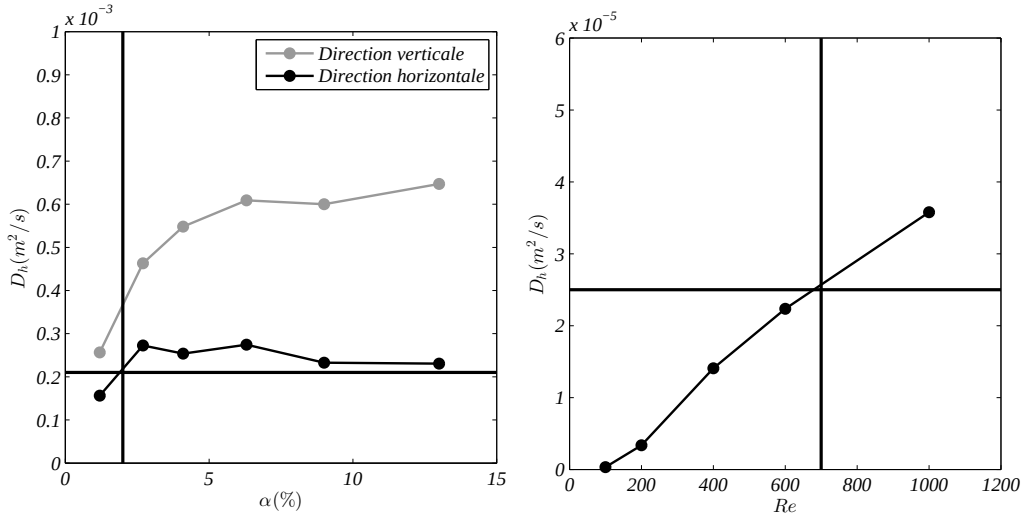


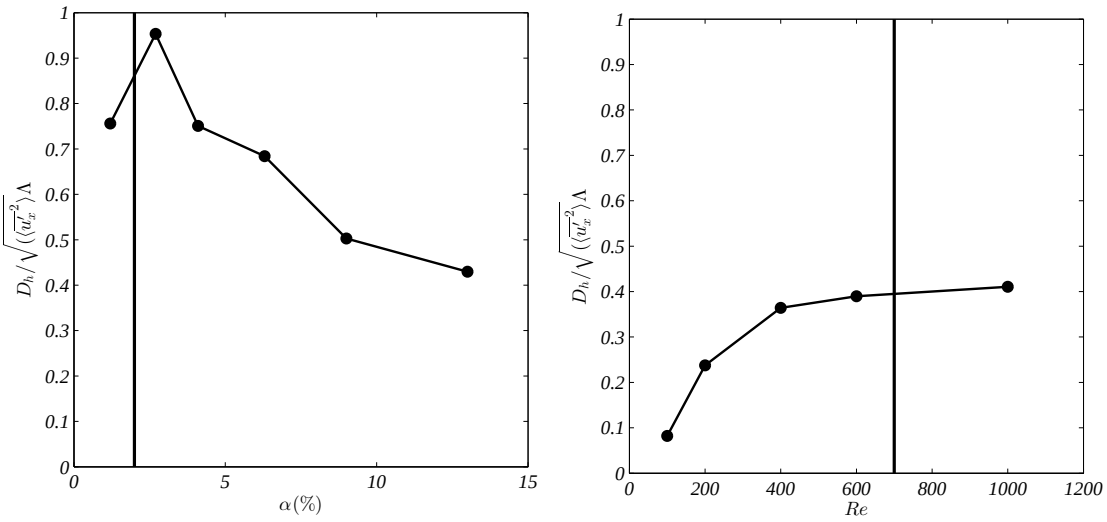
FIGURE 6.13 – Coefficient de diffusion adimensionné par Vd. Comparaison avec la littérature.

dans la direction horizontale à Re = 700 et α = 2%, nous trouvons un rapport dix entre les deux configurations (figure 6.14). Une fois normalisées par la vitesse V et le diamètre des bulles d, les diffusivités ont encore des ordres de grandeur totalement différents entre les deux configurations (figure 6.13). Néanmoins, nous avons vu précédemment que les variables pertinentes pour comparer les diffusivites effectives à cette fraction volumique sont l'écart-type des fluctuations du liquide et l'échelle de longueur intégrale, ces derniers n'ayant pas forcément des lois d'échelle en Vd. Nous avons donc tracé sur la figure 6.15 les diffusivités effectives au sein du réseau et de l'essaim de bulles adimensionnés par $\sqrt{\overline{u_i'^2}}\Lambda$, où l'échelle intégrale de longueur et l'écart-type des fluctuations de vitesse ont été mesurés par Amoura, 2008. A nombre de Reynolds et à fraction volumique équivalents, nous trouvons alors un rapport 2 entre les deux configurations. Il semble que le modèle de mélange en écoulement à bulles ne rende pas compte de tous les mécanismes de mélange au sein du réseau de sphère. En effet, la mobilité des bulles modifie profondément la structure des sillages proches et il se peut que la contribution de ces sillages proches influence de manière significative le mélange dans le réseau.



(a) Colonne à bulles. $Re = 700$. (b) Réseau de sphères. $\alpha = 2\%$

FIGURE 6.14 – Comparaison des diffusivités effectives dans un réseau de sphère et dans un écoulement à bulles



(a) Colonne à bulles. $Re = 700$. (b) Réseau de sphères. $\alpha = 2\%$

FIGURE 6.15 – Comparaison des diffusivités effectives dans un réseau de sphère et dans un écoulement à bulles adimensionnées par $\sqrt{\overline{u_i'^2}}\Lambda$

6.5 Conclusion du chapitre

En mesurant l'évolution temporelle de la variance de la distribution spatiale de colorant dans les directions horizontale et verticale, nous avons estimé un coefficient de diffusion effectif permettant d'évaluer l'efficacité du mélange généré par la seule agitation des bulles. Trois résultats ont ainsi été mis en évidence. Le premier est que le mélange induit par les bulles est diffusif. En effet, les variances de la distribution de concentration horizontale et

verticale évoluent linéairement avec le temps une fois la mémoire de l'injection oubliée et le phénomène d'absorption négligeable. Nous avons aussi pu constater que la distribution spatiale de colorant, qui peut être approximée par la solution de l'équation de diffusion en milieu confiné à chaque instant ne présente pas de dissymétrie dans la direction verticale entre le haut et le bas. Cela témoigne du rôle mineur du transport par les sillages, contrairement à ce qui a été observé en écoulement à bulles confiné. Le second résultat surprenant est la saturation du coefficient de diffusion avec la fraction volumique. Cette saturation s'explique car il y a compensation de l'augmentation de la quantité d'énergie par le passage successif des bulles qui décorrèle de plus en plus fréquemment le mouvement des particules fluides. Troisièmement, le mélange est anisotrope entre les directions horizontale et verticale et cette anisotropie découle directement de l'anisotropie des fluctuations de vitesse du liquide. L'ensemble de ces propriétés a pu être interprété et retrouvé par une modélisation du coefficient de diffusion propre aux écoulements à bulles. Ce modèle distingue deux régimes, l'un à forte fraction volumique et l'autre à plus faible fraction volumique. Ainsi, à forte fraction volumique, nous proposons d'écrire le coefficient de diffusion comme le produit de la variance des vitesses dans le liquide par une échelle de temps lagrangienne imposée par le passage successif des bulles. Au contraire, à faible fraction volumique, les particules fluides ont le temps de se décorréler avant de subir un passage de bulle. L'échelle de longueur lagrangienne semble alors être l'échelle de longueur pertinente pour modéliser le mélange. Pour finir, nous avons aussi proposé un modèle de diffusivité plus générique pour qu'il puisse être implanté dans des modèles de sous-mailles de codes CFD.

Chapitre 7

Analyse du transport et du mélange dans un écoulement à bulles inhomogène

Après avoir caractérisé le mélange induit par les bulles, nous nous intéressons au mélange dans un écoulement à bulles en présence d'une recirculation forcée du liquide. Pour cela, nous avons étudié le mélange dans un écoulement à bulles inhomogène, l'inhomogénéité étant générée par un gradient de fraction volumique en bas de la cuve. Comme nous l'avons vu précédemment, il est possible de régler à la fois la fraction volumique globale dans la cuve mais également le gradient de fraction volumique au bas de la cuve. Une multitude de recirculations plus ou moins complexes et avec différentes échelles de turbulence peut être générée. Nous avons limité notre étude du mélange à deux types de recirculations, celles où il y a peu de turbulence à grandes échelles qui se développe et celles où les échelles de la turbulence générées sont grandes devant celles de l'agitation par les bulles. Dans un premier temps, nous caractériserons finement les propriétés hydrodynamiques des écoulements étudiés en terme de fraction volumique et de vitesse des bulles. Cela nous permettra de relier les propriétés hydrodynamiques aux mécanismes de mélange identifiés dans de tels écoulements.

7.1 Présentation des écoulements inhomogènes

Des expériences de mélange ont été réalisées pour trois types de recirculations différentes, appelées *configuration 1*, *configuration 2* et*configuration 3*. Elles peuvent toutes les trois être considérées comme quasi bidimensionnelles du point de vue de l'hydrodynamique. Dans le but de n'avoir qu'une seule boucle de recirculation, le niveau d'eau global dans la cuve a été réduit à 60 cm de haut après injection des bulles.

Pour les *configurations 1 et 2*, des mesures par sonde optique (RBI) ont été réalisées afin de caractériser les propriétés hydrodynamiques de l'écoulement. La sonde optique étant double, nous avons mesuré en un point, la fraction volumique, mais aussi la vitesse des bulles, et leur diamètre. 30 points de mesure au minimum ont été effectués dans le plan de visualisation de la caméra $(x; y)$ à z = 0 cm. Nous présentons donc dans un premier temps une cartographie des champs de vitesse du gaz (V) et de fraction volumique (α)

pour les deux configurations (figures 7.1 et 7.2). Ces champs sont peu résolus spatialement car nous interpolons linéairement les grandeurs mesurées entre chaque point de mesure. Néanmoins, cela permet d'avoir une vue globale du champ de vitesse des bulles et de la fraction volumique. Nous avons aussi tracé les profils horizontaux de vitesse d'ascension des bulles et de fraction volumique réalisés à différentes hauteurs de l'écoulement pour les deux recirculations (figure 7.3 et figure 7.4). Pour la *configuration 1* (figure 7.3), nous voyons nettement qu'à 10 cm au dessus des injecteurs, il y a un gradient de fraction volumique qui est de l'ordre de 0.5%. Ce gradient de fraction volumique a pour effet de générer un gradient de vitesse de liquide. En effet, dans la jambe montante, c'est-à-dire le côté le plus léger, les bulles sont accélérées jusqu'à atteindre une vitesse maximale d'ascension de 37 cm/s à y = 23.4 cm. A partir de la hauteur y = 23.4 cm, la fraction volumique tend à s'homogénéiser dans le plan horizontal. Il en est de même pour la vitesse des bulles au-delà de y = 39.4 cm. Quant à la *configuration 2* (figure 7.4), elle présente elle aussi un gradient de fraction volumique à y = 10 cm. Ce gradient volumique est plus intense que dans *configuration 1* puisque celui-ci vaut environ 1.5%. La vitesse maximale atteinte par les bulles est aussi plus élevée que dans la *configuration 1*. D'après nos mesures, la vitesse maximale des bulles est atteinte à y = 23.4 cm et y = 29.2 cm et vaut 45 cm/s. Au-delà de y = 30 cm, la fraction volumique tend à s'homogénéiser et le gradient de vitesse de bulles tend à se réduire. De ces observations sur ces profils de fraction volumique et de vitesse de bulles, nous pouvons conclure que la *configuration 2* crée une recirculation plus intense que la *configuration 1*.
Pour la *configuration 3*, nous n'avons pas fait de mesure par fibre optique mais nous savons néanmoins qu'elle est plus intense que la *configuration 2*. En effet, la *configuration 3* a la même fraction volumique moyenne dans la cuve mais nous imposons un gradient de fraction volumique au bas de la cuve plus élevé. Cela a pour effet de générer de la turbulence de cisaillement dont les échelles sont plus grandes que celles générées par l'agitation par les bulles.

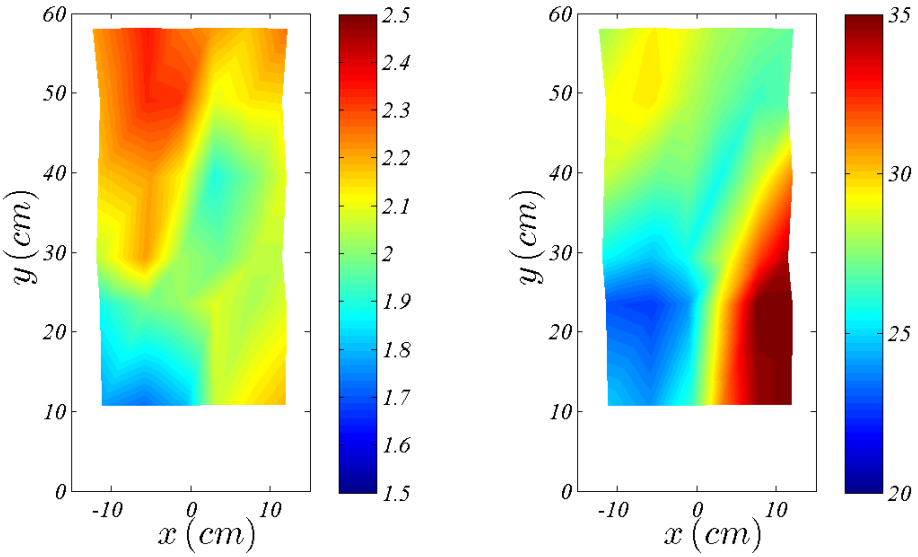
Nous allons désormais quantifier ces différents régimes. Pour cela, nous introduisons trois paramètres. Le premier est la fraction volumique moyenne dans la cuve, noté $< \alpha >_c$. Il est obtenu en faisant la moyenne de la fraction volumique sur l'ensemble du champ. Le deuxième paramètre que nous introduisons est le différentiel de fraction volumique à l'injection noté $\Delta\alpha$. Celui-ci est calculé en prenant la différence du maximum et du minimum de fraction volumique au plus bas de la cuve, c'est à dire à y = 10 cm (figure 7.3 et 7.4). Quant au troisième paramètre que nous introduisons, il s'agit de la vitesse de recirculation du liquide U. Celle-ci est estimée à partir des vitesses d'ascension des bulles dans la jambe montante (V_m) et dans la jambe descendante (V_d) à partir de la relation suivante : $U = \frac{V_m - V_d}{2}$. Les vitesses d'ascension des bulles dans la jambe montante (V_m) et dans la jambe descendante (V_d) sont évaluées à partir de la vitesse maximale atteinte par les bulles mesurée expérimentalement. Elles sont mesurées à y = 23 cm pour la première configuration et à y = 30 cm pour la deuxième.

Le tableau 7.1 résume les différentes propriétés hydrodynamiques des trois configurations étudiées.

	$< \alpha >_c$	$\Delta\alpha$	U (en cm/s)	Nature de la recirculation
Configuration 1	2.1%	0.5%	7 cm/s	absence de turbulence à grande échelle
Configuration 2	3.8%	1.5%	16.3 cm/s	absence de turbulence à grande échelle
Configuration 3	3.8%	$>$1.5%	-	turbulence à grandes échelles observée

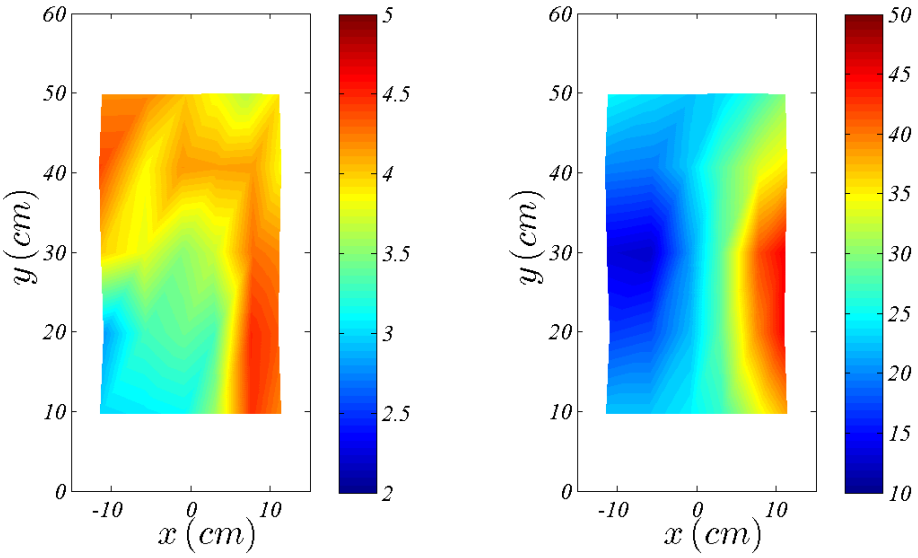
TABLE 7.1 – Propriétés hydrodynamiques des trois recirculations étudiées. Fraction volumique moyenne dans la cuve ($< \alpha >_c$). Différentiel de fraction volumique imposé au bas de la cuve ($\Delta\alpha$). Vitesse de recirculation du liquide U.

Les trois écoulements étudiés diffèrent donc de par leur fraction volumique moyenne dans la cuve $< \alpha >_c$, leur différentiel de fraction volumique imposé au bas de la cuve $\Delta\alpha$ et leur vitesse de recirculation du liquide U. Nous avons ainsi généré deux recirculations dans lesquelles peu, voire aucune, turbulence de cisaillement ne se développe (*configuration 1* et *configuration 2*). La deuxième configuration reste néanmoins plus intense que la première. Quant à la troisième recirculation (*configuration 3*), de la turbulence de cisaillement à grandes échelles est présente. Nous pourrons ainsi investiguer différents régimes de mélange, comprendre quelles sont les mécanismes de mélange dans ses trois écoulements mais aussi estimer quels sont les mécanismes limitant l'efficacité du mélange.



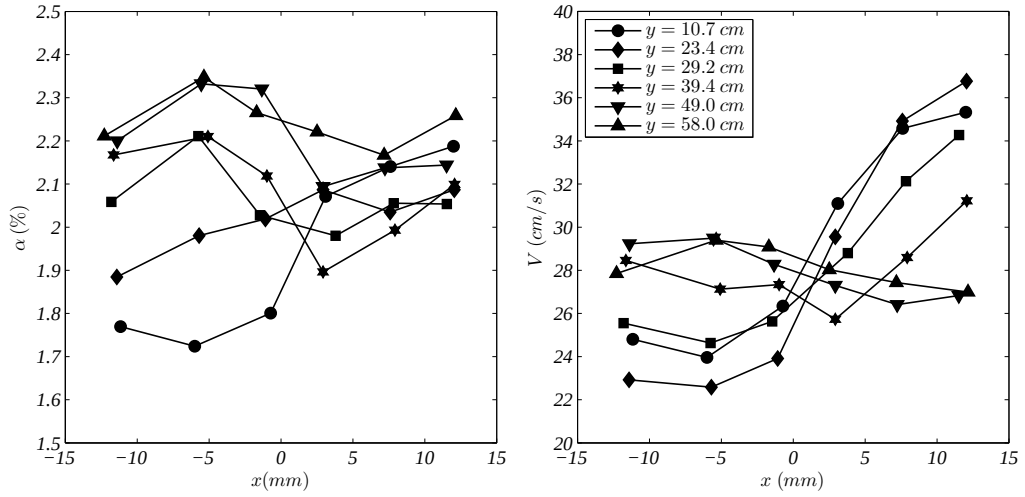
(a) α (en %) (b) V en (cm/s)

FIGURE 7.1 – Cartographie de l'hydrodynamique des écoulements inhomogènes à partir d'interpolation linéaire des mesures locales en terme de fraction volumique α et de vitesse d'ascension de bulles V pour la *configuration 1*



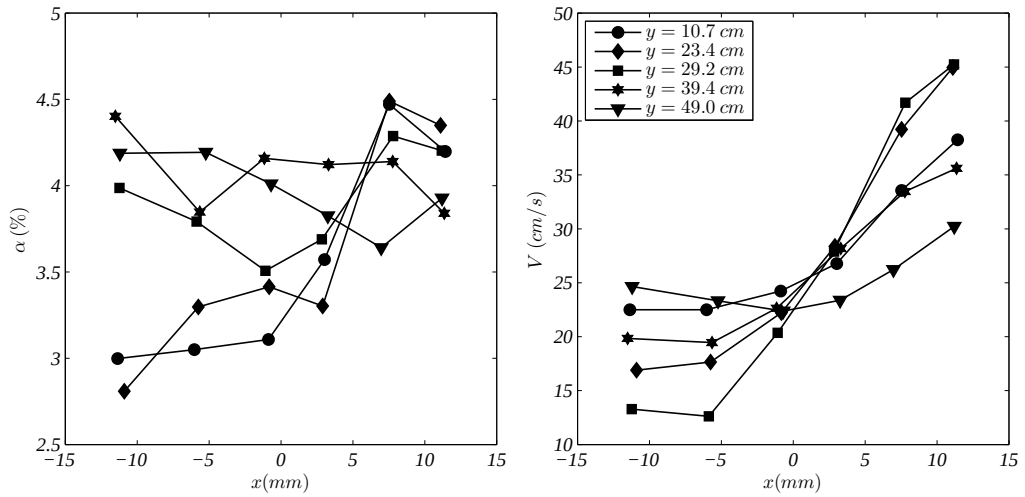
(a) α (en %) (b) V en (cm/s)

FIGURE 7.2 – Cartographie de l'hydrodynamique des écoulements inhomogènes à partir d'interpolation linéaire des mesures locales en terme de fraction volumique α et de vitesse d'ascension de bulles V pour la *configuration 2*



(a) Fraction volumique (b) Vitesse de bulles

FIGURE 7.3 – Profils horizontaux de fraction volumique et de vitesse de bulles selon la plus grande largeur x à différentes hauteurs y - configuration 1



(a) Fraction volumique (b) Vitesse de bulles

FIGURE 7.4 – Profils horizontaux de fraction volumique et de vitesse de bulles selon la plus grande largeur x à différentes hauteurs y - configuration 2

7.2 Mécanismes de transport et de mélange en écoulement inhomogène

Après avoir caractérisé les propriétés hydrodynamiques des écoulements inhomogènes, nous pouvons aborder le problème du mélange dans de tels écoulements et en particulier identifier les différents mécanismes de mélange. Pour cela, nous commencerons par décrire

l'expérience de mélange puis nous observerons le transport et le mélange du traceur passif dans ces écoulements. Ces observations nous permettront de distinguer deux mécanismes principaux de transport, agissant à différentes échelles.

7.2.1 Description de l'expérience de mélange

Le protocole expérimental des expériences en écoulement inhomogène est le même que celui en écoulement homogène. Nous injectons donc 1 mL de fluorescéine sodium à une concentration $cc_{inj} = 5 \times 10^{-3}$mol/L grâce à un capillaire de diamètre intérieur 0.6 mm pendant environ 2 s. Nous avons injecté le traceur au sein de l'écoulement en trois points différents localisés dans la jambe montante, dans la jambe descendante et dans la zone de cisaillement. Les différentes positions prises par le capillaire sont précisées dans le tableau 7.2.

	Jambe descendante	Milieu	Jambe montante
Configuration 1	(-8.5 ;43.2 ;0)	(0.3 ;43.2 ;0)	(10.6 ;43.2 ;0)
Configuration 2	(-11.3 ;40.8 ;0)	(-1.5 ;40.8 ;0)	(9.0 ;40.8 ;0)
Configuration 3	(-10.5 ;40.4 ;0)	(-0.5 ;40.4 ;0)	(-9.3 ;40.4 ;0)

TABLE 7.2 – Position de l'injecteur pour les expériences de mélange en écoulement inhomogène

Le dispositif expérimental et la technique de mesure restent identiques à ceux utilisés pour l'étude du mélange en écoulement homogène. Etant donné que la hauteur d'eau a été réduite à 60 cm, il est possible d'éclairer en volume par les tubes au néon UV et de filmer l'ensemble de l'écoulement. Nous appliquons ensuite le même traitement de l'image que celui présenté au chapitre 5. Il est important de souligner que ce traitement de l'image ne permet pas de mesurer précisément la distribution de lumière fuorescée et de concentration à cause des inhomogénéités de fraction volumique. C'est la raison pour laquelle nous ne ferons qu'une description des images sur des niveaux de gris et ne retiendrons que les informations robustes.

7.2.2 Premières observations des mécanismes de mélange en écoulement inhomogène

Après injection du colorant, nous observons le mélange et le transport du colorant dans les trois écoulements présentés précédemment (figures 7.5, 7.6 et 7.7). Le premier constat que nous pouvons faire est que le mélange dans les trois écoulements inhomogènes est efficace et rapide. En effet, alors qu'en écoulement à bulles homogène il faudrait une dizaine de minutes pour que le colorant envahisse la totalité de la cuve, nous voyons qu'en présence d'inhomogénéité de fraction volumique, moins de 30 secondes sont nécessaires pour atteindre l'homogénéisation du traceur dans la cuve. Cette efficacité du mélange est due au transport du traceur par la recirculation de liquide et par les grandes échelles de la turbulence de cisaillement. Cela permet une répartition rapide du traceur sur la totalité de la cuve. Néanmoins, le temps nécessaire au traceur pour envahir l'ensemble de la cuve diffère selon la configuration. En effet, dans la configuration 1, il faut environ 30 s pour

atteindre l'homogénéisation du traceur, alors que seulement 15 s sont nécessaires dans la configuration 2 et 8 s pour la configuration 3. Le temps nécessaire à l'homogénéisation du traceur dépend à la fois de la nature de la recirculation (présence ou non de turbulence de cisaillement à grandes échelles) mais aussi de l'intensité de la recirculation. Par la suite, nous distinguerons la troisième configuration des deux premières car les mécanismes de transport et de mélange sont différents. Dans les configurations 1 et 2, le transport advectif du colorant se fait uniquement par la recirculation de liquide alors que dans la troisième configuration, il se fait aussi par les grandes échelles de la turbulence.

Pour les configurations 1 et 2 (figures 7.5 et 7.6), le traceur est advecté par le mouvement moyen de liquide et dispersé localement par les bulles. Ainsi, pour la configuration 1, le traceur effectue un tour de la cellule de recirculation de liquide en environ 10 s alors que pour la configuration 2, il ne faut plus que 5 s environ pour que le traceur effectue le même parcours. L'envahissement du cœur de la recirculation par le traceur est bien plus lent que le transport advectif et il dépend la fraction volumique de gaz dans la cuve ($< \alpha >_c$). Pour la première configuration (figure 7.5), le colorant effectue plusieurs tours de cellule de recirculation avant homogénéisation du traceur au cœur de la cellule de recirculation. Il faut environ une trentaine de secondes pour qu'il y ait homogénéisation du traceur sur l'ensemble du domaine. Dans la deuxième configuration qui est plus intense que la première (figure 7.6), le colorant n'effectue plus qu'un seul tour de cellule avant que celui-ci contamine la zone centrale. Il ne faut alors plus qu'une quinzaine de secondes avant homogénéisation du traceur dans l'ensemble de l'écoulement. De ce fait, le processus limitant le mélange dans de tels écoulements inhomogènes est la propagation du traceur dans les zones où le traceur ne peut pas être transporté par le mouvement moyen du liquide. La diffusion du traceur au sein de ces zones sans mouvement moyen est principalement pilotée par le mélange induit par les bulles, mécanisme que nous avons décrit précédemment en écoulement à bulles homogène par un coefficient de diffusion effectif.
Pour la configuration 3 (figure 7.7), nous pouvons observer la présence de nouvelles échelles de transport de colorant, en particulier à l'instant $t = 2s$. Ces nouvelles échelles, liées aux grandes échelles de la turbulence de cisaillement permettent un envahissement très rapide du colorant dans la zone centrale, avant même que le colorant ne soit advecté en haut de la cuve par le mouvement moyen du liquide.

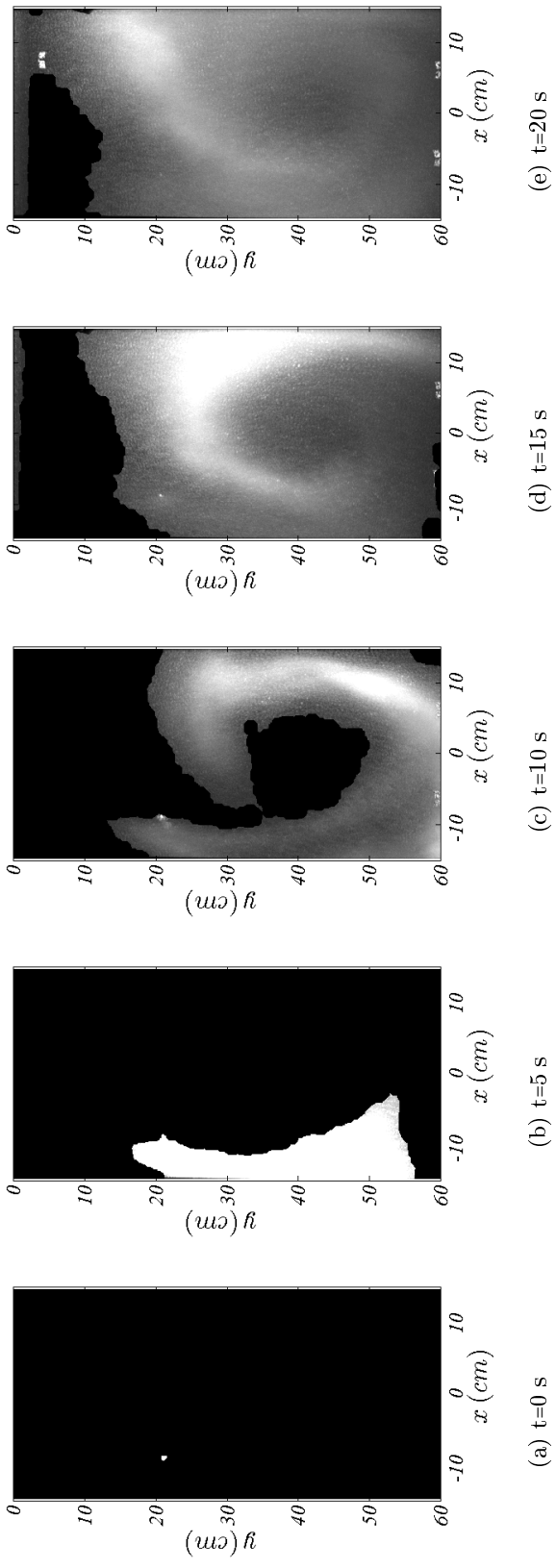
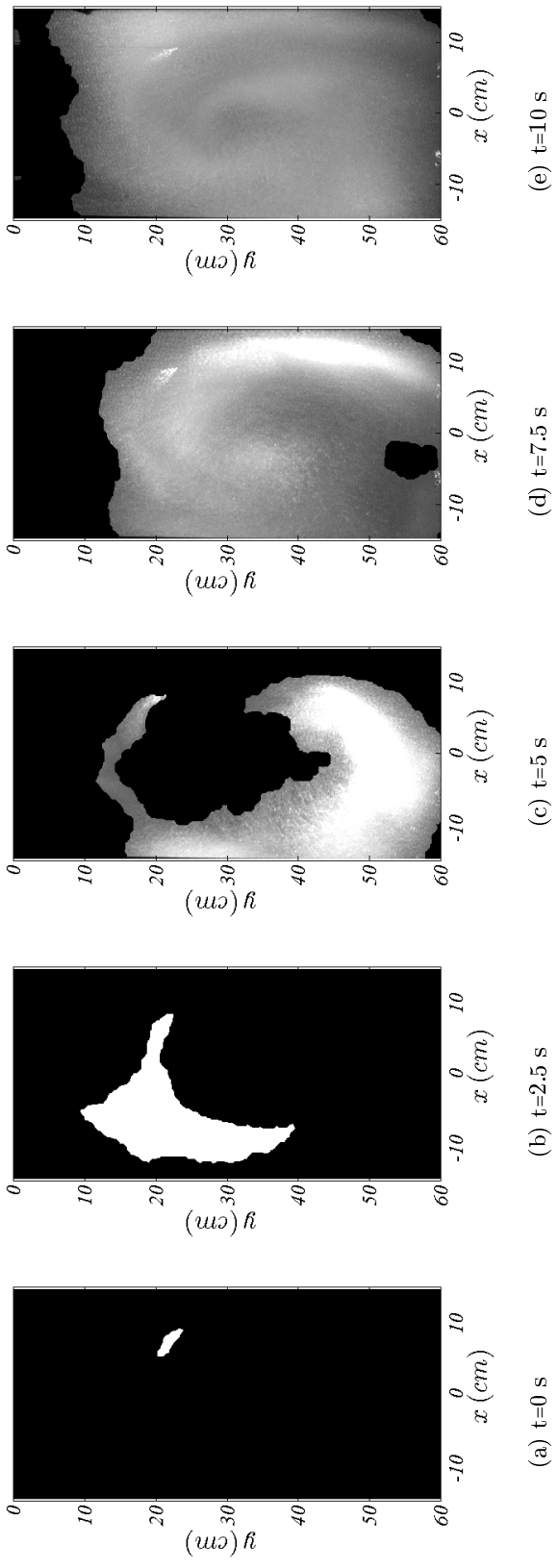


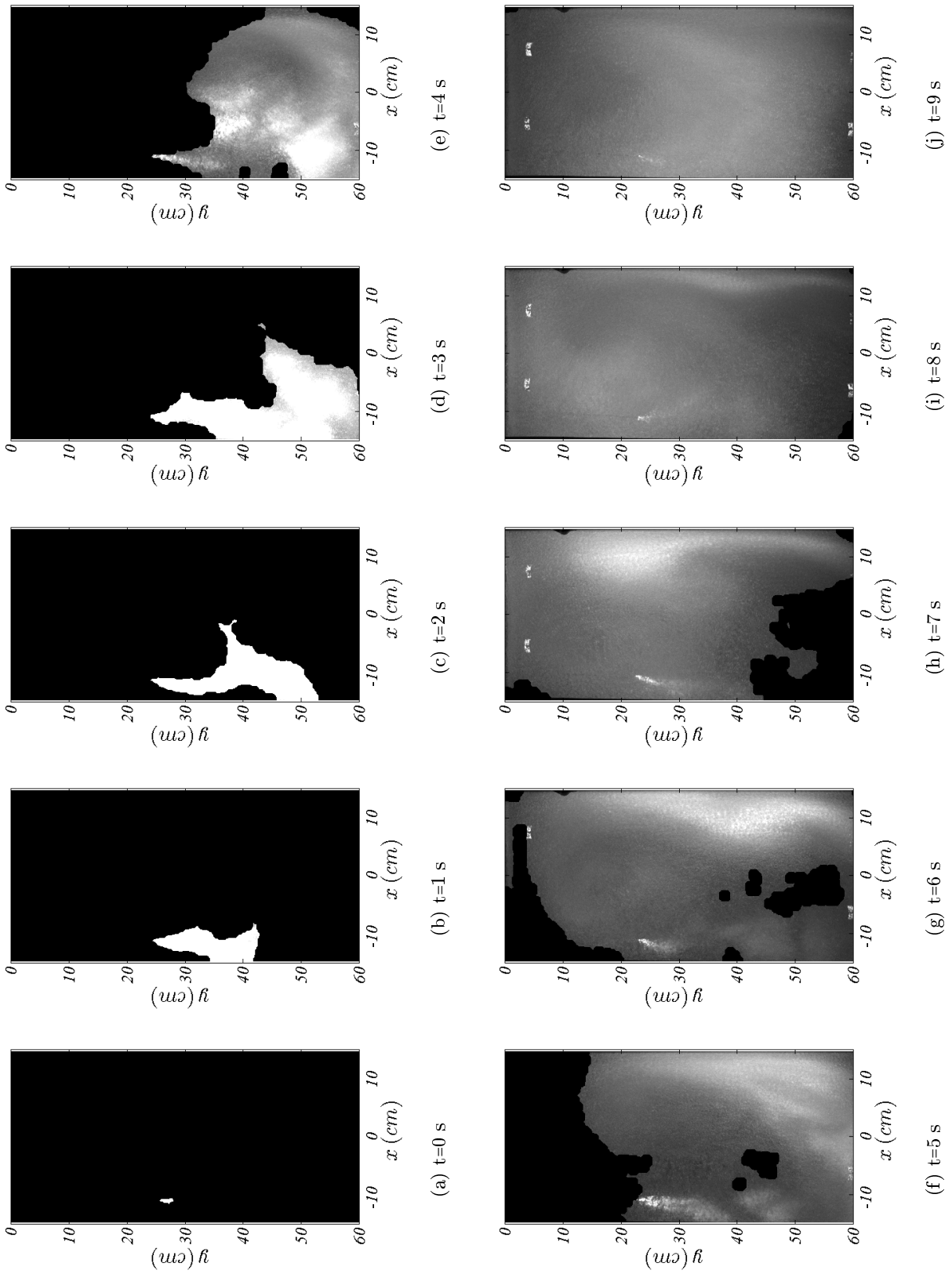
FIGURE 7.5 – Mélange dans un écoulement inhomogène. *Configuration 1*. Injection dans la jambe descendante.



(a) t=0 s (b) t=2.5 s (c) t=5 s (d) t=7.5 s (e) t=10 s

(f) t=12.5 s (g) t=15 s

FIGURE 7.6 – Mélange dans un écoulement inhomogène. *Configuration 2.* Injection dans la jambe montante.



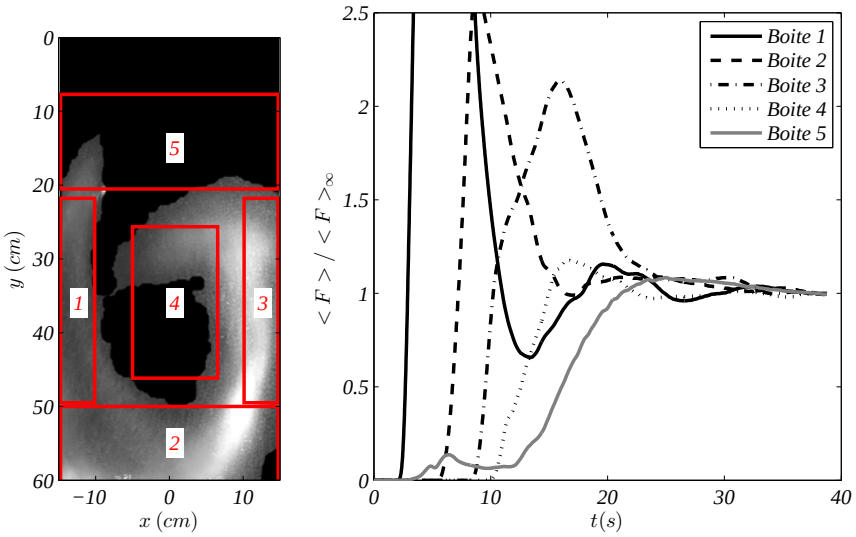
(a) t=0 s (b) t=1 s (c) t=2 s (d) t=3 s (e) t=4 s

(f) t=5 s (g) t=6 s (h) t=7 s (i) t=8 s (j) t=9 s

FIGURE 7.7 – Mélange dans un écoulement inhomogène. *Configuration 3*. Injection dans la jambe descendante.

7.2.3 Mesure du temps de mélange macroscopique

Nous cherchons maintenant à quantifier la rapidité du mélange dans des écoulements inhomogènes. Pour cela, nous définissons un temps de mélange macroscopique sur l'ensemble de la cuve défini comme le temps nécessaire pour que l'ensemble de la colonne ait atteint plus ou moins 5% de la concentration finale. Ce temps de mélange est estimé à partir de l'évolution temporelle de la concentration moyennée sur des domaines. Pour nos expériences, nous avons considéré 5 domaines dans le champ de visualisation (figure 7.8 a). Pour chaque domaine, nous calculons la somme des niveaux de gris, notée $< F >$ que nous normalisons par la valeur finale de chaque domaine, notée $< F >_\infty$. Cette normalisation permet de s'affranchir des inhomogénéités d'éclairement des néons, qui sont présentes dans la direction verticale aux extrémités des tubes à néons UV, et des inhomogénéités de lumière fluorescée perçue par la caméra dues aux inhomogénéités de fraction volumique. La figure 7.8 b présente l'évolution temporelle de la somme des niveaux de gris sur chaque domaine normalisé pour une acquisition de la configuration 1 avec l'injection dans la jambe descendante. A partir de ces évolutions temporelles, nous estimons le temps de mélange comme le temps nécessaire pour que l'ensemble des domaines ait atteint ±5% de la valeur finale, une fois l'injection terminée. Notons que ce temps à ±5% dépend très peu du domaine considéré. Cela signifie qu'il n'y pas de zones mortes ou de recirculations locales au sein des domaines considérés. Sur la figure 7.8 b, le temps nécessaire pour que l'ensemble des domaines ait atteint ±5% de la valeur finale vaut 32 s.



(a) Zonage

(b) Evolution temporelle de niveaux de gris moyennés par zone. *Configuration 1.* Injection dans la jambe descendante.

FIGURE 7.8 – Méthode d'estimation du temps de mélange.

Nous avons calculé le temps de mélange pour trois positions d'injection différentes et pour les trois configurations expérimentales étudiées. La figure 7.9 représente l'ensemble des temps de mélange mesurés lorsque le capillaire est positionné dans la jambe descen-

dante (∘), dans la jambe montante (•), au milieu de la zone de cisaillement (•), ainsi que le temps de mélange moyen pour chaque configuration (■). Nous pouvons constater que pour la recirculation la moins intense, la configuration 1, le temps de mélange mesuré est reproductible et ne dépend pas de la position de l'injecteur. En effet, nous mesurons un temps de mélange moyen de 30.5 s avec un écart-type de 1.2 s. Au contraire, pour la configuration 2, il y a une plus grande dispersion des temps de mélange mesurés. Le temps de mélange moyen dans cette configuration est de 21.5 s et l'écart-type de 3.4 s. Cette dispersion plus importante semble être due au fait que l'écoulement est plus intense et donc légèrement moins stable. Pour la configuration 3, nous mesurons un temps de mélange moyen de 14.5 s, avec un écart-type de 2.4 s.

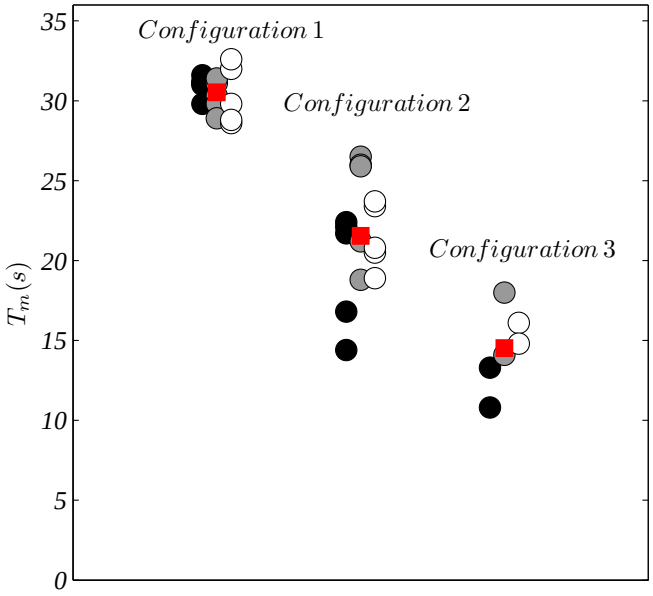


FIGURE 7.9 – Temps de mélange à 95 % en fonction de la position pour les 3 configurations étudiées. Injecteur positionné dans la jambe descendante (∘), dans la jambe montante (•) et au milieu de la zone de cisaillement (•). Moyenne des temps de mélange pour chaque configuration (■)

7.2.4 Découplage des mécanismes de transport et prédiction du temps de mélange

Précédemment, nous avons pu identifier deux principaux mécanismes de transport : un transport advectif par le mouvement moyen du liquide et un mélange induit par les bulles. A partir de ces considérations, il est possible d'estimer deux temps caractéristiques de transport dans les écoulements inhomogènes. Le premier temps caractéristique est un temps d'advection, noté $T_{advection}$. Il représente le temps nécessaire pour que le traceur soit

advecté par la vitesse moyenne du liquide U sur une certaine longueur H ($T_{advection} = \frac{H}{U}$). Le deuxième temps caractéristique est un temps liée à la diffusion du traceur par l'agitation induite par bulles. Ce temps $T_{diffusion}$ est estimé à partir du coefficient de diffusion effectif mesuré en écoulement à bulles homogène, D_{ii} et d'un longueur caractéristique de diffusion induite par les bulles l ($T_{diffusion} = \frac{l^2}{D_{ii}}$).
Dans le cas particulier des recirculations de cette étude, nous pouvons observer que le transport advectif du traceur par le mouvement moyen du liquide opère principalement dans la direction verticale, sur la totalité de la hauteur d'eau (figure 7.10). Le temps d'advection peut donc être calculé de la manière suivante : $T_{advection} = \frac{H_{eau}}{U}$ où $H_{eau} = 60$ cm est la hauteur d'eau dans la cuve et U est la vitesse de la recirculation estimée précédement (tableau 7.1). Au contraire, la diffusion induite par les bulles assure le mélange dans la direction horizontale et en particulier au cœur de la cellule de recirculation (figure 7.10). Un temps caractéristique de diffusion peut ainsi être évalué à partir du coefficient de diffusion induit par les bulles dans la direction horizontale D_{xx} et d'un échelle de longueur de diffusion l. Cette échelle de longueur est prise égale à un quart de la largeur de la colonne ($l = L/4$) car nous considérons que la boucle de recirculation sépare la colonne en quatre domaines verticaux adjacents. De cette manière, le temps caractéristique de diffusion dans notre configuration expérimentale peut s'écrire $T_{diffusion} = \frac{(L/4)^2}{D_{xx}}$. Il est important de rappeler que le coefficient de diffusion induit par les bulles a été mesuré dans un écoulement à bulles homogène et qu'il dépend de la fraction volumique en deçà d'une fraction volumique critique. Nous prenons donc la valeur du coefficient de diffusion correspondant à la fraction volumique moyenne dans la cuve $< \alpha >_c$. Etant donné que la fraction volumique moyenne dans la cuve $< \alpha >_c$ est plus faible dans la configuration 1 que dans la configuration 2 et que le coefficient de diffusion effectif augmente dans une gamme de fraction volumique comprise entre 0 et 4 %, nous trouvons un coefficient de diffusion effectif plus faible dans la configuration 1 que dans la configuration 2 (tableau 7.2.4).

Le tableau 7.2.4 présente les temps caractéristiques d'advection et de diffusion calculés pour chaque configuration.

	Configuration 1	*Configuration 2*	*Configuration 3*
$< \alpha >_c$ (en %)	2.1%	3.8%	3.8%
U (en cm/s)	7 cm/s	16.3 cm/s	-
D_{xx} en (cm^2/s)	2.0 cm^2/s	2.5 cm^2/s	2.5 cm^2/s
$T_{advection}$ (en s)	8.6 s	3.7 s	-
$T_{diffusion}$ (en s)	28 s	22 s	22 s
Temps de mélange mesuré en (s)	30 s	21 s	14 s

TABLE 7.3 – Temps caractéristiques des mécanismes de transport en écoulement inhomogène

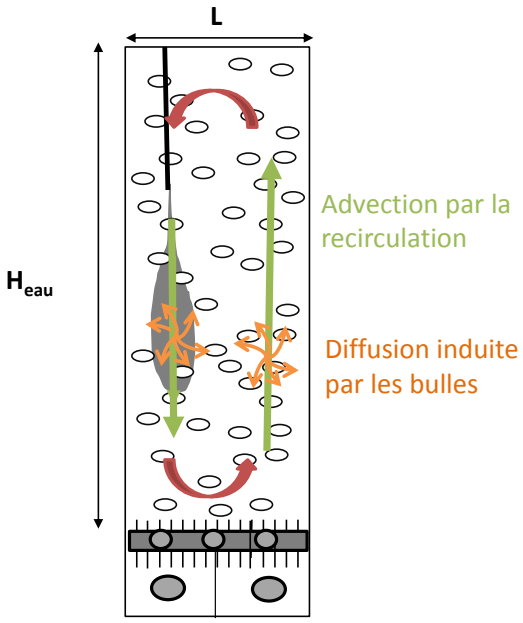


FIGURE 7.10 – Découplage des mécanismes de mélange en écoulement à bulles inhomogène

Pour analyser le tableau 7.2.4, il est important de distinguer les configurations dans lesquelles peu de turbulence de cisaillement à grandes échelles se développe (configurations 1 et 2) de celle où il y a de la turbulence à grandes échelles (configuration 3). Dans les configurations 1 et 2, nous observons que le temps de mélange macroscopique mesuré expérimentalement est proche du temps caractéristique de diffusion. Cela signifie que dans ces configurations expérimentales, le processus limitant le mélange est la diffusion induite par les bulles et que celle-ci peut être estimée à partir du coefficient de diffusion effectif mesuré en écoulement à bulles homogène. La diminution du temps de mélange entre la configuration 1 et 2 vient donc uniquement du fait que le coefficient de diffusion effectif varie avec la fraction volumique. Nous pouvons aussi remarquer que le temps d'advection calculé à partir de la vitesse de recirculation U est en adéquation avec le temps nécessaire au traceur pour faire un tour de la cellule de recirculation. Dans des recirculations au sein desquels peu de turbulence de cisaillement se développe, le mélange peut donc être modélisé par une équation d'advection-diffusion, dont le terme d'advection est piloté par le mouvement moyen du liquide et dont le terme diffusif est calculé à partir du coefficient de diffusion effectif mesuré en écoulement homogène.
Pour la configuration 3, nous constatons que le temps de mélange macroscopique est bien plus court que l'échelle de temps de diffusion (tableau 7.2.4). Cela signifie qu'il n'est plus possible de prédire le temps de mélange à partir d'un modèle dans lequel seulement l'advection par le mouvement moyen du liquide et la diffusion induite par les bulles sont superposées. Il est alors nécessaire de décrire le transport par les échelles issues de la turbulence de cisaillement.

7.3 Conclusion du chapitre

Lors de l'étude du mélange dans un écoulement à bulles inhomogène, trois configurations expérimentales ont été investiguées. Deux d'entre elles sont peu intenses et développent peu de turbulence de cisaillement. Dans ce type d'écoulement, deux mécanismes de transport sont présents et se superposent : un transport advectif du traceur par la vitesse moyenne du liquide et un mélange induit par les bulles. Ce mélange induit par les bulles peut être estimé par un terme diffusif dont les coefficient de diffusion mesurés dans un essaim de bulles homogène constitue un modèle de sous-maille. Cette diffusion assure l'homogénéisation du traceur localement, en particulier dans les zones où il n'y a de mouvement moyen du liquide. La troisième configuration consiste en l'étude du mélange en présence de turbulence de cisaillement. Nous avons pu voir que dans ces écoulements, il est nécessaire de prendre en compte la convection par les grandes échelles de la turbulence pour estimer le temps de mélange. Ces grandes échelles pourraient alors être résolues par simulations numériques.

Conclusion générale

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

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

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

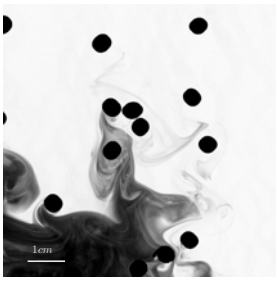
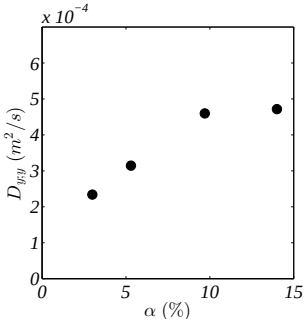
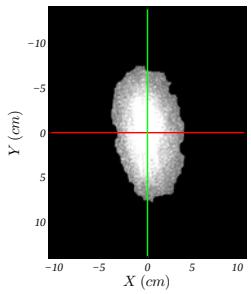
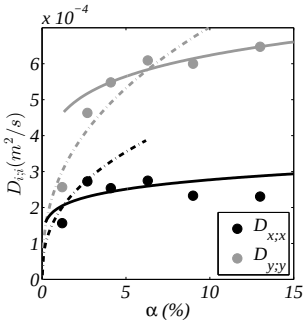
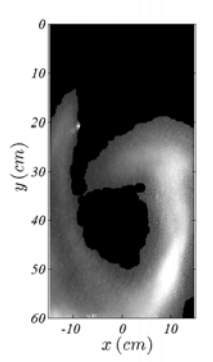
Contrairement à l'écoulement fortement confiné au sein duquel la turbulence ne peut se développer, l'agitation du liquide dans un écoulement à bulles tridimensionnel résulte *a priori* de deux contributions, la première provenant des sillages proches et la seconde des interactions entre les sillages.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

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

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

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

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

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

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

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

V_p : Vitesse de propagation du traceur,

U : Vitesse moyenne du liquide,

D_m : Diffusion moléculaire du traceur,

D_{ii} : Diffusion induite par les bulles,

D_t : Diffusion par la turbulence de cisaillement,

S : Coefficient de dissymétrie entre le haut et le bas

Bibliographie

[1] Ansys fluent 14.5. *Theory Guide*, 2014.

[2] ABBAS, M., BILLET, A.M. & ROIG, V. Experiments on mass transfer and mixing in a homogeneous bubbly flow. *Turbulence, Heat and Mass Transfer Conference 6*, 2009.

[3] AMOURA, Z. *Etude hydrodynamique de l'écoulement traversant un réseau alléatoire de spheres fixes.* PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2008.

[4] BERNEMANN, K. *Zur Fluidddynamik und zum Vermischungsverhalten der flussigen Phase in Blasensäulen mit längsangeströmten Rohrbundeln.* PhD thesis, University Dortmund, 1989.

[5] BESNACI, C. *Mélange induit par un écoulement au travers un réseau aléatoire d'obstacles.* PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2012.

[6] BOUCHE, E., CAZIN, S., ROIG, V., RISSO, F. & BILLET, A.M. Mixing swarm of bubbles rising in a confined cell measured by mean of plif with two different dyes. *16th Int. Symp. on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics*, 2012.

[7] BOUCHE, E., ROIG, V., RISSO, F. & BILLET, A.M. Homogeneous swarm of high-reynolds-number bubbles rising within a thin gap. part 1. bubble dynamics. *J. Fluid Mech.*, 704 :211–231, 2012.

[8] BOUCHE, E., ROIG, V., RISSO, F. & BILLET, A.M. Homogeneous swarm of high-reynolds-number bubbles rising within a thin gap. part 2. liquid dynamics. *J. Fluid Mech.*, 758 :508–521, 2014.

[9] BROWN, AR.D, JONES, N.P., MIDDLETON, C.J., PAPADOPOULOS, G. & ARIK, E.B. *Experimental Methods, in L. E. Paul A. V. Atiemo-Obeng and M. S. Kresta, Eds., Handbook of Industrial Mixing.* John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, NJ, 2004.

[10] BUIRET, P.L. Caractérisation expérimentale de l'hydrodynamique de réacteurs gaz-liquide. *Rapport interne IFPEN*, 2013.

[11] CLIFT, R., GRACE, J.R. & WEBER, M.E. *Bubble Drops and Particles.* Academic Press, 1978.

[12] COLOMBEST, D.P., RAMACHANDRAN, A. & DUDUKOVIC, M.P. On the gradient diffusion hypothesis and passive scalar transport in turbulent flow. *Ind. Eng. Science Res.*, 50 :8817–8823, 2011.

[13] CORRSIN, S. Estimates of the relation between eulerian and lagrangian scales in large reynolds number turbulence. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 20 :115–119, 1963.

[14] CRIMALDI J. Planar laser induced fluroescence ina qeous flows. *Exp. Fluids*, 44 :851–863, 2008.

[15] DAVIDSON, P.A. Turbulence, an introduction for scientists and engineers. *Oxford*, 2003.

[16] EUZENAT, F. Simulation cfd du mélange et de la dispersion dans des fermenteurs aérobies. *Rapport interne IFPEN*, 2014.

[17] GABELLE, J.C, AUGIER, F., CARVALHO, A., ROUSSET, R., MORCHAIN, J. Effect of tank size on kla and mixinig time in aerated stirred reactors with non-newtonian fluids. *Can. J. Chem. Eng.*, 89 :1139–1153, 2011.

[18] HINZE, J. O. Turbulence. *McGraw-Hill Classic Textbook Reissue Series*, 1959.

[19] JOSHI, J. Solid-liquid fluidised beds : some desing aspects. *Chemical Engineering Research and Design*, 61 :143–161, 1983.

[20] KAWASE, Y. & MOO-YOUNG, M. Liquid phase mixing in bubble columns with newtonian and non-newtonian fluids. *Chemical Engineering Science*, 41 :1969–1977, 1986.

[21] LINNEWEBER, K. *Örtliche Gehalte an Gas sowie an Gas und Feststoff in Blasensäulen.* PhD thesis, TU München, 1981.

[22] MAREUGE, I. & LANCE, M. Bubble induced dispersion of a passive scalar in a bubbly flow. *Int. Conf. on Multiphase Flow*, 1995.

[23] MARTÍNEZ-MERCADO, J., GÓMEZ, D.C., VAN GILS, D., SUN, C. & LOHSE, D. On bubble clustering and energy spectra in pseudo-turbulence. *J. Fluid Mech.*, 650 :287 ?306, 2010.

[24] MARTÍNEZ-MERCADO, J., PALACIOS-MORALES, C.A. & ZENIT, R. Measurement of pseudoturbulence intensity in monodispersed bubbly liquids for $10 < \mathrm{re} < 500$. *Phys. Fluids*, 19 :103302, 2007.

[25] MENDEZ-DIAZ, J.C., SERRANO-GARCÍA, J.C. & ZENIT, R. Power spectral distributions of pseudo-turbulent bubbly flows. *Phys. Fluids*, 25 :043303, 2013.

[26] RADL, S. & KHINAST, J. Multiphase flow and mixing in dilute bubble swarms. *AIChe J.*, 56 :2421–2445, 2010.

[27] RIBOUX, G. *Hydrodynamique d'un essaim de bulles en ascension.* PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2007.

[28] RIBOUX, G., RISSO. & LEGENDRE, D. Experimental caracterization of the agitation generated by bubbles rising at high reynolds number. *J. Fluid Mech.*, 643 :509–539, 2009.

[29] RISSO, F. Theoritical model for k-3 spectra in dispersed multiphase flow. *Physics of fluids*, 23 :011701, 2011.

[30] RISSO, F. & ELLINGSEN, K. Velocity fluctuations in a homogeneous dilute dispersion of high-reynolds-number rising bubbles. *J. Fluid Mech.*, 453 :395–410, 2001.

[31] RISSO, F., ROIG, V., AMOURA, Z., BILLET, A.-M. The dual nature of pseudo-turbulence analyzed from spatial and time avergings of a flow through random obstacles. *7th International Conference on Multiphase Flow, Tampa*, 2010.

[32] ROIG, V., LARUE DE TOURNEMINE, A. Measurement of interstitial velocity of homogeneous bubbly flow at low to moderate void fraction. *J. Fluid Mech.*, 572 :87–110, 2007.

[33] ROIG, V., ROUDET, M., RISSO, F., BILLET, A.-M. Dynamics of a high-reynolds-number bubble rising within a thin gap. *J. Fluid Mech.*, 707 :444–466, 2011.

[34] ROUDET, M. *Hydrodynamique et transfert de masse autour d'une bulle confiné entre deux plaques planes.* PhD thesis, Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2008.

[35] SATO, Y. & SADATOMI, M. Momentum and heat transfer in two-phase bubble flow. *Int. J. Multiphase Flow*, 7 :167–177, 1981.

[36] SOCOLOFSKY, S.A. & JIRKA, G.H. Cven 489-501 : Special topics in mixing and transport processes in the environnement. 5th edition. *Texas A & M University*, pages 1–172, 2005.

[37] TANINO, Y. & NEPF, H. Lateral dispersion on random cylinder arrays at high reynolds number. *J. Fluid Mech.*, 600(339-371), 2008.

[38] TAYLOR, G. Diffusion by continuous movements. 1921.

[39] TENNEKEES, H. & LUMLEY, J.L. A first course in turbulence. *The MIT Press*, 1972.

[40] WHITE, B. & NEPF, H. Scalar transport in random cylinder arrays at moderate reynolds number. *J. Fluid Mech.*, 487 :43–79, 2003.

Annexe A

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

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

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

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

A.1.1 Configuration expérimentale et protocole d'injection

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

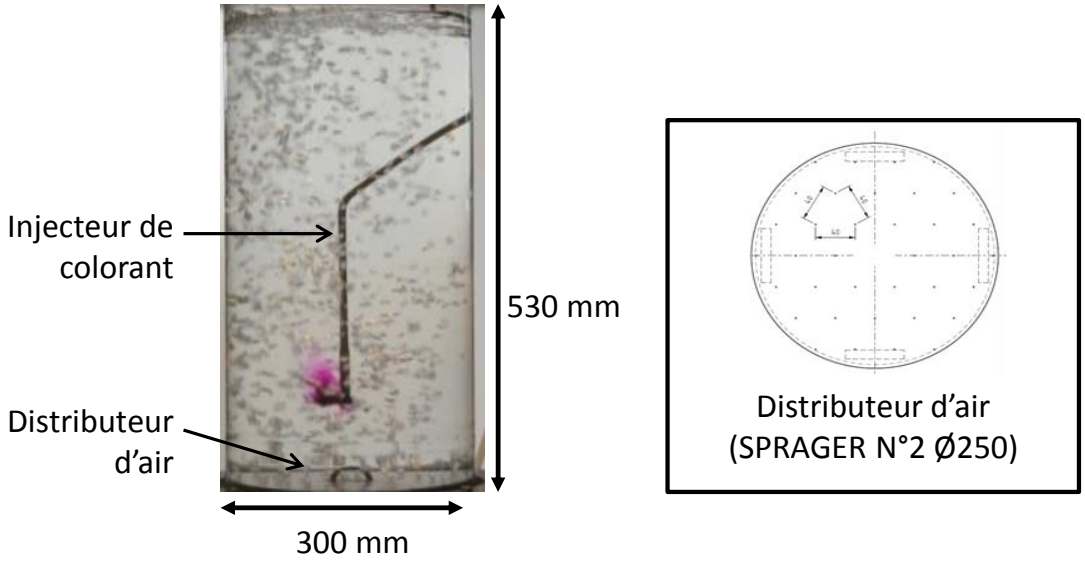


FIGURE A.1 – Configuration expérimentale de l'IFP Energies nouvelles

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

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

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

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

A.1.2 Mesure de temps de mélange

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

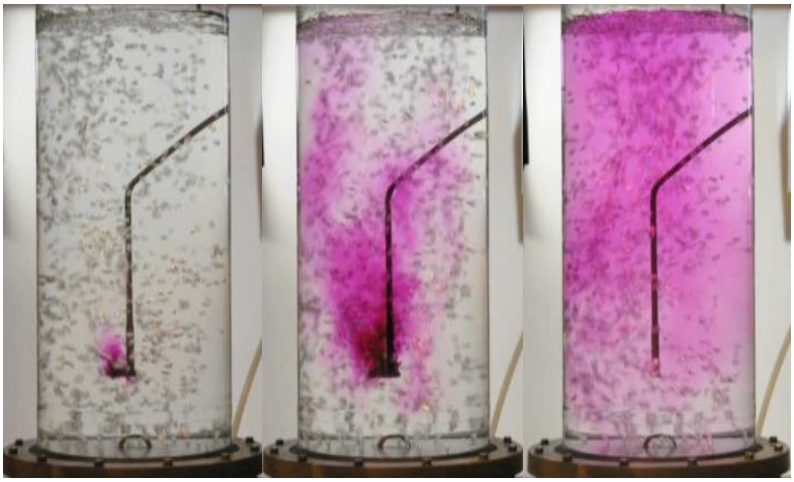


FIGURE A.2 – Expérience de mélange

Une fois les expériences réalisées, un traitement d'image développé à l'IFPEN est appliqué aux images dans le but de mesurer un temps de mélange macroscopique qui tient compte de l'ensemble des mécanismes de mélange à savoir le transport par le mouvement moyen, le mélange induit par les bulles et par la turbulence de cisaillement. Ce traitement de l'image consiste à diviser le champ d'observation en n_p = 12 fenêtres d'investigation, chaque fenêtre faisant 1 cm^2 environ. Le positionnement des fenêtres d'investigation est alors un élément clé du traitement puisqu'il doit permettre de prendre en compte l'ensemble des mécanismes de mélange. Les fenêtres sont donc positionnées judicieusement et spécifiquement à chaque écoulement. Ensuite, le niveau de gris moyenné sur chaque fenêtre d'investigation et normalisé par la valeur finale respective de chaque fenêtre est calculé. Ce niveau de gris moyen et normalisé est noté C_i par la suite, l'indice i faisant référence au numéro de la fenêtre d'investigation. Le temps de mélange est alors estimé lorsque la

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

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

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

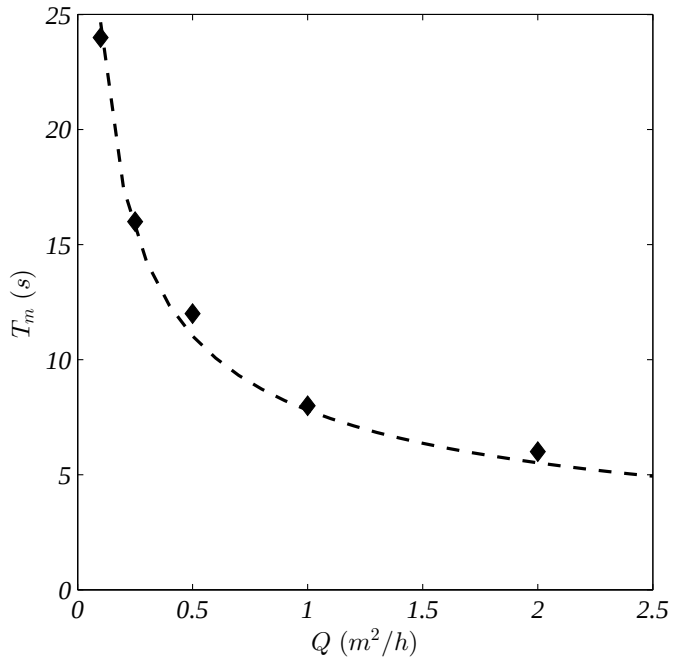


FIGURE A.3 – Temps de mélange en fonction du débit d'air. Données expérimentales (⧫). Approximation par une loi en $\frac{1}{\sqrt{\alpha}}$ (en pointillé).

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

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

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

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

A.2.1 Equations locales multiphasiques

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$\Gamma_i = \rho_l (D_t + D_{ii}) \tag{A.7}$$

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

A.2.2 Mise en œuvre sous Fluent

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

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

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

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

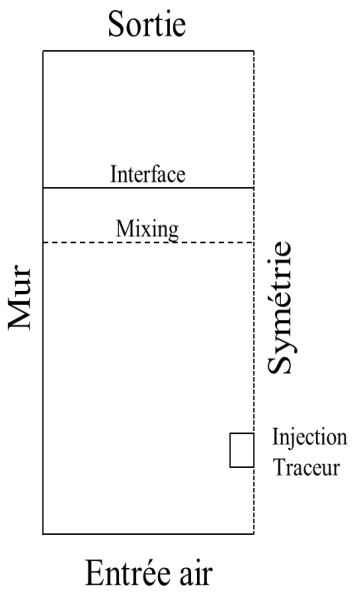


FIGURE A.4 – Maillage et conditions aux limites

A.2.3 Validation du modèle hydrodynamique

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

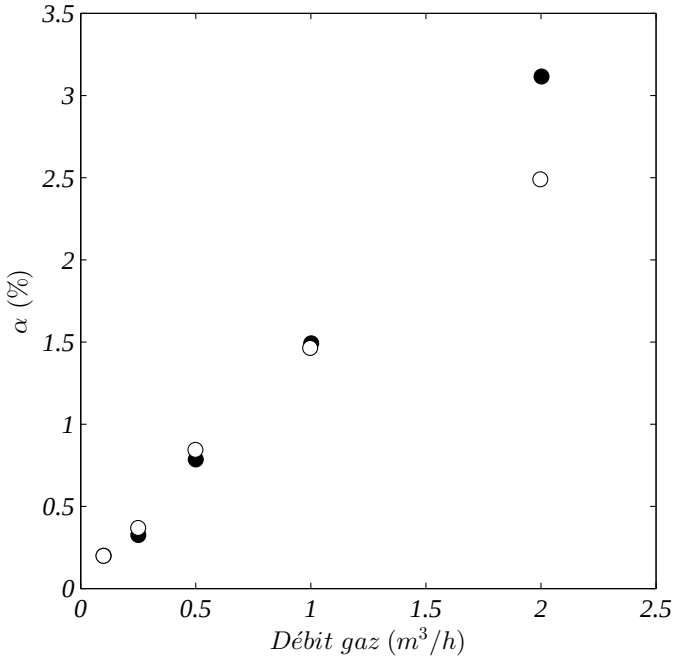


FIGURE A.5 – Validation de l'hydrodynamique de l'écoulement par comparaison des fractions volumiques globales en fonction du débit. Données expérimentales (•). Simulations numériques (∘).

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

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

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

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

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

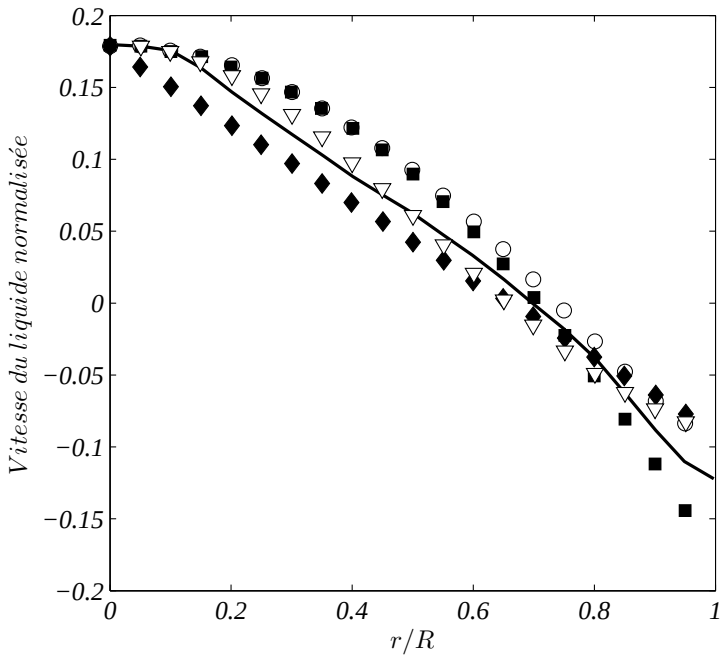
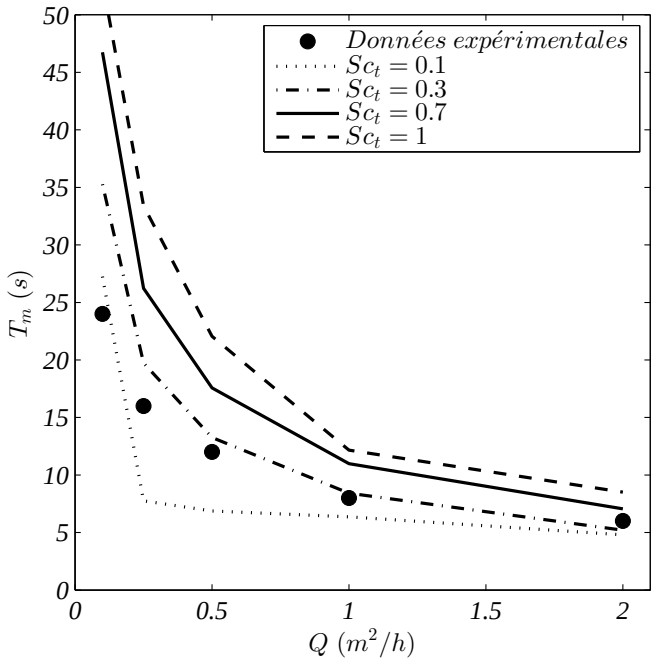


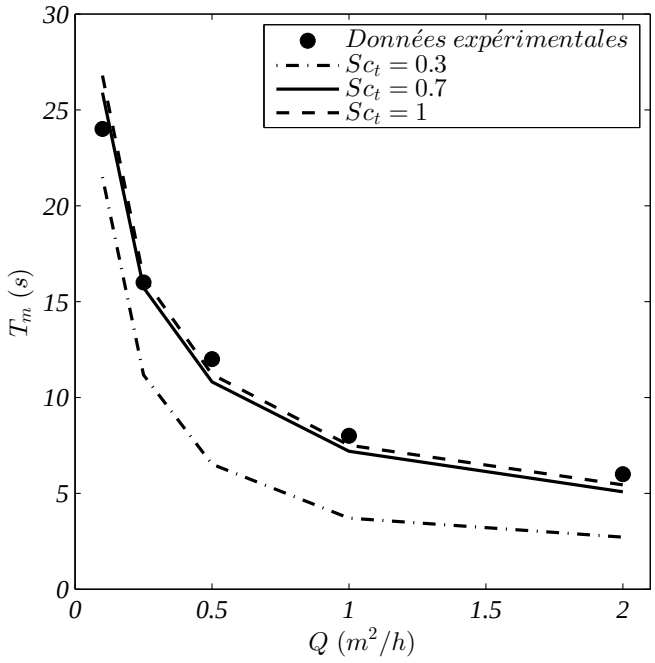
FIGURE A.6 – Validation de l'hydrodynamique de l'écoulement par comparaison du profil de vitesse moyenne du liquide à une hauteur H =0.4 m. Profil de vitesse du liquide simulé (trait plein). Corrélation de Berneman, 1989 (○). Corrélation de Joshi, 1983 (⧫). Corrélation de Kawase, 1986 (■). Corrélation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

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

Concernant les simulations numériques de transport de scalaire, deux modèles de diffusivité ont été testés (équation A.7). Le premier modèle de diffusion consiste à considérer uniquement la diffusion turbulente et donc de ne pas prendre en compte la diffusion induite par les bulles, ce qui signifie que $\Gamma_i = D_{turb} = \frac{\nu_t}{Sc_t}$. Dans ce cas-ci, une sensibilité au nombre de Schmidt a été réalisée en faisant varier le nombre de Schmidt entre 0.1 et 1.5. Pour chaque nombre de Schmidt turbulent imposé, le temps de mélange en fonction du débit d'air a été calculé (figure A.7 a). Dans ce cas-ci, il est nécessaire de considérer des nombres de Schmidt très faibles entre 0.1 et 0.3 pour parvenir à obtenir le même ordre de grandeur de temps de mélange que ceux observé expérimentalement. C'est ce qui est reporté par Radl & Khinast, 2010. Néanmoins l'abaissement du nombre de Schmidt ne permet pas de prédire de manière robuste le temps de mélange. En effet, il n'est pas possible de traiter l'ensemble de la gamme de débit étudié expérimentalement sans adapter le nombre de Schmidt turbulent à chaque simulation. De plus, l'abaissement du nombre de Schmidt à des valeurs de 0.1-0.3 n'est pas physique puisque en turbulence homogène isotrope, celui-ci est de l'ordre de 0.9 et il n'y a pas de justification physique pour que cette valeur soit totalement différente en diphasique.
Dans un deuxième temps, un modèle de diffusion comprenant à la fois la diffusion turbulente mais aussi la contribution de bulle a été testé. La diffusion par les bulles D_{ii} a été estimée à partir d modèle que nous avons proposé au chapitre 6.3.2. Quant à la diffusion turbulente, celle-ci est toujours estimée à partir du nombre de Schmidt turbulent. Le coefficient de diffusion s'écrit donc ainsi $\Gamma_i = D_{turb} = \frac{\nu_t}{Sc_t} + D_{ii}$. Une sensibilité au nombre de Schmidt a de nouveau été réalisée pour des nombres de Schmidt compris entre 0.3 et 1. La figure A.7 b) présente les temps de mélange obtenus par simulation pour différents Sc_t en fonction de la fraction volumique de gaz. Lorsque la contribution des bulles est prise en compte dans la modélisation du coefficient de diffusion, un nombre de Schmidt de l'ordre de 0.7 à 1 permet alors de restituer fidèlement les résultats expérimentaux et ce quelque soit le débit d'air investigué dans cette étude. Le temps de mélange devient alors insensible au nombre de Schmidt lorsque celui-ci est compris entre 0.7 à 1. Cette gamme de nombre de Schmidt est plus cohérente par rapport à ce qui est observé en turbulence homogène isotrope monophasique. L'apport de notre modélisation du coefficient de diffusion qui prend en compte la contribution des bulles semble donc constituer un réel apport pour prédire de manière robuste le transport d'espèces chimiques et de scalaires par CFD.



(a) Sans contribution des bulles



(b) Avec contribution des bulles

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

A.4 Conclusion du chapitre

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

Annexe B

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

Under consideration for publication in J. Fluid Mech. 1

Mixing by bubble-induced turbulence

Elise Alméras[1,2], Frédéric Risso[1], Véronique Roig[1], Sébastien Cazin[1], Cécile Plais[2] and Frédéric Augier [2]

1 Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, Université de Toulouse and CNRS. Allée C. Soula, Toulouse, 31400, France.
2 IFP Energies nouvelles, Rond-point de l'échangeur de Solaize, BP 3, 69360 Solaize, France

(Received 12 October 2014)

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

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

1. Introduction

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

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

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

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

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

2. Experimental set-up and instrumentation

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

3. Hydrodynamic characteristics of the bubble swarm

The dynamics of both phases has already been experimentally investigated in detail (Riboux, Risso & Legendre 2010; Colombet *et al.* 2011, 2014) and also numerically simulated (Riboux, Legendre & Risso 2013). In particular, the present bubble injection uses the same capillary tubes with the same spatial distribution as in previous experiments mentioned above. The only difference with the former setup is that the tank cross-section is a rectangle of 15×30 cm^2 instead of a square of 15×15 cm^2, a wider system being required to allow a sufficient time before the dye reaches the walls. For a homogeneous flow, the size of the tank is not a control parameter. An extensive investigation of the dynamics has therefore not been carried out again in the present work.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

4. Mixing induced by the bubbles

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

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

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

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

$$\sigma_i^2 = 2\,D_{ii}\,t. \tag{4.2}$$

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

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

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

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

collected by a camera pointing in the y-direction:

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

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

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

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

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

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

5. Physical interpretation and modelling

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

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

$$D_h^{low} = k_l \, u'_x \Lambda \,, \tag{5.1}$$

$$D_v^{low} = k_l \, u'_z \Lambda \,, \tag{5.2}$$

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

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

given by

$$D_h^{high} = k_h \, {u'_x}^2 \Delta t_m \,, \tag{5.3}$$

$$D_v^{high} = k_h \, {u'_z}^2 \Delta t_m \,, \tag{5.4}$$

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

6. Concluding remarks

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

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

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

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

REFERENCES

Abbas, M., Billet, A. M. & Roig, V. 2009 Experiments on mass transfer and mixing in a homogeneous bubbly flow. *Proceedings of the 6th International Symposium on Turbulence, Heat and Mass Transfer*, 815-817, Rome, Italy.

Bouche, E., Cazin, S., Roig, V. & Risso, F. 2013 Mixing in a swarm of bubbles rising in a confined cell measured by mean of PLIF with two different dyes. *Exp. in Fluids* **54**, **1552**

Bouche, E., Roig, V. Risso, F. & Billet, A.-M. 2014 Homogeneous swarm of high-Reynolds-number bubbles rising within a thin gap. Part 2. Liquid dynamics. *J. Fluid Mech.* **758**, 508–521.

Colombet, D., Legendre, D., Cockx, A., Guiraud, G., Risso, F., Daniel, C. & Galinat, S. 2011 Experimental study of mass transfer in a dense bubble swarm. *Chem. Eng. Science* **66**, 3432–3440.

Colombet, D., Legendre, D., Risso, F., Cockx, A. & Guiraud, P. 2014 Dynamics and mass transfer of rising bubbles in an homogeneous swarm at large gas volume fraction. submitted to *J. Fluid Mech.*

Combest, D. P., Ramachandran, A. & Dudukovic, M. P. 2011 On the gradient diffusion hypothesis and passive scalar transport in turbulent flows. *Ind. Eng. Chem. Res.* **50**, 8817–8823.

Corrsin, S. 1963 Estimates of the Relations between Eulerian and Lagrangian Scales in Large Reynolds Number Turbulence. *Journal of the Atmospheric Sciences* **20**, 115–119.

Lance, M. &. Bataille, J. 1991 Turbulence in the liquid phase of a uniform bubbly air-water flow. *J. Fluid Mech.* **222**, 95–118.

Mareuge, I. & Lance, M. 1995 Bubble-induced dispersion of a passive scalar in bubbly flows. *Proceedings of the 2nd International Conference on Multiphase Flow*, PT1-3–8, Kyoto, Japan.

Martínez-Mercado, J., Palacios-Morales, C. A. & Zenit, R. 2007 Measurement of pseudoturbulence intensity in monodispersed bubbly liquids for $10 < Re < 500$. *Phys. Fluids* **19**, 103302.

Martínez-Mercado, J., Gómez, D. C., van Gils, D., Sun, C. & Lohse, D. 2010 On bubble clustering and energy spectra in pseudo-turbulence. *J. Fluid Mech.* **650**, 287–306.

Mendez-Diaz, J. C., Serrano-García, J. C. & Zenit, R. 2013 Power spectral distributions of pseudo-turbulent bubbly flows. *Phys. Fluids* **25**, 043303.

Radl, S. & Khinast, J. 2010 Multiphase Flow and Mixing in Dilute Bubble Swarms. *AIChe J.* **56**, 2421–2445.

Riboux, G., Legendre, D. & Risso, F. 2013 A model of bubble-induced turbulence based on large-scale wake interactions. *J. Fluid Mech.* **719**, 196–212.

Riboux, G., Risso, F. & Legendre, D. 2010 Experimental characterization of the agitation generated by bubbles rising at high Reynolds number. *J. Fluid Mech.* **643**, 509–559.

Risso, F. & Ellingsen, K. 2002 Velocity fluctuations in a homogeneous dilute dispersion of high-Reynolds-number rising bubbles. *J. Fluid Mech.* **453**, 395–410.

Socolofsky, S. A. & Jirka, G. H. 2005 CVEN 489-501: Special Topics in Mixing and Transport Processes in the Environment. 5th edition. *Texas A&M University*, 1–172.

Taylor, G. I. 1922 Diffusion by Continuous Movements. *Proc. London Math. Soc.* **s2-20 (1)**, 362–387.

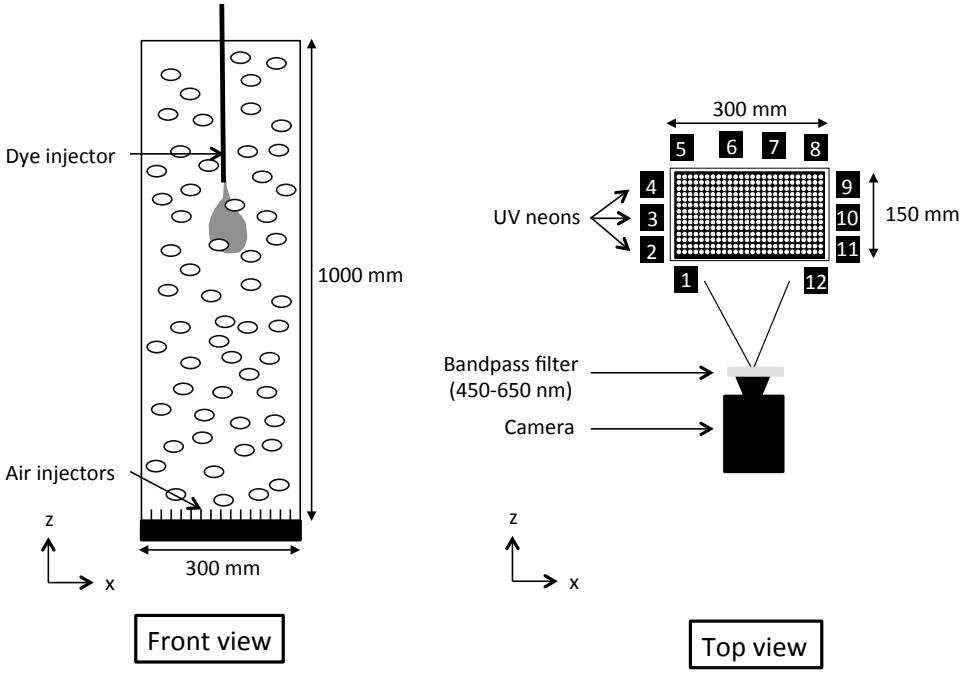


FIGURE 1. Experimental set-up

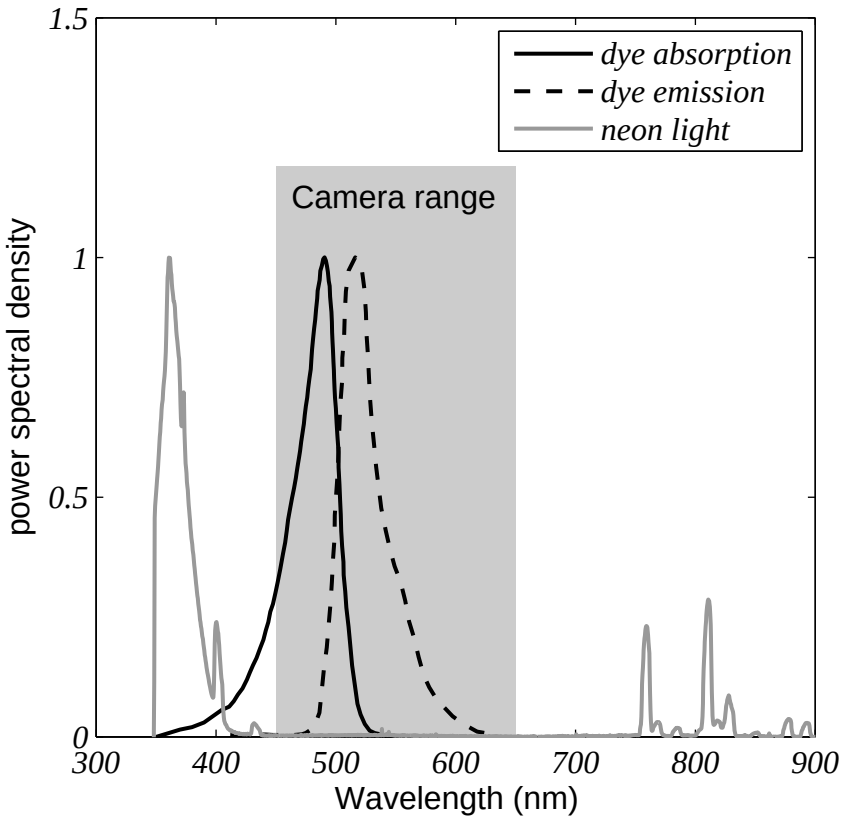


FIGURE 2. Spectrum of UV-neon light, fluorescein absorption and emission spectra, and range of wavelengths collected by the camera.

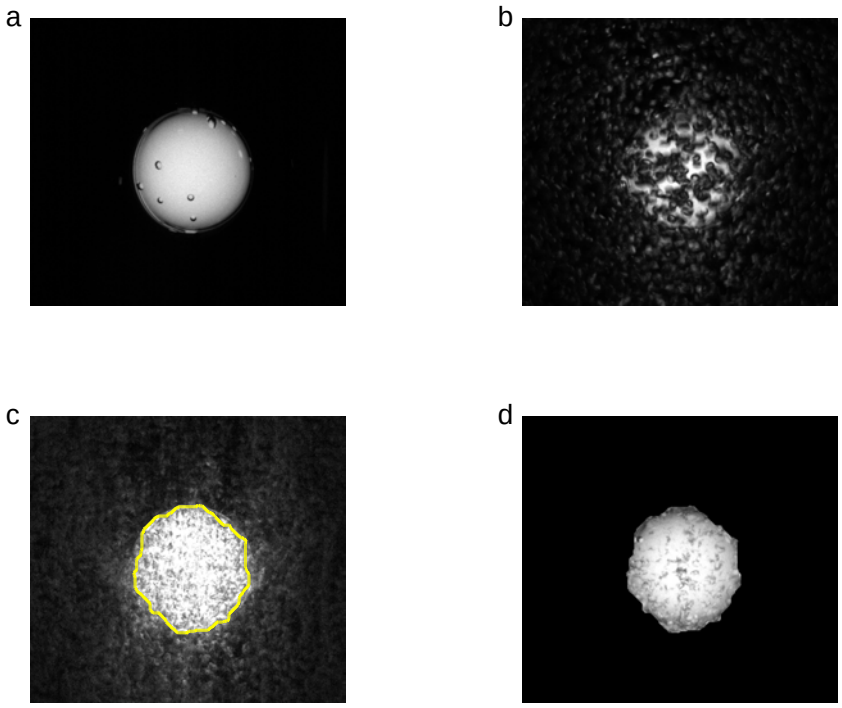


FIGURE 3. Steps of the image processing technique applied to a sphere that is filled with dye at concentration $C_S = 5 \times 10^{-5}\,\mathrm{mol\,L^{-1}}$: (a), reference image in the absence of bubbles; (b), raw image within the bubble swarm at $\alpha = 3.9\%$; (c), image obtained after taking the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

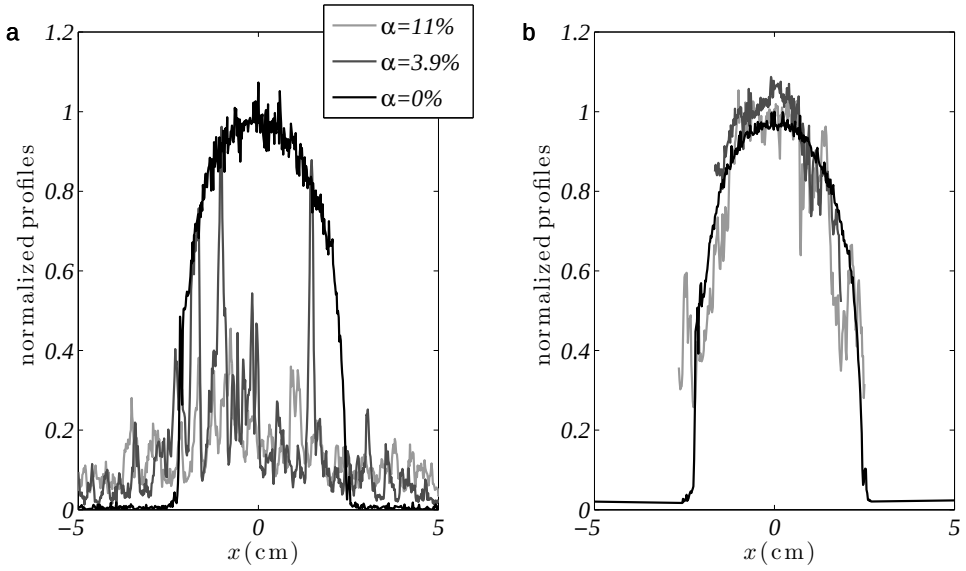


FIGURE 4. Grey-level profiles passing through the sphere centre: (a), raw image; (b) after image processing.

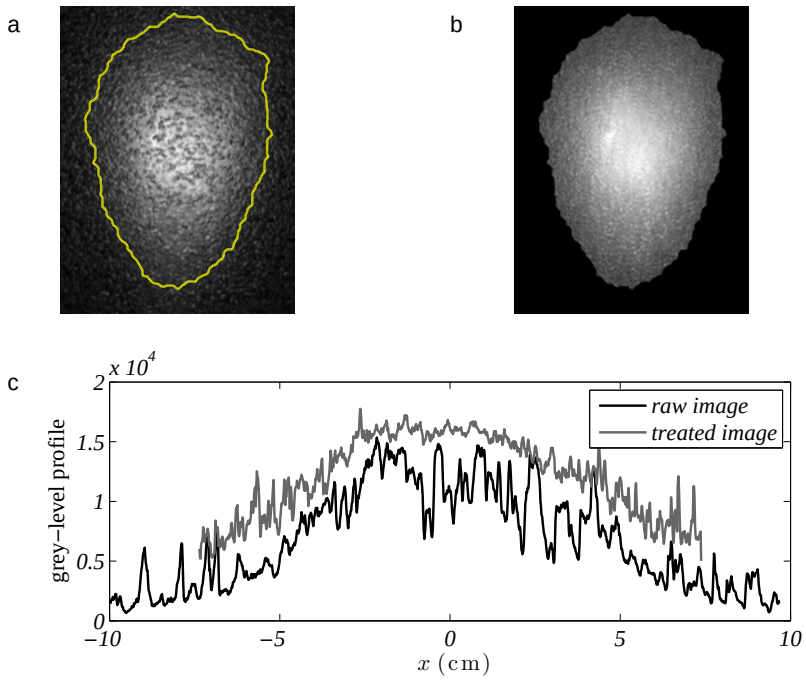


FIGURE 5. Illustration of image processing applied to mixing experiments ($t = 10\,\mathrm{s}$, $\alpha = 3\%$). (a), raw image with detected contour; (b) image after processing; (c), horizontal profiles of grey-levels before and after treatment.

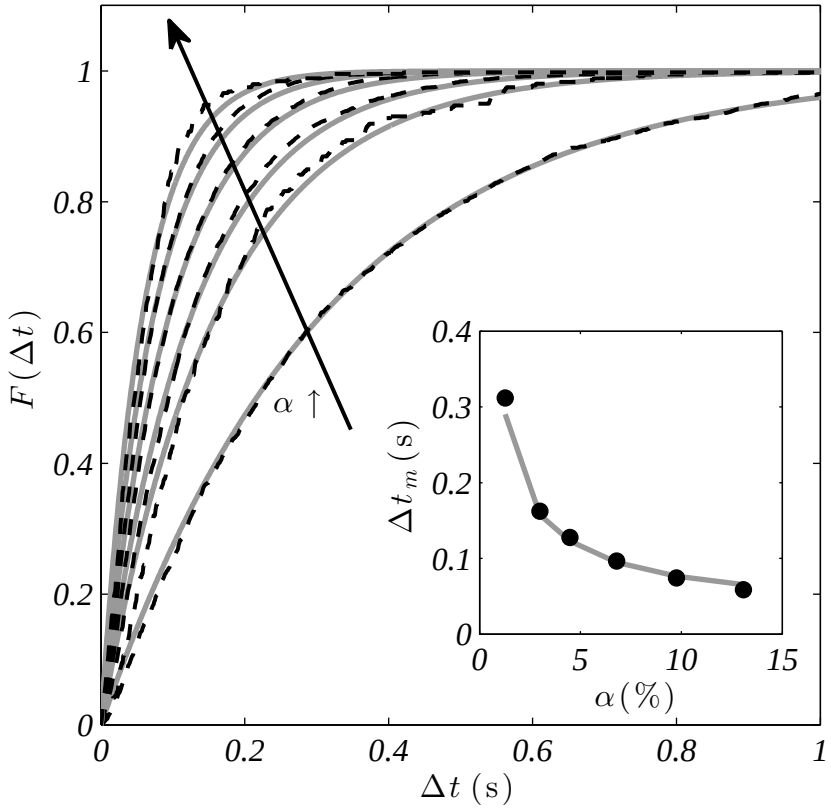


FIGURE 6. Time interval between consecutive bubbles for α=1.2, 2.7, 4.1, 6.3, 9 and 13%. Distribution function in the main figure and average time interval in the insert. Dark dashed-line or symbols: experimental measurements. Light continuous lines: eq. (3.1) for $F(\Delta t)$ and eq. (3.2) for$\Delta\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

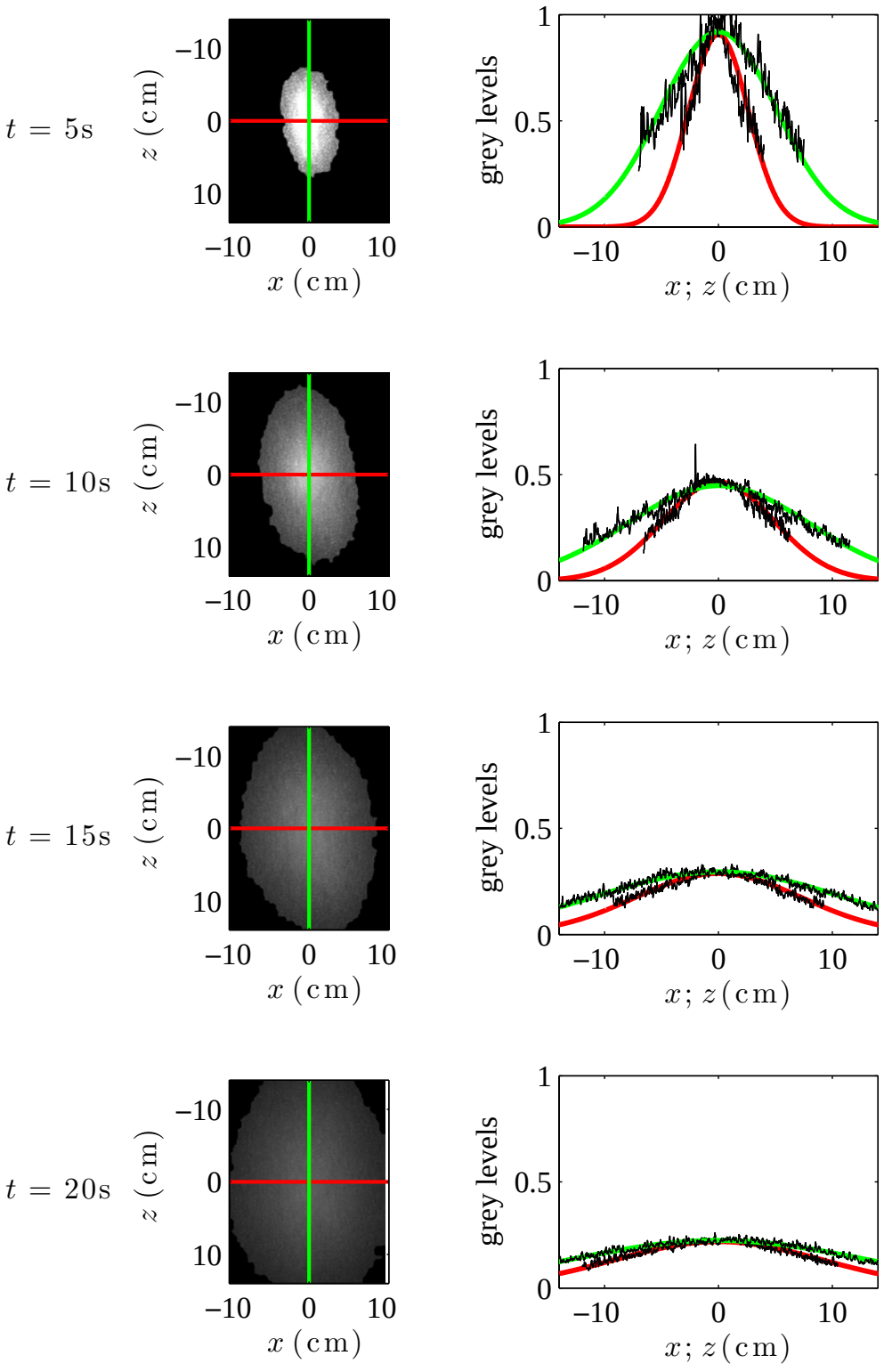


FIGURE 7. Time evolution of patch of dye for $\alpha = 4.5\%$. First column, images. Second column, experimental profiles of grey levels and curves fitted using eq. (4.4).

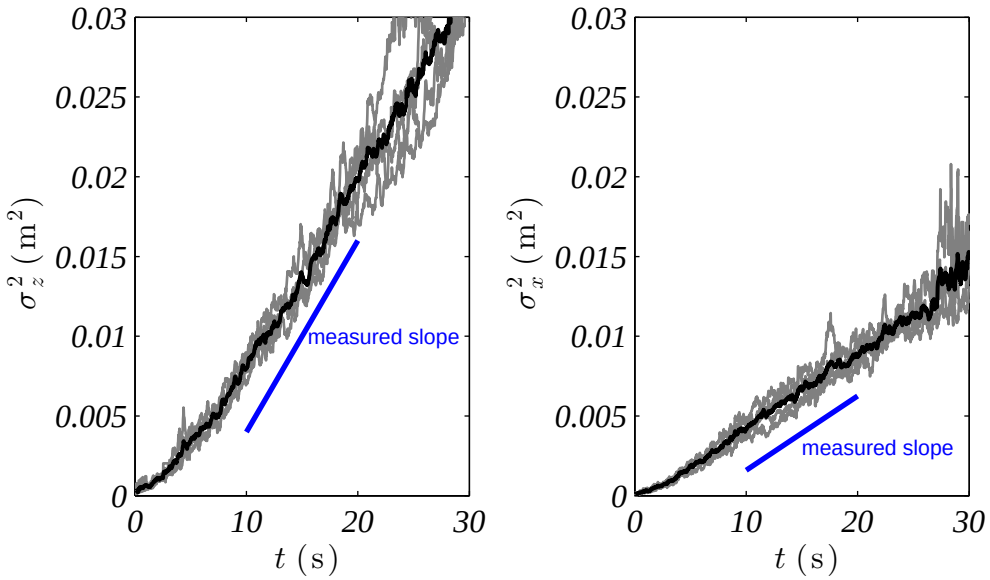


FIGURE 8. Time evolution of the variance of the spatial distribution of the patch of dye for $\alpha = 9\%$. Light-grey curves, individual tests. Black curves, average over 5 tests.

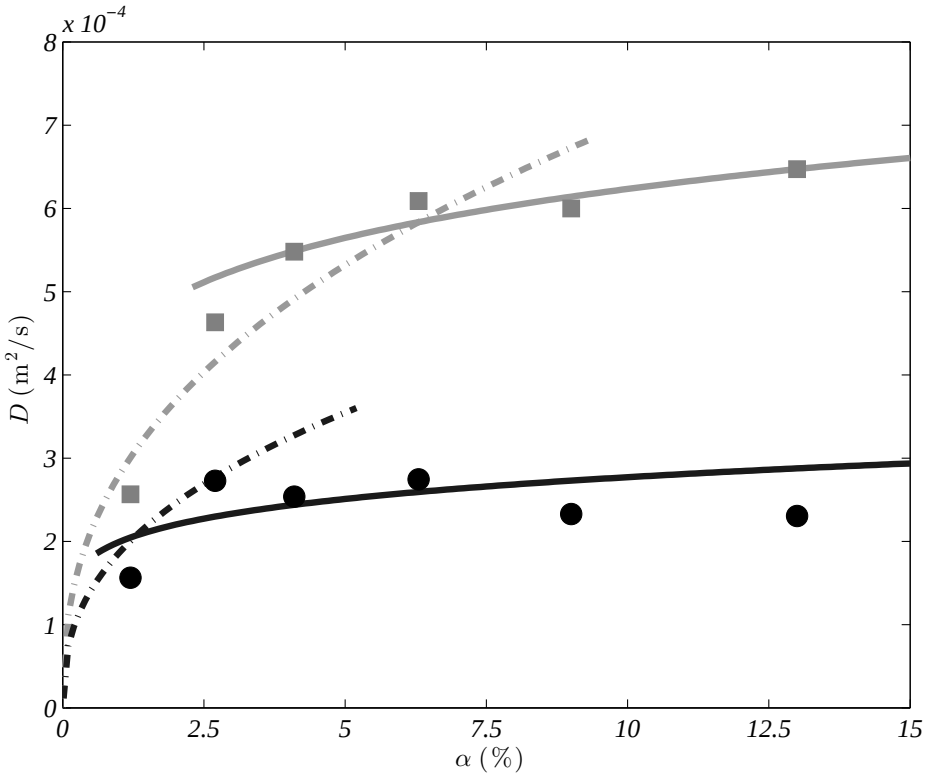


FIGURE 9. Diffusion coefficients against gas volume fraction. Circles, measured horizontal coefficients (D_h). Squares, measured vertical coefficient (D_v). Dashed lines, model (5.1-5.2) for low α with $k_l = 0.63$. Continuous lines, model (5.3-5.4) for large α with $k_h = 0.40$.