Numéro National de Thèse : 2017LYSEN018

THÈSE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LYON
opérée par
l'École Normale Supérieure de Lyon

École Doctorale N°52
Physique et Astrophysique de Lyon (PHAST)

Spécialité de doctorat : Physique

Soutenue publiquement le 22/06/2017, par :

Marion SERRES

Étude hydrodynamique d'un écoulement gaz-liquide dans un milieu poreux confiné

Devant le jury composé de :

Bodiguel, Hugues	Professeur	LRPG, Univ. Grenoble	Rapporteur
Boyer, Christophe	Chef de dpt.	IFPEN, Solaize	Rapporteur
Billet, Anne-Marie	Professeur	LGC, Univ. Toulouse	Examinatrice
Bourgoin, Mickaël	Directeur de recherche	LPENSL, ENS de Lyon	Examinateur
Salin, Dominique	Professeur	FAST, Univ. Paris Sud	Examinateur
Vidal, Valérie	Chargée de recherche	LPENSL, ENS de Lyon	Directrice de thèse
Philippe, Régis	Chargé de recherche	LGPC, CPE Lyon	Co-encadrant de thèse

"Parmi les ingrédients qui composent la vraie sagesse,
on oublie trop souvent la lampée de folie."
[Amin Maalouf, *Le Périple de Baldassare*]

REMERCIEMENTS

Cette partie est sans nul doute une des plus délicates à rédiger. Il va de soit que je prends le temps d'y réfléchir et que je vais essayer de choisir mes mots pour rendre compte de tout le soutien qui m'a été consacré au cours de cette aventure collective. Ce travail de groupe résulte d'un réseau tissé avec soin au cours de ces trois années de travail entre deux laboratoires aussi différents que complémentaires.

Le LGPC, plutôt familial, m'a souhaité la bienvenue et m'a accueilli chaleureusement. Fred a d'abord pris soin de m'expliquer la conception d'un procédé, puis son utilisation. Fabrice n'était jamais très loin pour réaliser avec le plus grand soin les conceptions mûrement réfléchies avec Fred. Merci à vous deux pour votre incessante bonne humeur et pour la richesse de la relation que nous avons partagée pendant ces trois ans.

C'est au cours d'un congrès à Barcelone que j'ai pu me rapprocher de Steph et Valérie qui ont su me transmettre et partager des valeurs humaines rares que je conserverai précieusement. Merci à vous deux pour tous ces moments d'échange, pour vos services rendus sans compter pour l'adresse d'un fournisseur de mousse ou encore une mesure d'angle de contact et pour votre précieux soutien féminin !

Je n'oublie pas Laurent qui pour me changer les idées, venait me proposer des sorties en alpinisme sur sa cordée et la joie de partager ces trois années aux côtés d'autres thésards et post-doctorants. Merci à vous, Jihène, Thomas, Jonathan, Édouard, Amine, Boris et Carole pour votre soutien vos conseils et votre agréable compagnie.

Quant à Marie-Line, merci d'avoir partagé mon bureau dans la bonne humeur, et d'avoir toujours répondu présente lorsque je t'interpellais en te disant : aurais tu 5 min ? Merci pour tout ce que tu as réalisé pour ma thèse autant professionnellement qu'humainement.

Mon deuxième logis a été le laboratoire de physique à l'ENS : l'antre de la physique fondamentale ! L'arrivée d'une casseuse de cailloux a pu en effrayer quelques-uns, mais la grande majorité m'a accueilli les bras ouverts.

Je tiens à remercier particulièrement Cendrine, Fabien, Éric et Stéphane. Merci pour votre accueil très chaleureux et tous vos conseils pour la thèse et pour la suite, vos services et ces bons moments de rigolades le midi...

Dans ce laboratoire il y a beaucoup plus de thésards et de post-doctorants... à défaut de tous vous citer, je remercie particulièrement Victor et Thomas avec qui j'ai partagé mon bureau avec grand plaisir, et Raph, mon coéquipier précieux de la "team Valérie", toujours de bonne humeur et du plus grand soutien jusqu'à la soutenance.

Ce travail collectif s'est poursuivi jusqu'à l'évaluation de la thèse où nous avons tenu à rassembler des membres du jury issus du procédé et de la physique. Je remercie chaleureusement chaque membre du jury pour le temps consacré à l'évaluation de

mon travail et pour sa mise en valeur le jour de la soutenance grâce aux questions qui m'ont été posées.

Régis et Valérie, vous n'êtes pas inclus dans les équipes de chaque laboratoire car nous avons formé une équipe à part entière et sans frontière. Un grand merci pour votre accompagnement au cours de ces trois années, j'ai grandi à vos côtés. L'investissement que vous avez déployé pour m'orienter sur la bonne voie, m'a permis de m'épanouir et de découvrir le monde de la recherche avec sérénité. Merci pour toutes vos qualités et pour l'amitié que nous avons partagée. Votre soutien sans faille et votre confiance ont fait de cette aventure une réussite.

Si j'ai vécu ces trois ans dans le bonheur c'est grâce à tout ce que je viens de vous raconter mais c'est avant tout grâce aux fondations qui ont été bâties pour me permettre de me lancer sans crainte dans ce projet. Les premières pierres ont été posées avec soin il y a un petit moment dans un coin du Lot. Merci Papa, Maman et Aurélien pour votre amour et votre soutien sans faille qui m'ont construite et continuent de consolider toutes mes entreprises. Le bonheur que vous me procurer est un encouragement irremplaçable. Les dernières pierres sont maintenant complétées par ma belle-famille qui m'entoure de sa joie de vivre. Merci à vous tous pour les soirées interminables de relecture de ce manuscrit, et pour toute l'énergie déployée afin d'offrir à tous une très belle journée de soutenance.

... vous l'aurez compris, ce travail était loin d'être une aventure en solitaire, je tiens donc à remercier tous ceux que j'aurais malencontreusement oubliés et qui ne m'en voudront pas.

Je tiens à terminer ces remerciements par mon "coatch", soigneur et accompagnateur de tous les jours qui a fait de ces trois années une très belle histoire. Merci Clément pour tes encouragements permanents, ton écoute incessante et toutes les heures passées à corriger et améliorer écrits et oraux. Merci surtout de m'entourer chaque jour de ta complicité, tes sourires, ton bonheur et ton amour...

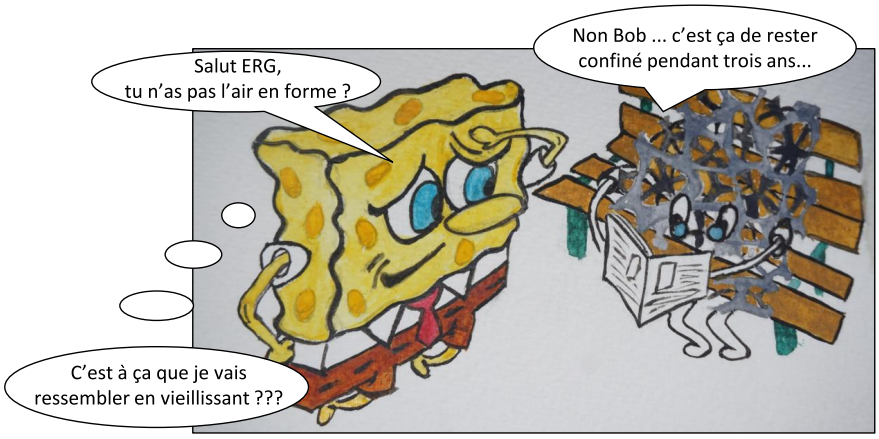

TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION 1

1 ÉTAT DE L'ART 5
- 1.1 Un tour d'horizon . . . 5
- 1.2 Les milieux poreux : de la nature à l'industrie . . . 6
  - 1.2.1 Propriétés . . . 7
  - 1.2.2 Cas particulier : les mousses solides . . . 10
- 1.3 Portraits d'écoulements : les régimes hydrodynamiques . . . 12
  - 1.3.1 Nombres sans dimension . . . 13
  - 1.3.2 Régimes hydrodynamiques . . . 14
- 1.4 Des lois et des Hommes . . . 20
  - 1.4.1 De Danckwerts aux modèles de marche au hasard . . . 21
  - 1.4.2 De Darcy à la modélisation numérique . . . 28
- 1.5 Verrous et objectifs . . . 33

2 MATÉRIEL ET MÉTHODES 37
- 2.1 Présentation des dispositifs expérimentaux . . . 37
  - 2.1.1 Canal millifluidique (1D) . . . 37
  - 2.1.2 Cellule de Hele-Shaw (2D) . . . 39
  - 2.1.3 Fluides . . . 41
  - 2.1.4 Milieux poreux . . . 42
  - 2.1.5 Protocoles expérimentaux (1D/2D) . . . 44
- 2.2 Analyse globale . . . 45
  - 2.2.1 Distribution de temps de séjour . . . 46
  - 2.2.2 Pertes de charge . . . 47
  - 2.2.3 Transfert gaz-liquide . . . 49
- 2.3 Analyse locale . . . 52
  - 2.3.1 Répartition des phases dans le milieu poreux . . . 52
  - 2.3.2 Détection du mouvement des interfaces . . . 55

3 HYDRODYNAMIQUE GLOBALE 57
- 3.1 Distribution de temps de séjour (DTS) . . . 58
  - 3.1.1 Introduction de la fonction cumulée . . . 58
  - 3.1.2 Modélisation par convolution . . . 59
  - 3.1.3 Résultats . . . 64
  - 3.1.4 Discussion . . . 67
  - 3.1.5 Conclusion : validation et sens physique du $CSTR_4$ . . . 74
- 3.2 Modélisation des pertes de charge . . . 74
  - 3.2.1 Choix du modèle à l'échelle macroscopique . . . 74
  - 3.2.2 Modélisation de la perméabilité relative . . . 75
  - 3.2.3 Introduction du terme de piégeage capillaire . . . 77
  - 3.2.4 Conclusion sur les pertes de charge . . . 80
- 3.3 Transfert gaz-liquide . . . 81
  - 3.3.1 Canal vide : comparaison avec la littérature . . . 82

3.3.2 Évolution de $k_l a$ avec le changement de milieu poreux 83
3.3.3 $k_l a$ dans les mousses solides : comparaison avec la littérature . . 84
3.4 Conclusion sur l'hydrodynamique globale 86
4 HYDRODYNAMIQUE LOCALE 89
4.1 Fraction liquide apparente 90
4.1.1 Évolution de la fraction liquide au cours de la propagation . . . 90
4.1.2 Comparaison entre valeur apparente et globale 90
4.1.3 Ergodicité du système 92
4.2 Régimes hydrodynamiques 92
4.2.1 Régime de Taylor et régime modulé 92
4.2.2 Origine de la fréquence modulée 94
4.2.3 Stabilité de l'écoulement amont 97
4.3 Analyse dimensionelle 99
4.3.1 Nombres sans dimension représentatifs du système 99
4.3.2 Nombre de Weber modifié 101
4.3.3 Nombre de Strouhal 101
4.4 Longueur critique de bulle 102
4.4.1 Expression mathématique 102
4.4.2 Discussion sur le caractère prédictif 103
4.5 Modèle phénoménologique 104
4.5.1 Formulation du modèle 105
4.5.2 Temps caractéristiques 107
4.5.3 Résultats 109
4.6 Conclusion sur l'hydrodynamique locale 111
5 INFLUENCE DE LA GRAVITÉ ET DU CONFINEMENT 115
5.1 Effet de la gravité (écoulement 2D) 115
5.1.1 Diversité des régimes hydrodynamiques 116
5.1.2 Fraction d'aire de mélange 120
5.1.3 Fraction d'aire de mouvement d'interface 121
5.2 Effet du confinement (écoulements 1D/2D) 122
5.2.1 Fraction d'aire de mélange 122
5.2.2 Fraction d'aire de mouvement d'interfaces 123
5.3 Conclusion sur les effets de gravité et de confinement 125

CONCLUSION 129

BIBLIOGRAPHIE 133
A CARACTÉRISTIQUES COMPLÈTES DES MILIEUX POREUX 143
A.1 Lits de billes 143
A.2 Mousses solides 145
A.2.1 Distributions des tailles caractéristiques 145
A.2.2 Calcul du nombre de pores par section 147
B INFLUENCE DU SEUIL DE DÉTECTION DES BULLES DE GAZ 151
C DONNÉES EXPÉRIMENTALES 155
C.1 Distribution de temps de séjour 155
C.2 Pertes de charge 158
C.3 Transfert de masse 160

D VALIDATION DE L'ALGORITHME MULTISTART 163
E LONGUEURS DE BULLES DE TAYLOR 167
F ARTICLE - DÉSORGANISATION DE L'ÉCOULEMENT DE TAYLOR 169
G ARTICLE - STABILITY OF TAYLOR BUBBLES 177
H ARTICLE - A PHENOMENOLOGICAL MODEL 179

NOMENCLATURE

ACRONYMES

ADE	Advection-Diffusion Equation (équation d'advection-diffusion)
CSTR	Continuous Stirred Tank Reactors (modèle de mélangeurs en cascade)
DTS	Distribution de Temps de Séjour
LHS	Latin Hypercube Sampling (méthode d'échantillonage)
fps	frames per second - images par seconde
PDE	Piston Dispersion Échange
PPI	Pores Per Inch - densité de pores (pores par pouces)

LETTRES LATINES

A_m	fraction d'aire de mélange [%]
A_i	fraction d'aire de mouvement d'interface [%]
a_s	surface spécifique du milieu poreux [m^2/m^3]
d	diamètre des particules [m]
d_c	diamètre des cellules de la mousse [m]
d_p	diamètre des pores du milieu poreux [m]
e	espacement entre les plaques de verre (expérience 2D) [m]
$E(t)$	distribution de temps de séjour - fonction de transfert [s^{-1}]
$E_\theta(\theta)$	distribution de temps de séjour exprimée en variable réduite [-]
f_{th}	fréquence théorique pour un écoulement de Taylor en canal vide [Hz]
f_0	fréquence principale de l'écoulement gaz-liquide mesurée à l'intérieur du milieu poreux [Hz]
f_T	fréquence principale mesurée pour l'écoulement de Taylor en amont du milieu poreux ou en canal vide [Hz]
$F_1(t)$	courbe cumulée et normée du passage du traceur en entrée du milieu poreux [-]
$F_2(t)$	courbe cumulée et normée du passage du traceur en sortie du milieu poreux [-]
$F_I(t)$	courbe cumulée brute de l'intensité de fluorescence dans le temps [u.a.]
$F_I^N(t)$	courbe cumulée et normalisée de l'intensité de fluorescence dans le temps [u.a.]

h	largeur et hauteur du canal millifluidique (expérience 1D) [m]
I	courbe d'intensité de fluorescence dans le temps [u.a.]
J	nombre de mélangeurs agités (modèle $CRST_4$) [-]
K_{im}	rapport de la fraction de liquide immobile, θ_{im}, par rapport à la fraction liquide mobile, θ_m (modèle $CRST_4$) [-]
K_s	perméabilité intrinsèque [m^2]
K_w	conductivité hydraulique [$m.s^{-1}$]
k_{ri}	perméabilité relative de la phase i [-]
k_{la}	coefficient de transfert gaz-liquide [s^{-1}]
L	longueur du milieu poreux (expérience 1D) [m]
l_b^0	longueur d'une bulle de Taylor en amont du milieu poreux [m]
l_b	longueur d'une bulle dans le milieu poreux [m]
l_s	longueur d'un slug de liquide de l'écoulement de Taylor [m]
n_p	nombre de pores par section perpendiculaire au canal [-]
n_{pix}^{total}	nombre de pixels par image [-]
n_{pix}^{liq}	nombre de pixels par image contenant du liquide [-]
n_{pix}^{gaz}	nombre de pixels par image contenant du gaz [-]
N	nombre total d'images par film [-]
$\mathcal{O}_f$	fonction objectif [-]
P	pression [Pa]
p^*	valeur normalisée des paramètres du modèle $CSTR_4$ [-]
p	valeur d'un pixel
p_{liq}	probabilité de passage de la phase liquide [-]
p_{int}	probabilité de mouvement des interfaces gaz-liquide [-]
Q_L	débit volumique de liquide [$mL.min^{-1}$]
Q_G	débit volumique de gaz [$mL.min^{-1}$]
$S_L = \epsilon_L/\epsilon$	saturation liquide dans le milieu poreux [-]
t_{sg}	temps de séjour moyen du gaz dans le milieu poreux [s]
t_m	temps de séjour moyen de la phase mobile (modèle $CSTR_4$) [s]
t_M	temps de transfert entre les zones mobiles et les zones immobiles (modèle $CSTR_4$) [s]
t_{sg}	temps de séjour moyen du gaz dans le milieu poreux [s]
t	temps [s]
$\tilde{t}$	temps de séjour de la phase liquide [s]
u_{DF}	vitesse de glissement entre la phase gazeuse et la phase liquide [$m.s^{-1}$]
u_L	vitesse superficielle du liquide [$m.s^{-1}$]
u_G	vitesse superficielle du gaz [$m.s^{-1}$]
V	volume du canal millifluidique [m^3]

LETTRES GRECQUES

α	coefficient de puissance de l'expression de la perméabilité relative [-]
α_{lb}, β_{lb}	coefficients de la régression linéaire de l_b/h [-]
γ	coefficient utilisé dans le modèle de piégeage (représente le nombre de bulles piégées) [-]
δ	distance radiale dans le canal millifluidique [m]
δ_{img}	différence entre deux séries d'images successives [-]
ϵ	porosité moyenne du milieu poreux [%]
ϵ_δ	porosité radiale, locale du milieu poreux [%]
ϵ_c	porosité au cœur du milieu poreux [%]
ϵ_L	fraction liquide déterminée par distribution de temps de séjour [%]
ϵ_L^*	fraction liquide apparente déterminée par visualisation directe de l'écoulement [%]
λ	longueur d'onde de la périodicité d'un écoulement de Taylor dans le milieu poreux ($\lambda = l_b + l_s$) [m]
λ^0	longueur d'onde de la périodicité d'un écoulement de Taylor en amont du milieu poreux [m]
μ_i	viscosité de la phase i [Pa.s]
ρ_i	masse volumique de la phase i [kg.m^{-3}]
σ_L	tension superficielle du liquide [N.m^{-1}]
σ^2	second moment centré de la DTS [s^2]
$\theta = t/\tilde{t}$	temps réduit [-]
θ_{im}	fraction de liquide statique (modèle CSTR$_4$) [-]
θ_m	fraction de liquide mobile (modèle CSTR$_4$) [-]
ζ	préfacteur du temps de relaxation visqueuse [-]

INTRODUCTION

Contexte de la thèse

Les écoulements multiphasiques dans des milieux poreux sont très largement répandus. Ils interviennent dans les processus naturels (éruptions volcaniques, tremblements de terre) ou dans des processus industriels (exploitation et production de pétrole en amont, raffinage en aval). La nature de l'écoulement est variée (liquide-liquide, gaz-liquide, gaz-liquide-liquide...) ainsi que celle des milieux poreux, pouvant être fixes (réservoirs pétroliers, réacteurs à lits fixes) ou mobiles (coulées de boues, lits fluidisés). Les enjeux de leur compréhension sont multiples et pluridisciplinaires :

— *sociétaux* : prévention des risques naturels en géophysique
— *énergétiques* : production plus efficace du pétrole, intensification des procédés en industrie pétrolière
— *écologiques* : dépollution des sols en géologie.

Problématique

En *géophysique*, l'essor de l'exploitation assistée du pétrole a permis de nombreuses avancées dans la compréhension macroscopique des écoulements multiphasiques. Les systèmes étudiés comprennent souvent des milieux poreux très hétérogènes et des écoulements faisant intervenir plus de deux phases. Cette complexité a orienté les études, soit vers de la modélisation globale par simplification de ces systèmes, soit vers des approches statistiques qui amènent des imprécisions dans les résultats. Les ressources exploitées aujourd'hui sont de plus en plus difficiles à extraire et de plus en plus coûteuses ; il y a donc une demande croissante des industriels à gagner en précision sur les modèles d'écoulements. Pour ce faire, la compréhension fondamentale des interactions multi-physiques (transport, transfert, réaction) à l'échelle du pore est essentielle.

En *génie de la réaction chimique*, les études des dispositifs miniaturisés se sont généralisées dans un contexte d'intensification des procédés. Le développement de ces dispositifs est croissant à l'échelle du laboratoire, car ils permettent l'accès à des propriétés physico-chimique variées en un temps réduit, mais peine encore à se développer à l'échelle industrielle. Pour le cas particulier de la catalyse hétérogène, qui met en jeu une réaction triphasique gaz-liquide-solide, la caractérisation des lits de particules dans des milieux confinés a mis en valeur les très bonnes capacités de transfert de ce milieu pour une quantité réduite de matière. Cependant, ces avantages se payent par des pertes de charge très grandes devant celles des dispositifs moins confinés. Cette contrainte est secondaire à l'échelle du laboratoire mais devient essentielle lorsque les capacités des réacteurs augmentent. Cela a donc conduit un développement de matériaux innovants pour supporter les catalyseurs, comme

des forêts de piliers ou des mousses solides. Ces dernières ont une géométrie très aérée conduisant à une fraction de vide importante tout en conservant une surface de solide intéressante. Cependant, l'hydrodynamique de l'écoulement dans ces matériaux, encore peu caractérisée, représente un frein à leur utilisation.

La *physique fondamentale* aborde de son côté les écoulements multiphasiques en considérant des milieux poreux modèles et en réduisant au maximum le nombre de paramètres étudiés. Cette simplification est primordiale pour établir une compréhension fine des phénomènes physiques en jeu, à l'échelle macroscopique comme à l'échelle du pore, mais elle s'éloigne parfois trop de la complexité de la réalité.

Objectifs

Des besoins de caractérisation fondamentale en hydrodynamique des écoulements multiphasiques en milieu poreux sont communs à la géophysique dans un contexte d'amélioration des modèles d'écoulement et au génie chimique dans un contexte d'optimisation de procédés miniaturisés. Ces deux communautés ont développé des outils de pointe pour caractériser des phénomènes complexes qui sont peu connus de la physique fondamentale. En revanche, cette dernière apporte une expertise et des outils très utiles aux attentes en génie chimique et en géophysique.

Cette thèse s'inscrit dans ce contexte multi-disciplinaire avec pour objectif d'établir des ponts entre ces trois disciplines voisines afin de réaliser une étude expérimentale innovante d'écoulements gaz-liquide à l'intérieur de divers milieux poreux. Deux milieux poreux sont comparés :

— des mousses solides, dont l'hydrodynamique et les capacités de transfert doivent encore être approfondies
— des billes de verre, milieu modèle habituel déjà bien caractérisé.

Cette comparaison permet d'une part de positionner les mousses par rapport au lit de billes selon deux paramètres clés pour la catalyse hétérogène : l'efficacité énergétique et le transfert et d'autre part, de couvrir une large gamme de porosité allant de 40% à plus de 90%. Par ailleurs, en catalyse hétérogène, les étapes de test des nouveaux catalyseurs sont souvent réalisées dans des dispositifs miniaturisés afin d'être économes en temps et en matière. Leur caractérisation à petite échelle peut être difficilement extrapolable à plus grande échelle, à cause de l'influence du confinement sur l'hydrodynamique et les transferts gaz-liquide-solide.

Deux dispositifs expérimentaux ont donc été étudiés au cours de ce travail : un canal millifluidique dans lequel l'écoulement est confiné à une dimension et une cellule de Hele-Shaw, où l'écoulement perd un degré de confinement. L'écoulement généré dans le canal millifluidique est uniquement horizontal. Dans la cellule de Hele-Shaw, deux orientations d'écoulement sont étudiées, soit horizontale, soit verticale. Ce manuscrit s'articule ainsi autour de trois axes :

— l'effet de la géométrie du milieu poreux
— l'effet de la gravité
— l'effet du confinement,

sur l'hydrodynamique d'un écoulement gaz-liquide en milieu poreux. Pour y répondre, deux approches sont développées. La première est une approche globale dans laquelle le milieu est considéré comme une boîte noire, très répandue en géophysique et en génie chimique. La deuxième est une approche locale, basée sur la visualisation directe de l'écoulement dans le milieu poreux. Elle permet de décrire des phénomènes multi-échelles en utilisant les outils de la géophysique et de la physique fondamentale.

1

ÉTAT DE L'ART

Sommaire

1.1 Un tour d'horizon 5
1.2 Les milieux poreux : de la nature à l'industrie 6
1.2.1 Propriétés 7
1.2.2 Cas particulier : les mousses solides 10
1.3 Portraits d'écoulements : les régimes hydrodynamiques 12
1.3.1 Nombres sans dimension 13
1.3.2 Régimes hydrodynamiques 14
1.4 Des lois et des Hommes 20
1.4.1 De Danckwerts aux modèles de marche au hasard 21
1.4.2 De Darcy à la modélisation numérique 28
1.5 Verrous et objectifs 33

1.1 UN TOUR D'HORIZON

Les écoulements multiphasiques en milieu poreux sont très largement rencontrés dans la nature mais aussi dans l'industrie (figure 1). L'hydrodynamique fortement couplée entre les deux ou trois phases en présence (gaz, liquide et parfois solide), ajoutée à des réactions chimiques homogènes ou hétérogènes en font un problème complexe, pluri-disciplinaire et multi-échelles.

Leur compréhension représente d'une part un enjeu énergétique dans le développement de la récupération assistée du pétrole [5] ou la recherche et l'exploitation de nouvelles sources d'énergie comme les émanations de méthanes [6–8] ou les hydrates de gaz [9]. D'autre part, certaines études relèvent d'enjeux sociétaux, comme la prédiction des tremblements de terre [10], la compréhension de la dynamique des volcans de boue [11–13], la décontamination des sols par injection de gaz [14, 15], la

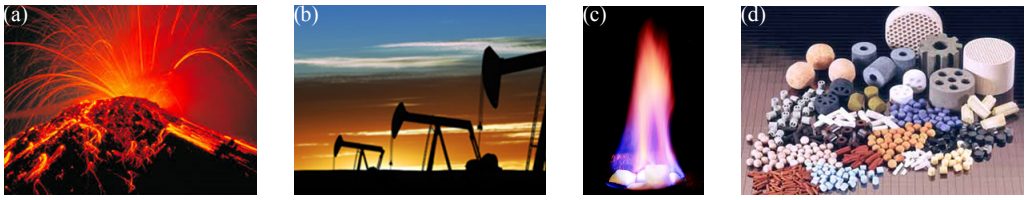

FIGURE 1 – Exemples d'écoulements multiphasiques en milieu poreux rencontrés dans la nature ou dans l'industrie : (a) éruption volcanique [1], (b) récupération assistée du pétrole [2], (c) exploitation de nouvelles sources d'énergie comme les hydrates de gaz [3] et (d) optimisation et développement de réacteurs en catalyse hétérogène [4].

séquestration du CO_2 [16, 17] ou encore l'optimisation de procédés pour l'industrie, en particulier en catalyse hétérogène [1] [18–21].

Dans cette thèse, l'écoulement multiphasique étudié est un écoulement gaz-liquide dans divers milieux poreux : des lits de billes, milieu modèle classiquement rencontré à la fois en géophysique et en génie chimique et des mousses solides à cellules ouvertes, milieu innovant en catalyse hétérogène. Avant de décrire les régimes hydrodynamiques classiquement rencontrés en écoulement gaz-liquide, les différentes propriétés des milieux poreux sont présentées afin de définir les critères utilisés dans le manuscrit pour mener une étude comparative entre ces deux types de milieux poreux.

1.2 LES MILIEUX POREUX : DE LA NATURE À L'INDUSTRIE

Il existe une grande diversité de milieux poreux rigides (roches consolidées, lits fixes de réacteurs) ou mobile (sédiments non consolidés, lits mobiles (slurry)). Dans ce travail, seul les milieux poreux rigides sont considérés.

Les grands types de lits fixes utilisés en catalyse hétérogène sont illustrés par la figure 2 I. Les deux premiers ((a) et (b)) représentent des lits denses de particules. Les cas illustrés représentent des particules sphériques monodisperses, cependant une grande variété de particules sont utilisées en catalyse, parfois non sphériques et parfois sous forme d'extrudés comme illustré sur la figure 1d. Les trois lits suivants sont des monolithes ((c) et (e)), soit ordonnés dont certains sont déjà présents à l'échelle

1. réaction chimique faisant intervenir un catalyseur supporté par une phase solide.

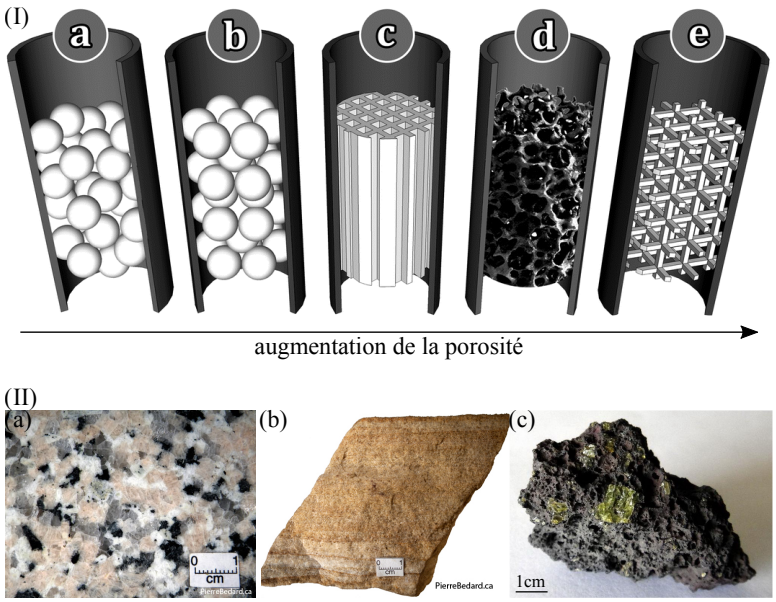

FIGURE 2 – Exemples de milieux poreux classés par porosité croissante. (I) Différents supports catalytiques : (a-b) milieu granulaire, (c) monolithe, (d) mousse à cellules ouvertes et (e) milieu poreux ordonné (figure extraite de SCHWIEGER et al. [22]). (II) Exemples de différentes roches : (a) granite (collection Pierre Bérard), (b) grès (collection Pierre Bérard) et (c) basalte à cristaux d'olivine (collection Don Giovanni).

industrielle [23] soit désordonnés (mousse solide à cellules ouvertes (d)), milieux plus innovants et encore au stade de la recherche. Il existe aussi différents milieux poreux naturels avec des grains très consolidés entre eux (granite, figure 2 II (a)), des grains plus ronds et moins solidaires les uns des autres (grès, (b)) voire des structures quasi-spongieuses se rapprochant des mousses solides à cellules fermées (roche volcanique, (c)).

La proportion de solide, la forme des grains ou encore la fraction de vide pour un volume donné change considérablement d'un milieu à l'autre. Il sont donc caractérisés par des propriétés communes qui permettent d'une part de les comparer et d'autre part d'en estimer une résistance mécanique, une propension à laisser passer un fluide ou encore à isoler (isolation thermique ou phonique) selon l'application souhaitée. Les propriétés essentielles à l'étude hydrodynamique d'un écoulement sont présentées dans la partie suivante.

1.2.1 *Propriétés*

Porosité

Une des propriétés principales d'un milieu poreux est sa porosité, notée ϵ, qui représente la fraction de vide qu'il contient et qui est définie par $\epsilon = V_{vide}/V_{total}$, où V_{vide} est le volume formé par l'ensemble des pores pour un volume total de milieu poreux, noté V_{total}. Un exemple de volume occupé par le solide pour une mousse à cellules ouvertes est illustré en figure 3a et est comparé à l'espace de vide entre les brins de la mousse, illustré par les zones colorées sur les figures 3b et 3c.

Il existe différentes échelles de porosité, allant des failles géologiques à l'échelle du kilomètre à la porosité intra-granulaire pouvant descendre en-dessous du nanomètre. Une illustration de la diversité des échelles de porosité sur un objet géologique (carotte de Dolomite) est donnée en figure 4a (travaux de MALAMA et al. [24]). Il en est de même pour les réacteurs catalytiques où il existe une porosité externe (celle formé par l'empilement et la forme des particules catalytiques) et la porosité interne des particules de catalyseur. Les longueurs caractéristiques de ces différentes échelles sont représentées sur la figure 4b, [22] qui associe à chaque échelle le processus physico-chimique intervenant dans la réaction en catalyse hétérogène. La large

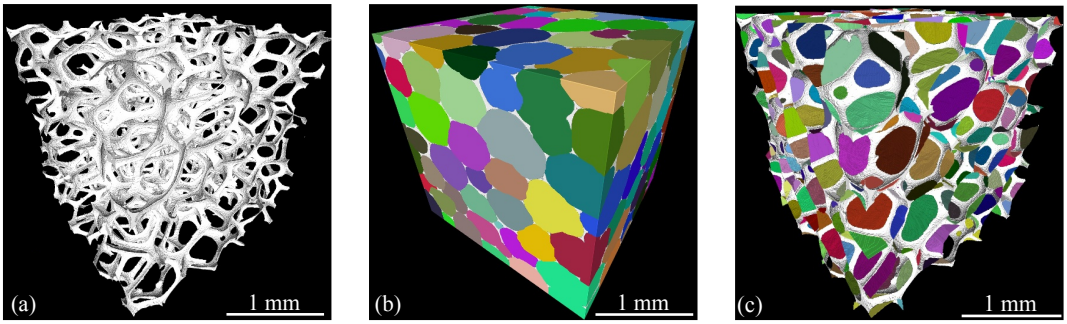

FIGURE 3 – (a) Image 3D de la partie solide, (b) reconstitution 3D du réseau de cellules d'une mousse solide et (c) jonctions entre les cellules, appelées fenêtre (différence entre (b) et (c) discutée en section 1.2.2), obtenues à partir d'images issues d'une tomographie à rayons X, (travaux réalisés pendant cette thèse).

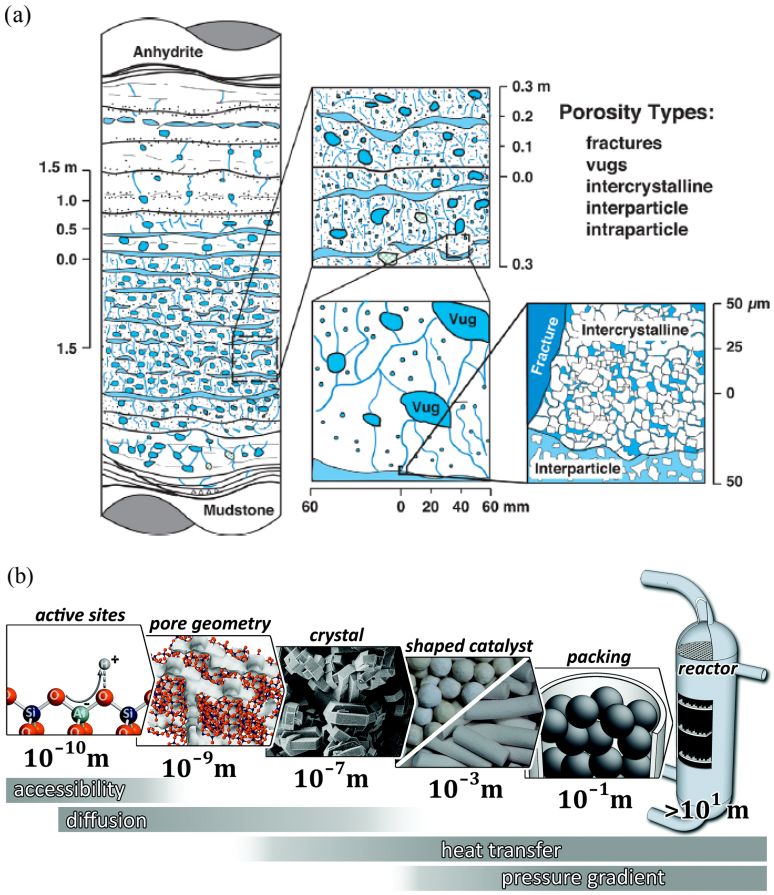

FIGURE 4 – Exemple des différentes échelles de porosité pour (a) une carotte de Dolomite [24] et (b) un réacteur catalytique [22].

gamme d'ordres de grandeur couverte par ces différentes échelles montre l'importance de définir clairement l'échelle de longueur et la région d'intérêt de l'étude. Cette dernière, aussi appelée VER ("Volume Élémentaire Représentatif") est essentielle et détermine, par une représentation statistique suffisante, si l'évaluation d'une propriété donnée est pertinente dans ce volume [25].

Les milieux poreux naturels ont une porosité intrinsèque qui est difficilement modifiable. Pour les milieux poreux manufacturés, utilisés par exemple dans les réacteurs catalytiques, cette propriété est mieux maîtrisée et choisie en fonction des objectifs souhaités. Les paramètres ajustables sont le diamètre des particules de catalyseur, d, la hauteur du milieu poreux, H, le diamètre du réacteur, D, la méthode utilisée pour remplir le réacteur ou encore la densité du chargement relatif à la méthode choisie. Un exemple de l'effet des rapports D/d et H/d sur la porosité moyenne d'un lit catalytique de sphères monodisperses est donné en figure 5, extraite de la thèse de DORAI [26]. Noter qu'aux grands rapports D/d ou H/d, la porosité est seulement affectée par la compacité du lit de particules, aussi appelée "densité du chargement" (figure 5, insert). Les ordres de grandeurs de porosité de quelques milieux poreux naturels et rencontrés dans l'industrie sont donnés dans la table 1.

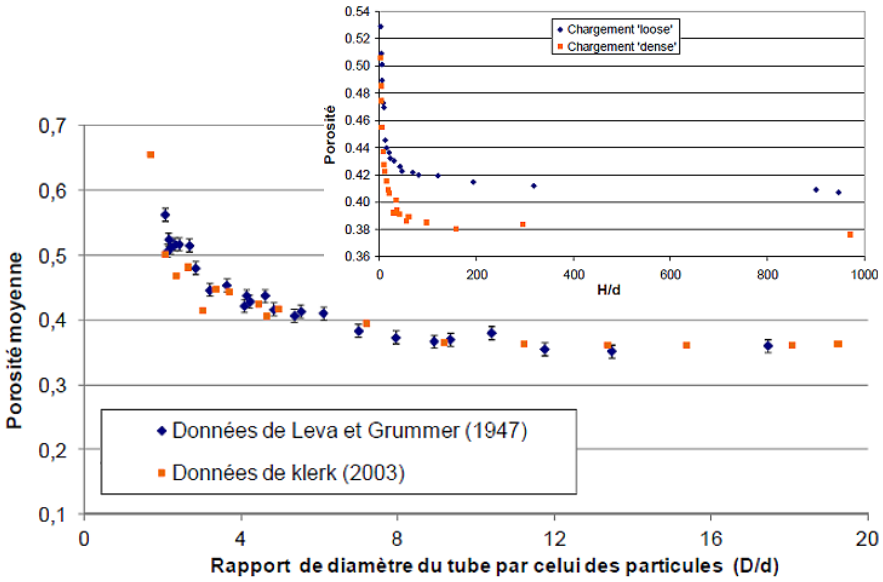

FIGURE 5 – Évolution de la porosité en fonction du rapport du diamètre de réacteur sur le diamètre de particules D/d pour un lit de sphères monodisperses peu dense (figure issue de DORAI [26] et données de LEVA et GRUMMER [27] et KLERK [28]). Insert : évolution de la porosité en fonction du rapport de la hauteur de lit, H, et du diamètre des particules d ($D/d = 74/3$) pour un chargement peu dense (*'loose'*) et dense [26, 29].

Surface spécifique

Malgré son importance, la porosité ne suffit pas à définir un milieu poreux. En effet, pour un volume total de solide V_{total} donné, sa surface externe peut varier. Cette caractéristique est très intéressante lorsque des échanges fluides-structure sont souhaités (ex : stockage de gaz, catalyse hétérogène). Elle est nommée surface spécifique, notée a_s, et définie comme $a_s = a_i / V_{total}$, où a_i est l'aire couverte par l'interface solide-pores à l'extérieur des particules solides. À l'échelle de la particule, il est possible de définir une surface spécifique interne à la particule, donnée en [$m^2.g^{-1}$]. Cependant, cette dernière concerne des phénomènes physico-chimiques à des échelles très infé-

MILIEU POREUX	ϵ [%]
granite	$0.1 < \epsilon < 1$
basaltes	$5 < \epsilon < 20$
grès	$5 < \epsilon < 30$
graviers, galets	$25 < \epsilon < 40$
sables	$\epsilon \sim 40$
craie	$30 < \epsilon < 45$
lits fixes granulaires	$37 < \epsilon < 44$
monolithes	$60 < \epsilon < 96$

TABLE 1 – Ordres de grandeur de porosité pour des milieux poreux naturels ou artificiels [26, 30, 31].

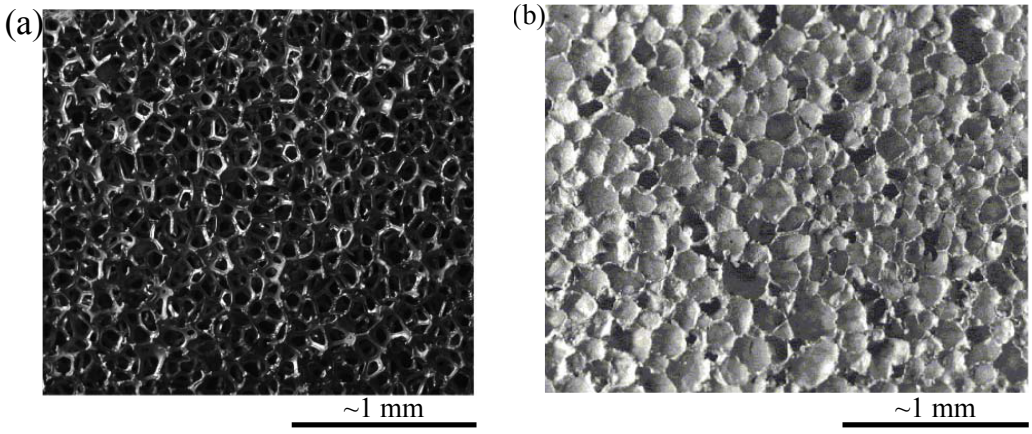

FIGURE 6 – Exemples de mousses rigides à cellules ouvertes (alliage Ni Cr) (a) et à cellules fermées (aluminium) (b), issues de BONNET [32] (les échelles ont été ajoutées pour donner un ordre de grandeur).

rieures à celles abordées dans ce travail ("pore-geometry" et "active sites", figure 4b), surtout intéressante pour les spécialistes de la catalyse car elle permet d'optimiser la quantité de matière déposée sur les particules de catalyseur. Elle sera donc ignorée par la suite.

Perméabilité

Quelles que soient la porosité et la taille des pores, la connectivité entre les pores est un critère essentiel pour la capacité de circulation d'un fluide dans un milieu poreux. La figure 6 présente deux mousses rigides dont l'une, a une porosité ouverte (figure 6a) et l'autre une porosité fermée (figure 6b). Ces mousses ont une porosité et une taille moyenne de pores très proches [32]. Pour autant, la circulation d'un fluide est beaucoup plus facile dans la première que dans la seconde, d'une part pour des raisons de connectivité et d'autre part, parceque la surface spécifique du solide, a_s, est beaucoup plus faible dans le cas d'une porosité ouverte. Cette propension à laisser passer un fluide est caractérisée par la perméabilité intrinsèque du milieu poreux, notée K_s, dont la dimension est relative à une longueur au carré [33]. Dans l'exemple présenté, K_s est plus élevée pour la mousse à cellules ouvertes que pour celle à cellules fermées. Des valeurs typiques de perméabilité sont données en table 2 pour différents matériaux. Une description plus détaillée de cette propriété est présentée lors de l'introduction de la loi de Darcy (section 1.4).

1.2.2 *Cas particulier : les mousses solides*

Les propriétés usuelles pour effectuer une étude hydrodynamique comparative entre plusieurs milieux poreux ont été introduites dans la partie précédente. Dans cette thèse, des mousses solides sont comparées à des lits de billes. Ce matériau est un monolithe particulier car sa structuration est désordonnée et comparable à une éponge. Il est donc nécessaire d'introduire des propriétés supplémentaires relatives à sa hiérarchisation de tailles de pores, influente sur les écoulements.

MATÉRIAU	K_s [cm^2]
Graviers bien classés	$10^{-3} - 10^{-4}$
Roches fracturées	$10^{-3} - 10^{-6}$
Sables bien classés	$10^{-5} - 10^{-7}$
Tourbe	$10^{-7} - 10^{-8}$
Sables fins, limons	$10^{-8} - 10^{-11}$
Argiles stratifiées	$10^{-9} - 10^{-11}$
Calcaire	$10^{-12} - 10^{-13}$
Tuiles	$10^{-12} - 10^{-13}$
Granite	$10^{-14} - 10^{-15}$
Béton	$10^{-14} - 10^{-16}$

TABLE 2 – Valeurs caractéristiques de perméabilité pour différents milieux poreux, issues de PINDER et GRAY [33]. Pour des matériaux sédimentaires, "bien classés" signifie que les grains sont quasi-monodisperses, ils ont été triés au cours du transport et de la sédimentation.

Le contrôle et la diversité des modes de fabrication et des matériaux des mousses solides permettent de couvrir une très large gamme de porosité, $20\% < \epsilon < 98\%$ [30]. Elles ont classiquement deux distributions de taille de pores, formées par les cellules et les fenêtres. Par analogie à une mousse liquide, les cellules peuvent être assimilées aux bulles de gaz (figure 3b) et les fenêtres aux films de liquide qui ont disparus au cours de la fabrication (figure 3c) [30]. Il est possible d'assimiler les cellules à un ballon de handball et les fenêtres aux facettes qui entourent ce dernier.

La structure rigide de la mousse solide est constituée des brins qui correspondent aux bords de plateau d'une mousse liquide. Selon le procédé de fabrication, ces brins peuvent être pleins ou creux, ce qui impacte la porosité interne des mousses et ajoute une échelle supplémentaire de tailles de pores (figure 7).

Les premières applications liées aux mousses solides concernaient essentiellement l'aéronautique et l'aérospatiale pour le bon rapport entre leurs qualités d'isolants, de filtres, d'absorbeurs, leur tenue mécanique et leur légèreté [35]. La figure 8 illustre ces différents usages en fonction du type de porosité des mousses et du type d'application.

Plus récemment, les mousses solides à porosité ouverte sont étudiées pour leur application comme support catalytique innovant. En effet, d'une part, leur très haute

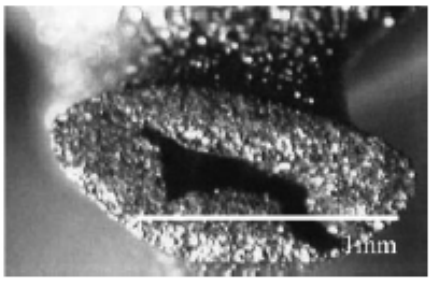

FIGURE 7 – Image d'un brin de mousse creux extraite des travaux de GIANI et al. [34].

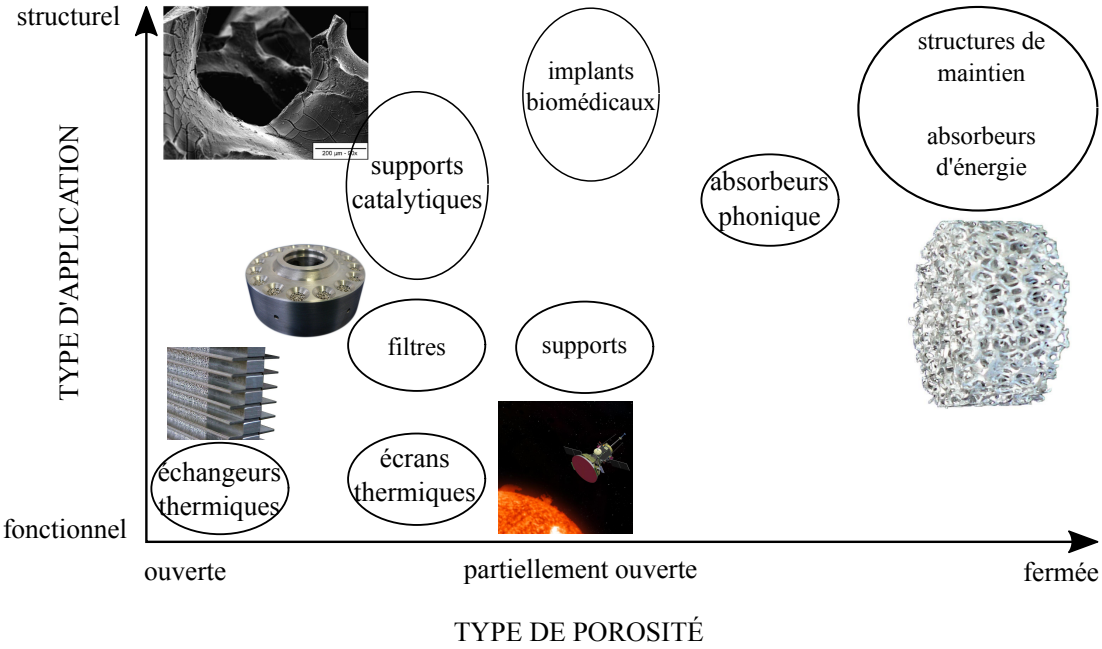

FIGURE 8 – Domaines d'application des mousses solides en fonction du degré d'ouverture de la porosité [figure inspirée de BANHART [30]]. L'image du dépôt de catalyseur est issue de l'article de RODRIGUEZ et al. [36] et les autres illustrations proviennent du site http://www.ergaerospace.com et représentent de gauche à droite : un échangeur thermique, un séparateur air-huile, une sonde solaire et un absorbeur d'énergie.

porosité permet de faire circuler les fluides réactifs avec des pertes de charge limitées [37–42] et, d'autre part, leur surface spécifique, a_s, est suffisamment élevée pour effectuer des dépôts de catalyseur et garantir de bons échanges fluide-structure. Cependant, les applications industrielles pour la catalyse hétérogène restent encore très peu nombreuses car l'hydrodynamique des écoulements dans ces milieux ainsi que la gestion de la désactivation du catalyseur sont encore mal caractérisées. Afin de développer une étude hydrodynamique de ces milieux dans les chapitres suivants, un état de l'Art des divers régimes hydrodynamiques présents dans des milieux plus conventionnels comme des lits de billes est présentée dans la partie suivante.

1.3 PORTRAITS D'ÉCOULEMENTS : LES RÉGIMES HYDRODYNAMIQUES

Dans ce travail, plusieurs processus physiques sont caractérisés par l'analyse des écoulements gaz-liquide dans les mousses solides, puis comparés aux processus respectifs présents dans les lits de billes. Ces derniers sont classiquement décrits en termes de nombres sans dimension afin d'identifier le ou les mécanismes dominants de l'écoulement. Les nombres sans dimension utilisés dans ces travaux de thèse sont introduits dans la partie suivante. L'influence du processus dominant mis en évidence par ces derniers est ensuite illustrée par la présentation des régimes hydrodynamiques fréquemment rencontrés dans la littérature inscrite dans le contexte de la thèse.

1.3.1 *Nombres sans dimension*

Les axes majeurs développés dans ce manuscrit sont l'influence du type de milieu poreux, du confinement et de la gravité sur un écoulement gaz-liquide. La variation de ces paramètres influe sur la prédominance des contraintes suivantes :

— inertielles $\sim \rho_i u_i^2$ où ρ_i et u_i sont respectivement la masse volumique et la vitesse de la phase i
— gravitaires $\sim \rho_i g h$ où h est une hauteur caractéristique
— visqueuses $\sim \mu_i u_i / d$ où μ_i est la viscosité de la phase i et d une longueur caractéristique
— capillaires $\sim \sigma / d$ où σ est la tension de surface de l'interface gaz-liquide.

Dans un écoulement confiné, la longueur caractéristique d, souvent attribuée au diamètre du canal, est petite [43]. Les forces dominantes sont donc les forces visqueuses et capillaires, comparées par le nombre capillaire :

$$Ca = \frac{\mu_i u_i}{\sigma} \ . \tag{1}$$

Pour un écoulement gaz-liquide vertical, typiquement l'ascension d'une bulle confinée dans un canal, l'influence de la gravité est comparée à celle de la capillarité par le nombre de Bond :

$$Bo = \frac{\Delta\rho g d \times h}{\sigma} \ . \tag{2}$$

Dans le cas d'un faible confinement, les forces inertielles et gravitaires (pour un écoulement vertical) deviennent influentes dans l'écoulement considéré. Les forces inertielles sont alors comparées aux forces visqueuses par le nombre de Reynolds :

$$Re = \frac{\rho_i u_i d}{\mu_i} \ , \tag{3}$$

aux forces capillaires par le nombre de Weber :

$$We = \frac{\rho_i u_i^2 d}{\sigma} \ , \tag{4}$$

et aux forces gravitaires par le nombre de Froude :

$$Fr = \frac{u_i^2}{g h} \ . \tag{5}$$

Les expressions de ces nombres sans dimension sont très sensibles au système considéré, que ce soit pour la détermination de la vitesse, u_i, ou de la longueur caractéristique, d ou h. Pour un écoulement gaz-liquide en milieu poreux, il est par exemple possible de définir six nombres de Reynolds différents : le Reynolds de la phase gazeuse, $Re_G = \rho_G u_G d / \mu_G$, celui de la phase liquide, $Re_L = \rho_L u_L d / \mu_L$, et un Reynolds biphasique, $Re_{TP} = \rho_L u_{TP} d / \mu_L$, avec $u_{TP} = u_G + u_L$. Ces trois nombres de Reynolds peuvent ensuite être déclinés à l'échelle du pore (d = diamètre du pore) ou à l'échelle macroscopique (d = longueur caractéristique du dispositif expérimental). Ces commentaires sont applicables aux autres nombres sans dimension.

Il est donc délicat de présenter de manière globale des régimes hydrodynamiques dominés par les forces visqueuses, capillaires, inertielles ou gravitaires en fonction

des valeurs des nombres sans dimension. Ce travail est propre à chaque étude et les valeurs des nombres sans dimension sont à interpréter dans leur contexte en cohérence avec les longueurs et temps caractéristiques en jeu. Les régimes hydrodynamiques inhérents aux forces dominantes dans l'écoulement sont donc présentés dans la partie suivante, de manière non exhaustive, basés sur des observations expérimentales.

1.3.2 *Régimes hydrodynamiques*

Depuis le début de leur étude (autour du 18e siècle), les comportements des écoulements dans les milieux poreux ont été répertoriés en différents régimes hydrodynamiques. Dans cette partie, l'influence des paramètres étudiés dans cette thèse (*géométrie du milieu poreux, vitesses des fluides, gravité, confinement*), est illustrée à travers des exemples extraits de la littérature.

Dans les études de physique fondamentale, les écoulements les plus fréquemment rencontrés sont des écoulements de gaz dans une phase solide immergée dans un liquide au repos. Cette approche est décrite en première partie pour illustrer l'effet de la *gravité* et de la *contrainte* sur un écoulement non confiné.

En géosciences (notamment pour la récupération assistée du pétrole) ou en génie chimique (catalyse hétérogène) il y a plus d'études concernant des écoulements conjoints gaz-liquide. Les études d'écoulements en réacteurs catalytiques triphasiques, formant le contexte applicatif de cette thèse, servent d'appui pour commenter l'influence des *vitesses de chaque phase* sur le régime hydrodynamique établi.

Enfin, il existe une littérature riche en lien avec *l'effet du confinement* (du volcanisme aux micro-réacteurs) qui est décrite en fin de partie afin d'introduire les régimes hydrodynamiques correspondants en canal vide et qui permet d'ouvrir vers une littérature plus récente surtout présente en génie chimique concernant les écoulements confinés en présence de milieux poreux. Ces derniers forment le cœur des travaux de cette thèse.

Écoulement de gaz dans un milieu granulaire immergé

Cette partie s'appuie sur deux cas d'études, un écoulement horizontal [44] et un écoulement vertical ascendant [14]. Les deux écoulements présentés permettent de discuter des effets de compacité du milieu poreux, du débit de gaz et de la gravité.

Un exemple d'écoulement de gaz horizontal dans un milieu poreux modèle (sphères monodisperses, $d \sim 100$ μm) immergé dans une solution d'eau et de glycérol est donné en figure 9. Cette figure reprend une illustration de l'étude macroscopique complète réalisée par Sandnes et al. [44]. Cette étude est effectuée dans une cellule de Hele-Shaw [2] afin de générer un écoulement quasi-2D, qui est facilement observable, tout en présentant des comportements très proches d'un écoulement 3D lorsque l'épaisseur de la cellule est grande devant la taille des pores [45]. Le dispositif utilisé peut aussi être assimilé à un réacteur plaque en génie chimique.

Les paramètres de contrôle de l'écoulement sont le débit de gaz et la compacité du milieu poreux qui passe d'un lit de billes indéformable à une suspension gra-

2. Écoulement entre deux plaques séparées par un espacement faible devant les dimensions des plaques.

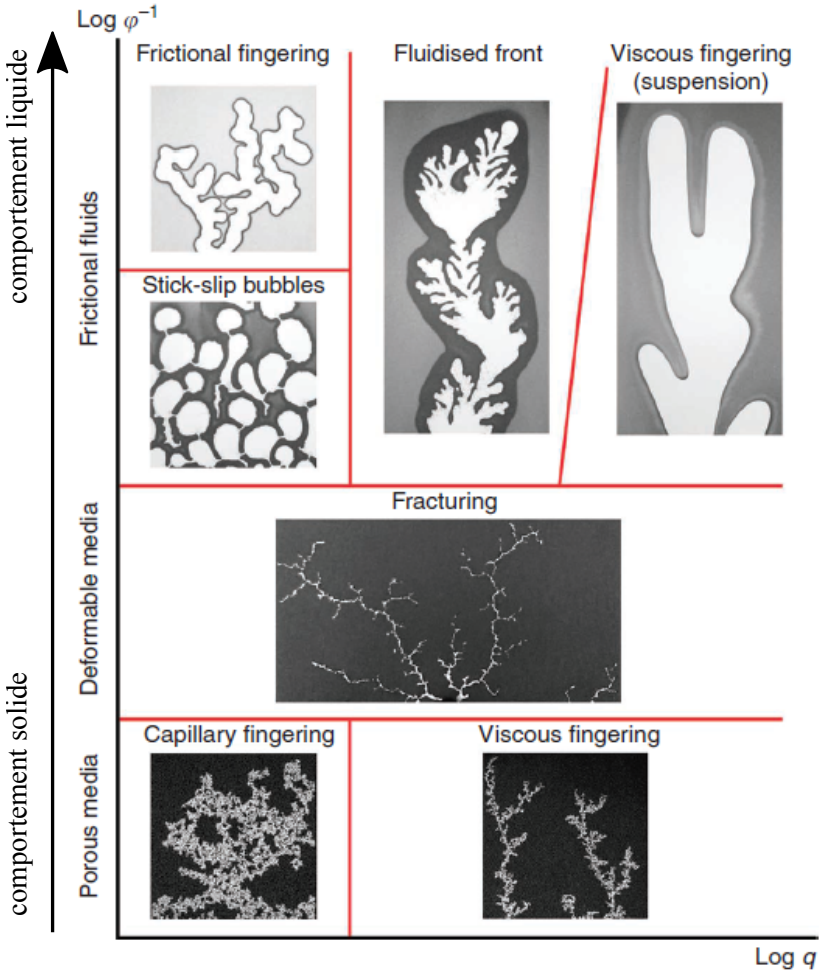

FIGURE 9 – Différents régimes hydrodynamiques en fonction de la compacité du milieu poreux, φ, et du débit de gaz, q (issue des travaux de SANDNES et al. [44]).

nulaire (pas nécessairement isodense). Ces deux extrêmes sont à la fois présents en géosciences (roches consolidées/sédiments mobiles) et dans les réacteurs catalytiques (lits fixes/lits fluidisés, colonnes à bulles, cuves agitées). En contrôlant uniquement ces deux paramètres sur une large gamme, sept régimes hydrodynamiques ont été distingués :

— digitation capillaire (faibles débits de gaz, milieu rigide)
— digitation visqueuse (hauts débits de gaz, milieu rigide)
— fracturation (milieu déformable)
— digitation spécifique aux suspensions granulaires (milieu mobile, quatre régimes différents)

Les suspensions granulaires sont un milieu poreux particulier non étudié dans ce manuscrit, il n'est donc plus abordé par la suite. Pour les régimes en milieux rigides, HOLTZMAN et JUANES [46] ont proposé un diagramme des régimes résultant d'une analyse dimensionnelle (figure 10), où Ca est le nombre capillaire (équation 1) et λ un paramètre représentant le désordre à l'échelle du pore [47]. Cette représentation permet d'obtenir des ordres de grandeur de Ca dans un contexte précis, avec une

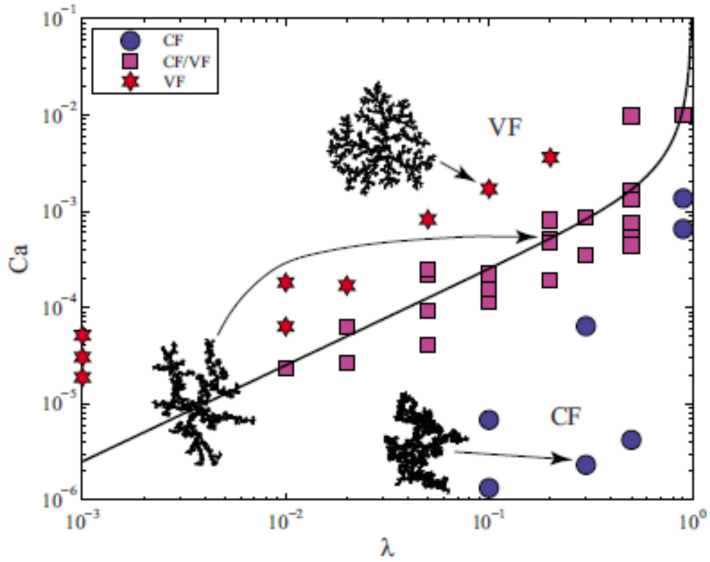

FIGURE 10 – Diagramme des régimes d'un écoulement de gaz horizontal en milieu granulaire rigide immergé. *Ca* est le nombre capillaire et λ un paramètre représentant le désordre à l'échelle du pore (figure extraite de HOLTZMAN et JUANES [46]).

valeur critique à partir de laquelle les forces visqueuses prédominent sur les forces capillaires dans le contrôle de l'écoulement.

Les régimes décrits précédemment dépendent uniquement du débit de gaz et de la compacité du lit de billes. L'exemple suivant, extrait de REDDY et ADAMS [14], permet d'introduire *l'effet de la gravité* et de la *taille et forme des grains* sur la géométrie d'un écoulement de gaz en considérant l'ascension d'un flux d'air à travers un milieu naturel hétérogène (sables, graviers) et immergé (figure 11).

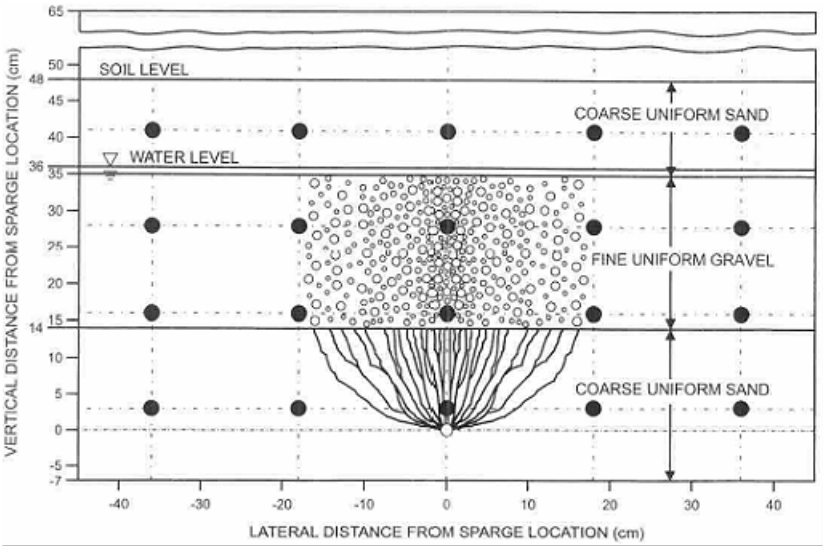

FIGURE 11 – Différents régimes hydrodynamiques d'ascension de gaz dans différents milieux poreux (graviers fins uniformes superposés à des sables grossiers uniformes) immergés dans de l'eau (figure extraite de REDDY et ADAMS [14]).

Comme en écoulement horizontal (figure 9), le régime de digitation (visqueuse ou capillaire) est retrouvé dans le cas de particules fines ("coarse uniform sand", sables). Cependant, dans le cas d'un milieu rigide plus grossier où les pores, plus grands, appliquent une contrainte moins forte sur l'écoulement ("fine uniform gravel", graviers), la flottabilité du gaz permet l'apparition d'un nouveau régime d'ascension de bulles de gaz non observé en écoulement horizontal.

La variété de régimes présentés dans cette partie ne prend pas en compte l'écoulement de la phase liquide. En poursuivant dans le contexte des écoulements verticaux, le cas particulier des réacteurs triphasiques à lits fixes est introduit dans l'objectif de commenter les effets des vitesses de chacune des phases sur le régime hydrodynamique en place. Cet exemple est choisi car il est directement lié aux études développées dans cette thèse et est l'un des systèmes gaz-liquide-solide très étudié dans la littérature.

Écoulements conjoint gaz-liquide

Dans le domaine de la catalyse hétérogène, il existe trois grands types d'écoulements gaz-liquide-solide :

— co-courant descendant (liquide et gaz en courant descendant)
— co-courant ascendant (liquide et gaz en courant ascendant)
— contre courant (liquide en courant descendant et gaz en courant ascendant).

La configuration la plus rencontrée est le co-courant descendant. La figure 12, construite à partir de la revue de ATTOU et al. [48], illustre le diagramme des quatre principaux régimes hydrodynamiques définis dans cette configuration pour des milieux granulaires :

— le régime ruisselant
— le régime pulsé (et moussant dans certains cas)
— le régime à brouillard
— le régime à bulles.

Les paramètres de ce diagramme des régimes sont ceux définis par GIANETTO et al. [49] à partir du diagramme des régimes proposé par CHARPENTIER et FAVIER [50]. $G_L = \rho_L u_L$ et $G_G = \rho_G u_G$ sont les vitesses massiques superficielles respectivement de la phase liquide et de la phase gazeuse, ϵ la porosité et les paramètres λ et Ψ sont définis par les équations suivantes :

$$\lambda = \left[\frac{\rho_G}{\rho_{air}}\frac{\rho_L}{\rho_{eau}}\right]^{1/2} \tag{6}$$

$$\Psi = \frac{\sigma_{eau}}{\sigma_L}\left[\frac{\mu_L}{\mu_{eau}}\left(\frac{\rho_{eau}}{\rho_L}\right)^2\right]^{1/3} \tag{7}$$

où ρ_k, σ_k et μ_k sont respectivement la masse volumique, la tension superficielle et la viscosité de la phase k (G : gaz, L : liquide).

Le *régime ruisselant* est caractérisé par des débits de gaz et de liquide relativement faibles où le liquide s'écoule sous forme de film autour des grains et le gaz s'écoule dans les espaces vides du milieu granulaire avec une interface stable dans le temps. En augmentant de manière équivalente les débits de gaz et de liquide, le *régime pulsé* apparaît, dans lequel des poches de gaz se forment et se déplacent dans le milieu poreux sous l'action de bouchons de liquide formés entre les grains du milieu

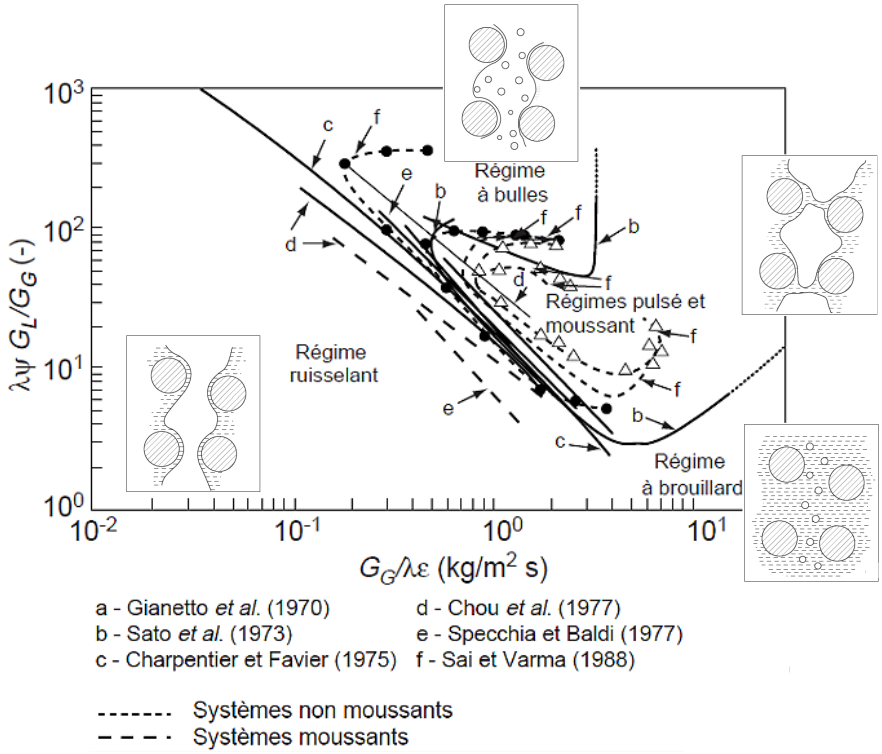

FIGURE 12 – Diagramme des régimes hydrodynamiques observés en co-courants gaz-liquide descendants (diagramme et illustrations extraits de ATTOU et al. [48] dont les paramètres sont proposées par GIANETTO et al. [49], voir texte et équations 6 et 7) pour des systèmes moussants et non moussants.

poreux. Dans ce régime, les interfaces gaz-liquide sont mobiles. Si le débit de gaz devient suffisamment élevé comparé au débit liquide, des gouttelettes de liquide sont arrachées à l'interface gaz-liquide et le liquide devient la phase dispersée pour former le *régime à brouillard*. À l'inverse, lorsque le débit de liquide est grand devant le débit de gaz, le gaz est dispersé dans la phase liquide sous forme de petites bulles pour former le *régime à bulles*.

En co-courant ascendant, les descriptions sont moins claires. Cependant, il a été observé qu'à vitesses de gaz et de liquide élevées, la gravité avait peu d'influence sur les régimes en présence. Les *régime pulsé*, *régime à brouillard* et *régime à bulles* ont notamment les même caractéristiques. Le *régime ruisselant* est légèrement modifié et il peut être séparé en deux cas [51]:

— un écoulement ségrégé pour lequel certains pores contiennent du liquide, les autres du gaz
— un écoulement mixte où les pores voient passer du liquide et des bulles plus ou moins déformées.

L'influence de la *contrainte* (milieux rigides/milieux déformables), de la *gravité* (écoulement horizontal/vertical) et le *nombre et la vitesse des phases* en écoulement a été analysée à travers des exemples précis extraits de la littérature et ancrés dans le contexte de ces travaux. La partie suivante présente les principales caractéristiques d'écoulements *confinés* en l'absence de milieu poreux, pour lesquels la littérature est très riche. Elle fait office d'ouverture vers les écoulements confinés en présence de milieu poreux qui sont au cœur de ces travaux.

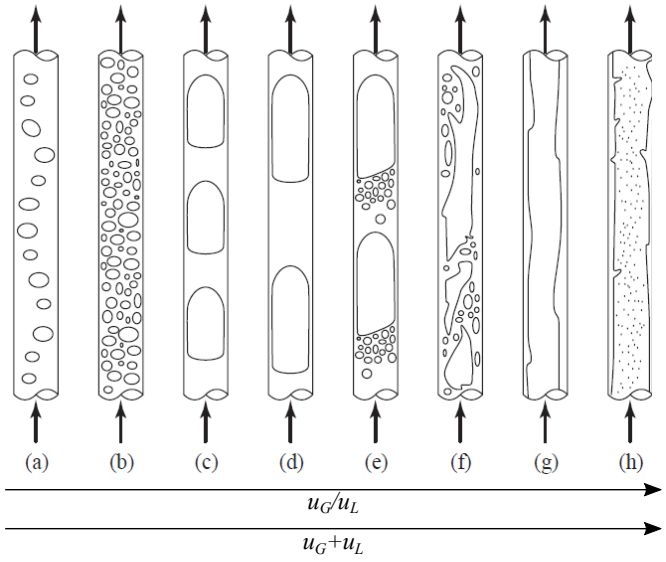

FIGURE 13 – Schéma représentatif des différents régimes hydrodynamiques d'un écoulement gaz-liquide confiné dans un canal millimétrique classiquement décrit dans la littérature (tiré de KREUTZER et al. [43]). (a, b) "bubbly flow", (c, d) "Taylor flow", (e, f) "churn flow", (g) "film flow", (h) "annular flow".

Écoulements confinés

Les écoulements confinés sont rencontrés dans de nombreuses applications. En effet, en géophysique ces écoulements sont étudiés en tant que modèles d'écoulement à l'échelle du pore dans des canaux allant d'une section millimétrique à nanométrique [52]. Ils constituent aussi une échelle réduite des écoulements présents dans les conduits de production pétrolière ou encore dans les conduits de remontée magmatique dans les volcans [52, 53]. En génie des procédés, ces dispositifs réduits se sont aussi développés dans un contexte d'intensification des procédés car la prédominance des forces capillaires permet de mieux contrôler les écoulements. Par ailleurs, ils permettent de simuler l'écoulement à l'intérieur des canaux de monolithes [43].

Comme expliqué en section 1.3.1, lorsqu'un écoulement est confiné, les relations entre forces visqueuses, inertielles et gravitaires sont modifiées. L'impact des forces gravitaires sur un écoulement de gaz ascendant se mesure par le nombre de Bond ($Bo = \Delta\rho g d^2/\sigma_L$, équation 2). BRETHERTON [54] a montré que pour un nombre de Bond critique, $Bo^* = 3.368$, la flottabilité des bulles s'annule. Ainsi, sans écoulement de la phase liquide (tension superficielle σ_L, masse volumique ρ_L), la bulle de gaz (masse volumique ρ_G) ne remonte pas dans le capillaire de diamètre d. Pour un système eau-air, la flottabilité de l'air s'annule si $d < 5$ mm [43].

Dans ces conditions, l'orientation de l'écoulement n'est plus un paramètre influent, la diversité des régimes hydrodynamiques repose donc sur la contribution prépondérante des forces visqueuses et capillaires, puis dans une moindre mesure, des forces inertielles. La figure 13, compilée par KREUTZER et al. [43], illustre la diversité des régimes observés par différents auteurs.

Les régimes illustrés sur la figure 13 peuvent être regroupés comme suit [43] :

— écoulement à bulles ("bubbly flow", (a) et (b)), observé à faible u_G/u_L, pour des vitesses modérées

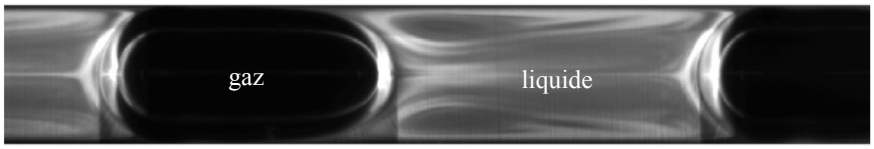

FIGURE 14 – Illustration des boucles de recirculation présentes dans la phase liquide en écoulement de Taylor (image extraite de BUTLER et al. [61]).

— écoulement de Taylor ("Taylor flow", (c) et (d)), caractérisé par des bulles occupant la quasi-totalité de la section du canal, dites "bulles de Taylor".
— écoulement agité ("churn flow", (e) et (f)), caractérisé par l'apparition du petites bulles à l'arrière des bulles de Taylor et allant jusqu'à un écoulement beaucoup moins structuré alternant grosses et petites bulles. Il est observé à hautes vitesses.
— écoulement en film ("film flow", (g)), observé à des hauts u_G/u_L avec de très faibles vitesses de liquide (mm/s), uniquement en écoulement descendant (co-courant ou contre-courant)
— écoulement annulaire ("annular flow", (h)), observé à très hauts u_G/u_L et à hautes vitesse cumulée. La phase gazeuse peut entraîner des gouttelettes de liquide au cœur du canal.

Dans la suite du manuscrit, les études sont menées en régime de Taylor car il est très bien caractérisé [55–58] et il permet de bons transferts massiques et thermiques grâce à :

— la présence de recirculations (écoulements convectifs) dans la phase liquide qui accentue le transfert interfacial gaz-liquide et le transfert en paroi (thermique ou massique) (figure 14)
— renouvellement des interfaces gaz-liquide
— la présence des films minces de liquide autour des bulles

De plus, la maîtrise de son aire d'interface gaz-liquide permet des calculs précis de transfert massique et thermique [59]. L'écoulement généré en régime de Taylor se propage ensuite dans divers milieux poreux. Cette configuration particulière est peu étudiée en triphasique. Des articles récents ont proposé des études hydrodynamiques complètes [42, 60] mais restent assez rares.

La caractérisation des "portraits" typiques d'écoulements rencontrés dans la littérature en milieux poreux rigides a montré la grande prédominance des études en milieux granulaires ou en canal vide pour les écoulements confinés. Les écoulements étudiés dans les prochains chapitres ont donc pour objectif de compléter la littérature des monolithes (cas particulier des mousses solides) afin de les comparer avec les lits de billes. La généralisation des résultats expérimentaux et la compréhension de la théorie impliquent de s'appuyer sur des modèles d'écoulements, décrits dans la suite du chapitre.

1.4 DES LOIS ET DES HOMMES

Les régimes d'écoulements multi-échelles décrits en section 1.3 sont le fruit d'observations directes de l'écoulement dans des milieux poreux modèles ou de petite di-

mension. À plus grande échelle (réacteurs catalytiques industriels, volcans, sédiments marins, réservoirs pétroliers ou aquifères), il est rarement possible de visualiser directement l'écoulement ou lorsque cela est réalisable, la visualisation nécessite des instruments lourds et coûteux avec des installations dédiées. Très souvent donc, leur caractérisation globale est réalisée grâce à des mesures entre deux points distincts du milieu poreux. Ces mesures ont deux objectifs :

— caractériser l'écoulement dans le milieu poreux
— acquérir une base de données ou un historique de production pour pouvoir ajuster et valider les modèles mathématiques des écoulements.

Ces derniers sont développés afin d'être représentatifs voire prédictifs de l'hydrodynamique, de manière à pouvoir prendre des décisions de production ou d'exploitation pour les domaines industriels (exploitation, raffinerie) ou prédire des phénomènes naturels (volcanisme, tremblement de terre) en réduisant le nombre d'acquisitions de données.

Cette section a pour objectif de présenter, de manière non exhaustive, la modélisation de l'hydrodynamique d'un écoulement gaz-liquide en milieu poreux rigide. Pour présenter une modélisation globale, cette partie commence par décrire les modèles dits de "Distribution de Temps de Séjour" qui s'appuient sur l'équation de conservation de la masse afin de représenter le transport des particules fluides à l'intérieur d'un système donné. Cette approche est complétée, dans un second temps, par la présentation des modèles basés sur la conservation de la quantité de mouvement. La combinaison de ces deux lois permet de proposer un modèle global d'écoulement dans le milieu poreux.

1.4.1 *De Danckwerts aux modèles de marche au hasard*

Lorsque la visualisation directe n'est pas envisageable, le transport d'une phase fluide dans un milieu poreux est souvent caractérisé par du traçage. Ce dernier a plusieurs objectifs : soit de déterminer l'exutoire connecté au point d'injection (rivières souterraines), soit, lorsque ce dernier est connu, de caractériser le temps et le mode de transport (advection, diffusion, présence de zones stagnantes) des particules fluides entre le point d'injection (entrée du système) et le point d'observation (sortie du système).

En géosciences, il existe une base de données importante de traçages souterrains, principalement acquis dans les années $1950 - 1960$ [25]. L'application des traçages pour la caractérisation de garnissage [3], de lit catalytique ou de colonnes de chromatographie en génie des procédés, est toujours très active. En effet, les écoulements ont des comportements proches d'un écoulement piston et les temps de séjour des fluides dans le dispositif considéré est déterminant pour effectuer leur dimensionnement. En géosciences comme en génie chimique, il y a un fort intérêt à développer des modèles représentatifs de ces traçages, d'une part pour être prédictifs sur le transport d'une espèce (polluante par exemple) dans un réservoir souterrain [62–65] et d'autre part, pour modéliser l'hydrodynamique d'un réacteur afin de l'insérer dans des modèles multi-physiques plus globaux [66].

3. milieu poreux structuré ou non structuré utilisé dans les procédés de séparation pour optimiser les contacts entre les phases et favoriser les transferts thermiques ou massiques.

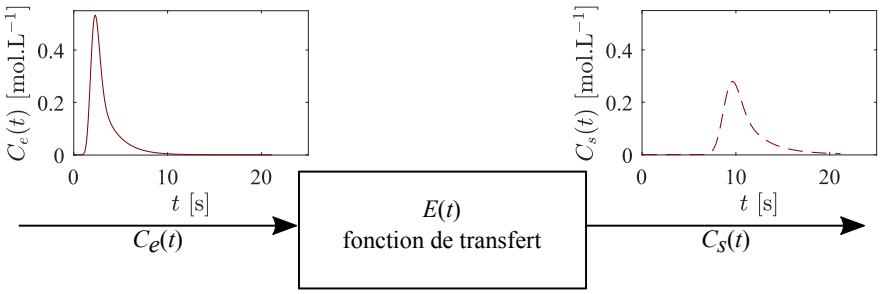

FIGURE 15 – Illustration de la distribution de temps de séjour (DTS), $E(t)$, comme la fonction de transfert caractéristique du réacteur. Elle relie le signal temporel de la concentration du traceur en sortie, $C_s(t)$, au signal d'entrée $C_e(t)$ par l'équation : $Q_s C_s(t) = Q_e \int_0^t C_e(t=0)E(t)dt$ [51] où Q_e et Q_s sont respectivement les débits en entrée et sortie du réacteur.

Dans ce contexte, DANCKWERTS [67] développe en 1953 le concept de distribution de temps de séjour (DTS) qui repose sur une description statistique (basée sur les bilans de population) du devenir d'une fraction des particules fluides au cours de son passage dans un réacteur [66]. La DTS, notée $E(t)$, est définie comme étant la densité de probabilité du temps de séjour des particules dans le réacteur. Elle respecte donc l'égalité suivante :

$$\int_0^\infty E(t)dt = 1 \ . \tag{8}$$

La figure 15 illustre la DTS en termes de dynamique des systèmes linéaires où elle est exprimée comme la fonction de transfert du système constitué par le réacteur. De nombreuses techniques expérimentales [51, 66, 68] permettent d'accéder aux valeurs numériques de la DTS. En fonction du dispositif utilisé, deux méthodes d'acquisition sont classiquement rencontrées :

— une acquisition directe par une mesure unique en sortie du système [69]
— une acquisition indirecte par une mesure en deux points : entrée et sortie du système. Cette dernière requiert alors des opérations de convolution ou déconvolution pour extraire la DTS [20, 42, 70, 71].

La seconde méthode, permettant de s'affranchir des perturbations de l'écoulement liées à la distribution des fluides dans le réacteur, est plus précise et les informations extraites de la DTS sont beaucoup plus ciblées sur l'écoulement entre les deux points de mesure. Par conséquent, étant donné que le dispositif expérimental le permet, c'est cette méthode qui est choisie pour les expériences menées dans cette thèse.

Pour la méthode des deux mesures, les signaux d'entrée et de sortie sont reliés à la concentration du traceur par l'équation suivante [51] :

$$E_i(t)dt = \frac{C_i(t)dt}{\int_0^\infty C_i(t)dt} \ \ [i = e, s] \ , \tag{9}$$

où $C_i(t)$ est la concentration du traceur en entrée ($i = e$) et en sortie ($i = s$) du système linéaire. La DTS est reliée aux signaux entrée/sortie par le produit de convolution : $E_s(t) = E(t) * E_e(t)$.

La modélisation de la DTS s'appuie sur les lois de transport d'un soluté dans l'objectif de représenter au mieux l'écart à un écoulement piston pur (cas idéal). La

sélection des modèles présentés s'appuie d'une part sur l'adéquation avec le cadre du manuscrit et d'autre part sur leur représentation dans la littérature. Les modèles présentés sont séparés en deux groupes : ceux qui représentent un transport de type "Fickien", considérant une dispersion axiale homogène obéissant à la loi de Fick, et ceux qui considèrent un transport "non Fickien" lié à la présence de zones stagnantes à l'intérieur du milieu poreux qui créent d'autre sources de dispersion n'obéissant plus à la loi de Fick. Dans ces deux groupes, les caractéristiques des approches continues et discrètes seront déclinées pour leur application en génie chimique. Dans le cas des géosciences, où les hétérogénéités sont très variées, des modèles de marche au hasard ont été développés. Un exemple est présenté en fin de partie, car ce genre de modèles présente un intérêt dans leur application pour les procédés industriels hétérogènes (garnissage non structurés, ou empilements d'extrudés par exemple).

Modélisation du transport Fickien : modèles continus vs modèles discrets

Un des modèles très représenté dans la littérature est le modèle continu appelé *Piston-Dispersion* ou *modèle de dispersion axiale*. Il est construit à partir de l'Équation d'Advection-Diffusion (ADE),

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u\frac{\partial C}{\partial x} = \mathcal{D}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \ , \tag{10}$$

où C est la concentration en traceur, u la vitesse du fluide et $\mathcal{D}$ un coefficient global de dispersion axiale obéissant à la loi de Fick. La résolution de l'ADE permet d'obtenir l'expression de $E(t)$ présentée dans la table 3. Dans l'expression de $E(t)$ il n'y a que deux paramètres : le temps de séjour moyen de la phase liquide, τ, et le coefficient de dispersion, $\mathcal{D}$. Cette solution est proposée pour des conditions aux limites ouvertes à la dispersion [66]. Dans les cas où les bornes du réacteur sont partiellement ou totalement fermées à la dispersion, les solutions nécessitent un développement mathématique plus complexe et sont données dans l'espace de Laplace. La prise en compte de ces conditions aux limites est très importante dans le cas d'écoulements fortement dispersifs ; lorsque l'écoulement tend vers un comportement piston, elles ont très peu d'influence. Ces dernières ne sont pas détaillées ici car l'étude de la DTS présentée dans le chapitre 3 est en conditions ouvertes à la dispersion.

La précision mathématique du modèle continu est exigeante en temps de calcul, élément clé au moment où ces derniers ont été développés. Or, expérimentalement cette précision n'est souvent pas atteignable et l'imprécision qu'elle génère n'est pas cohérente avec une modélisation aussi complexe. Dans ce contexte, des modèles discrets se sont développés afin de proposer des solutions basées sur une approche physique simplifiée qui permet une résolution rapide pour obtenir l'expression de $E(t)$. Cela consiste à représenter le gradient de concentration du traceur de manière discrète en l'approchant par une cascade de plusieurs réacteurs parfaitement mélangés (figure 16).

L'expression classique de ce type de modèles, nommés *modèles de mélangeurs en cascade* [4], est détaillée en table 3. Elle est basée sur la généralisation de bilans massiques unitaires effectués pour chacun des $j = 1, 2, ..J$ réacteurs mis en série. Dans ce modèle, la dispersion Fickienne est représentée par le nombre de réacteurs en série et

4. En anglais, ces modèles sont connus sous le noms de CSTR : Continuous Stirred Tank Reactors

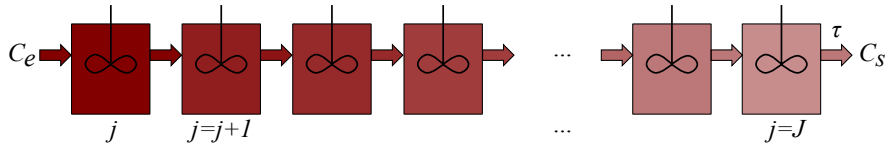

FIGURE 16 – Schéma de principe du modèle de mélangeurs en cascade (CSTR) avec l'illustration du gradient de concentration du traceur entre l'entrée (C_e) et la sortie (C_s) du réacteur piston et le temps de séjour moyen du traceur, τ.

est proportionnelle à $1/J$. La simplicité de sa résolution en fait un modèle attrayant car la rapidité du calcul est très satisfaisante pour la qualité de représentation des résultats expérimentaux.

Cependant, en présence d'un milieu poreux, il existe de nombreuses situations où le transport n'obéit plus à la loi de Fick. Un exemple de transport de sept injections indépendantes de traceur dans un lit granulaire homogène immergé est illustré en figure 17 (figure extraite de LEVY et BERKOWITZ [72]). La non-homogénéité de la propagation de chacune des injections montre que même si le milieu poreux est homogène, le transport de particules en son sein est hétérogène et la dispersion ne suit plus la loi de Fick.

Ces observations sont valables pour les écoulements étudiés dans le chapitre 3, qui sont soumis à plusieurs sources d'hétérogénéités :

— écoulements multiphasiques
— lits de billes polydisperses
— mousses solides à porosité hétérogène
— effets de bords importants liés au confinement.

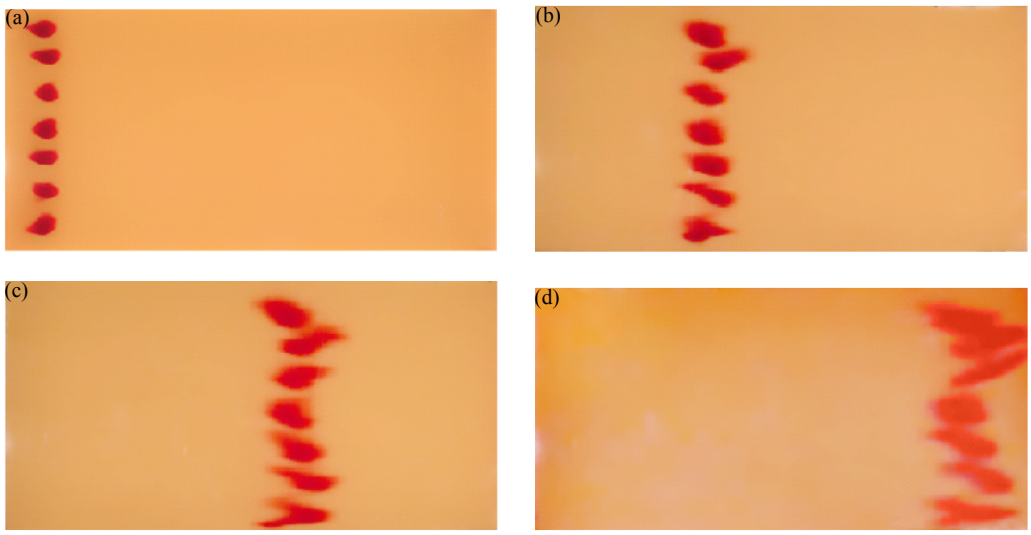

FIGURE 17 – Évolution temporelle du transport non-Fickien de sept injections indépendantes de traceur dans un milieu granulaire homogène et saturé [$Q_L = 53$ mL.min^{-1}, cellule de dimension interne $85 \times 45 \times 10$ cm^3]. Les images sont enregistrées à (a) $t = 20$ min, (b) $t = 105$ min, (c) $t = 172$ min, (d) $t = 225$ min après injection du traceur. Images extraites de LEVY et BERKOWITZ [72].

AUTEURS	APPLICATION	MODÈLES
VILLERMAUX [66], HORNUNG et MACKLEY [73], HUTTER et al. [74], SABER et al. [75], MOHAMMED et al. [76], and BITTANTE et al. [77]	génie chimique	Piston-Dispersion Équation : $\frac{\partial C}{\partial t} + u\frac{\partial C}{\partial x} = \mathcal{D}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$ Distribution : $E(t) = \frac{1}{2\tau}\left(\frac{u}{\mathcal{D}\pi}\right)^{1/2} exp\left(-\frac{u(\tau-t)^2}{\mathcal{D}4\tau^2}\right)$ Paramètres : τ, $\mathcal{D}$
VILLERMAUX [66] and BITTANTE et al. [77]	génie chimique	Mélangeurs en cascade (CSTR) Équation : $QC_{j-1} = QC_j + \frac{V_R}{J}\frac{dC_j}{dt}$ Distribution : $\overline{E(s)} = [1 + (\tau s/J)]^{-J}$ $E(t) = \left(\frac{J}{\tau}\right)^J \frac{t^{J-1} exp(-Jt/\tau)}{(J-1)!}$ Paramètres : τ, $j = 1, 2, ..., J$
KREUTZER et al. [70], VAN SWAAIJ et al. [78], and HAGGERTY et al. [79]	génie chimique, géosciences	Piston-Dispersion-Échange (PDE) Équations : $\frac{\partial C_{dyn}}{\partial t} + u_{dyn}\frac{\partial C}{\partial x} = \mathcal{D}\frac{\partial^2 C_{dyn}}{\partial x^2} - \frac{k_{st}}{\theta}\left(C_{dyn} - C_{st}\right)$ $\frac{\partial C_{st}}{\partial t} = \frac{k_{st}}{1-\theta}\left(C_{dyn} - C_{st}\right)$ Distribution : résolution numérique recommandée Paramètres : θ, $\mathcal{D}$, k_{st}
SARDIN et al. [80]	génie chimique	Mélangeurs en cascade avec zone morte ($CSTR_4$) Équations : $QC_{j-1,dyn} = QC_{j,dyn} + \frac{\theta V_R}{J}\frac{dC_{j,dyn}}{dt} + \frac{(1-\theta)V_R}{J}\frac{dC_{j,st}}{dt}$ $\frac{dC_{j,st}}{dt} = \frac{k_{st}}{(1-\theta)}\left(C_{j,dyn} - C_{j,st}\right)$ Distribution : $\overline{E(s)} = \left\{1 + \frac{\tau s}{J}\left[1 + \frac{K_{im}}{1+st_M}\right]\right\}^{-J}$ Paramètres : τ, $j = 1, 2, ..., J$, K_{im},t_M
BERKOWITZ et al. [25]	géosciences, milieux fracturés	Marches au hasard (CTRW) Équation : $u\overline{C}(\mathbf{s}, u_p) - C_0(\mathbf{s}) =$ $-\overline{M}(u_p)\left[\mathbf{v}_\psi . \nabla\overline{C}(\mathbf{s}, u_p) - \mathbf{D}_\psi \ : \ \nabla\nabla\overline{C}(\mathbf{s}, u_p)\right]$ Distribution : $\overline{\psi}(\mathbf{s}, u)$

TABLE 3 – Description des différents modèles proposés pour décrire les distributions de temps de séjour. C : concentration en traceur, t : temps, $\mathcal{D}$: coefficient de diffusion, $\tau = t/\tilde{t}$ temps réduit avec $\tilde{t}$ le temps de séjour moyen des particules fluides, k_{st} : coefficient de transfert global entre la phase dynamique et la phase statique, θ : fraction de phase fluide mobile, J : nombre de réacteurs en série, $K_{im} = (1-\theta)/\theta)$, t_M : temps caractéristique de transfert entre la phase dynamique et la phase statique, $\overline{X}$: variables exprimées dans le domaine de Laplace, $\overline{M}$: fonction mémoire.

Fortement inspirés des modèles Fickiens, les modèles suivants, plus complexes, ont été développés pour représenter les transports non-Fickiens en prenant en compte, par exemple, la présence de zones immobiles dans le milieu poreux.

Modélisation du transport non-Fickien : modèles continus vs modèles discrets

Le modèle *Piston-Dispersion-Échange (PDE)* décrit le cas particulier d'un transport non-Fickien qui considère la présence de zones immobiles dans le réacteur et un transfert entre les zones mobiles et immobiles qui participe à la dispersion (terme plus large que la diffusion) du traceur au cours de son transport. L'équation d'advection-diffusion (ADE) est alors complétée pour faire apparaître cette contribution comme suit :

$$\frac{\partial C_{dyn}}{\partial t} + u_{dyn}\frac{\partial C_{dyn}}{\partial x} = \mathcal{D}\frac{\partial^2 C_{dyn}}{\partial x^2} - \frac{k_{st}}{\theta}\left(C_{dyn} - C_{st}\right) \quad (11)$$

$$\frac{\partial C_{st}}{\partial t} = \frac{k_{st}}{1-\theta}\left(C_{dyn} - C_{st}\right) \ , \quad (12)$$

où C_{dyn} et C_{st} sont les concentrations de traceur dans les phases respectivement dynamique (mobile) et statique (immobile), θ la fraction de phase mobile dans le réacteur et k_{st} le coefficient de transfert global (dimension $[T^{-1}]$) entre la fraction mobile et la fraction stagnante.

La résolution analytique du modèle PDE est lourde, il est donc très rare de trouver des expressions analytiques de la DTS dans le domaine temporel. En effet, les auteurs qui caractérisent la DTS par ce modèle, utilisent soit une résolution numérique [70] soit, pour les études plus anciennes (temps de calcul beaucoup plus long), une expression dans le domaine de Laplace [80].

Comme indiqué précédemment, le concept de DTS est aussi applicable aux traçages souterrains. Il a donc été appliqué aux phénomènes de transport dans les réservoirs souterrains à partir du modèle PDE comme présenté par Haggerty et al. [79]. Le comportement fortement non-gaussien des DTS[5] acquises en géosciences déplace l'enjeu qui consiste alors à proposer deux solutions différentes du modèle PDE : une solution aux temps courts (résolution directe du PDE) et une solution aux temps longs approchée par une analyse asymptotique de la courbe de DTS. Cette dernière est alors essentiellement représentée par des lois de puissances obtenues par une analyse asymptotique des courbes aux temps longs.

Comme pour le modèle de dispersion axiale, un pendant discret du modèle PDE est proposé sous forme d'une cascade de réacteurs parfaitement agités, noté CSTR_4 dans la suite du manuscrit. Le principe est identique au modèle CSTR présenté précédemment. La différence porte sur la définition des cellules unitaires, qui contiennent alors une fraction mobile (θ) et une fraction immobile ($\theta_{im} = 1 - \theta$). L'adaptation du modèle CSTR à un transport non-Fickien est présenté en figure 18.

Comme décrit en table 3, les bilans massiques unitaires pour chaque réacteur agité sont modifiés par rapport au modèle CSTR par l'ajout du terme de dispersion liée à la présence de zones mortes, définie par deux paramètres : $K_{im} = (1-\theta)/\theta$ et t_M, le temps caractéristique de transfert entre la zone mobile et la zone immobile.

5. En anglais, DTS est noté RTD pour Residence Time Distribution (génie chimique) ou BTC pour BreakThrough Curves (géophysique)

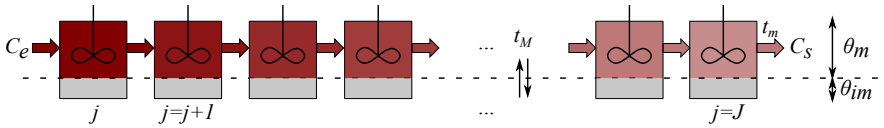

FIGURE 18 – Schéma de principe du modèle de mélangeurs en cascade avec zones mortes basé sur le même principe que le modèle CSTR avec deux paramètres supplémentaires : la fraction de phase mobile θ et le temps caractéristique de transfert entre la phase mobile et la phase statique t_M.

L'apport croissant des capacités de calcul a permis des résolutions numériques plus efficaces du modèle PDE, au détriment du modèle discret, moins représenté dans la littérature.

Étant dans un contexte interdisciplinaire, le paragraphe suivant présente le type de modèles actuellement développés en géophysique, dont l'objectif est de représenter le transport mais aussi d'être prédictif, ce qui n'est pas la priorité dans les modèles précédents.

Modèle de marche au hasard

Comme présenté en section 1.2, la porosité et la perméabilité d'un milieu poreux naturel ne sont pas maîtrisées. De plus la présence de fractures et de failles possiblement combinées avec des roches très faiblement poreuses ($\epsilon < 10\%$) rend ces milieux très fortement hétérogènes. Cela rajoute de nombreuses perturbations en plus des zones stagnantes pour la caractérisation du transport. Ainsi, une approche globale statistique a été proposée au cours des dernières décennies caractérisant le transport en milieu poreux basé sur un modèle de marche au hasard. Une description très complète de cette approche est présentée par BERKOWITZ et al. [25], qui développent les enjeux ainsi que la mise en place de l'équation de transport de particules par une marche aléatoire.

L'approche est basée sur la description du transport de particules comme une série de transitions successives d'une position $\mathbf{s}$ à une position $\mathbf{s'}$. La particularité de cette méthode est de garder en mémoire la distribution des probabilités de mouvement au cours du temps. L'expression de la conservation de la masse dans ce système est décrite par l'équation connue sous le nom de "Generalized Master Equation" (GME) :

$$\frac{\partial c(\mathbf{s},t)}{\partial t} = - \underbrace{\sum_{s'} \int_0^t \Phi\left(\mathbf{s'}-\mathbf{s}, t-t'\right) c(\mathbf{s},t')dt'}_{\text{distribution de probabilité de mouvement de } \mathbf{s} \text{ vers } \mathbf{s'}} + \underbrace{\sum_{s'} \int_0^t \Phi\left(\mathbf{s}-\mathbf{s'}, t-t'\right) c(\mathbf{s'},t')dt'}_{\text{distribution de probabilité de mouvement de } \mathbf{s'} \text{ vers } \mathbf{s}} , \tag{13}$$

où $c(\mathbf{s},t)$ est la concentration moyenne normalisée des particules et $\Phi(\mathbf{s},t)$ est décrite par l'équation 14. Afin d'obtenir l'expression en variables continues (spatiale et

temporelle), le développement est effectué dans le domaine de Laplace. La fonction $\Phi(\mathbf{s}, t)$ est alors exprimée comme suit :

$$\overline{\Phi}(\mathbf{s}, u) = \frac{u\overline{\psi}(\mathbf{s}, u)}{1 - \overline{\psi}(u)} \tag{14}$$

$$\overline{\psi}(u) \equiv \sum_{\mathbf{s}} \overline{\psi}(\mathbf{s}, u) \ , \tag{15}$$

où $\overline{\psi}(\mathbf{s}, u)$ est la densité de probabilité de mouvement des particules, qui est assimilable à la DTS décrite par les modèles présentés précédemment.

L'équation de transport en variables continues, donnée dans la table 3, a la forme d'une généralisation de l'équation d'advection-diffusion (ADE) considérant des réponses temporelles différentes dans l'espace [25]. Dans cette expression, $\overline{M}(u_p) = \overline{t}u\left(\overline{\psi}(u)/(1-\overline{\psi}(u))\right)$ est une fonction mémoire, $\mathbf{v}_\psi$ la vitesse de transport et $\mathbf{D}_\psi$ la dispersion des particules au cours du transport. $\mathbf{v}_\psi$ et $\mathbf{D}_\psi$ ont des significations physiques différentes de la vitesse et de la dispersion présentes dans l'ADE. Ce sont les moments (spatiaux) des distributions de probabilité de mouvement de $\overline{\psi}(\mathbf{s}, u)$, l'équivalent de la DTS en approche ADE.

De même que plusieurs modèles de DTS sont proposés lorsque plusieurs alimentations sont présentes dans un réacteur ou en présence de boucle de recyclage, plusieurs modèles sont proposés pour $\overline{\psi}(\mathbf{s}, u)$, selon que le milieu poreux est fracturé ou que sa perméabilité est plutôt homogène ou très hétérogène [65, 81, 82]. Cela dépend fortement de l'échelle de la modélisation, comme discuté précédemment pour la qualification de la porosité d'un milieu poreux.

Ces modèles sont très globaux et polyvalents, mais nécessitent un développement numérique lourd. Ils sont donc dans la limite fixée par les objectifs de ces travaux où les modèles ont pour objectif d'approfondir la compréhension théorique et la généralisation des résultats expérimentaux, au cœur de ce travail. Dans ce contexte, ce sont les modèles discrets qui sont les plus appropriés. Les différentes sources d'hétérogénéités, discutées précédemment, font du modèle discret à quatre paramètres un outil très intéressant pour représenter les DTS décrites dans le chapitre 3. Son utilisation dans le cadre de cette thèse permet d'enrichir la littérature en l'adaptant à des cas innovants comme la propagation d'un écoulement gaz-liquide confiné dans une mousse solide. La variation des milieux poreux (billes/mousses) et des vitesses des phases, permet de discuter du sens physique des quatre paramètres de ce modèle.

1.4.2 *De Darcy à la modélisation numérique*

Les modèles présentés dans la partie précédente permettent de caractériser le transport de particules et de définir la forme de la loi de conservation de la masse à travers l'étude de la DTS. Pour modéliser l'hydrodynamique de manière globale, il est nécessaire de considérer, en complément, la loi de conservation de la quantité de mouvement. C'est l'objectif de cette section, qui décrit les modèles de pertes de charge les plus représentés dans la littérature pour des approches expérimentales. Encore une fois, cette description ne recherche pas la caractère exhaustif mais une cohérence avec l'ensemble du manuscrit.

Écoulements monophasiques : loi de Darcy

Darcy est l'un des pionniers - au moins le plus connu - à proposer un modèle pour représenter les pertes de charge lors de l'écoulement de l'eau dans du sable. Une des premières applications est le pompage de l'eau pour alimenter les fontaines de la ville de Dijon en 1856 [83]. Par ses expériences d'écoulement d'eau dans une colonne de sable, Darcy propose la loi phénoménologique de variation de la vitesse d'écoulement de l'eau dans le sable en fonction des pertes de charge exprimées comme suit :

$$u = -\frac{K_w}{\rho g}\left(\nabla P - \rho g\right) \ , \tag{16}$$

où il introduit le concept de conductivité hydraulique, K_w, paramètre caractéristique de la capacité d'un fluide à s'écouler dans un milieu poreux donné. La vitesse, u, correspond à la vitesse de Darcy, aussi appelée vitesse superficielle et se définit comme le débit divisé par une section sans tenir compte de la présence du milieu poreux. P, ρ et g sont respectivement la pression, la masse volumique du fluide et la constante d'accélération de la gravité. K_w dépend du fluide et du milieu poreux. Des études phénoménologiques complémentaires [33] ont alors été menées pour exprimer K_w en fonction des propriétés des fluides et du milieu poreux pour aboutir à l'équation suivante :

$$K_w = \frac{K_s \rho g}{\mu} \ , \tag{17}$$

où μ est la viscosité. Cette corrélation introduit ainsi la notion de perméabilité intrinsèque au milieu poreux, K_s [6], décrite en section 1.2.1, qui ne dépend plus du fluide et dont la dimension est relative à une longueur au carré.

La loi usuelle de Darcy est obtenue en introduisant l'équation 17 dans l'équation 16 :

$$-\nabla P = \frac{\mu u}{K_s} - \rho g \ . \tag{18}$$

Il est possible de retrouver la loi de Darcy à partir du bilan de quantité de mouvement des équations de Navier-Stokes, défini par l'équation suivante :

$$\frac{\partial\left(\rho u\right)}{\partial t} + \rho u.\nabla u = -\nabla P + \mu \nabla^2 u + \rho g \ , \tag{19}$$

en faisant les hypothèses suivantes :

— l'écoulement est stationnaire
— le fluide est incompressible
— la contribution inertielle est négligeable devant la contribution visqueuse.

Ces hypothèses permettent de se ramener à l'équation de Stokes :

$$-\nabla P = -\mu \nabla^2 u - \rho g \ . \tag{20}$$

L'expression phénoménologique du Laplacien de la vitesse, $\nabla^2 u \propto -u/K_s$, permet ainsi de prendre en compte les effets du milieu poreux sur l'écoulement.

6. K_s est définie comme un tenseur d'ordre 2 dont les éléments hors diagonale sont nuls et ceux de la diagonale sont égaux ($K_{sxx} = K_{syy} = K_{szz}$) lorsque le milieu poreux est isotrope [33].

Introduction d'un terme inertiel : loi de Forchheimer

En 1901, en parallèle des études menées par Darcy, FORCHHEIMER [84] propose un terme complémentaire à la loi de Darcy, pour des cas où d'une part, la gravité est négligeable, et d'autre part, la composante inertielle du bilan de quantité de mouvement n'est plus négligeable devant la composante visqueuse :

$$-\nabla P = \frac{\mu u}{K_s} + \frac{\rho u^2}{\eta} \ . \tag{21}$$

La loi de Forchheimer introduit, η, qui est parfois nommée "passabilité" [40] ou perméabilité inertielle [85], mais qui ne bénéficie pas, à notre connaissance, d'une description aussi détaillée que la perméabilité intrinsèque sous forme de tenseur par exemple. Comme pour la loi de Darcy, il est possible d'exprimer la loi de Forchheimer à partir de l'équation de Navier-Stokes (équation 19) en faisant les hypothèses suivantes :

— l'écoulement est stationnaire
— le fluide est incompressible
— la composante gravitationnelle est négligeable,

et en proposant des expressions phénoménologiques pour le terme non linéaire $\nabla u \propto u/\eta$ et pour $\nabla^2 u \propto -u/K_s$, qui prennent en compte les effets liés à l'écoulement dans le milieu poreux.

La perméabilité intrinsèque K_s et la perméabilité inertielle η peuvent être déterminées expérimentalement en effectuant des mesures de pertes de charge à différents débits en phase liquide [86] ou parfois en phase gazeuse [38, 40, 87, 88] où les hypothèses sur lesquelles reposent les loi de Darcy (incompressibilité) et de Forchheimer (écoulement non gravitaire, incompressibilité) ne sont plus nécessairement respectées. Sans acquisitions expérimentales, ces grandeurs peuvent aussi être calculées à partir des caractéristiques du milieux poreux par les corrélations phénoménologiques proposées par Kozeny-Carman [89] :

$$K_s = \frac{d^2 \epsilon^3}{A\,(1-\epsilon)^2} \ , \tag{22}$$

et Ergun [90] :

$$\eta = \frac{d \epsilon^3}{B\,(1-\epsilon)} \ , \tag{23}$$

où d est le diamètre des particules, ϵ la porosité et les coefficients $A = 180$ et $B = 1.8$ ont été définis de manière empirique et sont validés pour un grand nombre de milieux poreux.

Les lois de Darcy et de Forchheimer ont été développées pour les écoulements monophasiques. Cependant, comme évoqué au début du chapitre, il existe beaucoup de cas où plusieurs phases coexistent. La partie suivante présente les extensions apportées à ces deux lois pour les adapter à des écoulements multiphasiques, qui sont ceux concernés cette thèse.

Adaptation aux écoulements multiphasiques

Dans le contexte de ce manuscrit, les modèles suivants sont présentés en considérant un écoulement gaz-liquide. À la différence d'un écoulement monophasique, les

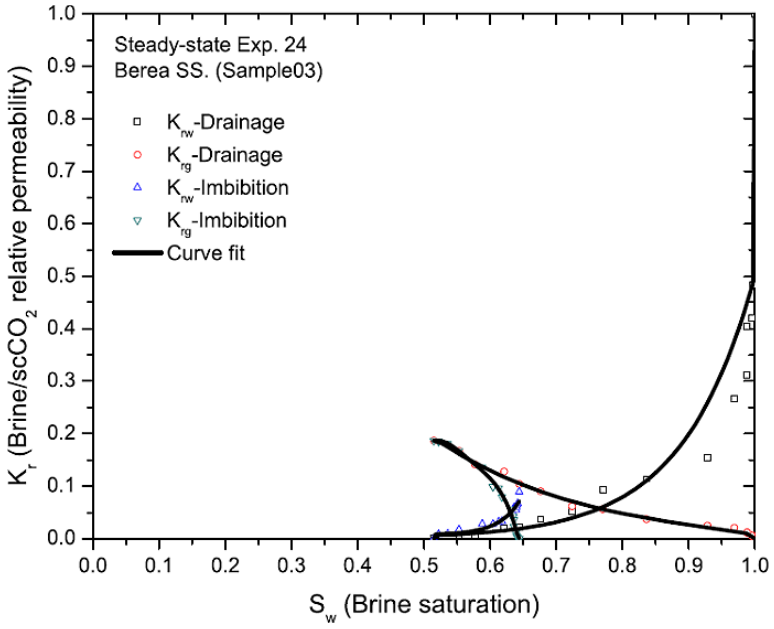

FIGURE 19 – Présentation des données expérimentales et d'ajustement de la dépendance des perméabilités relatives, K_r, pour la saumure (brine), K_{rw}, et pour l'air, K_{rg}, en fonction de la saturation en saumure, S_w, (figure extraite d' AKBARABADI et PIRI [94]).

deux phases, le liquide souvent mouillant, et le gaz plus fréquemment non mouillant interagissent entre eux et avec le solide.

Pour prendre en compte ces interactions, une adaptation classique de la loi de Darcy pour l'écoulement d'une phase i consiste à ajouter un préfacteur devant K_s, appelé la perméabilité relative et noté k_{ri} [88, 91–94]. La loi de Darcy en écoulement multiphasique devient donc :

$$-\nabla P_i = \frac{u_i \mu_i}{k_{ri} K_s} - \rho_i g \ . \tag{24}$$

La perméabilité relative, k_{ri}, dépend fortement de la saturation de la phase i dans le milieu poreux [33], ainsi que des forces capillaires [86]. La saturation d'une phase i est sa fraction volumique à l'intérieur du volume poreux. Plusieurs corrélations sont proposées pour l'estimer, mais elle peut aussi être acquise par un dispositif expérimental permettant une mesure des pertes de charge indépendante pour chacune des phases [94]. La figure 19, issue de AKBARABADI et PIRI [94], illustre des mesures expérimentales de perméabilité relative, K_r, lors d'un écoulement de saumure[7] et d'air pour l'étude du stockage du CO_2 dans différentes roches réservoirs. L'évolution des perméabilités relatives de la saumure, K_{rw}, et de l'air, K_{rg}, est donnée en fonction de la saturation en saumure, S_w, pour des expériences successives de drainage (la phase non mouillante chasse la phase mouillante) et d'imbibition (la phase mouillante chasse la phase non mouillante).

7. La saumure est de l'eau sursaturée en sel, très présente dans les aquifères où le CO_2 est classiquement injecté pour y être stocké.

La même adaptation est proposée pour la loi de Forchheimer, où le préfacteur η_{ri} est ajouté devant la perméabilité inertielle, η [40, 95] :

$$-\nabla P_i = \frac{u_i \mu_i}{k_{ri} K_s} + \frac{u_i^2 \rho_i}{\eta_{ri} \eta} \ . \tag{25}$$

À notre connaissance, il n'existe pas de mesure expérimentale de η_{ri} dans la littérature, ce paramètre est donc souvent exprimé sous forme de corrélation par analogie à k_{ri}.

Dans la communauté du génie des procédés, la formulation multiphasique de la loi de Forchheimer a été exprimée à partir de nombres sans dimension, comme proposé par Saez et Carbonell [85] :

$$-\nabla P_i = \left[\frac{A}{k_{\mu i}} \frac{Re_i^*}{Ga_i^*} + \frac{B}{k_{\rho i}} \frac{Re_i^{*2}}{Ga_i^*} \right] \rho_i g u_i \ , \tag{26}$$

où A et B sont les coefficients introduits par Kozeny-Carman (équation 22) et Ergun (équation 23), $k_{\mu i}$ et $k_{\rho i}$ sont définies comme les perméabilités relatives respectivement visqueuse et inertielle et Re_i^* et Ga_i^* sont les nombres de Reynols et de Galilée modifiés :

$$Re_i^* = \frac{\rho_i u_i L^*}{\mu_i} \tag{27}$$

$$Ga_i^* = \frac{\rho_i^2 g L^{*3}}{\mu^2} \ , \tag{28}$$

$$\text{où } L^* = \frac{d\epsilon}{(1-\epsilon)} \ . \tag{29}$$

En remplaçant les nombres sans dimension par leurs expressions, l'équation proposée par Saez et Carbonell [85] correspond exactement à la loi de Forchheimer. Plusieurs reformulations de cette loi ont été proposées dans la littérature (voir par exemple Holub et al. [96] ou Fourar et al. [97]) ainsi que des adaptations pour des applications à plus haute pression (Al-Dahhan et al. [98]) ou encore pour caractériser de nouveaux milieux poreux (Edouard et al. [99]).

D'autres modèles proposent des versions plus complexes où la loi de Forchheimer est déclinée pour exprimer les différentes interactions entre phases au lieu d'utiliser la perméabilité relative. On peut citer par exemple le modèle développé par Attou et al. [48] dont la formulation est la suivante :

$$\begin{aligned} \alpha_i \nabla P = \quad & \underbrace{-\Gamma_i \alpha_i \rho_i v_i \nabla v_i}_{\text{inertie du film } i} + \underbrace{\alpha_j \left(A_{ij}\left(\alpha_j\right) \mu_j u_r + B_{ij}\left(\alpha_j\right) \rho_j u_r^2 \right)}_{\text{interactions entre } i \text{ et } j} \\ & - \underbrace{\left(A_{is}\left(\alpha_j\right) \mu_i u_i + B_{is}\left(\alpha_j\right) \rho_i u_i^2 \right)}_{\text{interactions entre } i \text{ et } s} - \underbrace{\alpha_i \rho_i g}_{\text{effets de la pesanteur}} \ . \end{aligned} \tag{30}$$

Les phases i, j et s sont respectivement la phase mouillante (ici liquide), la phase non mouillante (ici gaz) et le solide. Cette formulation contient quatre variables : $\alpha_j = 1 - \alpha_i$ la fraction volumique occupée par le gaz, u_i et u_j les vitesses superficielles du liquide et du gaz et P la pression. $v_i \propto u_i / \epsilon$ est la vitesse interstitielle du liquide et $u_r(\alpha_j, u_i, u_j)$ la vitesse de glissement entre les phases liquide et gazeuse [100–102].

Cette équation n'est pas solvable à elle seule et fait partie d'un système de quatre équations [48] dont la résolution nécessite la mise en place de méthodes numériques. Ce niveau de détail se situe donc à la limite entre les modèles phénoménologiques et les modèles numériques, ces derniers étant très nombreux mais hors du contexte de ce manuscrit.

1.5 VERROUS ET OBJECTIFS

La diversité des écoulements multiphasiques illustrée dans ce chapitre en font un objet d'étude commun à plusieurs domaines. Chacun se l'est approprié en développant une expertise d'une part dans sa caractérisation et d'autre part dans sa compréhension mais de manière cloisonnée. L'approche phénoménologique, inhérente à la complexité du problème, a conduit au développement de modèles et de corrélations établis pour un système donné. De nombreux verrous sont encore à lever pour généraliser la formalisation des modèles décrits dans ce chapitre.

La globalisation des modèles est aujourd'hui tangible dans les approches numériques. Cependant, ces méthodes sont souvent lourdes en développement numérique et en temps de calcul ce qui les rend peu adaptées à la recherche fondamentale basée sur l'observation expérimentale. Afin de participer à ces enjeux, ce projet de thèse est basé sur la volonté d'unir les outils expérimentaux et les méthodes d'analyse de la physique fondamentale et du génie chimique. Dans ce contexte, l'étude d'un écoulement gaz-liquide dans des milieux poreux rigides est proposée selon trois axes :

1. *effet du milieu poreux* sur un écoulement confiné afin d'observer les régimes hydrodynamiques en fonction de la géométrie de ces milieux de manière à développer des modèles phénoménologiques dépendant de ces paramètres pour qu'ils soient plus généraux
2. *effet du confinement* sur la dynamique des interfaces gaz-liquide dans un objectif de caractérisation des petits dispositifs très utilisés pour le test de nouveaux catalyseurs et présentant de très bonnes capacités de transferts massiques et thermiques
3. *effet de la gravité* analysé dans l'objectif d'évaluer quelle configuration est la plus optimale en terme d'énergie dépensée (pertes de charge essentiellement) pour le mouvement gaz-liquide généré dans le système.

Ces trois axes sont abordés par une analyse multi-échelles combinant des méthodes expérimentales et de la modélisation à l'échelle macroscopique ainsi qu'à l'échelle du pore. La combinaison de la variation de la *gravité* et du *confinement* permettent de proposer une étude comparative entre ces deux paramètres concernant la dynamique à l'intérieur du système. Une ouverture sur les résultats hydrodynamique sera proposée pour discuter de leur influence sur la qualité des transferts gaz-liquide. L'objectif principal est de comparer deux milieux très différents : d'une part les lits de billes, bénéficiant d'une riche littérature en écoulement non confiné ou en écoulement de gaz en milieu immergé, mais qui reste à compléter dans des conditions d'écoulement gaz-liquide confiné ; d'autre part, les mousses solides, milieu poreux innovant comme support de catalyseur, pour lesquels très peu de données existent dans la littérature et pour lesquelles l'hydrodynamique d'un écoulement gaz-liquide, peu caractérisée nécessite encore d'être approfondie et comparée à des milieux plus conventionnels.

Dans ce contexte, deux approches sont proposées dans le manuscrit : une approche globale caractérisée par des mesures aux bornes du milieu poreux et une approche locale centrée sur de la visualisation directe de l'écoulement à l'intérieur du milieu poreux.

Dans le chapitre 2, nous présenterons tout d'abord les dispositifs expérimentaux utilisés, comprenant les différents fluides et milieux poreux testés. Un seconde partie est consacré à l'introduction des différentes méthodes développées pour mettre en valeur les acquisitions expérimentales et en extraire les informations souhaitées.
Le chapitre 3, présente dans un premier temps des mesures de DTS dans un canal millifluidique (écoulement 1D, quasi-unidimensionnel) contenant différents milieux poreux. Étant en présence d'un écoulement confiné, la DTS est mesurée par visualisation directe de l'écoulement afin d'éviter toute introduction de dispositifs de mesure susceptibles de perturber l'écoulement. Un des objectifs a donc été de développer une méthode d'analyse robuste pour extraire la DTS en présence de signaux pulsés afin de pouvoir modéliser les signaux résultants avec le modèle discret à quatre paramètres incluant la présence de zones mortes. L'évolution des paramètres du modèle en fonction de la vitesse des phases et des caractéristiques du milieu poreux est ensuite analysée pour discuter du sens physique de ces derniers.

La caractérisation de la DTS est complétée par des mesures de pertes de charge dans chacun des milieux poreux. Ces acquisitions expérimentales ont pour objectif de compléter les approches macroscopiques des lois de Darcy et de Forchheimer par des paramètres influents à l'échelle du pore.

Enfin, cette étude hydrodynamique globale s'ouvre en fin de chapitre sur des mesures de transfert gaz-liquide basées sur une réaction d'absorption. Cette ouverture a pour objectif de relier l'hydrodynamique aux performances de transferts en fonction de la géométrie du système.

Le chapitre 4 décrit des expériences de visualisation directe de l'écoulement, permises par le caractère très ouvert des mousses solides, menant à une approche locale complémentaire de la précédente. Elle est développée à partir de la quantification de la répartition des phases dans le milieu poreux par visualisation directe de l'écoulement à travers une paroi vitrée, sans avoir recours à de la tomographie rapide (rayons X, Gamma, impédance électrique), coûteuse et peu accessible.

Dans ce chapitre, l'objectif est d'apporter une description précise des interactions gaz-liquide-solide d'un écoulement confiné dans un canal millifluidique, par une analyse développée autour des outils de la physique fondamentale. Ce chapitre est complémentaire du précédent, en ouvrant une fenêtre sur le milieu poreux considéré comme une boîte noire par l'approche globale. Cependant, cette approche n'a pas été réalisée pour les milieux poreux denses comme les lits de billes car cela nécessitait la mise en œuvre "d'index matching".

L'approche locale est ensuite mise au service d'une compréhension globale de l'écoulement gaz-liquide dans les mousses solides dans le chapitre 5. Ce dernier, plus exploratoire, a plusieurs objectifs : d'une part l'observation d'écoulements 2D à travers des mousses solides à cellules ouvertes, moins confinés que les écoulements décrits précédemment en canal millifluidique et d'autre part d'analyser les bénéfices

de la gravité et du confinement sur le mouvement généré dans le système. L'analyse de cet écoulement moins confiné (2D) dans une mousse solide est basée sur la visualisation directe de l'écoulement, soit horizontal soit vertical ascendant.

L'objectif est d'identifier les principaux régimes hydrodynamiques observés et d'établir un diagramme des régimes. Le second objectif est de quantifier le mouvement dans chaque dispositif (canal 1D, cellule 2D verticale et cellule 2D horizontale) en définissant des variables représentatives du mélange et des mouvements d'interfaces gaz-liquide dans le milieu poreux. Cet aspect est motivé par la recherche d'optimisation des contacts gaz-liquide-solide en vue d'accroître les transferts massiques et thermiques pour un dispositif donné. Ces variables sont donc comparées pour définir le système (confiné ou gravitaire) optimal qui génère le plus de mouvements en fonction des conditions de l'écoulement.

2

MATÉRIEL ET MÉTHODES

Sommaire

2.1 Présentation des dispositifs expérimentaux 37
2.1.1 Canal millifluidique (1D) 37
2.1.2 Cellule de Hele-Shaw (2D) 39
2.1.3 Fluides 41
2.1.4 Milieux poreux 42
2.1.5 Protocoles expérimentaux (1D/2D) 44
2.2 Analyse globale 45
2.2.1 Distribution de temps de séjour 46
2.2.2 Pertes de charge 47
2.2.3 Transfert gaz-liquide 49
2.3 Analyse locale 52
2.3.1 Répartition des phases dans le milieu poreux 52
2.3.2 Détection du mouvement des interfaces 55

2.1 PRÉSENTATION DES DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

2.1.1 *Canal millifluidique - écoulement horizontal à une dimension (1D)*

Un écoulement gaz-liquide horizontal est généré dans ce dispositif expérimental. L'écoulement est confiné par un canal millifluidique (quasi 1D), puis se propage dans un milieu poreux placé à l'intérieur du canal.

Le dispositif expérimental (figures 20a et 20c) a été développé antérieurement à ces travaux de thèse, dans le cadre de la thèse de Jean-Noël Tourvielle [103] au Laboratoire de Génie des Procédés Catalytiques (LGPC). Il consiste en un canal millifluidique horizontal de section carrée $h \times h = 2.1 \times 2.1$ mm^2 et de longueur de 240 mm. Ce canal est creusé dans un bloc de PEEK [1] et recouvert par une plaque de verre, permettant la visualisation directe des écoulements (figure 20a). Afin de garantir un état de surface commun aux quatre faces du canal, une fine couche de diamant synthétique (10 nm) a été déposée par dépôt plasma sur chacun d'elles.

Le liquide (éthanol, Sigma Aldrich, 96%) est directement injecté à l'intérieur du canal par un pousse-seringue [2] équipé d'une seringue inox de 50 mL à débit volumique constant, $0 < Q_L < 10$ mL.min^{-1}. Une vanne 6 voies est ajoutée à la ligne d'alimentation du liquide pour permettre l'injection d'un Dirac de traceur fluorescent pour les acquisitions de distribution de temps de séjour (section 2.2). Lorsque la vanne est en position d'injection, la phase liquide est déviée pour balayer la boucle

1. PEEK - PolyEther Ether Ketone, matériau facilement usinable et inerte chimiquement
2. Harvard Apparatus PHD 4400

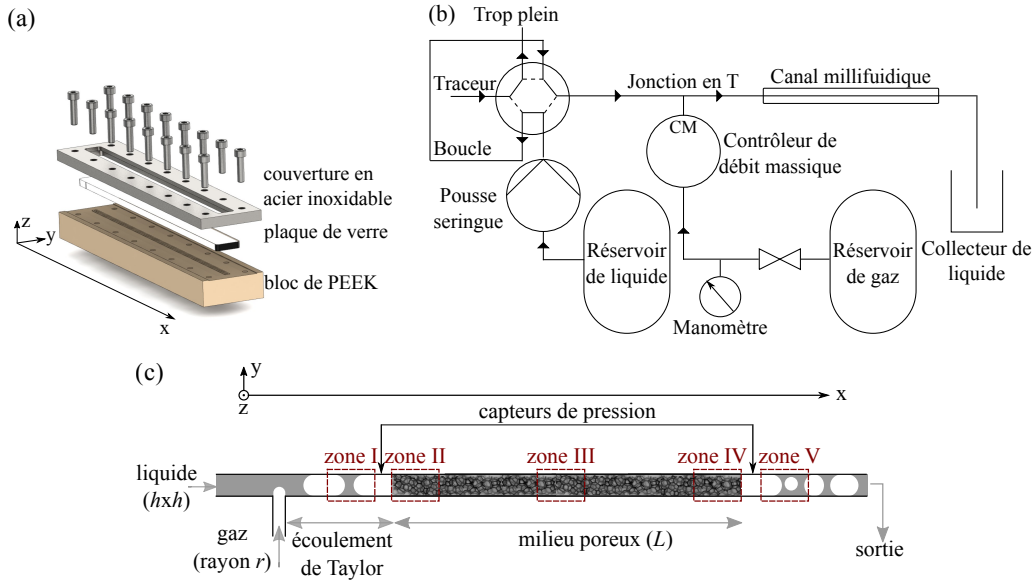

FIGURE 20 – (a) Vue éclatée du canal millifluidique. (b) Schéma global du dispositif 1D. (c) Schéma du dispositif 1D illustrant la jonction en T entre l'alimentation de liquide (section carrée $h \times h$) et l'alimentation de gaz (section circulaire de rayon r). Les cinq zones illustrées sont les zones de visualisation de l'écoulement en amont (zone I), dans le milieu poreux (zone II-IV) de longueur L et en aval (zone V).

d'injection remplie au préalable d'un volume de traceur de 15 μL (figure 20b) pour rejoindre la ligne d'alimentation liquide du canal millifluidique. Le gaz (azote) est injecté perpendiculairement au liquide *via* un conduit circulaire de rayon $r = 0.5$ mm, par un contrôleur de débit massique[3] (les débits sont ensuite traduit en débit volumique, $0 < Q_G < 35$ mL.min^{-1}). La jonction en T des alimentations de gaz et de liquide confère à l'écoulement les propriétés d'un écoulement segmenté, en régime de Taylor dans la gamme de débits $[Q_G,\ Q_L]$ couverte. Il consiste, dans ce cas, en une alternance périodique de bulles de gaz occupant la quasi-totalité de la section du canal (présence de films liquides autour des bulles) et de slug de liquide [43, 56]. L'écoulement de Taylor se propage ensuite dans un milieu poreux, de longueur L, occupant toute la section du canal.

L'écoulement est visualisé à travers la plaque de verre (face supérieure) du canal millifluidique par une caméra[4] montée sur un microscope à fluorescence[5], équipé d'un miroir dichroïque (figure 21).

Ce dispositif est utilisé pour les applications suivantes :

— l'acquisition de la distribution de temps de séjour (section 2.2) en zone I et zone V (figure 20c)
— les mesures de pertes de charges (section 2.2)
— la quantification du transfert gaz-liquide en zone I et zone V (section 2.2)
— la visualisation locale de l'écoulement en zone I en amont du milieu poreux et dans les zones II à IV respectivement à l'entrée, milieu et sortie du milieu poreux (section 2.3).

3. Analyt 35824
4. caméra Solino Cam, fréquence d'acquisition 113 fps
5. Olympus BX51M

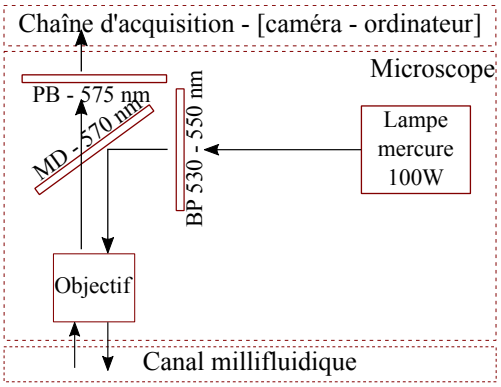

FIGURE 21 – Dispositif de microscopie à fluorescence [BP : Bande Passante, PB : filtre Passe-Bas, MD : Miroir Dichroïque].

2.1.2 *Cellule de Hele-Shaw - écoulement horizontal et vertical à deux dimensions (2D)*

Ce dispositif expérimental a été entièrement conçu et monté au cours de cette thèse. Sa réalisation a nécessité un an de conception, d'usinage, de montage et de tests. Il est le résultat d'un travail d'équipe qui s'est articulé entre le LGPC à CPE Lyon et le Laboratoire de Physique à l'ENS de Lyon. L'objectif est de générer un écoulement gaz-liquide à deux dimensions, enlevant un degré de confinement par rapport au canal millifluidique, mais comparable en terme de vitesses d'écoulement du gaz et du liquide.

Le dispositif est présenté en figure 22. Deux cadres en PEEK[6] maintiennent deux plaques de verre trempé de dimensions $410 \times 210 \times 6$ mm^3. Cela forme deux ensembles PEEK-verre solidarisés par un jeu de vissage dynamométrique permettant d'assurer la même pression sur les 21 vis fermant la cellule. Un espacement de 2 mm est assuré entre les plaques par un joint en silicone inséré dans une gorge sur l'un des supports en PEEK, assurant également l'étanchéité de la cellule. L'espacement de la cellule ($e = 2$ mm), très faible devant sa hauteur (400 mm) et sa largeur (200 mm), lui confère les propriétés d'une cellule de Hele-Shaw et assure un écoulement quasi-bidimensionnel. La dimension de l'espacement entre les deux plaques, e, a été conservée par rapport au dispositif 1D dans l'objectif de pouvoir comparer les deux écoulements. La cellule est fixée à un support qui permet de régler son orientation, allant d'un écoulement vertical ascendant à un écoulement horizontal.

L'écoulement gaz-liquide est continu, avec une possibilité de recyclage de la phase liquide. Les fluides sont modifiés par rapport au canal millifluidique afin de pouvoir faire des mesures de conductimétrie (détaillées ci-après). L'écoulement gaz-liquide est donc formé par de l'air (gaz) et de l'eau déionisée (liquide). Le liquide est injecté à débit constant à l'aide d'une pompe à entraînement magnétique[7]. Afin de garantir un écoulement de liquide stable à l'entrée de la cellule de Hele-Shaw, un contrôleur de débit à effet Coriolis[8] est ajouté entre la pompe et la cellule (figure 22c). Une chambre d'homogénéisation est creusée dans les cadres en PEEK en amont de la cellule, afin

6. PEEK - PolyEther Ether Ketone, matériau facilement usinable et inerte chimiquement
7. Bronkhorst Tuthill DXS1.6PPT2NNM103, max 180 kg.h^{-1} (eau)
8. Bronkhorst CORI-FLOW, 3.6 – 180 kg.h^{-1} (eau)

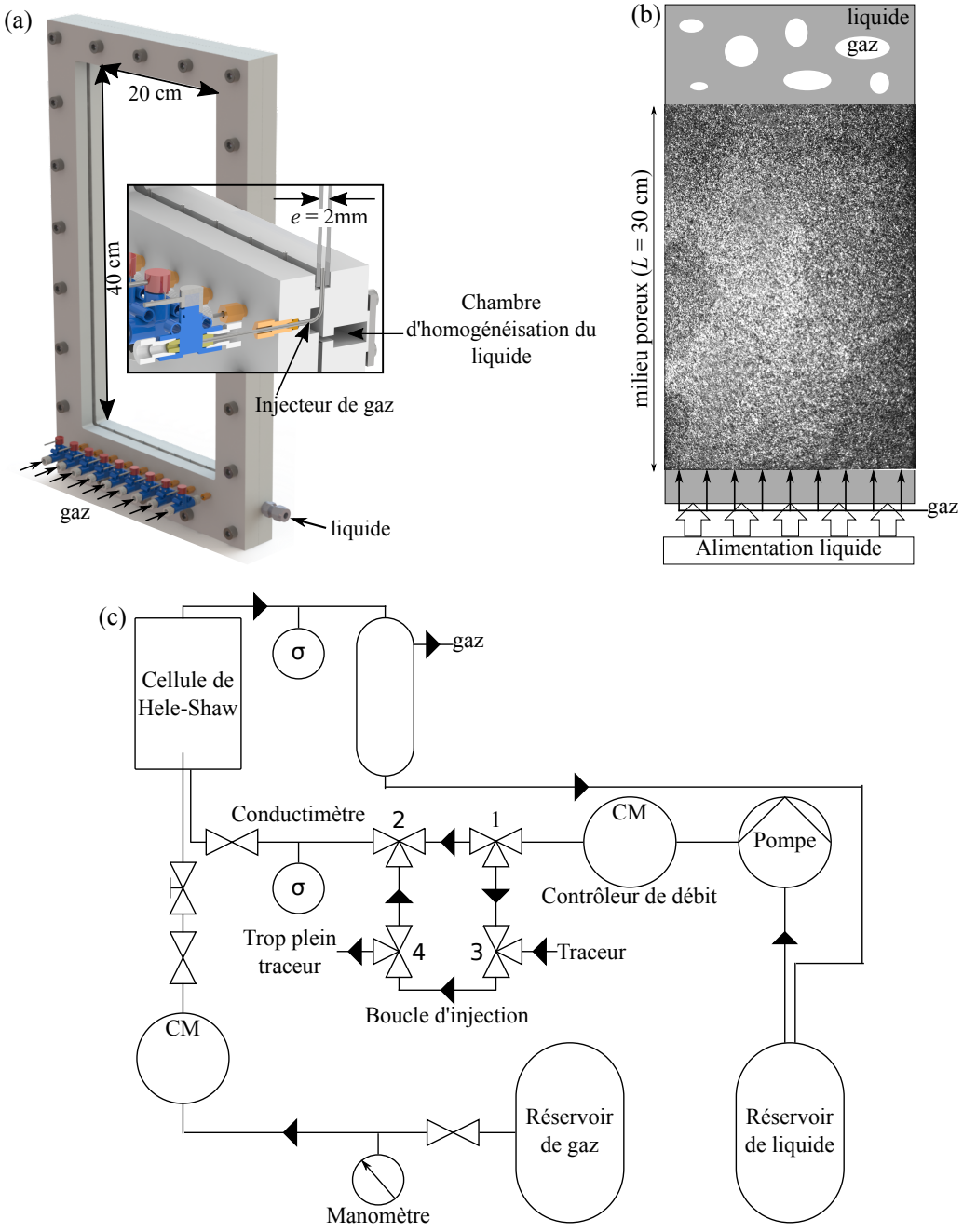

FIGURE 22 – (a) Vue globale et coupe du dispositif 2D. La coupe est faite au niveau d'un injecteur de gaz qui part de la vanne et arrive dans la cellule entre les deux plaques de verre. (b) Schéma simplifié de la cellule de Hele-Shaw. (c) Schéma de principe du dispositif 2D.

que la distribution de liquide soit homogène à l'intérieur de cette dernière (figure 22a, zoom).

Le gaz (air) est distribué dans la cellule à débit constant, par 1 à 9 injecteurs, de diamètre 1/16", à l'aide d'un contrôleur de débit [9]. Chaque injecteur de gaz est précédé d'un couple vanne/vanne pointeau, afin de :

9. Système Instrumentation Alicat MC−5SLM-D/CM-C2M, $0 - 5$ L.min^{-1}

— choisir le nombre d'injecteurs de gaz souhaités
— avoir une distribution homogène en débit.

La sortie du gaz s'effectue directement dans la cellule de Hele-Shaw, les injecteurs étant au contact avec la base du milieu poreux s'il est présent (figure 22b). Ce dernier, dans ce cas, a une longueur L, et occupe toute la section de la cellule. Une fois que l'écoulement biphasique a traversé le milieu poreux, il sort par un collecteur ; un séparateur gaz-liquide (de type flash) permet de recycler le liquide.

Dans le cas de la cellule de Hele-Shaw, le dispositif de microscopie par fluorescence utilisé pour visualiser l'écoulement dans le canal millifluidique n'est pas adapté (objectifs du microscope, orientation, taille du dispositif). Un panneau lumineux [10] est placé derrière la cellule afin d'éclairer le dispositif de manière homogène et continue grâce à une alimentation stabilisée [11]. La visualisation est effectuée par une caméra [12] située devant la cellule à une distance de 50 cm. Elle est supportée par un châssis en profilé permettant de l'orienter pour filmer aussi bien les écoulements verticaux ascendants qu'horizontaux.

Le dispositif 2D est pourvu d'équipements permettant le suivi d'un traceur par conductimétrie (injection d'une solution de NaCl) afin d'effectuer des acquisitions de distribution de temps de séjour. Le dispositif d'injection du traceur est prévu par un jeu de quatre électrovannes 3 voies (figure 22c). En mode remplissage, la phase liquide passe directement de la vanne 1 à 2, ce qui permet de remplir la boucle de remplissage avec une quantité connue de traceur entre les vannes 3 et 4. Sinon, la phase liquide balaye la boucle d'injection en suivant le chemin des vannes $1 \longrightarrow 3 \longrightarrow 4 \longrightarrow 2$. Le traceur est ensuite détecté en amont puis en aval de la cellule de Hele-Shaw par deux cellules de conductivité [13] reliées à un transmetteur [14] piloté par le logiciel Labview®, afin de s'assurer de leur synchronisation.

2.1.3 *Fluides*

Plusieurs couples [liquide-gaz] ont été étudiés dans ce travail en fonction des mesures souhaitées :

— [éthanol - azote] pour la mesure de DTS, la visualisation locale de l'écoulement et les mesures de pertes de charge dans le canal millifluidique (1D)
— [solution de NaOH - CO_2] pour la mesure du transfert gaz-liquide dans le dispositif (1D)
— [eau déionisée - air] pour la visualisation de l'écoulement dans la cellule de Hele-Shaw (2D).

Les propriétés de chaque fluide sont reportées dans la table 4. Toutes les valeurs des propriétés physiques sont données à température et pression du laboratoire ($\approx 20°C$, 1 bar) qui sont les conditions de fonctionnement des deux dispositifs expérimentaux. Dans le cadre des visualisations d'écoulement, il a été vérifié que l'ajout des traceurs ne modifie pas de manière significative les propriétés physiques des fluides respectifs.

10. Dalle LED, Euroshopled
11. TENMA 72-10505 (0-30V,3A)
12. Basler, caméra monochrome CMOS 1" (20148 × 2048 pixels), objectif 16mm monture C F1.4 – 16, fréquence d'acquisition 100 fps
13. Mettler Toledo, capteur 2 pôles, InPro^{7}001/120–VP 3.1B, $0.02 - 500\ \mu S.cm^{-1}$
14. Mettler Toledo, M300 Cond. bi-voie Mural Thornton

NOM	PHASE	μ [Pa.s]	ρ [kg.m^{-3}]	σ_L [N.m^{-1}]	Q [mL.min^{-1}]	Mesures
éthanol	liquide	1.15×10^{-3}	795	0.022	$0.5 - 10$	1D-hydro
eau	liquide	1.00×10^{-3}	998	0.073	$0.5 - 10$	1D-transfert
eau	liquide	1.00×10^{-3}	998	0.073	$100 - 1000$	2D-hydro
azote	gaz	1.76×10^{-5}	1.16	–	$2 - 35$	1D-hydro
CO_2	gaz	–	1.87	–	$2 - 16$	1D-transfert
air	gaz	1.85×10^{-5}	1.20	–	$100 - 1900$	2D-hydro

TABLE 4 – Caractéristiques des différents fluides utilisés dans ces travaux [μ : viscosité, ρ : masse volumique, σ_L : tension de surface, Q : débits volumiques].

Il en est de même pour la solution de NaOH dans le cas de l'étude de transfert gaz-liquide.

2.1.4 *Milieux poreux*

Dans le but de comparer un milieu poreux "classique" avec un milieu "innovant" à porosité ouverte, deux types de milieux poreux sont étudiés :

— des lits de billes contraints et fixes
— des mousses solides à cellules ouvertes

Les caractéristiques de chaque milieu inséré dans le dispositif 1D sont déterminées par tomographie à rayon X [15]. Les données issues de la tomographie sont ensuite analysée par le logiciel iMorph® [104]. Elles permettent s'obtenir les images 3D illustrées en figure 23 pour chaque milieu.

Les représentations 3D de chaque milieu poreux, les lits de billes [16] et les mousses [17] sont présentés respectivement en figures 23a - 23b, et en figures 23c à 23f. Les quatre mousses solides insérées dans le canal millifluidique ont des matériaux, tailles et densités linéaires de pores (PPI - Pore Per Inch) différentes. Ces matériaux sont constitués de trois entités (figure 23c) :

— les cellules
— les fenêtres
— les brins

Comme détaillé dans le chapitre 1, les fenêtres forment la jonction entre deux cellules (figure 23c) et peuvent être représentées par un ellipsoïde dont le troisième axe fait l'épaisseur d'un brin de mousse qui constitue la structure solide de la mousse. Les fenêtres sont l'objet le plus contraignant pour l'écoulement. Ainsi, le diamètre de pore d_p présenté dans la table 5 fait référence à la longueur moyenne (en nombre) du second axe de l'ellipsoïde (le plus petit de la section elliptique). Les distributions relatives aux distributions de tailles de pores et de particules sont détaillées en annexe A pour tous les milieux poreux.

Les valeurs de porosité, taille de particules et taille de pores sont référencées pour tous les milieux poreux en table 5. Pour les deux lits de billes, les valeurs du diamètre

15. Tomographe GE|Phoenix v|tome|x s, tube RX de 160kV dont le point focal est de 1μm
16. Billes de verre sphériques (Wheelabrator), masse volumique moyenne 2.31×10^{-3} kg.m^3
17. 80PPI : ERG-Aerospace, 30-50PPI : Recemat

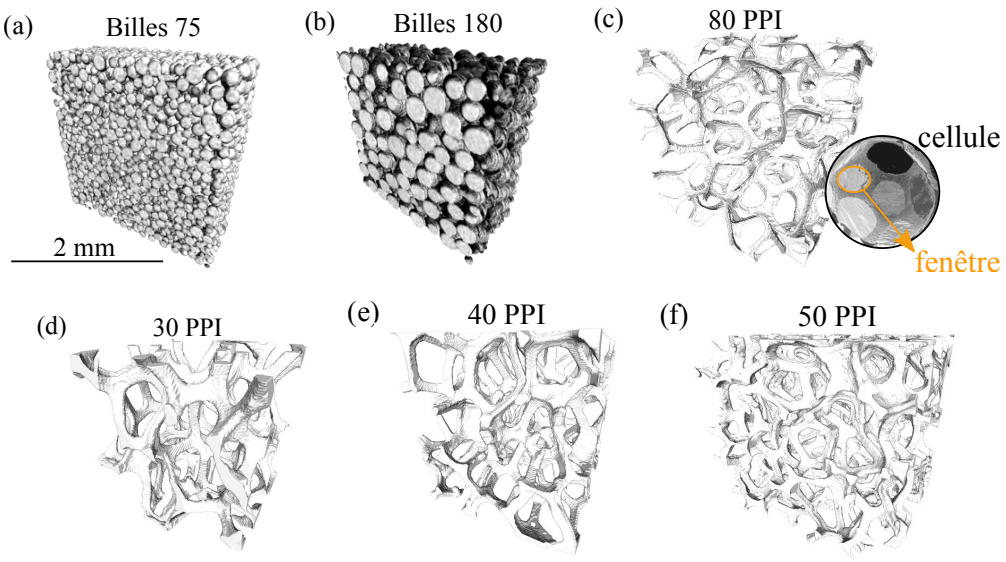

FIGURE 23 – Images 3D obtenues par tomographie à rayons X. (a, b) Lits de billes polydisperses, (c-f) mousses solides à cellules ouvertes de matériau et taille de pores différents (voir table 5). Tous les échantillons présentés ont une section de 2×2 mm^2.

de pores d_p, indiquées en gris clair, ne résultent pas de l'analyse tomographique car dans ce cas, la résolution spatiale de 10 μm n'est pas suffisante. Les valeurs indiquées ont donc été estimées en considérant que la taille des pores dans un lit de billes polydisperses est environ égal à 20% du diamètre moyen des billes [45]. Le nom des quatre mousses utilisées dans le dispositif 1D indique leur densité de pores, PPI (Pore Per Inch), données par les fournisseurs. La dernière ligne de la table 5 contient uniquement les données du fournisseur pour la mousse utilisée dans le dispositif 2D [18] car il n'y a pas eu de caractérisation tomographique pour ce milieu poreux.

18. Alantum

NOM	MATÉRIAU	ϵ [%]	d_p [μm]	d [μm]	a_s [m^2.m^{-3}]	L [cm]
Billes 75	verre	44 ± 1	19 ± 6	93 ± 25	25000 ± 3000	15
Billes 180	verre	43 ± 2	41 ± 12	206 ± 59	15000 ± 2000	14.5
80 PPI	carbone	96 ± 0.3	257 ± 86	-	3695	16
30 PPI	NiCr	89.9 ± 1.4	386 ± 120	-	3187	16
40 PPI	NiCr	89.5 ± 0.7	257 ± 87	-	4092	16
50 PPI	NiCr	89.1 ± 1.6	168 ± 63	-	6716	16
mousse 2D	NiCrFeAl	-	580	-	-	30

TABLE 5 – Caractéristiques de chacun des milieux poreux obtenues par tomographie à rayons X : porosité ϵ, diamètre de pore d_p, diamètre de particules d (pour les billes), estimation de la surface spécifique a_s et longueur du milieu poreux L.

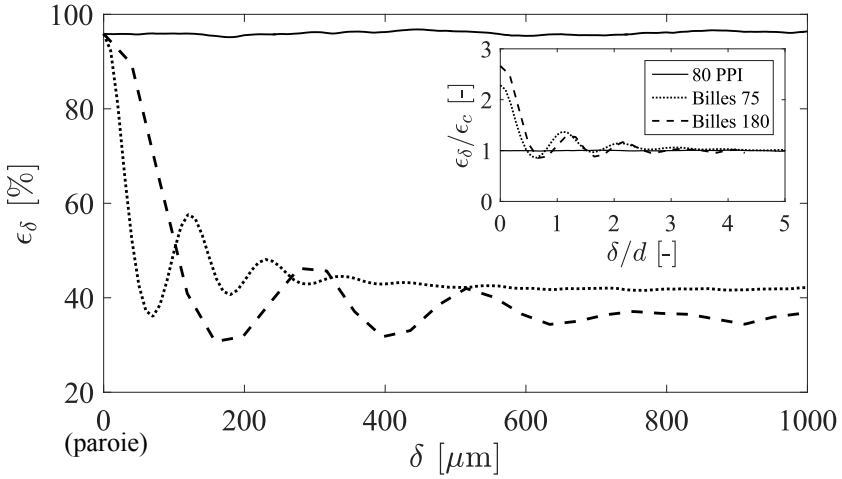

FIGURE 24 – Profil de porosité d'une mousse solide (80PPI) comparé aux profils de porosité de deux lits de billes en fonction de la distance radiale δ dans le canal millifluidique. Insert : porosité ϵ_δ normalisée par ϵ_c mesurée au cœur du milieu poreux, en fonction de δ normalisée par le diamètre des particules d (dans le cas des billes).

2.1.5 *Protocoles expérimentaux (1D/2D)*

Démarrage de l'écoulement 1D (horizontal)

Avant de générer le premier écoulement multiphasique, le milieu poreux est mis en place à l'intérieur du canal millifluidique. Pour les mousses solides, 8 tronçons de $2 \times 2 \times 20$ mm^3 découpés par électro-érosion [19] sont délicatement placés dans le canal ouvert. Le milieu poreux est situé à 2 cm environ de la jonction en T et a une longueur totale $L < 16$ cm qui varie selon les expériences. Le canal est ensuite refermé en prenant soin de garantir l'étanchéité du dispositif. La figure 24 illustre le profil de porosité radiale, ϵ_δ, de la mousse 80PPI (ligne continue) sur une distance δ allant de 0 (bord du canal) à $h/2$ (centre du canal). La porosité au cœur du canal est égale à celle au bord, il n'y a donc aucun effet de bord, contrairement aux billes.

Pour les lits de billes, le remplissage du canal est réalisé en deux étapes. Premièrement, une pièce de mousse solide ($2 \times 2 \times 2$ mm^3) de faible diamètre de pores (50PPI) est incorporée à la fin de la longueur souhaitée du lit de billes pour le contraindre en sortie sans trop perturber l'écoulement. Ensuite, le canal est refermé pour procéder au remplissage des billes par l'orifice d'entrée du gaz (figure 20b). Une fois le remplissage terminé, le lit est compacté par une circulation de liquide à $Q_L = 6$ mL.min^{-1}. La surface amont du lit de billes est laissée libre. La répartition interne des billes suit un profil de porosité radiale classique [26], dont l'oscillation a une longueur d'onde d'un diamètre de particule, d. Cela est vérifié dans l'insert de la figure 24 où la porosité radiale, ϵ_δ est adimensionnée par la porosité au cœur du milieu poreux, $\epsilon_c = \epsilon_{\delta=1000}$. Noter qu'au bord du canal ($\delta = 0$ μm) la porosité n'atteint pas 100% à cause de la résolution spatiale.

Une fois que le milieu poreux est en place, l'écoulement est systématiquement généré selon le même protocole :

1. remplissage du canal par la phase liquide

19. Société EDM Précision, Villeurbanne

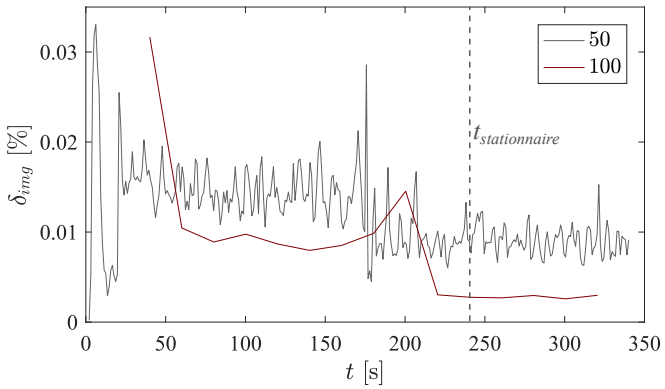

FIGURE 25 – Différence entre deux images successives, δ_{img}, en fonction du temps, t.

2. ajout de la phase gazeuse.

Lorsque l'écoulement de Taylor est en régime stationnaire ($\simeq$ 30 s), les différentes mesures sont effectuées. Les débits sont modifiés entre deux mesures sans arrêter l'écoulement.

Démarrage de l'écoulement 2D (horizontal et vertical)

L'installation de la plaque de mousse (mousse 2D (table 5), seul milieu poreux testé dans ce dispositif) dans la cellule de Hele-Shaw se fait en la disposant sur une des vitres à l'affleurement des 9 injecteurs de gaz. La cellule est ensuite fermée et la pression exercée par les vitres lors du vissage maintient la mousse en place.

L'écoulement gaz-liquide est ensuite généré selon le protocole suivant :

1. la cellule de Hele-Shaw est remplie de liquide en maintenant les vannes de gaz fermées
2. les vannes de gaz sont ouvertes les unes après les autres en partant du milieu vers l'extérieur.

Dans le cadre de cette thèse, tous les écoulements ont été générés avec les neufs vannes de gaz ouvertes simultanément. Comme pour le canal millifluidique, les débits sont modifiés sans arrêter l'écoulement.

Le temps nécessaire pour atteindre un régime stationnaire est estimé expérimentalement en filmant l'écoulement pendant 350 s. Le régime stationnaire est considéré atteint lorsque la différence de mouvement entre deux séries d'images successives du film, δ_{img} a atteint une valeur moyenne constante suffisamment basse. L'évolution de δ_{img} en fonction du temps est tracée en figure 25. Les séries notée "50" et "100" sont l'évolution de la différence entre les moyennes de deux séries successives respectivement de 50 et 100 images. Comme indiqué sur la figure 25, l'état stationnaire est estimé atteint à $t_{stationnaire} = 4$ min. C'est donc le temps qui est laissé entre deux mesures lors des changements de débits.

2.2 ANALYSE GLOBALE

L'analyse globale de l'écoulement consiste à réaliser des mesures aux bornes du milieu poreux. Trois approches sont décrites dans cette section afin de caractériser

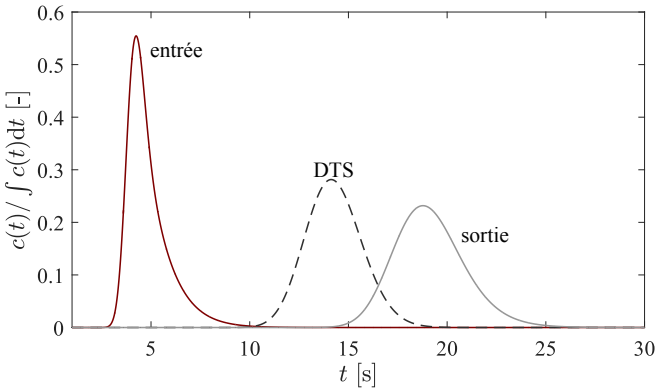

FIGURE 26 – Profils de concentration du traceur fluorescent, $c(t)$ normalisée en amont (entrée, ligne continue rouge) et en aval (sortie, ligne continue gris) du milieu poreux. La distribution de temps de séjour (DTS) est représentée par la courbe en pointillés.

l'écoulement : la distribution de temps de séjour, les mesures de pertes de charge et de transfert gaz-liquide.

2.2.1 *Distribution de temps de séjour*

Définition

Comme expliqué dans le chapitre 1, l'acquisition de la distribution de temps de séjour (DTS) consiste à caractériser l'écoulement d'un fluide dans un milieu poreux par l'injection d'un traceur [51, 66]. La méthode choisie pour mesurer la DTS dans le canal millifluidique est une méthode à deux mesures, illustrée en figure 26 pour un écoulement monophasique.

La DTS (courbe en pointillés, figure 26) est la fonction de transfert représentative de l'écoulement à l'intérieur du milieu poreux, souvent obtenue par déconvolution du signal de sortie par le signal d'entrée [20, 75].

Dans ce travail, le traceur injecté dans la phase liquide est la Rhodamine-6G [20], molécule fluorescente soluble dans l'éthanol (solubilité 80 g.L^{-1}) à une concentration de 3.2×10^{-5} mol.L^{-1}. Elle est excitée par une longueur d'onde de 541 nm, émise par une lampe à mercure filtrée (filtre bande passante $530 - 550$ nm) et émet une longueur d'onde de 572 nm, isolée par un filtre passe-bas à 575 nm (figure 21).

Acquisition des signaux expérimentaux

Comme indiqué en section 2.1.1, le suivi du traceur est effectué par visualisation directe de l'écoulement grâce à un dispositif de microscopie à fluorescence (figure 21). Cela consiste à déclencher simultanément l'injection du traceur et l'acquisition d'un film. Il n'a pas été possible de doubler le dispositif de visualisation pour acquérir un film en amont (zone I) et en aval (zone V, figure 20c) du milieu poreux pour la même injection. Ainsi, deux injections sont nécessaires pour caractériser un seul jeu de conditions (Q_G, Q_L, milieu poreux), ce qui décorrèle les deux injections. Afin de s'assurer de la reproductibilité de l'acquisition, pour chaque jeu de conditions d'écoulement, deux injections sont effectuées pour chaque mesure à l'entrée et à la

20. Sigma-Aldrich - 99%

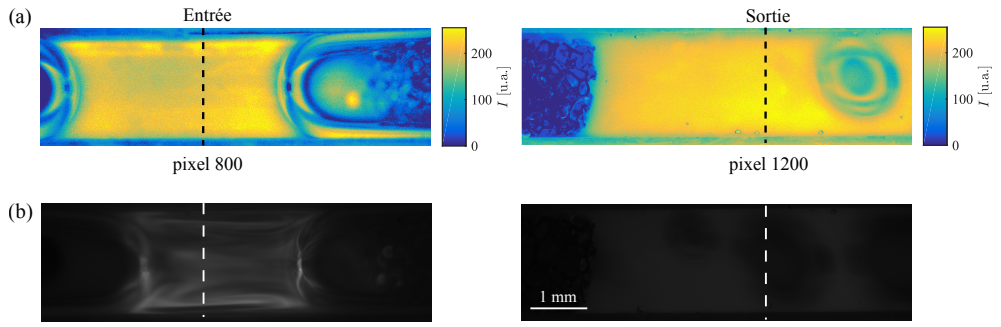

FIGURE 27 – (a) Exemple de deux images (entrée/sortie) sans traceur utilisées pour déterminer la colonne de pixels d'acquisition du signal au cœur du halo lumineux (intensité maximale) et le plus près possible de l'entrée (à droite) ou de la sortie (à gauche) du milieu poreux (voir texte). (b) Images brutes lors du passage du traceur fluorescent en entrée et en sortie du milieu poreux.

sortie du milieu poreux. Étant donné que chaque injection est indépendante, cela permet de créer 4 couples de signaux entrée-sortie.

Un traitement d'images est nécessaire pour extraire, à partir des films, le signal d'intensité de fluorescence dans le temps. Pour chaque milieu poreux, l'intensité moyenne est enregistrée dans chaque zone lors d'un écoulement sans traceur. Un exemple est donné en figure 27a pour le lit de billes "Billes 180" pour les deux zones de visualisation. Les images sont sombres, mais le contraste a été augmenté artificiellement par un traitement d'images, ce qui permet de déceler une hétérogénéité d'éclairage liée au halo de la lampe. Afin de détecter l'intégralité des particules du traceur, l'acquisition du signal est faite sur la colonne de pixels où l'éclairage est le plus fort. La colonne ne doit pas non plus se situer trop près du milieu poreux, afin de réduire le bruit optique généré par les bulles à l'entrée et en sortie du milieu poreux. La répartition du traceur dans la phase liquide étant hétérogène (images brutes, figure 27b), l'intensité enregistrée lors du traitement d'images correspond à la moyenne de l'intensité de la colonne de pixels.

Le résultat de ce traitement d'images est illustré en figure 28 pour quatre acquisitions en entrée (I_1^e, I_2^e) et en sortie (I_1^s, I_2^s) du milieu poreux. Ces signaux sont pulsés à cause de l'absence de fluorescence lors du passage des bulles de gaz qui ne contiennent pas de traceur. La pulsation rend le processus de déconvolution très instable. L'extraction directe de la DTS n'est donc plus possible. Une nouvelle méthode, présentée en détail dans le chapitre 3, a été développée au cours de cette thèse pour extraire la DTS des signaux pulsés.

2.2.2 *Pertes de charge*

Les mesures de pertes de charge sont effectuées de part et d'autre du milieu poreux par des capteurs de pression différentiels [21]. Les emplacements des capteurs sont prévus dans la masse du dispositif 1D, séparés de 18.5 cm. Le milieu poreux est disposé entre les deux capteurs de pression, comme illustré en figure 20c.

Pour chaque milieu poreux, l'écoulement de Taylor est établi à un débit de gaz donné et au plus petit débit liquide. Ensuite, l'acquisition des pertes de charge est

21. Honeywell 26PC01SMT $[0 - 1 \text{ psi}]$, soit $[0 - 6.9 \times 10^4 \text{ Pa}]$

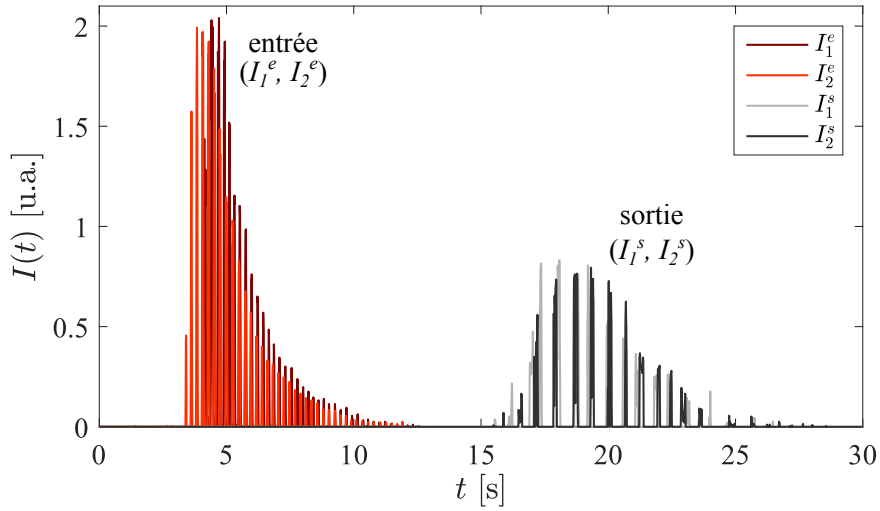

FIGURE 28 – Intensité de la fluorescence, I, en fonction du temps, t, pour les deux acquisitions en entrée (I_1^e, I_2^e) et en sortie (I_1^s, I_2^s) du milieu poreux [$Q_L = 6$ mL.min^{-1}, $Q_G = 2$ mL.min^{-1}, mousse 80PPI].

pilotée par le logiciel Labview® en augmentant progressivement le débit liquide, Q_L, sur toute la série exploitée. Le changement de Q_L est effectué lorsque les pertes de charge ont atteint un état stationnaire, au bruit près. Un exemple d'acquisition est illustré sur la figure 29 pour la mousse 80PPI, à $Q_G = 6$ mL.min^{-1}.

La valeur retenue pour un couple de débit [Q_G, Q_L] est la valeur moyenne des pertes de charge en régime stationnaire, indiquée par les plateaux (lignes foncées) sur la figure 29.

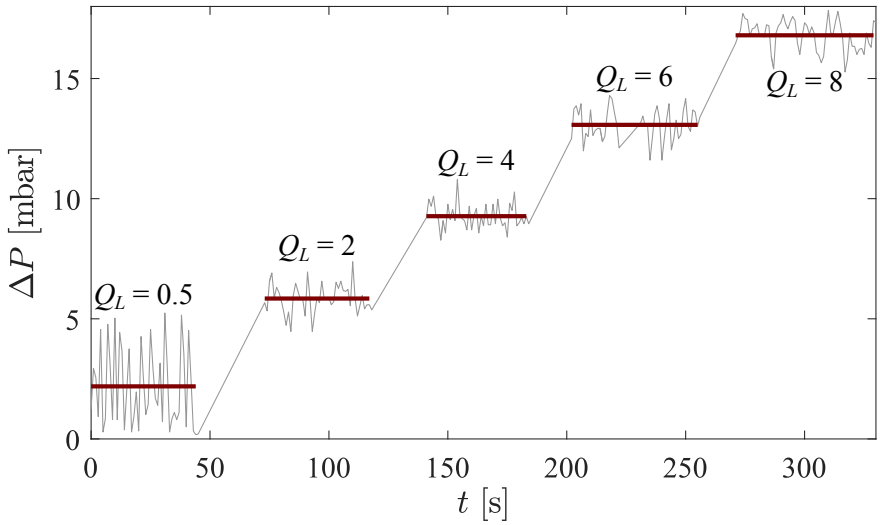

FIGURE 29 – Pertes de charge, ΔP, (ligne continue grise), en fonction du temps, t, à débit de gaz constant, $Q_G = 6$ mL.min^{-1}, pour plusieurs débits liquides Q_L exprimés en mL.min^{-1} [mousse 80PPI]. Les plateaux (lignes foncées) indiquent la valeur moyenne du signal ΔP pour chaque couple de débits [Q_G, Q_L] donné.

2.2.3 *Transfert gaz-liquide*

La méthode proposée pour caractériser le transfert gaz-liquide est celle de Danckwerts, classiquement utilisée dans la caractérisation du transfert en lit fixe [105–107]. Elle consiste à suivre l'absorption d'une espèce gazeuse dans la phase liquide par une réaction chimique rapide. Dans cette étude, c'est l'absorption du CO_2 dans la phase liquide (solution de NaOH à 0.001 mol.L^{-1}, pH=11) qui permet de quantifier le transfert gaz-liquide. Cette dernière est suivie par fluorescence à l'aide du dispositif de microscopie décrit en section 2.1.1. Cette technique, la $\mu-$LIF (Laser Induced Fluorescence), est classique pour suivre l'absorption d'une phase gazeuse dans un liquide [61, 106–108]. Ici, le traceur fluorescent est la fluorescéine, dissoute dans une solution de NaOH à 0.005 g.L^{-1}. La fluorescéine est un traceur sensible au pH [109, 110], ainsi, lors de l'absorption d'une espèce gazeuse présentant des composés acides (ici, CO_2), la mesure de l'intensité de la fluorescéine permet de remonter au pH de la solution, initialement basique. Cette méthode requiert cependant des précautions sur le choix du pH initial. En effet, d'après la théorie de Hatta [51], à partir d'une certaine concentration en ions OH^-, le transfert du CO_2 peut être accéléré par une réaction chimique qui le consomme dans la phase liquide. Cette accélération est quantifiée par un facteur, noté E. La valeur initiale du pH (pH$=$ 11) a donc été choisie selon deux critères [111] :

— être dans la zone de sensibilité de la fluorescéine aux variations de pH
— avoir une concentration en ions OH^- suffisamment faible pour éviter une accélération du transfert gaz-liquide (facteur d'accélération $E = 1$).

La solution de fluorescéine est injectée en continu par le pousse-seringue dans le canal (figure 20). L'intensité de la phase liquide est ensuite mesurée en amont (zone I) et en aval (zone V) du milieu poreux pendant environ 10 s pour effectuer le suivi du transfert gaz-liquide. Les intensités de référence, I_0, et maximale, I_{max}, sont mesurées en écoulement monophasique liquide, respectivement avec la solution de [H_2O+NaOH] et la solution de [H_2O+NaOH+fluorescéine]. Ainsi, pour l'étape de calibration du pH de la solution en fonction de l'intensité du liquide et pour toutes les acquisitions, l'intensité des images brutes, I_b, est recalculée selon l'équation :

$$I = \frac{I_b - I_0}{I_{max} - I_0} \, . \tag{31}$$

La dépendance de I en fonction du pH est illustrée en figure 30. La courbe a été régressée par un polynôme de degré 6 pour avoir une expression analytique de pH(I). En appliquant ce polynôme à toutes les images, il est alors possible de passer d'images en intensité à des images où chaque pixel contient la valeur du pH local de la phase liquide.

L'objectif de cette analyse est de connaître la valeur du coefficient de transfert gaz-liquide global, $k_l a$, inhérent aux paramètres expérimentaux : forme du réacteur, milieu poreux, Q_G, Q_L, espèces chimiques. C'est un coefficient global intégrant à la fois le transfert de masse par dispersion et par convection. Il est le produit d'un coefficient de transfert pur, k_l, homogène à [L.T^{-1}] et d'une surface spécifique a homogène à $\left[L^2 \text{ (interface G-L) } / L^3 \text{ (réacteur),}\right]$.

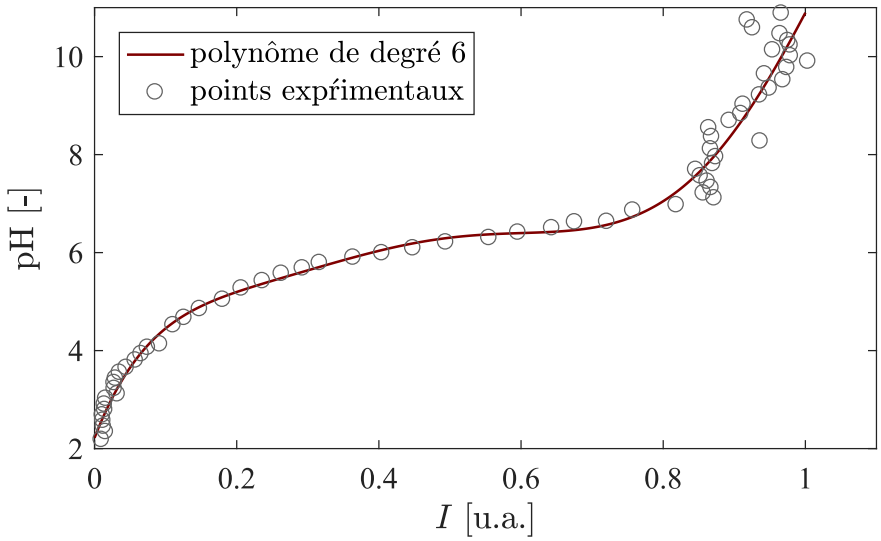

FIGURE 30 – Variations du pH en fonction de l'intensité I de la solution [NaOH + fluorescéine]. Les valeurs sont ajustées par un polynôme de degré 6 : $pH = -270I^6 + 891I^5 - 1102I^4 + 660I^3 - 208I^2 + 38I + 2$.

Connaissant le pH local de la phase liquide, il est possible de calculer la concentration en CO_2 dissous dans le liquide, par l'équilibre thermodynamique (K_a et K_{app}, constantes d'équilibre) de l'absorption du CO_2 dans la solution de NaOH :

$$CO_{2(G)} \longleftrightarrow CO_{2(L)} \tag{32}$$

$$CO_{2(aq)} + H_2O \xrightarrow{Ka=2.51\times10^{-4}} H_2CO_3 \tag{33}$$

$$H_2CO_3 + H_2O \xrightarrow{Ka_{app}=4.26\times10^{-7}} H_3O^+ + HCO_3^- \tag{34}$$

$$HCO_3^- + H_2O \xrightarrow{Ka=4.67\times10^{-11}} H_3O^+ + CO_3^{2-} \tag{35}$$

Une régression non linéaire de cet équilibre est proposée en figure 31a ce qui permet, en combinant les deux corrélations [pH(I), CO_2(pH)], de déterminer la concen-

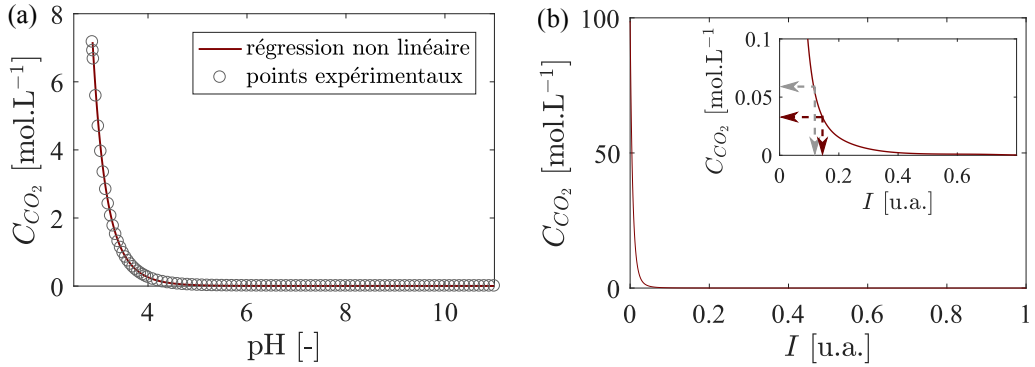

FIGURE 31 – (a) Concentration en CO_2 dissous, C_{CO_2}, en fonction du pH. Les valeurs sont ajustées par l'expression : $C_{CO_2} = 2.2 \times 10^6 \exp(-4.6pH) + 2.1 \times 10^3 \exp(-2.3pH)$. (b) C_{CO_2} en fonction de I, encart : zone de travail.

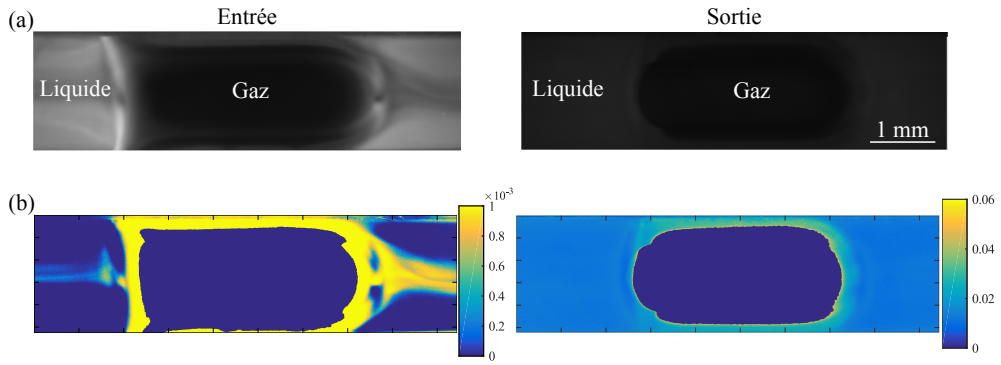

FIGURE 32 – (a) Images brutes à l'entrée et à la sortie du milieu poreux : on distingue le liquide (plus clair), le gaz (noir), le gaz dissous (zones noires dans la phase liquide). (b) Images finales obtenues après traitement. L'échelle de couleur correspond à la concentration en CO_2 en mol.L^{-1}. Les bulles sont imposées à 0 dans le traitement d'images.

tration de CO_2 dissous, C_{CO_2}, à partir de l'intensité de l'image pour chaque pixel. Cette dépendance est illustrée en figure 31b. L'insert est centré sur la zone de travail où C_{CO_2} est sensible aux variations d'intensité de la phase liquide. Les flèches ajoutées dans l'insert montrent cependant à quel point C_{CO_2} est sensible à I, ce qui peut générer des incertitudes expérimentales à ne pas négliger aux faibles intensités, I.

L'écoulement est filmé au niveau des zones amont (zone I, figure 20c) et aval (zone V, figure 20c) du milieu poreux. Un exemple d'images brutes est donné en figure 32a. En entrée, la bulle de CO_2 est noire et le liquide fluorescent apparaît plus clair. Les zones noires présentes dans le liquide sont les endroits où du CO_2 est dissous, ce qui modifie la fluorescence. En sortie, la phase liquide est beaucoup plus homogène car elle a été mélangée lors du passage dans le milieu poreux.

En utilisant la corrélation qui relie l'intensité I à C_{CO_2}, les cartes de répartition du CO_2 dans la phase liquide sont calculées à partir des images brutes (figure 32b). Un masque est ensuite appliqué à ces dernières afin d'extraire la moyenne spatiale de C_{CO_2} sur les pixels de la phase liquide uniquement (détails en annexe B). Ainsi, les bulles apparaissent en bleu foncé car la valeur des pixels est contrainte à 0. La moyenne spatiale de C_{CO_2} est calculée pour chaque image des films réalisés en entrée et sortie du milieu poreux. Un exemple de son évolution est illustré en figure 33.

Par un bilan de masse, en considérant une valeur globale (moyennée dans le temps et dans l'espace) de CO_2 dissous en amont, $\overline{C^0_{CO_2}}$, et en aval, $\overline{C^L_{CO_2}}$ du milieu poreux, il est possible de remonter à la valeur du coefficient de transfert gaz-liquide, k_la [66] :

$$k_la = \frac{u_L}{L} ln \left[\frac{C^* - \overline{C^L_{CO_2}}}{C^* - \overline{C^0_{CO_2}}} \right] , \tag{36}$$

où, C^* est la concentration de CO_2 dissoute à l'équilibre thermodynamique, u_L la vitesse de la phase liquide et L la longueur du milieu poreux. L'analyse du coefficient de transfert, k_la est présentée dans le chapitre 3.

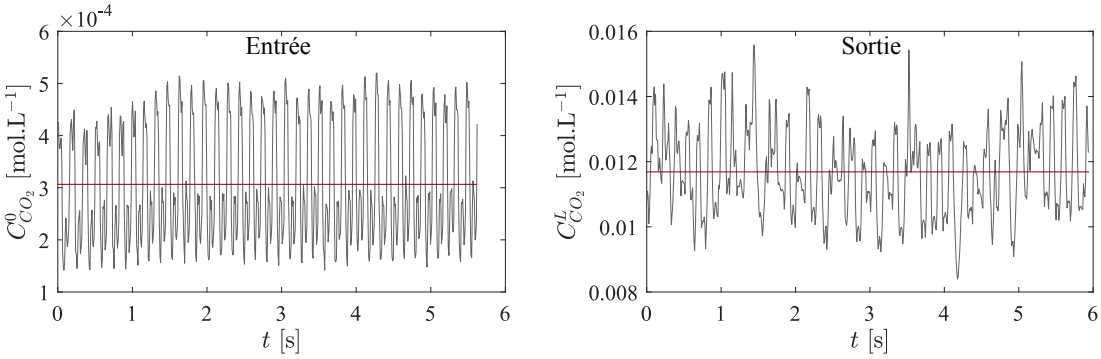

FIGURE 33 – Évolution de la concentration de CO_2 moyennée dans l'espace, à l'entrée du milieu poreux, $C^0_{CO_2}$, et à la sortie, $C^L_{CO_2}$, en fonction du temps [80PPI, $L = 4$cm, $Q_G = 8$ mL.min^{-1}, $Q_L = 8$ mL.min^{-1}]. La ligne horizontale est la moyenne globale retenue pour l'estimation du $k_l a$.

2.3 ANALYSE LOCALE

Les méthodes présentées précédemment permettent de caractériser le milieu poreux de manière globale par des mesures effectuées en entrée et en sortie. Dans cette section, l'analyse locale est basée sur la visualisation directe de l'écoulement à l'intérieur du milieu poreux, qui permet de quantifier la répartition des phases au sein du milieu poreux et les mouvements des interfaces. La phase liquide est mise en évidence par la présence de Rhodamine-6G (concentration, $3.2.10^{-5}$ mol.L^{-1}), directement dissoute dans l'éthanol à l'intérieur de la seringue. L'intérêt est d'accroître le contraste entre le liquide, excité par fluorescence, et le gaz.

2.3.1 *Répartition des phases dans le milieu poreux*

Un exemple d'écoulement gaz-liquide visualisé à la paroi du canal millifluidique est présenté en figure 34a. La microscopie par fluorescence combinée à la très haute porosité des mousses permet de distinguer la phase gazeuse (noire) de la phase liquide (claire).

Un algorithme de binarisation est utilisé pour attribuer à chaque pixel de l'image, une valeur p, en fonction de la phase identifiée. Pour ce faire, une image de référence a été enregistrée au préalable pour un écoulement en liquide pur avec traceur fluorescent (figure 34b). L'image brute est alors divisée par l'image de référence, de sorte que tous les pixels contenant du liquide ou de la mousse soient égaux à 1 et ceux contenant du gaz soient proches de 0. Pour faire la distinction entre le gaz et l'ensemble [liquide-solide], un seuil est fixé à $p^* = 0.9$, valeur choisie très proche de 1 sans pour autant exclure les zones bruitées. L'étape de binarisation consiste à attribuer la valeur $p^b = 1$ pour les pixels où $p > p^*$ (liquide+mousse) et la valeur $p^b = 0$ pour les pixels où $p < p^*$ (gaz). Le résultat de la binarisation est illustré en figure 34c. Noter que même le gaz présent au fond du canal, à peine visible sur l'image brute, ressort très clairement sur l'image binarisée. Les deux variables suivantes sont extraites de ce traitement d'images.

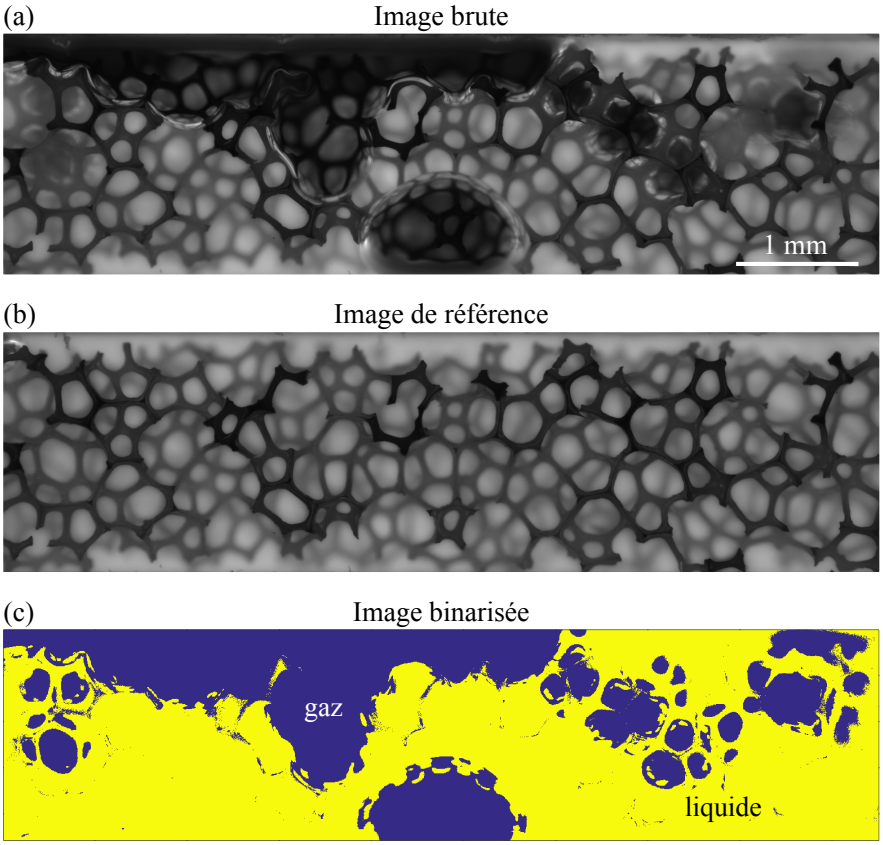

FIGURE 34 – (a) Image brute, gaz (noir)/liquide (blanc)/solide (structure noire), (b) image de référence (liquide/solide), (c) image binarisée obtenue par la division de (a) par (b) [1D, zone III, $Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 8$ mL.min^{-1}, mousse 80PPI].

Fraction liquide apparente

La fraction liquide apparente, notée ϵ_L^*, est définie par :

$$\epsilon_L^* = \epsilon - \frac{n_{pix}^{gaz}}{n_{pix}^{tot}} \tag{37}$$

où ϵ est la porosité, n_{pix}^{gaz} le nombre de pixels de gaz et n_{pix}^{tot} le nombre total de pixels par image. L'estimation de la fraction liquide par visualisation de l'écoulement 3D sur une projection 2D pourrait amener un biais de mesure. La valeur quantitative de ϵ_L^* est donc discutée dans le chapitre 4. La figure 35 montre un exemple de ϵ_L^* en fonction du temps, dans la mousse 80PPI, pour deux jeux de débits différents et une visualisation effectuée en zone II. La valeur moyenne de ϵ_L^* est sensiblement identique dans les deux cas. En revanche, l'augmentation du débit de gaz en figure 35b change considérablement la dynamique de l'écoulement. Ces différents comportements seront commentés dans le chapitre 4.

Fraction d'aire de mélange

Les images binarisées de répartition des phases dans le milieu poreux sont exploitées avec une seconde variable, A_m, qui représente la fraction de la zone de visualisation où une alternance entre gaz et liquide a été observée au cours du temps. Elle

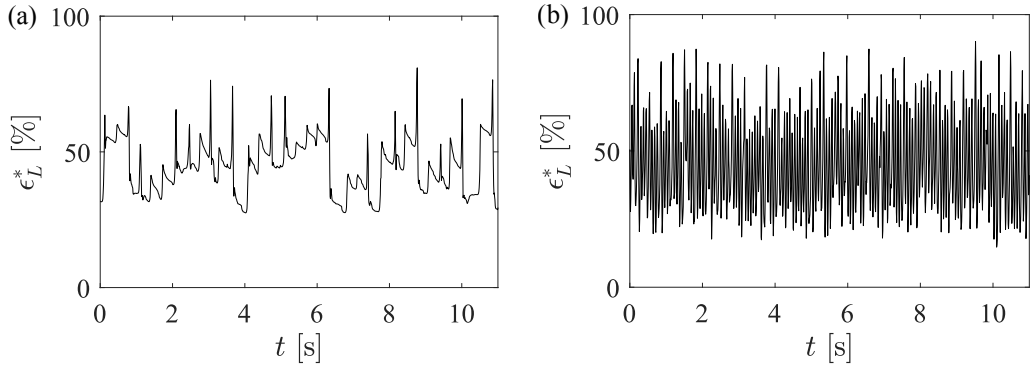

FIGURE 35 – Variation de ϵ_L^* en fonction du temps en zone II dans la mousse 80PPI pour deux conditions différentes : (a) $Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 1$ mL.min^{-1}, (b) $Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 8$ mL.min^{-1}.

est obtenue en effectuant, dans un premier temps, la carte de probabilité de passage de la phase liquide, p_{liq}, qui résulte, pour chaque pixel, de la moyenne temporelle de leur valeur, p, sur la durée d'un film :

$$p_{liq} = \frac{\sum_{n=1}^{N} p}{N} \tag{38}$$

où N est le nombre total d'images binarisées par film. Un exemple de répartition de p_{liq} en zone III de la mousse 80PPI est donné en figure 36a.

Trois seuils sont ensuite fixés arbitrairement pour déterminer, pour chaque pixel, si un seul fluide ou une alternance entre les deux fluides a été observé. La région de mélange est délimitée par les pixels dont la probabilité de passage de la phase liquide est comprise entre $30\% < p_{liq} < 70\%$. La figure 36b illustre la carte seuillée ré-

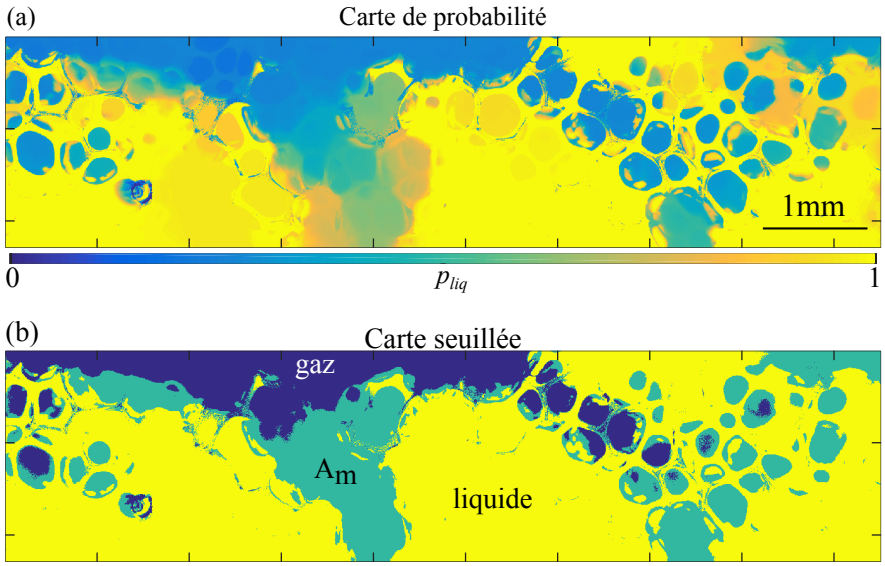

FIGURE 36 – (a) Carte de la probabilité de passage de la phase liquide, p_{liq} [$Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 8$ mL.min^{-1}, 80PPI, zone III]. (b) Résultat du seuillage de la carte (a), où apparaissent les zones de gaz seul (bleu), de liquide seul (jaune) et de mélange gaz-liquide (vert).

sultant de la délimitation de cette région de mélange. La fraction multiphasique, A_m, correspond à la proportion des pixels de la zone multiphasique (verte) par rapport à la globalité de la zone de visualisation.

2.3.2 *Détection du mouvement des interfaces*

La visualisation directe de l'écoulement est aussi exploitée pour quantifier le mouvement de l'interface gaz-liquide. En effet, comme expliqué précédemment, il est possible de distinguer les phases gaz et liquide. En effectuant la différence entre deux images successives, $I(n)$ et $I(n+1)$, il est alors possible de capter les zones où l'interface gaz-liquide s'est déplacée.

Pour ce faire, une image n (figure 37a) est soustraite à l'image successive $n+1$ (figure 37b). Une carte de différence entre les deux images est obtenue. Elle permet de détecter les mouvements du gaz. Après la soustraction de $[I(n+1) - I(n)]$, les pixels où aucun mouvement n'a été enregistré ont une valeur $p \simeq 0$ et pour les autres $|p| \gg 0$.

Afin de binariser la différence d'images en fonction du mouvement de l'interface, un seuil est fixé à $p^{**} = 0.2 \times |I(n+1) - I(n)|$. La binarisation consiste à attribuer la valeur $p^b = 1$ pour les pixels où $|p| > p^{**}$ et la valeur $p^b = 0$ pour les pixels où $|p| <$

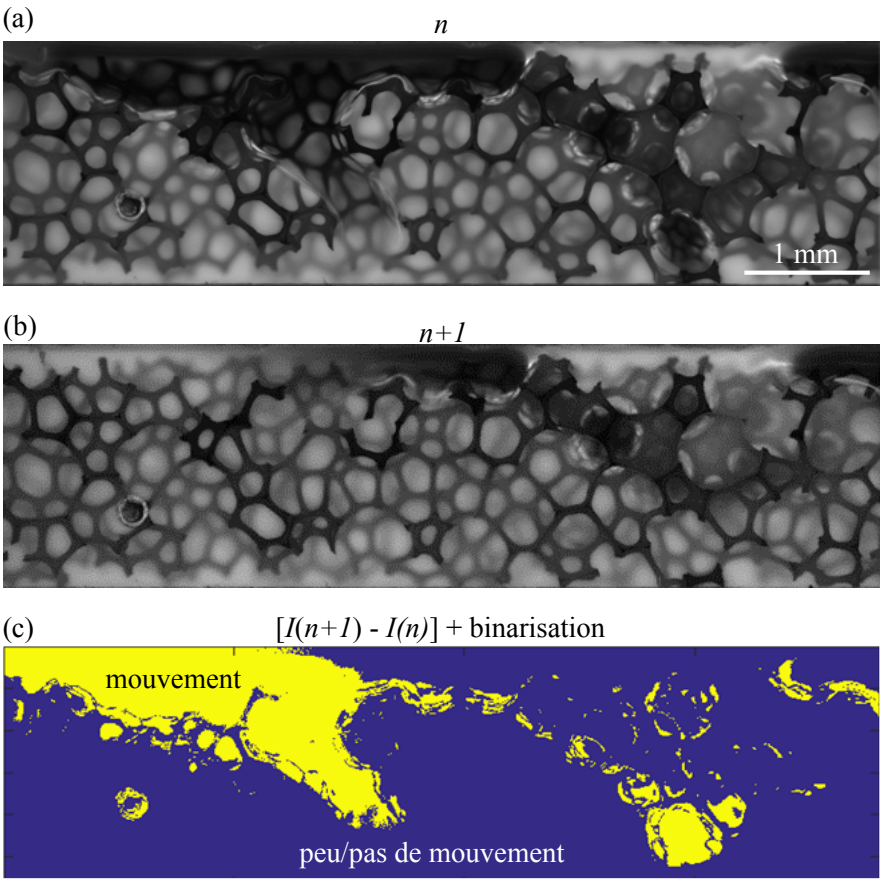

FIGURE 37 – (a) Image n [1D, zone III, $Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 8$ mL.min^{-1}, mousse 80PPI], gaz (noir)/liquide (blanc)/solide (structure noire), (b) image $n+1$, (c) image binarisée après la soustraction de l'image (a) à l'image (b).

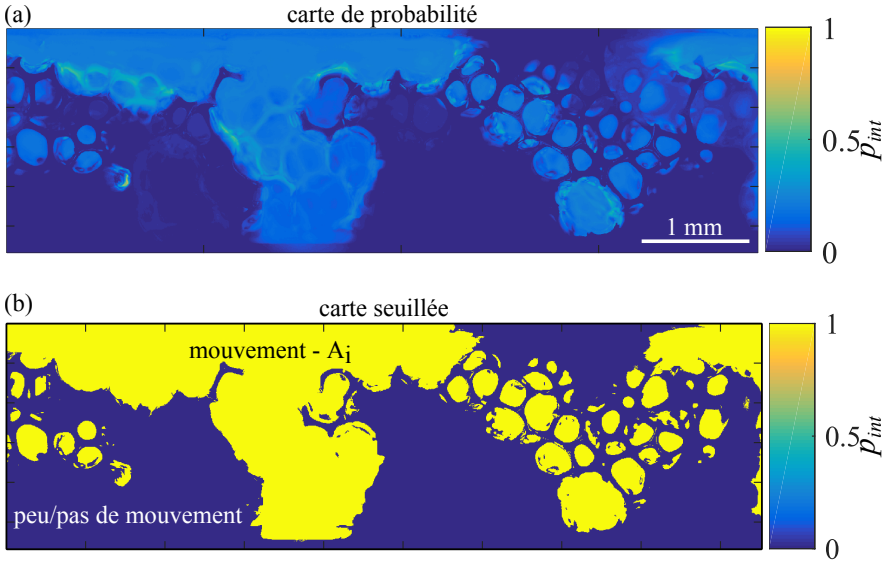

FIGURE 38 – (a) Répartition spatiale de la probabilité de mouvement des interfaces, p_{int}. (b) Résultat de l'estimation de A_i, pour $p_{int} > 10\%$ à partir de (a) [$Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 8$ mL.min^{-1}, mousse 80PPI, zone III].

p^{**}. Le résultat de la binarisation est illustré en figure 37c où la zone correspondant au mouvement des interfaces apparaît en jaune.

Pour rendre compte de la probabilité de mouvement des interfaces, p_{int}, sur une zone de visualisation, les images binarisées (nb), sont sommées sur la totalité d'un film. Pour chaque pixel de la zone de visualisation, p_{int} est définie par :

$$p_{int} = \frac{\sum_{nb=1}^{N-1} p^b}{N} \ . \tag{39}$$

La répartition spatiale de p_{int} est illustrée en figure 38a. Une nouvelle variable, A_i, est alors introduite pour rendre compte de la fraction de la zone de visualisation concernée par un mouvement d'interface gaz-liquide. Afin de déterminer A_i, un seuil est fixé à $p_{int} = 10\%$. Pour chaque pixel de cette carte de probabilité, si $p_{int} > 10\%$ sur la totalité d'un film, alors il est compris dans l'aire de mouvement d'interface A_i, sinon, le mouvement est considéré trop faible pour être pris en compte (figure 38b).

Les exemples de détermination des variables A_m et A_i ont été donnés pour l'expérience dans le canal 1D, mais le même traitement d'images est effectué pour la cellule de Hele-Shaw (2D). Les effets de la *vitesse des fluides*, du *confinement* et de la *gravité* sur ces variables seront discutés dans le chapitre 5.

3

HYDRODYNAMIQUE GLOBALE D'UN ÉCOULEMENT DE TAYLOR CONTRAINT DANS UN CANAL MILLIFLUIDIQUE

Sommaire

3.1 Distribution de temps de séjour (DTS) **58**
3.1.1 Introduction de la fonction cumulée 58
3.1.2 Modélisation par convolution 59
3.1.3 Résultats 64
3.1.4 Discussion 67
3.1.5 Conclusion : validation et sens physique du $CSTR_4$ 74
3.2 Modélisation des pertes de charge **74**
3.2.1 Choix du modèle à l'échelle macroscopique 74
3.2.2 Modélisation de la perméabilité relative 75
3.2.3 Introduction du terme de piégeage capillaire 77
3.2.4 Conclusion sur les pertes de charge 80
3.3 Transfert gaz-liquide **81**
3.3.1 Canal vide : comparaison avec la littérature 82
3.3.2 Évolution de k_la avec le changement de milieu poreux . . . 83
3.3.3 k_la dans les mousses solides : comparaison avec la littérature 84
3.4 Conclusion sur l'hydrodynamique globale **86**

Articles

1. M. Serres, D. Schweich, V. Vidal, R. Philippe, **Liquid residence time distribution of multiphase flow in packed-bed millichannel : spherical beads versus open cell solid foams**, *to be submitted to Chemical Engineering Science* (2017)
2. M. Serres, R. Philippe, V. Vidal, **Multiscale pressure drop model of gas-liquid flow in porous media including gaz trapping**, *to be submitted to Geophysical Research Letters* (2017)

Encadrement de stage

1. L. Bouard, 2e année ENSGéologie Nancy, (co-encadré par Régis Philippe), **Transfert de masse lors d'un écoulement gaz-liquide à travers un milieu poreux confiné**, juillet-septembre 2016

Ce chapitre développe l'analyse globale de l'hydrodynamique basée sur trois types d'expériences : la mesure des DTS, des pertes de charge et la quantification du transfert massique gaz-liquide. Ces trois expériences sont menées dans le canal millifluidique, avec différents milieux poreux. Les mesures de DTS et de pertes de charge sont

effectuées avec le couple de fluides [éthanol-air], et celles du transfert gaz-liquide avec la couple [solution de NaOH-CO_2].

3.1 DISTRIBUTION DE TEMPS DE SÉJOUR (DTS)

Comme présenté en section 2.2, la DTS permet de caractériser l'écoulement du liquide à l'intérieur du milieu poreux. La méthode employée pour détecter le passage du traceur (visualisation directe par fluorescence) implique de travailler avec des signaux pulsés qui ne permettent pas d'appliquer directement une déconvolution pour obtenir la distribution du temps de séjour. Il a donc été nécessaire, dans le cadre de cette thèse, de développer une méthode de traitement des signaux expérimentaux (détaillée dans la section suivante) associée à une modélisation de la DTS.

3.1.1 *Introduction de la fonction cumulée*

Un exemple de signal expérimental obtenu par visualisation directe est donné en figure 39, qui montre l'intensité de fluorescence en fonction du temps, $I(t)$ pour un signal d'entrée. Pour éliminer le problème du signal pulsé et se rapprocher des signaux plus conventionnels (comme ceux obtenus en monophasique), il a été choisi de passer par la courbe cumulée, $F_I(t)$, du signal expérimental $I(t)$:

$$F_I(t) = \int_{t=0}^{t=t_{fin}} I(t)dt \tag{40}$$

Les plateaux présents sur la courbe $F_I^N(t)$ avant et après le passage du traceur ne sont pas strictement horizontaux. Cette inclinaison est le résultat du cumul d'un bruit optique acquis au cours de la visualisation. Le retrait du bruit optique est effectué sur la courbe $F_I(t)$. Cela consiste à trouver l'équation de l'inclinaison d'un des plateaux.

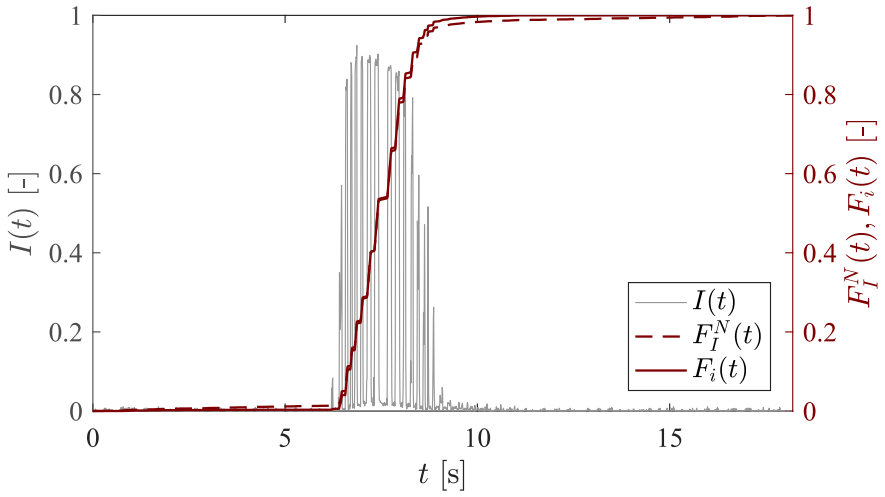

FIGURE 39 – Illustration du traitement appliqué à un signal expérimental brut pulsé (mousse 80PPI, $Q_G = 8$ mL.min^{-1}, $Q_L = 6$ mL.min^{-1}). Le signal expérimental est exprimé en intensité de fluorescence $I(t)$. $F_I^N(t)$ est la cumulée de $I(t)$ normalisée. La courbe $F_i(t)$ est la courbe finale obtenue après retrait du bruit optique, $i = 1$ pour le signal d'entrée (cas illustré ici) et $i = 2$ pour le signal de sortie.

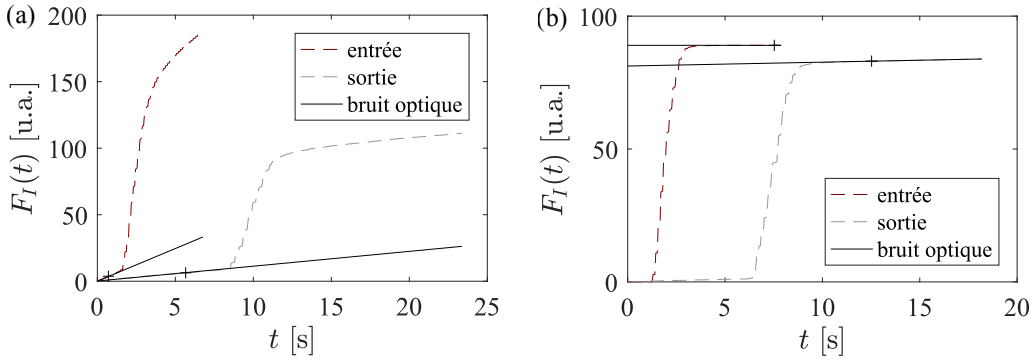

FIGURE 40 – Fonction cumulée de $I(t)$ en fonction du temps, $F_I(t)$. (a) Retrait du bruit optique sur le plateau en amont du passage du traceur. (b) Retrait du bruit optique en aval du passage du traceur [le symbole $+$ indique la délimitation de la portion de courbe utilisée pour déterminer la pente liée au bruit optique (entre 0 et $+$ pour la pente amont, entre $+$ et la fin du signal pour la partie aval)].

La régression linéaire du bruit optique est effectuée sur le plateau le plus long, soit avant le passage du traceur (figure 40a), soit après (figure 40b). La portion de la courbe utilisée pour la régression linéaire est déterminée par une détection de rupture de pente (symbole $+$, figure 40). Une fois l'équation déterminée, la ligne de base liée au bruit optique est soustraite à tout le signal. Enfin, pour obtenir la fonction finale, $F_i(t)$ ($i = 1$ signal d'entrée, $i = 2$ signal de sortie), $F_I(t)$ est normalisée par sa valeur maximale :

$$F_i(t) = \frac{F_I(t)}{\max(F_I(t))}\,. \tag{41}$$

Sur la figure 39, il est possible de vérifier que les plateaux avant et après le passage du traceur sont bien horizontaux.

3.1.2 *Modélisation par convolution*

Après le traitement du signal, les courbes $F_1(t)$ et $F_2(t)$ conservent la signature de l'écoulement pulsé. La déconvolution, opération mathématiquement instable, n'est toujours pas envisageable. Une nouvelle méthode est décrite ci-après, pour obtenir, de manière indirecte un modèle de DTS. Cette méthode, plus exigeante en temps de calcul, permet de s'affranchir des instabilités de la déconvolution en présence de signaux pulsés en les modifiant *a minima* par rapport aux méthodes utilisant les courbes enveloppes [42].

Choix du modèle de DTS

Comme présenté dans le chapitre 1, il existe différents modèles de DTS. Certains considèrent des transports purement Fickiens [73, 75–77] et d'autres modélisent un transport non Fickien où la dispersion globale de l'écoulement n'est plus liée uniquement à la dispersion obéissant à loi de Fick mais inclut des échanges avec le milieu (présence de zones immobiles, fortes hétérogénéités du milieu poreux) [25, 70, 78–80].

Le système considéré (gaz-liquide + milieu poreux) implique de choisir un modèle représentatif d'un transport non-Fickien (voir section 1.3) : PDE, $CSTR_4$ ou CTRW (modèle de marche au hasard). Aux effets de bords près (voir section 2.1.5), l'homogénéité des milieux poreux considérés ne nécessite pas la mise en place du modèle CTRW, trop coûteux en temps de calcul, finalement, le modèle $CSTR_4$ a été préféré au PDE pour plusieurs raisons :

— existence d'une solution analytique accessible (rapidité du temps de calcul)
— obtention de résultats satisfaisants dans une configuration identique par Tourvieille [103].

La modélisation de la DTS par le modèle $CSTR_4$ a plusieurs objectifs : proposer une méthode de modélisation pertinente pour des signaux pulsés et discuter du sens physique des paramètres du modèle $CSTR_4$ (rappelés ci-dessous) appliqué à un écoulement multiphasique. Cette application est fréquente mais elle est détournée du développement initial du $CSTR_4$ pour les écoulements monophasiques liquides.

Pour rappel, l'expression du modèle $CSTR_4$ (illustré en figure 41) est donnée dans l'espace de Laplace selon l'équation :

$$\overline{E}(s) = \left\{ 1 + \frac{st_m}{J} \left[1 + \frac{K_{im}}{1 + st_M} \right] \right\}^{-J} , \tag{42}$$

où les paramètres ont la signification suivante :

— t_m, le temps de séjour de la phase mobile
— J, le nombre de réacteurs agités continus en cascade
— $K_{im} = \theta_{im}/\theta_m$, le ratio entre la fraction de liquide immobile, θ_{im}, et la fraction mobile θ
— t_M, le temps caractéristique du transfert entre la phase mobile et la phase immobile.

Modélisation de la DTS

La déconvolution des signaux expérimentaux $F_2(t)$ par $F_1(t)$ étant un processus impropre et instable, les paramètres du modèle $CTSR_4$ ne peuvent pas être ajustés directement pour déterminer $E(t)$. Une nouvelle méthode a donc été développée pour modéliser la DTS par le processus de convolution. La première étape de cette méthode consiste à obtenir une expression mathématique du signal expérimental $F_1(t)$, notée $F_1^{mod}(t)$. $F_1(t)$ est assimilable à la DTS de tout le processus d'alimentation en fluide et d'injection du traceur. Ainsi, il est possible de représenter $\overline{F_1^{mod}}(s)$, trans-

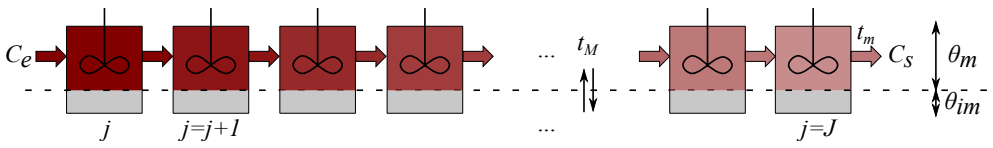

FIGURE 41 – Schéma de principe du modèle $CSTR_4$., illustration des quatre paramètres, t_m, J, $K_{im} = \theta_{im}/\theta$, et t_M (voir texte). C_e et C_s sont respectivement les concentrations en traceur à l'entrée et à la sortie du milieu poreux. Les zones gris clair caractérisent la fraction de zone immobile par réacteur agité.

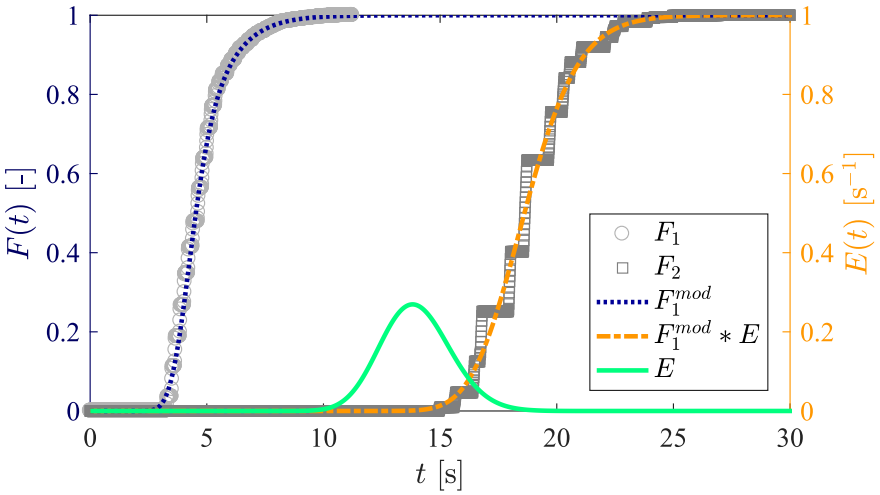

FIGURE 42 – Superposition de $F_1^{mod}(t)$ et de $\left[F_1^{mod}(t) * E(t)\right]$ à $F_1(t)$ et $F_2(t)$. $E(t)$ est la DTS issue de la modélisation [mousse 80PPI, $Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 2$ mL.min^{-1}].

formée de Laplace de $F_1^{mod}(t)$, par le modèle CTSR$_4$ comme suit (expression dans le domaine de Laplace) :

$$\overline{F_1^{mod}}(s) = \frac{1}{s}\left\{1 + \frac{st_{m1}}{J_1}\left[1 + \frac{K_{im1}}{1 + st_{M1}}\right]\right\}^{-J_1} . \tag{43}$$

À cette étape, le modèle CSTR$_4$ est utilisé pour contraindre la formalisation de $F_1(t)$ à une équation de DTS mais il est évident que le sens physique des valeurs des quatre paramètres (t_{m1}, J_1, K_{im1} et t_{M1}) n'est pas recherché pour $\overline{F_1^{mod}}(s)$.

Un algorithme d'optimisation globale, appelé "Multistart", a été développé dans le but de générer plusieurs jeux de conditions initiales et de trouver une solution globale et unique (la discussion de l'unicité de la solution est proposée en annexe D) pour chacun des paramètres du modèle : t_{m1}, J_1, K_{im1} et t_{M1}. La régression non linéaire des paramètres de $\overline{F_1^{mod}}(s)$ est effectuée par l'algorithme de Levenberg-Marquardt codé sous le logiciel Matlab (Mathworks®). Comme illustré en figure 42, la représentation de $F_1(t)$ par le modèle CSTR$_4$ est stable et permet un ajustement fiable des points expérimentaux.

Sachant que $E(t)$ est une fonction de transfert, il est possible d'écrire la relation suivante dans l'espace de Laplace :

$$\overline{F_2^{mod}}(s) = \overline{F_1^{mod}}(s) \times \overline{E}(s) . \tag{44}$$

Ayant déterminé l'expression mathématique de $\overline{F_1^{mod}}(s)$, il est alors possible d'introduire le modèle CSTR$_4$ pour exprimer, cette fois, $\overline{E}(s)$ selon l'équation 42. Les quatre nouveaux paramètres introduits sont régressés comme les précédents, par optimisation globale, en comparant le résultat de la transformée de Laplace inverse [1] $\mathcal{L}^{-1}\left[\overline{F_1^{mod}}(s) \times \overline{E}(s)\right]$ aux points expérimentaux de la courbe $F_2(t)$.

La forme finale de la DTS est obtenue en calculant la transformée inverse de Laplace $\mathcal{L}^{-1}(\overline{E}(s))$. Le résultat de cette régression indirecte est illustré en figure 42 et montre un très bon accord entre les valeurs modélisées et expérimentales.

1. La transformée de Laplace inverse est calculée par l'algorithme de Talbot

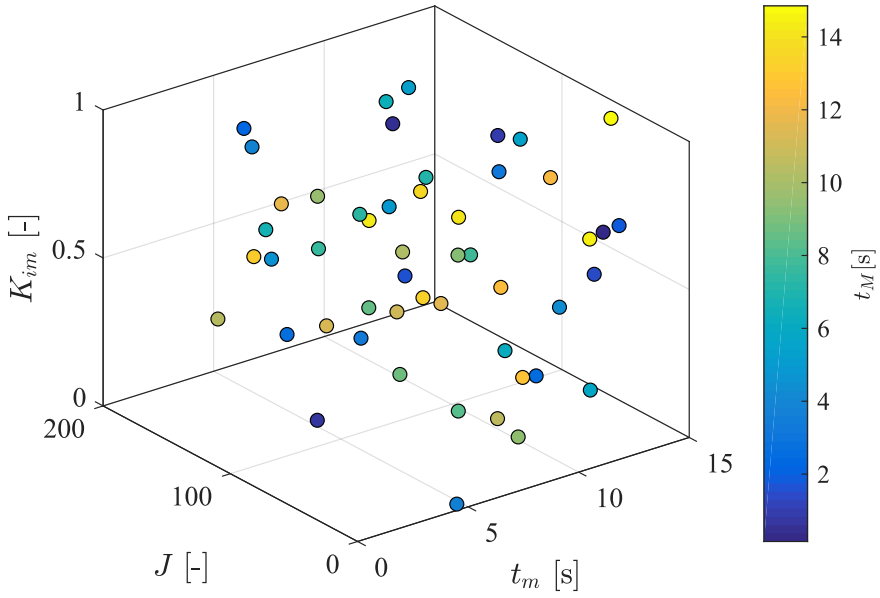

FIGURE 43 – Représentation des N jeux de conditions initiales générées par le LHS Design dans l'espace des quatre paramètres du modèle $CSTR_4$ (optimisation de la DTS).

Algorithme d'optimisation globale : Multistart

Dans l'objectif de proposer une discussion cohérente sur le sens physique des paramètres du modèle $CSTR_4$ en écoulement multiphasique, il est indispensable d'obtenir une solution globale de combinaison des quatre paramètres[2] : t_m, j, K_{im} et t_M. Pour que la solution obtenue pour $E(t)$ soit globale, il est nécessaire d'obtenir, en amont, une solution globale pour $F_1^{mod}(t)$.

Pour ce faire, N jeux de conditions initiales, $[t_{m0}, J_0, K_{im0}, t_{M0}]$, sont générés en utilisant le "Latin Hypercube Sampling" (LHS Design) comme méthode d'échantillonnage, qui permet de couvrir l'espace des quatre paramètres de manière homogène et de forcer leur décorrélation. Un exemple de répartition des conditions initiales générées par le "LHS Design" est donné en figure 43 dont les coordonnées sont t_m, J et K_{im} et la couleur, la valeur de t_M.

Pour chaque jeu de conditions initiales, $n = 1, 2, ..., N$, fourni par le "LHS Design", la fonction $F_1^{mod}(t)$ résultant de la modélisation est comparée aux données expérimentales correspondantes, $F_1(t)$, *via* la fonction objectif $\mathcal{O}_f$ définie par l'équation :

$$\mathcal{O}_f = \sum_{t=0}^{t=t_{fin}} \left[F_i^{mod}(t) - F_i(t) \right]^2 \quad . \tag{45}$$

Au bout des N réalisations, la combinaison ayant fourni la fonction objectif minimum, $\mathcal{O}_f^{min}$, est définie comme la solution globale pour la modélisation de $F_1^{mod}(t)$, et est notée $[t_{m1}, J_1, K_{im1}, t_{M1}]$. Cette première boucle d'optimisation globale est décrite en figure 44 par l'"algorithme multistart I".

La forme optimisée de $\overline{F_1^{mod}(s)}$ (équation 43) est ensuite injectée dans le second cycle de multistart ("algorithme multistart II", figure 44) pour trouver la solution globale de $E(t)$ par convolution avec le modèle $CSTR_4$ (équation 42).

2. Combinaison qui permet d'obtenir qui permet d'atteindre le minimum global de l'espace des quatre paramètres et de ne pas tomber dans un minimum local.

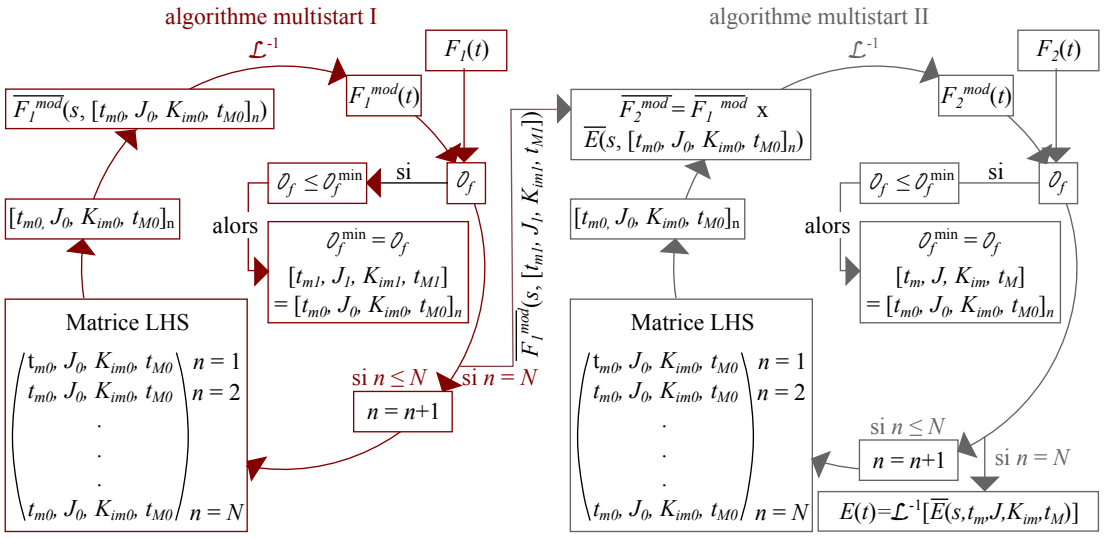

FIGURE 44 – Schéma représentatif de l'algorithme multistart pour l'optimisation globale de $F_1^{mod}(t)$ (algorithme multistart I) et pour celle de $E(t)$ (algorithme multistart II).

Le double emploi d'une optimisation globale pour déterminer l'équation finale de la DTS peut vite devenir coûteux en temps. Pour cette raison, un équilibre doit être trouvé entre la délimitation de l'espace des quatre paramètres (il doit inclure la solution globale), sa discrétisation (se rapprocher au plus près de cette solution globale) et le temps de calcul. À l'issue d'une étude préliminaire, N est fixé à $N = 50$ et les intervalles fixés pour chaque paramètre sont ceux indiqués en table 6. L'unicité de la solution trouvée est testée et discutée en annexe D.

	t_m [s]	J [-]	K_{im} [-]	t_M [s]
Lissage du signal d'entrée				
Minimum	0(0)	1(1)	0(0)	0.3(0)
Maximum	8(8)	120(200)	0.6(4)	8(20)
Pas d'échantillonnage	0.16	2.4	0.012	0.054
Modélisation de la distribution de temps de séjour				
Minimum	t_{m1}	1(1)	0(0)	0(0)
Maximum	15(30)	200(200)	1(4)	15(30)
Pas d'échantillonnage	–	4	0.02	0.3

TABLE 6 – Intervalle et pas d'échantillonnage (50 jeux de conditions initiales) défini pour chaque paramètre dans les deux cas d'optimisation globale. Les valeurs entre parenthèses correspondent aux intervalles testés pour l'étude préliminaire.

3.1.3 *Résultats*

Après avoir modélisé les DTS, l'effet de la vitesse superficielle des phases liquide, u_L, et gazeuse, u_G, et de la nature du milieu poreux est analysé sur ses deux premiers moments [80] :

— le temps de séjour de la phase liquide, $\tilde{t}$ (équation 46)

— le second moment centré de la DTS de la phase liquide, σ^2 (équation 47).

$$\tilde{t} = t_m\,(1 + K_{im}) \tag{46}$$

$$\sigma'^2 = \frac{\sigma^2}{\tilde{t}^2} = \frac{1}{J} + \frac{2K_{im}}{1 + K_{im}}\frac{t_M}{\tilde{t}} \tag{47}$$

Seuls les résultats issus de la modélisation de la DTS sont présentés dans cette section. Certaines grandeurs sont accessibles directement sur les signaux expérimentaux $F_i(t)$, mais elles sont présentées en section 3.1.4 pour discuter de la validité du modèle.

Influence de la vitesse superficielle des phases

La diminution de la vitesse superficielle de liquide ou de la vitesse superficielle de gaz accroît globalement le temps de séjour moyen de la phase liquide, $\tilde{t}$, dans le milieu poreux (figure 45a et figure 45c). Cependant, l'impact du débit liquide sur $\tilde{t}$ est plus prononcé.

Sur la figure 45e, deux séries de points à débit de gaz constant représentent l'évolution du temps de séjour de la phase liquide $\tilde{t}$ en fonction du rapport des vitesses superficielles u_G/u_L (valeurs numériques fournies en annexe C). Cette analyse montre que $\tilde{t}$ est proportionnel à $1/u_L$ mais que la pente dépend de u_G. Les deux phases, liquide et gazeuse, ont donc une influence sur le temps de séjour de la phase liquide à l'intérieur du milieu poreux.

Afin d'observer l'effet des vitesses superficielles sur la dispersion de la phase liquide, il est nécessaire de s'affranchir de la composante temporelle. La variable sans dimension $\theta = t/\tilde{t}$ est introduite et la distribution de temps de séjour $E_\theta(\theta)$ en coordonnées réduites est recalculée dans le domaine de Laplace selon l'équation :

$$\overline{E_\theta}(s) = \left\{1 + \frac{s t_m}{J\,[t_m\,(1 + K_{im})]}\left[1 + \frac{K_{im}}{1 + s\left(\frac{t_M}{[t_m(1+K_{im})]}\right)}\right]\right\}^{-J}. \tag{48}$$

Les résultats montrent que l'augmentation de la vitesse superficielle de la phase liquide permet de réduire légèrement sa dispersion (figure 45b). L'augmentation de vitesse superficielle de la phase gazeuse a un effet plus prononcé sur la réduction de la traînée que sur l'étalement de la courbe (figure 45d). Cette tendance montre que l'augmentation de u_G à $u_L =$ contante est susceptible de diminuer la fraction de zones mortes. Deux séries de points à débit de gaz constant sont reportées sur la figure 45f (valeurs numériques fournies en annexe C). La dispersion semble proportionnelle à $1/u_L$ et, comme pour le temps de séjour moyen, la pente dépend de la vitesse du gaz.

Lorsque $u_G/u_L > 4$, la valeur de la dispersion de la phase liquide ne suit plus les tendances précédentes. Cela pourrait être lié à la complexité de l'interaction gaz-liquide dans ce milieu, non prise en compte, et conduisant par exemple à l'apparition

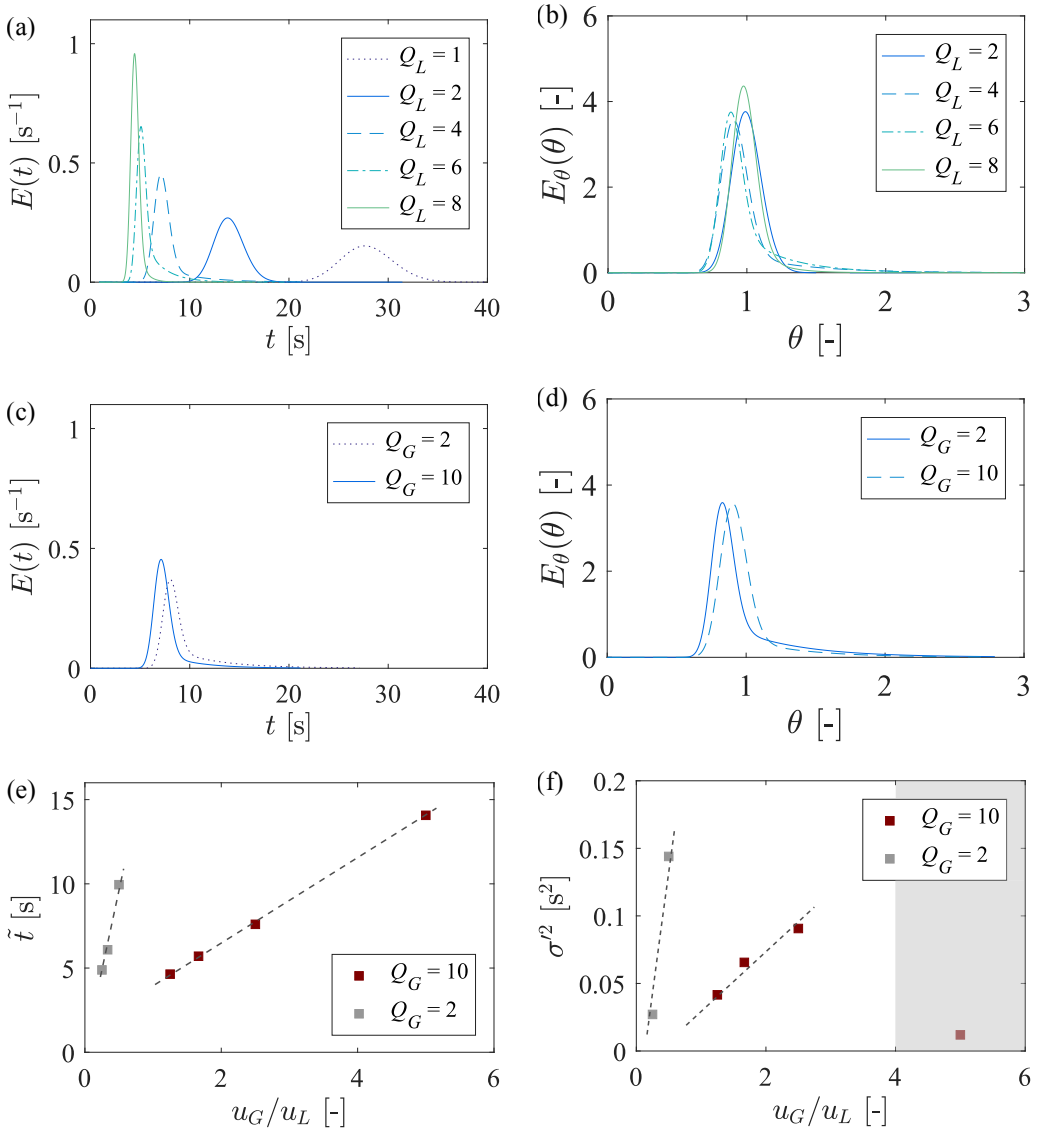

FIGURE 45 – Analyse de l'influence de la vitesse superficielle des phases [mousse 80PPI]. (a) $E(t)$ et (b) $E(\theta = t/\tilde{t})$ [$Q_G = 10$ mL/min^{-1}, Q_L variable donnés en mL/min^{-1}]; (c) $E(t)$ et (d) $E(\theta = t/\tilde{t})$ [$Q_L = 4$ mL/min^{-1}, Q_G variable donnés en mL/min^{-1}]; (e) $\tilde{t}$ et (f) σ'^2 en fonction de u_G/u_L. Les lignes en pointillés (e,f) sont ajoutées pour indiquer les tendances.

de non-linéarités (observées par visualisation locale aux forts ratios u_G/u_L, voir chapitre 4). Les comportements décrits ci-dessus ont été observés pour tous les milieux poreux. L'effet du changement de milieu poreux est discuté dans la section suivante.

Influence du milieu poreux

La forte différence de porosité, ϵ, entre les milieux (billes $\epsilon \approx 40\%$, mousses $\epsilon \approx 90\%$) engendre un écart important de temps de séjour de la phase liquide (figure 46a). Connaissant le débit de liquide Q_L ainsi que le volume du canal V, le temps de séjour

moyen de la phase liquide donne accès à la fraction liquide moyenne (dans le temps et dans l'espace) ϵ_L à l'intérieur du milieu poreux [66] :

$$\epsilon_L = \frac{\tilde{t} Q_L}{V} \, . \tag{49}$$

Pour discuter de la propension des milieux à retenir la phase liquide, la fraction liquide totale est ramenée à la saturation de liquide S_L en divisant par la porosité ϵ :

$$S_L = \frac{\epsilon_L}{\epsilon} \tag{50}$$

La dépendance de la saturation liquide avec le rapport des vitesses u_G/u_L est donnée en figure 46c pour le canal vide (écoulement de Taylor sans milieu poreux) et pour divers milieux poreux. On observe que l'ajout d'un milieu poreux accroît considérablement la saturation liquide dans le canal. Cependant, malgré la différence conséquente de porosité, les mousses ont une saturation très proche de celle des billes.

En traçant la DTS en variables réduites, $E(\theta)$ (figure 46b), on observe l'existence d'une traînée bien plus marquée pour les mousses que pour les billes. Cela traduit un écart significatif par rapport au transport purement Fickien, incluant d'autres sources de dispersion que celle décrite par la loi de Fick, liées à des interactions fluide-fluide

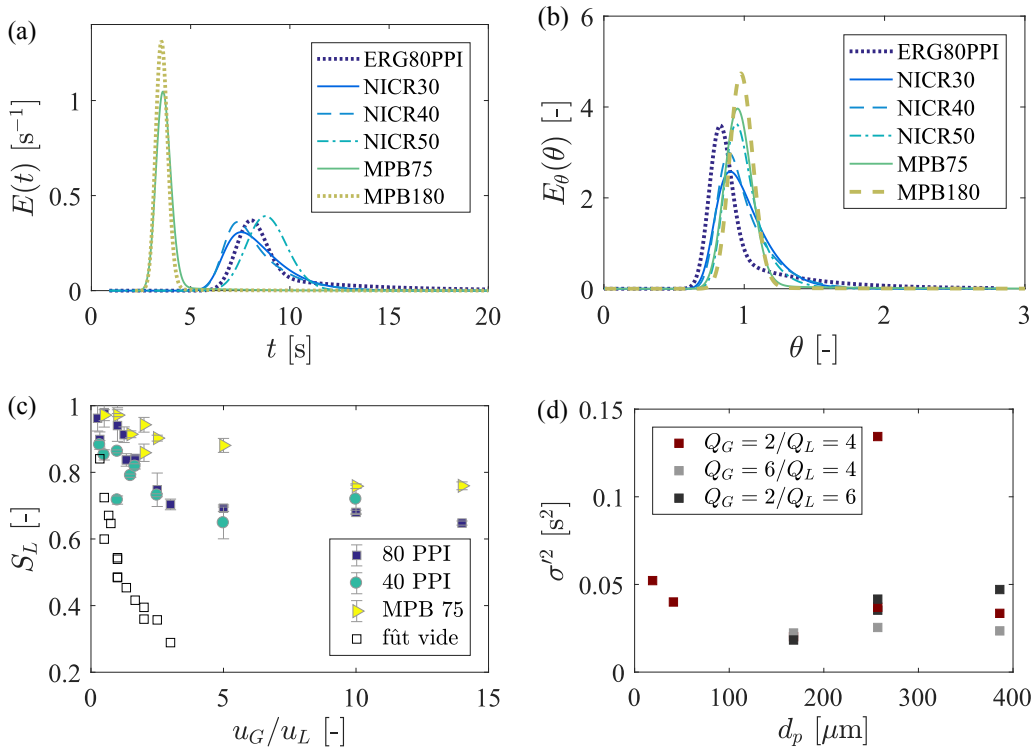

FIGURE 46 – Effet du changement de milieu poreux sur les caractéristiques de la DTS. Fonctions de transferts (a) $E(t)$ et (b) $E(\theta)$ pour tous les milieux poreux ($Q_G = 2$ mL/min^{-1} et $Q_L = 4$ mL/min^{-1}) ; (c) saturation liquide S_L en fonction du rapport des vitesses superficielles u_G/u_L pour différents milieux poreux et pour le canal sans milieu poreux (fut vide) et (d) second moment centré et réduit de la DTS, σ'^2 en fonction du diamètre des pores, d_p pour tous les milieux poreux.

(présence de zones mortes discutée dans la section suivante) ou fluide-structure plus importantes pour les mousses que pour les billes.

La variance réduite de la DTS, σ'^2, est illustrée en figure 46d en fonction du diamètre des pores du milieu poreux, d_p. Cette dernière ne semble pas dépendre du milieu poreux pour les cas illustrés.

3.1.4 *Discussion*

L'objectif est d'analyser la réponse des paramètres t_m, J, K_{im} et t_M du modèle $CSTR_4$ à une perturbation physique (changement de vitesse ou de milieu poreux). Au préalable, le domaine d'application de la méthode expérimentale sera discuté pour valider le modèle à partir de résultats expérimentaux robustes et pouvoir analyser le sens physique des paramètres.

Domaine d'application de la méthode expérimentale

Comme décrit en section 2.2, pour chaque jeu de conditions expérimentales (Q_G, Q_L et milieu poreux), deux acquisitions ont été réalisées à l'entrée ($F_1(t)$) et à la sortie ($F_2(t)$) du milieu poreux, ce qui permet d'avoir, par simple combinaison (F_1, F_2), quatre distributions de temps de séjour pour chaque condition expérimentale. Pour chacune des courbes $F_i(t)$, il est possible d'extraire le premier moment, $\tilde{t}_{iexp}$,

$$\tilde{t}_{iexp} = \int_0^\infty [1 - F_i(t)]\, dt \quad [i = 1, 2] \tag{51}$$

et le second moment centré, σ^2_{iexp},

$$\sigma^2_{iexp} = \int_0^\infty [1 - F_i(t)]\, t dt - \tilde{t}^2_{iexp} \quad [i = 1, 2] \ . \tag{52}$$

En calculant ces deux valeurs, il est possible de remonter au premier moment et au second moment centré de la DTS "expérimentale" non mesurée [51, 69, 70], d'après les équations :

$$\tilde{t}_{exp} = \tilde{t}_{2exp} - \tilde{t}_{1exp} \tag{53}$$
$$\sigma^2_{exp} = \sigma^2_{2exp} - \sigma^2_{1exp} \ . \tag{54}$$

La répétabilité de la méthode expérimentale est testée en calculant la moyenne et l'écart-type de $\tilde{t}_{exp}$ et σ^2_{exp} sur les quatre DTS acquises pour chaque condition expérimentale. L'écart-type est ensuite divisé par la moyenne ($\sigma\left(\tilde{t}_{exp}\right)/\tilde{t}_{exp}$, $\sigma\left(\sigma^2_{exp}\right)/\sigma^2_{exp}$) pour rendre compte de son poids (figure 47).

Sur la figure 47a, le poids de l'écart-type de $\tilde{t}_{exp}$ est représenté pour tous les points expérimentaux. L'écart-type est systématiquement inférieur à 20% de la valeur moyenne. Cela valide, pour cette application, l'utilisation de la méthode expérimentale développée en section 2.2.

L'analyse de l'incertitude expérimentale relative au second moment centré est illustrée en figure 47b. Les résultats sont moins satisfaisants que pour le temps de séjour. En effet, pour des temps $\tilde{t}_{exp} > 4$ s, certains points ont un écart-type $> 30\%$ de leur valeur moyenne. De plus, cette tendance devient majoritaire pour des temps de séjour moyens $\tilde{t}_{exp} < 4$ s. Cette incertitude peut être reliée à plusieurs facteurs :

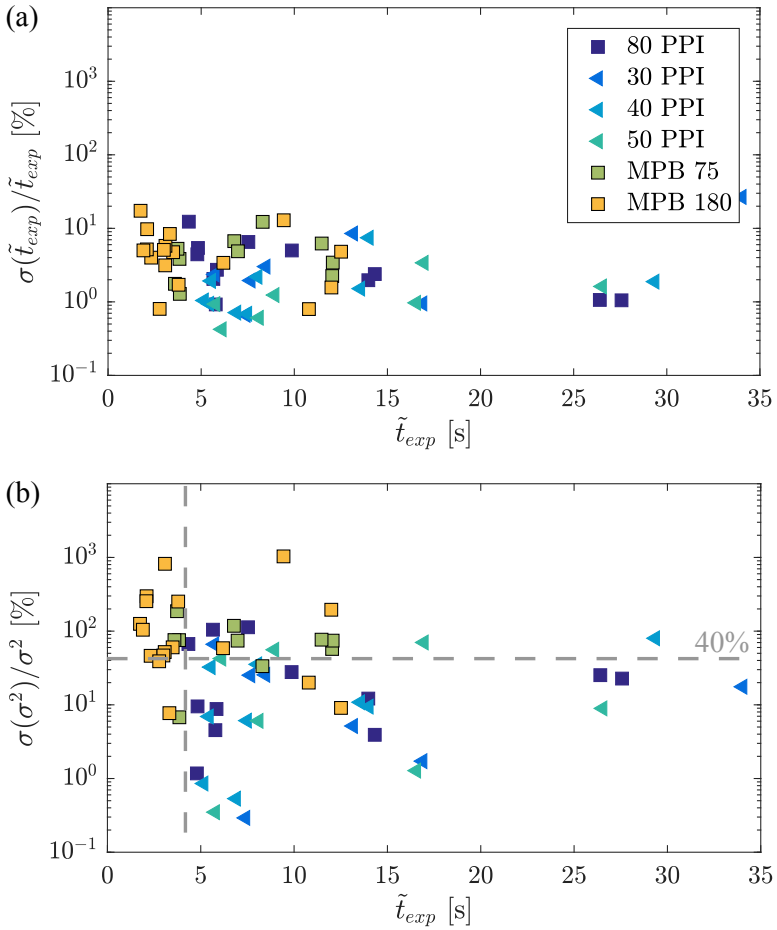

FIGURE 47 – (a) Poids de l'écart-type du temps de séjour moyen sur sa valeur moyenne $\sigma\left(\tilde{t}_{exp}\right)/\tilde{t}_{exp}$ en fonction de $\tilde{t}_{exp}$ et (b) poids de l'écart-type du second moment centré sur sa valeur moyenne $\sigma\left(\sigma^2_{exp}\right)/\sigma^2_{exp}$ en fonction de $\tilde{t}_{exp}$.

— la sensibilité de σ^2_{exp} au traitement d'images et traitement du signal effectué sur les signaux expérimentaux (section 3.1.1)
— l'injection du traceur (section 2.2) perturbe l'écoulement global et sa reproductibilité est discutable. En effet, pour certains points la forme du front amont du traceur apparaît moins raide que le front aval, conduisant à une dispersion négative, ce qui n'est pas physique (figure 48)
— la non-linéarité de l'écoulement parfois observée en visualisation locale (chapitre 4)
— l'erreur expérimentale présente dans le premier moment se répercute directement sur le second moment centré (équation 54)

La méthode d'acquisition de la DTS proposée en (section 2.2) n'est pas assez reproductible par rapport à la sensibilité du second moment centré pour pouvoir discuter son évolution en fonction des conditions de l'écoulement. Il semble important, de surcroît aux temps courts, de coupler les acquisitions entrée et sortie sur une injection unique de traceur pour limiter les incohérences physiques dans l'analyse de σ'^2.

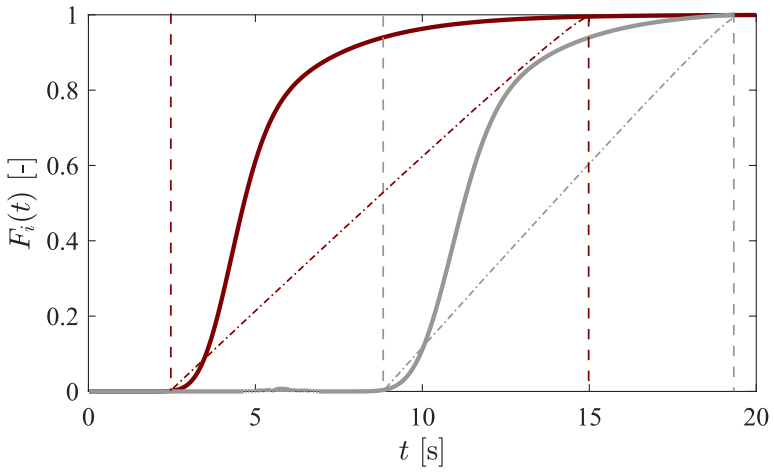

FIGURE 48 – Fonctions cumulées des signaux d'entrée, $F_1(t)$ (courbes foncées), et de sortie, $F_2(t)$ (courbes claires) obtenues par le modèle dans un cas où le front de sortie du traceur est plus raide que le front d'entrée (MPB180, $Q_G = 10$ mL.min^{-1}, $Q_L = 2$ mL.min^{-1}). Les courbes en pointillés sont rajoutées comme indication pour montrer la différence d'étalement, non cohérente, entre les deux fronts.

Validation du modèle

L'objectif est de valider la propension du modèle à représenter les résultats expérimentaux en comparant $\tilde{t}$ et σ^2 calculés par le modèle CSTR$_4$ (équation 46 et équation 47) à $\tilde{t}_{exp}$ et σ^2_{exp}. La comparaison est représentée en figure 49. Le modèle CSTR$_4$ représente très bien le temps de séjour de la phase liquide (figure 49a) avec un écart entre les valeurs expérimentales et les valeurs modélisées inférieur à 5%. L'erreur, parfois supérieure à 40%, entre les valeurs expérimentales et modélisées concernant le second moment centré est à attribuer autant aux incertitudes expérimentales qu'à une erreur de prédiction de la part du modèle.

Afin de compléter la validation du modèle, une estimation des résidus a été estimée entre $F_2(t)$ acquise expérimentalement et $F_2^{mod}(t)$ obtenue par le modèle CTSTR$_4$ selon l'équation :

$$\delta_F = F_2(t) - \left[\mathcal{L}^{-1}\left(\overline{F_1(s)} \times \overline{E(s)}\right)\right] \tag{55}$$

Les basses valeurs des résidus entre la modélisation et les résultats expérimentaux de $F_2(t)$ permettent de valider le modèle CSTR$_4$. Cela permet aussi de tempérer les conclusions sur l'estimation de σ^2 car si les résidus sont bas c'est le résultat à la fois d'une bonne prédiction du temps de séjour moyen et de l'étalement de la courbe.

Comportement des paramètres du modèle

L'unicité de la solution obtenue par l'optimisation globale ainsi que la validation du modèle permettent de discuter de la valeur des paramètres du modèle sans biais. L'objectif de cette section est d'observer leur réponse à une perturbation des conditions d'écoulement et de commenter le sens physique de cette variation lorsqu'elle a lieu.

Les résultats de l'optimisation globale de la DTS sont représentés en figure 50 pour chacun des paramètres, t_m, J, K_{im}, et t_M, en fonction du débit liquide, Q_L (colonne

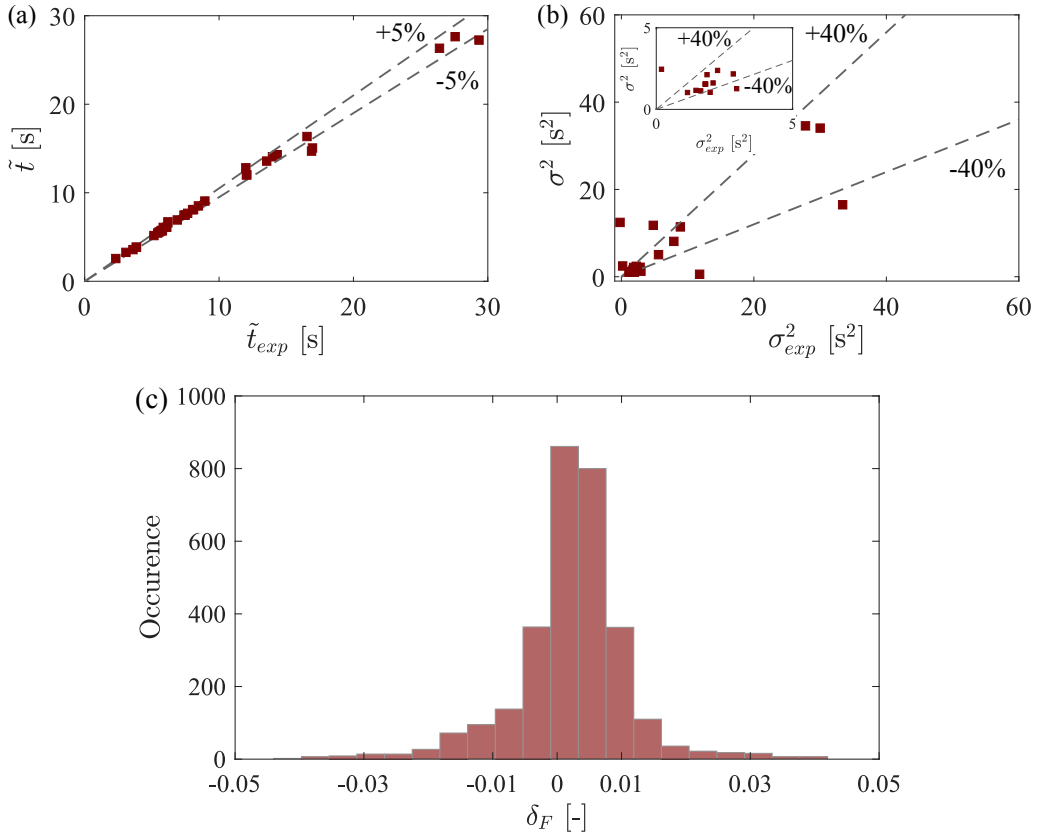

FIGURE 49 – Diagramme de parité comparant l'estimation du temps de séjour $\tilde{t}$ (a) et du second moment centré σ^2 (b) par le modèle $CSTR_4$ à leur estimation directe, $\tilde{t}_{exp}$ (a) et σ^2_{exp} (b) sur les signaux expérimentaux $F_1(t)$ et $F_2(t)$. (c) Distribution des résidus δ_F de la modélisation de la DTS (équation 55) [$Q_G = 2$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}, mousse 80PPI].

de gauche), et du débit de gaz, Q_G (colonne de droite). Deux milieux poreux ont été représentés, la mousse 80PPI (ERG80) et le lit de billes à 75 μm (MPB75), dans l'objectif d'identifier si un comportement était retrouvé sur plusieurs milieux poreux, sans pour autant causer de problèmes de visibilité en représentant la totalité des milieux poreux.

Comme observé précédemment pour la DTS, Q_G a un effet moins prononcé sur les paramètres du $CSTR_4$ que Q_L, excepté pour t_M pour lequel leurs effets sont du même ordre (figure 50g et 50h). Les deux paramètres relatifs à un temps, t_m pour le temps caractéristique d'advection (figure 50a) et t_M pour le temps caractéristique de transfert (figure 50g), diminuent avec l'augmentation de Q_L. Pour t_m, représentant le temps de séjour de la phase mobile, ce résultat est en accord avec les variations observées pour $\tilde{t}$, temps de séjour global. Pour t_M, cela signifie que le transfert est plus efficace lorsqu'il y a plus d'inertie dans le système, un résultat plutôt cohérent. Les deux autres paramètres, J (figure 50c) et K_{im} (figure 50g) semblent assez indépendants des variations en débits, ils seraient donc intrinsèques au milieu poreux.

Considérant un transport non-Fickien, il est possible de distinguer les sources de dispersion représentées par le modèle par un temps caractéristique lié à la disper-

sion, t_D, et un temps caractéristique lié au transfert entre les zones statiques et les

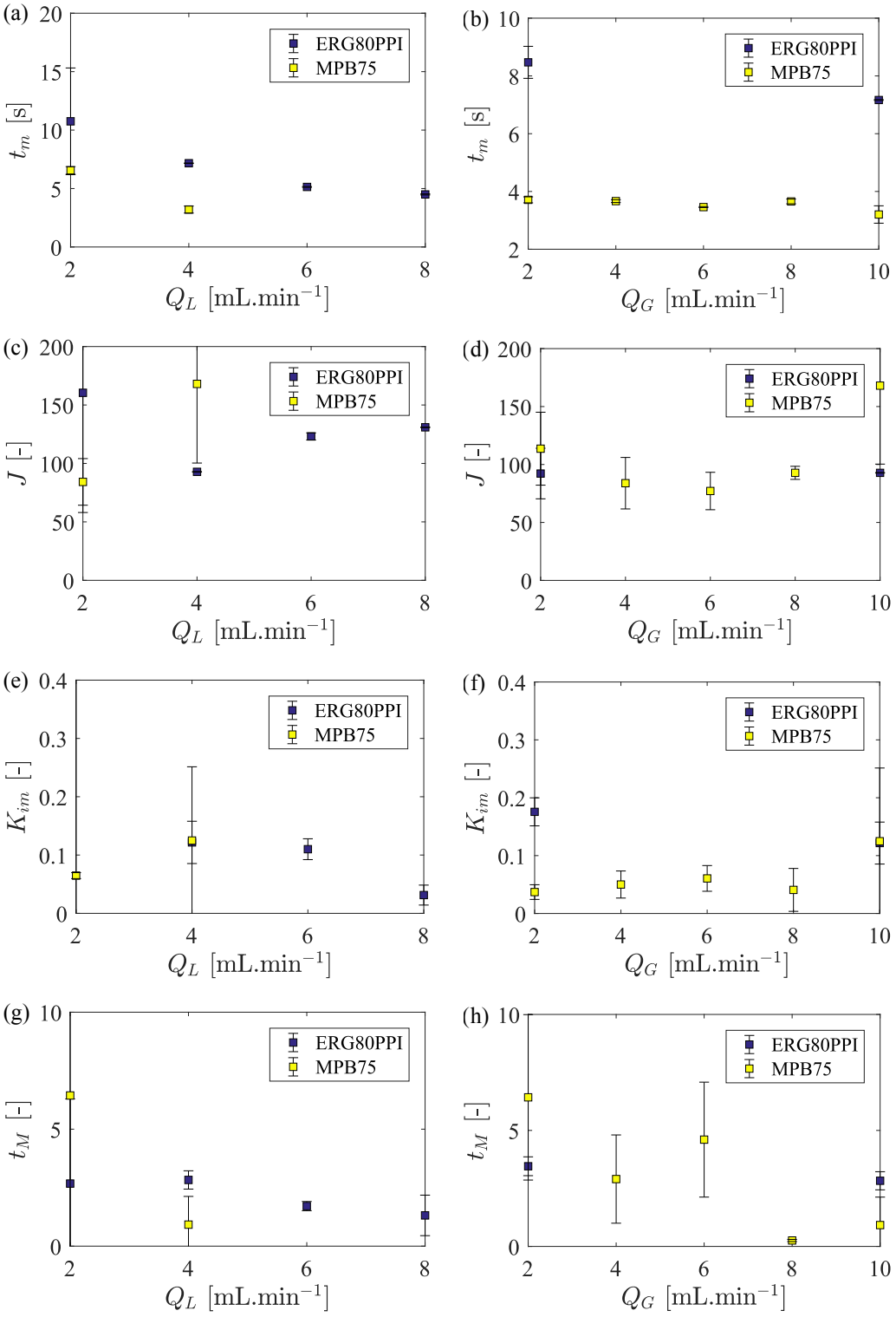

FIGURE 50 – Variation des paramètres du modèle t_m, J, K_{im} et t_M en fonction du rapport du débit de la phase liquide, Q_L (a,c,e,g) et du débit de la phase gazeuse, Q_G (b,d,f,h) (valeurs numériques fournies en annexe C).

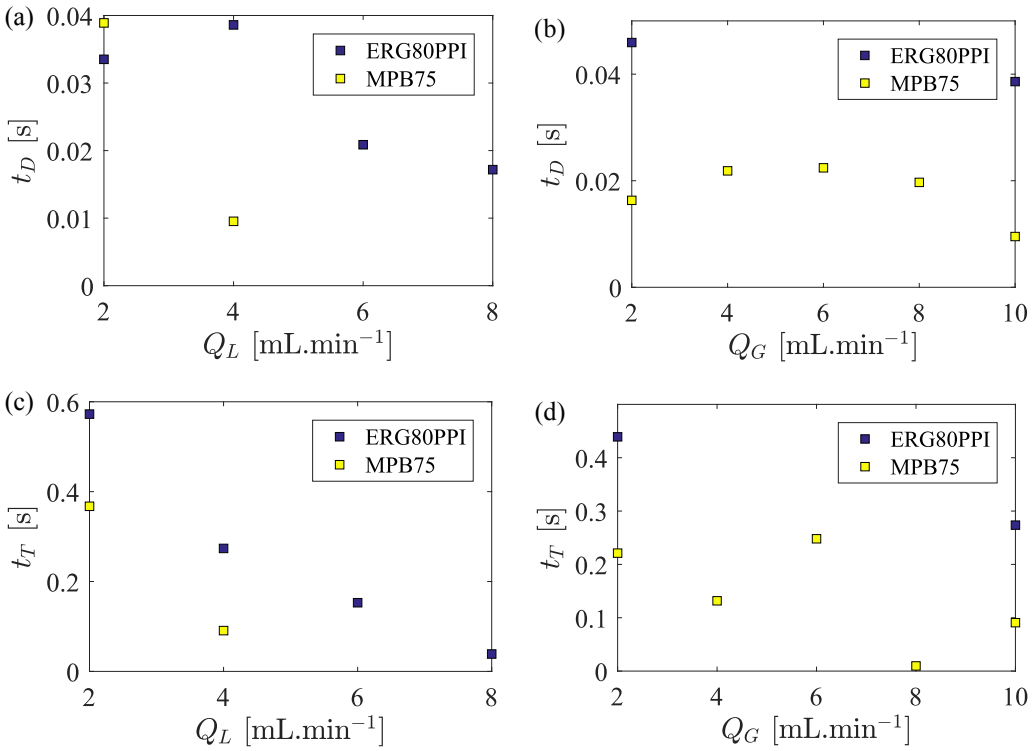

FIGURE 51 – Variation des temps caractéristiques de diffusion, t_D et de transfert, t_T en en fonction des débits de liquide, Q_L et de gaz, Q_G pour deux milieux poreux : mousse 80PPI (ERG80) et Billes75 (MPB75).

zones mobiles dans le milieu poreux, t_T [80]. Ces deux temps sont définis à partir de l'équation du second moment centré (équation 47) réduit comme suit :

$$\sigma'^2 = \frac{2}{t_m}(t_D + t_T) \tag{56}$$

$$t_D = \frac{t_m}{2J} \tag{57}$$

$$t_T = \frac{K_{im}}{(1+K_{im})^2} t_M \ . \tag{58}$$

Les variations de t_D et t_T sont illustrées en fonction de Q_L (figure 51a et 51c) et en fonction de Q_G (figure 51b et 51d). Les différents graphiques montrent la large prédominance de t_T sur t_D ($t_T \propto 10 t_D$). Le transfert entre les zones mobiles et les zones statiques est donc le processus dominant (temps caractéristique le plus grand) dans la dispersion globale de l'écoulement. t_D apparaît plus sensible à Q_L qu'à Q_G avec une décroissance liée à l'augmentation de Q_L, quant à t_T, il diminue lorsque Q_L et Q_G augmentent. Il n'est pas contre-intuitif que les temps caractéristiques de diffusion et transfert diminuent avec l'augmentation de la vitesse à l'intérieur du milieu poreux, cela montre que le système est plus dynamique, ce qui est attendu dans ce cas.

Afin d'observer la réponse des paramètres du modèle $CSTR_4$ à un changement de milieu poreux, t_m, J, K_{im}, t_M, t_D et t_T ont été tracés en fonction du diamètre des pores, d_p, de chaque milieu en figure 52. Les points sont donnés pour deux jeux de débits

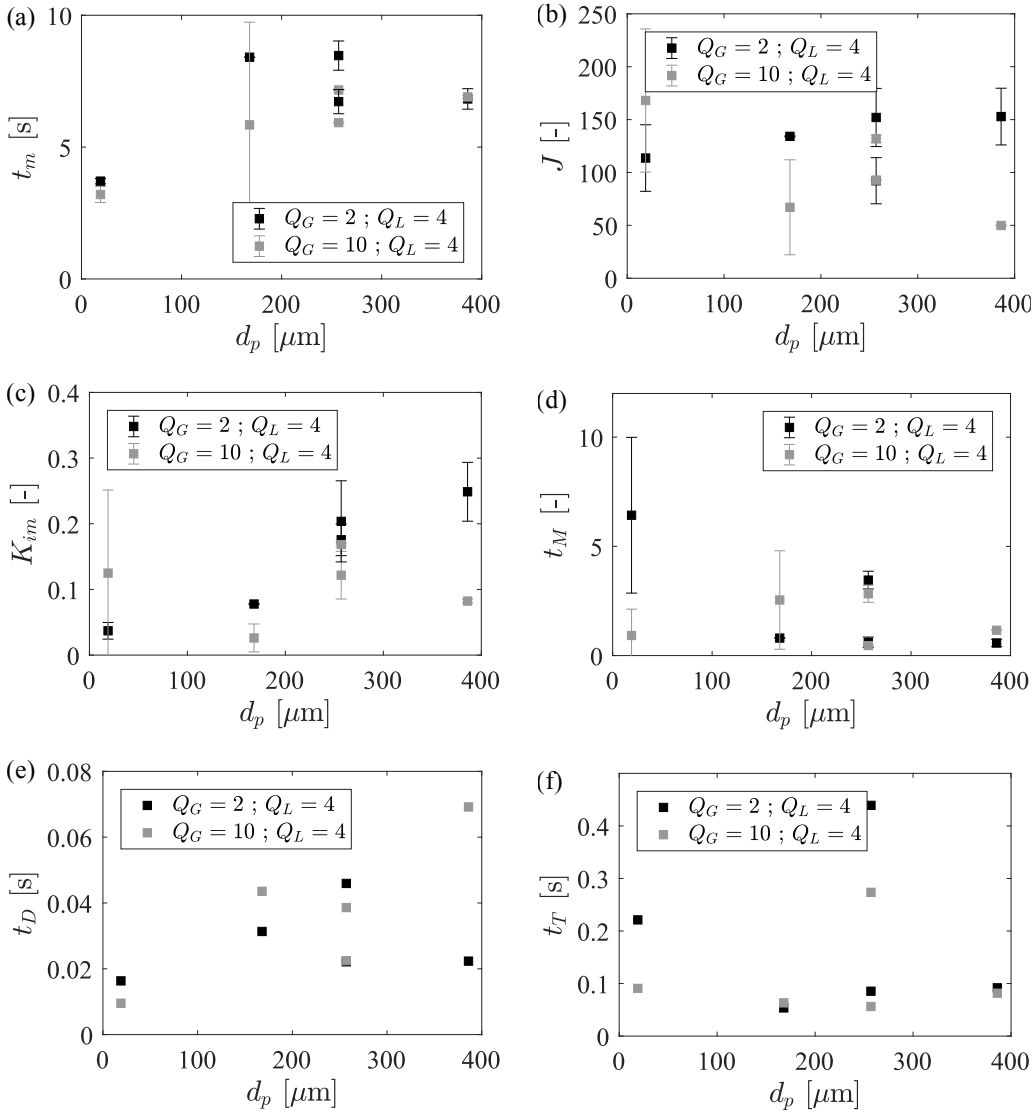

FIGURE 52 – Variation des paramètres du modèle t_m (a), J (b), K_{im} (c) et t_M (d) et des temps caractéristiques de diffusion, t_D (e), et de transfert, t_T (f), en fonction du diamètre des pores d_p de chaque milieu poreux. Les débits Q_G et Q_L sont exprimés en mL.min^{-1}

en commun sur tous les milieux afin d'éviter des commentaires spécifiques à un cas particulier.

Sur la figure 52a, on observe que le temps de séjour de la phase mobile, t_m augmente avec le diamètre des pores quel que soit le couple de débit considéré et le temps de transfert entre phase mobile et immobile. t_M montre une légère décroissance avec l'augmentation de d_p (figure 52d). Pour les deux autres paramètres, J et K_{im}, aucune tendance claire ne ressort figure 52b et 52d. Ces derniers ne sont donc sensibles ni aux débits ni au milieu poreux. Cela interroge sur la pertinence de leur sens physique ou sur la prépondérance du confinement sur la valeur de ces paramètres.

Le temps caractéristique de diffusion, t_D est clairement plus élevé dans les mousses ($d_p > 100$ μm) que dans les billes mais aucune tendance claire ne se manifeste entre

les mousses (figure 52e). Sur la figure 52f, il n'a aucune dépendance claire de t_T en fonction de d_p.

3.1.5 *Conclusion : validation et sens physique du CSTR$_4$*

La méthode expérimentale de mesure de la DTS en deux points par visualisation directe est validée pour la majorité des points ($\tilde{t} > 4$ s) par sa répétabilité (figure 47), qui est discutable pour la détermination du second moment, moins fiable.

La comparaison du modèle aux acquisitions expérimentales, soit par la comparaison directe des courbes (figure 42, et figure 49c) soit par la comparaison du premier moment (plus fiable au niveau expérimental) (figure 49a) valide son utilisation pour représenter la DTS en écoulement multiphasique.

Une méthode d'optimisation globale a été développée dans l'objectif de discuter le sens physique des paramètres du modèle CSTR$_4$. Des cas d'écoulements non linéaires (à forts ratio Q_G/Q_L) sont observés par visualisation directe et décrits dans le chapitre 4. Pour ces derniers, le sens physique des paramètres n'est pas pertinent car le modèle est basé sur la dynamique des systèmes linéaires. Pour les autres, la question se pose car à l'origine, le modèle a été développé pour un écoulement monophasique. Les observations faites sur la réponse des différents paramètres aux variations de débits ou de milieux poreux ne montrent pas d'incohérence permettant d'invalider tout sens physique des paramètres. Cependant, l'indépendance de J et de K_{im} à tout changement de condition d'écoulement est surprenant et pourrait compromettre un sens physique clair.

3.2 MODÉLISATION DES PERTES DE CHARGE

Dans la section précédente, nous avons vu que la DTS permettait d'obtenir des données de saturation liquide à l'intérieur des divers milieux poreux. Dans l'objectif de proposer un modèle global représentant l'hydrodynamique de ces écoulements, cette partie est centrée sur le développement d'un modèle de perte de charge basé sur des expériences acquises dans les même conditions que la DTS. Plusieurs modèles ont été présentés dans le chapitre 1. L'objectif étant de se maintenir en équilibre entre acquisitions expérimentales et développement numérique, le choix se porte sur les approches de type Darcy ou Forchheimer.

3.2.1 *Choix du modèle à l'échelle macroscopique*

Dans un premier temps, les modèles de Darcy (équation 24) et de Forchheimer (équation 25) sont considérés pour modéliser les pertes de charge. Ils ont été présentés en section 1.4 et sont rappelés ci-dessous :

$$\begin{aligned} -\nabla P_i &= \frac{u_i \mu_i}{k_{ri} K_s} - \rho_i g \\ -\nabla P_i &= \frac{u_i \mu_i}{k_{ri} K_s} + \frac{u_i^2 \rho_i}{\eta_{ri} \eta} \,. \end{aligned} \tag{59}$$

L'écoulement modélisé est horizontal et confiné, il est donc possible de simplifier le modèle de Darcy en négligeant les forces gravitaires :

$$-\nabla P_i = \frac{u_i \mu_i}{k_{ri} K_s} \,. \tag{60}$$

La viscosité, μ_i, la masse volumique ρ_i et la vitesse superficielle (ou vitesse de Darcy), u_i sont connues. Pour finaliser le modèle il reste donc à déterminer la perméabilité, K_s, et la passabilité η dans le cas du modèle de Forchheimer, ainsi que la perméabilité et la passabilité relatives k_{ri} et η_{ri}.

Dans la mesure où plusieurs milieux poreux de morphologie très différente sont étudiés, la perméabilité et la passabilité ne sont pas déterminées par les équations de Kozeny-Carman (équation 22) et Ergun (équation 23) mais par des mesures expérimentales. Pour cela, on se place en écoulement monophasique pour lequel les modèles de Darcy et de Forchheimer donnent accès à K_s et η par une relation entre les pertes de charge (mesurées expérimentalement) et la vitesse de la phase, u_i, imposée :

$$\begin{aligned} -\nabla P &= \frac{\mu u}{K_s} \\ -\nabla P &= \frac{\mu u}{K_s} + \frac{\rho u^2}{\eta} \,. \end{aligned}$$

La phase choisie pour l'écoulement monophasique est déterminante dans la sélection entre le modèle de Darcy ou de Forchheimer. D'une part, pour des écoulements multiphasiques il y a souvent une différence notable entre la gamme de vitesse de la phase liquide et celle de la phase gazeuse [95, 99] et d'autre part, les hypothèses des modèles de Darcy et de Forchheimer reposent sur un écoulement non compressible et pour le modèle de Forchheimer, sur un écoulement non gravitaire (chapitre 1).

Nous faisons l'hypothèse que les pertes de charge mesurées en écoulement multiphasique sont essentiellement supportées par la phase liquide dans notre configuration. Pour cette raison et pour respecter les hypothèses de non compressibilité de l'écoulement, l'écoulement monophasique utilisé pour l'estimation de K_s est un écoulement en phase liquide (ici éthanol). Les mesures du gradient de pression, $\nabla P = \Delta P / L$, sont illustrées sur la figure 53. Les courbes continues sont le résultat de la régression linéaire des données expérimentales par le modèle de Darcy et les courbes en pointillés sont le résultat de la régression quadratique avec le modèle de Forchheimer. On observe que la régression linéaire des données expérimentales est pertinente, ce qui valide l'utilisation du modèle de Darcy pour modéliser les pertes de charge dans la gamme de vitesse liquide u_L considérée.

Les valeurs numériques obtenues pour K_s sont données en table 7. La dernière colonne donne un exemple de matériau naturel dont la gamme de perméabilité correspond à celle mesurée.

3.2.2 *Modélisation de la perméabilité relative*

Dans le cas d'un écoulement multiphasique, la perturbation de l'écoulement d'une phase par la deuxième est prise en compte par le paramètre k_{ri}, défini comme la

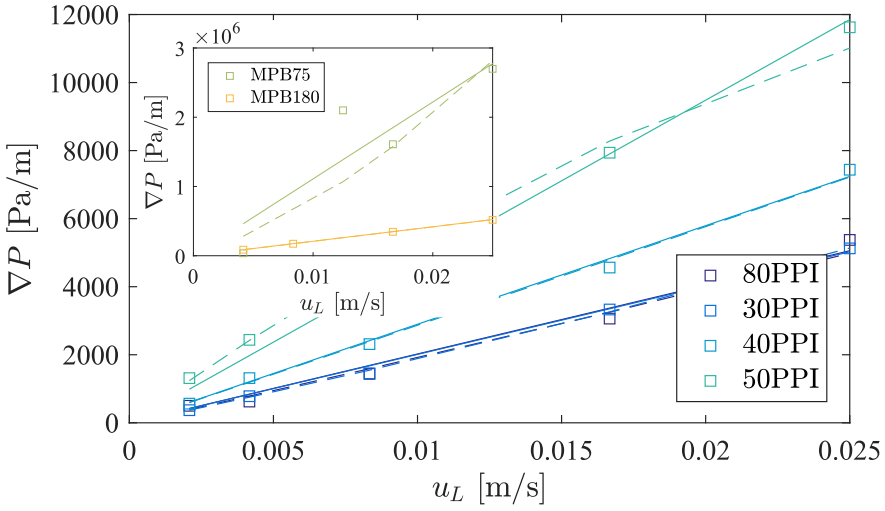

FIGURE 53 – Gradient de pression de l'écoulement monophasique liquide, ∇P, en fonction de la vitesse du liquide, u_L [□ points expérimentaux, la ligne continue représente la régression linéaire selon le modèle de Darcy, la ligne en pointillés, la régression quadratique des modèles inertiels (Ergun ou Forchheimer)].

perméabilité relative de la phase i. Pour la phase mouillante, ici l'éthanol, k_{rL} est défini par l'équation [33] :

$$k_{rL} = \left[\frac{S_L - S_L^*}{1 - S_L^*}\right]^{\alpha} \tag{61}$$

où S_L^* est la saturation liquide statique du milieu poreux, c'est-à-dire la fraction liquide qui reste piégée à la fin de l'écoulement. L'estimation de S_L^* est parfois proposée par des mesures expérimentales [85, 99]. Dans notre configuration, des mesures fiables n'étaient pas envisageables, ainsi pour chaque milieu poreux, la valeur choisie pour S_L^* a été estimée grâce à la valeur moyenne du paramètre K_{im} de la DTS représentant la fraction de la phase liquide immobile. Malgré le faible sens physique attribuable à ce paramètre (voir conclusion du chapitre 3), c'est la seule estimation à notre disposition.

La modélisation de $S_L(u_L)$ s'appuie sur le modèle de glissement de phase proposé par WALLIS [100] et repris par plusieurs auteurs [48, 101, 102]. Ce modèle repose sur l'existence d'une vitesse de glissement entre la phase liquide et la phase gazeuse.

Milieu	K_s [m^2]	Milieu granulaire naturel correspondant [33]
MPB75	$1.0.10^{-11}$	sables fins/argiles
MPB180	$5.5.10^{-11}$	sables fins/argiles
50PPI	$2.4.10^{-9}$	graviers/roches fracturées
40PPI	$4.0.10^{-9}$	graviers/roches fracturées
30PPI	$5.7.10^{-9}$	graviers/roches fracturées
80PPI	$5.7.10^{-9}$	graviers/roches fracturées

TABLE 7 – Valeur de la perméabilité, K_s, obtenue pour chaque milieu comparée aux milieux naturels de même perméabilité.

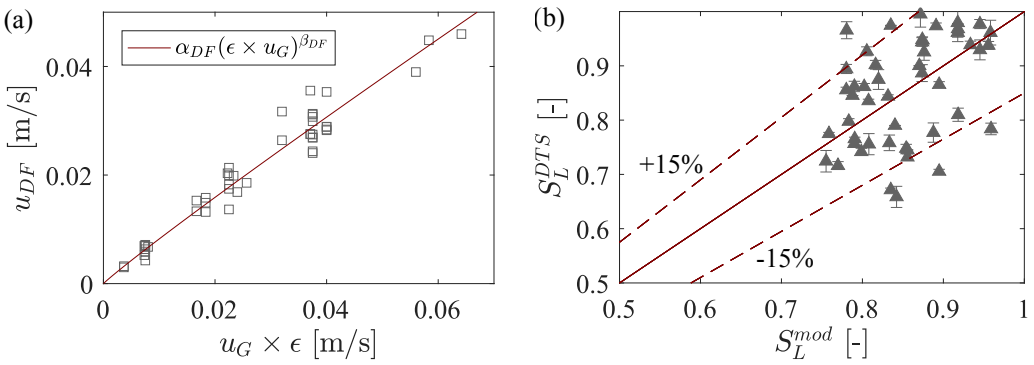

FIGURE 54 – (a) Valeurs de la vitesse de glissement de phase, u_{DF}, en fonction de la vitesse de gaz, u_G multipliée par la porosité ϵ. La ligne continue est le résultat de l'équation $u_{DF} = \alpha_{DF}\,(u_G \times \epsilon)^{\beta_{DF}}$ pour $\alpha_{DF} = 0.64$ et $\beta_{DF} = 0.94$. (b) Diagramme de parité comparant les valeurs de saturation liquide calculées par la DTS, S_L^{DTS} à celles modélisées par l' équation 64, S_L^{mod}.

L'expression de cette vitesse, u_{DF} [3], proposée par DARTON et HARRISON [101] dans le cas d'un milieu solide mobile, a été modifiée pour être adaptée à un lit fixe :

$$u_{DF} = u_G \epsilon_L - u_L\,(\epsilon - \epsilon_L) \tag{62}$$

MOLGA et WESTERTERP [102] ont montré que u_{DF} dépendait principalement de u_G. Dans ce travail, la large gamme de milieux poreux étudiée a permis de compléter cette hypothèse. En traçant u_{DF} en fonction de $u_G \times \epsilon$, tous les points expérimentaux se superposent (figure 54a) et suivent la loi :

$$u_{DF} = \alpha_{DF}\,(u_G \times \epsilon)^{\beta_{DF}} \tag{63}$$

avec $\alpha_{DF} = 0.64$ et $\beta_{DF} = 0.94$ pour tous les milieux poreux. Les valeurs de fraction liquide ϵ_L sont calculées à partir du premier moment de la DTS (équation 49). L'introduction de l'équation 63 dans l'équation 62 permet de proposer l'équation suivante :

$$S_L = \frac{\epsilon_L}{\epsilon} = \frac{1}{\epsilon}\left[\frac{\epsilon u_L + \alpha_{DF}\,(u_G \times \epsilon)^{\beta_{DF}}}{u_G + u_L}\right] \tag{64}$$

qui prédit la saturation liquide avec une précision de $\pm 15\%$, ce qui est remarquable (figure 54b).

Pour terminer la modélisation de la perméabilité relative, k_{ri}, il reste à définir sa puissance, α (équation 61). α est l'unique paramètre ajustable du modèle de Darcy, il est donc déterminé lors de la régression non linéaire du modèle de Darcy multiphasique sur les points expérimentaux de pertes de charge.

3.2.3 *Introduction du terme de piégeage capillaire*

Les résultats de la modélisation des pertes de charge par le modèle de Darcy sont évalués par un calcul des résidus, δ_P, à partir de l'équation :

$$\delta_P = \frac{\nabla P_{exp} - \nabla P_{mod}}{\nabla P_{exp}}\ , \tag{65}$$

3. DF : Drift Flux (flux de glissement)

où ∇P_{exp} et ∇P_{mod} représentent respectivement les pertes de charge mesurées expérimentalement et estimées par le modèle de Darcy. La figure 55 présente les résidus, δ_P, en fonction du nombre capillaire biphasique, $Ca_{\Delta P}$, inspiré de la microfluidique [43, 55, 57] et défini par :

$$Ca_{\Delta P} = \left[\frac{Q_G + Q_L}{\epsilon h^2}\right] \frac{\mu_L}{\sigma_L} \, . \tag{66}$$

On observe que les résidus les plus grands se trouvent aux faibles valeurs de Ca_{TP}. Pour améliorer les prédictions du modèle de Darcy, un nouveau modèle multi-échelles est proposé. La contribution macroscopique de la loi de Darcy est complétée par une contribution de pertes de charge à l'échelle du pore, liée au piégeage et au dépiégeage des bulles de gaz. La prise en compte de cette contribution capillaire va dans le sens des études récentes de Tallakstad et al. [86] et Wolff et al. [112]. L'expression globale du modèle proposé est la suivante :

$$-\nabla P = \frac{\Delta P_{Darcy} + \Delta P_{Pore}}{L} \tag{67}$$

où L est la longueur totale du milieu poreux. À l'échelle du pore, les pertes de charge sont exprimées comme une accumulation de pression capillaire par quantité γ de bulles piégées. La pression à vaincre pour que les bulles soient dépiégées dépend donc de σ_L, la tension de surface, et de d_p, le diamètre du pore qui retient la bulle. Le modèle est réécrit :

$$-\nabla P = \frac{\mu_i u_i}{k_{ri} K_s} + \gamma \frac{\sigma_L}{L \times dp} \, . \tag{68}$$

Les paramètres du modèle sont K_s, α (pour la détermination de k_{ri}) et γ. K_s est déterminée par les expériences en écoulement monophasique et les coefficients α et γ sont déterminés par une régression non linéaire sur les points mesurés expérimentalement. Les résultats de la modélisation par le modèle de piégeage sont présentés en figure 56a. Le diagramme de parité montre la robustesse du modèle de piégeage

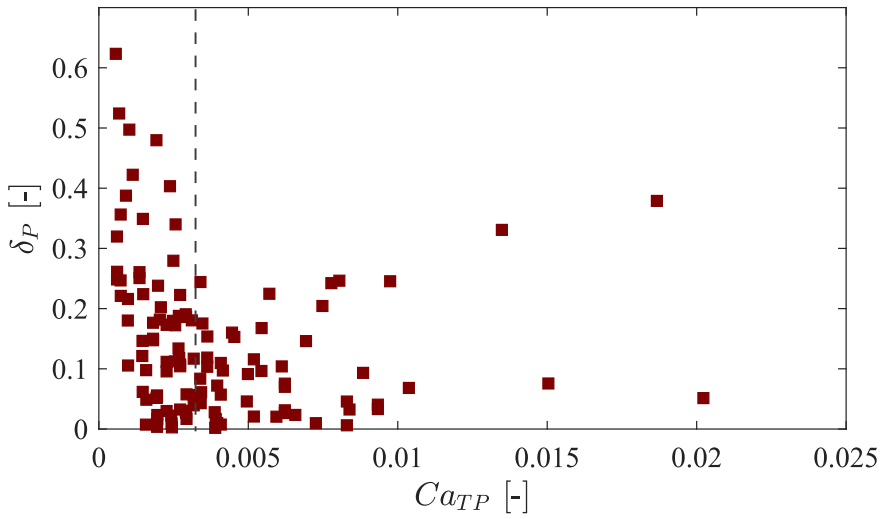

Figure 55 – Répartition des résidus δ_p entre le gradient de pression expérimental et modélisé par la loi de Darcy en fonction du nombre capillaire biphasique $Ca_{\Delta P}$.

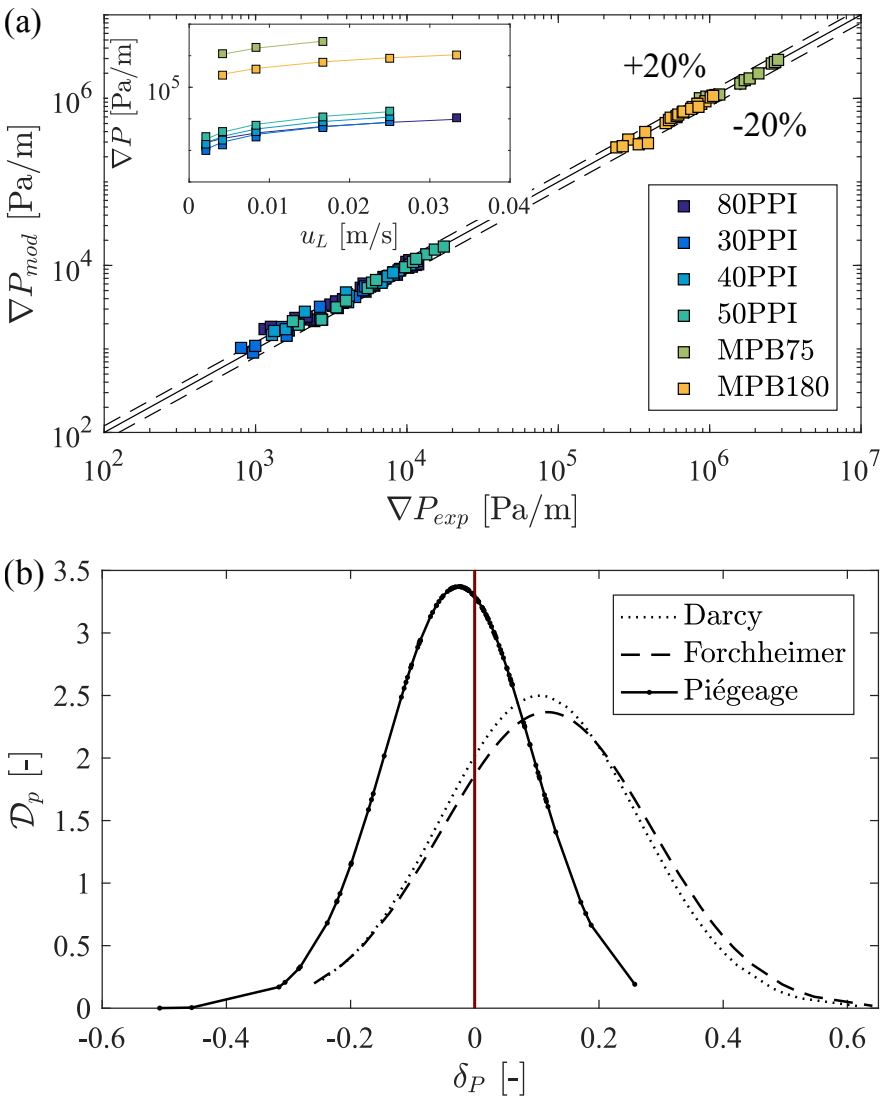

FIGURE 56 – (a) Diagramme de parité comparant les valeurs modélisées du gradient de pression ∇P_{mod} aux valeurs mesurées ∇P_{exp} (annexe C). Insert : superposition du modèle de piégeage aux valeurs mesurées de ∇P en fonction de la vitesse u_L. (b) Densité de probabilité $\mathcal{D}_p$ des résidus des modélisations effectuées sur les résultats expérimentaux à partir des trois modèles : Darcy, Forchheimer, et Darcy + piégeage capillaire.

qui permet de prédire les pertes de charge sur 5 ordres de grandeur à $\pm 20\%$ seulement.

La comparaison des densités de probabilité $\mathcal{D}_p$ des résidus de modélisation des trois modèles sur les données expérimentales montre que la prise en compte des pertes de charge capillaires à l'échelle du pore améliore considérablement la répartition des résidus par rapport au modèle macroscopique de Darcy (figure 56b). Par ailleurs, l'ajout de la répartition des résidus du modèle de Forchheimer [4] montre que dans ce cas il n'améliore pas la modélisation de Darcy, au contraire.

4. le paramètre η_{ri} de l'équation 59 est défini pour la phase liquide par l'équation suivante : $\eta_{rL} = [(S_L - S_L^*)/(1 - S_L^*)]^\beta$

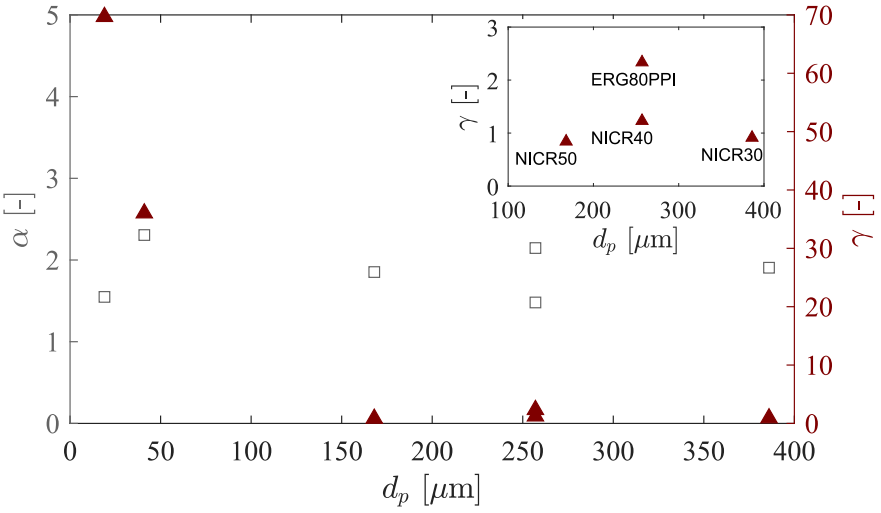

FIGURE 57 – Valeurs des coefficients α et γ en fonction du diamètre des pores d_p de chaque milieu poreux testé. Insert : zoom sur les valeurs du coefficient γ uniquement pour les mousses.

Les valeurs des coefficients α et γ obtenues par régression non linéaire sont tracées en fonction du diamètre des pores d_p du milieu poreux sur la figure 57. Le coefficient α est quasi-constant pour tous les milieux poreux. Étant donné qu'un seul jeu de fluides (air-éthanol) a été testé, cela est cohérent avec la définition de k_{ri} qui est un complément à K_s (différente pour chaque milieu poreux) pour caractériser les interactions fluide-fluide.

Le coefficient γ, introduit pour caractériser les phénomènes de piégeage à l'échelle du pore, varie considérablement aux faibles diamètres de pores, d_p (lits de billes), puis atteint un plateau pour des diamètres $d_p > 100$ μm. Un zoom sur ce plateau est proposé dans l'insert de la figure 57. Il est intéressant de noter que γ est quasi-identique pour les trois mousses en Ni-Cr (NICR30,NICR40,NICR50) et change pour la mousse en carbone (ERG80PPI). Ce comportement est cohérent avec le fait que la mouillabilité (angle de contact et rugosité différents) d'un matériau peut influencer les phénomènes de piégeage capillaire.

3.2.4 *Conclusion sur les pertes de charge*

L'ajout d'un terme de piégeage à l'échelle du pore améliore les prédictions du modèle de Darcy, sans complexifier la résolution numérique du modèle de pertes de charge, qui est l'un des objectifs pour cette thèse. Par ailleurs, la comparaison avec le modèle de Forchheimer (ou Ergun) tout le long de cette partie a mis en évidence que les corrections inertielles ne sont pas une alternative systématique aux défauts de prédiction du modèle de Darcy.

En effet, l'emploi de la loi de Forchheimer est très fréquent dans la littérature bien que son usage soit discutable dans certains cas. Prenons trois exemples illustrés en figure 58 où les pertes de charge ont été modélisées par le modèle de Forchheimer. Dans les trois exemples, la perméabilité et la passabilité ont été modélisées en écoulement monophasique gazeux. Pour les travaux de AL-DAHHAN et al. [98], les gammes de vitesse de gaz, u_G, et de liquide, u_L, sont équivalentes et en régime inertiel. L'écou-

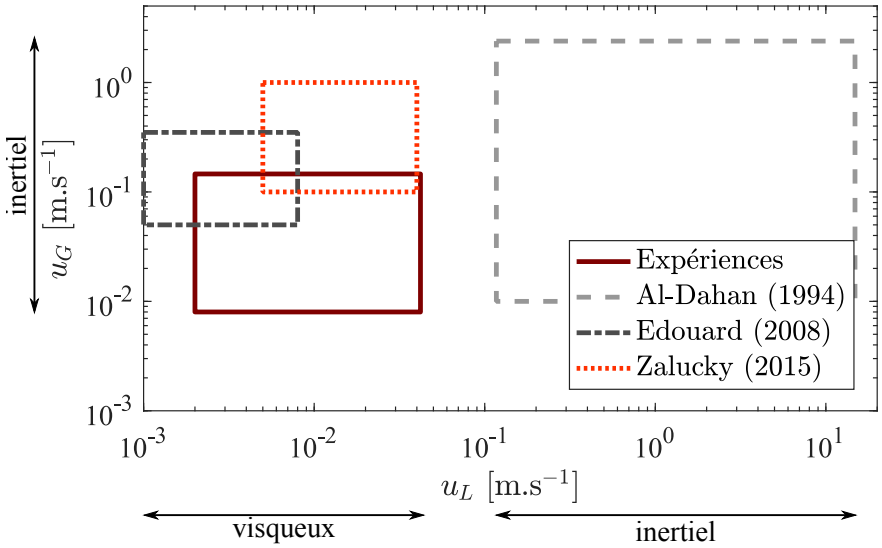

FIGURE 58 – Présentation des domaines (u_G, u_L) couverts par différents travaux scientifiques, AL-DAHHAN et al. [98], EDOUARD et al. [39] et ZALUCKY et al. [95] et par nos expériences. La répartition des domaines montre que si la vitesse de la phase gazeuse présente des pertes de charge inertielles, ce n'est pas forcément le cas de la phase liquide (voir texte).

lement monophasique suit donc une loi quadratique (Forchheimer) quelle que soit la phase choisie. La régression des paramètres K_s et η reste donc valide en écoulement monophasique.

Dans les travaux de EDOUARD et al. [39] et ZALUCKY et al. [95], le constat est différent. En effet, si la gamme de vitesse de la phase gazeuse, u_G, est en régime inertiel, ce n'est pas le cas pour la phase liquide, u_L (figure 53). Ainsi, la régression des données expérimentales en écoulement monophasique gazeux nécessite une loi quadratique telle que la loi de Forchheimer pour obtenir les coefficients K_s et η alors qu'une régression linéaire aurait suffi avec un écoulement monophasique liquide. La question de la pertinence des coefficients K_s et η pour l'écoulement multiphasique doit alors être posée si c'est la phase liquide qui crée le plus de pertes de charge (cas fréquent).

Dans un objectif de meilleure représentation des systèmes gaz-liquide-solide, il est important de soulever ce genre de questions rarement rencontrées dans la littérature, pour éviter d'appliquer des corrections par défaut qui ne sont pas systématiquement appropriées au problème traité. Ce commentaire est à nuancer pour des écoulements où la phase gazeuse est porteuse de la majorité des pertes de charge, auquel cas, les modèles de Darcy et de Forchheimer ne sont probablement pas les plus adaptés (voir les hypothèses des modèles décrites dans le chapitre 1).

3.3 TRANSFERT GAZ-LIQUIDE

Suite à la caractérisation et à la modélisation du transport des fluides à l'intérieur du milieu poreux décrites dans les deux parties précédentes, l'objectif est de pousser l'étude hydrodynamique jusqu'à la description des interactions entre le gaz et le liquide, dans le cas d'une réaction chimique. Comme expliqué dans le chapitre 2, cette caractérisation est effectuée par l'étude du transfert du CO_2 dans une solution de

NaOH. La méthode expérimentale développée donne accès au coefficient de transfert gaz-liquide, $k_l a$, homogène à $[T^{-1}]$ et dépendant de la géométrie du réacteur, des débits Q_G et Q_L ainsi que de la nature des fluides et celle du milieu poreux.

Dans un premier temps, l'évolution du $k_l a$ est commentée et comparée aux données de la littérature pour le canal vide, puis son étude est poursuivie avec l'insertion des différents milieux poreux analysés au cours de ces travaux (lit de bille, mousses solides).

3.3.1 *Canal vide : comparaison avec la littérature*

Les acquisitions de $k_L a$ en canal vide ont été réalisées afin d'avoir une référence pour évaluer ensuite l'effet des différents milieux sur l'amélioration des transferts gaz-liquide. En effet, face à la variété des corrélations disponibles dans la littérature, nous avons préféré acquérir les valeurs propres au dispositif expérimental utilisé en présence de milieu poreux. Les $k_l a$ ont été mesurés pour différents débits de liquide, Q_L, et de gaz, Q_G, et pour deux longueurs de réacteurs, $L = 4$ cm et $L = 8$ cm. Les résultats sont comparés à deux études bibliographiques en figure 59.

L'axe des abscisses des figures 59a et 59b, τ_K, est un temps de séjour de l'écoulement défini par Kuhn S. [107] suivant l'équation :

$$\tau_K = \frac{V}{Q_G + Q_L} \tag{69}$$

où V est le volume du canal. Les différentes séries de données sont caractérisées par $\dot{\epsilon}_G = Q_G/(Q_G + Q_L)$, le débit partiel de gaz. Nos valeurs sont difficilement comparables à celles de Kuhn S. [107] sur le plan quantitatif. En effet, bien que Le système étudié par Kuhn S. [107] soit identique au nôtre en terme de fluide (absorption du CO_2 dans une solution de NaOH), le pH de la solution est légèrement plus élevé (pH=12) et leur écoulement est plus confiné (canal carré de hauteur $h = 0.4$ mm). Ces deux aspects sont favorables à une augmentation de $k_l a$, ce qui pourrait expliquer l'écart entre les valeurs. Cela est visible en figure 59a sur laquelle nos points ($\dot{\epsilon} = 0.5$) ne se situent pas entre les points à $\dot{\epsilon} = 0.4$ et $\dot{\epsilon} = 0.6$. Cependant, nos expériences sont comparables à celles de Kuhn S. [107] de manière qualitative. On observe à la fois sur les courbes de Kuhn S. [107] (figure 59a) et sur nos expériences (zoom en figure 59b) que $k_l a$ diminue avec l'augmentation du temps de séjour des fluides dans le canal.

Sur la figure 59b, deux points à $\tau_K < 1$ s sortent clairement de la tendance de décroissance du $k_l a$. Deux hypothèses sont alors possibles : soit il y a des erreurs sur les acquisitions expérimentales (forte sensibilité de la concentration de CO_2 à l'intensité de fluorescence mesurée, figure 31b), soit les expériences ont mis en évidence un temps de séjour minimum, τ_K^*, pour que la mesure du transfert gaz-liquide soit représentative du système étudié. Le nombre d'expériences réalisées ne permet pas de conclure sur ces hypothèses.

Nos expériences sont ensuite comparées aux travaux de Roudet et al. [57] en figure 59c dont le dispositif expérimental est très proche du nôtre (canal carré de hauteur $h = 2$ mm, jonction en T), mais utilise une autre méthode : l'absorption de l'oxygène dans de l'eau déionisée. Aux mêmes vitesses de gaz, u_G, une tendance semblable d'augmentation de $k_l a$ avec l'augmentation de u_L est observé pour les deux

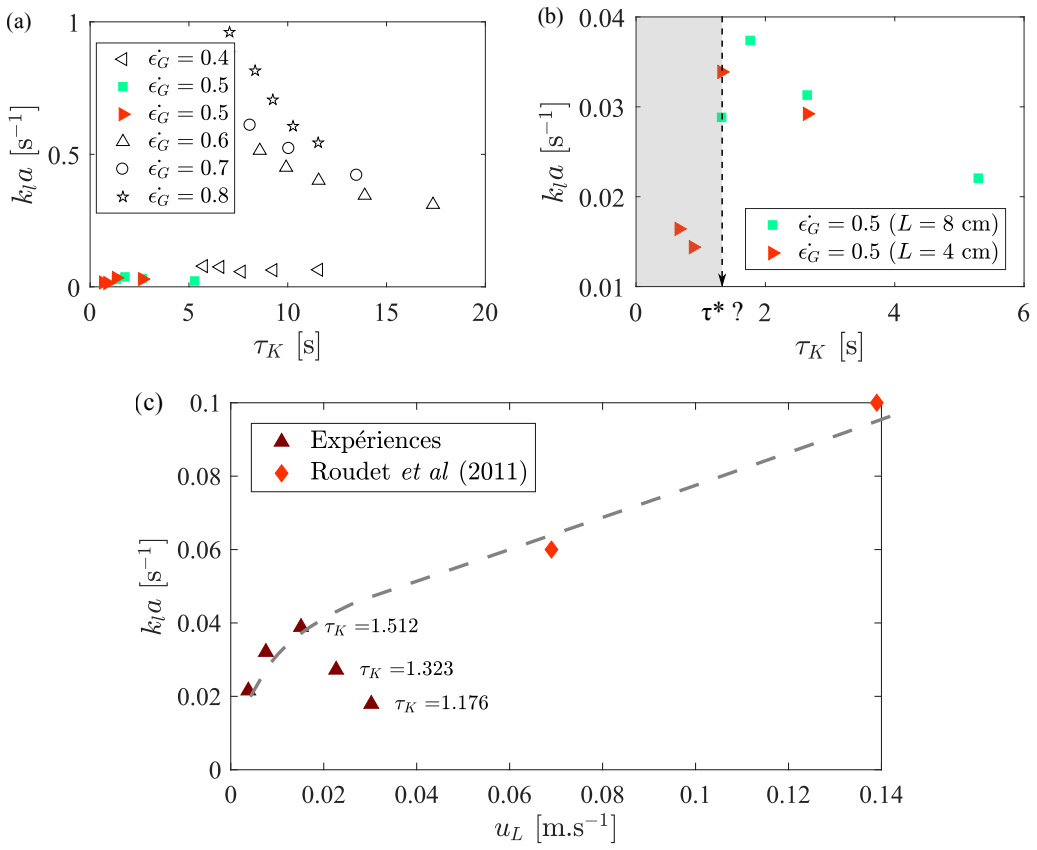

FIGURE 59 – (a) Évolution du coefficient de transfert gaz-liquide, $k_l a$, en fonction du temps de séjour, τ_K, défini par KUHN S. [107] (voir équation 69) pour différents débits partiels de gaz, $\dot{\epsilon}_G$ (voir texte). Les symboles pleins sont les points de nos expériences et les symboles vides sont ceux acquis par KUHN S. [107]. (b) Zoom sur nos expériences pour deux longueurs de réacteurs, L . (c) Coefficient de transfert gaz-liquide, $k_l a$, en fonction de u_L, [△ : $u_G = 0.038$ m.s^{-1} et ♢ : $u_G = 0.03$ m.s^{-1} [57]].

études (ligne pointillée). Deux de nos points sortent de cette tendance. Leurs valeurs de τ_K ont été ajoutées sur le graphique et montrent une fois de plus qu'à des $\tau_K < \tau_K^*$, les estimations de $k_l a$ sont moins fiables.

Les valeurs de $k_l a$ obtenues en canal vide ont des tendances et des ordres de grandeurs cohérents avec les études similaires de la littérature. Cela permet donc de valider la méthode employée et d'analyser l'effet du milieu poreux sur le coefficient de transfert gaz-liquide.

3.3.2 *Évolution de $k_l a$ avec le changement de milieu poreux*

Cette partie présente des estimations expérimentales du coefficient de transfert gaz-liquide, $k_l a$, pour un écoulement à travers différents milieux poreux. Les milieux testés pour ces mesures sont deux mousses (40PPI et 80PPI) ainsi qu'un lit de billes (Billes180, aussi appelé MPB180). L'objectif est d'évaluer la qualité de transfert d'un écoulement dans les mousses par rapport aux écoulements dans un lit de billes.

La figure 60 présente les valeurs de $k_l a$ mesurées expérimentalement dans ces trois milieux en fonction de la vitesse de liquide, u_L, et de la vitesse de gaz, u_g. Comme pour les écoulements en canal vide, on observe une augmentation de $k_l a$ à la fois avec une augmentation de u_G et une augmentation de u_L.

L'ajout d'un milieu poreux permet d'augmenter sensiblement les valeurs de $k_l a$. À faibles u_G et u_L, l'influence du milieu poreux est peu visible. De plus, les trois milieux, sensiblement différents ont le même impact sur l'augmentation du $k_L a$. À plus haute vitesse, soit u_L, soit u_G, soit $u_G + u_L$, les valeurs des $k_l a$ s'échelonnent en fonction de la porosité, ϵ du milieu poreux. Les valeurs de $k_l a$ les plus élevées correspondent aux plus faibles porosités.

3.3.3 *$k_l a$ dans les mousses solides : comparaison avec la littérature*

Pour la majorité des points illustrés sur la figure 60, les $k_l a$ obtenus pour les mousses sont peu éloignés de ceux obtenus pour les billes, ce qui est un résultat intéressant en terme de dissipation d'énergie (discuté en section 3.4), compte tenu des différences en pertes de charge obtenues pour ces différents milieux. Cette partie a pour objectif de comparer nos valeurs de $k_l a$ acquises dans les mousses avec des travaux similaires de la littérature (figure 61).

La figure 61a montre l'évolution du $k_l a$ mesuré dans plusieurs mousses solides en fonction de la vitesse de liquide, u_L. Nos valeurs (symboles pleins) ont été acquises pour des écoulements dans les mousses 80PPI et 40PPI. Les valeurs acquises par Stemmet et al. [113] relèvent d'un écoulement en co-courant descendant (eau-air) dans une pseudo cellule de Hele-Shaw contenant des mousses de 10PPI et 40PPI (provenance : ERG Aerospace), de dimension $30 \times 30 \times 1$ cm^3 en aluminium. Il est délicat de comparer de manière précise ces données car l'écoulement est moins confiné et le diamètre des pores n'est pas fourni dans l'article de Stemmet et al. [113]. En effet, les PPI sont des informations données par les fournisseurs peu fiables.

Cependant, l'ordre de grandeur des points de Stemmet et al. [113] est identique au nôtre. Les points de Stemmet et al. [113] montrent une asymptote horizontale qui semblerait arriver à des vitesses plus élevées dans notre cas. Cela peut-être lié à l'effet du confinement de l'écoulement qui augmente la surface d'échange a dans le canal millifluidique.

La figure 61b compare nos données de $k_l a$ en fonction de la vitesse de liquide, u_L, par rapport à celles de Tourvieille et al. [60]. Ces dernières sont des estimations de $k_l a$ obtenues par corrélations afin d'expliquer des comportements de transfert massiques globaux (gaz-liquide-solide) mesurés en utilisant l'hydrogénation de l'α-methylstyrene (AMS) dans du cyclohexane (catalyseur : Pd/Al_2O_3) dans le même canal millifluidique.

Les méthodes de mesures étant très différentes, les valeurs quantitatives des $k_l a$ ne sont pas comparables. Ainsi, deux axes verticaux sont proposés en figure 61b, ce qui permet une comparaison qualitative entre ces deux études. La décroissance du $k_l a$ en fonction de u_L observée par Tourvieille et al. [60] est très surprenante et va à l'encontre de toutes les observations effectuées sur notre dispositif. Cela peut être expliqué par les hypothèses fortes faites par Tourvieille et al. [60] (mouillage total, isothermicité) pour expliquer le comportement du coefficient de transfert global, pas nécessairement vérifiées.

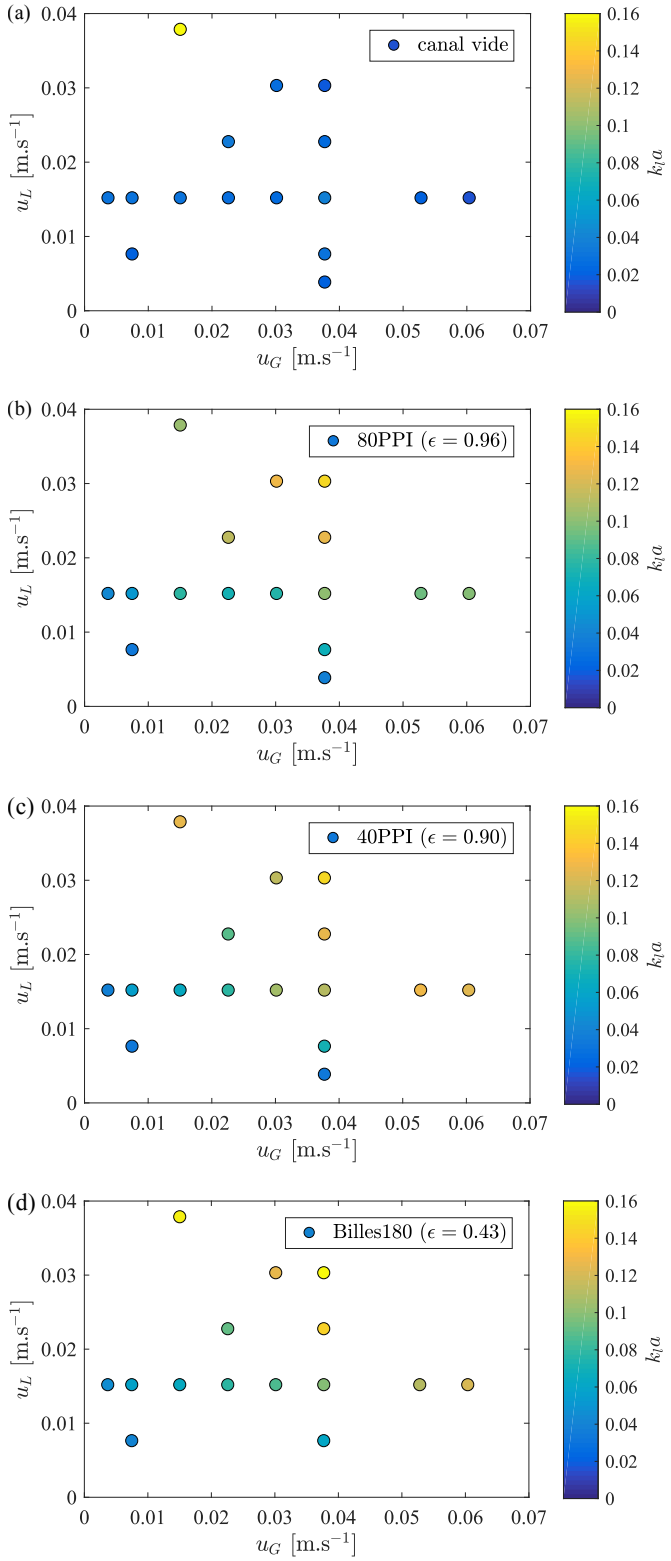

FIGURE 60 – Évolution du coefficient de transfert gaz-liquide, $k_l a$, en fonction de la vitesse du liquide u_L et de la vitesse du gaz u_G pour différents milieux poreux (deux mousses 80PPI et 40PPI et un lit de billes, Billes180) comparés aux valeurs de $k_l a$ dans un canal vide (valeurs numériques fournies en annexe C).

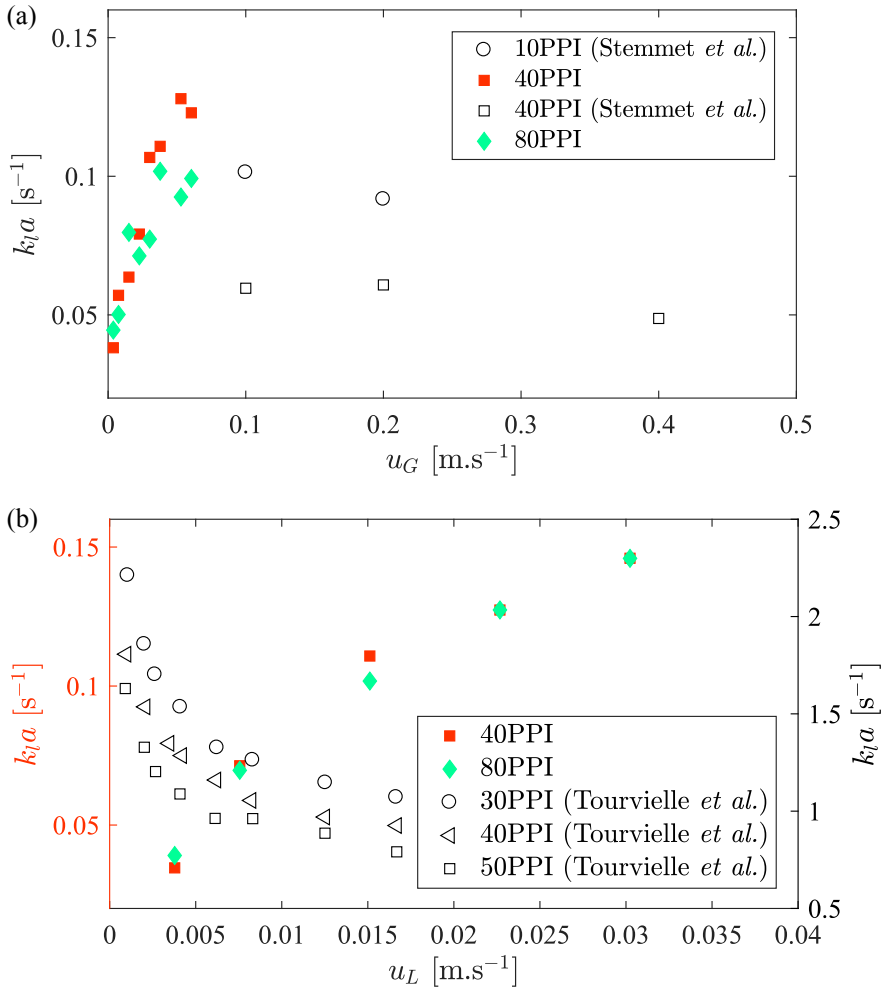

FIGURE 61 – Variation du coefficient de transfert gaz-liquide, $k_l a$, (a) en fonction de la vitesse du gaz, u_G, pour nos expériences (symboles pleins, $u_L = 0.015$ m.s^{-1}) et pour celles de STEMMET et al. [113] (symboles vides, $u_L = 0.02$ m.s^{-1}) et (b) en fonction de la vitesse du liquide, u_L, pour nos expériences (symboles pleins, axe de gauche, $u_G = 0.04$ m.s^{-1}) et pour celles de TOURVIEILLE et al. [60] (symboles pleins, axe de droite, $u_G = 0.04$ m.s^{-1}).

3.4 CONCLUSION SUR L'HYDRODYNAMIQUE GLOBALE

L'ensemble de ce chapitre a permis de décrire l'hydrodynamique globale d'un écoulement gaz-liquide dans divers milieux poreux à travers trois axes :

— la caractérisation et la modélisation du transport (section 3.1)
— la modélisation des pertes de charge (section 3.2)
— la quantification du transfert de masse gaz-liquide (section 3.3).

La méthode expérimentale utilisée pour la DTS est fiable pour la détermination du temps de séjour de la phase liquide lorsque ce dernier est suffisamment élevé. C'est moins évident pour la détermination du second moment. En effet, dans certains cas, le front de sortie est plus raide que celui d'entrée, ce qui n'est physiquement pas possible. L'hypothèse la plus probable pour expliquer ces comportements semble être un manque de répétabilité de l'injection de traceur. Une des possibilités d'amélioration serait d'effectuer les enregistrements du passage du traceur à l'entrée et la

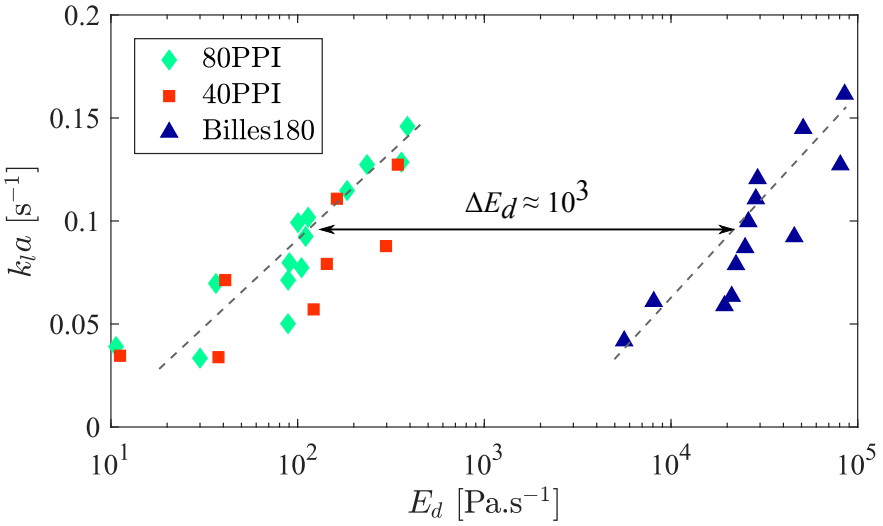

FIGURE 62 – Valeurs des coefficients de transfert gaz-liquide, $k_l a$, en fonction de l'énergie dissipée, E_d (voir équation 70) pour deux mousses (80PPI et 40PPI) et un lit de billes (Billes180).

sortie avec la même injection, ce qui a été prévu lors du développement du dispositif expérimental 2D.

En prenant en compte ces incertitudes expérimentales, le modèle $CSTR_4$ a pu être validé pour la représentation d'une DTS en écoulement multiphasique. Une optimisation globale a été développée visant à trouver une solution unique de combinaison des 4 paramètres du modèle afin d'en discuter leur sens physique. L'évolution de ces paramètres en réponse à un changement de condition d'écoulement (Q_L, Q_G, d_p) semble cohérente. Cependant l'indépendance de certains paramètres (J et K_{im}) à ces changements montre soit qu'ils sont gouvernés majoritairement par les effets du confinement de l'écoulement, soit qu'ils n'ont pas de sens physique.

Les valeurs de fraction liquide, ϵ_L, obtenues par l'étude de DTS ont ensuite été réutilisées pour la modélisation des pertes de charge dans chacun des milieux poreux. Un modèle multi-échelles, incluant un piégeage de gaz, est proposé pour améliorer le modèle de Darcy qui sous-estime les données de pertes de charge mesurées expérimentalement. Les bons résultats obtenus par cette modélisation ont mis en évidence que la prise en compte de l'échelle du pore peut améliorer les prédictions des lois purement macroscopiques.

Le couplage des données de saturation liquide, pertes de charge et coefficients de transfert gaz-liquide, $k_l a$, décrits dans la partie précédente, sont un très bon moyen de comparer l'efficacité énergétique des différents milieux testés. Cette dernière est quantifiée par la vitesse de dissipation de l'énergie, notée E_d, et définie par l'équation :

$$E_d = \frac{\nabla P \times u_L}{\epsilon_L} \ , \tag{70}$$

où ∇P est le gradient de pression, u_L la vitesse de la phase liquide et ϵ_L la fraction liquide. Les $k_l a$ de deux mousses (80PPI et 40PPI) et d'un lit de billes (Billes180) sont tracés en fonction de E_d, en figure 62. On observe que pour une même valeur de $k_l a$, la puissance dissipée pour générer l'écoulement dans un lit de billes est environ 10^3 fois supérieure à celle dissipée pour un écoulement dans une mousse solide.

L'efficacité de transfert gaz-liquide est donc très intéressante dans le cas des mousses solides. Cette géométrie innovante de réacteurs catalytiques est donc à considérer dans l'objectif de diminuer considérablement le coût énergétique d'un procédé, sans perdre en qualité de transfert gaz-liquide. Le remplacement d'un tel matériau est cependant très délicat. Son utilisation à grande échelle suppose donc de maîtriser la régénération du catalyseur *in situ* ou une désactivation du catalyseur suffisamment lente.

4

DÉSORGANISATION D'UN ÉCOULEMENT DE TAYLOR EN MILIEU POREUX - ÉTUDE LOCALE

Sommaire

4.1 Fraction liquide apparente **90**
4.1.1 Évolution de la fraction liquide au cours de la propagation 90
4.1.2 Comparaison entre valeur apparente et globale 90
4.1.3 Ergodicité du système 92
4.2 Régimes hydrodynamiques **92**
4.2.1 Régime de Taylor et régime modulé 92
4.2.2 Origine de la fréquence modulée 94
4.2.3 Stabilité de l'écoulement amont 97
4.3 Analyse dimensionelle **99**
4.3.1 Nombres sans dimension représentatifs du système 99
4.3.2 Nombre de Weber modifié 101
4.3.3 Nombre de Strouhal 101
4.4 Longueur critique de bulle **102**
4.4.1 Expression mathématique 102
4.4.2 Discussion sur le caractère prédictif 103
4.5 Modèle phénoménologique **104**
4.5.1 Formulation du modèle 105
4.5.2 Temps caractéristiques 107
4.5.3 Résultats 109
4.6 Conclusion sur l'hydrodynamique locale **111**

Articles

1. M. Serres, R. Philippe, V. Vidal, **Effet du milieu poreux sur la désorganisation d'un écoulement de Taylor dans un canal millifluidique**, *Compte-rendu de la 19e Rencontre du Non-Linéaire*, Non-Linéaire Publications, 109-114 (2016).
2. M. Serres, M.-L. Zanota, R. Philippe, V. Vidal, **On the stability of Taylor bubbles inside a confined highly porous medium**, *Int. J. Multiphase Flow* **85**, 157 – 163 (2016).
3. M. Serres, T. Maison, R. Philippe, V. Vidal, **A phenomenological model for bubble coalescence in confined highly porous media**, *submitted to Int. J. Multiphase Flow* (2017)

Encadrement de stage

1. T. Maison, *M*1 ENS de Lyon (co-encadré par Valérie Vidal), **Étude hydrodynamique d'un écoulement diphasique pulsé dans un milieu poreux confiné**, mai-juillet 2016

La conclusion du chapitre 3 montre l'intérêt des mousses solides pour diminuer les pertes de charge tout en conservant les propriétés classiques des lits fixes, représentés

dans ce travail par des lits de billes. La très haute porosité ainsi que l'ouverture des cellules des mousses permettent la visualisation de l'écoulement interne au milieu poreux, comme décrit en section 2.3. Afin de mieux comprendre l'hydrodynamique de ces écoulements, ce chapitre se concentre sur l'évolution temporelle de la fraction liquide apparente, ϵ_L^* (équation 37), acquise par visualisation à la paroi de plusieurs écoulements gaz-liquide [ethanol-air] à l'intérieur des mousses 80PPI et 40PPI dans le canal millifluidique (dispositif expérimental 1D, figure 20).

La fréquence principale issue des signaux de $\epsilon_L^*(t)$ est extraite pour l'écoulement de Taylor en amont du milieu poreux et est notée f_T. La caractérisation de l'hydrodynamique locale est centrée sur l'analyse de sa valeur au cours de la propagation de l'écoulement à l'intérieur du milieu poreux où elle est notée f_0.

4.1 FRACTION LIQUIDE APPARENTE

L'évolution de la fraction liquide apparente le long du milieu ainsi que la validation quantitative de son estimation sont deux aspects présentés dans cette partie qui ont fait l'objet d'une étude particulière. En effet, afin d'avoir suffisamment de points pour quantifier l'évolution spatiale de la fraction liquide, cette étude est menée sur neuf zones de visualisation en amont et à l'intérieur du milieu poreux au lieu des trois zones décrites dans le chapitre 2 (zones II, III, IV, voir figure 20c) et utilisées pour tout le reste du chapitre. En effectuant la moyenne spatiale des moyennes temporelles de fraction liquide apparente, cette approche locale donne accès à une valeur globale de la fraction liquide apparente dans le milieu poreux, que l'on peut comparer aux estimations effectuées par la DTS (chapitre 3). Cependant, la visualisation d'un objet 3D projeté sur un plan peut amener un biais sur la mesure de la fraction liquide. Pour cette raison, elle est qualifiée de "fraction liquide apparente" et elle est notée ϵ_L^* (équation 37) afin de la différencier des mesures quantitatives de la DTS.

4.1.1 *Évolution de la fraction liquide au cours de la propagation*

La figure 63a représente l'évolution temporelle de la fraction liquide apparente, $\epsilon_L^*(t)$, pour quatre des neuf zones observées. La valeur moyenne de fraction liquide dans le temps est calculée pour chaque zone et est reportée sur la figure 63b en fonction de la distance d le long du milieu poreux. L'origine, $d = 0$, est fixée à l'entrée du milieu poreux.

Quel que soit le débit, la fraction liquide augmente systématiquement en entrant dans le milieu poreux. Lors de la propagation le long du milieu poreux, elle oscille autour d'une valeur moyenne selon les zones de visualisation. On observe que la valeur moyenne, $< \epsilon_L^* >$, augmente avec l'augmentation du rapport Q_G/Q_L, ainsi que l'amplitude des oscillations de ϵ_L^*.

4.1.2 *Comparaison entre valeur apparente et globale*

Pour tester leur valeur quantitative, les valeurs globales de fraction liquide apparente, $\ll \epsilon_L^* \gg$, ont été comparées à celles obtenues par DTS, notées ϵ_L, sur la figure 64.

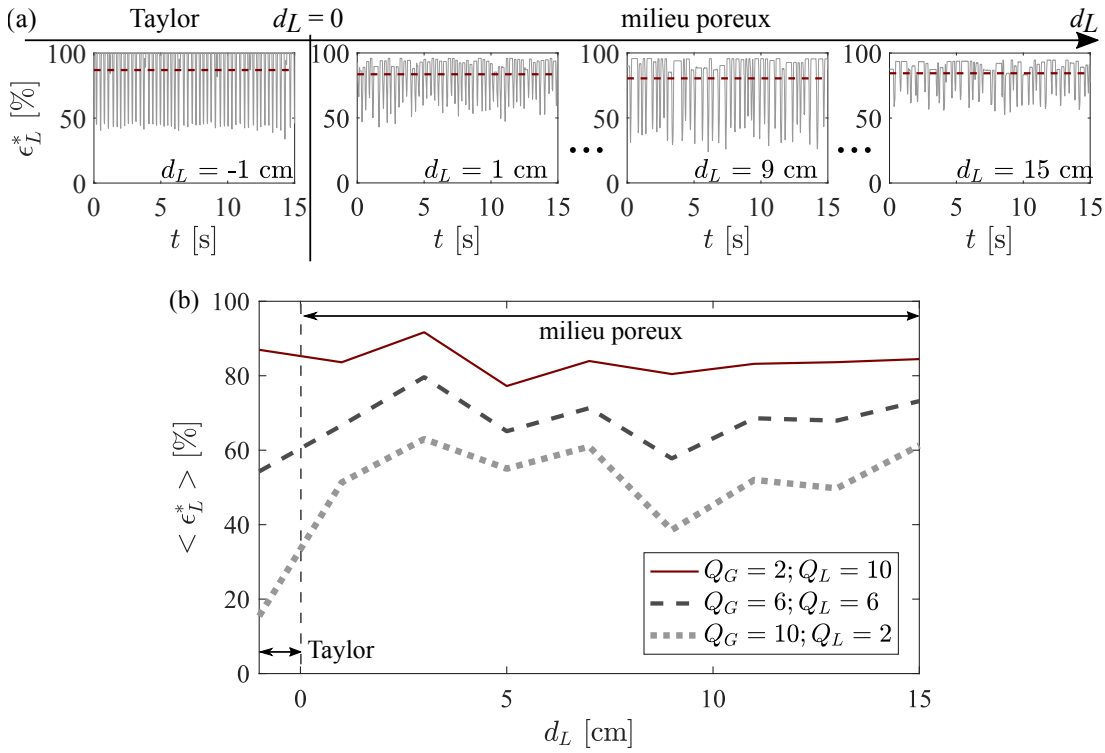

FIGURE 63 – (a) Évolution (trait plein) et valeur moyenne (trait pointillé) de la fraction liquide apparente, ϵ_L^*, tracée en fonction du temps, t, en amont (Taylor) et le long du milieu poreux (mousse 80 PPI). (b) Évolution spatiale de la fraction liquide moyenne le long du milieu poreux ($d_L = 0$: entrée du milieu poreux) pour différents jeux de débits (Q_G et Q_L indiqués en mL.min^{-1}).

La dispersion des points sur le diagramme de parité est inférieure à 20%, ce qui valide l'aspect quantitatif des mesures de fraction liquide par visualisation directe dans des matériaux à porosité ouverte. Cet aspect est très intéressant pour palier à la

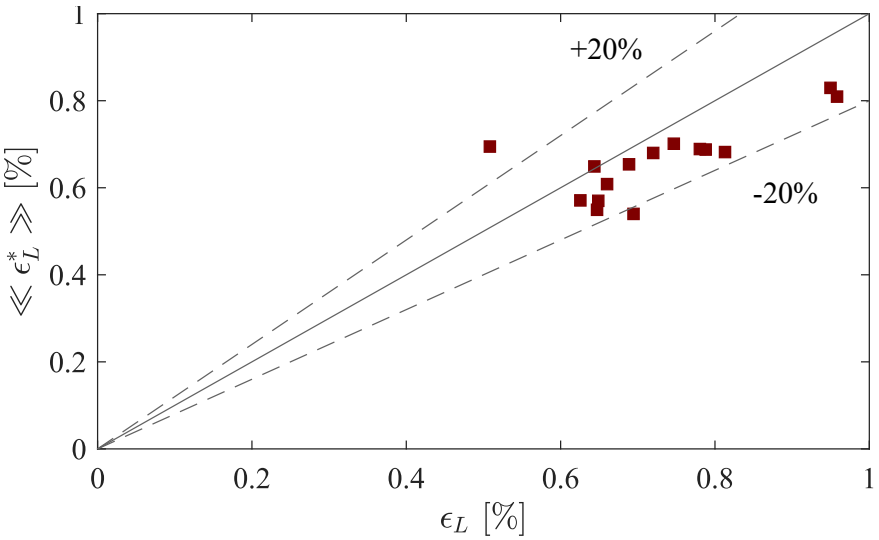

FIGURE 64 – Diagramme de parité comparant les valeurs globales de la fraction liquide estimées par DTS, ϵ_L, et par visualisation directe de l'écoulement, $\ll \epsilon_L^* \gg$.

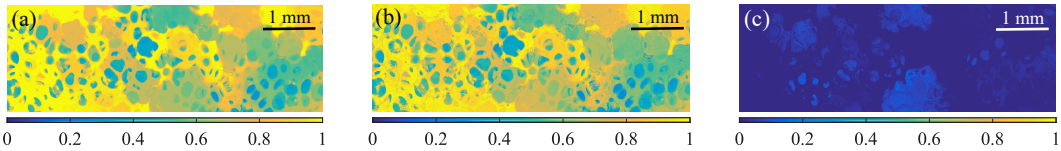

FIGURE 65 – Cartes de probabilité de passage de la phase liquide acquise par visualisation directe : (a) en départ immergée et (b) en départ sec. (c) Répartition des résidus de $|(a) - (b)|$ ($Q_G = Q_L = 6$ mL.min^{-1}, zone III, mousse 80PPI).

DTS, dans les cas où le passage de la phase liquide est trop rapide pour déterminer, de manière fiable, le temps de séjour de la phase liquide, $\tilde{t}$ (chapitre 3). L'estimation de la fraction liquide apparente évite toute perturbation de l'écoulement liée à l'injection de traceur. Cependant, cette méthode n'est pas directement applicaples à des lits de billes denses, qui nécessiteraient la mise en place d'expériences par adaptation d'indices optiques, plus difficiles à mettre en place.

4.1.3 *Ergodicité du système*

Dans un écoulement non confiné (lit fixe conventionnel, écoulement 2D et 3D), les conditions initiales du milieu poreux (départ en milieu immergé, départ en milieu sec) ont une influence sur la valeur de la fraction liquide et sur sa répartition. On se propose donc de tester différentes conditions initiales afin d'analyser leur influence sur la répartition des phases dans le milieu poreux. Pour un jeu de débit donné [$Q_G = Q_L = 6$ mL.min^{-1}], la répartition de la phase liquide est analysée pour les conditions initiales suivantes :

— départ sec en écoulement monophasique gazeux
— départ immergé en écoulement monophasique liquide.

Les cartes de répartition de la phase liquide pour ces deux conditions sont reportées en figure 65. La figure 65a est la carte de probabilité de passage de la phase liquide en départ immergé, la figure 65b en départ sec et la figure 65c les résidus de la différence entre la répartition de la phase liquide en départ immergé ou sec (acquisition des cartes de probabilités détaillée dans le chapitre 2).

Les valeurs très faibles des résidus assurent l'hypothèse d'ergodicité du système et et la reproductibilité des signaux $\epsilon_L^*(t)$ qui sont la base de toute l'étude développée dans ce chapitre.

4.2 RÉGIMES HYDRODYNAMIQUES

Dans la suite du manuscrit, les zones de visualisation sont les quatre zones (amont (zone I), entrée (zone II), milieu (zone III) et sortie (zone IV) du milieu poreux) présentées dans le chapitre 2 (figure 20c).

4.2.1 *Régime de Taylor et régime modulé*

L'évolution temporelle de la fraction liquide apparente permet d'enregistrer la périodicité de l'écoulement de Taylor généré en amont du milieu poreux. Afin d'en

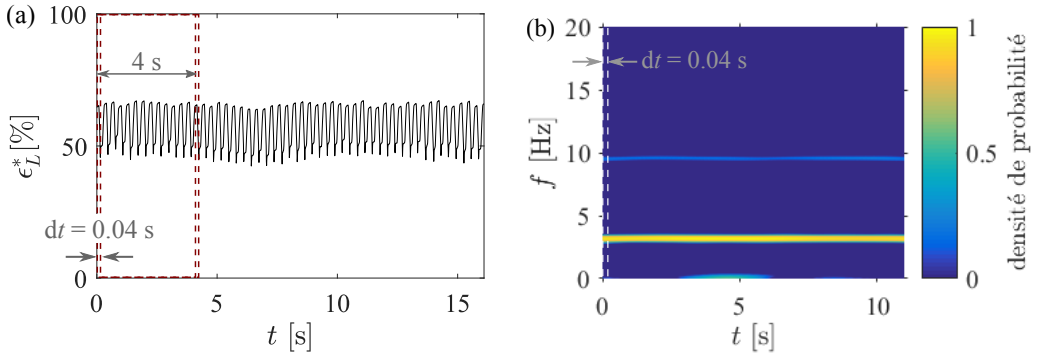

FIGURE 66 – (a) Fraction liquide apparente, ϵ_L^*, représentée en fonction du temps, t. (b) Diagramme temps-fréquence correspondant ($Q_G = 2$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}, 80PPI, zone I).

extraire les caractéristiques, sa fréquence principale est calculée par l'algorithme de transformée de Fourier rapide (FFT) [1]. Pour une meilleure lisibilité et pour discuter de la stationnarité de ces signaux, la présentation des résultats est proposée sous la forme d'un diagramme temps-fréquence.

Sur la figure 66a, la fraction liquide apparente, ϵ_L^*, est tracée en fonction du temps. Cette représentation permet de faire sortir clairement la pulsation régulière en amont du milieu poreux (zone I, figure 20c) liée au passage des bulles de l'écoulement de Taylor. L'évolution temporelle de la transformée de Fourier du signal $\epsilon_L^*(t)$ est ensuite représentée sous la forme d'un diagramme temps-fréquence pour en extraire les caractéristiques (fréquence principale, stationnarité).

Afin de construire le diagramme temps-fréquence, une fenêtre temporelle est définie. Pour nos expériences, elle est fixée à 4 s et est représentée par le cadre en pointillés sur la figure 66a. La transformée de Fourier du signal incluse dans cette fenêtre est reportée sur la première colonne du diagramme temps-fréquence illustré en figure 66b. Cette fenêtre est ensuite décalée d'un pas de temps $dt = 0.04$ s dans nos expériences, puis le spectre de Fourier de la nouvelle fenêtre temporelle forme la deuxième colonne du diagramme temps-fréquence. La fenêtre est ainsi décalée jusqu'à la fin du signal $\epsilon_L^*(t)$ construisant ainsi la totalité du diagramme temps-fréquence. L'abscisse du diagramme temps fréquence représente le temps [2], l'ordonnée les fréquences et l'échelle de couleurs leur densité de probabilité.

Ce diagramme temps-fréquence permet de faire ressortir clairement la fréquence principale (ligne jaune, figure 66b) et les fréquences secondaires (ligne bleue, figure 66b) qui peuvent être des harmoniques, du bruit, ou la fréquence d'un autre mécanisme périodique, comme observé par la suite. Sur la figure 66b, par exemple, la fréquence secondaire qui ressort ($f = 9.6$ Hz) est une harmonique de la fréquence principale, $f_0 = 3.2$ Hz.

Cette étude fréquentielle est effectuée sur l'ensemble des données expérimentales, et sur les quatre zones de visualisation présentées en figure 20c. Sur la figure 67 deux exemples de diagrammes temps-fréquence sont donnés pour un écoulement de Taylor en amont (zone I) et le long du milieu poreux (zones II, III et IV). En amont du

1. Fast Fourier Transform : algorithme proposé par le logiciel Matlab (Mathworks®)
2. Noter que les axes temporels ont été limités à 11 s dans les deux représentations ($\epsilon_L^*(t)$ et $f(t)$) pour une question d'homogénéité de représentation sur l'ensemble des résultats expérimentaux.

milieu poreux, l'écoulement de Taylor est stable dans le temps et le signal n'est pas bruité (fréquence principale f_T stable). Lorsqu'il se propage dans le milieu poreux, le signal se déstabilise. Cette déstabilisation se caractérise différemment pour les deux cas illustrés.

Sur les figures 67a et 68a, on observe que la fréquence principale, f_0, à l'entrée du milieu poreux (zone II) est très proche de celle de l'écoulement de Taylor, f_T, en amont (zone I). Lors de sa propagation, f_0 diminue progressivement en passant d'une valeur de $f_0 = 3.2$ Hz (zone I) à $f_0 = 1.9$ Hz (zone IV). Sur les figures 67b et 68b, on observe que la fréquence principale en zone II, à l'entrée du milieu poreux, est plus basse que celle de l'écoulement de Taylor, f_T, imposée en amont, qui devient alors secondaire. En effet, sur la figure 67b, la trace de la fréquence de Taylor, supérieure à la fréquence principale de la zone II, est toujours visible, mais son intensité a sensiblement diminué. Le signal temporel correspondant, $\epsilon_L^*(t)$, est alors modulé (figure 68b).

L'ensemble des données expérimentales peut être classé selon les deux comportements suivants, qui ont donc été définis comme deux régimes hydrodynamiques :

— le "régime pseudo-Taylor"' : $f_0 = f_T$ (exemple correspondant aux figures 67a et 68a)
— le "régime modulé" : $f_0 \ll f_T$ (exemple correspondant aux figures 67b et 68b).

4.2.2 *Origine de la fréquence modulée*

Dans l'objectif de comprendre la provenance de la fréquence modulée, $f_0 \ll f_T$, caractéristique du second régime, une étude de mouvement d'interfaces a été développée. Cela consiste, comme décrit en section 2.3, à quantifier le déplacement de l'interface gaz-liquide. Pour ce faire, une binarisation est effectuée sur la différence

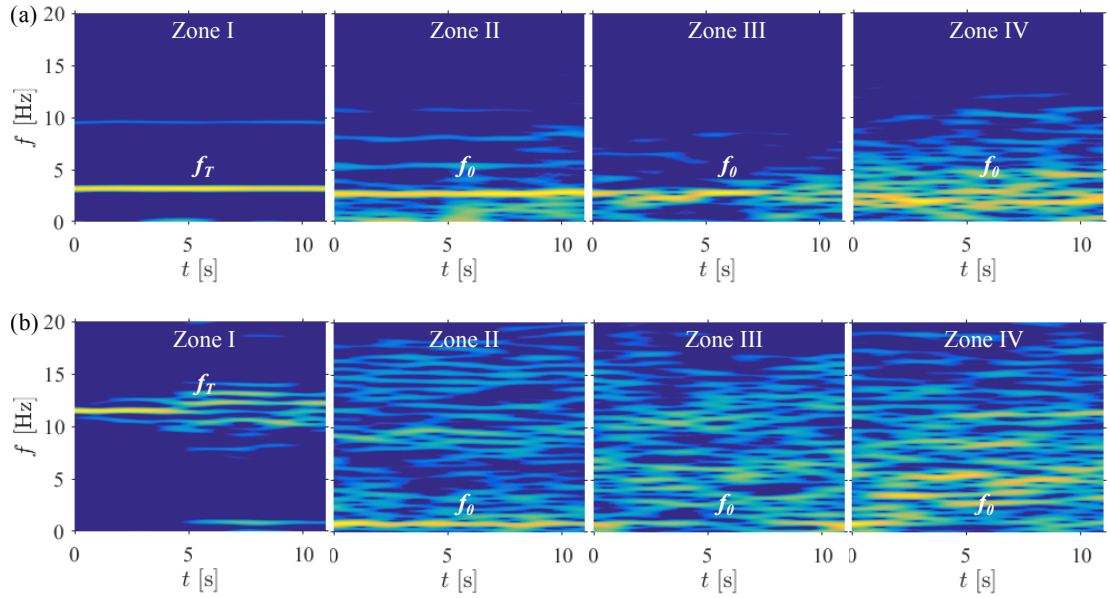

FIGURE 67 – Diagrammes temps-fréquence : (a) régime de Taylor ($Q_G = 2$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}), (b) régime modulé ($Q_G = 14$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}) [mousse 80PPI].

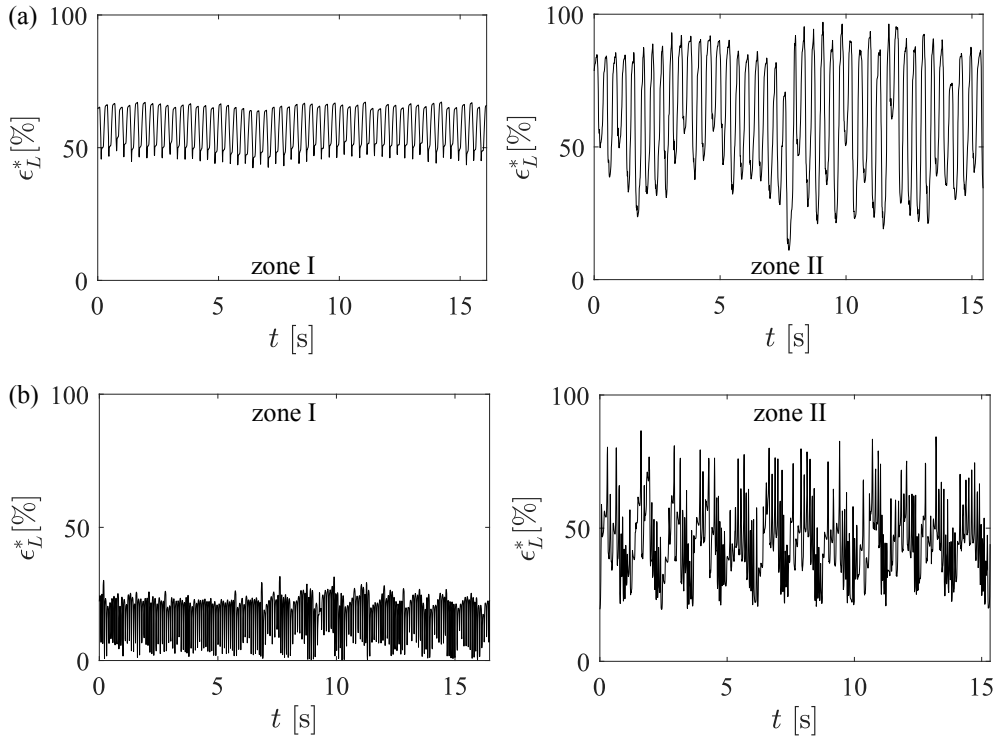

FIGURE 68 – Signaux de rétention liquide apparente, ϵ_L^*, en fonction du temps, t : (a) régime de Taylor ($Q_G = 2$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}), (b) régime modulé ($Q_G = 14$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}) [mousse 80PPI].

entre deux images successives d'un film de visualisation directe de l'écoulement. Un exemple est présenté en figure 69a. Les zones jaunes représentent les endroits où l'interface gaz-liquide s'est déplacée, les zones bleues, les endroits où aucun mouvement n'a été détecté.

L'outil choisi pour représenter la dynamique de mouvement de l'interface gaz-liquide dans le temps est un diagramme espace-temps, permettant de représenter les évolutions spatio-temporelles de l'interface. Étant donné que les bulles se propagent selon l'axe x, correspondant à la direction de l'écoulement principal (figure 20), c'est la direction où le mouvement d'interface est susceptible d'être le plus grand. On choisit donc de sommer la différence binarisée sur l'axe y afin d'obtenir un vecteur correspondant à la moyenne de toutes les lignes. Ce dernier est ensuite reporté dans un diagramme spatio-temporel (x,t) représenté en figure 69b. Les bandes les plus claires correspondent aux mouvements les plus importants des interfaces gaz-liquide, et les bandes les plus foncées, aux mouvements les plus faibles.

Comme observé sur les signaux de fraction liquide en régime modulé, deux fréquences sont mises en évidence (figure 69b) :

— une fréquence rapide lors des mouvements importants d'interface
— une fréquence plus faible qui correspond à l'alternance entre les phases statiques et les phases de mouvement.

Ce diagramme spatio-temporel peut être tracé conjointement avec le diagramme d'évolution temporelle de la fraction liquide pour un exemple d'écoulement en régime modulé (figure 70). Cette analyse couplée permet d'identifier la basse fréquence

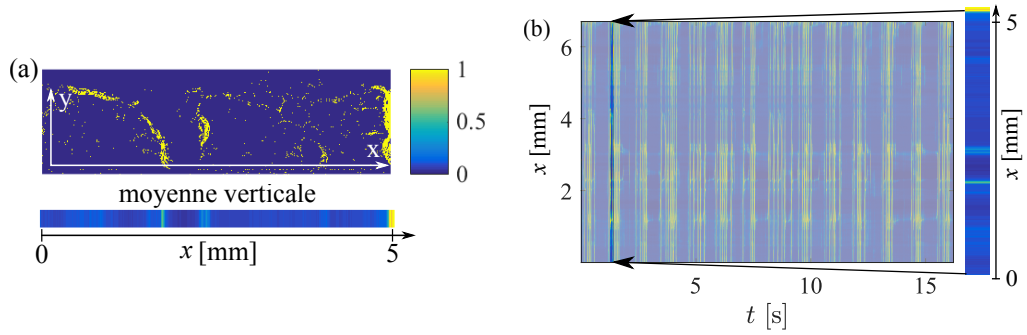

FIGURE 69 – (a) Différence binarisée de deux images successives à $t = 1.8$ s, barre horizontale : moyenne verticale correspondante [zone III, mousse 80PPI, $Q_G = 14$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}]. (b) Schéma de construction du diagramme espace-temps correspondant.

du régime modulé comme la fréquence d'alternance entre les phases de mouvement d'interfaces gaz-liquide et les phases statiques.

Des films d'écoulements en régime modulé ont été acquis par une caméra plus rapide[3] afin de visualiser les mouvements de l'interface gaz-liquide en régime modulé. Il a ainsi été vérifié que les phases mobiles correspondent à la propagation de bulles successives (écoulement de Taylor, séquence d'images, figure 71a) et les phases statiques ont été identifiées à la formation d'un canal de gaz continu résultant d'une coalescence des bulles de Taylor à l'intérieur du milieu poreux (séquence d'images, figure 71b). Les images présentées en figure 71 illustrent la déformation des bulles de Taylor à l'intérieur du milieu poreux. Le degré de confinement est augmenté, ce qui réduit leur diamètre à celui des cellules de la mousse et les déforment en un canal tortueux qui se propage dans les 3 dimensions. Cette déformation des bulles de Taylor a déjà été observée et commentée par TOURVIEILLE et al. [42].

3. Optronis CR 600 × 2, 1000 fps

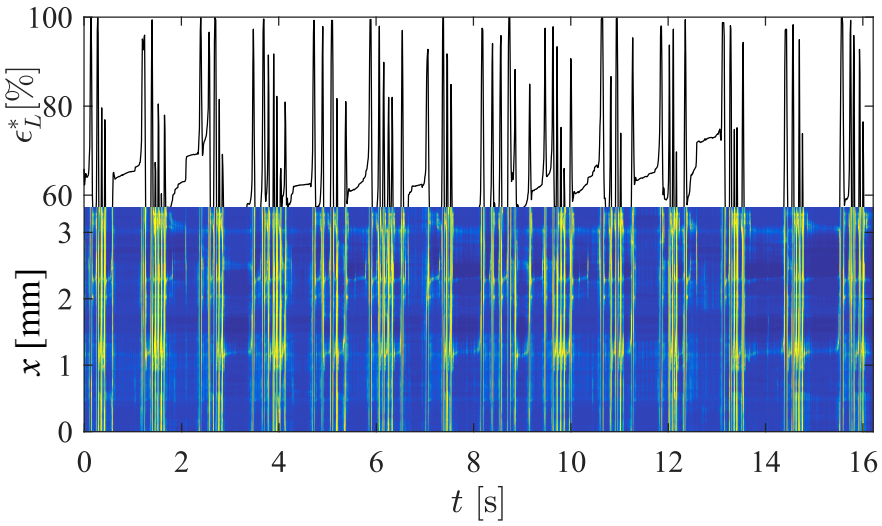

FIGURE 70 – Superposition de $\epsilon_L^*(t)$ et du diagramme espace-temps [$Q_G = 14$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}, 80PPI, Zone III].

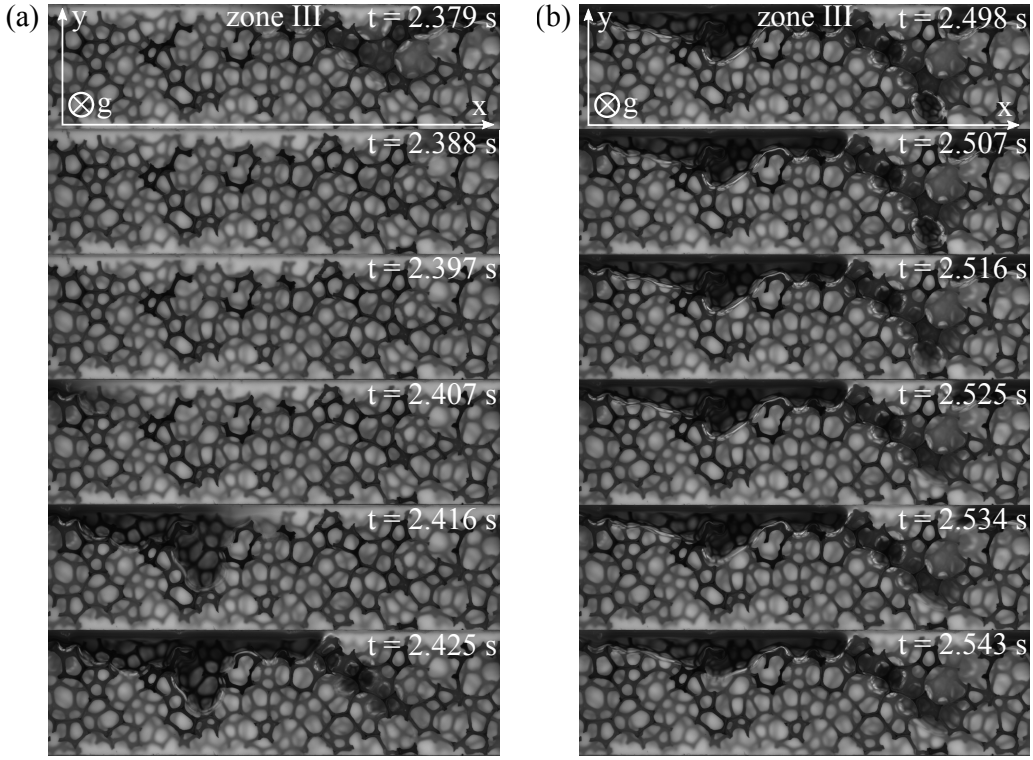

FIGURE 71 – Séquences d'images montrant une phase mobile de l'écoulement modulé (a) et une phase statique avec la formation d'un canal de gaz (b) [$Q_G = 14$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}, 80PPI, zone III].

Le canal ainsi constitué est instable et se fragmente pour reformer un train de bulles qui coalescent de nouveau. Ce phénomène se rapproche de la transition "Taylor flow"/"churn flow" en canal vide présentée dans le chapitre 1. L'ajout d'un milieu poreux modifiant considérablement l'hydrodynamique, la transition entre ces deux régimes est étudiée et caractérisée dans les parties suivantes après s'être assurée de son origine par une analyse de la stabilité de l'écoulement en amont du milieu poreux sur les deux régimes.

4.2.3 *Stabilité de l'écoulement amont*

L'objectif est de montrer, par des analyses complémentaires aux résultats expérimentaux, que les deux régimes décrits dans cette section sont bien le résultat d'un effet de propagation à l'intérieur du milieu poreux. Pour ce faire, la fréquence de Taylor, f_T, est mesurée dans plusieurs conditions :

— en canal vide (fréquence de référence)
— en amont du milieu poreux en régime de Taylor
— en amont du milieu poreux en régime modulé.

Par ailleurs, la fréquence théorique de la périodicité de l'écoulement de Taylor est définie comme :

$$f_{th} = \frac{u_{TP}}{\lambda_{th}} \tag{71}$$

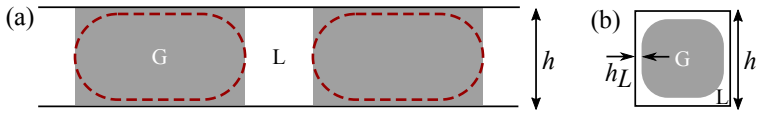

FIGURE 72 – (a) Schéma simplifié d'un écoulement de Taylor, les bulles réelles sont représentées en pointillés et les carrés gris représentent l'approximation faite pour l'estimation de λ_{th}. (b) Schéma représentatif d'une section du canal millifluidique lors du passage d'une bulle avec h la hauteur du canal et h_L l'épaisseur du film liquide.

avec $u_{TP} = (Q_G + Q_L)/h^2$, la vitesse superficielle totale de l'écoulement gaz-liquide, et λ_{th} la longueur d'onde de la périodicité de l'écoulement de Taylor estimée théoriquement par la relation :

$$\lambda_{th} \simeq l_b \left(1 + \frac{Q_L}{Q_G}\right) \tag{72}$$

Cette estimation est basée sur une représentation de l'écoulement de Taylor comme un train de bulles rectangulaires occupant la partie entière du canal. Cette simplification est illustrée sur la figure 72a par la forme des bulles réelles (lignes pointillées) superposée aux rectangles gris où la fraction de volume liquide dans la section occupée par du gaz est négligée. Cette fraction de liquide, notée W, est estimée par LECLERC et al. [59] selon l'équation :

$$W = \frac{4h_L}{h}\left(1 - \frac{h_L}{h}\right) + \frac{4-\pi}{h^2}\left(\frac{h}{4} - \frac{h_L}{2}\right)^2 , \tag{73}$$

où h est la hauteur du canal et h_L l'épaisseur du film liquide loin des angles, pour un canal à section carrée, et loin des ménisques des bulles (figure 72b).

L'épaisseur des films liquide, h_L, est proposée par AUSSILLOUS et QUÉRÉ [55] et reprise par ROUDET [114] selon l'équation :

$$\frac{h_L}{h} \simeq \frac{Ca_{TP}^{2/3}}{1 + Ca_{TP}^{2/3}} , \tag{74}$$

où $Ca_{TP} = u_{TP}\mu_L/\sigma_L$ avec u_{TP} la vitesse de la bulle, μ_L la viscosité de la phase liquide et σ_L la tension de surface (table 4). Dans nos conditions expérimentales, $5.4 \times 10^{-4} < Ca_{TP} < 9.7 \times 10^{-3}$, ce qui conduit à des valeurs de W comprises entre $0.07 < W < 0.2$.

Dans la littérature, la longueur des bulles, l_b, d'un écoulement de Taylor en canal millifluidique est décrite par une dépendance linéaire avec le rapport des débits Q_G/Q_L, tel que [56, 59, 115, 116] :

$$\frac{l_b}{h} = \alpha_{lb}\frac{Q_G}{Q_L} + \beta_{lb} \tag{75}$$

où h est la hauteur du canal et α_{lb} et β_{lb} des coefficients empiriques dépendant des fluides et des géométries du canal et de l'injecteur. Pour l'écoulement de Taylor généré dans le canal millifluidique, les longueurs de bulles ont été mesurées expérimentalement. La description de ces mesures ainsi qu'une discussion sur l'effet du

milieu poreux sur les valeurs des coefficients α_{lb} et β_{lb} est présentée en annexe E [4]. Pour le reste de l'étude, les valeurs des coefficients retenues sont celles acquises en canal vide, où $\alpha_{lb} = 0.4$ et $\beta_{lb} = 1$. Ces valeurs sont proches de celles trouvées dans la littérature pour des conditions d'écoulement similaires [56]. En remplaçant l_b par l'équation 75 on obtient :

$$f_{th} = \frac{Q_G + Q_L}{h^3 \left[(\alpha_{lb} + \beta_{lb}) + \alpha_{lb} \frac{Q_G}{Q_L} + \beta_{lb} \frac{Q_G}{Q_L} \right]} \tag{76}$$

L'estimation théorique de la longueur d'onde λ_{th} (équation 72) est comparée aux mesures expérimentales, λ, sur le diagramme de parité présenté en figure 73a. L'erreur de prédiction de λ_{th} est inférieure à 15% dans la majorité des cas. L'objectif de la définition de f_{th} étant uniquement la validation de la provenance du changement de régime, $W < 0.2$ est une condition suffisante pour négliger la présence des films liquide en première estimation.

De plus, sur la figure 73b, les valeurs de f_{th} sont tracées en fonction des valeurs de f_T mesurées en canal vide et avec un milieu poreux. Tous les points s'alignent à $\pm 20\%$ sur la droite de parité. Dans un premier temps, l'alignement des points expérimentaux mesurés en canal vide avec les valeurs de f_{th} estimées théoriquement valide la corrélation.

Ensuite, l'alignement des points expérimentaux en présence d'un milieu poreux avec f_{th} confirme que la fréquence de Taylor, f_T mesurée en amont du milieu poreux est stable quel que soit le régime hydrodynamique de l'écoulement en aval. Cela permet de conclure de manière robuste que la coalescence des bulles en régime modulé est bien issue d'un mécanisme interne au milieu poreux et ne provient pas d'un phénomène présent dans l'écoulement de Taylor, en amont du milieu poreux.

4.3 ANALYSE DIMENSIONELLE

4.3.1 *Nombres sans dimension représentatifs du système*

En canal vide, le nombre adimentionnel caractéristique de la formation d'un écoulement de Taylor est souvent décrit comme étant le rapport des nombres de Reynolds de chacune des phases [43, 116]

$$\frac{Re_G}{Re_L} = \left(\frac{\rho_G \mu_L}{\rho_L \mu_G} \right) \frac{Q_G}{Q_L} \, , \tag{77}$$

où $Re_G = \rho_G Q_G / h \mu_G$ et $Re_L = \rho_L Q_L / h \mu_L$ comparent les forces inertielles aux forces visqueuses de chacune des phases, avec $Q_i / h^2 = u_i$ la vitesse superficielle, μ_i la viscosité et ρ_i la masse volumique de la phase $i = G, L$ (table 4). Ensuite, lors de sa propagation en canal vide, l'écoulement de Taylor est plus souvent caractérisé par le nombre de Reynolds biphasique, $Re_{TP} = \rho_L (Q_G + Q_L) / h \mu_L$ ou le nombre capillaire biphasique, $Ca_{TP} = (Q_G + Q_L) \mu_L / h^2 \sigma_L$ (voir chapitre 1).

4. Dans l'étude publiée, SERRES et al. [117], les valeurs des coefficients $\alpha_{lb} = 1$ et $\beta_{lb} = 0$ sont fixées en première approximation dans l'objectif de proposer une loi d'échelle très simplifiée, décrite dans la section 4.3. C'est après une étude plus précise de ces coefficients réalisée *a posteriori* en canal vide et présentée en annexe E que les valeurs définitive de $\alpha_{lb} = 0.4$ et $\beta_{lb} = 1$ ont été déterminées.

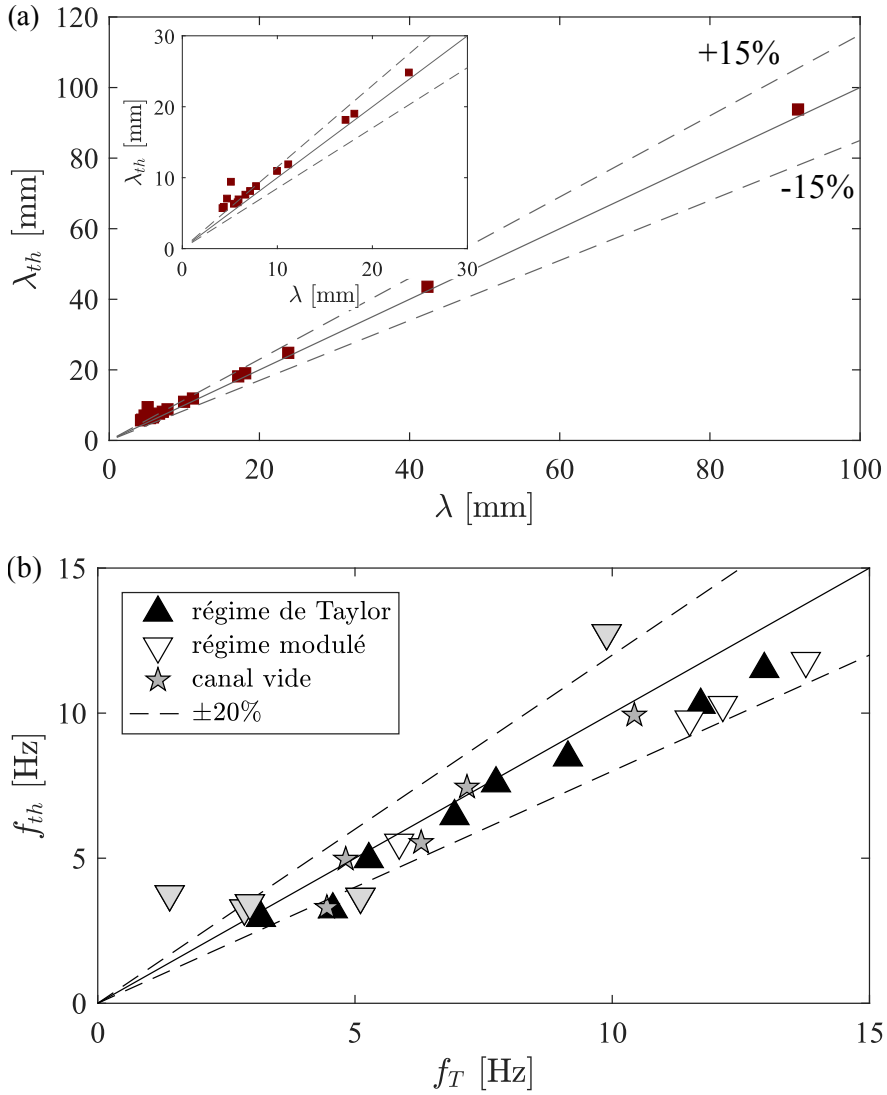

FIGURE 73 – (a) Diagramme de parité comparant la longueur d'onde λ_{th} estimée par l'équation 72 à la longueur d'onde λ mesurée expérimentalement [mousse 80PPI]. (b) Valeurs théoriques de la fréquence de Taylor, f_{th}, tracées en fonction des fréquences de Taylor mesurées, f_T en canal vide et avec un milieu poreux.

Dans notre cas, la propagation de l'écoulement de Taylor n'a pas lieu dans un canal vide mais dans un milieu poreux. Dans un premier temps, l'entrée d'une bulle dans le milieu poreux est modélisée de manière simple en considérant une restriction de la section de passage correspondant au diamètre d'un pore (figure 74). Les forces en jeu lors de l'entrée de la bulle dans le milieu poreux sont les forces inertielles qui

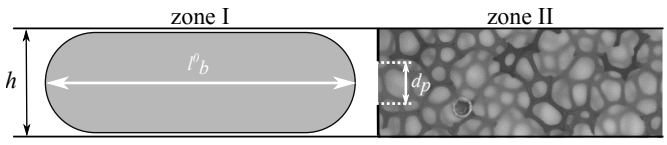

FIGURE 74 – Schéma simplifié d'une bulle à l'entrée du milieu poreux, avec l_b la longueur de bulle, d_p le diamètre d'un pore et h la largeur du canal.

Mousse	n_p [-]	s_p [mm^2]
40PPI	7 ± 3	0.084 ± 0.048
80PPI	5 ± 2	0.080 ± 0.044

TABLE 8 – Nombre de pores dans une section du canal perpendiculaire çà l'écoulement, n_p et section moyenne d'un pore, s_p déterminées par les données de tomographie à rayons X (voir annexe A) pour les mousses 80PPI et 40PPI.

la poussent et la tension de surface qui oppose une résistance à sa déformation. Cet équilibre est représenté par le nombre de Weber diphasique, We_{TP}

$$We_{TP} = \frac{\rho_L \left(Q_G + Q_L\right)^2 d_p}{\left(n_p s_p\right)^2 \sigma_L} \tag{78}$$

souvent décrit comme un paramètre de contrôle dans les problèmes de fragmentation de bulles ou de gouttes à travers un orifice [118–120], où $(Q_G + Q_L)/h^2$ est une valeur approchée de la vitesse des bulles à l'entrée dans l'orifice [43], d_p est le diamètre d'un pore (voir table 5), s_p la section d'un pore et n_p le nombre de pores présents dans la section du canal perpendiculaire à l'écoulement, dont l'épaisseur est celle d'un brin de mousse. Les valeurs de n_p et s_p présentées en table 8 sont déterminées par l'analyse des données de tomographie à rayon X détaillée en annexe A.

4.3.2 *Nombre de Weber modifié*

Afin de prendre en compte à la fois les caractéristiques de la formation de l'écoulement de Taylor en amont du milieu poreux et l'entrée des bulles dans le milieu poreux, on introduit le nombre de Weber modifié [121]

$$We^{'} = \frac{Re_G}{Re_L} We_{TP} \ . \tag{79}$$

L'expression développée de $We^{'}$ dépend des caractéristiques du milieu poreux et des débits imposés :

$$We^{'} = \left(\frac{\rho_G}{\sigma_L}\right)\left(\frac{\mu_L}{\mu_G}\right)\left(\frac{Q_G}{Q_L}\right)\left(\frac{Q_G + Q_L}{n_p s_p}\right)^2 d_p \ . \tag{80}$$

4.3.3 *Nombre de Strouhal*

Le nombre de Weber modifié, $We^{'}$, caractérise les conditions d'écoulement dans le milieu poreux. Le changement de régime entre le régime pseudo-Taylor et le régime modulé a été identifié en terme de fréquence. Un des nombres sans dimension classiques associés aux fréquences est le nombre de Strouhal. Ce dernier compare une fréquence à une vitesse divisée par une longueur d'onde caractéristique du système. Dans le cadre de ce travail, la vitesse caractéristique est $u_{TP} = (Q_G + Q_L)/h^2$, la vitesse des bulles, et la longueur d'onde est $\lambda = l_s + l_b$, la somme d'une longueur de

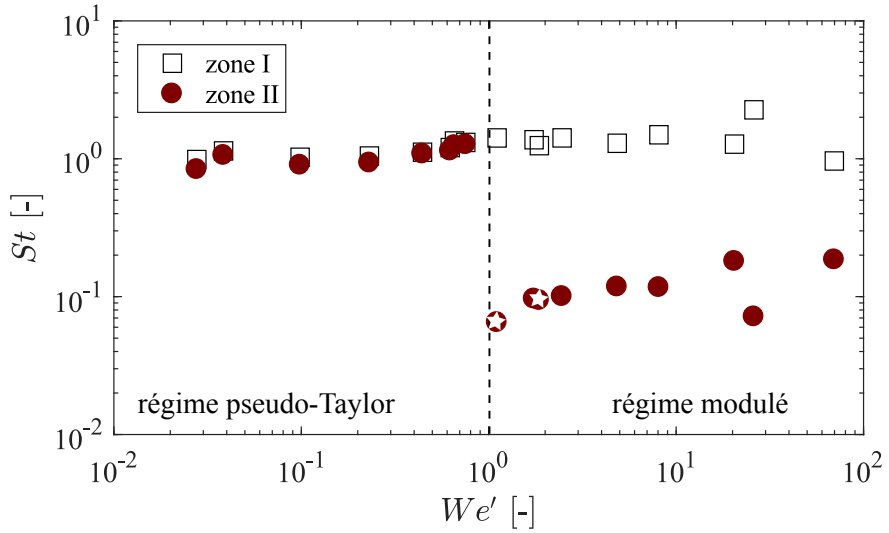

FIGURE 75 – Nombre de Strouhal, St, exprimé en fonction du nombre de Weber modifié, $We^{'}$. □, écoulement de Taylor amont, •, écoulement à l'entrée du milieu poreux. La ligne pointillée indique le changement de régime, les ⋆ repèrent des points $[Q_G = 10\ ;\ Q_L = 1]$, $[Q_G = 10\ ;\ Q_L = 2]$ mL.min.$^{-1}$ par rapport à la transition entre le régime pseudo Taylor et le régime modulé discutés en section 4.5.3.

slug liquide, l_s et d'une longueur de bulle l_b en amont du milieu poreux. Le nombre de Strouhal est noté St est défini par :

$$St = \frac{f_0}{\left[\left(Q_G + Q_L\right)/h^2\right]/\lambda} \ . \tag{81}$$

Les valeurs des nombres de Strouhal, St, et de Weber modifié, $We^{'}$, ont été calculées pour tous les points expérimentaux et reportées sur la figure 75. La transition entre le régime de Taylor et le régime modulé apparaît clairement, avec une limite entre les deux régimes pour $We^{'} = 1$. Lorsque $We^{'} < 1$, les valeurs de St en amont du milieu poreux sont identiques à celles à l'intérieur du milieu poreux. Lorsque $We^{'} > 1$, les valeurs de St dans le milieu poreux (zone II) sont inférieures à celles de l'écoulement de Taylor en zone I, ce qui met en évidence le changement de fréquence principale et le passage dans le régime modulé. Le nombre de Weber modifié, $We^{'}$, contrôle donc bien la transition entre le régime modulé et le régime de Taylor.

4.4 LONGUEUR CRITIQUE DE BULLE

4.4.1 *Expression mathématique*

Comme décrit en section 4.2.3, il est possible d'exprimer la longueur des bulles de l'écoulement de Taylor amont, l_b, en fonction du ratio des débits Q_G/Q_L (équation 85). En remplaçant Q_G/Q_L par son expression en fonction de l_b dans l'équation de $We^{'}$ (équation 79), on trouve :

$$We^{'} = \left(\frac{\rho_G}{\sigma_L}\right)\left(\frac{\mu_L}{\mu_G}\right)\left(\frac{1}{\alpha_{lb}}\left[\frac{l_b}{h} - \beta_{lb}\right]\right)\left(\frac{Q_G + Q_L}{n_p s_p}\right)^2 d_p \ . \tag{82}$$

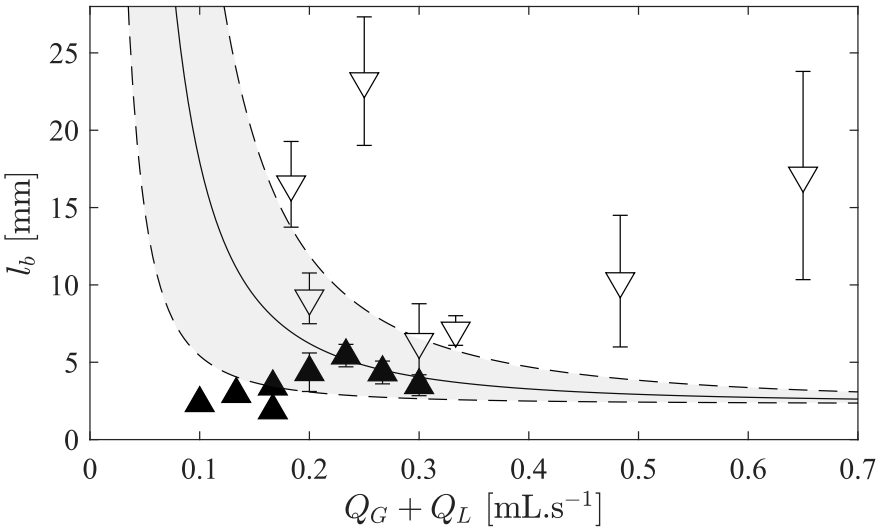

FIGURE 76 – Longueur de bulles, l_b, dans l'écoulement de Taylor amont tracée en fonction de $Q_G + Q_L$, mousse 80PPI (▲ : mesures de bulles en régime de Taylor, ▽ : mesures de bulles en régime modulé). La ligne continue représente la longueur critique de bulle, l_b^*, prédite par l' équation 83 et la région en gris clair, la variation dans la prédiction de l_b^* due à l'erreur sur l'estimation de la morphologie des pores (table 8).

Il est alors possible d'extraire la valeur de la longueur de bulle critique l_b^* à partir de laquelle l'écoulement passe du régime de Taylor au régime modulé. La transition a lieu pour $We' = We'^*$ (avec $We'^* = 1$ dans notre cas), ce qui donne l'expression de l_b^* suivante :

$$l_b^* = \left[We'^* \left(\frac{\sigma_L \mu_G}{\rho_G \mu_L} \right) \left(\frac{n_p s_p}{Q_G + Q_L} \right)^2 \left(\frac{\alpha_{lb} h}{d_p} \right) \right] + \beta_{lb} h \ . \tag{83}$$

Sur la figure 76, l'estimation de la longueur critique est tracée en fonction de la somme des débits $Q_G + Q_L$. La courbe continue est le résultat de l'équation 83 pour la surface moyenne d'un pore et les courbes pointillées pour la valeur moyenne plus ou moins l'écart-type (voir table 8). Afin de valider l'estimation de cette longueur critique, les mesures expérimentales ont été reportées sur la même figure en fonction du régime d'écoulement observé (régime de Taylor (▲), régime modulé (▽)). Les barres d'erreur des valeurs expérimentales correspondent à l'écart-type de la série de bulles mesurées pour un jeu de débit donné (annexe E). L'estimation de la longueur critique de bulle est en bon accord avec les données expérimentales.

4.4.2 *Discussion sur le caractère prédictif*

L'expression de la longueur critique de bulle, l_b^*, dépend de We'^*, accessible par des expériences. Ce dernier est fortement lié au terme $n_p \times s_p$ seulement accessible par une analyse poussée de la structure de milieu poreux à l'intérieur du canal, par exemple par tomographie à rayons X, comme présenté dans ce travail.

Une étude de sensibilité de l_b^* au paramètre n_p est proposée pour la mousse 80PPI ($s_p = 0.080 \pm 0.044$ mm^2, $We'^* = 1$). Pour ce faire, n_p varie entre $1 < n_p < 30$. Ces va-

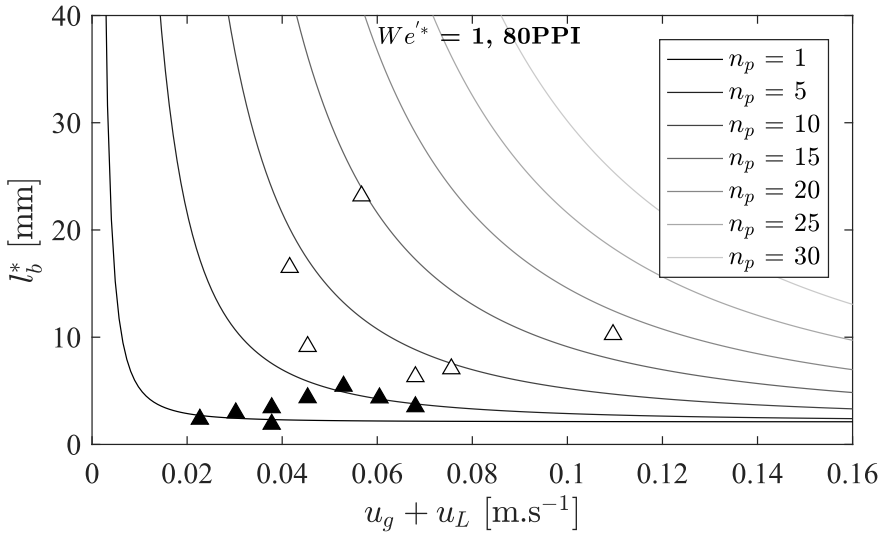

FIGURE 77 – Estimation de la longueur de bulle critique, l_b^*, dans l'écoulement de Taylor amont, tracée en fonction de $Q_G + Q_L$, mousse 80PPI (▲ : mesures de bulles en régime de Taylor, ▽ : mesures de bulles en régime modulé) pour différentes valeurs de nombre de pores, n_p, considérés dans une section, perpendiculaire à l'écoulement.

leurs encadrent des choix possibles de la valeurs n_p sans avoir accès à la tomographie. En effet, les deux cas extrêmes sont, soit de considérer un seul pore, soit de déterminer le nombre de pores en fonction de la porosité ϵ par la relation : $n_p = \epsilon \times h^2/s_p$, qui donne $n_p = 52$. Cette valeur est largement supérieure à celle estimée par l'analyse tomographique ($n_p = 5$) car elle ne prend pas en compte la géométrie très particulière des mousses solides. L'étude de sensibilité est donc limitée à $n_p = 30$.

Sur la figure 77, on observe que n_p est un paramètre très influent dans la définition de l_b^* car seule la courbe à $n_p = 5$ (cas présenté en figure 76) est validée par les points expérimentaux. Cela montre que pour être prédictif il est indispensable de déterminer $n_p \times s_p$ précisément. L'autre paramètre influent sur la prédictibilité de l_b^* est la valeur de We' à la transition de régime, notée We'^{*}. Pour la mousse 80PPI, $We'^{*} = 1$. La transition de régime est étudiée expérimentalement sur un second milieu poreux : la mousse 40PPI. l_b^* est estimée avec les caractéristiques de ce dernier (table 8) en considérant en première approximation que la transition de régime est conservée à $We'^{*} = 1$. Les résultats de cette prédiction sont reportés sur la figure 78 auxquels ont été ajoutées les observations expérimentales correspondantes. Aux erreurs expérimentales près, la transition entre le régime de Taylor (▲) et le régime modulé (▽) est bien prédite par l' équation 83 pour la mousse 40PPI.

Pour assurer la prédictibilité de l_b^*, il reste à tester des milieux plus différents, car on peut noter que la courbe de la mousse 40PPI n'est pas très éloignée de celle de la mousse 80PPI (figure 78).

4.5 MODÈLE PHÉNOMÉNOLOGIQUE

La définition de l_b^* (équation 83), longueur critique de bulle à l'entrée du milieu poreux, a permis d'identifier les paramètres de contrôle de la transition entre le régime

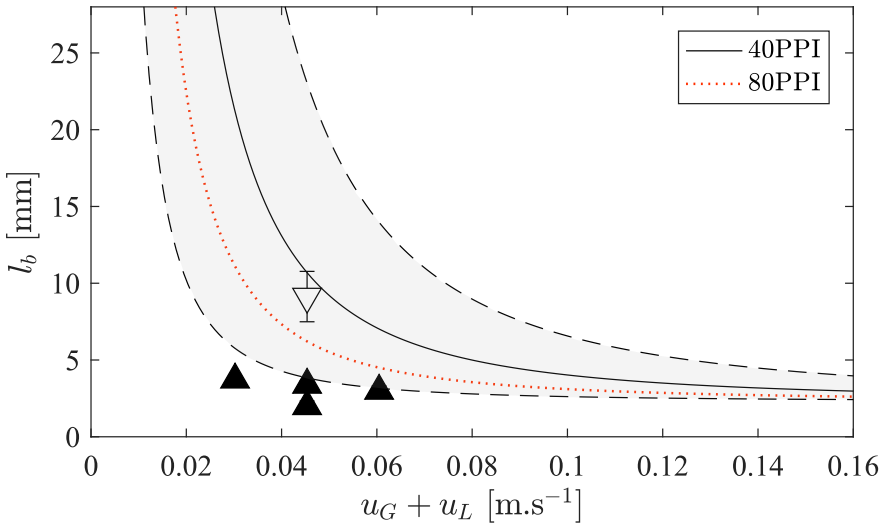

FIGURE 78 – Longueur de bulles, l_b, dans l'écoulement de Taylor amont tracée en fonction de $Q_G + Q_L$ pour la mousse 40PPI (▲ : mesures de bulles en régime de Taylor, ▽ : mesures de bulles en régime modulé). La ligne continue représente la longueur critique de bulle, l_b^*, prédite par l' équation 83 et la région en gris clair, la variation dans la prédiction de l_b^* due à l'erreur sur l'estimation de la morphologie des pores (table 8). La courbe l_b^* obtenue pour la mousse 80PPi est rappelée en pointillés fins.

de Taylor et le régime modulé caractérisés en section 4.2.2. Cette loi d'échelle donne accès au régime hydrodynamique de l'écoulement dans le milieu poreux seulement à partir des conditions amont (fluides et milieu poreux). Cependant, elle ne donne aucune information sur le mécanisme qui régit la transition entre les deux régimes à l'intérieur du milieu poreux. L'objectif de cette section est donc de développer un modèle phénoménologique proposant un mécanisme de propagation de l'écoulement de Taylor dans les mousses solides pour expliquer l'existence des deux régimes (propagation avec ou sans coalescence de bulles).

4.5.1 *Formulation du modèle*

La formulation du modèle est basée sur les observations expérimentales décrites en section 4.2 et sur les paramètres de contrôle du changement de régime identifiés en section 4.4. L'objectif est de représenter le phénomène de coalescence de bulles, de manière simplifiée, en considérant la propagation dans le milieu poreux. Noter qu'il s'agit d'un modèle phénoménologique, donc basé sur des hypothèses simplificatrices qui seront discutées dans cette partie.

Les bulles de l'écoulement de Taylor arrivent en amont du milieu poreux avec une longueur l_b^0 et une longueur d'onde λ^0. Lorsqu'elles pénètrent dans le milieu poreux, leur diamètre, a, est contraint par la structure de la mousse. D'après les observations effectuées sur les films, ce diamètre est fixé en première approximation, au diamètre d'une cellule, noté d_c (pour la mousse 80PPI, $d_c = 604$ μm, voir annexe A). La nouvelle section d'une bulle dans le milieu poreux étant égale à :

$$A = \frac{\pi a^2}{4} , \tag{84}$$

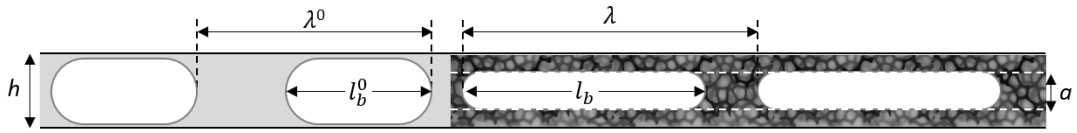

FIGURE 79 – Schéma simplifié du modèle phénoménologique.

les bulles sont donc plus allongées (figure 79). Leur longueur est alors donnée par conservation du volume :

$$l_b = l_b^0 \left(\frac{h^2}{A} \right) , \tag{85}$$

et la longueur d'onde caractéristique de l'écoulement de Taylor, λ_0, s'allonge aussi à son entrée dans le milieu poreux. Sa nouvelle longueur d'onde, λ, varie au cours de la propagation et est déterminée par le modèle phénoménologique.

La section occupée par l'écoulement conjoint gaz-liquide dans le milieu poreux est supposée être la section A. Dans le reste du canal, on fait l'hypothèse que l'écoulement est monophasique liquide, sur une section :

$$B = h^2 - A \ . \tag{86}$$

Ces deux zones d'écoulement ont *a priori* deux vitesses différentes :

— une vitesse u_A dans le zone A (écoulement multiphasique)
— une vitesse u_B dans la zone B (écoulement monophasique liquide).

Cette différence de vitesse peut être justifiée par des phénomènes de glissement de phase, comme cela a déjà été observé auparavant pour des écoulements gaz-liquide en milieu poreux [100–102, 122] et décrit dans le chapitre 3. En faisant l'hypothèse que le liquide et le gaz sont incompressibles (section 2.1 et section 3.2), leurs débits en zone A peuvent être définis comme suit :

$$Q_G^A = Q_G = \frac{V_G u_A}{\lambda} \tag{87}$$

$$Q_L^A = \frac{V_L^A u_A}{\lambda} \tag{88}$$

où V_G est le volume d'une bulle de gaz et V_L^A le volume d'un slug de liquide dans la zone A (figure 80). Le débit de liquide relatif à chaque zone peut donc être réécrit à partir des équations 87 et 88 :

$$Q_L^A = \frac{V_L^A}{V_G} Q_G \tag{89}$$

$$Q_L^B = Q_L - Q_L^A \ . \tag{90}$$

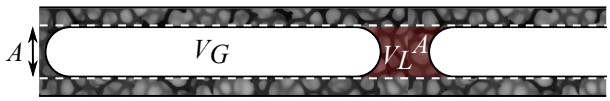

FIGURE 80 – Schéma simplifié de la répartition des phases dans la zone A.

En considérant que la vitesse dans la zone A est la somme des vitesses des deux phases (gaz et liquide) et que la vitesse dans la zone B est celle du liquide restant seul, ces dernières peuvent être définies comme :

$$u_A = \frac{Q_G + Q_L^A}{A} = \left(\frac{\lambda}{l_b}\right)\frac{Q_G}{A} \tag{91}$$

$$u_B = \frac{Q_L^B}{h^2 - A} = \frac{Q_L - (\lambda/l_B - 1)\,Q_G}{h^2 - A} \tag{92}$$

Sachant que $h^2 > A$ et que $\lambda/l_b \geq 1$, $u_A > u_B$ est toujours vérifié.

Il est supposé, dans ce modèle, que la coalescence de bulles est le résultat d'un retour à l'équilibre du système avec u_A qui tend vers u_B par dissipation visqueuse. Au premier ordre, la décroissance de u_A est supposée exponentielle avec un temps de relaxation τ :

$$\frac{du_A}{dt} + \frac{u_A}{\tau} = u_B \ . \tag{93}$$

Avec $u_A = u_A^0$ comme condition initiale, l'expression de la décroissance de u_A est donc la suivante :

$$u_A = \left(u_A^0 - u_B\right)\mathrm{e}^{-t/\tau} + u_B \ . \tag{94}$$

En remplaçant u_A et u_B par leurs expressions (équations 91 et 92), il est alors possible d'exprimer l'évolution de la longueur d'onde, $\lambda(t)$, comme suit :

$$\frac{l_B}{\lambda(t)} = \frac{\left(\frac{h^2}{A} - \mathrm{e}^{-t/\tau}\right)Q_G}{\left(\frac{h^2-A}{A}\right)\left(\frac{\lambda^0}{l_B^0}\right)Q_G\,\mathrm{e}^{-t/\tau} + (Q_G + Q_L)\left(1 - \mathrm{e}^{-t/\tau}\right)} \tag{95}$$

Il y a coalescence de bulles à l'intérieur du milieu poreux lorsque $\lambda(t)$ diminue jusqu'à atteindre la valeur de l_b, soit à $l_b/\lambda = 1$. Ce modèle décrit donc le mécanisme de coalescence de bulles de manière simplifiée seulement à partir des paramètres géométriques de milieu poreux (h et A), des conditions de débits à l'entrée du milieu poreux (Q_G, Q_L), et du temps de relaxation visqueuse, τ, discuté dans la section suivante.

4.5.2 *Temps caractéristiques*

Temps de relaxation visqueuse

En première approximation, une estimation du temps de relaxation τ peut être obtenue en considérant que, dans le cas du régime modulé, le temps typique pour lequel il y a coalescence ($l_b = \lambda$) est donné par $t = t_c \simeq 1/f_0$. f_0 est obtenue par l'analyse fréquentielle (section 4.2) et correspond à la fréquence principale du régime modulé. On peut alors tracer la dépendance de τ en fonction des débits Q_G et Q_L à partir de l'équation 95 (figure 81a). On observe que τ décroît fortement avec Q_L et semble très faiblement impacté par Q_G (figure 81a, insert).

Cependant, pour que le modèle phénoménologique soit prédictif dans la détermination de l_b/λ, il est nécessaire d'estimer le paramètre τ indépendamment de

l'équation 95. S'appuyant sur les observations de la figure 81a, on propose donc une loi d'échelle comparant les principales forces en jeu dans le mécanisme de dissipation visqueuse considéré par le modèle phénoménologique, à savoir : l'inertie de l'écoulement conjoint gaz-liquide, la viscosité de la phase liquide et un temps caractéristique du séjour de la phase liquide dans le milieu poreux. La combinaison de ces trois paramètres forme la loi d'échelle suivante :

$$\tau_s = \frac{1}{Re_{TP}} \left(\frac{Lh^2}{Q_L} \right) , \tag{96}$$

où L est la longueur totale du milieu poreux, h^2, la section du canal millifluidique, Q_L, le débit de la phase liquide et $Re_{TP} = u_{TP}\rho_L a/\mu_L$ avec $u_{TP} = (Q_G + Q_L)/h^2$ la vitesse des bulles à l'entrée du milieu poreux, ρ_L la masse volumique du liquide, μ_L sa viscosité et $a = d_c$ la taille d'une cellule de mousse, longueur caractéristique du

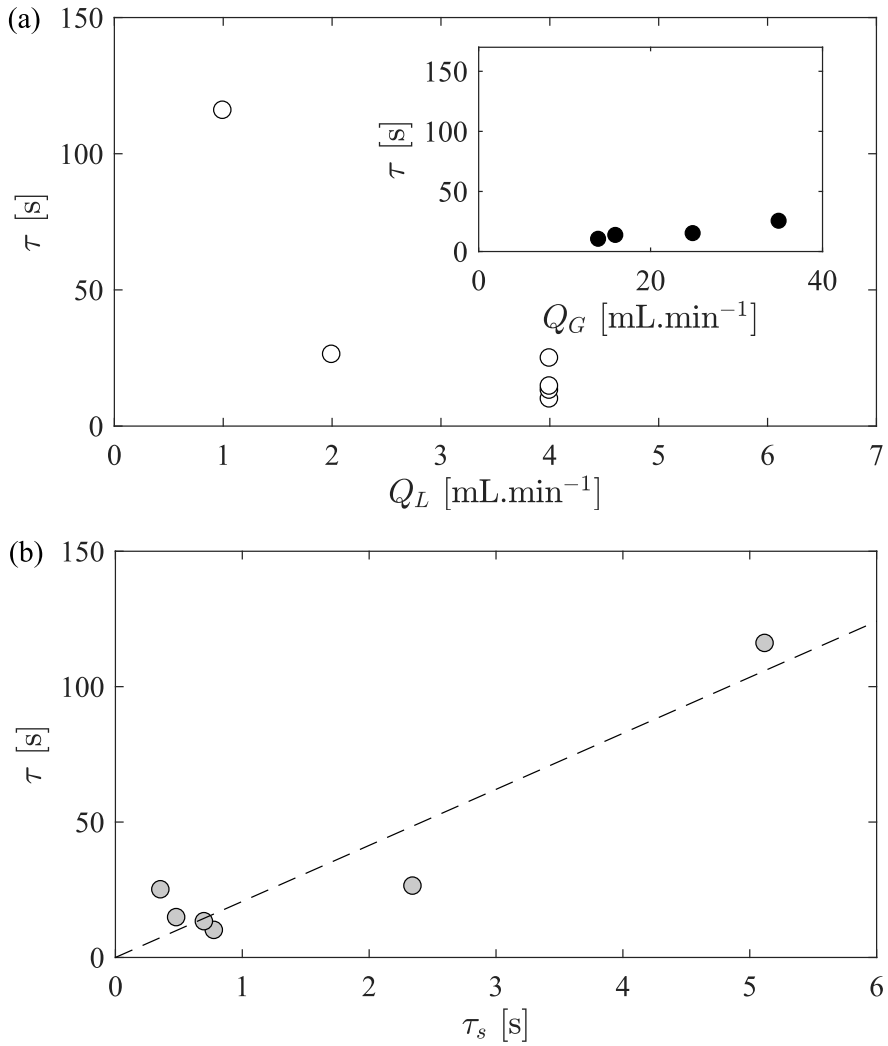

FIGURE 81 – (a) Évolution de τ en fonction de Q_L et de Q_G (insert) pour les points du régime modulé. (b) Temps de relaxation τ, déterminé à partir de l'équation 95, tracé en fonction de τ_s estimé par la loi d'échelle (équation 97). La ligne pointillée est une régression linéaire de pente $\zeta = 20$.

diamètre des bulles dans le milieu poreux (table 4). En développant l'équation 96, on obtient :

$$\tau_s \sim \frac{Lh^4 \mu_L}{\rho_L (Q_G + Q_L) Q_L a} . \tag{97}$$

Les valeurs de τ_s estimées par l'équation 97 sont tracées sur un diagramme de parité en fonction des valeurs de τ, trouvées à partir de l'équation 95 pour $l_b = \lambda$ et $t = 1/f_0$ (figure 81b). Un accord est trouvé entre les deux estimations à un facteur près $\zeta = 20$. L'expression finale de τ est donc corrigée par l'ajout de ce préfacteur (facteur non prévisible par la loi d'échelle) pour donner l'équation finale :

$$\tau_s = \frac{\zeta Lh^4 \mu_L}{\rho_L (Q_G + Q_L) Q_L a} . \tag{98}$$

Temps de séjour

Le définition d'une loi d'échelle pour déterminer τ permet au modèle d'être prédictif. Le modèle phénoménologique prévoit la coalescence des bulles dans le milieu poreux à un temps donné, noté t_c. S'il n'y a pas de coalescence de bulles avant que ces dernières soient sorties du milieu poreux alors le modèle phénoménologique prévoit un régime de Taylor, si la coalescence entre les bulles advient avant qu'elles soient sorties du milieu poreux, le modèle prévoit un régime modulé (régimes décrits en section 4.2).

Pour valider le modèle phénoménologique, il faut donc comparer t_c à un temps caractéristique de séjour des bulles dans le milieu poreux correspondant au temps de séjour de la phase gazeuse défini par :

$$t_{sg} = \frac{(\epsilon - \epsilon_L) Lh^2}{Q_G} , \tag{99}$$

où ϵ est la porosité du milieu poreux, ϵ_L la fraction de liquide, Lh^2 le volume occupé par le milieu poreux dans le canal millifluidique et Q_G le débit de gaz en amont du milieu poreux.

4.5.3 *Résultats*

Le rapport l_b/λ est tracé en fonction de t/t_{sg} avec t_{sg}, le temps caractéristique de séjour des bulles dans le milieu poreux, pour chaque jeu de débits dans le cas de la mousse 80PPI (figure 82). Les courbes modélisées ont été différenciées en fonction des observations expérimentales :

— courbes foncées : régime modulé
— courbes claires : régime de Taylor.

Pour la plupart des courbes foncées (régime modulé), la valeur $l_b/\lambda = 1$ est atteinte à $t/t_{sg} < 1$, ce qui implique qu'il y a coalescence des bulles avant qu'elles soient sorties du réacteur. De même, pour toutes les courbes claires (régime pseudo-Taylor), $l_b/\lambda < 1$ lorsque les bulles quittent le milieu poreux, soit à $t/t_{sg} = 1$. Les régimes prédits par le modèle phénoménologique sont en accord avec les observations expérimentales. Le modèle est donc validé pour effectuer une prédiction qualitative du régime hydrodynamique dans le milieu poreux, seulement à partir des conditions de

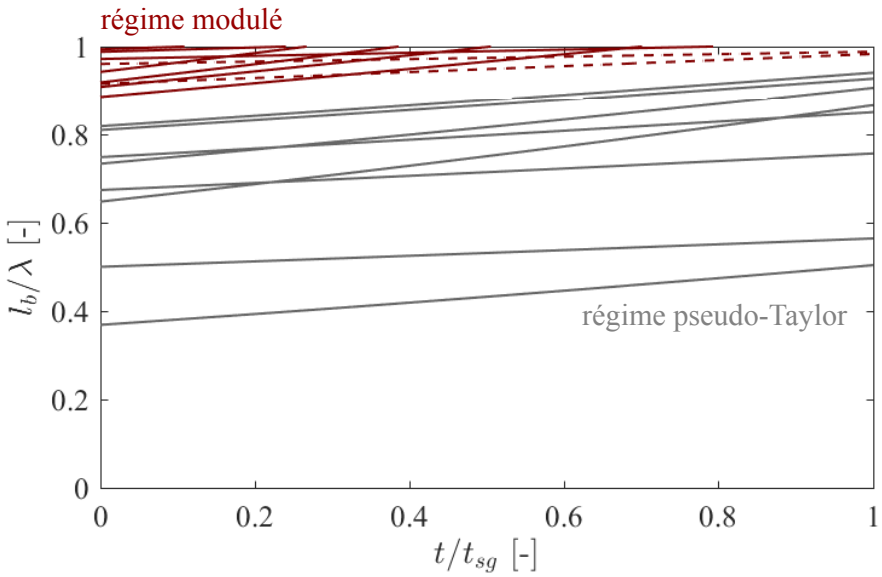

FIGURE 82 – l_b/λ calculé à partir de l'équation 95 tracé en fonction du temps normalisé par le temps de séjour de la phase liquide, t/t_{sg} (voir équation 99) pour différents débits Q_G et Q_L.

l'écoulement (débits, milieu poreux) et de longueurs de bulles estimées en canal vide dans les mêmes conditions.

Pour deux courbes (représentées en pointillés sur la figure 82) le modèle prédit un régime pseudo-Taylor ($l_b/\lambda < 1$ à $t/t_{sg} = 1$) alors que pour ces débits ($[Q_G = 10\ ;\ Q_L = 1]$, $[Q_G = 10\ ;\ Q_L = 2]$ mL.min^{-1}) l'écoulement a été observé en régime modulé expérimentalement. En matérialisant la position de ces points sur le diagramme $St - We^{'}$ présenté en figure 75 (section 4.2), on s'aperçoit qu'ils sont juste à la transition entre les deux régimes. La dimension phénoménologique du modèle explique donc cette imprécision à la transition entre les deux régimes.

La figure 83 illustre l'évolution des vitesses de la zone A, u_A, et de la zone B, u_B, pour deux exemples choisis en régime pseudo Taylor ($[Q_G = 2\ ;\ Q_L = 4]$ mL.min.$^{-1}$, mousse 80PPI) et en régime modulé ($[Q_G = 14\ ;\ Q_L = 4]$ mL.min.$^{-1}$, mousse 80PPI). La dissipation visqueuse de la vitesse dans la zone A est beaucoup plus marquée pour le régime modulé, avec un temps de coalescence, t_c, très inférieur au temps de séjour des bulles, t_{sg}. Dans le cas du régime de Taylor, le modèle phénoménologique prévoit un temps de coalescence, t_c, supérieur au temps de séjour des bulles.

Le modèle phénoménologique est recalculé pour une longueur de lit supérieure, $L = 30$ cm (figure 84). Le modèle phénoménologique prévoit un changement dans la transition entre le régime de Taylor et le régime modulé avec des cas de débit en régime pseudo-Taylor pour $L = 16$ cm qui passent en régime modulé pour $L = 30$ cm (courbes grises pour lesquelles $l_b/\lambda = 1$ à $t/t_{gs} < 1$ figure 84a). En comparant la figure 84b ($L = 30$ cm) à la figure 83 ($L = 16$ cm), on observe que les temps de séjour des bulles t_{sg} ont augmenté de manière plus marquée que les temps de coalescence t_c. Cela permet donc à des écoulements en régime pseudo-Taylor de passer en régime modulé.

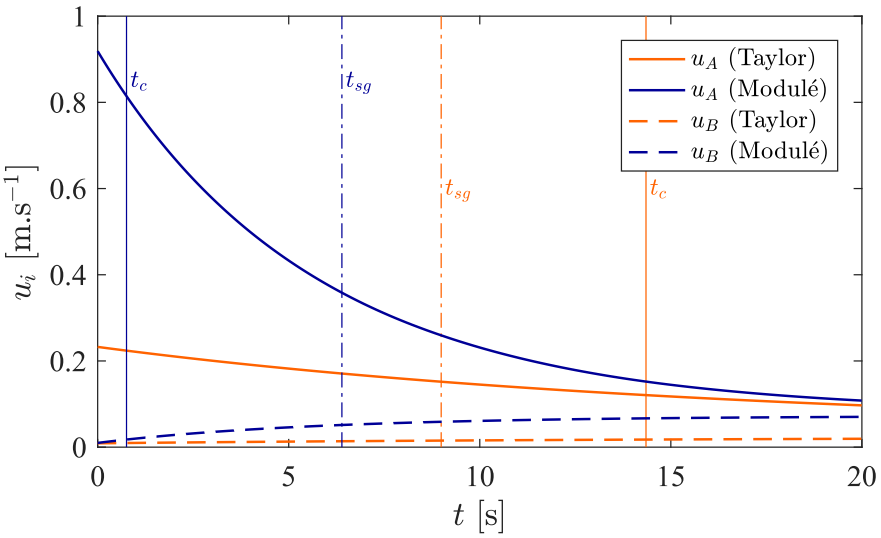

FIGURE 83 – Évolution de la vitesse, u_i, dans chaque zone, $i = A$ (écoulement conjoint gaz liquide) et $i = B$ (zone où le liquide s'écoule seul), tracée en fonction du temps pour un écoulement en régime pseudo-Taylor ($[Q_G = 2\ ;\ Q_L = 4]$ mL.min^{-1}) et un écoulement en régime modulé ($[Q_G = 14\ ;\ Q_L = 4]$ mL.min^{-1}). Les temps caractéristiques de coalescence et de séjour des bulles, respectivement noté t_c et t_{sg}, sont représentés par les lignes verticales.

4.6 CONCLUSION SUR L'HYDRODYNAMIQUE LOCALE

Ce chapitre est basé sur l'analyse des signaux de fraction liquide apparente, $\epsilon_L^*(t)$, acquise par visualisation directe de l'écoulement à plusieurs endroits : en amont et dans le milieu poreux. Cette dernière a permis de montrer que la fraction liquide est environ constante le long du milieu poreux. La moyenne globale (spatiale et temporelle) de la fraction liquide apparente est comparable aux valeurs obtenues à partir de la DTS. Cette validation quantitative en fait une méthode alternative pour estimer ϵ_L dans des conditions où les méthodes expérimentales de DTS ne sont pas assez fiables (notamment aux temps de séjour très courts (chapitre 3)).

L'acquisition instantanée de la fraction liquide permet d'accéder à la fréquence principale générée par l'écoulement de Taylor en amont du milieu poreux (zone I), f_T, et à sa valeur f_0 à l'entrée du milieu poreux (zone II) et lors de sa propagation le long du milieu poreux (zones III et IV). Cette étude a conduit à l'identification de deux régimes hydrodynamiques : le régime pseudo-Taylor, dominé par la propagation des bulles de Taylor à l'intérieur du milieu poreux à une fréquence $f_0 \simeq f_T$ et le régime modulé, dominé par un phénomène de coalescence de bulles dans le milieu poreux à la fréquence $f_0 \ll f_T$.

L'analyse dimensionnelle des signaux fréquentiels a permis de proposer un nombre de Weber modifié, We', qui contrôle la transition entre le régime pseudo-Taylor et le régime modulé. Pour la mousse 80PPI et un écoulement éthanol-air, la transition se situe à $We'^* = 1$. Une expression de la longueur critique de bulle, l_b^* (équation 83), extraite à partir de l'analyse dimensionnelle, permet de prédire, uniquement à partir de l'écoulement de Taylor en canal vide et des caractéristiques du milieu poreux, le régime présent à l'intérieur du milieu poreux. Ainsi, il est possible d'anticiper les caractéristiques optimales du milieu poreux en fonction de l'hydrodynamique sou-

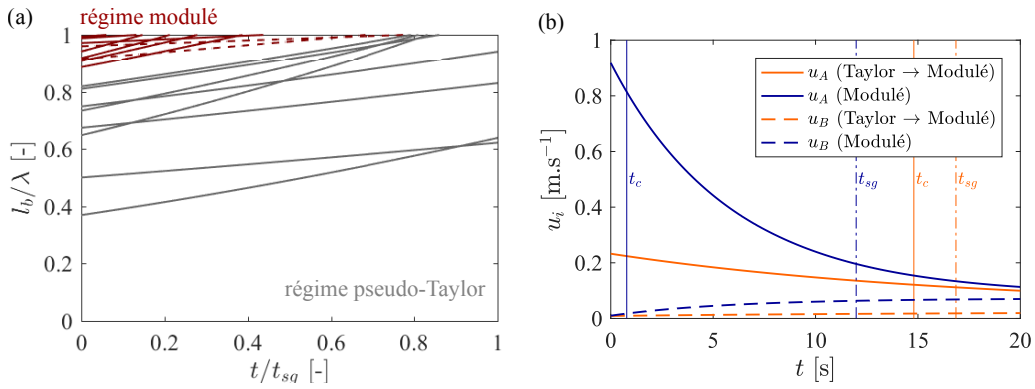

FIGURE 84 – (a) Évolution de l_b/λ avec l_b tracé en fonction de t/t_{sg} (identique à la figure 82 mais pour une longueur de milieu poreux $L = 30$ cm). (b) Évolution de la vitesse, u_i, dans chaque zone tracée en fonction du temps, t (figure 83). Pour les conditions $[Q_G = 2\ ;\ Q_L = 4]$ mL.min.$^{-1}$, l'écoulement passe d'un régime pseudo-Taylor pour $L = 16$ cm à un écoulement an régime modulé pour $L = 30$ cm.

haitée à l'intérieur de ce dernier. Pour ce faire, il n'est pas nécessaire de disposer du milieu poreux en question pour l'étude expérimentale. La longueur critique de transition entre les deux régimes a été validée pour la mousse 80PPI et pour la mousse 40PPI. Des milieux poreux ouverts (monolithes) plus variés seraient nécessaires pour valider, de manière plus complète, le caractère prédictif de l'expression de l_b^* .

L'estimation de la transition entre régime pseudo-Taylor et régime modulé à partir de l_b^*, n'est centrée que sur le mécanisme d'entrée de la bulle dans le milieu poreux. Cette approche est complétée par un modèle phénoménologique développé dans le but de proposer un mécanisme de propagation de l'écoulement gaz-liquide dans le milieu poreux. Ce dernier exprime l'évolution du ratio l_b/λ (λ : longueur d'onde caractéristique de l'écoulement de Taylor) au cours de la propagation de l'écoulement en s'appuyant sur quatre hypothèses fortes :

— une longueur de bulle constante dans le milieu poreux : $l_b = l_b^0 h^2/A$
— des fluides incompressibles
— la présence de deux champs de vitesse (u_A pour la zone d'écoulement conjoint gaz-liquide, u_B pour la zone d'écoulement liquide pur)
— une décroissance de u_A par dissipation visqueuse .

Lorsque $l_b/\lambda = 1$ avant que les bulles ne sortent du milieu poreux, alors l'écoulement se situe dans le régime modulé, sinon, il est caractérisé par le régime pseudo-Taylor. La comparaison des prédictions du modèle avec les résultats expérimentaux ont validé sa pertinence. Cependant, lorsque le milieu poreux change de longueur, une modification de la transition est mis en évidence par le modèle phénoménologique. Cela n'est pas pris en compte par l'étude dimensionnelle ($We'^* = 1$, section 4.3) qui ne dépend pas de L.

Le modèle phénoménologique prévoit la formation du canal de gaz continu par la coalescence des bulles mais ne prévoit pas sa déstabilisation. Une amélioration du modèle phénoménologique d'une part, et d'autre part l'acquisition de données expérimentales supplémentaires (monolithes plus variés) permettrait de proposer deux

approches complémentaires qui convergeraient vers une représentation similaire de l'hydrodynamique locale.

5

INFLUENCE DE LA GRAVITÉ ET DU CONFINEMENT

Sommaire

5.1 Effet de la gravité (écoulement 2D) **115**
5.1.1 Diversité des régimes hydrodynamiques 116
5.1.2 Fraction d'aire de mélange 120
5.1.3 Fraction d'aire de mouvement d'interface 121
5.2 Effet du confinement (écoulements 1D/2D) **122**
5.2.1 Fraction d'aire de mélange 122
5.2.2 Fraction d'aire de mouvement d'interfaces 123
5.3 Conclusion sur les effets de gravité et de confinement **125**

Des analyses approfondies de l'hydrodynamique globale et locale à l'intérieur du canal millifluidique ont été proposées dans les chapitres précédents. Ce chapitre présente une étude plus préliminaire, dont l'objectif est d'évaluer les effets du confinement et de la gravité en comparant trois écoulements co-courants :

— écoulement 1D horizontal (canal millifluidique)
— écoulement 2D horizontal (cellule de Hele-Shaw)
— écoulement 2D vertical ascendant (cellule de Hele-Shaw).

Ces derniers sont comparés en quantifiant les variables A_m et A_i (chapitre 2) mesurées localement. La première,A_m, est la fraction d'aire de mélange. ELle quantifie la fraction du milieu poreux concernée par un écoulement conjoint gaz-liquide. La variable suivante,A_i, est la fraction d'aire de mouvement d'interface. Elle complète A_m, en quantifiant la fraction du milieu poreux concerné par un mouvement des interfaces gaz-liquide. Ces analyses ont pour objectif de décrire un effet global de la gravité et du confinement sur les écoulement gaz-liquide en milieu poreux.

5.1 EFFET DE LA GRAVITÉ (ÉCOULEMENT 2D)

L'effet de la gravité sur l'écoulement gaz-liquide est quantifié en comparant un écoulement vertical ascendant à un écoulement horizontal dans la cellule de Hele-Shaw dans les mêmes conditions expérimentales et le même milieu poreux. Le milieu poreux choisi est une plaque de mousse en alliage NiCrFeAl de $200 \times 300 \times 2$ mm^3 (voir table 5). La caractérisation de ce dernier permet de compléter les descriptions encore rares de l'hydrodynamique dans ce milieu [37, 113, 123] et d'être comparable aux expériences effectuées dans le canal millifluidique.

5.1.1 *Diversité des régimes hydrodynamiques*

En faisant varier les débits $[Q_G,\ Q_L]$, différents régimes d'écoulements ont été observés. Leur représentation est proposée sous deux formes :

— une carte de probabilité de mouvement d'interfaces gaz-liquide, notée p_{int}, résultant de la moyenne des différences d'images successives sur l'intégralité d'un film (chapitre 2, section 2.3.2).

— une carte de probabilité de passage de la phase liquide, notée p_{liq}, résultant de la moyenne de la répartition de la phase liquide sur toutes les images du film (chapitre 2, figure 2.3.1).

Trois groupes d'écoulements ont été mis en évidence. Pour chacun d'eux, les cartes de probabilité de mouvement d'interfaces gaz-liquide sont représentées sur les figures 85a à 85c et les cartes de probabilité de passage de la phase liquide, sur les figures 85d et 85f. En figure 85e, il n'y a pas d'illustration car les films acquis dans ces conditions expérimentales n'a pas permis un traitement d'images satisfaisant.

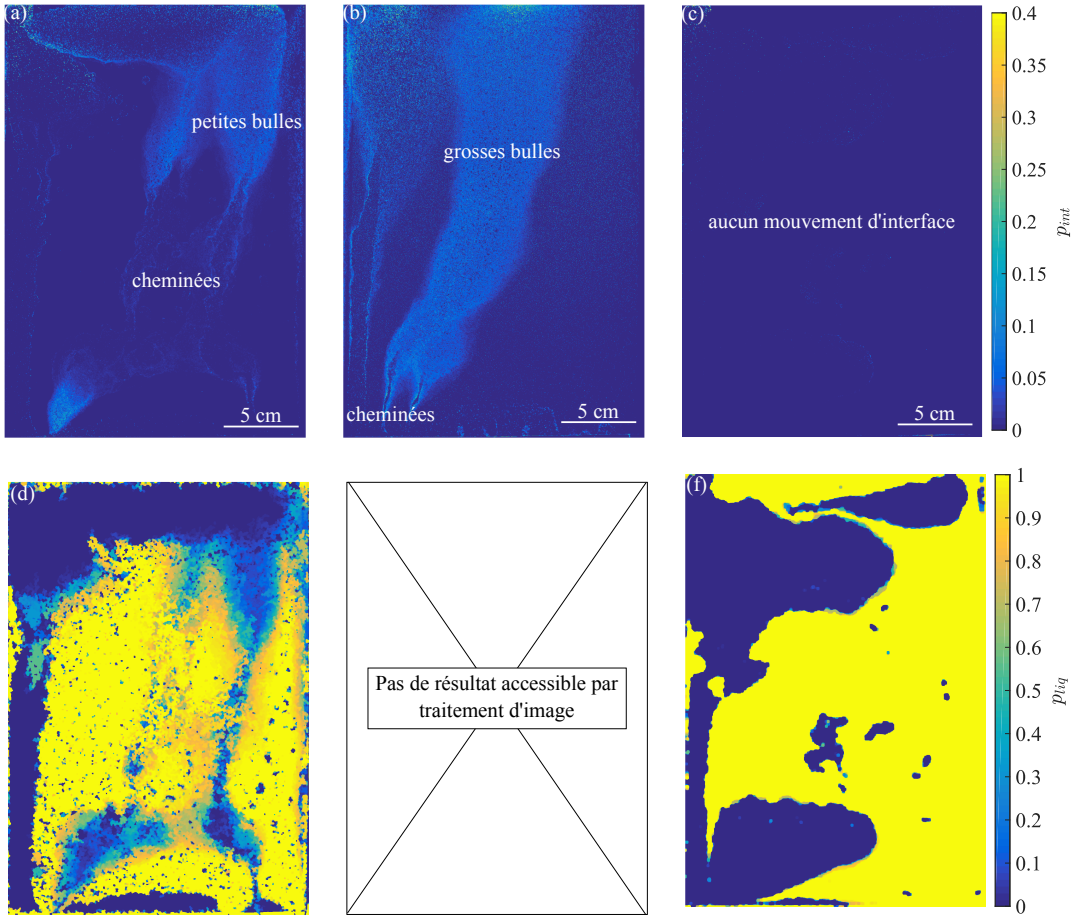

FIGURE 85 – Cartes de probabilité de mouvement d'interfaces, p_{int}, (a-c) et cartes de probabilité de passage de la phase liquide, p_{liq}, (d-f) pour l'écoulement horizontal 2D à trois jeux de débits différents : (a, d) $Q_L = 250$ mL.min^{-1}, $Q_G = 1200$ mL.min^{-1}, (b) $Q_L = 750$ mL.min^{-1}, $Q_G = 1500$ mL.min^{-1}, (c, f) $Q_L = 100$ mL.min^{-1}, $Q_G = 100$ mL.min^{-1}.

Dans le premier cas (figures 85a et figure 85d), on distingue trois types de structures :

— des zones à $p_{int} \sim 0$ (bleues foncé, 85a) qui correspondent à des $p_{liq} \sim 1$ (jaunes, figure 85). Ces étendues sont uniquement parcourues par la phase liquide avec une absence totale de mouvement d'interfaces gaz-liquide.
— des structures plus claires et pleines pour lesquelles $p_{int} \sim 0.15$ qui correspondent à une probabilité comprise entre : $0.4 < p_{liq} < 0.6$. Elles sont identifiées à un train de bulles séparées par des slugs de liquide qui s'écoulent dans un conduit stationnaire (passage préférentiel). Les interfaces gaz-liquide sont mises en mouvement à l'intérieur de ce dernier.
— des structures composites avec un cœur à $p_{int} \sim 0$ et des bords où $p_{int} \sim 0.15$ qui correspondent à des zones à $p_{liq} \sim 0$. Ces structures caractérisent des cheminées formées par un canal de gaz continu et stationnaire.

Ce régime est qualifié de *"régime de faible activité"* car les zones de mobilité des interfaces gaz-liquide sont relativement restreintes.

Le deuxième type d'écoulement horizontal observé (p_{int}, figure 85b) se caractérise par les mêmes structures que celles présentées précédemment mais dans des proportions différentes. En effet, les zones sans mobilité d'interface ($p_{int} \sim 0$) sont plus réduites et les cheminées ont quasiment disparu. Ces diminutions de zones qualifiées d'"inactives" en terme de mouvement d'interfaces, ont laissé la place à des zones "actives" plus grandes (passages préférentiels de bulles plus larges). Ce régime est donc qualifié de *"régime de forte activité"*.

Le troisième cas illustre un écoulement dans lequel il n'y a aucun mouvement d'interface ($p_{int} \sim 0$, figure 85c). En effet, en se reportant à la figure 85f, on observe que les zones d'écoulement du liquide et du gaz sont bien distinctes, avec des régions où $p_{liq} = 0$ et des régions où $p_{liq} = 1$. Ce type d'écoulement est qualifié de *régime pseudo-ruisselant* car il est assimilable à la description du régime ruisselant : *"le liquide s'écoule sous forme de film autour des grains et le gaz s'écoule dans les espaces vides du milieu granulaire avec une interface stable dans le temps"*, énoncée dans le chapitre 1 pour un milieu granulaire.

On peut ainsi définir trois régimes :

— le régime 1 : *"régime de faible activité"*
— le régime 2 : *"régime de forte activité"*
— le régime 3 : *"régime pseudo-ruisselant"*.

La figure 86 illustre les différents groupes observés pour les écoulements verticaux ascendants. On remarque que les structures mises en évidence par le mouvement des interfaces gaz-liquide, p_{int}, et par la probabilité de passage de la phase liquide, p_{liq}, sont similaires à celles décrites pour l'écoulement horizontal. La différence principale est marquée par l'absence du *régime 3* pour lequel aucun mouvement d'interfaces n'est observé. Cette distinction est attendue en écoulement vertical car la phase gazeuse remonte systématiquement sous l'effet de la flottabilité. Sinon, on retrouve le *régime 1*, avec les mêmes caractéristiques que celles observées dans l'écoulement horizontal (figures 86a et 86c) et le *régime 2* pour lequel on peut noter la disparition des cheminées présentes en écoulement horizontal (figures 86b et 86d). La comparai-

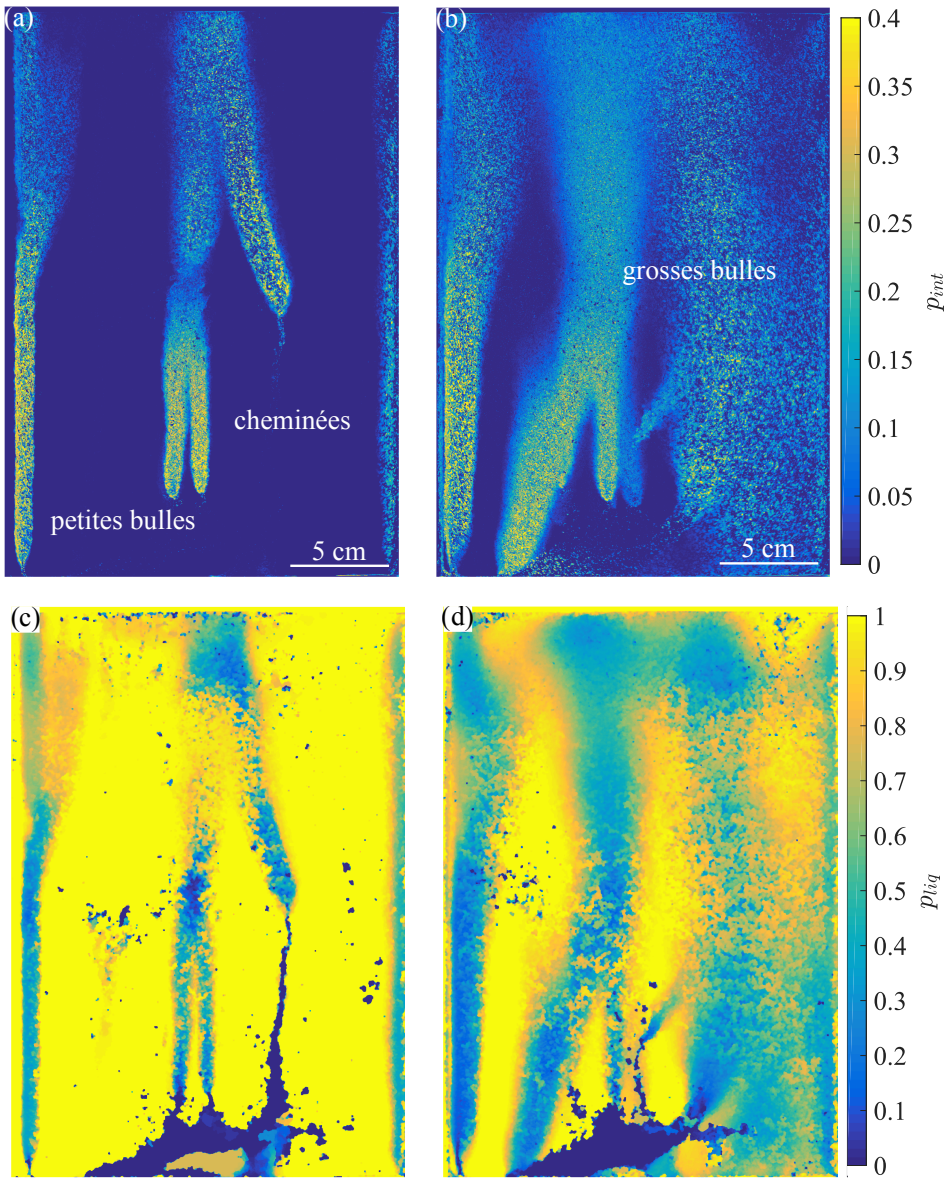

FIGURE 86 – Carte de probabilité de mouvement d'interfaces (a-b) et carte de probabilité de passage de la phase liquide, p_{liq}, (c-d) en écoulement vertical ascendant 2D, pour deux jeux de débits différents : (a-c) $Q_L = 700$ mL.min^{-1}, $Q_G = 400$ mL.min^{-1}, (b-d) $Q_L = 600$ mL.min^{-1}, $Q_G = 1400$ mL.min^{-1}.

son des figure 85 et figure 86 met en évidence une activité supérieure des zones de mouvement dans le cas de l'écoulement vertical.

Tous les points expérimentaux ont été reportés dans deux diagrammes des régimes exprimés selon les débits de gaz, Q_G, et de liquide, Q_L, pour l'écoulement horizontal (figure 87a) et pour l'écoulement vertical (figure 87b). Ces deux paramètres permettent de rassembler tous les points expérimentaux appartenant à un même régime dans une région bien délimitée. Cette représentation met en relation l'augmentation de l'activité des interfaces gaz-liquide (régime 3 → régime 1 → régime 2) avec l'augmentation de Q_G et de Q_L.

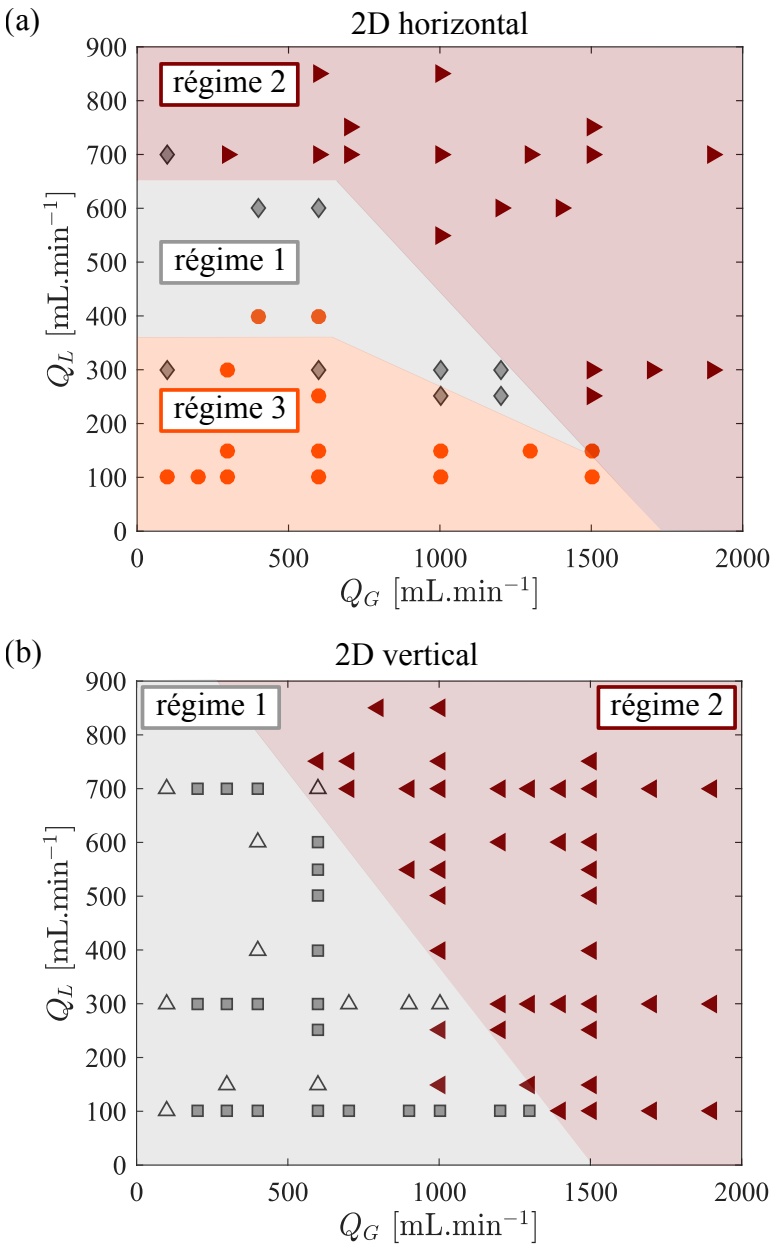

FIGURE 87 – Diagramme des régimes exprimés en fonction du débit de gaz, Q_G et du débit liquide, Q_L, pour l'écoulement horizontal (a) et l'écoulement vertical ascendant (b) dans la cellule de Hele-Shaw [régime 1 : faible activité, régime 2 : forte activité, régime 3 : régime pseudo-ruisselant]. Les frontières entre les régimes sont indiquées à titre qualitatif.

La frontière, placée manuellement, entre *le régime 1* et *le régime 2* est quasiment identique entre l'écoulement horizontal et l'écoulement vertical. Cet aspect fait ressortir la prédominance des interactions visqueuses, capillaires ou inertielles sur les interactions gravitaires dans la délimitation des régimes identifiés. Cependant, une analyse dimensionnelle plus poussée (non réalisée pour ces travaux préliminaires) serait nécessaire pour identifier quelle interaction est réellement prédominante.

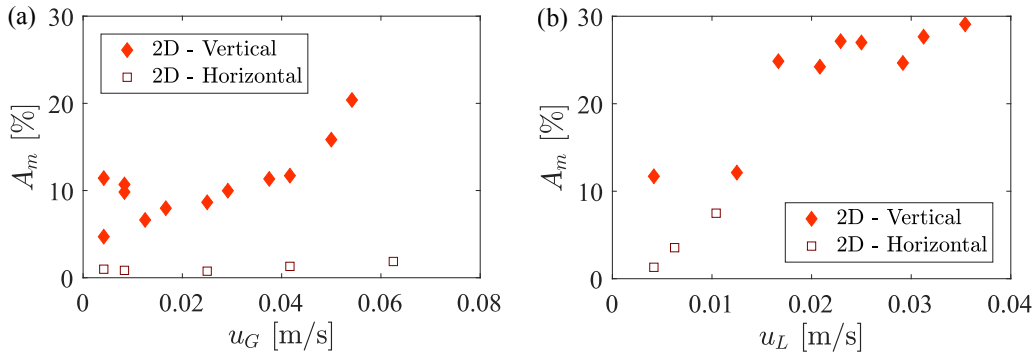

FIGURE 88 – (a) Fraction d'aire de mélange, A_m, en fonction de la vitesse de gaz, u_G à $u_L = 0.0167$ m.s^{-1}. (b) A_m en fonction de la vitesse de liquide u_L, à $u_G = 0.0420$ m.s^{-1}. [écoulements horizontal et vertical ascendant, expérience 2D].

La description de ces trois régimes a mis en évidence une variation au sein du milieu poreux dépendant des débits et de l'orientation. Dans les parties suivantes, il est proposé de quantifier l'activité dans le milieu poreux en fonction des deux variables statistiques, A_m et A_i.

5.1.2 *Fraction d'aire de mélange*

La variable A_m, analysée dans cette partie, représente la fraction d'aire du milieu poreux pour laquelle la probabilité de passage de la phase liquide, p_{liq}, est comprise entre $0.3 < p_{liq} < 0.7$. Cette interprétation des acquisitions expérimentales est proposée pour discuter de l'effet des paramètres (ici : débits et orientation) sur la fraction du milieu poreux concernée par un écoulement conjoint gaz-liquide, pouvant influencer l'activité d'un catalyseur qui est supporté par la phase solide.

La variable A_m est tracée en fonction de la vitesse superficielle de la phase gazeuse, u_G, en figure 88a et en fonction de la vitesse superficielle de la phase liquide, u_L, en figure 88b pour les deux écoulements. Noter que l'évolution de A_m est exprimée en fonction des vitesses superficielles et non des débits comme les régimes hydrodynamiques, afin de conserver une homogénéité avec la fin du chapitre où l'expérience 2D est comparée à l'expérience 1D dans l'analyse de l'effet du confinement.

Sur la figure 88a, on observe qu'à u_L constante, l'augmentation de u_G a plus d'effet sur l'accroissement de A_m en écoulement vertical qu'en écoulement horizontal. Sur la figure 88b, au contraire, l'augmentation de u_L à u_G constante accroît A_m pour l'écoulement horizontal mais n'a quasiment pas d'effet sur l'écoulement vertical. En effet, pour ce dernier, à $u_L > 0.015$ m.$^{-1}$, tous les points oscillent autour d'une valeur moyenne stable.

De manière plus générale, la fraction d'aire de mélange, A_m, est influencée par la flottabilité du gaz, avec des valeurs supérieures pour l'écoulement vertical par rapport à l'écoulement horizontal à vitesse identique. Afin de compléter ces résultats, l'objectif de la partie suivante est d'observer quelles sont les conditions (débits, orientation) qui maximisent la fraction d'aire de mouvement d'interface, A_i, favorables au à un bon contact gaz-liquide-solide, et probablement au transfert gaz-liquide.

5.1.3 *Fraction d'aire de mouvement d'interface*

La variable A_i quantifie la fraction de la carte de probabilité de mouvement d'interface, p_{int}, pour lesquels $p_{int} > 0.1$ (chapitre 2, section 2.3.2). Elle est tracée simultanément en fonction des vitesses de gaz, u_G, et de liquide, u_L, dans le cas de l'écoulement horizontal (figure 89a) et de l'écoulement vertical (figure 89b). Noter que la variable A_i est mieux représentée que la variable A_m car le traitement d'images, moins exigeant, donne accès à une valeur pour tous les points expérimentaux. Le nombre plus conséquent de points a donc permis d'interpoler des surfaces rendant les effets des vitesses de chaque phase plus visibles. La couleur des surfaces est liée à la valeur de A_i.

Pour les deux orientations, la réponse de A_i est la même, que ce soit pour une augmentation de u_G ou de u_L. Dès qu'il y a un apport d'énergie dans l'écoulement, les

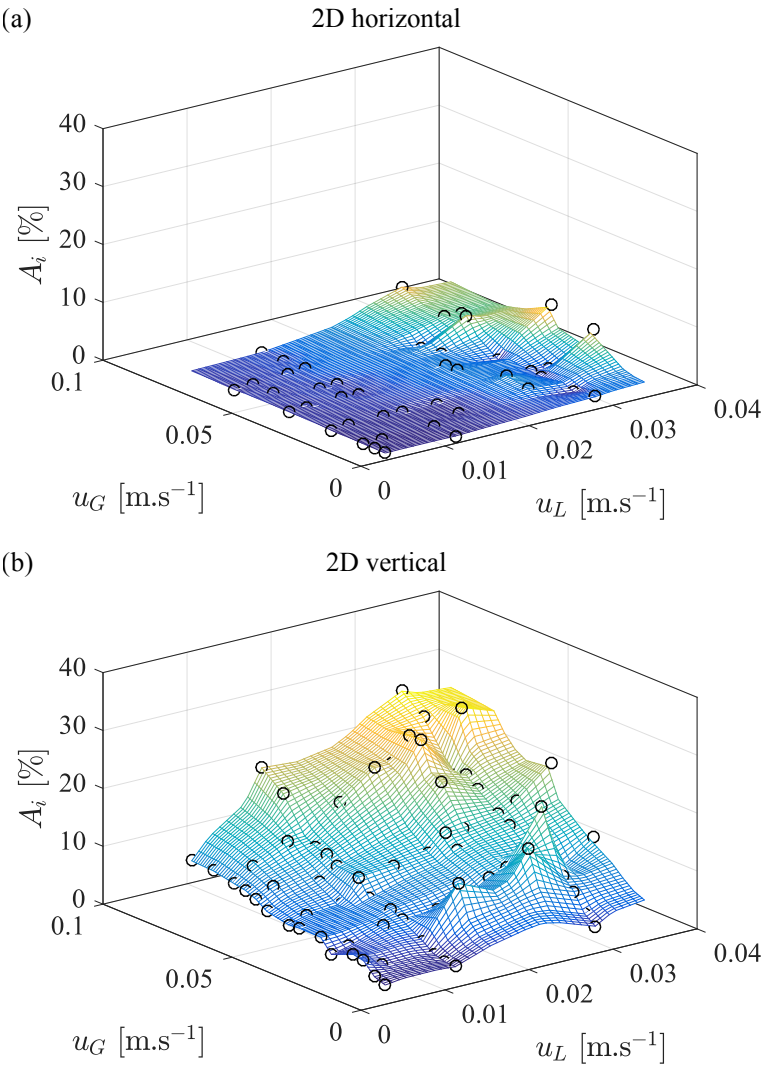

FIGURE 89 – Évolution de la fraction d'aire de mouvement d'interfaces, A_i, en fonction des vitesses de gaz u_G et de liquide u_L pour l'écoulement horizontal (a) et vertical (b) [○ : points expérimentaux, les surfaces ont été interpolées par le logiciel Matlab (Mathworks®)].

mouvements d'interfaces sont répartis sur une plus vaste zone dans le milieu poreux. Cependant, cette augmentation est de nouveau beaucoup plus marquée dans le cas de l'écoulement vertical, grâce à la flottabilité des bulles de gaz et à l'inertie de la phase liquide qui les dévie de leurs trajectoires.

Dans cette partie, la comparaison des variables A_m et A_i a permis d'observer l'effet de la gravité sur la dynamique de l'écoulement gaz-liquide dans le milieu poreux. Le dernier axe abordé dans ce manuscrit consiste à comparer les résultats obtenus sur la cellule de Hele-Shaw (2D) avec ceux obtenus dans le canal millifluidique. Cette comparaison, présentée dans la partie suivante, est effectuée sur les mêmes variables afin d'analyser, en conclusion, la prédominance du confinement ou de la gravité sur l'augmentation de la dynamique dans le système.

5.2 EFFET DU CONFINEMENT (ÉCOULEMENTS 1D/2D)

5.2.1 *Fraction d'aire de mélange*

La fraction d'aire de mélange, A_m est tracée en fonction des vitesses de gaz, u_g et de liquide, u_L respectivement en figure 90a et en figure 90b. Cette variable permet de comparer la fraction du milieu poreux couverte par un écoulement conjoint gaz-liquide dans le canal millifluidique (noté, 1D horizontal) et dans la cellule de Hele-Shaw (notée, 2D horizontal).

On observe dans un premier temps, que dans le cas du canal millifluidique, A_m est quasi-constante à la fois en fonction de u_G et en fonction de u_L. Cela peut s'expliquer par la présence de l'écoulement de Taylor généré en amont du milieu poreux. En effet, d'une part, ce dernier implique un écoulement pulsé confiné qui contraint la phase liquide à chasser le gaz sur toute la section du canal à intervalles de temps réguliers. D'autre part, comme illustré en figure 91 par les cartes de probabilité de passage du liquide (écoulement 1D, zone III, figure 20), les zones de passage de la phase gazeuse ($p_{int} < 0.7$) sont quasi-identiques quel que soit le jeu de vitesses

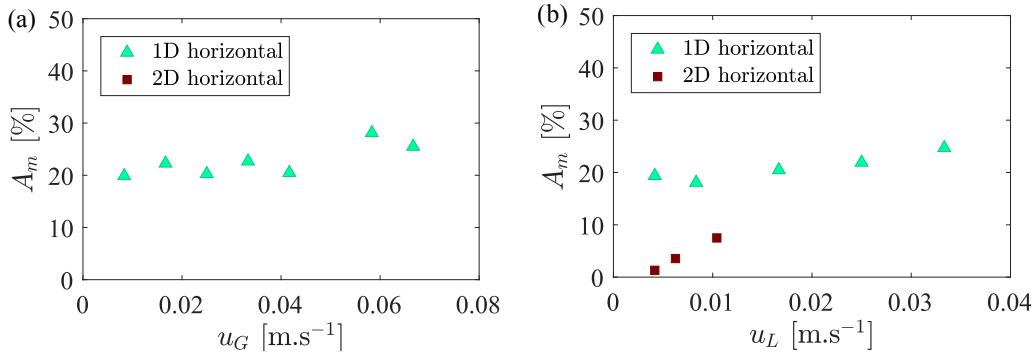

FIGURE 90 – (a) Fraction d'aire de mélange, A_m, en fonction de la vitesse de gaz, u_G à vitesse de liquide constante, $u_L = 0.0167$ m.s^{-1} (a) et en fonction de la vitesse de liquide, u_L, à vitesse de gaz constante, $u_G = 0.0420$ m.s^{-1} (b), [écoulements horizontaux 1D et 2D, absence de points pour l'écoulement horizontal 2D à $u_L = 0.0167$ m.s^{-1}].

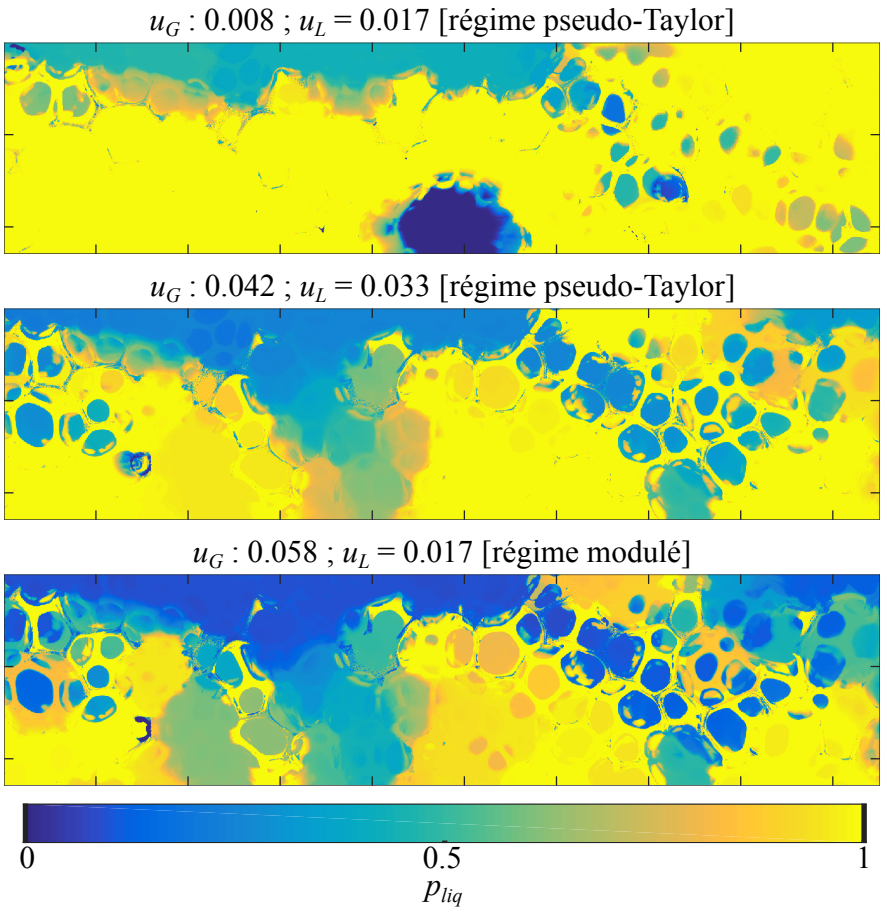

FIGURE 91 – Cartes de répartition de la probabilité de passage de la phase liquide, p_{liq}, données pour trois jeux de vitesses (exprimés en m.s^{-1}) [écoulement horizontal 1D, zone III].

$[u_G,\ u_L]$ et le régime hydrodynamique ("pseudo-Taylor", "modulé") considérés. Noter que l'absence de points pour l'écoulement 2D horizontal sur la figure 90a découle des films, non exploitables dans ce cas.

Dans un second temps, si on compare les points expérimentaux communs à l'écoulement 1D et à l'écoulement 2D (figure 90b), on constate que le confinement permet d'obtenir de plus grandes valeurs de A_m. Par ailleurs, il semble que l'augmentation de la vitesse de la phase liquide, u_L, ait plus d'influence en écoulement 2D qu'en écoulement 1D. Cet aspect illustre la prédominance des interactions capillaires sur les interactions visqueuses et inertielles dans le cas d'un écoulement confiné comme présenté dans le chapitre 1 [43].

5.2.2 *Fraction d'aire de mouvement d'interfaces*

La fraction d'aire de mouvement d'interfaces, A_i, est tracée en fonction des vitesses de gaz, u_g, et de liquide, u_L, respectivement en figure 92a et en figure 92b. Ici, cette variable permet de quantifier l'effet du confinement sur l'activité des interfaces gaz-liquide dans le milieu poreux en écoulement horizontal.

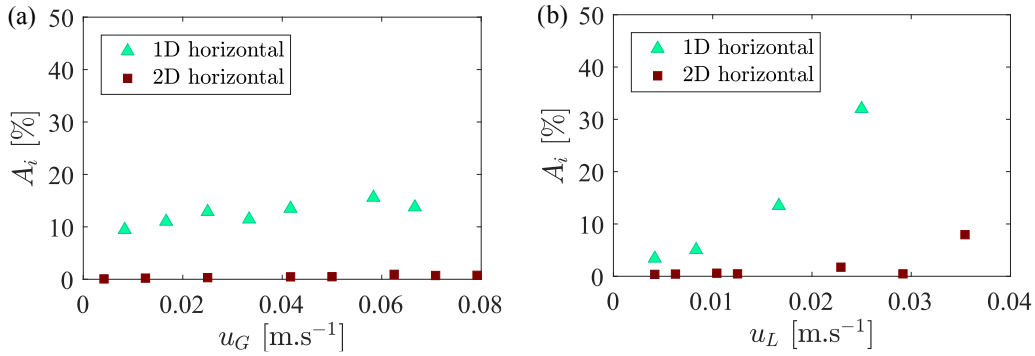

FIGURE 92 – Fraction d'aire de mouvement d'interface, A_i, en fonction de la vitesse de gaz, u_G à vitesse de liquide constante $u_L = 0.0167$ m.s^{-1} (a) et en fonction de la vitesse de liquide, u_L, à vitesse de gaz constante, $u_G = 0.0420$ m.s^{-1} (b) [écoulements horizontaux 1D et 2D].

Dans les deux configurations (1D et 2D), comme pour l'évolution de A_m, on observe que l'augmentation de la phase gazeuse, u_G, n'a pas d'incidence sur la valeur de A_i et que les valeurs atteintes par l'écoulement confiné sont supérieures à celles atteintes dans la cellule de Hele-Shaw. Cependant, l'augmentation de la vitesse de la phase liquide, u_L, accroît A_i à la fois dans l'écoulement 1D et dans l'écoulement 2D. Contrairement à la variable A_m, la variable A_i semble donc plus sensible aux contributions visqueuses, faisant intervenir u_L.

Cet aspect est mis en évidence pour le canal millifluidique par la figure 93. Elle représente les cartes de répartition de la probabilité de mouvement d'interfaces, p_{int}, pour trois jeux de vitesse $[u_G, u_L]$ au centre du milieu poreux (zone III, figure 20). On observe que les plus hautes valeurs de p_{int} sont atteintes pour la plus haute valeur de u_L (image centrale), alors que l'augmentation de u_G n'apporte pas d'activité d'interfaces supplémentaire. Par ailleurs, bien que la somme des vitesses soit identique pour les deux derniers cas illustrés en figure 93, p_{int} est en moyenne supérieure dans le premier, en régime de Taylor ($u_G = 0.042$ m.s^{-1}, pas de coalescence de bulles) par rapport au second, en régime modulé ($u_G = 0.058$ m.s^{-1}, coalescence de bulles).

La figure 94 illustre les différentes valeurs de A_i obtenues dans le canal millimétrique en fonction de la fréquence principale de l'écoulement à l'entrée du milieu poreux (zone II, figure 20). Cette représentation permet de regrouper les points expérimentaux du régime pseudo-Taylor et ceux du régime modulé (voir chapitre 4). La coalescence de bulles observée dans le régime modulé restreint la surface du milieu poreux couverte par des mouvements d'interfaces gaz-liquide. De plus, jusqu'à une certaine fréquence principale, $f_0 \sim 8$ Hz, les passages préférentiels du gaz ne semblent pas impactés par l'augmentation de f_0 car A_i est quasiment constante. En revanche à partir de $f_0 > 8$ Hz, A_i augmente significativement, ce qui implique qu'une plus grande partie du milieu poreux est couverte par des mouvements d'interfaces.

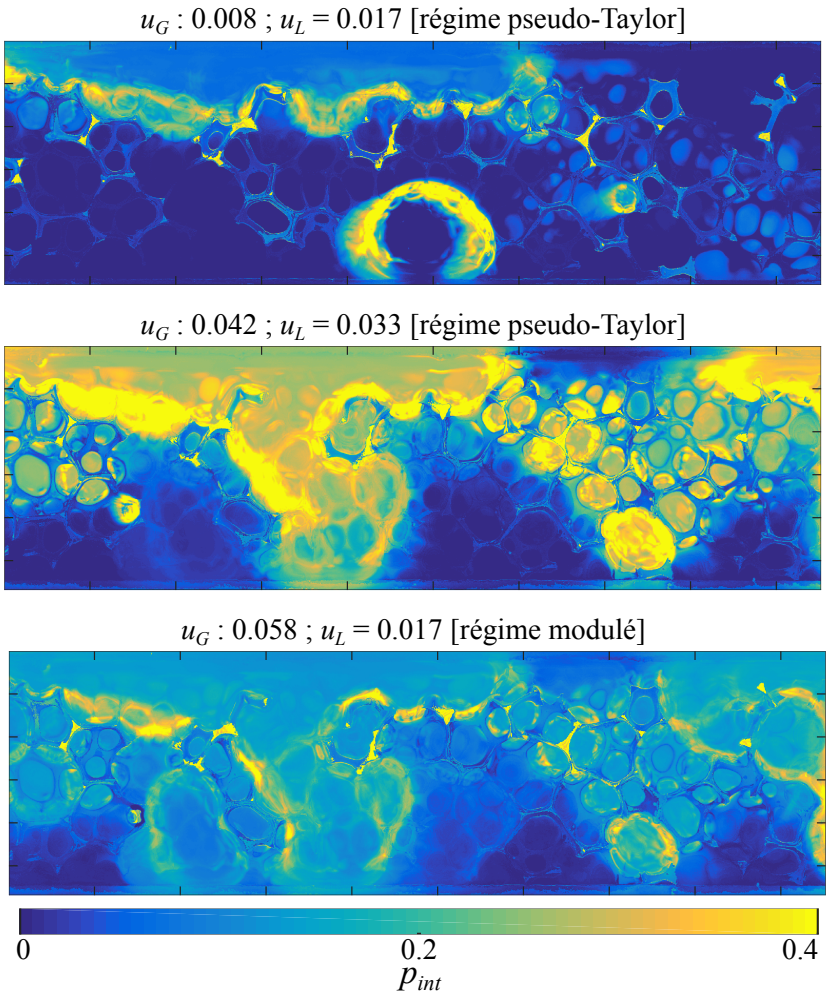

FIGURE 93 – Cartes de répartition de la probabilité de mouvement des interfaces gaz-liquide, p_{int}, données pour trois jeux de vitesses (exprimés en m.s^{-1}) [écoulements horizontal 1D, zone III].

5.3 CONCLUSION SUR LES EFFETS DE GRAVITÉ ET DE CONFINEMENT

La caractérisation de l'écoulement gaz-liquide dans une plaque de mousse a permis de mettre en évidence trois régimes hydrodynamiques dépendant de l'activité des interfaces gaz-liquide dans le milieu poreux. Le *régime de faible activité* et le *régime de forte activité* sont présents à la fois en écoulement horizontal et en écoulement vertical ascendant et la frontière qui les sépare est très similaire dans les deux cas.

L'activité des phases dans le milieu poreux est quantifiée par les variables A_m et A_i. Ces dernières sont augmentées à la fois par l'effet de la flottabilité du gaz sous l'influence de la gravité et par le confinement de l'écoulement. On se propose donc en conclusion, de comparer leurs effets sur les valeurs de A_i et de A_m afin de proposer une solution optimale dans un contexte où l'on souhaiterait augmenter les échanges gaz-liquide-solide par un apport de mouvement.

La figure 95 compare les valeurs de A_i (figures 95a et 95b) et A_m (figures 95c et 95d) pour les trois dispositifs expérimentaux en fonction de u_G et de u_L. Dans des conditions de faibles valeurs de u_G et de u_L il est plus efficace de confiner l'écoulement pour générer du mouvement que de passer en écoulement gravitaire. En revanche,

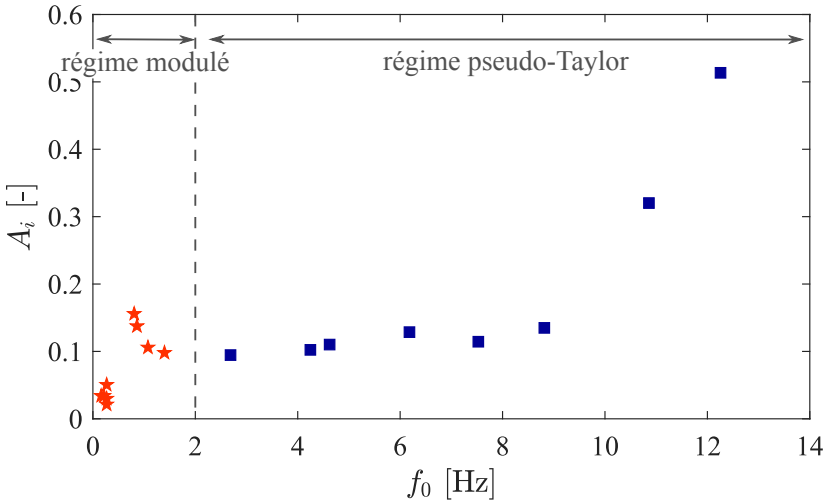

FIGURE 94 – Évolution de la fraction d'aire de mouvement d'interface, A_i en écoulement horizontal confiné dans le canal millifluidique, en fonction de la fréquence principale de l'écoulement, f_0, enregistrée à l'entrée du milieu poreux (zone I).

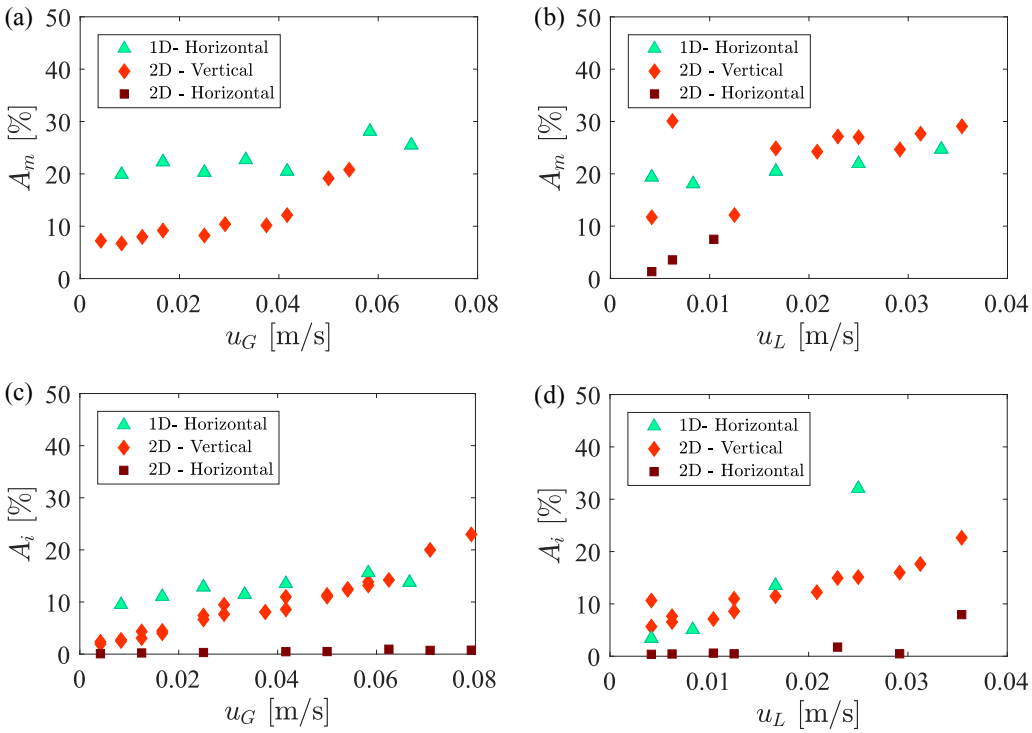

FIGURE 95 – Fraction d'aire de mélange, A_m et fraction d'aire de mouvement d'interfaces, A_i, en fonction de la vitesse de gaz, u_G à vitesse de liquide constante $u_L = 0.0167$ m.s^{-1} (a,c) et en fonction de la vitesse de liquide, u_L, à vitesse de gaz constante, $u_G = 0.0420$ m.s^{-1} (b,d).

lorsqu'une des deux phases peut être amenée à des plus hautes vitesses il y a deux possibilités :

— dans un configuration où il est préférable d'augmenter la vitesse de gaz, alors c'est l'écoulement gravitaire ascendant qui génère le plus d'activité

— s'il est préférable d'augmenter la vitesse de liquide, alors c'est l'écoulement confiné qui permet d'atteindre les plus hautes valeurs de A_i et de A_m.

L'approche statistique de la visualisation d'écoulement proposée dans cette partie a permis la définition de paramètres globaux, A_i et A_m. Leur analyse conduit vers une optimisation de la géométrie d'un dispositif gaz-liquide-solide en fonction des besoins requis. Cette approche est généralisable à d'autres méthodes de visualisation comme l'analyse par tomographie à rayons X ou à impédance électrique par exemple dans le cas de milieux poreux plus denses (lits de billes) ou plus volumineux (écoulements 3D).

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

CONTRIBUTION DE CE TRAVAIL

L'objectif de ce travail expérimental était de comparer l'hydrodynamique d'un écoulement gaz-liquide dans divers milieux poreux : un milieu modèle constitué de lits de billes polydisperses et un milieu innovant dans le domaine de la catalyse hétérogène : les mousses solides à cellules ouvertes. L'étude bibliographique a mis en avant le nombre important de travaux sur les lits de billes par rapport à ceux relatifs aux écoulements dans les mousses. De plus, ces études sont majoritairement centrées sur des milieux poreux peu ou pas confinés (cellule de Hele-Shaw ou dispositif 3D de large diamètre). Celles concernant les écoulements confinés contiennent rarement des milieux poreux.

Afin de compléter les études existantes sur les écoulements gaz-liquide, trois paramètres influant l'hydrodynamique ont été testés :

— l'effet de la géométrie du milieu poreux
— l'effet du confinement
— l'effet de la gravité.

L'effet de la géométrie a été analysé pour un écoulement confiné dans un canal millifluidique dans lequel un écoulement de Taylor se propageait dans un milieu poreux. L'objectif était de développer des analyses, globale et locale, afin de proposer une approche expérimentale multi-échelles pour décrire l'hydrodynamique de l'écoulement multiphasique.

Trois approches de l'analyse globale ont été détaillées : la quantification de la distribution de temps de séjour (DTS) de la phase liquide, les mesures de pertes de charge et de transfert gaz-liquide. Ces trois approches ont été appliquées sur tous les milieux poreux.

Basé sur une étude bibliographique, le modèle $CSTR_4$ a été sélectionné pour représenter la DTS. En effet, sans exiger une résolution complexe et lourde en temps de calcul, ce dernier prend en compte un transport "non-Fickien" par la présence de zones mortes. Cette modélisation a permis de comparer les courbes de DTS de tous les milieux poreux testés. Les principales différences sont la présence d'une longue traînée et des temps de séjour plus longs dans le cas des mousses solides. La saturation de la phase liquide est très similaire dans chaque type de milieu. Le développement d'un algorithme d'optimisation globale a assuré l'obtention d'une solution unique pour chaque point expérimental modélisé. Le sens physique des quatre coefficients du modèle $CSTR_4$ a donc pu être discuté. Aucune incohérence n'a été relevée, aussi bien dans l'évolution individuelle que collective (temps caractéristique) des paramètres.

La modélisation de la DTS a été complétée par une modélisation des pertes de charge afin de proposer un modèle global des écoulements dans chaque milieu poreux. L'adaptation du modèle de glissement de phases, représentant la saturation

liquide, a abouti à un modèle à deux paramètres validés pour tous les milieux poreux. Ce dernier a été pris en compte dans la perméabilité relative pour définir la loi de Darcy multiphasique. Ainsi définie, la loi de Darcy a montré une divergence par rapport aux résultats expérimentaux aux faibles valeurs de nombre capillaire. Un terme de piégeage capillaire a donc été ajouté à loi de Darcy pour prendre en compte les interactions à l'échelle du pore. Ce nouveau modèle, représente de façon plus satisfaisante les résultats expérimentaux. Le modèle a été validé sur 5 ordres de grandeurs, résultant des pertes de charge bien inférieures dans les mousses solides que dans les lits de billes.

Une ouverture sur des applications en réaction catalytique est proposée à la fin cette étude globale en considérant l'effet de la forte différence des pertes de charge sur le transfert gaz-liquide. Cette étude a montré que pour une vitesse de dissipation d'énergie 1000 fois plus faible, les mousses permettaient d'atteindre les mêmes valeurs de $k_l a$ (coefficient de transfert gaz-liquide) que les lits de billes. Ce résultat est très prometteur pour leur utilisation en tant que support de catalyseur ou contacteur gaz-liquide dans des géométries similaires. L'extrapolation vers des plus grands dispositifs (écoulements 2 et 3D) est encore délicate et nécessite de nouvelles caractérisations.

Une analyse locale a ensuite été proposée pour caractériser l'écoulement gaz-liquide dans les mousses solides à l'échelle du pore. Cette analyse a pu être effectuée par visualisation directe de l'écoulement grâce à leur fort degré d'ouverture, ce qui n'est pas le cas pour les lits de billes, et aux petites dimensions du canal millifluidique. À l'issue de cette étude, deux régimes hydrodynamiques ont été identifiés. Le premier, dit "régime pseudo-Taylor", a été caractérisé par la propagation des bulles à la même fréquence que celle imposée en amont par l'écoulement de Taylor. Le second, appelé "régime modulé", a été caractérisé par la coalescence des bulles au cours de la propagation dans le milieu poreux à une fréquence plus basse que celle de l'écoulement de Taylor en amont. La transition entre les deux régimes a été modélisée selon deux approches :

— une analyse dimensionnelle considérant l'entrée de la bulle dans le milieu poreux
— le développement d'un modèle phénoménologique, proposant un mécanisme de propagation et de coalescence des bulles dans le milieu poreux.

Les deux approches ont permis de reproduire les résultats expérimentaux. De plus, elles ne dépendent que des paramètres de l'écoulement et du milieu poreux. Cela pourrait permettre, à terme, de réduire le nombre d'acquisitions expérimentales pour caractériser l'hydrodynamique de l'écoulement généré.

Un deuxième dispositif expérimental, permettant de générer un écoulement 2D moins contraint, a été réalisé dans le cadre de cette thèse. Il consiste en une cellule de Hele-Shaw, orientée horizontalement ou verticalement, dans laquelle un écoulement gaz-liquide conjoint traverse une plaque de mousse solide. Dans un premier temps, la caractérisation de l'écoulement a conduit à la détermination de trois régimes hydrodynamiques que l'on peut distinguer par l'activité des interfaces gaz-liquide. Dans un deuxième temps, deux paramètres statistiques globaux ont été définis pour représenter les zones couvertes par les passages préférentiels de la phase gazeuse ainsi que

celles couvertes par un mouvement des interfaces gaz-liquide. Une étude détaillée de leur comportement a été déclinée pour analyser :

— l'influence de la gravité : comparaison entre les écoulements 2D horizontal et vertical ascendant
— l'influence du confinement : comparaison entre les écoulements 2D et 1D horizontaux.

Dans les deux cas, la flottabilité du gaz et le confinement ont été des facteurs de réduction des zones non actives (uniquement parcourues par la phase liquide ou sans mouvement d'interfaces).

PERSPECTIVES

Les travaux de cette thèse peuvent être complétés et améliorés à la fois dans l'analyse globale et dans l'analyse locale de l'écoulement gaz-liquide.

Concernant l'analyse globale, la reproductibilité de l'acquisition expérimentale des distributions de temps de séjour (DTS) a été discutée. En effet, l'enregistrement du passage du traceur est effectué en deux points : en entrée et sortie du milieu poreux. Chaque enregistrement est indépendant et nécessite une injection de traceur qui perturbe l'écoulement. Le manque de reproductibilité provient essentiellement de cette perturbation différente à chaque injection. Il serait donc préférable de procéder aux deux acquisitions simultanément sur la même injection.

Pour compléter les résultats acquis sur le dispositif 1D, il serait intéressant de faire varier la nature des fluides pour observer l'influence de la viscosité, de la densité, de la mouillabilité ou encore de la tension de surface sur les courbes de DTS. Comme pour l'analyse locale, il est envisagé d'analyser l'effet du confinement sur le temps de séjour et la dispersion de la phase liquide. Pour ce faire, le dispositif 2D a été équipé de conductimètres. Le manque de reproductibilité de l'injection a été corrigé en prévoyant d'effectuer une acquisition simultanée en entrée et en sortie du milieu poreux. De plus, la modélisation des courbes de DTS dans le dispositif 2D permettrait d'obtenir de nouvelles valeurs des coefficients du modèle $CSTR_4$ dans des conditions hydrodynamiques sensiblement différentes du canal millimétrique, avec la possibilité de varier le type d'injection de la phase gazeuse (ponctuelle ou multipoints), et la nature des milieux poreux (test des lits de billes, et autres mousses). Cela ouvre alors à plus de variations pour valider leur sens physique.

Par ailleurs, le travail effectué sur les mesures de transfert gaz-liquide est encore préliminaire. Il serait donc souhaitable de poursuivre l'interprétation des données expérimentales acquises dans le canal millifluidique pour en extraire une corrélation sur l'évolution du coefficient de transfert gaz-liquide, $k_l a$, en fonction des paramètres de l'écoulement et du milieu poreux. Des mesures complémentaires dans le dispositif expérimental 2D permettraient de discuter de l'effet du confinement sur cette troisième variable globale.

Enfin, la quantification de $k_l a$ est effectuée par visualisation directe. Cette technique a montré des potentialités de visualisation de l'écoulement dans le milieu poreux pour l'observation de la répartition des phases. L'adaptation de cette technique au suivi du transfert gaz-liquide dans le milieu poreux apporterait de riches informa-

tions sur le rôle de ce dernier dans ce mécanisme.

Concernant l'analyse locale, il serait intéressant d'approfondir la loi d'échelle et le modèle phénoménologique pour qu'ils deviennent prédictifs. Pour la loi d'échelle, il reste à tester la valeur du nombre de Weber à la transition entre le régime "pseudo-Taylor" et le régime "modulé", noté We^*, en étudiant des milieux poreux plus variés. Si la transition reste à $We^* = 1$, la loi d'échelle est validée et prédictive telle qu'elle est présentée dans ce travail de thèse. Sinon, le test de différents milieux poreux permettrait d'obtenir une relation entre We^* et n_p (nombre de pores compris dans la section perpendiculaire à l'écoulement), afin de rendre la loi prédictive.

Pour le modèle phénoménologique, la prédiction de la coalescence des bulles est, à ce stade, qualitative. La prise en compte de la déstabilisation du canal dans ce modèle permettrait potentiellement d'obtenir une prédiction quantitative de la fréquence de coalescence des bulles. Cet aspect, plus complexe, semble s'appuyer sur une instabilité de type Rayleigh-Plateau, mais n'a pas été examiné au cours de ces travaux.

Afin de compléter la valorisation des résultats expérimentaux par des compétences externes aux laboratoires dans lesquels ces travaux ont été réalisés, deux partenariats ont été créés avec des instituts internationaux. Le premier a été développé avec le Karlsruhe Instute of Technology (KIT, Allemagne) pour le développement de modèles numériques en CFD ("Computational Fluid Dynamics") à partir des données de visualisation locale de l'écoulement. L'objectif est d'échanger avec cet institut pour développer une modélisation en champ de phases des écoulements générés dans le canal millifluidique. Les propriétés intrinsèques à ce dernier (maîtrise de la distribution des phases, section de petite dimension et qualité des données expérimentales) sont particulièrement intéressantes car elles permettent de générer des modèles précis (finesse de la grille de modélisation) pour un temps de calcul modéré (quelques semaines). Pour l'instant, la modélisation porte sur l'entrée d'une bulle de Taylor dans une mousse solide de quelques millimètres. La validation de leur modèle par les variables mesurées pendant cette thèse est en cours. Elle se poursuivra par la propagation d'un écoulement de Taylor contenant plusieurs bulles dans le milieu poreux plus long.

Enfin, un second partenariat avec l'équipe du Professeur Larachi de l'Université Québec (Montréal, Canada), a pour objectif de mesurer un écoulement gaz-liquide 3D dans des mousses solides en vue de compléter l'étude de l'effet du confinement sur l'hydrodynamique (suppression d'un deuxième degré de confinement). Les mesures envisagées quantifieraient la répartition des phases gaz-liquide dans la mousse au cours de la propagation de l'écoulement. Le dispositif expérimental envisagé est un tomographe à impédance électrique. Ce dernier a une résolution spatiale réduite par rapport aux tomographes à rayons X mais il bénéficie d'une très bonne résolution temporelle. Cette étude permettrait de compléter l'effet du confinement sur les écoulements multiphasiques en milieu poreux sur une gamme de vitesses commune aux trois dimensions. Cette étude complète (1D, 2D et 3D) constituerait alors un travail original et innovant.

BIBLIOGRAPHIE

[1] *Wallpaper Abyss*. URL: http://wall.alphacoders.com

[2] *Enhanced Oil Recovery Pumps - Cat Pumps*. URL: http://www.catpumps.com

[3] *Other Energy Studies - Gas Hydrates, USGS-ERP*. URL: http://energy.usgs.gov

[4] *Catalysis Science & Technology Blog, Royal Society of Chemistry*. URL: http://blogs.rsc.org/cy/author/defaverig-ext/

[5] A. Babchin, I. Brailovsky, P. Gordon et G. Sivashinsky. « Fingering instability in immiscible displacement ». *Physical Review E* **77** (2008), 026301

[6] L. Naudts, J. Greinert, Y. Artemov, S.E. Beaubien, C. Borowski et M. De Batist. « Anomalous sea-floor backscatter pattern in methane venting areas, Dnepr paleo-delta, NW Black Sea ». *Marine Geology* **251** (2008), 253 –267

[7] M. Hovland, J.V. Gardner et A.G. Judd. « The significance of pockmarks to understanding fluid flow processes and geohazards ». *Geofluids* **2** (2002), 127–136

[8] A. Gay, M. Lopez, P. Cochonnat, M. Séranne, D. Levaché et G. Sermondadaz. « Isolated seafloor pockmarks linked to BSRs, fluid chemineys, polygonal faults and stacked Oligocene Miocene turbiditic paleochannels in the Lower Congo Basin ». *Marine Geology* **226** (2007), 25–40

[9] A. Gay, M. Lopez, C. Berndt et M. Séranne. « Geological controls on focused fluid flow associated with seafloor seeps in the Lower Congo Basin ». *Marine Geology* **244** (2007), 68–92

[10] J. B. Tary, L. Géli, C. Guennou, P. Henry, N. Sultan, N. Çağatay et V. Vidal. « Microevents produced by gas migration and expulsion at the seabed : a study based on sea bottom recordings from the Sea of Marmara ». *Geophysical Journal International* **190** (2012), 993–1007

[11] V. Mastalerz, G.J. de Lange, A. Dählmann et T. Feseker. « Active venting at the Isis mud volcanoe, offshore Egypt : Origin and migration of hydrocarbons ». *Chemical Geology* **246** (2007), 87–106

[12] A. Mazzini, H. Svensen, G.G. Akhmanov, G. Aloisi, S. Planke, A. Malthe-Sø rrenssen et B. Istadi. « Triggering and dynamic evolution of the LUSI mud volcano, Indonesia ». *Earth and Planetary Science Letters* **261** (2007), 375–288

[13] S. Planke, H. Svensen, M. Hovland, D.A. Banks et B. Jamtveit. « Mud and fluid migration in active mud volcanoes in Azerbaidjan ». *Geo-Marine Letters* **23** (2003), 258–268

[14] K.R. Reddy et J.A. Adams. « Effects of soil heterogeneity on airflow patterns and hydrocarbon removal during in situ air sparging ». *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering* **127** (2001), 234–247

[15] R. Semer, J.A. Adams et K.R. Reddy. « An experimental investigation of air flow patterns in saturated soils during air sparging ». *Geotechnical and Geological Engineering* **16** (1998), 59–75

[16] Q. Kang, I.N. Tsimpanogiannis, D. Zhang et P.C. Lichtner. « Numerical modeing of pore-scale phenomena during CO2 sequestration in oceanic sediments ». *Fuel Processing Technology* **86** (2005), 1647 –1665

[17] J.K. Eccles, L. Pratson, R.G. Newell et R.B. Jackson. « Physical and economic potential of geological CO2 storage in saline aquifers ». *Environmental Science & Technology* **43** (2009), 1962–1969

[18] M.W. Losey, M.A. Schmidt et K.F. Jensen. « Microfabricated Multiphase Packed-Bed Reactors : Characterization of Mass Transfer and Reactions ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **40** (2001), 2555–2562

[19] V. Hessel, P. Angeli, A. Gavriilidis et H. Lowe. « Gas-liquid and gas-liquid-solid microstructured reactors : Contacting principles and applications ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **44** (2005), 9750–9769

[20] N. Marquez, P. Castano, M. Makkee, J. A. Moulijn et M. T. Kreutzer. « Dispersion and holdup in multiphase packed bed microreactors ». *Chemical Engineering & Technology* **31** (2008), 1130–1139

[21] N. Al-Rifai, F. Galvanin, M. Morad, E. Cao, S. Cattaneo, Sankar M., V. Dua et A. Gavriilidis. « Hydrodynamic effects on three phase micro-packed bed reactor performance - Gold-palladium catalysed benzil alcohol oxidation ». *Chemical Engineering Science* **149** (2016), 129–142

[22] W. Schwieger, G.A. Machoke, T. Weissenberger, A. Inayat, T. Selvam, M. Klumpp et A. Inayat. « Hierarchy concepts : classification and preparation strategies for zeolite containing materials with hierarchical porosity ». *The Royal Society of Chemistry* **45** (2016), 3353–3376

[23] K. Pangarkar, T.J. Schildhauer, J.R. van Ommen, J. Nijenhuis, F. Kapteijn et J.A. Moulijn. « Structured packings for multiphase catalytic reactors ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **47** (2008), 3720–3751

[24] B. Malama, K.L. Kuhlman et S.C. James. « Core-scale solute transportmodel selection using Monte Carlo analysis ». *Water Ressousces Research* **49** (2013), 20273

[25] B. Berkowitz, A. Cortis, M. Dentz et H. Scher. « Modeming non-fickian transport in geological formations as a Continuous Time Random Walk ». *Reviews of Geophysics* **44** (2006), 2005RG000178

[26] F. Dorai. « Étude numérique des chargements, de l'hydrodynamique et de la réactivité dans des réacteurs pilotes à lits fixes ». Thèse de doctorat. Université de Toulouse, 2015

[27] M. Leva et M. Grummer. « Pressure drop through packed tubes. 3. Prediction of voids in packed tubes ». *Chemical Engineering Progress* **43**. (1947), 713–718

[28] A. de Klerk. « Voidage variation in packed beds at small column to particle diameter ratio ». *AIChE Journal* **49** (2003), 2022 –2029

[29] R. Zou et A. Yu. « The packing of spheres in a cylindrical container : the thickness effect ». *Chemical Engineering Science* **50** (1995), 1504–1507

[30] J. Banhart. « Manufacture, characterisation and application of cellular metals and metal foams ». *Progress in Material Science* **46** (2001), 559–632

[31] K. Besnard. « Modélisation du transport réactif dans les milieux poreux hétérogènes. Application aux processus d'adsorption cinétique non linéaire. » Thèse de doctorat. Université de Rennes 1, 2003

[32] J.-P. Bonnet. « Phénomènes de transport dans les mousses métalliques : approche expérimentale des écoulements monophasiques et liquide-gaz ». Thèse de doctorat. Universite de Provence Aix-Marseille 1, 2007

[33] G.F. Pinder et W.G. Gray. *Essentials of multiphase flow and transport in porous media*. Wiley, 2008

[34] L. Giani, G. Groppi et E. Tronconi. « Mass-transfer characterization of metallic foams as supports for structured catalysts ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **44** (2005), 4993–5002

[35] S. Davies G.J. ans Zhen. « Metallic foams : their production, properties and applications ». *Journal of Material Science* **18** (1983), 1899–1911

[36] P. Rodriguez, V. Meille, S. Pallier et M.A. Al Sawah. « Deposition and characterisation of TiO_2 coatings on various supports for structured (photo) catalytic reactors ». *Applied Catalysis A : General* **360** (2009), 154–162

[37] C. P. Stemmet, J. N. Jongmans, J. van der Schaaf, B. F. M. Kuster et J. C. Schouten. « Hydrodynamics of gas–liquid counter-current flow in solid foam packings ». *Chemical Engineering Science* **60** (2005), 6422–6429

[38] F. Topin, J.-P. Bonnet, B. Madani et L. Tadrist. « Experimental analysis of multiphase flow in metallic foam : flow laws, heat transfer and convective boiling ». *Advanced Engineering Materials* **8** (2006), 890–899

[39] D. Edouard, M. Lacroix, C. Pham, M. Mbodji et C. Pham-Huu. « Experimental measurements and multiphase flow models in solid SiC foam beds ». *AIChE Journal* **54** (2008), 2823–2832

[40] O. Gerbaux, T. Vercueil, A. Memponteil et B. Bador. « Experimental Characterization of sigle and two-phase flow through nickel foams ». *Chemical Engineering Science* **64** (2009), 4186–4195

[41] S. Calvo, D. Beugre, M. Crine, A. Léonard, Marchot P. et D. Toye. « Phase distribution measurements in metallic foam packing using X-ray radiography and micro-tomography ». *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification* **48** (2009), 1030–1039

[42] J.-N. Tourvieille, R.s Philippe et C. de Bellefon. « Milli-channel with metal foams under an applied gas-liquid periodic flow : Flow patterns, residence time distribution and pulsing properties ». *Chemical Engineering Science* **126** (2015), 406–426

[43] M.T. Kreutzer, F. Kapteijn, J.A. Moulijn et J.J. Heiszwolf. « Multiphase monolith reactors : Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels ». *Chemical Engineering Science* **60** (2005), 5895–5916

[44] B. Sandnes, E. G. Flekkøy, H. A. Knudsen, K. J. Måløy et H. See. « Patterns and flow in frictional fluid dynamics ». *Nature Communications* **2** (2011), 288

[45] G. Varas, V. Vidal et J.-C. Géminard. « Venting dynamics of an immersed granular layer ». *Physical Review E* **83** (2011), 011302

[46] R. Holtzman et R. Juanes. « Crossover from fingering in deformable disordered media ». *Physical Review E* **82** (2010), 046305

[47] J.-D. Chen et D. Wilkinson. « Pore-scale viscous fingering in porous media ». *Physical Review Letters* **55** (1985), 1213–1218

[48] A. Attou, C. Boyer et G. Ferschneider. « Modelling of the hydrodynamics of the cocurrent gas-liquid trickle flow through a trickle-bed reactor ». *Chemical Engineering Science* **54** (1999), 785–802

[49] A. Gianetto, G. Baldi et V. Specchia. « Absorption in packed towers cocurrent high velocity flows : I-interfacial areas. » *Quaderni dell'ingegnere chimico italiano* **6** (1970), 125–133

[50] J.-C. Charpentier et M. Favier. « Some liquid holdup experimental data in trickle-bed reactors for foaming and nonfoaming hydrocarbons ». *AIChE Journal* **21** (1975)

[51] D. Schweich. *Génie de la réaction chimique*. TEC Editions, 2001

[52] E.W. Llewellin, E. del Bello, J. Tadducci, P. Scarlato et S.J. Lane. « The thicness of the failing film of liquid around a Taylor bubble ». *Proceedings of the Royal society A* **468** (2012), 1041–1064

[53] R.F. Mudde. « Gravity-driven bubbly flows ». *Annual Review of Fluid Mmechanics* **37** (2005), 393–423

[54] F. P. Bretherton. « The motion of long bubbles in tubes ». *Journal of Fluid Mechanics* **10** (1961), 166–188

[55] P. Aussillous et D. Quéré. « Quick deposition of a fluid on the wall of a tube ». *Physics of Fluids* **12** (2000), 2367–2371

[56] P. Garstecki, M.J. Fuerstman, H.A. Stone et G.M. Whitesides. « Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction - scaling and mechanism of break-up ». *Lab on a Chip* **6** (2006), 437–446

[57] M. Roudet, K. Loubiere, C. Gourdon et M. Cabassud. « Hydrodynamic and mass transfer in inertial gas-liquid flow regimes through straight and meandering millimetric square channels ». *Chemical Engineering Science* **66** (2011), 2974–2990

[58] A. Rysak, G. Litak, R. Mosdorf et G. Górski. « Investigation of two-phase flow patterns by analysis of Eulerian space-time correlations ». *International Journal of Multiphase Flow* **85** (2016), 23–37

[59] A. Leclerc, R. Philippe, V. Houzelot, D. Schweich et C. de Bellefon. « Gas-liquid Taylor flow in square micro-channels : New inlet geometries and interfacial area tuning ». *Chemical Engineering Journal* **165** (2010), 290–300

[60] J.-N. Tourvieille, R. Philippe et C. de Bellefon. « Milli-channel with metal foams under an applied gas-liquid periodic flow : external mass transfer performance and pressure drop ». *Chemical Engineering Journal* **267** (2015), 332–346

[61] C. Butler, E Cid et A.-M. Billet. « Modelling of mass transfert in Taylor flow : investigation with the PLIF-I technique ». *Chemical Engineering Research and Design* **115** (2016), 292–302

[62] M. Dentz, H. Kinzelbach, S. Attinger et W. Kinzelbach. « Temporal behavior of a solute cloud in a heterogeneous porous medium 1. Point-like injection ». *Water Resources Research* **36** (2000), 3591–3604

[63] R. Haggerty, S.M. Wondzell et M.A. Johnson. « Power-law residence time distribution in the hyporheic zone of a 2nd-order mountain stream ». *Geophysical Research Letters* **29** (2002), 1640

[64] M.B. Cardenas et X.W. Jiang. « Grounwater flow, transport, and residence times through topography-driven basins with exponentially decreasing permeability and porosity ». *Water Resources Research* **46** (2010), W11538

[65] B. Noetinger, D. Roubinet, A. Russian, T. Le Borgne, F. Delay, M. Dentz, J.R. De Dreuzy et P. Gouze. « Random walk methods for modelling hydrodynamic transport in porous media from pore to reservoir scale ». *Transport in Porous Media* **115** (2016), 345–385

[66] J. Villermaux. *Génie de la réaction chimique*. TEC Editions, 1993

[67] P.V. Danckwerts. « Continuous flow systems : Distribution of Residence Time ». *Chemical Engineering Science* **2** (1953), 1–13

[68] C. Boyer, A.-M. Duquenne et G. Wild. « Measuring techniques in gas-liquid and gas-liquid-solid reactors ». *Chemical Engineering Science* **57** (2002), 3185–3215

[69] D. van Herk, M.T. Kreutzer, M. Makkee et J.A. Moulijn. « Scaling down trickle bed reactors ». *Catalysis Today* **106** (2005), 227–232

[70] M. T. Kreutzer, J.J.W. Bakker, F. Kapteijn, J.A. Moulijin et P.J.T. Verheijen. « Scaling-up multiphase monolith reactors : linking residence time disctribution and feed maldistribution ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **44** (2005), 4898–4193

[71] F. Trachsel, A. Ganther, S. Khan et K.F. Jensen. « Measurement of residence time distribution in microfluidic systems ». *Chemical Engineering Science* **60** (2005), 5729–5737

[72] M. Levy et B. Berkowitz. « Measurement and analysis of non-Fickian dispersion in heterogeneous porous media ». *Journal of Contaminant Hydrology* **64** (2003), 203–226

[73] C.H. Hornung et M.R. Mackley. « The measurement and characterization of residence time distributions for laminar liquid flow in plastic microcapilary arrays ». *Chemical Engineering Science* **64** (2009), 3889–3902

[74] C. Hutter, A. Zenklusen, R. Lang et Ph. Rudolf von Rohr. « Axial dispersion in metal foams and streamwise-periodic porous media ». *Chemical Engineering Science* **66** (2011), 1132–1141

[75] M. Saber, C. Pham-Huu et D. Edouard. « Axial dispersion based on the residence time distribution curves in a millireactor filled with -SiC foam catalyst ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **51** (2012), 15011–15017

[76] I. Mohammed, T. Bauer, M. Schubert et R. Lange. « Hydrodynamic multiplicity in a tubular reactor with solid foam packings ». *Chemical Engineering Journal* **231** (2013), 334–344

[77] A. Bittante, J. García-Serna, P. Biasi, F. Sobrón et T. Salmi. « Residence time and axial dispersion of liquids in Trickle Bed Reactors at laboratory scale ». *Chemical Engineering Journal* **250** (2014), 99–111

[78] W.P.M. Van Swaaij, J.C. Charpentier et J. Villermaux. « Residence time distribution in the liquid phase of trickle flow in packed columns ». *Chemical Engineering Science* **24** (1969), 1083–1095

[79] R. Haggerty, S.A. McKenna et L.CL Meigs. « On the late-time behavior of tracer test breackthrough curves ». *Water Ressources Research* **36** (2000), 3467–3479

[80] M. Sardin, D. Schweich, F.J. Leij et M.T. Vangenuchten. « Modeling the nonequilibrium transport of linearly interacting solutes in porous-media - a review ». *Water Resources Research* **27** (1991), 2287–2307

[81] M. Dentz, A. Cortis, H. Scher et B. Berkowitz. « Time behavior of solute transport in heterogeneous media : transition from anomalous to normal transport ». *Advances in Water Resources* **27** (2004), 155–173

[82] M. Dentz, P.K. Kang et T. Le Borgne. « Continuous time random walks for non-local radial solute transport ». *Advances in Water Resources* **82** (2015), 16–26

[83] Henry Darcy. *Les Fontaines publiques de la ville de dijon*. Ed. by Paris Dalmont. Dalmont, Paris, 1856

[84] Philipp Forchheimer. « Wasserbewegung durch boden ». *Z. Ver. Deutsch. Ing* **45** (1901), 1788

[85] A.E. Saez et R.G. Carbonell. « Hydrodynamic parameters for gas-liquid cocurrent flow in packed beds ». *AIChE Journal* **31** (1985), 52–62

[86] K. T. Tallakstad, G. Løvoll, H.A. Knudsen, T. Ramstad, E.G. Flekkøy et K.J. Måløy. « Steady-state, simultaneous two-phase flow in porous media : An experimental study ». *Physical Review E* **80** (2009), 036308

[87] M. Lacroix, P. Nguyen, D. Schweich, C. Pham Huu, S. Savin-Poncet et D. Edouard. « Pressure drop measurements and modeling on SiC foams ». *Chemical Engineering Science* **62** (2007), 3259–3267

[88] I. S. Hussaini et C.Y. Wang. « Measurement of relative permeability of fuel cell diffusion media ». *Journal of Power Sources* **195** (2010), 3830–3840

[89] P.C. Carman. « Fluid flow through granular beads ». *Transactions - Institutions of Chemical Engineers* **15** (1937), 150–166

[90] S. Ergun. « Fluid flow through packed columns ». *Chemical Engineering Progress* **48** (1952), 89–94

[91] D.G. Avraam et A.C. Payatakes. « Flow mechanisms, relative permeabilities, and coupling effects in steady-state two-phase flow through porous media. The case of strong wettability ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **38** (1999), 778–786

[92] E. Dana et F. Scoczylas. « Experimental study of two-phase flow in three sandstones. I. Measuring relative permeabilities during two-phase steady-state experiments ». *International Journal of Multiphase Flow* **28** (2002), 1719–1736

[93] V. Joekar-Niasar, S. M. Hassanizadeh et A. Leijnse. « Insights into the relationships among capillary pressure, saturation, interfacial area and relative permeability using pore network modeling ». *Transport in Porous Media* **74** (2008), 201–219

[94] M. Akbarabadi et M. Piri. « Realative Permeability hysteresis and capillary trapping characteristics of supercritical CO2/brine systems : An experimental study at reservoir conditions ». *Advances in Water Resources* **52** (2013), 190–206

[95] J. Zalucky, F. Möller, M. Schubert et U. Hampel. « Flow regime transition in open-cell solid foam packed reactors : adaptation of the relative permeability concept and experimental ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **54** (2015), 9708–9721

[96] R. A. Holub, M. P. Duduković et P. A. Ramachandran. « A phenomenological model for pressure drop, liquid holdup, and flow regime transition in gas-liquid trickle flow ». *Chemical Engineering Science* **47** (1992), 2343–2348

[97] M. Fourar, R. Lenormand et F. Larachi. « Extending the F-function concept to two-phase flow in trickle beds ». *Chemical Engineering Science* **56** (2001), 5987–5994

[98] M. H. Al-Dahhan, M. R. Khadilkar, Y. Wu et M. P. Dudukovic. « Prediction of pressure drop and liquid holdup in high-pressure trickle-bed reactors ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **37** (1998), 793–798

[99] D. Edouard, M. Lacroix, C.P. Huu et F. Luck. « Pressure drop modeling on solid foam : state-of-the art correlation ». *Chemical Engineering Journal* **144** (2008), 299–311

[100] G.B. Wallis. *One dimensional two phase flow*. McGraw Hill, 1962

[101] R.C. Darton et D. Harrison. « Gas and liquid hold-up in three-phase fluidisation ». *Chemical Engineering Science* **30** (1975), 581–586

[102] E.J. Molga et K.R. Westerterp. « Experimental study of a cocurrent upflow packed bed bubble column reactor : pressure drop, holdup and interfacial area ». *Chemical Engineering and Processing* **36** (1997), 489–495

[103] J.-N. Tourvieille. « Innovating microdtructured gas-liquid-solid reactors : A contribution to the understanding of hydrodynamics and mass trasfer ». Thèse de doctorat. Université Claude Bernard Lyon 1, 2014

[104] E. Brun, J. Vicente, F. Topin et R. Occelli. « iMorph : A 3D morphological tool to fully analyze all kind of cellular materials ». *Cellmeto8*. 2008

[105] S. Voltolina, P. Marìn, F.V. Díez et S. Ordóñez. « Open-cell foams as beds in multiphase reactors : Residence time distribution and mass transfer ». *Chemical Engineering Journal* **316** (2017), 323–331

[106] Kuhn S. Fransen S. « A model-based technique for the determination of interfacial fluxes in gas-liquid flows in capillaries ». *Reaction Chemistry & Engineering* **1** (2016), 288–299

[107] K.F. Kuhn S. Jensen. « A pH-sensitive laser-induced-fluorescence technique to monitor mass transfer in multiphase flows in microfuidic devices ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **51** (2012), 8999–9006

[108] P. Valiorgue, N. Souzy, M. El Hajem, H. Ben Hadid et S. Simoëns. « Concentration measurement in the wake of a free rising bubble using planar laser-induced fluorescence (PLIF) with a calibration taking into account fluorescence extinction variations ». *Experiments in Fluids* **54** (2013), 1501

[109] L. Lindqvist. « A flash photolysis of fluorescein ». *Arkiv för kemi* **16** (1960), 79–138

[110] D.A. Walker. « A fluorescence technique for measurement of concentration in mixing fluids ». *J.Phys.E. : Sci.Instrum.* **20** (1987), 217–224

[111] M. C Gruber, S. Radl et J.G. Khinast. « Rigorous modeling of CO 2 absorption and chemisorption : The influence of bubble coalescence and breakage ». *Chemical Engineering Science* **137** (2015), 188–204

[112] M. Wolff, B. Flemish et R. Helmig. « An adaptive multiscale approach for modeling two-phase flow in porous media including capillary pressure ». *Water Resources Research* **49** (2013), 8139–8159

[113] C. P. Stemmet, F. Bartelds, J. van der Schaaf, B. F. M. Kuster et J. C. Schouten. « Influence of liquid viscosity and surface tension on the gas–liquid mass transfer coefficient for solid foam packings in co-current two-phase flow ». *Chemical Engineering Research and Design* **86** (2008), 1094–1106

[114] M. Roudet. « Hydrodynamique et transfert de masse autour d'une bulle confinée entre deux plaques ». Thèse de doctorat. Université de Toulouse, 2008

[115] V. van Steijn, M.T. Kreutzer et C.R. Kleijn. « μ-PIV study of the formation of segmented flow in microfluidic T-junctions ». *Chemical Engineering Science* **62** (2007), 7505–7514

[116] N. Volkel. « Design and characterizationof gas-liquid microreactors ». Thèse de doctorat. Universite de Toulouse, 2009

[117] M. Serres, M.-L. Zanota, R. Philippe et V. Vidal. « On the stability of Taylor bubbles inside a confined highly porous medium ». *International Journal of Multiphase Flow* **85** (2016), 157–163

[118] S. Galinat, O. Masbernat, P. Guiraud, C. Dalmazzone et C. Noik. « Drop break-up in turbulent pipe flow downstream of a restriction ». *Chemical Engineering Science* **60** (2005), 6511–6528

[119] D. K. R. Nambiar, R. Kumar, T. R. Das et K. S. Gandhi. « A nex model for the breakage frequency of drops in turbulent stirred dispersions ». *Chemical Engineering Science* **12** (1992), 2989 –3002

[120] J. S. Percy et C. A. Sleicher. « Drop breakup in the flow of immiscible liquids through an orifice in a pipe ». *AIChE Journal* **29** (1983), 161–164

[121] L.-D. Clements et P.C. Schmidt. « Dynamic liquid holdup in two-phase downflow in packed beds : air-silicone oil system ». *AIChE Journal* **26** (1980), 317–319

[122] F. Larachi, A. Laurent, G. Wild et N. Midoux. « Some experimental liquid saturation results in fixed-bed reactors operated under elevated pressure in cocurrent upflow and downflow of the gas and the liquid ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* **30** (1991), 2404–2410

[123] C. P. Stemmet, J. van der Schaaf, B. F. M. Kuster et J. C. Schouten. « Solid foam packings for multiphase reactors, modelling of liquid holdup and mass transfer ». *Chemical Engineering Research and Design* **84** (2006), 1134–1141

A

CARACTÉRISTIQUES COMPLÈTES DES MILIEUX POREUX

Cette annexe détaille les différentes caractéristiques des milieux poreux qui ont été réalisées par tomographie à rayons X [1]. Ce travail a été réalisé grâce à la grande contribution de Marie-Line Zanotta.

A.1 LITS DE BILLES

L'analyse de la tomographie des lits de billes est effectuée par le logiciel iMorph® [104]. La résolution spatiale de 10 μm par voxel (volume unitaire équivalent au pixel) permet uniquement de déterminer la distribution des tailles de billes, les pores étant trop petits par rapport à la résolution. Dans un premier temps, une étape de binarisation permet au logiciel de séparer la matrice solide (figure 96) du volume de vide complémentaire, représentatif de la porosité externe.

Dans un second temps, la taille d'une particule solide est approchée par le plus grand ellipsoïde inclus dans une bille donnée. Cette méthode est la plus fiable car elle permet d'estimer avec la même précision les billes parfaitement sphériques et celles présentant des défauts. Les distributions des longueurs des trois demi-axes des ellipsoïdes (a, b et c), $l_{demi-axes}$, mesurées sur un cube de 2 mm^3 sont données en figure 97a pour les Billes 75 et en figure 97b pour les Billes 180.

1. Tomographe GE|Phoenix v|tome|x s, tube RX de 160kV dont le point focal est de 1μm

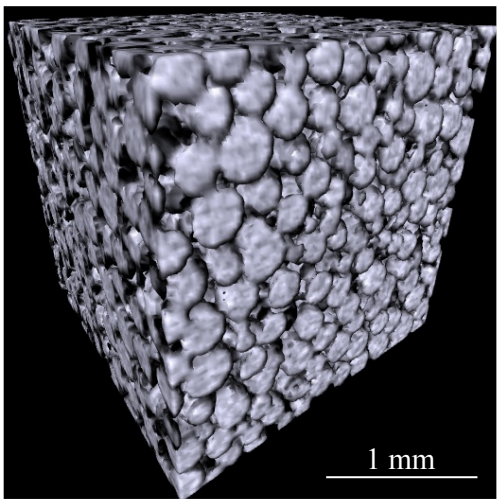

FIGURE 96 – Matrice solide déterminée par le logiciel iMorph® pour le lit de billes "Billes 75".

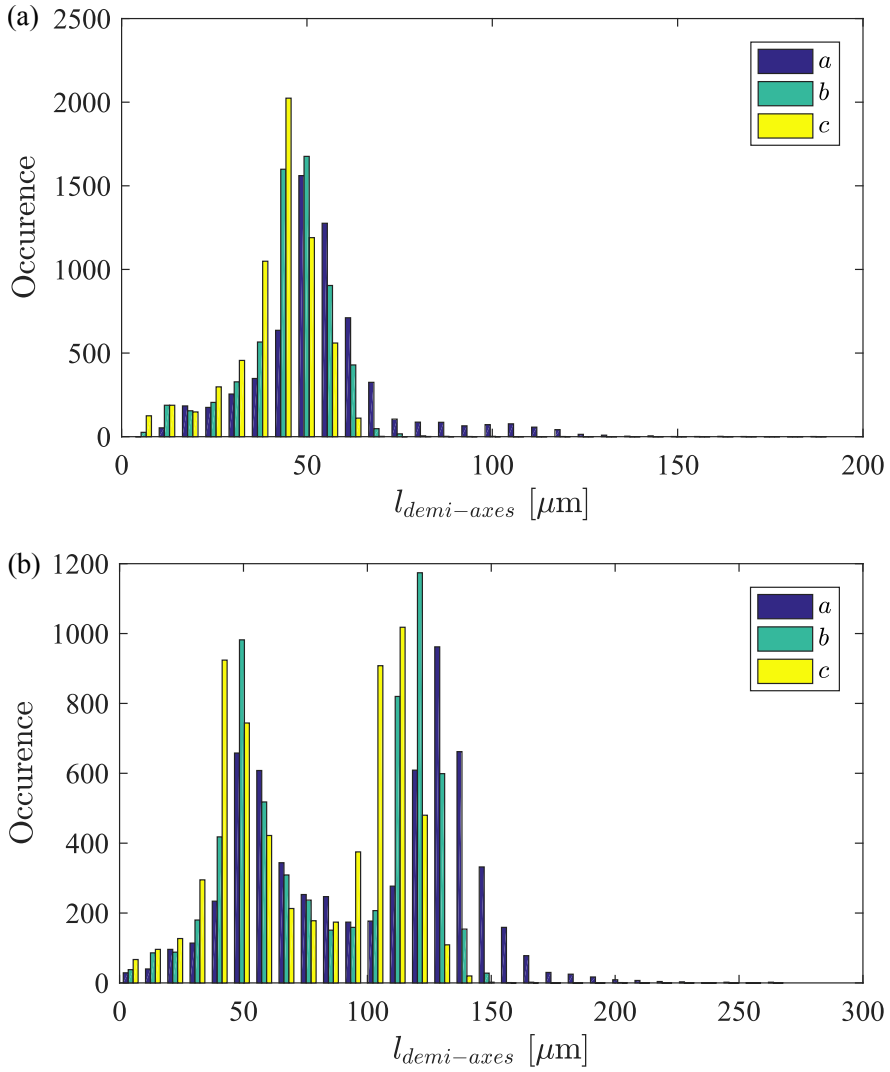

FIGURE 97 – Distributions des trois longueurs de demi-axes (a, b et c), notée $l_{demi-axes}$, pour le lit "Billes 75" (a) et le lit "Billes 180" (b).

La demi-longueur la plus grande, a, a une distribution légèrement différente des deux autres, ce qui justifie l'utilisation d'un ellipsoïde et non d'une boule pour estimer le volume des billes dans chacun des lits. Noter que cette différence est surtout marquée pour le lit "Billes 180". Par ailleurs, l'allure des distributions illustre la polydispersité des billes utilisées.

Le diamètre de la boule équivalente au volume de chaque ellipsoïde est calculé comme suit :

$$d = 2\sqrt[3]{abc} \ . \tag{100}$$

La distribution du diamètre d est donnée en figure 98a pour les Billes 75 et en figure 98b pour les Billes 180. La valeur moyenne retenue pour l'ensemble du manuscrit est marquée par la barre verticale rouge.

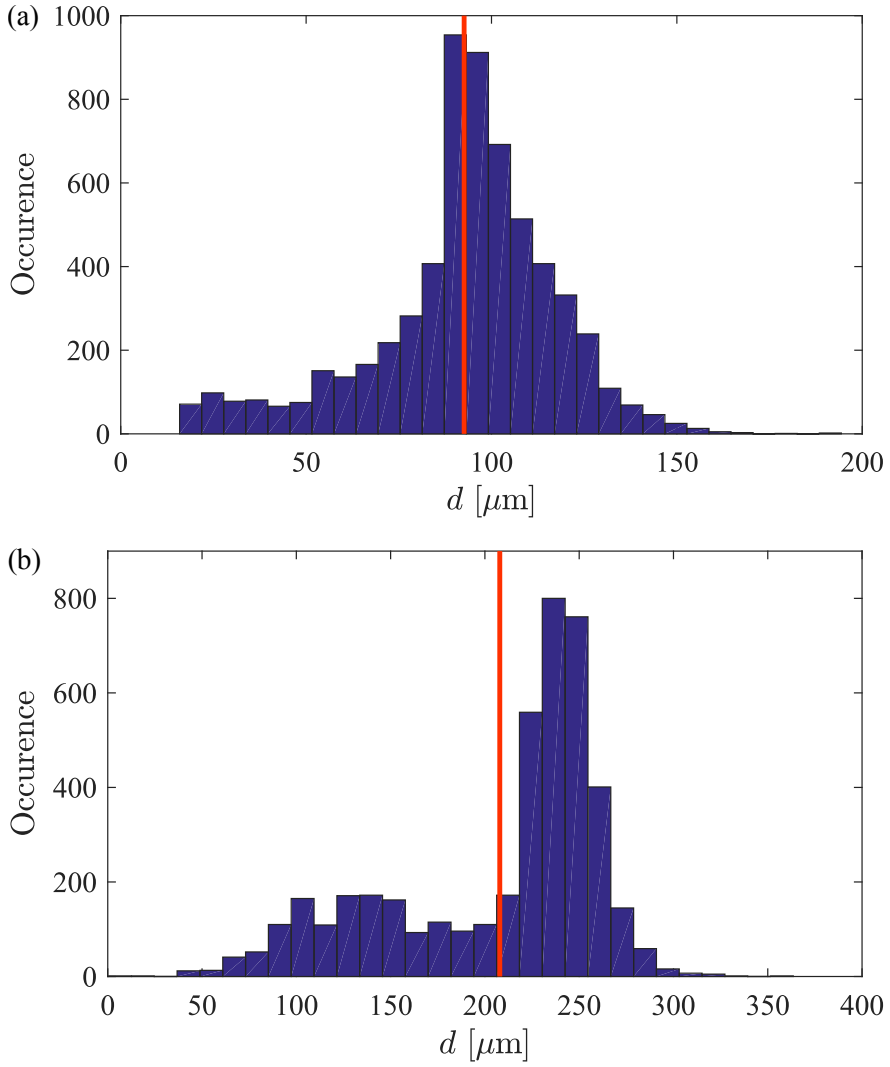

FIGURE 98 – Distribution en nombre du diamètre des billes, d, pour le lit "Billes 75" (a) et le lit "Billes 180" (b) [barre rouge : valeur moyenne de la distribution].

A.2 MOUSSES SOLIDES

A.2.1 *Distributions des tailles caractéristiques*

Les mousses solides sont décrites par trois tailles caractéristiques (section 1.2.2) :
— le diamètre des cellules
— le diamètre des fenêtres
— le diamètre des brins.

Comme pour les billes, ces milieux ont été caractérisés par tomographie à rayons X dont les images sont exploitées par le logiciel iMorph®. La taille d'une cellule, plutôt sphérique, est approchée par la boule de plus grand diamètre, d_{cell}, inscrite dans la cellule. La distribution de d_{cell} est donnée pour les quatre mousses (30, 40, 50 et 80 PPI) en figure 99. Les valeurs moyennes de chaque distribution sont indiquées par la barre rouge verticale. Noter que malgré la différence de PPI indiquée par le fournisseur, les mousses 40 PPI (Recemat) et 80 PPI (ERG Aerospace) ont des distributions

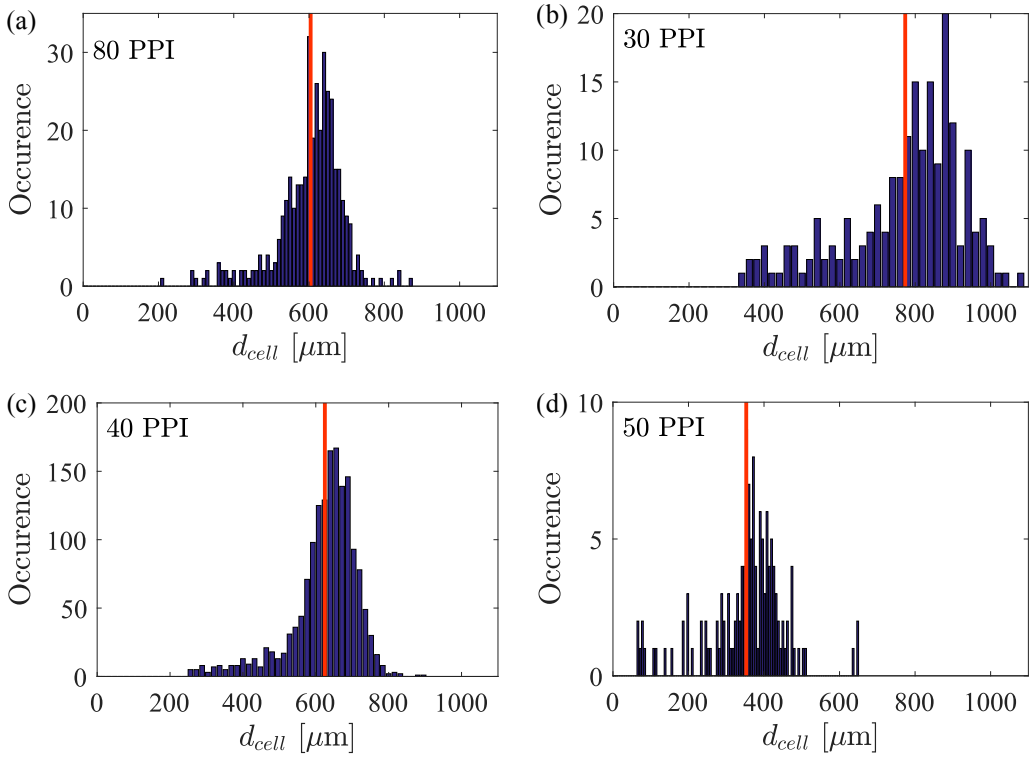

FIGURE 99 – Distributions du diamètre des cellules, d_{cell} : (a) mousse 80 PPI, (b) mousse 30PPI, (c) mousse 40 PPI, (d) mousse 50 PPI [barre verticale rouge : valeur moyenne de la distribution].

de d_{cell} très proches. Les fenêtres sont représentées comme des ellipsoïdes quasi-2D (figure 100). Ainsi, le demi-axe c, dont la longueur est équivalente à l'épaisseur d'un brin de mousse, est très petit devant les deux autres : a et b, caractéristiques de la forme du pore. Comme discuté dans le manuscrit, la demi-longueur b est considéré comme étant la plus contraignante pour l'écoulement. Ainsi, le diamètre choisi

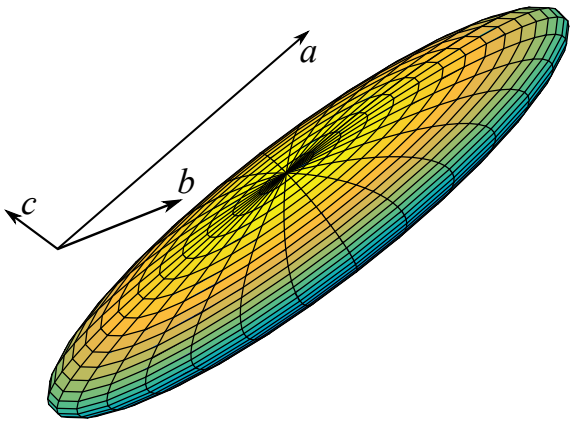

FIGURE 100 – Schéma simplifié d'une fenêtre de mousse solide. a, b et c : demi-axes de l'ellipsoïde.

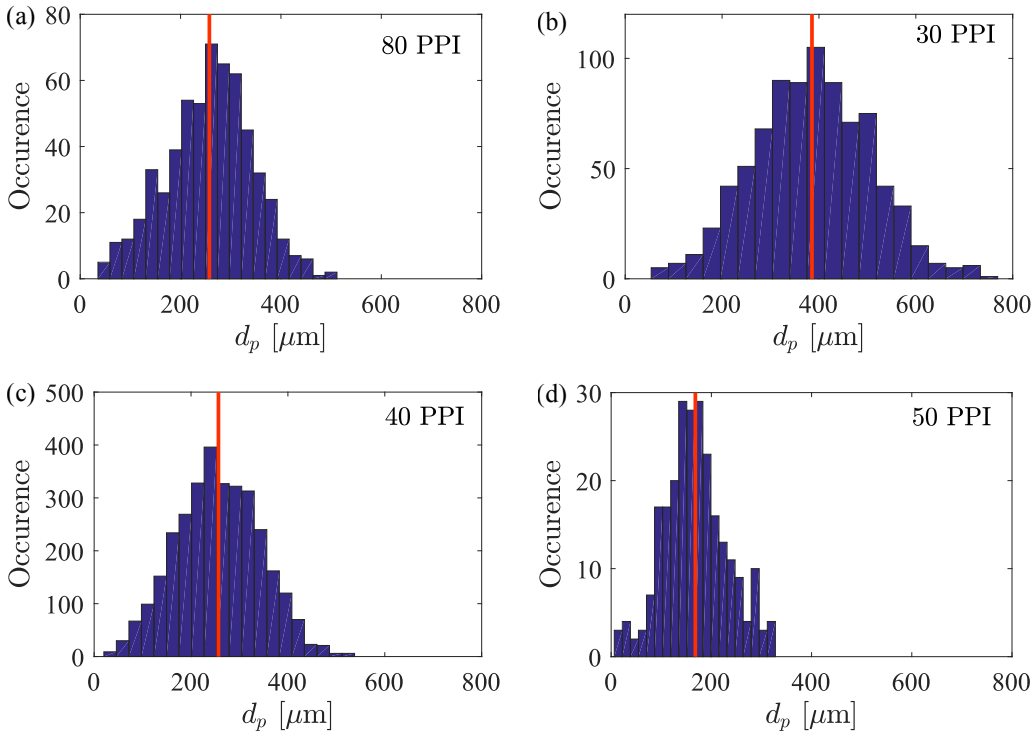

FIGURE 101 – Distributions en nombre du diamètre des fenêtres, d_p : (a) mousse 80 PPI, (b) mousse 30PPI, (c) mousse 40 PPI, (d) mousse 50 PPI. Barre verticale rouge : valeur moyenne de la distribution.

pour représenter les pores de la mousse est $d_p = 2b$. La distribution de d_p est donnée pour les quatre mousses en figure 101. La valeur moyenne de chaque distribution est indiquée par la barre rouge verticale. - La dernière longueur caractéristique des mousses solides est le diamètre des brins. Pour les mousses étudiées dans ces travaux, la section des brins est triangulaire (figure 102). Le diamètre des brins, d_s, est donc estimé à partir du disque de surface équivalente à la section des brins, S_s :

$$d_s = \sqrt{\frac{4S_s}{\pi}} \, . \tag{101}$$

Ainsi défini, d_s est compris entre le diamètre du cercle inscrit dans le triangle, $d_{s,int}$, et celui circonscrit, $d_{s,ext}$. La section S_s est choisie au milieu du brin, à égale distance entre les deux nœuds qui le connectent au réseau solide. La distribution de d_s est donnée en figure 103 pour les quatre mousses, avec la valeur moyenne de la distribution représentée par une barre verticale rouge.

L'ensemble des longueurs caractéristiques retenues pour les mousses étudiées dans ce manuscrit sont répertoriées en table 9.

A.2.2 *Calcul du nombre de pores par section*

Le nombre de Weber modifié, We^*, introduit dans le chapitre 4, dépend du nombre de pores présents dans la section perpendiculaire à l'écoulement, n_p. Cette partie détaille la méthode utilisée pour déterminer n_p à partir des résultats de la tomographie.

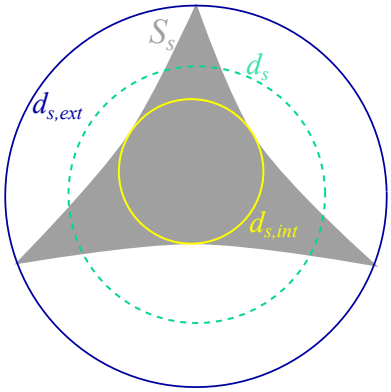

FIGURE 102 – Schéma simplifié de la tranche d'un brin de mousse. $d_{s,int}$, $d_{s,ext}$, sont les diamètres des cercles respectivement inscrit et circonscrit au triangle formé par la tranche d'un brin. d_s correspond au diamètre du disque de surface équivalente à la section du brin de mousse, S_s.

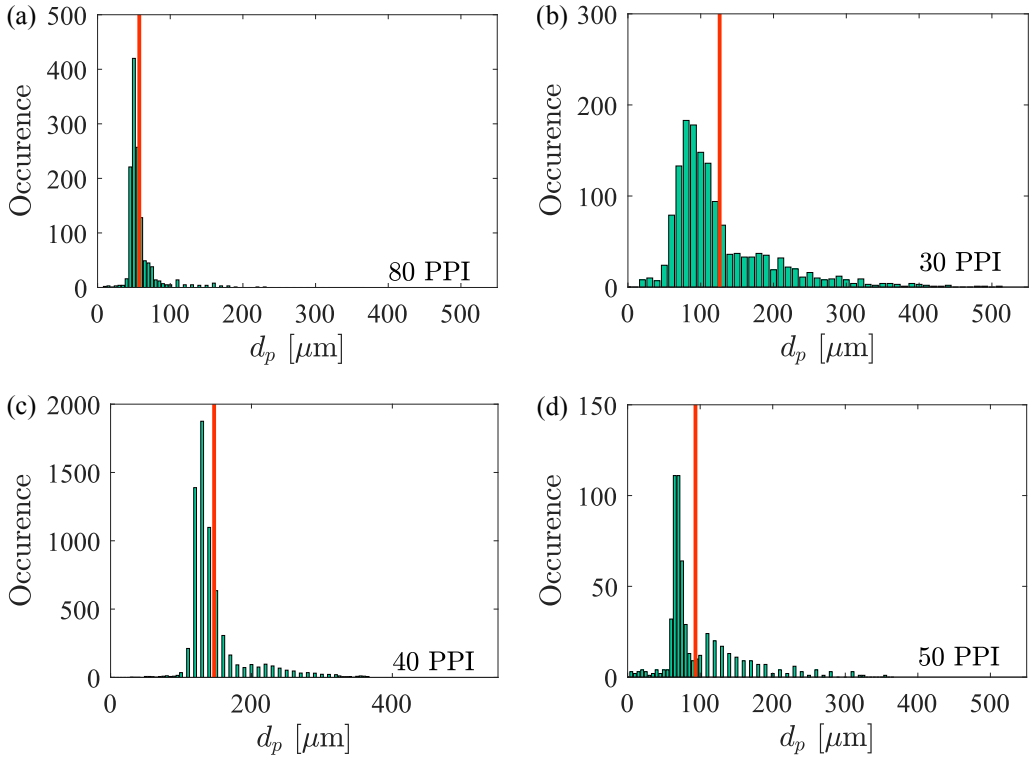

FIGURE 103 – Distributions en nombre du diamètre des brins, d_s : (a) mousse 80 PPI, (b) mousse 30PPI, (c) mousse 40 PPI, (d) mousse 50 PPI [barre verticale rouge : valeur moyenne de la distribution].

L'exploitation des données de tomographie par le logiciel iMorph® donne accès au nombre d'éléments détectés dans un volume donné. Ainsi, n_p est approché par un rapport entre le nombre d'éléments, n_{pa}, compris dans le volume total analysé par le logiciel iMorph®, V_a, et le volume d'intérêt V_i. Ce dernier est défini de manière à représenter une section perpendiculaire à l'écoulement comme suit :

$$V_i = h^2 \times d_s \ , \tag{102}$$

Mousse	Matériau	d_{cell} [μm]	d_p [μm]	d_s [μm]	a_s [m^2/m^3]
80 PPI	Carbone vitreux (RVC)	604	257	57	3695
30 PPI	Ni Cr	773	386	126	3187
40 PPI	Ni Cr	625	257	147	4092
50 PPI	Ni Cr	353	168	94	6716

TABLE 9 – Valeur moyenne retenue pour chaque longueur caractéristique des mousses étudiées dans ces travaux : d_{cell} diamètre des cellules, d_p diamètre des fenêtres, d_s diamètre des brins et a_s surface spécifique.

où h^2 est la section du canal millifluidique et d_s est l'épaisseur d'un brin de mousse, correspondant à l'épaisseur d'un pore (fenêtres de la mousse). Le nombre de pores compris dans V_i est alors :

$$n_p = \frac{V_a n_{pa}}{V_i} \ . \tag{103}$$

Toutes les valeurs de n_p obtenues pour chaque mousses sont référencées dans la table 10.

Mousse	V_a [$\times 10^{10}$ μm^3]	n_{pa} [-]	V_i [$\times 10^8$ μm^3]	n_p [-]
80 PPI	2.70	578	2.2 ± 0.9	5 ± 2
30 PPI	15.4	870	4.8 ± 2.8	3 ± 1
40 PPI	18.9	3225	6.2 ± 3.2	10 ± 5
50 PPI	0.55	252	3.7 ± 2.3	16 ± 10

TABLE 10 – Grandeurs nécessaires à la détermination du nombre de pores par section perpendiculaire à l'écoulement, n_p. V_a volume total analysé par le logiciel iMorph®, n_{ap} nombre de pores détecté dans V_a et V_i volume d'intérêt correspondant à la section.

B

INFLUENCE DU SEUIL DE DÉTECTION DES BULLES DE GAZ

Cette annexe détaille la méthode employée dans la détermination du masque utilisé pour séparer au mieux les bulles de gaz de la phase liquide lors du calcul des coefficients globaux de transferts massiques, k_{la}. La difficulté de la méthode utilisée (quantification par extinction de la fluorescence) est de définir de manière robuste et reproductible sur tous les films un seuil de détection entre la phase gazeuse (fluorescence éteinte) et la phase liquide saturée (fluorescence quasi-éteinte) (figure 104). Comme décrit dans le chapitre 2, chaque changement de pH de la solution de liquide est associée à une valeur d'intensité de la fluorescence. Ainsi, des expériences ont été menées afin de déterminer la valeur du pH à l'équilibre thermodynamique de l'absorption du CO_2 dans la solution de NaOH. Cette valeur, notée pH*, est évaluée à $pH^* = 4.69$. L'intensité de fluorescence associée, notée I_{pH^*} correspond donc à l'intensité minimum du liquide, alors saturé en CO_2.

Un premier seuillage est donc défini en considérant les pixels d'intensité $I_p > I_{pH^*}$ comme étant du liquide et ceux pour lesquels $I_p < I_{pH^*}$ comme étant du gaz. Le résultat de ce seuillage est illustré en figure 105b. Pour la détection de la bulle en entrée, on observe qu'il y a une différence notable entre la forme de la bulle imposée par le masque et celle visible sur l'image brute en figure 105a. Le seuil fixé sous-estime la taille de la bulle. Pour la sortie, on observe que la bulle est très bien délimitée par le seuil fixé à I_{pH^*}.

Pour la délimitation en entrée, trois autres seuils sont alors testés en considérant les intensités relatives à :

1. pH* + 10% (figure 106b)
2. pH* + 20% (figure 106c)
3. pH* + 30% (figure 106d).

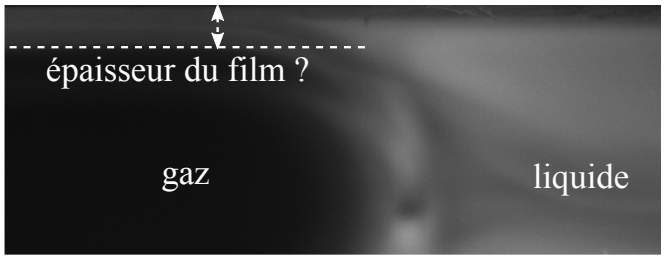

FIGURE 104 – Fraction d'une image de bulle (noire) et de la phase liquide (plus claire) illustrant la difficulté de distinguer le film de liquide, quasi-saturé en gaz, du bord de la bulle.

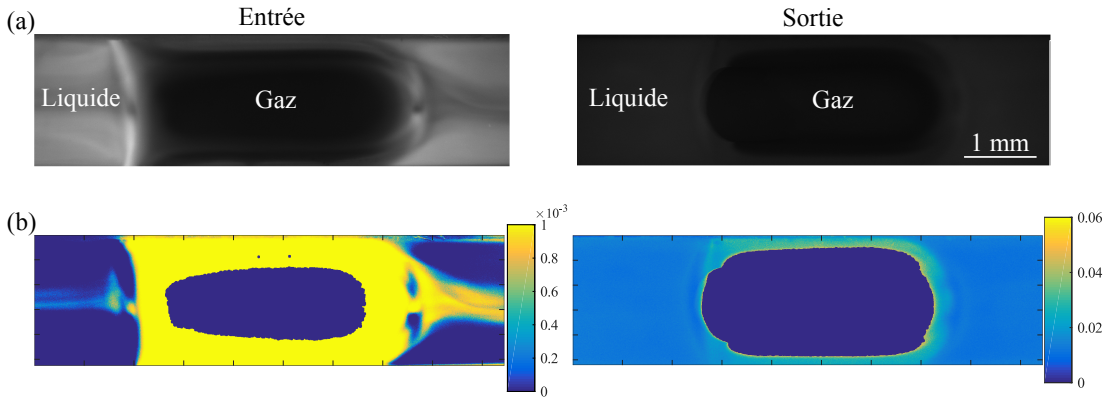

FIGURE 105 – (a) Images brutes à l'entrée et à la sortie du milieu poreux : on distingue le liquide (plus clair), le gaz (noir), le gaz dissout (zones noires dans la phase liquide). (b) Images finales obtenues après traitement. Le masque de la bulle résultant du seuillage à I_{pH^*} est la zone imposée à la concentration en CO_2 [mol.L^{-1}] égale à 0. L'échelle de couleur représente la concentration en CO_2.

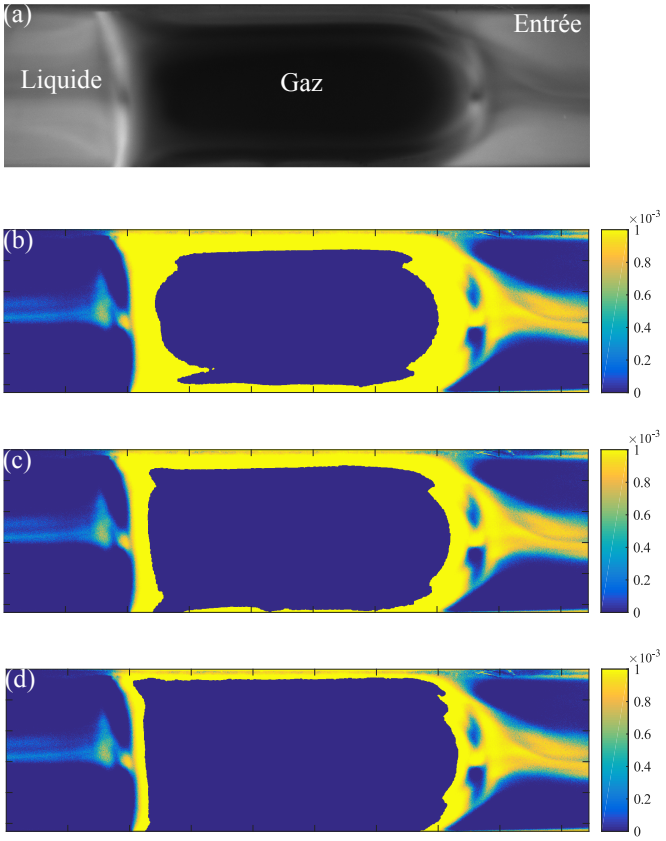

FIGURE 106 – (a) Images brutes à l'entrée du milieu poreux : on distingue le liquide (plus clair), le gaz (noir), le gaz dissout (zones noires dans la phase liquide). Images finales obtenues après traitement. Les masques des bulles résultant des seuillages à $I_{pH^*+10\%}$ (b), $I_{pH^*+20\%}$ (c) et $I_{pH^*+30\%}$ (d), sont les zones imposées à la concentration en CO_2 [mol.L^{-1}] égale à 0.L'échelle de couleur représente la concentration en CO_2.

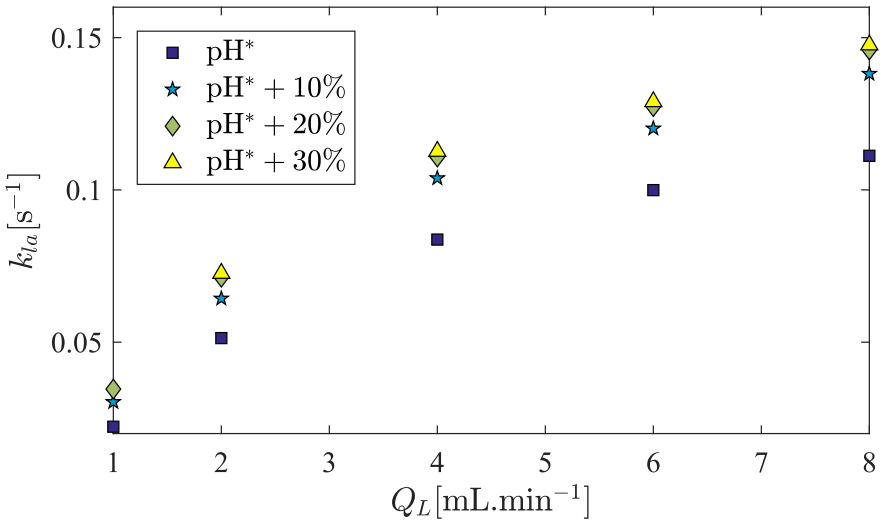

FIGURE 107 – Évolution du coefficient de transfert, k_la, en fonction du débit liquide, Q_L, mesuré dans la mousse 40 PPI à $Q_G = 10$ mL.min^{-1} en considérant les différents seuils d'intensité testés.

On observe que la valeur du seuillage qui délimite le mieux la courbe tout en conservant la présence des films de liquide de part et d'autre de la bulle est $I_{pH^*+20\%}$ (figure 106c).

Dans l'objectif de conclure sur le choix du seuil pour le traitement d'images en entrée, les coefficients de transferts globaux, k_la ont été calculés en considérant chacun des seuillages, et sont donnés en figure 107 en fonction du débit de la phase liquide, Q_L. Ces mesures ont été effectuées dans la mousse 40 PPI. Les k_la calculés au seuil de I_{pH^*} semblent sous-estimés par rapport aux autres. Le masque correspondant, illustré en figure 105b, sous-estime en effet la taille de bulle. Ainsi, une partie du CO_2 est considérée comme appartenant au liquide, ce qui surestime considérablement la teneur en CO_2 dissout moyenne (dans le temps et dans l'espace) à l'entrée du milieu poreux. Sachant que le calcul du k_la résulte d'un bilan massique entrée/sortie, cela explique qu'il soit sous-estimé sur la figure 107.

À partir de la valeur $I_{pH^*} + 20\%$, le seuil n'a plus d'influence sur la valeur du k_la. Étant donné que le masque résultant de ce seuillage est le plus fidèle à l'aspect de la bulle, pour tous les films traités dans ce manuscrit le seuillage en entrée est fixé à $I_{pH^*} + 20\%$ et en sortie à I_{pH^*}.

Noter que l'écoulement est visualisé dans un canal carré. Dans les angles, une partie de la bulle est recouverte par du liquide (gouttières, figure 108). D'une part, lorsque le liquide est encore beaucoup plus clair que le gaz, c'est le cas en entrée, l'intensité de fluorescence observée au dessus des gouttières est supérieure à celle située à l'aplomb de la partie la plus épaisse de la bulle. D'autre part, au cours de l'absorption du CO_2, en amont du milieu poreux, l'intensité de la phase liquide est inhomogène, comprenant des zones plus sombres aux endroits où la concentration en CO_2 dissout est la plus grande. Sachant que les films liquides sont rapidement saturés en CO_2 dissout, leur intensité est plus sombre que dans le reste de la phase liquide. Cela réduit d'avantage la différence d'intensité entre zones "à gouttière" et les films liquides et ressort dans l'aspect des masques de bulles (front de bulle déformé).

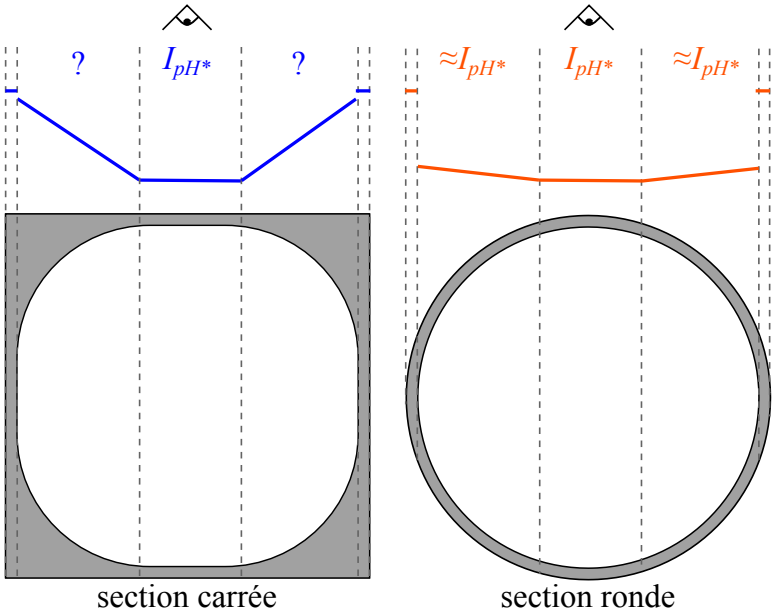

FIGURE 108 – Différence entre la variation d'intensité de fluorescence I, lors de la visualisation (par le haut) de l'écoulement en canal à section carrée ou en canal cylindrique.

C

DONNÉES EXPÉRIMENTALES

C.1 DISTRIBUTION DE TEMPS DE SÉJOUR

Q_G	Q_L	$\tilde{t}$	σ^2	t_m	J	K_{im}	t_M
[mL.min^{-1}]		[s]	[s^2]	[s]	[-]	[-]	[s]
2	2	8.3 ± 1.0	2.0 ± 0.7	8.3 ± 1.3	90 ± 17	0.01 ± 0.04	3 ± 4
2	4	3.8 ± 0.1	1.5 ± 1.1	3.7 ± 0.1	114 ± 31	0.04 ± 0.01	6 ± 4
4	2	6.8 ± 0.5	0.5 ± 0.6	6.2 ± 0.5	87 ± 14	0.1 ± 0.02	0.3 ± 0.1
4	4	3.9 ± 0.05	1.1 ± 0.08	3.7 ± 0.05	84 ± 22	0.05 ± 0.02	2.9 ± 1.9
8	4	3.7 ± 0.2	0.1 ± 0.2	3.3 ± 0.7	81 ± 19	0.2 ± 0.4	0.4 ± 0.5
10	2	6.9 ± 0.3	4.9 ± 3.6	6.5 ± 0.3	84 ± 20	0.06 ± 0.005	6.4 ± 6.5
10	4	3.6 ± 0.06	0.7 ± 0.6	3.2 ± 0.3	168 ± 68	0.12 ± 0.12	0.9 ± 1.2
14	1	12.1 ± 0.4	4.4 ± 3.3	9.6 ± 2.9	95 ± 17	0.35 ± 0.44	3.9 ± 4.5
35	1	11.5 ± 0.7	0.6 ± 0.5	10.7 ± 2.4	141 ± 74	0.11 ± 0.28	1.4 ± 0.9

TABLE 11 – Billes 75

Q_G	Q_L	$\tilde{t}$	σ^2	t_m	J	K_{im}	t_M
[mL.min^{-1}]		[s]	[s^2]	[s]	[-]	[-]	[s]
2	2	9.4 ± 1.2	–	10.3 ± 1.6	93 ± 4	–	2 ± 4
2	4	3.5 ± 0.2	–	3.6 ± 0.09	201 ± 43	0.01 ± 0.03	2 ± 1
4	8	2.1 ± 0.2	0.2 ± 0.6	2.1 ± 0.10	95 ± 10	1 ± 2	219 ± 430
6	4	3.3 ± 0.3	–	5.5 ± 4.7	148 ± 101	3 ± 6	2 ± 2
10	1	12.5 ± 0.6	3.8 ± 0.3	12.2 ± 0.6	94 ± 7	0.07 ± 0.01	5.8 ± 0.9
10	8	1.9 ± 0.1	–	2.1 ± 0.1	125 ± 16	0.01 ± 0.04	2 ± 2
14	1	11.9 ± 0.2	–	12.1 ± 0.1	126 ± 1	0.06 ± 0.02	3 ± 1
14	4	3.0 ± 0.2	–	3.2 ± 0.05	125 ± 11	–	1 ± 1

TABLE 12 – Billes 180

Q_G [mL.min^{-1}]	Q_L	$\tilde{t}$ [s]	σ^2 [s^2]	t_m [s]	J [-]	K_{im} [-]	t_M [s]
2	6	5.5 ± 0.5	1 ± 1	5.7 ± 0.1	112 ± 1	0.08 ± 0.02	1.2 ± 0.06
2	8	4.8 ± 0.2	1.6 ± 0.02	4.4 ± 0.2	97 ± 20	0.07 ± 0.06	2.6 ± 1.4
8	6	5.6 ± 0.1	1 ± 1	5.6 ± 0.3	100 ± 37	0.01 ± 0.09	–
8	8	4.8 ± 0.2	1.6 ± 0.5	4.3 ± 0.2	97 ± 38	0.17 ± 0.14	2.4 ± 1.9
10	2	14.0 ± 0.3	2.1 ± 0.3	13.4 ± 0.1	85 ± 19	0.07 ± 0.02	2.0 ± 0.2
10	6	5.7 ± 0.1	2.1 ± 0.1	5.2 ± 0.1	80 ± 1	0.10 ± 0.001	3.6 ± 0.1
10	8	4.2 ± 0.5	0.4 ± 0.4	4.2 ± 0.2	54 ± 14	0.14 ± 0.07	7 ± 7

TABLE 13 – Mousse 80 PPI

Q_G [mL.min^{-1}]	Q_L	$\tilde{t}$ [s]	σ^2 [s^2]	t_m [s]	J [-]	K_{im} [-]	t_M [s]
2	2	16.9 ± 0.2	30.0 ± 0.5	9.3 ± 0.4	42 ± 4	0.58 ± 0.03	2.7 ± 0.02
2	4	8.5 ± 0.3	2.2 ± 0.6	6.8 ± 0.4	153 ± 27	0.25 ± 0.04	0.6 ± 0.2
6	2	13.2 ± 1.1	28 ± 1	11.8 ± 0.1	50 ± 12	–	–
6	4	7.7 ± 0.1	1.8 ± 0.5	6.1 ± 0.1	138 ± 1	0.25 ± 0.02	0.4 ± 0.03
6	6	5.7 ± 0.1	1.3 ± 0.9	5.0 ± 0.5	113 ± 55	0.15 ± 0.08	0.8 ± 0.8
10	4	7.4 ± 0.1	3.4 ± 0.01	6.9 ± 0.1	50 ± 0.3	0.08 ± 0.003	1.1 ± 0.01

TABLE 14 – Mousse 30 PPI

Q_G [mL.min^{-1}]	Q_L	$\tilde{t}$ [s]	σ^2 [s^2]	t_m [s]	J [-]	K_{im} [-]	t_M [s]
2	2	13.5 ± 0.2	5.6 ± 0.6	11.8 ± 0.1	111 ± 24	0.16 ± 0.03	0.9 ± 0.1
2	4	8.0 ± 0.2	2.1 ± 0.7	6.7 ± 0.5	152 ± 27	0.20 ± 0.06	0.6 ± 0.2
2	6	5.5 ± 0.1	1.1 ± 0.3	4.8 ± 0.2	147 ± 11	0.17 ± 0.03	0.5 ± 0.2
6	4	7.5 ± 0.1	1.8 ± 0.1	6.9 ± 0.2	120 ± 16	0.09 ± 0.03	0.9 ± 0.2
6	6	5.4 ± 0.1	1.5 ± 0.1	5.1 ± 0.05	95 ± 4	0.06 ± 0.01	1.4 ± 0.1
10	1	29.3 ± 0.5	128 ± 102	20.7 ± 0.8	87 ± 93	0.31 ± 0.04	10 ± 1
10	2	14 ± 1	12 ± 1	10.3 ± 1	97 ± 85	0.20 ± 0.02	3 ± 1
10	4	6.9 ± 0.1	1.8 ± 0.01	5.9 ± 0.03	132 ± 4	0.17 ± 0.01	0.5 ± 0.01
10	6	5.2 ± 0.1	0.6 ± 0.01	4.7 ± 0.02	139 ± 10	0.09 ± 0.006	0.4 ± 0.01

TABLE 15 – Mousse 40 PPI

Q_G	Q_L	$\tilde{t}$	σ^2	t_m	J	K_{im}	t_M
[mL.min^{-1}]		[s]	[s^2]	[s]	[-]	[-]	[s]
2	2	16.5 ± 0.2	40.3 ± 0.5	14.0 ± 0.3	27 ± 2	0.17 ± 0.01	10.5 ± 0.4
2	4	8.9 ± 0.1	1.0 ± 0.6	8.7 ± 0.3	104 ± 34	0.01 ± 0.07	44 ± 50
2	6	6.1 ± 0.02	0.5 ± 0.2	5.9 ± 0.3	104 ± 32	0.04 ± 0.05	2 ± 2
6	4	8.1 ± 0.05	1.8 ± 0.1	7.5 ± 0.01	137 ± 1	0.01 ± 0.01	0.9 ± 0.04
10	2	16.9 ± 0.6	62 ± 44	14.2 ± 0.6	117 ± 46	0.1 ± 0.01	2 ± 2

TABLE 16 – Mousse 50 PPI

C.2 PERTES DE CHARGE

Q_G	Q_L	billes 75	billes 180	mousse 80PPI	mousse 30PPI	mousse 40PPI	mousse 50PPI
[mL.min^{-1}]				[Pa.m−1]			
2	0.5	-	-	1657	963	1283	1925
2	1	8.62×10^5	-	2445	1604	2754	3422
2	2	1.59×10^6	2.90×10^5	3490	2674	4086	5508
2	3	2.10×10^6	5.12×10^5	-	-	-	-
2	4	-	-	5325	4545	6807	9733
2	5	-	6.03×10^5	-	-	-	-
2	6	-	-	6893	6043	8802	13422
2	8	-	8.80×10^5	8174	-	-	-
4	0.5	-	-	1394	-	-	-
4	1	9.52×10^5	-	1394	-	-	-
4	2	-	-	3257	-	-	-
4	4	2.57×10^6	5.39×10^5	5188	-	-	-
4	6	-	-	7054	-	-	-
4	8	-	9.37×10^5	9016	-	-	-
6	0.5	-	-	1147	802	1326	1765
6	1	1.04×10^6	-	-	-	-	-
6	2	1.71×10^6	-	3119	2674	4134	5882
6	4	2.70×10^6	5.53×10^5	4954	5134	7444	10963
6	6	-	7.71×10^5	6994	7219	10540	15294
6	8	-	-	8988	-	-	-
8	0.5	-	-	1498	-	-	-
8	1	1.09×10^6	-	1832	-	-	-
8	2	-	-	3398	-	-	-
8	4	-	6.06×10^5	5712	-	-	-
8	6	-	-	7625	-	-	-
8	8	-	1.02×10^6	10205	-	-	-

Q_G	Q_L	billes 75	billes 180	mousse 80PPI	mousse 30PPI	mousse 40PPI	mousse 50PPI
[mL.min^{-1}]				[Pa.m−1]			
10	0.5	-	-	1349	995	1583	2727
10	1	1.16×10^6	2.42×10^5	2160	1497	2118	3957
10	2	1.84×10^6	3.76×10^5	3778	2663	3957	6257
10	4	2.83×10^6	6.20×10^5	6088	5278	8096	11497
10	6	-	8.30×10^5	8583	8193	11706	17540
10	8	-	1.05×10^6	10792	-	-	-
14	1	-	2.66×10^5	2173	-	-	-
14	4	-	6.64×10^5	5748	-	-	-
14	8	-	-	11432	-	-	-
16	2	-	-	3402	-	-	-
16	4	-	6.72×10^5	5170	-	-	-
16	8	-	-	11869	-	-	-
14	8	-	-	11432	-	-	-
16	2	-	-	3402	-	-	-
16	4	-	6.72×10^5	5170	-	-	-
16	8	-	-	11869	-	-	-
25	1	-	3.40×10^5	-	-	-	-
25	2	-	-	3868	-	-	-
25	4	-	7.55×10^5	6391	-	-	-
25	8	-	-	9909	-	-	-
35	0.5	-	-	1263	-	-	-
35	1	-	3.91×10^5	-	-	-	-
35	2	-	-	3782	-	-	-
35	4	-	8.44×10^5	6386	-	-	-
35	8	-	-	10362	-	-	-

C.3 TRANSFERT DE MASSE

Q_G [mL.min^{-1}]	Q_L	fût vide	billes 180	mousse 80PPI	mousse 40PPI
			[s−1]		
1	4	0.028	0.079	0.066	0.076
2	2	0.029	0.050	0.050	0.049
2	4	0.033	0.094	0.062	0.087
4	4	0.034	0.105	0.070	0.087
4	10	0.026	0.283	0.104	0.162
6	4	0.018	0.125	0.086	0.076
6	6	0.014	0.156	0.088	0.123
8	4	0.015	0.178	0.103	0.098
8	8	0.016	0.200	0.099	0.168
10	1	0.028	0.063	0.021	0.034
10	2	0.043	0.114	0.062	0.086
10	4	0.026	0.163	0.094	0.114
10	6	0.022	0.227	0.180	0.132
10	8	0.014	0.278	0.127	0.167
14	4	0.042	0.198	0.121	0.106
16	4	0.035	0.213	0.101	0.122

TABLE 17 – Longueur de milieu poreux : 4 cm

Q_G [mL.min^{-1}]	Q_L	fût vide	billes 180	mousse 80PPI	mousse 40PPI
			[s−1]		
1	4	0.032	0.045	0.045	0.038
2	2	0.022	0.042	0.033	0.034
2	4	0.031	0.059	0.050	0.057
4	4	0.031	0.063	0.080	0.064
4	10	0.166	0.156	0.104	0.126
6	4	0.029	0.079	0.071	0.079
6	6	0.037	0.092	0.115	0.088
8	4	0.025	0.087	0.077	0.107
8	8	0.029	0.127	0.129	0.113
10	1	0.022	-	0.039	0.035
10	2	0.032	0.061	0.070	0.071
10	4	0.039	0.100	0.102	0.111
10	6	0.027	0.145	0.127	0.127
10	8	0.018	0.162	0.146	0.146
14	4	0.020	0.111	0.093	0.128
16	4	0.017	0.121	0.099	0.123

TABLE 18 – Longueur de milieux poreux : 8 cm

D

VALIDATION DE L'ALGORITHME MULTISTART

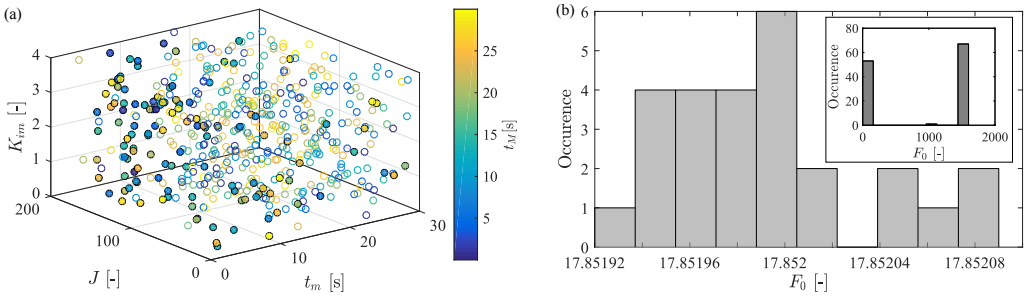

FIGURE 109 – (a) Répartition des 500 conditions initiales générées par le LHS Design dans l'espace des paramètres. (b) Distribution des meilleures valeurs de fonction objectifs (milieu - 80PPI, $Q_G = 2$ mL.min^{-1} et $Q_L = 4$ mL.min^{-1}). Insert : valeurs de la fonction objectif pour tous les points.

Pour s'assurer de la robustesse de l'algorithme "Multistart" avec 50 jeux de conditions initiales, deux optimisations ont été lancées avec 500 combinaisons de départ, en élargissant les intervalles de t_{m0}, J_0, K_{im0} et t_{M0}. Le résultat du LHS Design pour les 500 points est illustré en figure 109a. Certains cas ne permettent pas d'obtenir un résultat (cercles vides en figure 109a).

Deux optimisations globales (optimisation 1 et optimisation 2) ont été lancées dans les mêmes conditions expérimentales (milieu poreux, Q_G et Q_L) que les optimisations à 50 points. L'objectif est de vérifier que les solutions finales sont identiques et que la fonction objectif minimum a la même valeur. La distribution des fonctions objectifs obtenues est donnée en figure 109b. On observe que les fonctions objectifs se concentrent en trois groupes de valeurs pour les cas optimisés (insert). La figure 109b est un "zoom" sur le groupe de valeur minimum présenté dans l'insert. On remarque que la valeur minimum de la fonction objectif a une seule occurrence, et qu'il existent

	t_m [s]	J [-]	K_{im} [-]	t_M [s]
50 - optimisation 1	8.10	112.08	0.20	3.67
50 - optimisation 2	9.05	71.59	0.16	3.06
500 - optimisation 1	8.09	112.46	0.20	3.66
500 - optimisation 2	9.05	71.29	0.16	3.06

TABLE 19 – Comparaison des optimisations à 50 et 500 jeux de paramètres (mousse - 80PPI, $Q_G = 2$ mL.min^{-1}, $Q_L = 4$ mL.min^{-1}).

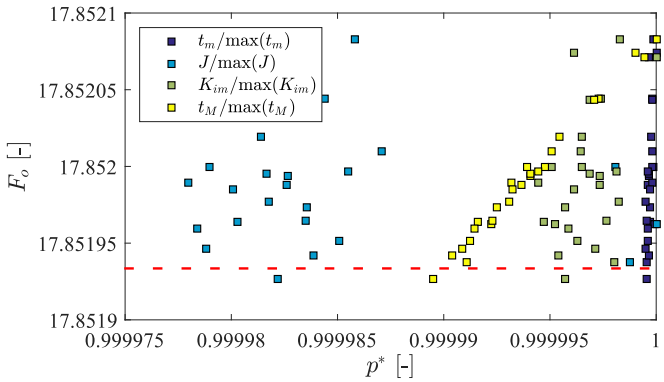

FIGURE 110 – Fonction objectif, F_o, en fonction de P^*, valeur normalisée des quatre paramètres du modèle par leur maximum respectif. Seules les valeurs minimales de F_o sont représentées ici pour des questions de lisibilité (très faible variation de P^* [ligne pointillée : démarcation de la solution qui minimise la fonction objectif].

plusieurs valeurs très proches de ce minimum. Cela appuie l'hypothèse d'unicité de la solution obtenue.

Les solutions finales des quatre paramètres obtenues à 500 points de départ sont aussi identiques aux cas à 50 points de départ (table 19). Ces vérifications valident l'utilisation de 50 points initiaux pour trouver une solution globale à l'optimisation du modèle $CSTR_4$. L'unicité de la solution obtenue avec 500 points est discutée dans la section suivante.

Unicité de la solution

Pour chacun des 500 points où un résultat a été obtenu, les valeurs finales des quatre paramètres ont été conservées avec la valeur de la fonction objectif correspondante. Pour des questions de lisibilité, seuls les points correspondant aux plus petites valeurs de la fonction objectif (les mêmes que ceux de la distribution présentée en figure 109b) sont représentés en figure 110 en fonction des paramètres du modèle $CSTR_4$ normalisés, $p*$. L'unicité est prouvée par la présence d'un seul jeu de paramètre correspondant à la valeur minimale de la fonction objectif (figure 110). La fonction objectif diminue de manière monotone en fonction de t_m et t_M ce qui illustre la prédominance de ces deux paramètres dans l'optimisation. Enfin, les valeurs de la matrice de variance-covariance [1] (table 20) des quatre paramètres de cette optimisation assure que ces derniers ne sont pas corrélés entre eux.

1. Une covariance élevée entre deux paramètre traduit qu'ils sont corrélés entre eux.

	t_m	J	K_{im}	t_M
t_m	13.3	-20.3	-1.3	44.0
J	-20.3	$1.5.10^5$	11.8	-146.6
K_{im}	-1.3	11.8	0.3	-0.06
t_M	44.0	-146.6	-0.06	405.9

TABLE 20 – Matrice de variance-covariance des paramètres de l'optimisation de la distribuiton de temps de séjour pour les 500 jeux de conditions initiales. ($\times 10^{-6}$)

E

LONGUEURS DE BULLES DE TAYLOR

Les valeurs des longueurs de bulles mesurées expérimentalement ont été reportées sur la figure 111 en fonction du rapport des débits Q_G/Q_L, avec Q_G le débit de la phase gazeuse et Q_L le débit de la phase liquide. Deux jeux de données sont comparés :

— les longueurs de bulles mesurées en amont d'un milieu poreux (□)

— les longueurs de bulles mesurées en canal vide ($\star$).

La valeur de la longueur de bulle, l_b, est la moyenne de toutes les longueurs de bulles mesurées sur l'intégralité d'un film, les barres d'erreurs correspondent à l'écart-type.

À faible rapport Q_G/Q_L, les longueurs de bulles sont similaires avec ou sans milieux poreux (figure 111, insert). Lorsque ce rapport augmente, les longueurs de bulles semblent plus élevées en présence d'un milieu poreux. Ce commentaire est à modérer sur deux points. D'une part, il manque des mesures à haut Q_G/Q_L en canal vide. D'autre part, lorsque $Q_G/Q_L > 15$, l'écoulement de Taylor n'est plus stable, surtout en absence de milieux poreux (slugs de liquide très minces).

La corrélation :

$$\frac{l_b}{h} = \alpha_{l_b}\frac{Q_G}{Q_L} + \beta_{l_b} \tag{104}$$

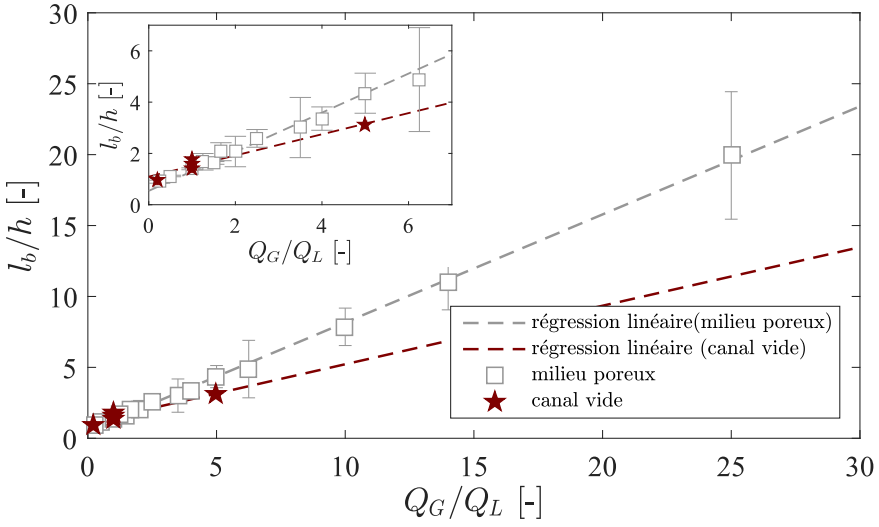

FIGURE 111 – Rapport l_b/h tracé en fonction de Q_G/Q_L pour les longueurs de bulles mesurées en canal vide ($\star$) et en amont d'un milieu poreux (□), courbes pointillées : régressions linéaires correspondantes (équation 75), canal vide [$\alpha = 0.4$, $\beta = 1$], milieu poreux [$\alpha = 0.8$, $\beta = 0.5$].

est utilisée pour la détermination de la fréquence théorique de l'écoulement de Taylor ainsi que dans la loi d'échelle conduisant à la détermination de la longueur critique de bulle, l_b^* (chapitre 4).

En première approximation, suite aux mesures effectuées en avec un milieu poreux afin d'établir la loi d'échelle, α_{l_b} et β_{l_b} sont considérés égaux respectivement à 1 et 0. C'est le résultat qui est publié dans l'article relatif à la stabilité d'un écoulement de Taylor en milieu poreux confiné [117] (annexe G).

Dans un deuxième temps, lors du raffinement de la loi d'échelle ainsi que pour l'estimation de la fréquence théorique de l'écoulement de Taylor, f_{th}, les coefficients choisis sont ceux mesurés en canal vide, soit $\alpha_{l_b} = 0.4$ et $\beta_{l_b} = 1$.

F

ARTICLE - DÉSORGANISATION DE L'ÉCOULEMENT DE TAYLOR

M. Serres, R. Philippe, V. Vidal, **Effet du milieu poreux sur la désorganisation d'un écoulement de Taylor dans un canal millifluidique**, *Compte-rendu de la 19e Rencontre du Non-Linéaire*, Non-Linéaire Publications, 109-114 (2016).

Effet du milieu poreux sur la désorganisation d'un écoulement de Taylor dans un canal millifluidique

Marion Serres[1,2], Régis Philippe[2] & Valérie Vidal[1*]

[1] Laboratoire de Physique, UMR 5672, CNRS – École Normale Supérieure de Lyon, Université de Lyon, 46 Allée d'Italie, 69007 Lyon, France
[2] Laboratoire de Génie des Procédés Catalytiques, UMR 5285 CNRS – CPE Lyon, Université de Lyon, 43 boulevard du 11 novembre 1918, 69100 Villeurbanne, France
[*] valerie.vidal@ens-lyon.fr

Résumé. Nous étudions la désorganisation d'un écoulement gaz-liquide dit de 'Taylor' à l'intérieur de deux milieux poreux sensiblement différents : un milieu granulaire polysdisperse (diamètre des grains 75–150 μm, porosité 42%) ou une mousse solide (porosité 96%). L'écoulement de Taylor (alternance de bulles de gaz et de slugs de liquide) est généré à l'aide d'une jonction en T, via l'injection à débit constant de liquide (éthanol, Q_L) et de gaz (azote, Q_G). La variation de rétention liquide apparente, ϵ_L, est mesurée au cours du temps dans différentes zones du canal par visualisation directe (technique de fluorescence). Le contenu fréquentiel de $\epsilon_L(t)$ est analysé en amont et à l'intérieur du milieu poreux. Une analyse qualitative de la valeur moyenne, l'écart-type et la skewness du signal montre que l'impact du milieu poreux sur l'écoulement dépend du rapport Q_G/Q_L. Nous mettons en évidence un effet de couplage entre l'écoulement dans le milieu poreux et l'écoulement de Taylor en amont.

Abstract. We investigate the disorganization of a Taylor flow through two different porous media: a granular medium (particle diameter 75–150 μm, porosity 42%) and a solid foam (porosity 96%). The Taylor flow consists of periodic gas bubbles separated by liquid slugs. It is generated by a T-junction on which we inject, at constant flow-rate, liquid (ethanol, Q_L) and gas (nitrogen, Q_G). The apparent liquid holdup variation $\epsilon_L(t)$ is monitored by means of a fluorescence technique in different zones of the channel. The frequency content of the multiphase flow is then analyzed upstream and inside the porous medium. A qualitative analysis of the mean, standard deviation and skewness of $\epsilon_L(t)$ reveals that the impact of the porous medium on the flow depends on the ratio Q_G/Q_L. We evidence a coupling between the flow inside the porous medium and the Taylor flow upstream.

1 Introduction

Les écoulements multiphasiques dans des milieux poreux sont présents dans de nombreux domaines. En géosciences, le développement de nouvelles sources d'énergie (récupération assistée du pétrole, exploitation des hydrates de gaz [1]) ou la compréhension de phénomènes naturels comme la remontée de gaz dans les sédiments marins [2] nécessitent une compréhension fine des écoulements gaz-liquide (G-L) dans différents types de milieux poreux. Cela permettrait, par exemple, d'estimer la quantité de gaz libérée en fonction de la structure des sédiments ou bien la zone d'invasion du gaz entre la source et la surface [3,4]. D'autres domaines tels que l'industrie chimique sont confrontés à des écoulements similaires. C'est le cas des réactions catalytiques qui font souvent intervenir trois phases, gaz, liquide, solide (G-L-S) avec une phase solide libre (grains dont le mouvement est couplé avec l'écoulement G-L) ou contrainte (milieu poreux rigide) [5]. L'optimisation des transferts et de la réaction elle-même nécessite une compréhension de l'hydrodynamique de l'écoulement G-L-S [6]. Dans ce travail, nous nous intéressons à l'hydrodynamique d'un écoulement G-L, confiné dans un canal millifluidique, à travers un milieu poreux.

2 Dispositif expérimental

2.1 Description

Le dispositif expérimental est constitué d'un canal millimétrique horizontal à section carrée de largeur $h = 2$ mm (section $h \times h = 4$ mm^2) et de longueur 24 cm (Fig. 1), creusé dans un bloc de PEEK (polyether

© **Non Linéaire Publications**, Avenue de l'Université, BP 12, 76801 Saint-Étienne du Rouvray cedex

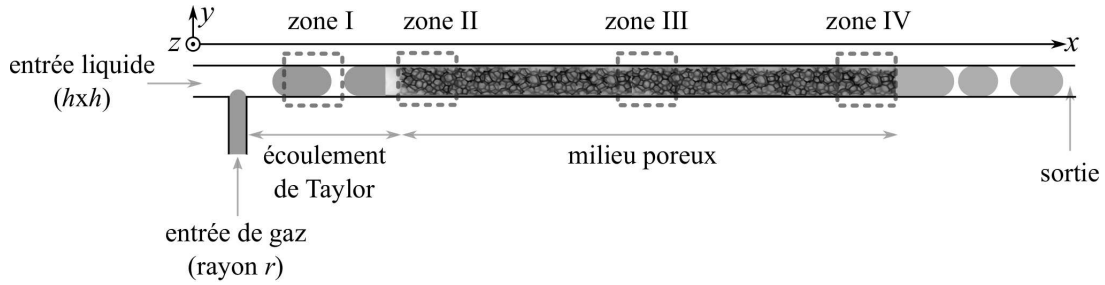

Figure 1. Schéma du canal millimétrique. L'écoulement est visualisé à la paroi dans différentes zones, en amont (zone I), à l'entrée (zone II), à l'intérieur (zone III) et en sortie du milieu poreux (zone IV).

ether ketone). L'une des parois est remplacée par une plaque de verre afin de visualiser l'écoulement. Pour garantir les mêmes conditions de mouillabilité, une fine couche (10 nm) de carbone est déposée à l'intérieur du canal. Le liquide (éthanol) est directement injecté dans le canal de section $h \times h$ à débit constant Q_L et le gaz (azote) est injecté à l'aide d'une jonction en T par un capillaire de rayon $r = 0.5$ mm à débit constant Q_G. Les débits de liquide et de gaz varient dans la gamme $Q_L = [0.5\text{–}8]$ cm^3/min et $Q_G = [2\text{–}35]$ cm^3/min et nous avons exploré une gamme de rapport de débits $Q_G/Q_L = [0.25\text{–}35]$. Dans ces conditions, l'écoulement segmenté (aussi appelé écoulement de Taylor) généré après la jonction est régulier et les bulles occupent la quasi-totalité de la section du canal [7].

2.2 Milieux poreux

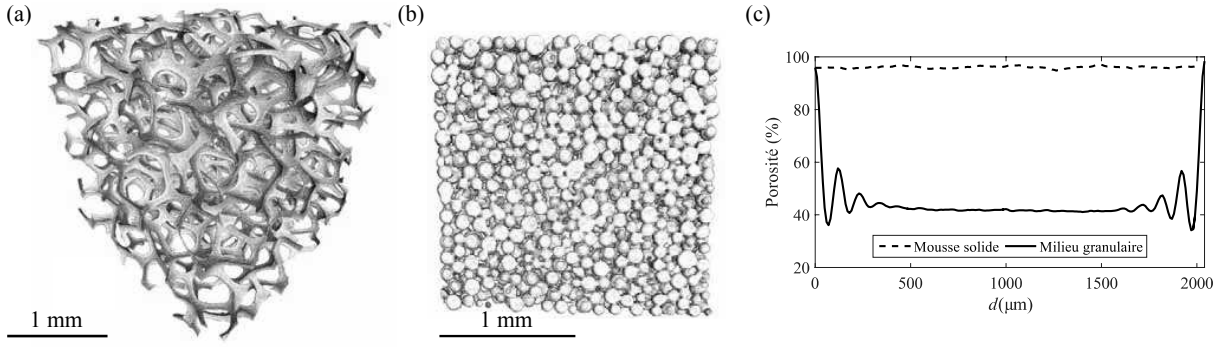

Figure 2. Différents milieux poreux utilisés. (a) Mousse solide (carbone 80 PPI, ERG Aerospace) et (b) milieu granulaire (billes de verre) visualisés par tomographie. (c) Porosité de la mousse solide (a) et du lit de billes (b) mesurée par tomographie.

Deux milieux poreux ont été étudiés : une mousse solide à cellules ouvertes (Fig. 2a) et un milieu granulaire polydisperse (Fig. 2b) dont les longueurs à l'intérieur du canal sont respectivement 16 cm et 15 cm. La mousse utilisée est une mousse carbone 80 PPI (Pore Per Inch), ERG Aerospace, et le milieu granulaire est constitué de billes de verre compactées (diamètre moyen des grains 75–150 μm). Afin d'obtenir plus de détails sur leur structure, les deux milieux poreux ont été analysés par tomographie à rayons X (GE Phoenix v|tome|x s, RX tube de 160kV et point focal pouvant descendre à 1 μm) de précision spatiale 5 μm pour la mousse et 10 μm pour les billes. L'analyse des données est ensuite effectuée grâce au logiciel iMorph® [8] qui fournit des images 3D (Fig. 2a pour la mousse et Fig. 2b pour le milieu granulaire) dont on peut extraire la porosité moyenne et la distribution de diamètre des pores.

Pour la mousse solide, la porosité est constante $\phi = 96 \pm 0.3\%$, sans effet de bord observé (Fig. 2c) et le diamètre moyen des pores est $d_p = 257 \pm 85$ μm. La porosité moyenne du milieu granulaire est $\phi = 44 \pm 2\%$ mais d'importants effets de bord (Fig. 2c), bien connus pour les lits de billes [9], impliquent de considérer une porosité de $\sim 60\%$ pour cette étude basée sur une visualisation à la paroi.

2.3 Analyse d'images

L'écoulement multiphasique est visualisé en temps réel dans quatre zones de l'écoulement (voir section 2.1 et Fig. 1) : en amont (zone I), à l'entrée (zone II), au centre (zone III) et en sortie (zone IV) du milieu poreux. Un film d'une durée de 15 à 20 s est réalisé dans chaque zone à l'aide d'une caméra (Solinocam H2D2, 113 img/s) montée sur un microscope à fluorescence (Olympus BX51M). Un traceur fluorescent (Rhodamine 6B) est dissous dans le liquide avant son injection, permettant ainsi de distinguer clairement la phase solide (structure fixe), la phase liquide (gris clair) et le gaz (gris foncé) (Figs. 3a-d).

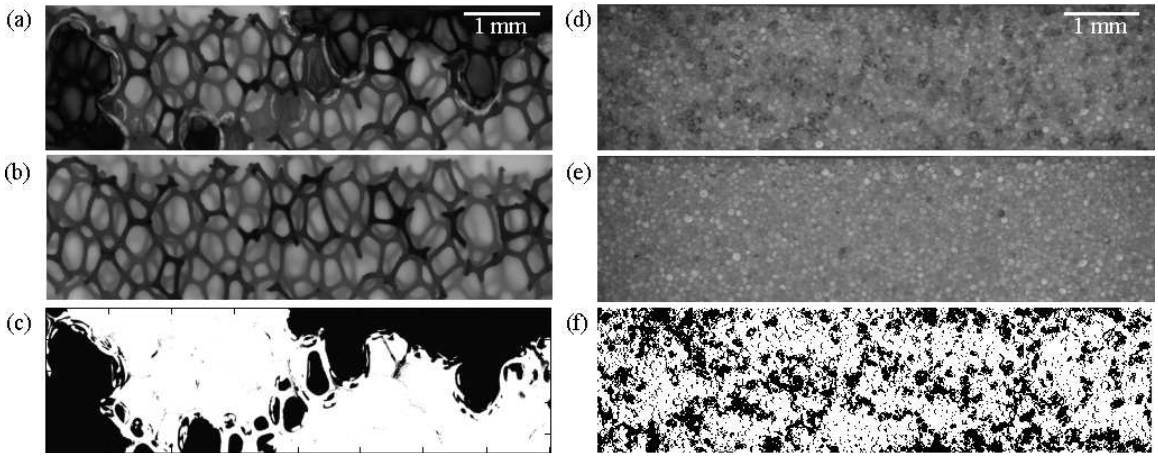

Figure 3. Étapes du traitement d'images pour la mousse solide (a-c) et le milieu granulaire (d-f). (a,d) Images brutes. Le traceur fluorescent permet de distinguer la phase liquide (gris clair) de la phase gazeuse (gris foncé). (b,e) Images de référence issues du film de l'écoulement du liquide avec traceur (sans gaz) dans le milieu poreux. (c,f) Images binarisées obtenues après division de l'image brute (a,d) par l'image de référence (b,e) [voir texte].

L'analyse d'images est réalisée avec le logiciel Matlab (Mathworks®) afin de quantifier la proportion de liquide dans le milieu, qualifiée ici de *rétention liquide apparente*, ϵ_L. Dans un premier temps les séquences d'images de chaque film (Figs. 3a,d) sont divisées par l'image de référence obtenue avec un écoulement monophasique liquide dans la même zone (Figs. 3b,e). Un seuil fixé à 0.9 permet ensuite de binariser chaque image (Figs. 3c,f). Une valeur de 1 correspond ainsi aux pixels contenant du liquide ou du solide (billes ou brins de mousse) et une valeur de 0 aux pixels où du gaz a été détecté. La fraction de gaz présente dans le milieu, ϵ_G, est alors estimée en divisant le nombre de pixels à 0 (gaz) par la totalité des pixels de l'image. La rétention liquide apparente est déduite de cette dernière et de la porosité, $\epsilon_L = \phi - \epsilon_G$. Nous parlons de rétention liquide *apparente* car elle est estimée à partir d'une visualisation 2D d'un milieu 3D. Selon le milieu poreux utilisé, plusieurs paramètres peuvent être source d'erreur. Pour la mousse solide, la forte porosité (96%) permet une visibilité suffisante pour détecter une bulle de gaz au fond de la cellule ; en revanche, la phase solide est surestimée par la projection, entraînant une sous-estimation de la fraction liquide présente dans le milieu. Dans le cas du milieu granulaire, d'une part il n'y a aucune visibilité sur la profondeur, on ne peut donc pas commenter l'écoulement au coeur de la cellule ; d'autre part, la porosité à la paroi ($\sim$60%) étant plus élevée que dans le lit (44%), les phénomènes observés ne sont pas extrapolables sur la globalité de l'écoulement. De fait, l'aspect quantitatif de cette rétention liquide apparente n'est pas discuté ni analysé dans cette étude qui se concentre sur l'aspect qualitatif du contenu fréquentiel des pulses de liquide induits par l'écoulement de Taylor.

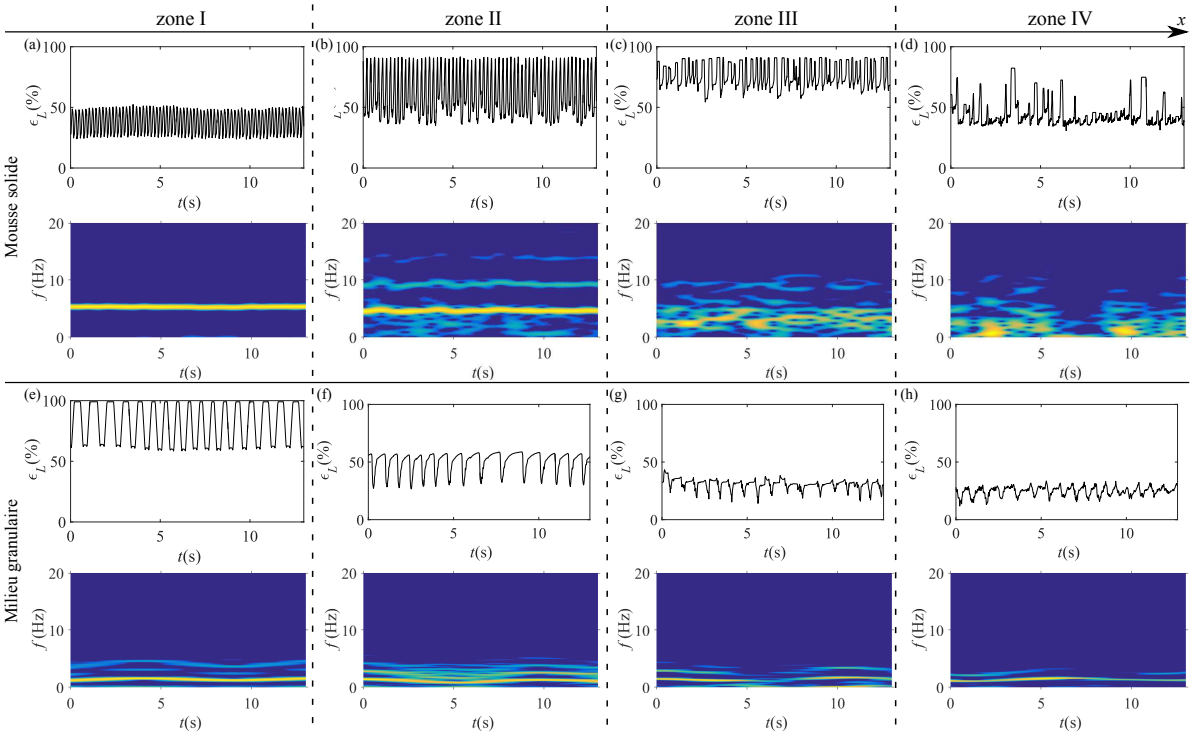

Figure 4. Évolution spatio-temporelle de la rétention liquide en amont (zone I) et dans le milieu poreux (zones II à IV) pour la mousse solide (a-d) et le milieu granulaire (e-h). *(Haut)* Rétention liquide apparente ϵ_L en fonction du temps. *(Bas)* Digrammes spatio-temporel du contenu fréquentiel du signal $\epsilon_L(t)$ représenté dans les panneaux supérieurs [fonction densité de probabilité, échelle de couleur [0 1] du bleu foncé au jaune].

3 Résultats

3.1 Contenu fréquentiel

L'évolution temporelle de la rétention liquide apparente ϵ_L est représentée sur la Fig. 4 pour les deux milieux poreux : la mousse solide (Figs. 4a-d, haut) et le milieu granulaire (Figs. 4e-h, haut) à mêmes débits de gaz ($Q_G = 4$ cm^3/min) et de liquide ($Q_L = 4$ cm^3/min) et pour chacune des zones de visualisation (zones I à IV). La périodicité de $\epsilon_L(t)$ dans la zone I reflète le passage des pulses de liquide induits par l'écoulement de Taylor en amont du milieu poreux. Pour chacun de ces signaux, un diagramme temps-fréquence est réalisé (spectre normalisé, Figs. 4a-d et 4e-h, bas), permettant de suivre l'évolution spatio-temporelle du contenu fréquentiel du signal.

En amont du milieu poreux (zone I), la fréquence principale de l'écoulement segmenté dans le cas de la mousse solide (Fig. 4a) est supérieure à celle dans le milieu granulaire (Fig. 4e) malgré des débits de gaz et de liquide identiques. Ce résultat peut sembler surprenant, l'écoulement de Taylor en amont étant a priori fixé par les seuls débits d'injection de gaz et de liquide. Pour l'exemple présenté Fig. 4, la fréquence de Taylor dans un canal identique en l'absence de milieu poreux est proche de 6 Hz. Cela traduit, dans le cas du milieu granulaire, une forte influence de la présence du milieu poreux sur l'écoulement amont. Ce couplage est responsable de la baisse de fréquence observée. Dans le cas de la mousse solide (Figs. 4a-d), on observe une désorganisation progressive du signal lors de la propagation dans le milieu poreux, jusqu'à retrouver la basse fréquence (~ 1 Hz) présente dès l'amont dans le cas du milieu granulaire. Cette basse fréquence apparaît d'autant plus proche de l'entrée (voire en amont du milieu) que le rapport Q_G/Q_L est grand.

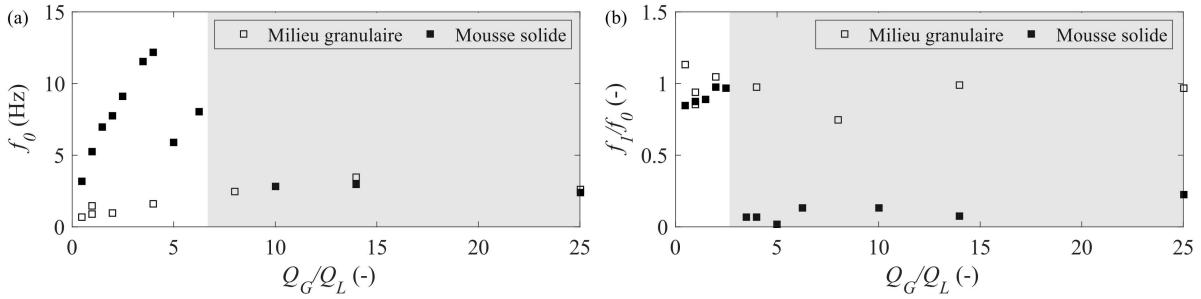

Figure 5. (a) Évolution de la fréquence principale f_0 de l'écoulement en amont du milieu poreux (zone I) en fonction du rapport Q_G/Q_L. (b) Fréquence principale f_1 du signal à l'entrée du milieu poreux (zone II), normalisée par la fréquence en amont [□ milieu granulaire; ■ mousse solide].

La Figure 5a montre la fréquence principale f_0 en amont du milieu poreux (zone I) en fonction du rapport Q_G/Q_L. Comme décrit précédemment, les deux milieux poreux se comportent très différemment pour de faibles Q_G/Q_L, le fort couplage entre le milieu granulaire et l'écoulement amont ayant pour conséquence de perturber l'écoulement de Taylor et d'abaisser la fréquence principale. Pour $Q_G/Q_L \gtrsim 6$, on observe un changement de régime hydrodynamique pour la mousse solide, dont la fréquence principale est alors similaire à celle du milieu granulaire. La Figure 5b représente l'évolution du rapport de la fréquence à l'entrée du milieu poreux, f_1 (zone II) normalisée par la fréquence de l'écoulement segmenté en amont f_0. Cette représentation permet de visualizer la désorganisation de l'écoulement lors de sa propagation dans le milieu poreux. Pour la mousse solide, on note un changement de régime clair pour $Q_G/Q_L \simeq 2.5$. Pour de plus grands rapports de débits, l'écoulement segmenté est désorganisé dès l'entrée de l'écoulement. Dans le cas du milieu granulaire, le couplage omniprésent entre les grains et l'écoulement amont fixe une basse fréquence de l'écoulement segmenté, qui est conservée tout au long de la propagation. On n'observe pas, dans ce dernier cas, de désorganisation de l'écoulement au fur et à mesure de sa propagation, bien que l'amplitude et la forme de $\epsilon_L(t)$ changent (voir Figs. 4e-h).

3.2 Valeur moyenne, écart-type et skewness de la rétention liquide

Sur la Figure 6 sont rapportées les variations de la valeur moyenne $\langle \epsilon_L \rangle$, l'écart-type σ et la skewness ζ des signaux de rétention liquide en fonction du rapport Q_G/Q_L dans la zone I (Figs. 6a-c, figures principales). L'augmentation de Q_G/Q_L entraîne une diminution continue de la rétention liquide moyenne (Fig. 6a) et une augmentation continue de la skewness ζ (Fig. 6c). Ces deux tendances peuvent être prédites par simple conservation de la masse dans un écoulement de Taylor classique. L'écart-type σ de la rétention liquide, en revanche, a une forme non-triviale avec un maximum à $Q_G/Q_L \simeq 1$ pour les deux milieux poreux, suivi d'un minimum apparent à $Q_G/Q_L \simeq 2.5$ pour la mousse et à $Q_G/Q_L \simeq 4$ pour le milieu

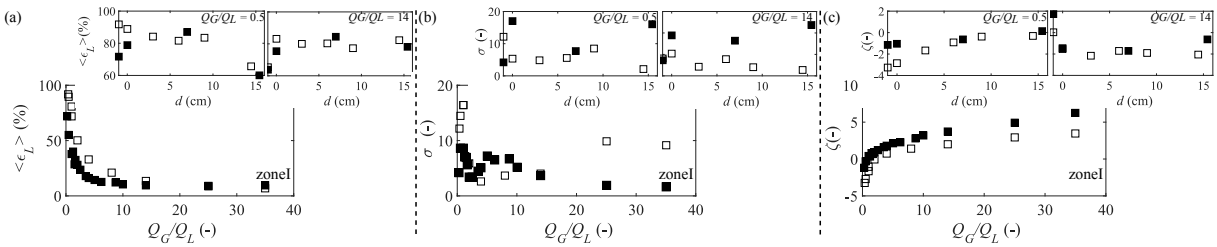

Figure 6. Évolution de la valeur moyenne $\langle \epsilon_L \rangle$, écart-type σ et skewness ζ de la rétention liquide apparente ϵ_L en fonction de Q_G/Q_L (zone I), ou de la distance d dans le milieu poreux [□ milieu granulaire; ■ mousse solide].

granulaire (Fig. 6b). Ces variations, qui restent à interpréter, pourraient être liées au couplage entre l'écoulement dans le milieu poreux et l'écoulement segmenté en amont.

Les figures secondaires (panneaux supérieurs) de la Figure 6 montrent les variations de $\langle \epsilon_L \rangle$, σ et ζ en fonction de la distance le long du milieu poreux pour deux rapports de débits fixés, $Q_G/Q_L = 0.5$ et $Q_G/Q_L = 14$. Pour $Q_G/Q_L = 0.5$, $\langle \epsilon_L \rangle$ décroît lors de la propagation dans le milieu granulaire, et passe par un maximum à $d \simeq 6$ cm pour la mousse, alors qu'elle semble constante dans les deux milieux poreux pour $Q_G/Q_L = 14$ (Fig. 6a). La skewness ζ augmente à la fois le long de la mousse et, de manière plus marquée, dans le milieu granulaire pour $Q_G/Q_L = 0.5$, alors qu'elle décroît puis reste environ constante de manière identique dans les deux milieux pour $Q_G/Q_L = 14$ (Fig. 6c). Une fois de plus, il est difficile de commenter l'évolution non-triviale de σ le long des milieux poreux (Fig. 6b).

4 Conclusion

L'hydrodynamique d'un écoulement de Taylor (multiphasique gaz-liquide) traversant un milieu poreux dans un canal millifluidique a été étudiée dans le cas de deux milieux très différents : une mousse solide (porosité 96%) et un milieu granulaire (porosité $\sim 60\%$ près de la paroi). En l'absence de milieu poreux, ce type d'écoulement est caractérisé par une fréquence bien déterminée, dépendant du rapport de débit gaz-liquide, Q_G/Q_L. Nous avons mis en évidence l'apparition d'un couplage entre le milieu poreux et l'amont, modifiant la fréquence caractéristique de l'écoulement segmenté, qui est abaissée de manière significative dans le cas du milieu granulaire, ou pour des Q_G/Q_L importants dans le cas de la mousse solide. Pour $Q_G/Q_L \lesssim 6$, lorsque ce couplage n'est pas important dans le cas de la mousse solide, on observe une désorganisation progressive de l'écoulement lors de la propagation dans la mousse. La fréquence caractéristique de la rétention liquide apparente s'abaisse ainsi progressivement, jusqu'à rejoindre celle obtenue dans le cas du milieu granulaire. Une étude des propriétés du signal de rétention liquide apparente en fonction de la distance de propagation dans le milieu poreux a montré que l'écart-type était un bon candidat pour espérer quantifier l'effet de ce couplage.

References

1. C. Bourry *et al.*, Free gas and gas hydrates from the Sea of Marmara, Turkey: Chemical and structural characterization, *Chemical Geology* **264**, 197–206 (2009).
2. K.R. Newman *et al.*, Active methane venting observed at giant pockmarks along the U.S. mid-Atlantic shelf break, *Earth and Planetary Science Letters* **267**, 341–352 (2008).
3. A. Gay, M. Lopez, C. Berndt, M. Séranne, Geological controls on focused fluid flow associated with seafloor seeps in the Lower Congo Basin, *Marine Geology* **244**, 68–92 (2007).
4. A. Mazzini *et al.*, Complex plumbing systems in the near subsurface: Geometries of authigenic carbonates from Dolgovskoy Mound (Black Sea) constrained by analogue experiments, *Marine and Petroleum Geology* **25**, 457–472 (2008).
5. V. Hessel, P. Angeli, A. Gavriilidis, H. Lowe, Gas-liquid and gas-liquid-solid microstructured reactors: Contacting principles and applications, *Industrial & Engineering Chemistry Research* **44**, 9750–9769 (2005).
6. M.T. Kreutzer, F. Kapteijn, J.A. Moulijn, J.J. Heiszwolf, Multiphase monolith reactors: Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels, *Chemical Engineering Science* **60**, 5895–5916 (2005).
7. P. Garstecki *et al.*, Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction- scaling and mechanism of break-up, *Lab on Chip* **6**, 437–446 (2006).
8. E. Brun *et al.*, iMorph : A 3D morphological tool to fully annalyze all kind of cellular materials, *Cellmet'08*, Dresden, Allemagne (2008).
9. D. Schweich, Génie de la réaction chimique, *Collection Traité de génie des procédés (tgp)*, Tec & Doc Lavoisier (2001).

G

ARTICLE - STABILITY OF TAYLOR BUBBLES

M. Serres, M.-L. Zanota, R. Philippe, V. Vidal, **On the stability of Taylor bubbles inside a confined highly porous medium**, *Int. J. Multiphase Flow* **85**, 157 – 163 (2016), https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2016.06.003.

H

ARTICLE - A PHENOMENOLOGICAL MODEL

M. Serres, T. Maison, R. Philippe, V. Vidal, **A phenomenological model for bubble coalescence in confined highly porous media**, *submitted to Int. J. Multiphase Flow* (2017)

A phenomenological model for bubble coalescence in confined highly porous media

Marion Serres[a,b], Timothée Maison[a], Régis Philippe[b], Valérie Vidal[a,*]

[a]*Laboratoire de Physique, CNRS UMR 5672, École Normale Supérieure de Lyon, Université de Lyon, 46 Allée d'Italie, 69007 Lyon, France*
[b]*Laboratoire de Génie des Procédés Catalytiques, CNRS UMR 5285, CPE Lyon, Université de Lyon, 43 boulevard du 11 novembre 1918, 69100 Villeurbanne, France*

Abstract

In a recent work, Serres et al. [Int. J. Multiphase Flow 85, 157 (2016)] considered the stability of Taylor bubbles entering a confined highly porous medium (open cell solid foam of 96% porosity). This experimental work pointed out that a periodic alternation of gas bubbles and liquid slugs in a millichannel can either keeps its regularity, or be destructured at the porous medium entrance. A critical bubble length was proposed as a transition parameter between the two observed regimes. This study presents two key results which complement the previous work and explain the regime transition. (1) The comparison of the Taylor flow upstream the porous medium with the Taylor flow in an empty millichannel demonstrates that the regime transtion is not due to a feedback of the foam on the flow. (2) A phenomenological model is proposed, which accounts for the observed bubble coalescence and gas channelling in the porous medium in a given range of parameters.

Keywords: porous media, gas-liquid flow, bubble coalescence, solid foam

1. Introduction

Three-phase flows are ubiquitous in a wide range of phenomena, from natural to industrial processes. In the last decades, gas-liquid flows in porous media – either rigid or mobile – have motivated many fundamental and applied studies, with the goal to either understand and predict natural processes such as methane venting (Naudts et al., 2008) and pockmarks (Hovland et al., 2002; Gay et al., 2006) on the oceanic floor or mud volcanoes (Planke et al., 2003; Mastalerz et al., 2007; Mazzini et al., 2007), or to optimize man-made techniques. Among these latters, soil decontamination by air sparging (Semer et al., 1998; Reddy and Adams, 2001), CO_2 sequestration (Kang et al., 2005; Eccles et al., 2009) enhanced oil recovery (Babchin et al., 2008) or catalytic reactors (Losey et al., 2001; Hessel et al., 2005; Marquez et al., 2008) are part of the present societal challenges. Indeed, the strong hydrodynamic coupling between the gas, liquid and – in mobile porous media – solid phase motion, in addition to possible mixing and chemical reactions, make this problem very difficult to tackle.

In the particular context of heterogeneous catalysis, process intensification has led to testing new porous materials and environments. In confined geometries, open cell solid foams are innovative porous media which have a great potential due to their high porosity (up to 96%), leading to low pressure losses and large contact area (Stemmet et al., 2005, 2006, 2008; Twigg and Richardson, 2007; Tourvielle et al., 2015a,b). However, if the interest of such new material has been undoubtfully highlighted, the hydrodynamics of a confined gas-liquid flow across such medium still has to be characterized.

In a recent work, Serres et al. (2016) have quantified the local hydrodynamics of a periodic gas-liquid flow – Taylor flow – forced into an open cell solid foam in a confined geometry (horizontal square millichannel). They have shown that, in a given range of parameters, the periodic flow in the millichannel disorganizes at the porous medium entrance, leading to a modulation of the upstream Taylor flow frequency. The transition was successfully described in terms of a modified Weber number (see Serres et al. (2016) and section 3.2 of the present work). A tentative model was proposed in terms of bubble fragmentation at the foam entrance, but without any further quantification.

In the present study, we revisit the work of Ser-

* *Email address:* valerie.vidal@ens-lyon.fr (Valérie Vidal)

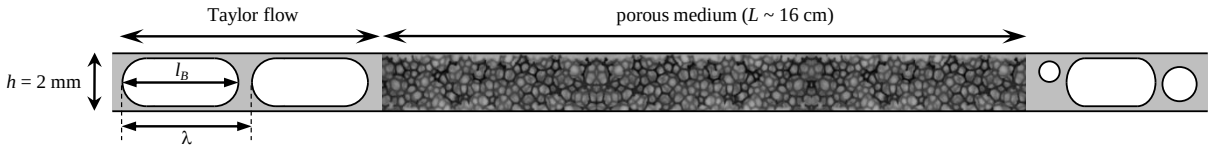

Figure 1: Sketch of the experimental setup. Periodic gas bubbles and liquid slugs (Taylor flow) are sent at the entrance of a porous medium of length $L \sim 16$ cm in a millichannel of square cross-section $h = 2$ mm. l_B is the typical bubble length and λ the spatial periodicity of the Taylor flow.

res et al. (2016) based on new experimental evidences. First, we demonstrate that the Taylor frequency upstream can be predicted by a simple model of the periodic gas-liquid flow (section 3.1). It demonstrates that the existence of the modulated regime is not due to a change in the upstream flow, but rather to the presence of the porous medium. We then propose a phenomenological model (section 4) based on bubble coalescence and gas channelling – as evidenced by new experimental measurements. This model successfully describes the transition between the periodic, Taylor-like regime and the modulated regime.

2. Preliminary results

2.1. Experimental setup

The experimental setup is a millichannel of square cross-section $h \times h$ ($h = 2$ mm). The setup is similar to the one presented in Serres et al. (2016), and therefore is only briefly described here. A regular Taylor flow, consisting of a periodic alternance of gas bubbles and liquid slugs (Garstecki et al., 2006; Angeli and Gavriilidis, 2008), is sent at the entrance of a porous medium of length $L \simeq 16$ cm (Fig. 1). This latter consists of a highly porous structure, an open cell solid foam made of vitreous carbon (80 PPI, ERG Aerospace, porosity $\epsilon = 96\%$). The pore size distribution is characterized by X-Ray tomography (GE Phoenix v|tome|x s, RX tube of 160kV with focal point of up to 1 μm) with a spatial resolution of 5 μm. It evidences two pore structures: (1) the cells, corresponding to the void cages of the foam and (2) the windows, which connect two neighboring cells (for more details, see Serres et al. (2016)). The typical diameter of the cells and windows are $d_c = 604 \pm 86$ μm and $d_w = 257 \pm 85$ μm, respectively.

The gas (G) and liquid (L) are nitrogen and ethanol of density $\rho_G = 1.25$ kg/m^3, $\rho_L = 795$ kg/m^3, viscosity $\mu_G = 1.76 \times 10^{-5}$ Pa.s, $\mu_L = 1.15 \times 10^{-3}$ Pa.s and $\sigma \simeq 22$ mN/m, the nitrogen-ethanol surface tension at room temperature (Dittmar et al., 2003). The flow-rates are varied as follows, $Q_G = [2 - 35]$ cm^3/min and $Q_L = [0.5 - 8]$ cm^3/min, such that their ratio stays in the range $Q_G/Q_L = [0.25 - 35]$, ensuring a regular Taylor flow upstream the porous medium.

One of the experimental cell wall is made of glass, and makes it possible to visualize directly the gas-liquid flow in the millichannel (camera Solinocam H2D2 at

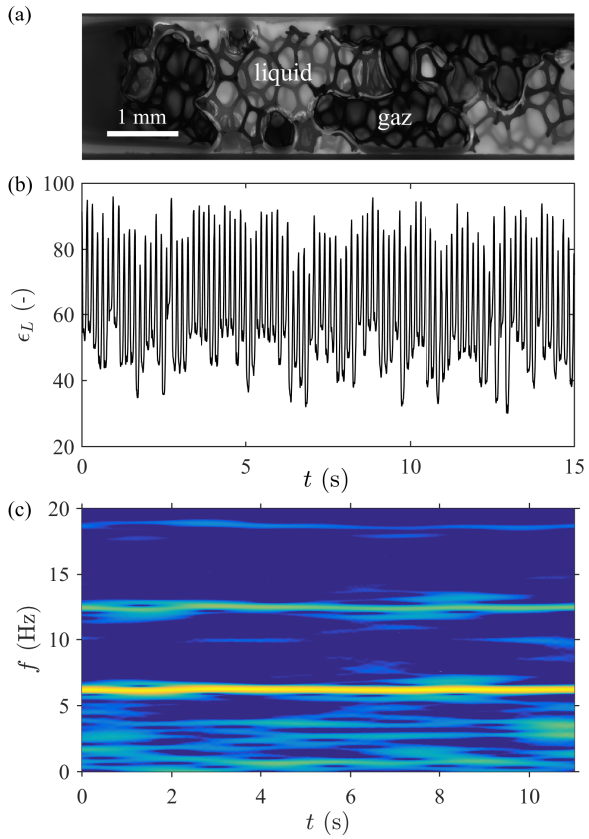

Figure 2: Data processing [example for $Q_G = 6$ cm^3/min, $Q_L = 4$ cm^3/min at the entrance of the porous medium]. (a) Raw image. The gas (dark zones) and liquid (light gray zones) phases are clearly visible, as well as the foam structure. (b) Example of ϵ_L vs. t. (c) Spectrogram associated with (b), computed with a sliding window of width $\Delta t = 4$ s. The main frequency here is $f_0 \simeq 6$ Hz.

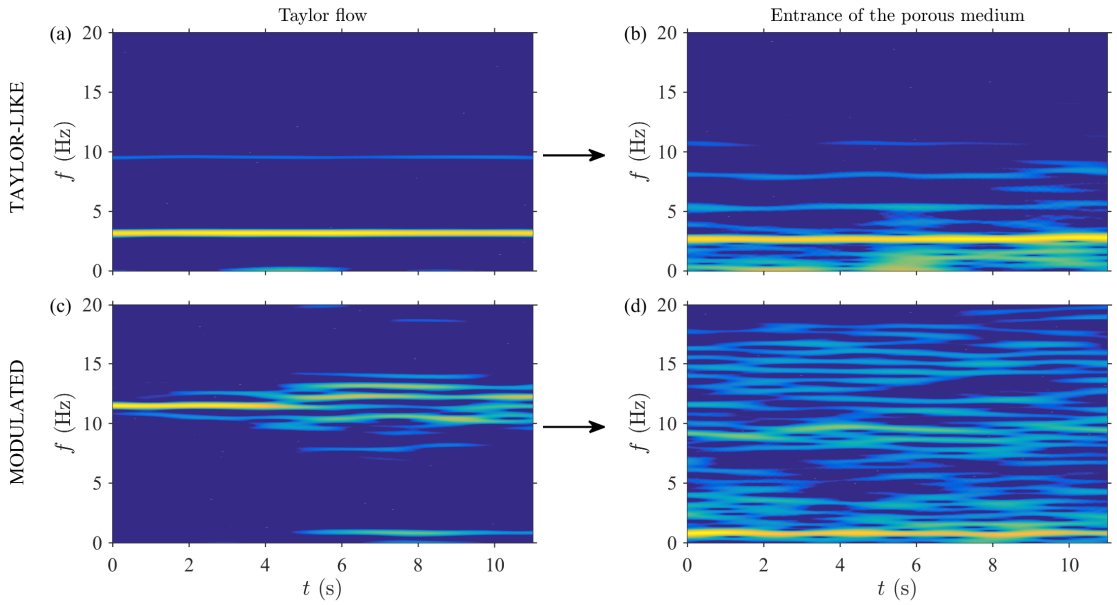

Figure 3: Different hydrodynamic regimes. The spatiotemporal diagram of ϵ_L in the Taylor flow region, upstream the porous medium (*left column*) and at the entrance of the porous medium (*right column*) displays two different regimes. (1) The Taylor-flow frequency is not altered by the porous medium [Taylor-like regime (a,b) $Q_G = 2$ cm^3/min, $Q_L = 4$ cm^3/min]; (2) The Taylor flow is disorganized at the entrance of the porous medium and displays a low-frequency modulation [modulated regime (c,d) $Q_G = 10$ cm^3/min, $Q_L = 4$ cm^3/min]. In this last case, the disorganization by the porous medium can have a feedback on the upstream flow (see text).

113 frames per second mounted on a fluorescence microscope Olympus BX51M). A fluorescent dye (Rhodamine 6B, 3.2×10^{-5} mol/L) is dissolved inside the liquid phase (ethanol) prior to the injection, ensuring a good contrast between the liquid (bright gray) and the gas (black) phases on the images (Fig. 2a).

2.2. Data processing

After a simple normalization by a reference image and binarization process (Serres et al., 2016), the gas and liquid phases are separated in the raw images (Fig. 2a) and we extract for each image the volume fraction of liquid, ϵ_L, hereafter named *liquid holdup*. Figure 2b illustrates an example of liquid holdup variations in time, in which the downward peaks correspond to gas bubbles crossing the image. The frequency content of $\epsilon_L(t)$ is then quantified by means of spatiotemporal diagrams (Fig. 2c) computed with a sliding window of width $\Delta t = 4$ s. The main frequency f_0 is extracted by computing the median value of the frequency corresponding to the maximum peak in the spectrum at each time t, over the full acquisition (typically about 10 s). Upstream the porous medium, $f_0 = f_T$, the Taylor frequency.

2.3. Hydrodynamic regimes

The previous work of Serres et al. (2016) focused on the behavior of the Taylor bubbles when entering the porous medium. In particular, they evidenced two hydrodynamic regimes when the gas-liquid flow enters the porous medium: (1) a Taylor-like regime, for which the Taylor frequency is preserved (Fig. 3a,b); (2) a modulated regime, for which a low-frequency modulation of the initial Taylor flow periodic signal is observed (Fig. 3c,d). In this last case, we sometimes report a feedback of the low-frequency modulation on the upstream Taylor flow, as evidenced in Figure 3c at $t \simeq 5$ s. This feedback, due to a coupling between the flow disorganization at the foam entrance and the upstream flow, is usually observed for high gas over liquid flow rates, Q_G/Q_L. In the next section, we quantify the disorganization of the Taylor flow at the porous medium entrance.

3. Taylor flow disorganization

3.1. Taylor flow frequency

The Taylor flow upstream the porous medium is characterized by its main frequency f_T (see section 2.2).

Here, we compare this frequency, measured experimentally, with the theoretical frequency computed as follows. In a first approximation, the relationship between the Taylor spatial wavelength λ and the bubble length l_B (see Fig. 1) is

$$\lambda \simeq l_B \left(1 + \frac{Q_L}{Q_G}\right). \quad (1)$$

This relationship holds true as long as we neglect the lubrication films around the bubbles and consider that the liquid around the meniscii at the bubble front and rear have a negligible volume respect to the bubble volume. This latter point is always checked experimentally. An estimation of the cross-section liquid fraction, W, in the square millichannel is provided by Leclerc et al. (2010), considering the films on the cell walls and the gutters at the four corners:

$$W = \frac{4h_L}{h}\left(1 - \frac{h_L}{h}\right) + \frac{4-\pi}{h^2}\left(\frac{h}{4} - \frac{h_L}{2}\right)^2, \quad (2)$$

where h is the channel width and h_L the liquid film thickness far from the channel corners. This latter can be estimated by the relationship provided by Roudet (2008) for a Hele-Shaw cell:

$$\frac{h_L}{h} \sim \frac{Ca^{2/3}}{1 + Ca^{2/3}} \quad (3)$$

where $Ca = \mu U/\sigma$ is the capillary number, μ the fluid dynamic viscosity, U the typical bubble velocity and $\sigma \simeq 22$ mN/m the nitrogen-ethanol surface tension at room temperature (Dittmar et al., 2003). In all the experiments, $Ca \ll 1$ ($5.4 \times 10^{-4} < Ca < 9.7 \times 10^{-3}$), leading to $0.07 < W < 0.2$. We can therefore neglect the lubrication films.

As previously reported in the literature, the Taylor bubble length l_B is a linear function of the gas-liquid flow-rate ratio, Q_G/Q_L (Garstecki et al., 2006; Leclerc et al., 2010; Abadie et al., 2012; Serres et al., 2016):

$$\frac{l_B}{h} = \alpha \frac{Q_G}{Q_L} + \beta \quad (4)$$

To determine the theoretical Taylor frequency, the empirical coefficients (α, β) are estimated from empty channel experiments, $\alpha = 0.45$ and $\beta = 1$ (see Fig. A.9, gray dotted line). A discussion on the influence of the porous medium on (α, β) is provided in Appendix A.

The theoretical Taylor flow frequency, $f_{th} = U/\lambda$, where $U = (Q_G + Q_L)/h^2$, can therefore be written by using λ given by Eq. 1 and l_B by Eq. 4:

$$f_{th} = \frac{Q_G + Q_L}{h^3\left[(\alpha + \beta) + \alpha\frac{Q_G}{Q_L} + \beta\frac{Q_L}{Q_G}\right]} \quad (5)$$

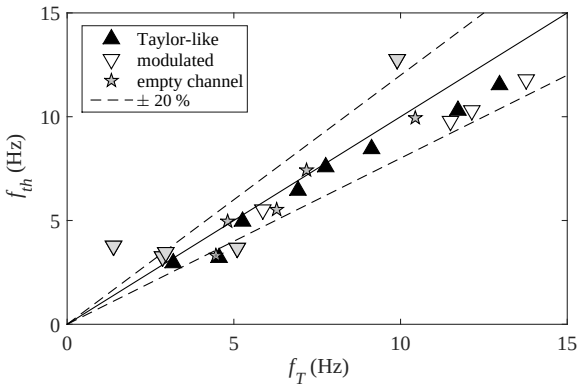

Figure 4: Theoretical frequency of the Taylor flow f_{th} (from Eq. 5) as a function of the Taylor bubbles frequency measured upstream the porous medium in our experiments, f_T [(▲, Taylor-like regime), (▽,modulated regime)]. The light gray triangles in the modulated regime indicate experiments for which $Q_G/Q_L > 8$ (see text). The gray stars are the reference experiments in the empty channel (no porous medium). The black line indicates the 1:1 slope, while the dashed lines represent the ±20% error.

Figure 4 displays the theoretical Taylor frequency, f_{th}, as a function of the experimental Taylor flow frequency upstream the porous medium, f_T. Reference experiments reporting the Taylor frequency in the empty channel (after removing the porous medium) are also reported (gray stars, Fig. 4). Within ±20%, there is a good agreement between the theoretical frequency and the experimental measurements. The points which present the largest deviation are systematically in the modulated regime, and correspond to large Q_G/Q_L (typically $Q_G/Q_L > 8$, gray triangles, Fig. 4).

The good agreement between the Taylor frequency measured experimentally and the theoretical frequency estimated with rough approximations demonstrates that at first order, the presence of the porous medium does not modify drastically the expected Taylor frequency upstream. Therefore, it is not a modification of the upstream flow which is responsible for the transition between the Taylor-like and the modulated regime. Indeed, even in the modulated regime, the upstream frequency is within ±20% of the theoretical upstream frequency, predicted from empty channel experiments. The modulated regime is therefore due to the hydrodynamics and flow propagation inside the porous medium.

3.2. Dimensionless analysis

The dimensionless frequency, also called the Strouhal number, is defined by $St = f_0/f_{th}$, where f_0 is the main frequency of the flow (see section 2.2) and f_{th} is given

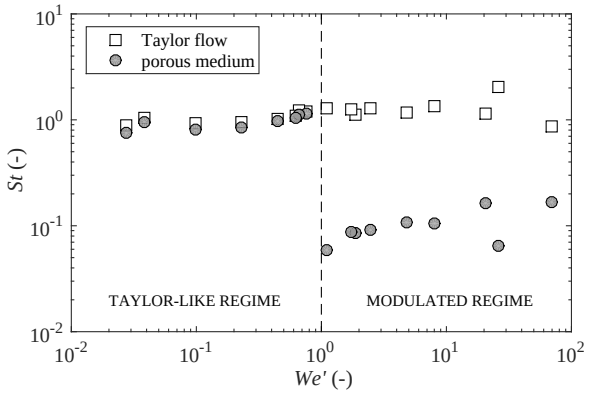

Figure 5: Strouhal number, St, as a function of the modified Weber number, We' (see text) [white squares, Taylor flow upstream; gray circles, inside the porous medium]. The dashed line indicates the separation between the Taylor-like and the modulated regimes.

by Eq. 5. To quantify its variations as a function of the imposed parameters, a dimensionless number representative of the multiphase flow has to be introduced (Serres et al., 2016). Upstream the porous medium, the governing parameters are the flow-rate ratio, Q_G/Q_L, and the inertial and viscous forces, leading to the dimensionless number $Re_G/Re_L = (Q_G/Q_L)(\rho_G\mu_L/\rho_L\mu_G)$. Inside the porous medium, the dominant parameters are the velocity (typically $Q_G + Q_L$), the inertial and capilary forces, which define a multiphase Weber number $We = \rho_L(Q_G + Q_L)^2 d_w/(S^2\sigma)$ where S is a typical surface through which the gas-liquid flow can propagate in a cross-section of the porous medium, and d_w the window diameter, representative of the pore structure for the flow. Following previous studies (Clements and Schmidt, 1980; Serres et al., 2016), we therefore introduce a *modified* Weber number, We', accounting for both the hydrodynamics in the porous medium and the upstream flow:

$$We' = \left(\frac{\rho_G}{\sigma}\right)\left(\frac{\mu_L}{\mu_G}\right)\left(\frac{Q_G}{Q_L}\right)\left(\frac{Q_G + Q_L}{S}\right)^2 d_w\,. \qquad (6)$$

Figure 5 displays the Strouhal number versus the modified Weber number upstream the porous medium (white squares) and when entering the porous medium (gray circles). The two hydrodynamic regimes described in section 2.3 are clearly visible: for $We' < 1$, the flow main frequency in the porous medium is conserved at the porous medium entrance; for $We' > 1$, the low frequency characteristics of the modulated regime appears.

This result, already pointed out by Serres et al. (2016), was previously interpreted in terms of bubble fragmentation at the foam entrance. Indeed, the authors proposed that a critical bubble length l_B^* exists. For $l_B < l_B^*$, the incoming bubble from the Taylor flow can enter the porous medium and propagates as a whole; for $l_B > l_B^*$, a fragmentation mechanism was proposed, which leads to the flow disorganization.

Recent observations with a fast camera (Optronis CR 600x2 at 1000 fps) made it possible to have more information on the mechanism at the origin of the regime transition. These observations evidence that the mechanism at stake is not bubble fragmentation, but rather coalescence (see Supplemental Material). Indeed, bubbles in the Taylor-like regime cross the porous medium as a whole, although deformed by their propagation in the solid foam (Supplemental Material, movie 1). In the modulated regime, periodic bubbles crossing the medium alternate with a sudden bubble coalescence, which leads to the formation of a gas channel along the porous medium (Supplemental Material, movie 2). This channel remains open for a certain time, then destabilizes and pinches off, leading back to the periodic bubbling regime. In the next section, we propose a phenomenological model to account for this mechanism.

4. Phenomenological model

4.1. Description & hypotheses

The phenomenological model is based on the observations of bubble deformation when entering the porous medium. Taylor bubbles propagating in the millichannel upstream (length l_B^0, wavelength λ^0) are forced to propagate inside the porous medium through a smaller cross-section, typically of the cell size (diameter $a = d_c$, area $A = \pi a^2/4$) (Fig. 6a). Therefore, they are elongated (length l_B, wavelength λ) and we consider that the remaining cross-section area ($h^2 - A$) is occupied by the liquid phase only. The flow inside the porous medium is thus separated in two different zones, which can propagate *a priori* at different velocities: the gas-liquid zone (zone A, velocity u_A) and the pure liquid region (zone B, velocity u_B). This velocity difference, also called 'slip velocity' or 'drift flux', is classical and has already been pointed out in the literature (Wallis, 1969; Darton and Harrison, 1975; Larachi et al., 1991; Molga and Westerterp, 1997).

Assuming that the gas and liquid are incompressible, their flow rates in zone A can be written, respectively: $Q_G^A = Q_G = V_G u_A/\lambda$ and $Q_L^A = V_L^A u_A/\lambda$, where V_G is the volume of a gas bubble and V_L^A the volume of the liquid slug in zone A. The liquid flow rates in zones A and B can thus be written $Q_L^A = (V_L^A/V_G)Q_G = (\lambda/l_B -$

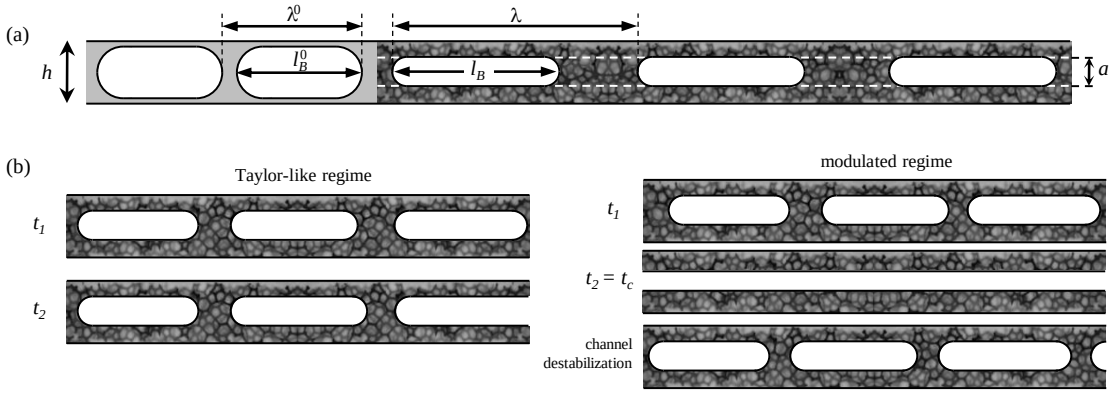

Figure 6: (a) Sketch of the phenomenological model. Taylor bubbles (length l_B^0, wavelength λ^0) in the millichannel deform when entering the porous medium (length l_B, wavelength λ). They are forced to propagate in a narrower section, roughly corresponding to the pore section $A = \pi a^2/4$, where a is the pore diameter. (b) Two different regimes when the bubbles cross the porous medium. *Left:* The bubble deformation is small and they keep their periodicity - hence, the Taylor frequency - when propagating inside the porous medium. *Right:* The bubbles get closer and experience a coalescence inside the porous medium, leading to the formation of a gas channel (middle) after a typical time t_c. This channel then destabilizes, leading back to pediodic bubbles. This alternance generates a low-frequency (modulation) in the spatiotemporal evolution of ϵ_L.

1)Q_G and $Q_L^B = Q_L - Q_L^A$, respectively. The velocities of regions A and B are then given by $u_A = (Q_L^A + Q_G)/A$ and $u_B = Q_L^B/(h^2 - A)$, leading to

$$u_A = \left(\frac{\lambda}{l_B}\right)\frac{Q_G}{A} \quad (7)$$

$$u_B = \frac{Q_L - (\lambda/l_B - 1)Q_G}{h^2 - A} \quad (8)$$

Note that $h > A$ and $\lambda \geq l_B$, so $u_A > u_B$ is always checked.

The second hypothesis of the model is that due to viscous losses, $u_A \rightarrow u_B$ with a relaxation time τ. At first order, one can assume an exponential relaxation:

$$\frac{\mathrm{d}u_a}{\mathrm{d}t} + \frac{u_a}{\tau} = u_B \quad (9)$$

with the initial condition $u_A = u_A^0$, leading to

$$u_A = (u_A^0 - u_B)\,\mathrm{e}^{-t/\tau} + u_B\,. \quad (10)$$

Replacing u_A and u_B by their expression given in Equations 7 and 8 provides the equation describing l_B normalized by the wavelength $\lambda(t)$:

$$\frac{l_B}{\lambda(t)} = \frac{\left(\frac{h^2}{A} - \mathrm{e}^{-t/\tau}\right)Q_G}{\left(\frac{h^2-A}{A}\right)\left(\frac{\lambda^0}{l_B^0}\right)Q_G\,\mathrm{e}^{-t/\tau} + (Q_G + Q_L)\,(1 - \mathrm{e}^{-t/\tau})}\,. \quad (11)$$

Note that the bubble length is constant once it enters the porous medium, and given by $l_B = l_B^0 \times h^2/A$.

4.2. Relaxation time

A first estimation of the relaxation time τ can be obtained by considering that, in the modulated regime, the typical time at which coalescence occurs ($l_B = \lambda$) is given by $t = t_c \simeq 1/f_0$. This makes it possible to plot, from Equation 11, the dependence of τ as a function of Q_L and Q_G (Figure 7a). We find that τ decreases strongly with the liquid flow rate (Figure 7a), while is does not depend drastically on the gas flow rate (Figure 7a, inset).

However, to get a prediction on $l_B/\lambda(t)$ from the phenomenological model, it is necessary to estimate the relaxation time τ independently from Equation 11. To do so, we propose the following scaling, based on a simple dimensionless analysis: $\tau \sim Re^{-1}(Lh^2/Q_L)$, where $Re = \rho_L U a/\mu_L$ is the Reynold's number, $U = U_{TP} = (Q_G + Q_L)/h^2$ the two-phase flow characteristic velocity and $L = 16$ cm the total length of the porous medium, leading to

$$\tau_s \sim \frac{Lh^4\mu_L}{\rho_L(Q_G + Q_L)Q_L a}\,. \quad (12)$$

Figure 7b displays the relaxation time τ estimated from Equation 11 with $t = 1/f_0$ as a function of the relaxation time τ_s predicted from this scaling. We find a fair proportionality, with a coefficient of 20 which cannot be determined by the dimensionless analysis (dashed line, Figure 7b). Because this phenomenological model only aims at predicting at first order the coalescence phenomenon, we fix the proportionality factor to $\zeta = 20$, the

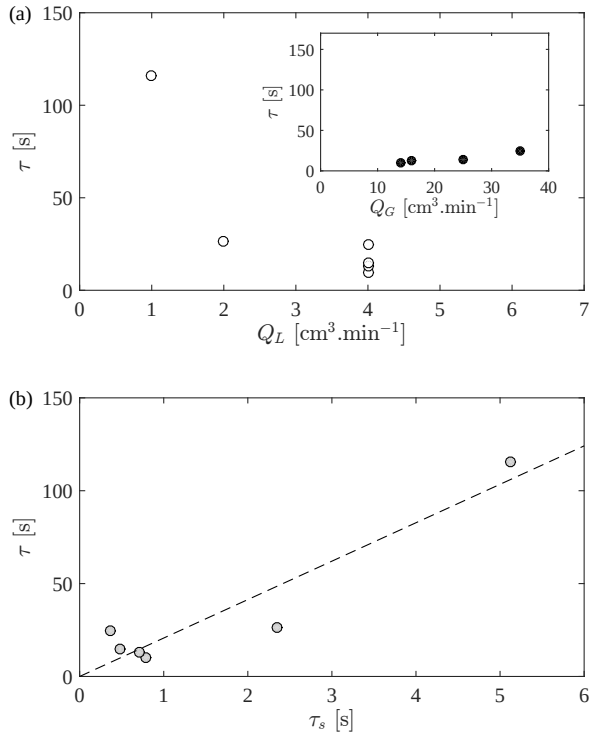

Figure 7: (a) Relaxation time τ as a function of the liquid flow rate Q_L (main graph) and the gas flow rate Q_G (*Inset*). (b) Relaxation time τ determined from Eq. 11 as a function of τ_s determined from the scaling (Eq. 13). The dashed line represents the linear fit (slope 20).

closest order of magnitude. The relaxation time can therefore be written

$$\tau_s = \frac{\zeta L h^4 \mu_L}{\rho_L (Q_G + Q_L) Q_L a} \tag{13}$$

and estimated independently from Equation 11, knowing the parameters of the problem (cell geometry, porous structure, fluid properties and imposed gas and liquid flow rates).

4.3. Residence time

A second important time in the system is the residence time, t_s, corresponding to the typical time necessary for the bubbles to cross the entire porous medium. Indeed, as they cross the porous medium, the bubbles keep their length l_B constant, while the wavelength λ decreases (Eq. 11). If $l_B \simeq \lambda$ for $t \leq t_s$, then the coalescence can occur, starting from the downstream end of the porous medium. This mechanism has been observed in the experiments with the fast camera.

The residence time of the gas phase is estimated by the equation :

$$t_s = \frac{(\epsilon - \epsilon_L) L h^2}{Q_G} \tag{14}$$

where $(\epsilon - \epsilon_L) L h^2$ is the volume faction of the millichannel occupied by the gas phase, with ϵ the porosity and ϵ_L the liquid fraction estimated by direct visualization (section 2.2).

4.4. Results

Figure 8 displays the normalized bubble length, $l_B/\lambda(t)$, computed from Equation 11 by using the independent estimation of the relaxation time (section 4.2), as a function of the time normalized by the residence time, t/t_s, for the different gas and liquid flow rates used in our experiments. The two sets of curves represent the hydrodynamic regimes observed experimentally: the Taylor-like regime (light gray curves) and the modulated regime (black curves).

The phenomenological model is in good agreement with the experimental observations. Indeed, in the case of the modulated regime (solid black curves), $l_B/\lambda = 1$ for $t < t_s$, as expected, while for the Taylor-like regime (solid gray curves), the bubbles manage to cross the entire porous medium without experiencing coalescence ($l_B/\lambda < 1$ for $t = t_s$). The model fails to predict the hydrodynamic regimes for two sets of parameters (Q_G, Q_L) only (dashed black lines, Figure 8): (10,1) and (10,2) cm^3.min^{-1}, which correspond to the transition between both regimes.

5. Conclusion

Based on the work of Serres et al. (2016), we proposed a phenomenological model to account for the two hydrodynamic regimes observed when a Taylor flow crosses a confined highly porous medium – here, an open cell solid foam of 96% porosity. We have shown that the tentative explanation of bubble fragmentation at the entrance, proposed in a previous work (Serres et al., 2016) is not corroborated by observations with a fast camera, which rather show bubble coalescence inside the medium. A simple phenomenological model based on neighboring bubbles getting closer to each other due to (1) the narrower section in which it is forced to enter the porous medium (pore vs. millichannel section) and (2) the evolution of the wavelength in time during propagation along the medium recovers, at first order, the two hydrodynamic regimes. On the one hand, if the bubbles do not get close enough before exiting the porous medium, the frequency in the open cell solid foam remains

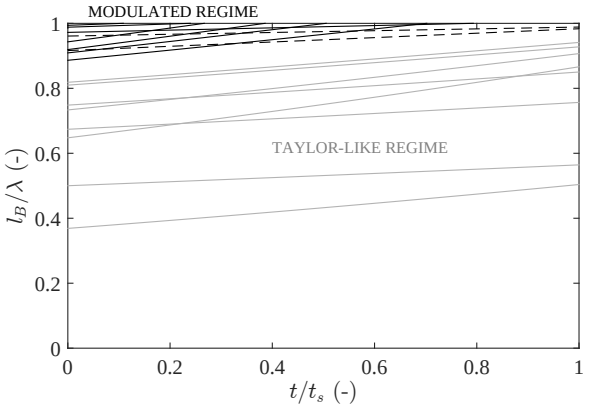

Figure 8: Bubble length l_B normalized by the wavelength $\lambda(t)$ (computed from Equation 11) as a function of the time t normalized by the residence time t_s, for different liquid and gas flow rates Q_L and Q_G. The different colors correspond to the hydrodynamic regimes reported in the experiment: Taylor-like (light gray curves) or modulated (black curves). The dashed black curves correspond to sets of parameters for which the model does not predict the right regime (here, modulated regime).

equal to the Taylor frequency at the entrance (Taylor-like regime). On the other hand, when the wavelength decreases enough to connect bubbles, a coalescence is reported, leading to the formation of a channel along the medium. A continuous degassing through the foam then occurs. The channel further destabilizes, leading back to periodic bubbles. This introduces a low frequency in the system, corresponding to the modulated regime.

Although this first order model captures well the observations, further improvements could be made. In particular, one could account for a more realistic bubble volume, including the meniscii volume computation and a bubble length variation during its propagation.

Acknowledgment

The authors acknowledge F. Bornette for his contribution to the experiment design and setup. This work was supported by the LABEX iMUST (ANR-10-LABX-0064) of Université de Lyon, within the program "Investissements d'Avenir" (ANR-11-IDEX-0007) operated by the French National Research Agency (ANR).

6. References

Abadie, T., Aubin, J., Legendre, D., Xuereb, C., 2012. Hydrodynamics of gas-liquid Taylor flow in rectangular microchannels. Microfluid. Nanofluid. 12, 355–369.

Angeli, P., Gavriilidis, A., 2008. Taylor Flow in Microchannels. In: Li, D. (Ed.), Encyclopedia of Microfluidics and Nanofluidics. Springer, US, pp. 1971–1976.

Babchin, A., Brailovsky, I., Gordon, P., Sivashinsky, G., 2008. Fingering instability in immiscible displacement. Phys. Rev. E 77, 026301.

Clements, L. D., Schmidt, P. C., 1980. Dynamic liquid holdup in two-phase downflow in packed beds: Air-silicone oil system. AIChE J. 26 (2), 317–319.

Darton, R. C., Harrison, D., 1975. Gas and liquid holdup in three-phase fluidisation. Chem. Eng. Sci. 30, 581–586.

Dittmar, D., Fredenhagen, A., Oei, S. B., Eggers, R., 2003. Interfacial tensions of ethanolcarbon dioxide and ethanolnitrogen. Dependence of the interfacial tension on the fluid density–prerequisites and physical reasoning. Chem. Eng. Sci. 58, 1223–1233.

Eccles, J. K., Pratson, L., Newell, R. G., Jackson, R. B., 2009. Physical and economical potential of geological CO_2 storage in saline aquifers. Environ. Sci. Technol. 43, 1962–1969.

Garstecki, P., Fuerstman, M. J., Stone, H. A., Whitesides, G. M., 2006. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction–scaling and mechanism of break-up. Lab Chip 6, 437–446.

Gay, A., Lopez, M., Cochonat, P., Sérane, M., Levaché, D., Sermondadaz, G., 2006. Isolated seafloor pockmarks linked to BSRs, fluid chimneys, polygonal faults and stacked OligoceneMiocene turbiditic palaeochannels in the Lower Congo Basin. Mar. Geol. 226, 25–40.

Hessel, V., Angeli, P., Gavriilidis, A., Löwe, H., 2005. Gas-liquid and gas-liquid-solid microscructured reactors: Contacting principles and applications. Ind. Eng. Chem. Res. 44, 9750–9769.

Hovland, M., Gardner, J. V., Judd, A. G., 2002. The significance of pockmarcks to understanding fluid flow processes and geohazards. Geofluids 2, 127–136.

Kang, Q., Tsimpanogiannis, I. N., Zhang, D., Lichtner, P. C., 2005. Numerical modeling of pore-scale phenomena during CO_2 sequestration in oceanic sediments. Fuel Process. Technol. 86, 1647–1665.

Kreutzer, M. T., Bakker, J. J. W., Kapteijn, F., Moulijn, J. A., Verheijen, P. J. T., 2005. Scaling-up multiphase monolith reactors: Linking residence time distribution and feed maldistribution. Ind. Eng. Chem. Res. 44, 4898–4913.

Larachi, F., Laurent, A., Wild, G., Midoux, N., 1991. Some experimental liquid saturation results in fixed-bed reactors operated under elevated pressure in cocurrent upflow and downflow of the gas and the liquid. Ind. Eng. Chem. Res. 30, 2404–2410.

Leclerc, A., Philippe, R., Houzelot, V., Schweich, D., de Bellefon, C., 2010. Gas-liquid Taylor flow in square micro-channels: New inlet geometries and interfacial area tuning. Chem. Eng. J. 165, 290–300.

Losey, M. W., Schmidt, M. A., Jensen, K. F., 2001. Microfabricated multiphase packed-bed reactors: Characterization of mass transfer and reactions. Ind. Eng. Chem. Res. 40, 2555–2562.

Marquez, N., no, P. C., Makkee, M., Moulijn, J. A., Kreutzer, M. T., 2008. Dispersion and holdup in multiphase packed bed microreactors. Chem. Eng. Technol. 31 (8), 1130–1139.

Mastalerz, V., de Lange, G. J., Dählmann, A., Feseker, T., 2007. Active venting at the Isis mud volcano, offshore Egypt: Origin and migration of hydrocarbons. Chem. Geol. 246, 87–106.

Mazzini, A., Svensen, H., Akhmanov, G. G., Aloisi, G., Planke, S., Malthe-Sørenssen, A., Istadi, B., 2007. Triggering and dynamic evolution of the LUSI mud volcano, Indonesia. Earth Planet. Sci. Lett. 261, 375–388.

Molga, E. J., Westerterp, K. R., 1997. Experimental study of a cocurrent upflow packed bed bubble column reactor: pressure drop, holdup and interfacial area. Chem. Eng. Prog. 36, 489–495.

Naudts, L., Greinert, J., Artemov, Y., Beaubien, S. E., Borowski, C., De Batist, M., 2008. Anomalous sea-floor backscatter patterns in methane venting areas, Dnepr paleo-delta, NW Black Sea. Mar. Geol. 251, 253–267.

Planke, S., Svensen, H., Hovland, M., Banks, D. A., Jamtveit, B., 2003. Mud and fluid migration in active mud volcanoes in Azerbaijan. Geo-Mar. Lett. 23, 258–268.

Reddy, K. R., Adams, J. A., 2001. Effects of soil heterogeneity on airflow patterns and hydrocarbon removal during in situ air sparging. J. Geotech. Geoenviron. Eng. 3, 234–247.

Roudet, M., 2008. Hydrodynamique et transfert de masse autour d'une bulle confinée entre deux plaques. Ph.D. thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse, 131 p.

Semer, R., Adams, J. A., Reddy, K. R., 1998. An experimental investigation of air flow patterns in saturated soils during air sparging. Geotech. Geol. Eng. 16, 59–75.

Serres, M., Zanota, M.-L., Philippe, R., Vidal, V., 2016. On the stability of Taylor bubbles inside a confined highly porous medium. Int. J. Multiphase Flow 85, 157–163.

Stemmet, C. P., Bartelds, F., van der Schaaf, J., Kuster, B. F. M., Schouten, J. C., 2008. Influence of liquid viscosity and surface tension on the gas-liquid mass transfer coefficient for solid foam packings in co-current two-phase flow. Chem. Eng. Res. Des. 86, 1094–1106.

Stemmet, C. P., Jongmans, J. N., van der Schaaf, J., Kuster, B. F. M., Schouten, J. C., 2005. Hydrodynamics of gas-liquid countercurrent flow in solid foam packings. Chem. Eng. Sci. 60, 6422–6429.

Stemmet, C. P., van der Schaaf, J., Kuster, B. F. M., Schouten, J. C., 2006. Solid foam packings for multiphase reactors - Modelling of liquid holdup and mass transfer. Chem. Eng. Res. Des. 84 (A10), 1134–1141.

Tourvielle, J.-N., Philippe, R., de Bellefon, C., 2015a. Milli-channel with metal foams under an applied gas-liquid periodic flow: External mass transfer performance and pressure drop. Chem. Eng. J. 267, 332–346.

Tourvielle, J.-N., Philippe, R., de Bellefon, C., 2015b. Milli-channel with metal foams under an applied gas-liquid periodic flow: Flow patterns, residence time distribution and pulsing properties. Chem. Eng. Sci. 126, 406–426.

Twigg, M. V., Richardson, J. T., 2007. Fundamentals and applications of structured ceramic foam catalysts. Ind. Eng. Chem. Res. 46, 4166–4177.

Wallis, G. B., 1969. One-dimensional two-phase flow. McGraw Hill, New York.

Appendix A. Taylor bubble length

Figure A.9 displays the Taylor bubble length normalized by the channel width, l_B/h, as a function of the gas-liquid flow-rate ratio, Q_G/Q_L, in the experiments with the porous medium (white squares). The data are compared to the Taylor bubble length measured in the empty millichannel, after removing the porous medium (gray stars). In the regular Taylor regime, observed for $Q_G/Q_L < 8$, typically, no significant change in the bubble length is reported, indicating that the presence of the open cell solid foam does not affect the Taylor flow upstream. The regime transition between the Taylor-like regime and the modulated regime (section 2.3) is therefore not due to any kind of feedback of the flow in the foam on the upstream flow.

From Figure A.9 the empirical relationship between the Taylor bubble length and the gas-liquid flow-rate ratio is extracted: $l_B/h = \alpha Q_G/Q_L + \beta$ with $\alpha = 0.8$ and $\beta = 0.5$. Note that this relation differs slightly from the one proposed in Serres et al. (2016), which only considered the rough scaling $l_B/h \simeq Q_G/Q_L$. The fit limited on the empty channel data points gives $\alpha = 0.45$ and $\beta = 1$. Although this difference stays within the error bars for small Q_G/Q_L, extrapolating the fit to larger values of the gas over liquid flow-rates ratio shows an important difference on the bubble length, indicating a possible feedback of the flow inside the porous medium on the upstream Taylor flow.

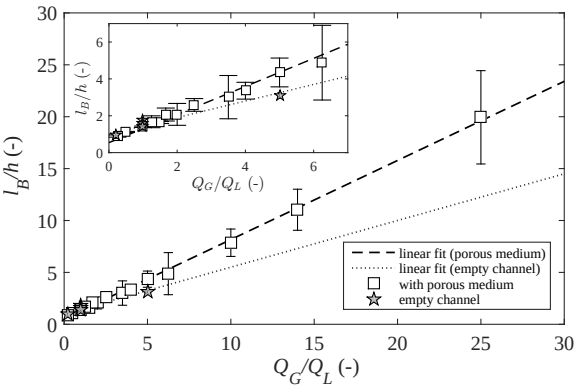

Figure A.9: Normalized bubble length l_B/h as a function of the flow rates ratio Q_G/Q_L [(white squares, upstream the solid foam); (gray stars, with an empty channel)]. The lines indicate the fits $l_B/h = \alpha Q_G/Q_L + \beta$ for the empty channel [$\alpha = 0.45$, $\beta = 1$, dotted gray line] and the bubbles upstream the porous medium [$\alpha = 0.8$, $\beta = 0.5$, dashed black line].

To account for this feedback, one could consider the slip velocity between the gas and liquid phases, as introduced by Wallis (1969) and Darton and Harrison (1975). This drift flux would be added to the gas flow rate Q_G in the theoretical expression of the Taylor flow frequency (Equation 5), leading to a better agreement between the predicted and observed Taylor frequency. However, the data extrapolation for the empty channel at high Q_G/Q_L has to be considered with caution, due to the lack of experimental data (dotted line, Figure A.9. Further measurements are necessary to confirm this trend.

Résumé

Cette thèse se focalise sur les écoulements gaz-liquide dans un milieu poreux, problématique rencontrée dans des domaines variés allant de la physique fondamentale à la chimie appliquée. Nous avons caractérisé expérimentalement les régimes hydrodynamiques dans deux géométries différentes : un canal millifluidique (écoulement quasi-1D) et une cellule de Hele-Shaw (écoulement quasi-2D). L'originalité de ce travail est d'analyser l'effet du milieu poreux (lits de billes polydisperses ou mousses solides à cellules ouvertes), du confinement (1D/2D) et de la gravité en couplant des approches locales et globales développées dans les communautés de physique expérimentale et de génie chimique. D'une part, une analyse globale a permis de quantifier les pertes de charge [1] et, basée sur le transport d'un traceur fluorescent, les distributions de temps de séjour [2] et le transfert gaz-liquide dans l'expérience 1D ; d'autre part, une analyse locale de la fraction liquide et l'évolution spatio-temporelle de son contenu fréquentiel ont permis de mettre en évidence deux régimes hydrodynamiques dans le canal millifluidique [3-5] : un régime pseudo-Taylor, où les caractéristiques de l'écoulement périodique amont sont conservées, et un régime modulé, pour lequel l'écoulement se désorganise à l'entrée du milieu poreux. Un modèle phénoménologique basé sur la propagation des bulles dans le milieu est proposé, et rend compte de l'existence de ces deux régimes [4,5]. Enfin, ces deux analyses sont couplées pour étudier les écoulements dans la cellule de Hele-Shaw, et une analyse dimensionnelle de l'effet du confinement et de la gravité sur les écoulements gaz-liquide dans un milieu poreux est proposée.

Abstract

This thesis focuses on gas-liquid flow in porous media, a common problem encountered in various domains from fundamental physics to applied chemical engineering. We have characterized the hydrodynamic regimes based on two different experimental devices geometry: a millichannel (1D flow) and a Hele-Shaw cell (2D flow). The originality of this work is to analyze the influence of the porous medium (monodisperse micro-packed beds or open cell solid foams), confinement (1D/2D) and gravity by coupling global and local analysis from either chemical engineering or fundamental physics community. On the one hand, a global analysis made it possible to quantify pressure drops, residence time distributions (RTD) based on fluorescent dye transport and gas-liquid mass transfer on the 1D device. On the other hand, a local analysis of the liquid fraction and the spatio-temporal evolution of its frequency pointed out the existence of two hydrodynamic regimes: a Taylor-like regime in which the characteristics of the periodic flow upstream are conserved in the porous medium and a modulated regime characterized by the flow disorganization at the porous medium entrance. A phenomenological model is developed based on bubbles propagation inside the medium and reproduces well both regimes. These two analyses are finally coupled to study multiphase flows inside the Hele-Shaw cell. The effects of gravity and confinement are discussed.