UNIVERSITÉ DE LORRAINE | BIBLIOTHÈQUES UNIVERSITAIRES

AVERTISSEMENT
DROIT D'AUTEUR

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document. Toute contrefaçon, plagiat ou reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact bibliothèque : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr
(Cette adresse ne permet pas de contacter les auteurs)

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

UNIVERSITÉ DE LORRAINE
34 COURS LÉOPOLD — CS 25233
54052 NANCY CEDEX
TÉL : 03 54 50 54 00
CONTACT@UNIV-LORRAINE.FR
WWW.UNIV-LORRAINE.FR

Caractérisation et modélisation de la rupture de gouttes dans un mélangeur miniaturisé en régime de transition : application au problème d'entraînement de phase

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 28 janvier 2026

pour l'obtention du

Doctorat de l'Université de Lorraine

(mention Génie des Procédés, des Produits et des Molécules)

par

Antoine Hardy

Composition du jury

Président :	Alain Liné	Professeur, INSA, Toulouse
Rapporteurs :	Nida Sheibat-Othman	Directrice de recherche CNRS, LAGEPP, Lyon
	Olivier Masbernat	Directeur de recherche CNRS, LGC, Toulouse
Examinateurs :	Cécile Lemaitre	Maîtresse de conférences, LRGP, Nancy
	Anne-Gwénaëlle Guezennec	Chercheuse, BRGM, Orléans
Invités :	Hervé Roussel	Ingénieur-chercheur, CEA, Marcoule
	Fabrice Lamadie	Directeur de recherche, CEA, Marcoule
Encadrant :	Tojonirina Randriamanantena	Ingénieur-chercheur, CEA, Marcoule
Directeur :	Éric Olmos	Professeur, LRGP, Nancy

Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP) - UMR 7274
CEA, DES, ISEC, DMRC, Université Montpellier, Marcoule, France

Mis en page avec la classe thesul.

Résumé

L'extraction liquide-liquide occupe une place centrale dans le domaine du recyclage, et notamment dans le traitement du combustible nucléaire usé. Dans ce contexte, l'utilisation de solvants visqueux dans des mélangeurs-décanteurs de laboratoire (MD-NG) engendre des entraînements de phase, limitant leurs performances.

L'étude vise donc à identifier l'origine de ces entraînements en étudiant la rupture de gouttes dans un mélangeur miniaturisé ($V = 10$ mL), fonctionnant avec des phases continues organiques et visqueuses (2 mPa·s $< \mu < 10$ mPa·s) et en régime de transition ($200 < Re < 1300$). L'objectif principal est de quantifier l'influence de la viscosité de la phase continue sur les mécanismes de rupture et sur la taille des gouttes, et notamment sur la formation des plus petites. Ce travail combine observations expérimentales et modélisation, à la fois à l'échelle d'une goutte et à l'échelle du procédé.

Les mesures expérimentales des distributions de taille de gouttes (DSDs) dans le mélangeur ont révélé une augmentation significative du nombre de gouttes de diamètre inférieur à 100 µm avec la viscosité. En parallèle, pour ce même accroissement de viscosité, une étude hydrodynamique dans le décanteur a montré une augmentation de la taille des gouttes entraînées. Ces deux observations indiquent clairement que les entraînements sont favorisés à forte viscosité.

Par la suite, des simulations LES monophasiques dans le mélangeur ont mis en évidence une transition de régime induite par la viscosité, modifiant la nature de l'écoulement et des contraintes hydrodynamiques. L'analyse locale de la rupture, menée par des observations expérimentales et des simulations diphasiques haute résolution (couplant LBM–DNS-VOF), a confirmé ce changement de régime. Cette étude a révélé une modification des mécanismes et de la morphologie de la rupture, ce qui se traduit par une augmentation du nombre de gouttes satellites produites. Enfin, les modèles PBE explorés n'ont pas permis de capturer ce changement de régime.

Mots-clés : Mélangeurs-décanteurs, dispersion liquide-liquide, rupture de gouttes, hydrodynamique, phase continue visqueuse, régime de transition, distribution de taille de gouttes (DSD), entraînement de phase, CFD.

Abstract

Liquid–liquid extraction is a key process in recycling, particularly in the treatment of spent nuclear fuel. In this context, using viscous solvents in laboratory-scale mixer-settlers (MD-NG) leads to phase entrainment, limiting their performance.

The present study aims to identify the origin of this phase entrainment by investigating droplet breakup in a miniaturised mixer ($V = 10$ mL) operating with organic, viscous continuous phases (2 mPa·s $< \mu <$ 10 mPa·s) under transitional flow conditions ($200 < Re < 1300$). The main objective is to quantify the influence of the continuous-phase viscosity on the breakup mechanisms and droplet size, with a particular focus on the formation of small droplets. This work combines experimental observations and modelling at both drop and process scales.

Experimental measurements of Drop Size Distributions (DSDs) in the mixer revealed a sharp increase in the number of droplets smaller than 100 µm as viscosity increased. A hydrodynamic study of the settler showed an increase in the size of the entrained droplets with the same increase in viscosity. These observations clearly indicate that phase entrainment is promoted at high viscosities.

Subsequently, single-phase LES simulations in the mixer revealed a viscosity-induced regime transition, altering the flow and hydrodynamic stresses. Local analysis of drop breakup, conducted through a combination of experimental observations and high-resolution modelling (coupling LBM–DNS–VOF), confirmed this transition. This analysis revealed modifications in both the breakup mechanisms and morphology, resulting in an increased of satellite droplets production. Finally, the PBE models examined were unable to capture this regime transition.

Keywords: Mixer–settlers, liquid–liquid dispersion, drop breakup, hydrodynamics, viscous continuous phase, transition flow, Drop Size Distribution (DSD), phase entrainment, CFD.

Remerciements

Tout d'abord, je souhaiterai exprimer toute ma gratitude à Éric Olmos et Tojonirina Randriamanantena, sans qui cette thèse n'aurait pas été possible. Merci pour toutes ces discussions scientifiques extrêmement enrichissantes, pour votre gentillesse, votre bienveillance et pour vos expertises respectives, qui m'ont permis de grandir à la fois professionnellement et humainement au cours de ces trois belles années passées à vos côtés. Ce fut un réel plaisir de travailler avec vous. Merci Éric de t'être toujours rendu disponible lorsque j'en avais besoin, malgré la distance qui nous sépare. J'en profite également pour m'excuser d'avoir systématiquement terminé nos réunions en retard, te décalant dans ton planning bien chargé. Un immense merci à Tojo pour m'avoir accompagné au quotidien, pour m'avoir soutenu et rassuré pendant mes moments de doutes, toujours avec ton optimisme et ta bonne humeur. J'espère que nous aurons de nouveau l'occasion de faire du catamaran ensemble, de déguster un délicieux Fwencheese ou d'aller au cinéma avec notre cher Lucas, en souvenir du bon vieux temps.

Je voudrais également remercier Hervé Roussel pour sa gentillesse, sa bienveillance, sa rigueur et sa pédagogie. Merci d'avoir répondu à toutes mes questions, même les plus farfelues, et de m'avoir transmis tes connaissances de ce passionnant domaine qu'est le génie des procédés. Je le note ici pour ne pas l'oublier : promis, je viendrai à Cartenpion un de ces jours !

Je tiens à remercier Fabrice Lamadie pour son accompagnement et son soutien au cours de mes campagnes expérimentales et lors de la rédaction de l'article. Ta franchise et ton honnêteté m'ont à la fois fait évoluer professionnellement, personnellement, et m'ont surtout permis de mieux appréhender mon travail de thèse et ses originalités.

Je souhaite aussi remercier Clément Berthinier, pour nous avoir guidés, Nil et moi, dans la prise en main et l'utilisation de ce cher code de calcul que tu affectionnes tant : Cast3M. Merci pour ta rigueur, ton esprit mathématique, ta disponibilité et toutes ces discussions passionnantes.

Un grand merci à Nil Philip pour l'excellent travail de stage que tu as réalisé, pour ta contribution non négligeable à ma thèse et pour ces longues discussions scientifiques, où l'on a refait le monde du PBE. Je souhaite également exprimer ma gratitude à Antoni Anfosso, sans qui les simulations LB-VOF n'auraient jamais pu voir le jour. Merci à Grégory Bana, d'avoir pris le temps de m'expliquer en détail sa méthode de traitement d'images, ainsi qu'à Khadim Sylla pour tes premiers résultats intéressants lors de ton stage.

Je tiens également à exprimer toute ma gratitude aux rapporteurs, Nida Sheibat-Othman et Olivier Masbernat, d'avoir accepté de relire mon manuscrit et d'évaluer mon travail pendant les fêtes de fin d'année, ainsi qu'aux examinateurs, Cécile Lemaitre, Anne-Gwénaëlle Guezennec et Alain Liné, d'avoir acceptés d'assister à ma soutenance et pour tous ces échanges constructifs. Merci à Rainier Hreiz et Alain Liné, qui ont accepté de faire partie de mon comité de suivi de thèse (CSI), et qui m'ont soutenu et

rassuré pendant une période difficile. Je voudrais remercier une dernière fois Alain Liné, ainsi que Ernest Simon, pour le temps qu'ils m'ont accordé et pour leur accompagnement sur l'utilisation de la méthode d'Ottino.

J'adresse également mes remerciements à tous les ingénieurs et techniciens du CEA Marcoule qui m'ont aidé et accompagné au cours de ces trois années, chacun à leur échelle, autant sur le plan professionnel que personnel. Je pense en particulier à Thomas Berki, Anne Saturnin, Denis Ode, Alastair Magnaldo... Enfin, je tiens à remercier Guillaume Germain, ancien chef du LSPS, pour m'avoir offert l'opportunité de réaliser cette thèse et de m'avoir accueilli dans son laboratoire et Amandine Duterme, nouvelle cheffe du LSPS, pour la visite passionnante des laboratoires d'Atalante, qui m'a permis de visualiser très concrètement les raisons de mon travail.

Je voudrais aussi remercier tous les « djeuns » de G1, pour tous ces bons moments qui ont rendu ces trois années douces et agréables. Je pense particulièrement à Nawel, pour ta bonne humeur, ton côté « solaire », et toutes ces pauses café qui n'en finissaient jamais. Merci à Lucas de m'avoir intégré à la vie sociale Avignonnaise, d'avoir été un mentor et une source d'inspiration pendant cette thèse, et pour ces très beaux moments passés avec toi à vagabonder à l'étranger. Merci Élisabeth de m'avoir offert une agrafeuse, que j'ai malheureusement cassée... (désolé), et d'avoir supporté ma présence en face de toi durant cette dernière années. Je voudrais également remercier tous les Avignonnais du CEA (ou pas) pour tous ces moments conviviaux (parfois un peu trop...) passés ensemble : Clément, Tristan, Eve, Hugo, Jodie, Axel, Loan et j'en passe. Et merci à toi, Andréa, d'avoir été là pendant cette dernière année riche en émotion et d'avoir pris le temps de relire ce joli roman d'aventure.

J'ai également une pensée pour toute la *team* Seatechos, pour ces nombreux week-ends au soleil, et pour la *team* Saint-Junien, pour ces vacances sous la pluie. Merci pour tous ces moments chaleureux et remplis de bonne humeur. Je souhaite notamment remercier Marine, Coralie et Carla (MACOCA) pour m'avoir accueilli pendant ces week-ends et pour avoir fait de leur salon ma seconde maison.

Pour finir, je voudrais sincèrement remercier toute ma famille, et particulièrement Papa, Maman et Lisa, pour leur soutien et leur amour infaillibles au quotidien. Si ce manuscrit existe aujourd'hui, c'est en grande partie grâce à vous. Vous êtes tous les trois une véritable source d'inspiration, et je vous aime très fort.

À mon papy, Hilaire.

Nomenclature

Variables

A	Surface projetée	[m^2]
a	Aire interfaciale par unité de volume	[m^{-1}]
C	Hauteur de la turbine par rapport au fond du mélangeur	[m]
C_D	Coefficient de traînée	[-]
C_i	Constante quelconque	[-]
D	Diamètre de la turbine	[m]
D_d	Diamètre du disque de la turbine	[m]
D_p	Diamètre de la cheminée d'aspiration	[m]
D_s	Diamètre de l'arbre de la turbine	[m]
D_v	Débit d'injection du capillaire	[$m^3 \cdot s^{-1}$]
d	Diamètre d'une goutte	[m]
d_{32}	Diamètre de Sauter	[m]
$d_{\max}$	Diamètre maximal stable	[m]
d_{eq}	Diamètre équivalent	[m]
$d^\star$	Diamètre critique à partir duquel une goutte est entraînée	[m]
$\langle d \rangle$	Diamètre moyen	[m]
e	Épaisseur des pales de la turbine	[m]
e^*_∞	Efficacité d'étirement	[-]
f	Fonction de distribution des particules	[-]
f_v	Fraction volumique des gouttes filles	[-]
F_{drag}	Force de traînée	[$kg \cdot m \cdot s^{-2}$]
g	Accélération de la pesanteur	9,81 $m \cdot s^{-2}$
H	Hauteur de liquide dans le mélangeur	[m]
H_p	Hauteur de la cheminée d'aspiration	[m]
$I_{d\to c,i}$	Forces interfaciales	[$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-2}$]

k	Énergie cinétique turbulente	$[\mathrm{m}^2\cdot\mathrm{s}^{-2}]$
L	Chapitre 5 : Gradient de vitesse normalisé	[-]
L	Longueur des pales de la turbine	[m]
M	Couple de la turbine	$[\mathrm{N}\cdot\mathrm{m}]$
N	Fréquence d'agitation	$[\mathrm{s}^{-1}]$
N_b	Nombre d'événement de rupture	[-]
n	Indice de réfraction	[-]
m	Nombre de gouttes filles générées	[-]
P_ε	Puissance dissipée	[W]
P_c	Puissance de la turbine (par le couple)	[W]
P_e	Probabilité d'entraînement	[%]
Q	Débit de liquide qui traverse la turbine	$[\mathrm{m}^3\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
R	Rayon des coins du mélangeur	[m]
S_{ij}	Taux de déformation	$[\mathrm{s}^{-1}]$
T	Longueur du mélangeur	[m]
T	Température	[°C]
t	Temps	[s]
u_i	Vitesse instantanée dans la direction i	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
u_i'	Vitesse fluctuante dans la direction i	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
u_i^{SGS}	Vitesse de sous-maille dans la direction i	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
$\tilde{u}_i$	Vitesse résolue dans la direction i	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
$\bar{u}_i$	Vitesse moyenne dans la direction i (décomposition RANS)	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
$\langle u_{i,\theta}\rangle_p$	Moyenne de phase de la vitesse dans la direction i	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
u_t	Vitesse terminale de chute	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
V	Volume	$[\mathrm{m}^3]$
V_p	Vitesse en bout de pale	$[\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}]$
W	Largeur des pales de la turbine	[m]
x, y	Coordonnées horizontales	[m]
z	Coordonnée verticale	[m]

Lettres grecques

α	Taux de rétention / fraction volumique	[-]
β	Chapitre 3 : Fraction volumique de goutte entraînée	[%vol]
β	Chapitre 6 : Distribution de tailles des gouttes filles	[-]

Δt	Pas de temps	[s]
Δx	Taille de maille	[m]
ε	Taux de dissipation totale	$[m^2 \cdot s^{-3}]$
ε'_θ	Taux de dissipation turbulent, pour une position de pale θ fixe	$[m^2 \cdot s^{-3}]$
η	Échelle de Kolmogorov	[m]
Γ	Fréquence de rupture	$[s^{-1}]$
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement	$[s^{-1}]$
κ	Nombre d'onde	$[m^{-1}]$
λ	Échelle de Taylor	[m]
μ	Viscosité dynamique	[Pa·s]
μ_t	Viscosité dynamique turbulente/sous-maille	[Pa·s]
ν	Viscosité cinématique	$[m^2 \cdot s^{-1}]$
ν	Viscosité cinématique turbulente/sous-maille	$[m^2 \cdot s^{-1}]$
Ω	Opérateur de collision	$[s^{-1}]$
Ω_{ij}	Partie antisymétrique du gradient de vitesse	$[s^{-1}]$
ρ	Masse volumique	$[kg \cdot m^{-3}]$
σ	Tension interfaciale	$[N \cdot m^{-1}]$
σ_d	Écart type du diamètre des gouttes injectés	[m]
τ	Contraintes quelconque	$[kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-2}]$
τ	Chapitre 2 : Temps caractéristique	[s]
τ_c	Contraintes de cisaillement	$[kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-2}]$
τ_{ij}^{SGS}	Tenseur des contraintes de sous-maille	$[kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-2}]$
θ	Chapitre 2 : angle entre l'interphase et la surverse de la phase organique	[°]
θ	Chapitre 5 : angle entre une pale et sa position de référence	[°]

Indices

$_c$	Phase continue
$_d$	Phase dispersée

Note : Lorsque aucun indice n'est spécifié, la variable fait référence à la phase continue.

Nombre adimensionnels

Ca	Nombre Capillaire	Eq. 1.50
Co	Nombre de Courant	Eq. 5.1
Fr	Nombre de Froude	Eq. 1.6
N_p	Nombre de puissance	Eq. 1.3
N_q	Nombre de pompage	Eq. 1.7
Oh	Nombre d'Ohnesorge	Eq. 1.42
p	Rapport de viscosité	Eq. 1.51
Re	Nombre de Reynolds	Eq. 1.1
Re_p	Nombre de Reynolds particulaire	Eq. 1.53
We	Nombre de Weber	Eq. 1.45

Abréviations

BGK	Bhatnagar-Gross-Krook
BYG-drop	Blender-YOLO-CycleGAN-drop
CFD	*Computational Fluid Dynamics*
CMC	Concentration Micellaire Critique
CNN	*Convolutional Neural Network*
DNS	*Direct Numerical Simulation*
DSD	*Drop Size Distribution*
DSSD	*Daughter Drop Size Distribution*
FAC	Fonctionnement Aqueux Continu
FOC	Fonctionnement Organique Continu
GAN	*Generative Adversarial Network*
GPU	Processeur graphique
HDEHP	Bis(2-ethylhexyl) phosphate
LBM	Méthode de Boltzmann sur réseau
LES	*Large Eddy Simulation*
MD	Mélangeur-Décanteur
MD-NG	Mélangeur-Décanteur Nouvelle-Génération
MRF	*Multiple Reference Frame*
PBE	*Population Balance Equation*
PIV	*Particle Image Velocimetry*

PMMA	Poly(méthacrylate de méthyle)
PUREX	Plutonium Uranium Refining by EXtraction
RANS	*Reynolds-Averaged Navier-Stokes*
SM	*Sliding Mesh*
STB	*Shake-the-Box*
TBP	Tri-Butyl Phosphate
TPH	Tétra-Propylène Hydrogéné
VOF	*Volume Of Fluid*
YOLO	*You Only Look Once*

Note : Par convention, le terme « émulsion », couramment utilisé en extraction liquide-liquide, sera employé pour désigner une « dispersion liquide-liquide ». En effet, d'après Poux and Xuereb (2014), le mot « émulsion » est réservé à un mélange de liquides immiscibles pour lequel on recherche une stabilité durable, pouvant conférer des propriétés à un produit. À l'inverse, le terme « dispersion » est utilisé pour un contact éphémère, permettant un transfert de matière.

Table des matières

Introduction générale **1**

Chapitre 1 État de l'art **5**

1.1 Traitement du combustible nucléaire usé et procédés de séparation 7

1.1.1 Procédé PUREX 7

1.1.2 Extraction liquide-liquide 8

1.1.3 Mélangeurs-décanteurs 12

1.1.4 Entraînements de phase 15

1.2 Hydrodynamique en cuve agitée 16

1.2.1 Géométrie standard des cuves agitées 17

1.2.2 Mobile d'agitation 17

1.2.3 Principales grandeurs caractéristiques en cuve agitée 18

1.2.4 Éléments théoriques utiles de caractérisation de la turbulence . . . 20

1.2.5 Caractérisation expérimentale des écoulements 22

1.2.6 Mécanique des fluides numérique (CFD) 25

1.3 Modélisation et caractérisation de l'émulsion 34

1.3.1 Diamètre moyen et aire interfaciale des gouttes 34

1.3.2 Rupture et coalescence 35

1.3.3 Modèles semi-empiriques pour la taille des gouttes 37

1.3.4 Mesures expérimentales des distributions de tailles de gouttes (DSD) 38

1.3.5 Rupture de goutte isolée 40

1.3.6 Modélisation CFD d'un système diphasique 48

1.3.7 Bilans de population (PBE) 53

1.4 Bilan de l'état de l'art et démarche de la thèse 59

Chapitre 2 Préparation de l'étude : conception du mélangeur, caractérisation des liquides et estimation des tailles de gouttes responsables des

entraînements de phase **67**
2.1 Géométrie du dispositif . . . 69
2.1.1 Mélangeurs-décanteurs nouvelle-génération « MD-NG » . . . 69
2.1.2 Géométrie du mélangeur d'étude . . . 70
2.2 Description et caractérisation des liquides utilisés . . . 74
2.2.1 Sélection des fluides d'intérêt . . . 74
2.2.2 Appareils de mesure des propriétés physico-chimiques et incertitudes associées . . . 75
2.2.3 Mesure des propriétés physico-chimiques . . . 77
2.3 Estimation des diamètres de gouttes responsables des entraînements de phase 81
2.3.1 Introduction . . . 81
2.3.2 Approche balistique . . . 83
2.3.3 Approche CFD . . . 87
2.3.4 Conclusion . . . 94

Chapitre 3 Identification des conditions opératoires générant des gouttes susceptibles d'être entraînées par mesure expérimentale des distributions de taille de gouttes (DSDs) **97**
3.1 Introduction et rappels bibliographiques . . . 99
3.2 Matériel et méthodes . . . 100
3.2.1 Dispositif expérimental . . . 100
3.2.2 Conditions opératoires explorées . . . 101
3.2.3 Protocole expérimental . . . 102
3.2.4 Traitement d'image : méthode BYG-drop . . . 105
3.2.5 Validation du traitement d'image . . . 110
3.3 Résultats et discussion . . . 114
3.3.1 Évolution temporelle des distributions . . . 114
3.3.2 Évolution spatiale des distributions . . . 115
3.3.3 Effet de la viscosité de la phase continue . . . 117
3.3.4 Effet du sens de l'émulsion . . . 120
3.3.5 Effet de la vitesse de rotation . . . 122
3.3.6 Fraction volumique de gouttes entraînées . . . 123
3.3.7 Sédimentation dans le mélangeur . . . 125
3.4 Conclusion et discussion . . . 128

Chapitre 4 Analyse expérimentale de la dynamique locale de la rupture de gouttes en fonction de la viscosité de la phase continue 131
4.1 Introduction et rappels bibliographiques . . . 133
4.2 Matériel et méthodes . . . 135
4.2.1 Montage et protocole expérimental . . . 135
4.2.2 Traitement d'images . . . 138
4.2.3 Taille des gouttes injectées . . . 139
4.3 Résultats et discussion . . . 141
4.3.1 Mécanisme de rupture . . . 141
4.3.2 Localisation de la rupture . . . 153
4.3.3 Temps de rupture . . . 155
4.3.4 Nombre de gouttes filles . . . 158
4.3.5 Distribution de taille des gouttes filles (DDSD) . . . 160
4.4 Discussion, conclusion et perspectives . . . 166

Chapitre 5 Estimation des contraintes hydrodynamiques locales à l'origine de la rupture par modélisation CFD monophasique 169
5.1 Introduction et rappels bibliographiques . . . 171
5.2 Matériel et méthodes . . . 172
5.2.1 Détails des simulations . . . 172
5.2.2 Conditions aux limites . . . 174
5.2.3 Post-traitement . . . 177
5.2.4 Classification des écoulements et efficacité d'étirement . . . 180
5.2.5 Validation des simulations . . . 181
5.3 Résultats et discussion . . . 184
5.3.1 Régime d'écoulement et taille des gouttes . . . 184
5.3.2 Estimation des contraintes hydrodynamiques locales . . . 189
5.3.3 Caractérisation de l'écoulement le long des parois . . . 200
5.4 Conclusion . . . 205

Chapitre 6 Modélisation de la rupture de gouttes dans un mélangeur en régime de transition impliquant des solvants visqueux 207
6.1 Modélisation des distributions de taille de gouttes par bilan de population (PBE) . . . 209
6.1.1 Introduction et rappels bibliographiques . . . 209

6.1.2 Matériel et méthodes 210
6.1.3 Résultats et discussion 214
6.1.4 Conclusion et discussion 218
6.2 Simulation DNS de la rupture de gouttes au sein d'un mélangeur par une approche LB-VOF 220
6.2.1 Introduction et rappels bibliographiques 220
6.2.2 Matériel et méthodes 222
6.2.3 Résultats et discussion 228
6.2.4 Conclusion et perspectives 242

Conclusion générale et perspectives **245**

Annexe A Mise en place d'un protocole expérimental robuste pour les mesures expérimentales des distributions de taille de gouttes **251**
A.1 Convergence statistique 251
A.2 Mise en contact et fermeture du mélangeur 251
A.3 Répétabilité 253

Annexe B Rupture vs coalescence **255**

Bibliographie **257**

Table des figures

1.1 Principales étapes du procédé PUREX (adapté de CEA-DEN (2008)). . . . 9
1.2 Premier cycle d'extraction et partition de l'uranium et du plutonium (adapté de CEA-DEN (2008)). . . . 11
1.3 Schéma d'un mélangeur-décanteur en vue de profil. . . . 13
1.4 Schéma de fonctionnement d'un mélangeur-décanteur et illustration du phénomène d'entraînement de phase aqueux dans organique. . . . 15
1.5 (a) Dimensions d'une cuve agitée standard et circulation générée par un agitateur (b) axial et (c) radial (Figure (b-c) issue de Roustan et al. (2023)). 18
1.6 Nombre de puissance en fonction du nombre de Reynolds pour différentes géométries d'agitateurs (Roustan, 2023). . . . 20
1.7 De gauche à droite, les réseaux D3Q15, D3Q19 et D3Q27 (Krüger et al., 2017). . . . 32
1.8 Processus de collision et de propagation des particules représenté en 2D par le modèle D2Q9 (adapté de Rak et al. (2023)). . . . 33
1.9 Phénoménologie de la rupture en fonction du rapport de viscosité p, d'après les travaux de (a) Rumscheidt and Mason (1961) et (b) Karam and Bellinger (1968). . . . 42
1.10 Figures issues des travaux de Cristini et al. (2003) : (a) courbe de Grace (1982), représentant le nombre de capillaire critique $Ca^{\star}$ en fonction du rapport de viscosité p dans un écoulement cisaillé et (b) séquence d'images d'une rupture de goutte soumise à un écoulement cisaillé. . . . 43
1.11 Schéma de la rupture d'une goutte soumise à un écoulement faiblement turbulent (adapté de Liao et al. (2015)) : (a) rupture induite par un cisaillement visqueux et (b) rupture par *shearing off*. . . . 44
1.12 Interaction entre une goutte et (a–b) un tourbillon plus petit que la goutte, et (c–d) un tourbillon plus grand que la goutte (adapté de Andersson and Andersson (2006a)). . . . 46
1.13 Schématisation de la démarche de la thèse. . . . 64

2.1 Photo d'une batterie, d'un étage, de la chambre de mélange et de la turbine des MD-NG : (1) chambre de mélange, (2) cheminée d'aspiration, (3) turbine Rushton, (4) décanteur, (5) surverse, (6) grille de coalescence, (7) sortie phase lourde, (8) sortie phase légère, (9) hublot de visualisation, (10) et (11) canaux de circulation phase lourde et phase légère. . . . 71

2.2 (a) Mélangeur expérimental utilisé dans les travaux précédents (Laine, 2024) et (b-d) mélangeur expérimental et turbine Rushton utilisés dans la présente étude. 72
2.3 Schéma et dimensions du mélangeur d'étude. 73
2.4 Tension interfaciale mesurée par la méthode de la goutte pendante pour les systèmes liquide-liquide (a) Isane IP175-Marcol 82 & H_2O-Tween 20 (b) Isane IP175-Marcol 82-HDEHP & H_2O-HNO_3 et (c) Isane IP175-Marcol 82 & H_2O-HNO_3. 77
2.5 (a) Viscosité du mélange organique en fonction de la fraction volumique de Marcol 82 et (b) viscosité du mélange M.6 en fonction de la température. . 78
2.6 (a) Tension interfaciale des systèmes liquide-liquide utilisées dans le Chapitre 4, mesurée à température ambiante ($T = 22{,}5 \pm 1$ °C) et (b) Tension interfaciale au cours du temps pour le système M.6 à température ambiante ($T = 22{,}5 \pm 1$ °C) 78
2.7 Schéma 3D du décanteur des MD-NG. 82
2.8 Représentation simplifiée du décanteur en 2D (à gauche) et géométrie simulée par CFD et ses dimensions (à droite). 83
2.9 Bilan des forces exercées sur une goutte dans un fluide en mouvement. . . . 84
2.10 Trajectoire d'une goutte d'eau en fonction de son diamètre pour différentes viscosités de phase organique continue : (—) parois du décanteur et (- - -) interphase. 86
2.11 (a) Norme de la vitesse de la phase continue en régime permanent, (b) vitesse verticale ascendante de la phase continue ($u_z > 0$) en régime permanent et (c) rapport entre la vitesse verticale ascendante et la norme de vitesse. 90
2.12 Trajectoire de 1000 gouttes de phase aqueuse de 70 µm de diamètre au cours du temps (en secondes), dans une phase continue organique M.6. . . 91
2.13 Probabilité d'entraînement des gouttes de phase aqueuse à la sortie organique, en fonction de leur diamètre et de la viscosité de la phase continue organique. 92
2.14 Rapport entre la vitesse ascensionnelle de la phase continue u_c et la vitesse terminale de chute u_t pour des gouttes de 70 µm et 90 µm dans une phase continue organique M.6. 93

3.1 Photo du montage expérimental : (1) mélangeur transparent, (2) support optique, (3) bloc moteur, (4) caméra rapide, (5) rail millimétrique, (6) objectif, (7) panneau LED, (8) contrôle de la vitesse de rotation, (9) pousse seringue, et (10) système de mise au point. 102
3.2 Schéma du montage expérimental. 103
3.3 Principe de la méthode de caractérisation des distributions de taille de gouttes dans le mélangeur. 104
3.4 (a) Scène virtuelle 3D créée sur le logiciel Blender, (b) texture de goutte appliquée à des sphères dans le plan focal et (c) exemple d'image de synthèse finale générée par Blender. 107

3.5 Base de données (a) d'images expérimentales, (b) d'images de synthèse issues de Blender, et (c) d'images de synthèse texturées obtenues par le couplage Blender–CycleGAN. 108
3.6 Base de données (a) d'images de synthèse texturées obtenues par le couplage Blender–CycleGAN et (b) leurs annotations correspondantes. 109
3.7 Convergence du réseau YOLOv5. 109
3.8 (a) Distribution de taille de gouttes en nombre obtenu par YOLO sur des images de synthèse étiquetées pour différents seuils de confiance et (b) détection YOLO sur une de ces images avec score de confiance. 111
3.9 Comparaison des distributions de taille de gouttes en nombre entre YOLO pour différents scores de confiance et la transformée de Hough (1 pixel $\approx$ 9 µm). 112
3.10 Images typiques d'émulsion obtenues dans le mélangeur expérimental avec une caméra non-intrusive et détection YOLO correspondante pour : (a-b) N = 900 rpm, M.6, α = 1%, (c-d) N = 1200 rpm, M.2, α = 1%, (e-f) N = 1200 rpm, M.8, α = 1 %. 113
3.11 Évolution temporelle du diamètre de Sauter d_{32} pour différentes (a) vitesses d'agitation (M.6, α = 1%) et (b) viscosités de phase continue (N = 1200 rpm, α = 1%). 114
3.12 (a) Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent pour trois zones d'observation, pour N = 1200 rpm, M.6 et α = 0,5 % et (b) représentation schématique de ces trois zones d'observation. 117
3.13 Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent en fonction de la viscosité de la phase continue, pour N = 1200 rpm et α = 1 %. 118
3.14 Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent en fonction du sens de l'émulsion pour N = 1200 rpm et α = 1 % : FOC, phases organiques continues M.2 et M.10 et FAC, phases organiques dispersées M.2 et M.10. 121
3.15 Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent en fonction de la vitesse de rotation, pour la phase continue M.6 et α = 1 %. 123
3.16 Images capturées à t = 0, 1, 2,5 et 15 min après arrêt de l'agitation pour les phases continues M.2, M.6 et M.10. 126
3.17 Temps de sédimentation théoriques dans le mélangeur en fonction de la taille des gouttes pour différentes viscosités de phase continue. 127

4.1 (a) Représentation schématique de l'expérience de rupture de gouttes uniques et (b) comparaison des zones de mesure (■) des DSDs (Chapitre 3) et (■) des ruptures de gouttes uniques (Chapitre 4). 136
4.2 (a) Photographie de la mire dans la zone de mesure et (b) algorithme d'aide à la mise au point du logiciel PFV4 (FASTCAM Viewer 4, PHOTRON). . 137
4.3 (a) DSDs injectées pour N = 1200 rpm et M.8*, pour des débits d'injection de D_v = 0,6 mL·min^{-1} et D_v = 3 mL·min^{-1} et (b) DSDs injectées en fonction de la viscosité de la phase continue, pour N = 1200 rpm et D_v = 0,6 mL·min^{-1}. 140

4.4 Séquence d'images capturées par caméra rapide de ruptures par interaction goutte-tourbillon, observées pour $N = 1200$ rpm et M.2* ($Re = 1260$). . . . 142
4.5 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture par interaction goutte-tourbillon produisant $m = 2$ gouttes filles, observée pour $N = 1200$ rpm et M.2* ($Re = 1260$). 143
4.6 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite par l'écoulement élongationnel le long de la paroi, observée pour $N = 1200$ rpm et M.10* ($Re = 235$). 144
4.7 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite par l'écoulement élongationnel le long de la paroi, observée pour $N = 1200$ rpm et M.10* ($Re = 235$). 145
4.8 Séquence d'images représentant une rupture en cascade du filament, issues de la Figure 4.6, pour $N = 1200$ rpm et M.10* ($Re = 235$). 146
4.9 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite dans le sillage en aval d'une pale, observée pour $N = 1200$ rpm et M.6* ($Re = 380$).147
4.10 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite dans le sillage en aval d'une pale, observée pour $N = 1200$ rpm et M.8* ($Re = 295$).148
4.11 Schéma des écoulements autour d'une pale de turbine Rushton, adapté de Kumar et al. (1991) : écoulement élongationnel en amont d'une pale (gauche) et écoulement cisaillé dans son sillage en aval (droite). 149
4.12 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite par le jet radial, observée pour $N = 1200$ rpm et M.4* ($Re = 600$). 149
4.13 Mécanisme de rupture en fonction de la viscosité de la phase continue. . . . 150
4.14 Séquence d'images capturées par caméra rapide de ruptures induites à la fois par une structure tourbillonnaire et par la paroi, observées pour $N = 1200$ rpm et M.4* ($Re = 600$). 152
4.15 Position des évènements de rupture dans un plan vertical xz et du nombre de gouttes filles générées (× correspond à m non mesurable) en fonction de la viscosité de la phase continue, pour $N = 1200$ rpm. 154
4.16 Temps de rupture en fonction de (a) la viscosité de la phase continue et (b) la taille de la goutte mère ; statistiques réalisées sur : $N_b = 131$ pour M.2*, $N_b = 64$ pour M.4*, $N_b = 35$ pour M.6*, $N_b = 31$ pour M.8*, $N_b = 41$ pour M.10*. 156
4.17 Nombre de gouttes filles générées en fonction de la viscosité de la phase continue, pour $N = 1200$ rpm. 158
4.18 Volume des gouttes mères en fonction de la somme des volumes des gouttes filles, pour les phases continues M.2* et M.10*. 161
4.19 Distributions de taille des gouttes filles (DSDD) après injection et distribution de taille de gouttes (DSD) en régime stationnaire (Chapitre 3) pour les phases continues M.2* et M.10*. 162
4.20 Distributions de taille de gouttes filles normalisées pour les phases continues M.2* et M.10*. 163
4.21 Distributions de taille de gouttes filles normalisées en fonction du nombre de gouttes filles générées pour les phases continues (a) M.2* et (b) M.10*. . 164

5.1 Coupes transversales du maillage à proximité de la turbine, de gauche à droite : vue isométrique, coupe verticale et coupe horizontale. 173
5.2 Schématisation de la condition aux limites *halfway bounce-back* (adapté de Krüger et al. (2017)). Les flèches indiquent la direction de propagation des populations de particules, la zone grisée correspond au solide et la ligne pointillée représente la frontière. 175
5.3 Schématisation de la condition aux limites *symmetry* (adapté de Krüger et al. (2017)). Les flèches indiquent la direction de propagation des populations (les populations identiques possèdent le même style de flèches), la zone grisée correspond au solide et la ligne pointillée représente la frontière. 176
5.4 Représentation schématique de la méthode IBM (adapté de Krüger et al. (2017)). 176
5.5 Puissance injectée par la turbine P_c et puissance dissipée totale et résolue P_ε dans le liquide au cours du temps pour les phases continues M.2 (à gauche) et M.10 (à droite). 181
5.6 Rapport entre la taille des mailles et l'échelle de Taylor λ pour les cas M.2, M.4 et M.10. 182
5.7 Rapport entre la viscosité cinématique de sous-maille et la viscosité cinématique totale, en fonction de la viscosité de la phase continue pour les phases continues M.2, M.4 et M.10. 183
5.8 Convergence statistique des moyennes de phase pour le cas M.2 : évolution de la moyenne volumique et de la valeur maximale (a) de la vitesse de phase et (b) du taux de dissipation turbulente de phase. 184
5.9 (a) Nombre de puissance N_p en fonction du nombre de Reynolds Re (comparé avec les données expérimentales de Ma (2014)) et (b) profils axiaux de vitesse radiale adimensionnée. 185
5.10 Comparaison entre l'échelle de Kolmogorov locale η (à gauche) et la distribution de taille de gouttes en régime stationnaire (à droite) pour une viscosité de phase continue M.2. 187
5.11 Comparaison entre l'échelle de Kolmogorov locale η (à gauche) et la distribution de taille de gouttes en régime stationnaire (à droite) pour une viscosité de phase continue M.6. 188
5.12 Norme de la vitesse de phase dans une coupe verticale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue. Les vecteurs vitesses sont illustrés pour la phase continue M.10 uniquement. 190
5.13 Norme de la vitesse de phase dans une coupe horizontale XY en fonction de la viscosité de la phase continue. 191
5.14 Moyenne de phase du taux de cisaillement dans une coupe verticale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue. 192
5.15 Moyenne de phase du taux de cisaillement dans une coupe horizontale XY en fonction de la viscosité de la phase continue. 193
5.16 Moyenne de phase de la contrainte de cisaillement dans une coupe horizontale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue. 194
5.17 Moyenne de phase du taux de dissipation turbulent dans une coupe verticale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue. 195

5.18 Moyenne de phase du taux de dissipation turbulent dans une coupe horizontale XY en fonction de la viscosité de la phase continue. 196
5.19 Densité de probabilité en fonction de la viscosité de la phase continue (a) des contraintes de cisaillement de phase et (b) du taux de dissipation turbulent de phase. 197
5.20 Évolution temporelle du taux de cisaillement et de dissipation turbulente instantanés et moyennés en un point local du mélangeur pour les phases continues respectives M.2 et M.8. 199
5.21 Zone de l'écoulement caractérisé par la méthode proposée par Chella and Ottino (1985). 201
5.22 Norme de la vitesse instantanée pour des positions de la pale comprises entre $\theta = 0°$ et $\theta = 90°$ et pour une phase continue organique M.10. 201
5.23 Diagramme d'Ottino pour des positions de la pale allant de $\theta = 0°$ à $\theta = 90°$ obtenu pour la phase continue organique M.10. 202
5.24 Diagramme d'Ottino pour des positions de la pale allant de $\theta = 0°$ à $\theta = 90°$ obtenu pour la phase continue organique M.2. 203
5.25 Diagramme d'Ottino en fonction de la viscosité de la phase continue organique pour une position de pale $\theta = 0°$. 205

6.1 Comparaison entre la distribution de taille de gouttes filles (DDSD) introduite par Valentas et al. (1966) et celle utilisée dans cette étude. 214
6.2 Comparaison de l'évolution temporelle du diamètre de Sauter d_{32} entre les expériences du Chapitre 3 et les estimations (à gauche) du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) et (à droite) du modèle simplifié de Shayunusov et al. (2024) : les conditions pour lesquelles les modèles ne prédisent aucune rupture n'ont pas été affichées. 216
6.3 Comparaison des distributions de taille de gouttes entre les expériences du Chapitre 3 et les estimations du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) et celles du modèle simplifié de Shayunusov et al. (2024). 217
6.4 (a) Puissance injectée P_c (Eq. 1.4) pour les simulations DNS et les phases continues M.2* et M.10* et (b) puissance dissipée totale et résolue P_ε (Eq. 1.5) en LES et puissance dissipée totale P_ε (Eq. 1.5) en DNS, pour la phase continue M.2*. 223
6.5 Position du capillaire dans le mélangeur lors des simulations et des expérimentations ($D_v = 3$ mL·min^{-1}). 224
6.6 Coupes transversales du maillage à proximité de la turbine, utilisée pour les simulations VOF, de gauche à droite : vue isométrique, coupe verticale et coupe horizontale. 225
6.7 Rapport entre la taille des mailles Δx et l'échelle de Kolmogorov locale instantanée η sur une coupe horizontale XY, pour les phases continues M.2* et M.10*. 226
6.8 Comparaison entre la taille des gouttes et la résolution spatiale des simulations : goutte mère de 1,36 mm (a) déformée et (b) après sa rupture contre la paroi, et (c) plus petite goutte observable. 227

6.9 Rupture induite par une collision goutte–tourbillon, simulée par LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et M.2*. 229
6.10 Rupture induite par un tourbillon de grande taille, simulée par LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et M.2*. 230
6.11 Rupture par élongation verticale le long de la paroi, obtenue par simulation LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et une viscosité M.10*. 231
6.12 Rupture par élongation radiale dans le sillage en aval d'une pale, obtenue par simulation LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et M.10*. 232
6.13 Comparaison des mécanismes de rupture entre les expériences (Chapitre 4) et les simulations LB-VOF, pour $N = 1200$ rpm et les phases organiques M.2* et M.10*. 233
6.14 Projection dans un plan horizontal XY des positions des $N_b = 100$ premières ruptures et du nombre de gouttes filles générées, pour $N = 1200$ rpm et les phases continues M.2* et M.10*. 235
6.15 Projection des ruptures dans un plan vertical X^*Z et du nombre de gouttes filles générées, pour $N = 1200$ rpm et les phases continues M.2* et M.10*. . 236
6.16 Comparaison des positions des ruptures et du nombre de gouttes filles générées entre les expériences (Chapitre 4) et les simulations LB-VOF, pour $N = 1200$ rpm et les phases continues M.2* et M.10*. 238
6.17 Nombre de gouttes filles générées pour les phases continues M.2* et M.10* à $N = 1200$ rpm : (a) pour les $N_b = 100$ premières ruptures extraites des simulations et (b) pour respectivement les $N_b = 161$ et les $N_b = 60$ événements expérimentaux. 240

7.1 Synthèse des résultats principaux de la thèse 247

A.1 Convergence statistique (a) du diamètre moyen de Sauter d_{32} et (b) des distributions de taille de gouttes (DSD) en nombre. 252
A.2 Évolution temporelle (a) du diamètre de Sauter d_{32} et (b) du volume total de gouttes détectées à chaque pas de temps. 252
A.3 Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent pour trois expériences réalisées dans des conditions identiques : 1089 images prises après trois heures d'émulsification pour $N = 1200$ rpm, M.6 et $\alpha = 1$ %. . 253

B.1 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une coalescence, observée pour $N = 1200$ rpm et M.10*. 256
B.2 Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une coalescence, observée pour $N = 1200$ rpm et M.6*. 256

Liste des tableaux

2.1 Tension interfaciale en fonction de la concentration d'HDEHP dans le mélange organique à température ambiante ($T = 22{,}5 \pm 1$ °C). 79
2.2 Propriétés physico-chimiques des mélanges organiques (Isane IP175 - Marcol 82 - HDEHP) utilisés dans le Chapitre 3 : la masse volumique, la tension interfaciale et l'indice de réfraction ont été mesurés à 25°C, et la viscosité à 28°C. 80
2.3 Propriétés physico-chimiques à 22°C des mélanges organiques (Isane IP175 - Marcol 82 - HDEHP) utilisés dans le Chapitre 4. 81
2.4 Propriétés physico-chimiques de la phase aqueuse (H_2O-HNO_3). 81
2.5 Diamètres critiques à partir desquels une goutte de phase aqueuse est entraînée à la sortie du décanteur organique (estimé pour un débit de phase organique de 150 $mL{\cdot}h^{-1}$). 87

3.1 Comparaison entre les performances de détection du réseau YOLOv5 entraîné au cours de la thèse et celles issues de Bana et al. (2024) : YOLOv5, algorithme développée par Maaß et al. (2012) et transformée de Hough (CHT). 110
3.2 Revue non-exhaustive de la littérature sur les temps de convergence des tailles de gouttes soumises essentiellement à la rupture en cuve agitée. . . . 116
3.3 Estimation de la fraction volumique de la phase dispersée entraînée en sortie de décanteur en fonction de la viscosité de la phase continue, à partir de DSDs mesurées à deux instants et d'une probabilité d'entraînement estimée par deux méthodes. 124

6.1 Comparaison des constantes d'ajustement des modèles entre la littérature (Coulaloglou and Tavlarides (1977); Shayunusov et al. (2024)) et les valeurs déterminées dans cette étude. 215
6.2 Diamètre des gouttes de phase aqueuse injectées par capillaire (valeur moyenne et écart type) issu des simulations pour $N = 1200$ rpm, $D_v = 3$ $mL{\cdot}min^{-1}$, et deux viscosités de phase continue organique. 224

Introduction générale

Les derniers rapports du GIEC (Lee et al., 2023) sont alarmants et mettent en évidence la gravité du changement climatique, avec une augmentation de la température à la surface de la Terre estimée à 1,1 °C par rapport à la période pré-industrielle. Face à cette situation, le développement des énergies bas carbone, telles que les énergies renouvelables et l'énergie nucléaire, constitue un levier majeur pour réduire les émissions de gaz à effet de serre et favoriser la transition énergétique. Parallèlement, le renforcement du recyclage et des approches d'économie circulaire apparaissent essentiels pour limiter l'extraction de ressources primaires, souvent très polluante, et, de manière générale, réduire l'empreinte environnementale des activités humaines.

C'est dans cet objectif que le procédé PUREX est actuellement utilisé en France, à l'usine de La Hague. Ce procédé vise, en effet, à récupérer l'uranium et le plutonium contenus dans le combustible nucléaire usé, afin de permettre leur réutilisation. Parmi les étapes clés du procédé, on retrouve la séparation de l'uranium et du plutonium des produits de fission, réalisée par des opérations d'extraction liquide-liquide. Ces dernières consistent à transférer sélectivement un élément chimique d'intérêt (l'uranium, le plutonium...) d'une phase liquide à une autre, par mise en contact avec une molécule extractante spécifique. Elles sont réalisées au sein de contacteurs, qui permettent d'abord la mise en émulsion, favorisant le transfert de matière, suivie d'une étape de séparation complète des phases. Par ailleurs, pour garantir le bon fonctionnement du procédé, certaines étapes d'extraction du procédé PUREX nécessitent d'être conduites avec une émulsion « aqueuse dans organique », encore appelée Fonctionnement Organique Continu (FOC).

Bien que ce procédé fonctionne de façon satisfaisante depuis de nombreuses années, un grand nombre de recherches sont actuellement consacrées à sa simplification et à son amélioration. Plus largement, le développement de solvants innovants, à la fois plus sélectifs et plus respectueux de l'environnement, constitue un enjeu majeur dans le domaine du recyclage. Dans cette perspective, des appareils d'extraction à échelle laboratoire, tels que les MD-NG (Mélangeurs-Décanteurs Nouvelle-Génération) (Roussel and Dutilh, 2024), ont été développés afin de tester et d'optimiser ces nouveaux solvants avant leur éventuelle industrialisation.

Par ailleurs, le développement de nouveaux solvants ne constitue qu'un optimum local, essentiellement fondé sur des critères chimiques de sélectivité et d'efficacité d'extraction. Une compréhension approfondie des aspects procédés et hydrodynamiques s'avère également indispensable pour envisager une amélioration globale du procédé. Dans ce contexte,

l'utilisation de certains solvants dans les MD-NG n'a pas permis d'atteindre le niveau de performance souhaité de l'appareil. Cette dégradation des performances peut être attribuée à l'augmentation de la viscosité de certains solvants, notamment lorsqu'ils se chargent en uranium au cours de l'extraction. La diminution de l'efficacité de l'appareil se manifeste principalement par deux problèmes. Premièrement, l'émergence de défauts de pompage, liés à une mauvaise circulation des liquides dans les contacteurs causée par l'accroissement des effets de paroi. Ces derniers sont exacerbés à la fois par réduction d'échelle et par la présence de solvant visqueux. Deuxièmement, l'apparition d'entraînement de phase, caractérisé par de fines gouttelettes emportées dans la mauvaise sortie du décanteur, qui détériore l'efficacité de séparation des phases après leur émulsification.

Au cœur des problèmes d'efficacité des procédés de séparation, l'étude de la taille des gouttes occupe une place centrale à plusieurs titres. D'une part, elle permet de maîtriser la surface d'échange, et donc la vitesse du transfert de matière. D'autre part, elle informe sur les possibles entraînements de phase en sortie du décanteur. Ainsi, la capacité de caractériser et de modéliser ces tailles de gouttes revêt une importance de premier ordre dans un objectif global d'amélioration des performances des procédés d'extraction liquide-liquide.

Ce travail s'inscrit dans la continuité d'efforts importants de capitalisation expérimentale et de modélisation sur la prédiction de la surface d'échange dans un procédé. Amokrane (2014) a ainsi modélisé les distributions de taille de gouttes (DSD) dans une cuve agitée en couplant la mécanique des fluides numérique (CFD) et les équations de bilan de population (PBE). Des mesures expérimentales *in situ* de la distribution des tailles ont été réalisées afin de valider le modèle. L'objectif principal de son étude était de sélectionner, parmi les nombreux noyaux de rupture et de coalescence proposés dans la littérature, les plus adaptés à son système. Par la suite, Castellano (2019) a généralisé les noyaux de rupture et de coalescence à l'ensemble du spectre de la turbulence. En effet, une grande partie des noyaux de la littérature, à l'image de celui proposé par Coulaloglou and Tavlarides (1977), s'appuie sur la théorie de Kolmogorov, valable uniquement dans le domaine inertiel de la turbulence. Toutefois, en présence d'un solvant visqueux ou pour des écoulements à plus bas Reynolds, l'échelle de Kolmogorov augmente et la taille des gouttes peut se situer dans le domaine dissipatif, où les théories traditionnelles ne sont plus applicables. La généralisation des noyaux a donc permis une modélisation plus fidèle dans ces régimes. Cependant, ces deux études ont été réalisées dans des cuves agitées standards, à échelle laboratoire, avec un volume de l'ordre du litre et des nombres de Reynolds bien supérieurs à ceux observés dans les mélangeurs-décanteurs miniatures.

Plus récemment, les travaux de Laine (2024) ont permis de mieux comprendre les effets de changement d'échelle, en étudiant à la fois les MD-NG ($V = 8$ mL) et un mélangeur de taille intermédiaire ($V = 8$ L). En particulier, ces recherches ont apporté des premières réponses concernant les problèmes de circulation et de pompage dans les MD-NG en présence de solvants visqueux. Pour cela, Laine (2024) s'est principalement appuyé sur une approche hydrodynamique monophasique, en utilisant plusieurs techniques expérimentales de pointe pour la caractérisation de l'écoulement, telles que la 2D-2C PIV

et la méthode Shake The Box (STB). La comparaison avec les mesures expérimentales a également montré que la simulation des grandes échelles de la turbulence (LES) est indispensable pour obtenir une modélisation fiable du taux de dissipation, et *in fine*, de la taille des gouttes.

Les travaux de Laine (2024) ne constituent qu'une première étape, permettant de traiter les défauts de pompage sans toutefois résoudre les problèmes d'entraînement de phase. La présente thèse s'inscrit dans une démarche complémentaire, en adoptant une approche diphasique visant à caractériser et à modéliser finement l'émulsion dans les MD-NG, afin d'approfondir les connaissances et d'optimiser le fonctionnement de ces appareils. Dans cette optique, la thèse s'est principalement focalisée sur l'**influence de la viscosité de la phase continue** sur la **rupture** et sur les **tailles des gouttes produites** dans le **mélangeur**, en accordant une attention particulière à la formation des plus **petites gouttes**. L'objectif final est d'identifier les mécanismes à l'origine des problèmes d'entraînement de phase, afin de proposer des modifications d'ordre géométrique ou opératoire pour les limiter. Les connaissances acquises pourront également fournir des informations supplémentaires pour le pilotage d'autres procédés impliquant des fluides visqueux, aussi bien à échelle laboratoire qu'à échelle industrielle.

Tout d'abord, **le Chapitre** 1 présente une **revue intensive mais non exhaustive de la littérature scientifique**, portant aussi bien sur la **caractérisation que sur la modélisation des procédés multiphasiques**. L'analyse se concentre sur trois volets principaux : les procédés d'extraction liquide-liquide, l'hydrodynamique des cuves agitées, et la caractérisation et modélisation de l'émulsion. Cette étude bibliographique permet, d'une part, d'identifier les paramètres clés liés aux problèmes d'extraction et, d'autre part, de passer en revue les principales techniques expérimentales et numériques disponibles, en mettant en évidence leurs domaines d'application et leurs limites. Ce travail a conduit à l'élaboration d'une feuille de route, à la formulation d'hypothèses et à la définition d'une démarche méthodologique pour répondre à la problématique complexe des entraînements de phase dans les MD-NG. **Ce bilan sera dressé** en section 1.4, accompagné d'une **représentation schématique de la démarche** adoptée (Figure 1.13). Enfin, dans ce chapitre, les équations de plusieurs modèles utilisés au cours de la thèse, aussi bien de CFD (LBM, LES, VOF) que de PBE, ont été détaillées.

Le **Chapitre 2** définit le cadre de l'étude. Il conduira au **développement d'une géométrie d'étude**, reproduisant le comportement hydrodynamique de la chambre de mélange des MD-NG, tout en permettant la réalisation de mesures expérimentales fiables. Ce chapitre sera également consacré à la **sélection des fluides** d'intérêt, choisis pour leur capacité à simuler le comportement des liquides cibles. Enfin, à travers une modélisation de l'écoulement dans le décanteur, **les tailles de gouttes responsables des entraînements de phase seront identifiées**.

Connaissant ces diamètres de gouttes responsables des entraînements dans le décanteur (Chapitre 2), les **conditions opératoires** pour lesquelles le **mélangeur génère ces gouttes problématiques** seront déterminées dans le **Chapitre 3**. Pour cela, des distributions de taille de gouttes seront mesurées expérimentalement par une caméra rapide

placée à l'extérieur du mélangeur, couplée à la méthode de traitement d'image BYG-drop.

Le **Chapitre 4** vise à identifier les causes de la production importante de petites gouttes dans le mélangeur, mises en évidence au Chapitre 3. L'étude reposera sur l'**analyse expérimentale** de la **dynamique locale de rupture** en fonction de la viscosité de la phase continue, afin d'identifier les mécanismes responsables de la rupture et leurs conséquences sur les tailles de gouttes générées.

Le **Chapitre 5** se focalise sur la **modélisation de l'écoulement de la phase continue au sein du mélangeur**. Tout d'abord, le régime d'écoulement en fonction de la viscosité de la phase continue sera déterminé. Ensuite, la taille des gouttes étant liée aux contraintes hydrodynamiques locales exercées par la phase environnante, celles-ci seront quantifiées pour différentes conditions opératoires. Enfin, en se basant sur les observations expérimentales du Chapitre 4, l'écoulement élongationnel le long des parois sera caractérisé.

Enfin, le **Chapitre 6** vise à **développer des modèles** capables de reproduire le comportement de **rupture des gouttes**, en présence de solvants visqueux et dans un mélangeur en régime de transition. Dans cette optique, deux approches complémentaires ont été adoptées : d'une part, un **modèle global** basé sur la résolution d'un **PBE**, et d'autre part, une **approche locale**, fondée sur des **simulations DNS avec un couplage LB-VOF**. Le modèle PBE sera alimenté par les résultats du Chapitre 5 pour les grandeurs hydrodynamiques, ainsi que par les mesures expérimentales du Chapitre 3 pour l'ajustement des constantes des modèles de fermeture. Parallèlement, les simulations LB-VOF seront confrontées aux observations expérimentales de rupture issues du Chapitre 4.

Chapitre 1

État de l'art

Sommaire

1.1 Traitement du combustible nucléaire usé et procédés de séparation 7
1.1.1 Procédé PUREX 7
1.1.2 Extraction liquide-liquide 8
1.1.3 Mélangeurs-décanteurs 12
1.1.4 Entraînements de phase 15
1.2 Hydrodynamique en cuve agitée 16
1.2.1 Géométrie standard des cuves agitées 17
1.2.2 Mobile d'agitation 17
1.2.3 Principales grandeurs caractéristiques en cuve agitée 18
1.2.4 Éléments théoriques utiles de caractérisation de la turbulence . 20
1.2.5 Caractérisation expérimentale des écoulements 22
1.2.6 Mécanique des fluides numérique (CFD) 25
1.3 Modélisation et caractérisation de l'émulsion 34
1.3.1 Diamètre moyen et aire interfaciale des gouttes 34
1.3.2 Rupture et coalescence 35
1.3.3 Modèles semi-empiriques pour la taille des gouttes 37
1.3.4 Mesures expérimentales des distributions de tailles de gouttes (DSD) 38
1.3.5 Rupture de goutte isolée 40
1.3.6 Modélisation CFD d'un système diphasique 48
1.3.7 Bilans de population (PBE) 53
1.4 Bilan de l'état de l'art et démarche de la thèse 59

1.1 Traitement du combustible nucléaire usé et procédés de séparation

Cette première partie vise à présenter le contexte industriel de la thèse. Elle se concentre sur les aspects procédés, en décrivant les principes de l'extraction liquide-liquide ainsi que le fonctionnement des mélangeurs-décanteurs. Enfin, le phénomène d'entraînement de phase, problématique ayant mené à ce travail de thèse, est explicité.

1.1.1 Procédé PUREX

Le procédé PUREX (Plutonium Uranium Refining by EXtraction) a été développé en 1947, initialement dans le cadre d'application militaire pour la fabrication d'armes nucléaires. Il a été néanmoins rapidement adapté pour une utilisation civile, et il est utilisé aujourd'hui pour le traitement du combustible nucléaire usé. Le but du procédé est de séparer et de purifier l'uranium et le plutonium contenus dans le combustible usé, pour permettre leurs réutilisations. En France, le traitement du combustible est réalisé sur le site de La Hague, en Normandie.

Suite à son passage dans un réacteur, le combustible nucléaire est dit usé. Cependant, l'uranium et le plutonium, qui représentent à eux deux 96 % du combustible usé, sont considérés comme de la matière valorisable, pouvant être réutilisés dans un nouveau combustible pour produire de l'électricité. Les 4 % restants sont constitués d'actinides mineurs (le neptunium, l'américium, le curium) et de produits de fission (éléments produits par la réaction de fission dans un réacteur). Ces derniers sont des déchets ultimes, non réutilisables, et sont transformés dans une forme stable et compacte, puis stockés de manière durable. Ainsi, l'objectif du procédé PUREX est double (CEA-DEN, 2008). D'une part, il permet de recycler de la matière nucléaire encore utilisable, l'uranium et le plutonium. Cela permet d'économiser des ressources présentes en quantité finie sur Terre, et de diminuer les activités d'extraction minière, souvent très polluantes. D'autre part, le retraitement du combustible usé a pour but de réduire le volume et la radiotoxicité des déchets. A titre d'exemple, le procédé PUREX permet de réduire par cinq le volume des déchets, et par dix leur radiotoxicité (CEA-DEN, 2008). Le procédé PUREX permet ainsi de réduire profondément l'impact environnemental de l'énergie nucléaire.

Les principales étapes du procédé sont schématisées sur la Figure 1.1 et sont explicitées ci-dessous (Bourgeois, 2000; CEA-DEN, 2008). Après avoir produit de l'électricité pendant plusieurs années dans des centrales nucléaires, les assemblages de combustible sont acheminés aux usines de retraitement de La Hague. Ils sont ensuite entreposés dans des piscines pendant plusieurs années, afin de réduire un maximum leur radioactivité avant leur retraitement. Cette étape permet notamment la décroissance des éléments à vie courte.

Ensuite, au cours d'une étape de cisaillage, les gaines de combustible sont découpées en plusieurs tronçons d'une trentaine de millimètres de long. Ces tronçons sont acheminés dans un dissolveur, et plongés dans une solution d'acide nitrique HNO_3. Cette étape est appelée la dissolution et a plusieurs objectifs : elle permet d'une part de dissoudre et de

mettre en solution l'uranium, le plutonium et les produits de fission, et d'autre part, de séparer les déchets métalliques de la matière réutilisable. Plusieurs éléments chimiques sous forme de gaz peuvent être libérés au cours des étapes de cisaillage et de dissolution (Iode, Carbone 14, Tritium...). Ainsi, ces émissions sont traitées et filtrées afin de limiter leurs rejets dans l'atmosphère. Par ailleurs, plusieurs éléments sous forme solide peuvent se former au cours de la dissolution. Ces résidus sont éliminés par une centrifugeuse lors de la clarification.

Enfin, l'uranium, le plutonium et les produits de fission contenus dans la solution de dissolution sont séparés par des techniques d'extraction liquide-liquide. Le principe de l'extraction liquide-liquide repose sur la mise en contact de deux phases immiscibles, permettant le transfert sélectif d'un élément d'une phase vers l'autre et ainsi la réalisation d'une séparation. Cette étape sera détaillée dans la partie suivante (Section 1.1.2). Après extraction, plusieurs solutions sont obtenues : une solution d'uranium, une solution de plutonium, et une solution contenant les produits de fission et les actinides mineurs (voir Figure 1.1).

L'uranium est ensuite purifié pour enlever les résidus de produit de fission encore présents malgré l'étape d'extraction. A la fin de son traitement, l'uranium est sous la forme de nitrate d'uranyle. Il pourra être expédié vers des usines d'enrichissement et être utilisé pour la fabrication d'un nouveau combustible. Le plutonium est purifié, puis converti par précipitation en oxalate de plutonium, et enfin calciné pour obtenir une poudre d'oxyde de plutonium. Il est transformé sous une forme solide pour faciliter son conditionnement. Enfin, il est expédié vers l'usine MELOX, afin de fabriquer le combustible MOX. Ainsi, ce dernier pourra être utilisé pour alimenter à nouveau les centrales nucléaires et produire de l'électricité. Les produits de fission sont, quant à eux, incorporés dans une matrice de verre, de manière homogène et sous une forme très stable chimiquement. On appelle cette étape la vitrification. Ils sont ensuite coulés dans des conteneurs en inox et transférés pour l'entreposage. En outre, les coques et les embouts récupérés à l'étape de dissolution sont rincés, puis pressés et compactés. En France, les déchets compactés sont stockés en surface et les déchets vitrifiés seront, dans le futur, entreposés au centre de stockage géologique en profondeur de CIGEO. Ces déchets sont sous une forme permettant une gestion sûre, optimisée et à long terme.

1.1.2 Extraction liquide-liquide

1.1.2.1 Généralités sur l'extraction liquide-liquide

L'extraction liquide-liquide est une technique utilisée en génie chimique pour faciliter la séparation d'un ou plusieurs éléments d'un mélange. Elle permet en effet de récupérer, avec une grande sélectivité, un élément chimique présent dans une solution complexe.

Le principe de cette opération consiste à mettre en contact deux phases liquides immiscibles : une solution de départ, contenant l'élément que l'on souhaite extraire, et un solvant, choisi pour son affinité avec l'élément d'intérêt, c'est-à-dire pour sa capacité à l'extraire préférentiellement. Lors de cette mise en contact, l'élément d'intérêt est transféré de la solution initiale vers le solvant. Ce transfert est favorisé par une mise en émulsion

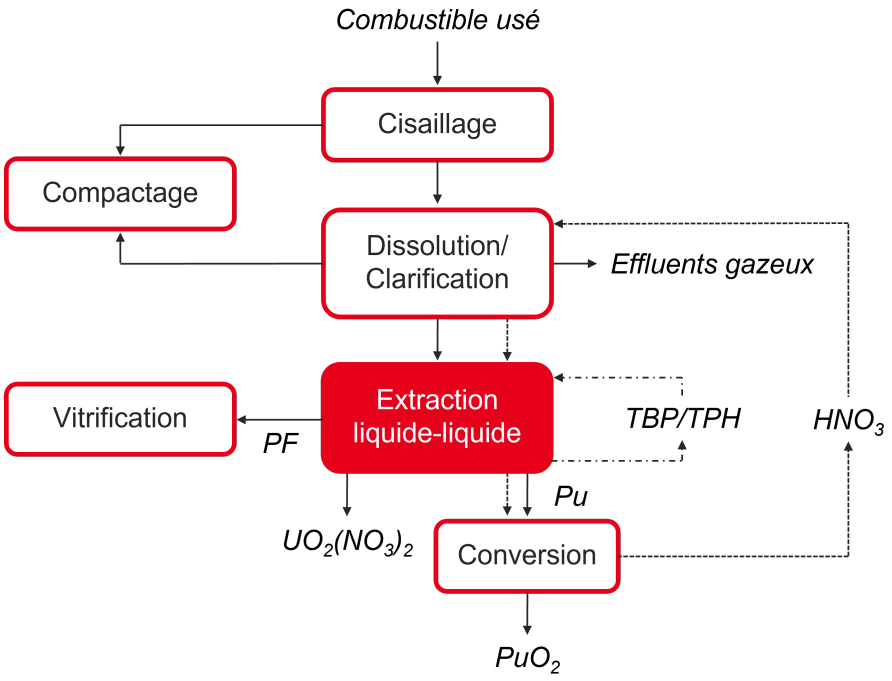


FIGURE 1.1 – Principales étapes du procédé PUREX (adapté de CEA-DEN (2008)).

d'une phase dans l'autre, permettant d'augmenter l'aire interfaciale. La phase de mise en contact est ensuite suivie d'une phase de décantation, permettant la séparation mécanique de la solution d'origine, appauvrie en élément d'intérêt, et du solvant, qui est à l'inverse enrichi. Généralement, la phase organique contient la molécule extractante, et la phase aqueuse la molécule que l'on souhaite extraire. L'extraction liquide-liquide est une opération très largement utilisée dans de nombreuses industries, notamment dans les secteurs chimique, pharmaceutique, alimentaire ou encore hydrométallurgique. Elle est également utilisée dans le domaine nucléaire, notamment pour le traitement du combustible usé.

Cependant, l'efficacité d'une extraction est rarement de 100 %, car des résidus d'éléments d'intérêt demeurent toujours dans la solution d'origine. Pour augmenter les performances d'extraction, plusieurs appareils peuvent être combinés. On distingue principalement deux types de montages : les contacteurs compartimentés et les contacteurs différentiels (Leybros, 2004). Dans les contacteurs compartimentés, encore appelés à étages individualisés, plusieurs appareils d'extraction sont montés en série. Chaque appareil constitue un étage, où les étapes de mélange et de décantation sont réalisées individuellement. Les phases sont ensuite transférées vers l'étage suivant pour répéter le processus. Les mélangeurs-décanteurs ou les extracteurs centrifuges en sont des exemples. À l'inverse, dans les contacteurs différentiels, aucune barrière physique ne sépare les étages : les deux phases sont en contact permanent et circulent tout au long de l'appareil. Puis, elles sont séparées aux extrémités du montage. A titre d'exemple, les colonnes pulsées sont des contacteurs continus.

Par ailleurs, la circulation des phases à l'intérieur des étages peut varier selon le type

de montage adopté. Les phases peuvent circuler à co-courant ou à courant croisé, mais ces configurations possèdent un transfert de matière peu efficace et nécessitent une grande quantité de solvant. La circulation à contre-courant est la configuration la plus couramment utilisée en génie des procédés (Leybros, 2004). Dans ce mode de fonctionnement, la phase aqueuse et la phase organique circulent en sens opposés. Cette disposition permet d'optimiser l'utilisation du solvant, en maintenant un gradient de concentration élevé à chaque étage. Par exemple, dans les premiers étages, un solvant neuf est mis en contact avec une solution appauvrie en élément d'intérêt. Comme la concentration de ce dernier est faible, le transfert de matière est plus difficile et l'utilisation d'un solvant neuf augmente alors la force motrice du transfert.

1.1.2.2 L'extraction liquide-liquide dans le procédé PUREX

L'extraction liquide-liquide est une étape clé du procédé PUREX. Elle a pour objectif de séparer une solution nitrique, obtenue à la fin de la dissolution, contenant : de l'uranium au degré d'oxydation $+VI$, du plutonium au degré d'oxydation $+IV$, des actinides mineurs (neptunium, américium, curium) présents au degré d'oxydation $+III$, $+V$ et $+VI$, ainsi que des produits de fission présents avec des degrés d'oxydation allant de $+I$ à $+VII$ (CEA-DEN, 2008).

Dans le procédé PUREX, la molécule extractante utilisée est le TBP (Tri-Butyl Phosphate). Ce composé présente l'avantage d'être un excellent extractant pour l'uranium au degré d'oxydation $+VI$. C'est également un bon extractant du plutonium aux degrés d'oxydation $+IV$. Le TBP est dilué dans du TPH (Tétra-Propylène Hydrogéné), un solvant chimiquement inerte, miscible avec le TBP. À l'échelle industrielle, le solvant employé est constitué de TBP dilué à 30 % en volume dans le TPH. Dans ces conditions, il présente les propriétés physiques suivantes à 25°C : $\rho = 812$ kg·m^{-3} et $\mu = 1.7$ mPa·s.

L'étape d'extraction dans le procédé PUREX nécessite un niveau de performance bien supérieur à celui des extractions réalisées dans d'autres industries, qui privilégient généralement le rendement économique. En effet, l'uranium et le plutonium récupérés par le procédé sont réutilisés dans un nouveau combustible : il est important qu'ils possèdent un haut degré de pureté à l'issue de l'extraction. La présence d'un grand nombre d'éléments dans le combustible usé rend cette extraction sélective particulièrement complexe. Pour atteindre ce niveau d'efficacité, plusieurs étapes d'extraction et désextraction successives sont réalisées. Les opérations du premier cycle d'extraction et la partition de l'uranium et du plutonium sont résumées ci-dessous et schématisées sur la Figure 1.2 (CEA-DEN, 2008).

Dans un premier temps, l'uranium et le plutonium sont co-extraits, l'objectif étant de les séparer de la majeure partie des produits de fission. Cette étape est ensuite complétée par une ou plusieurs étapes de lavage, permettant de séparer définitivement l'uranium et le plutonium des petites quantités de produits de fission résiduels (zirconium, technétium).

La seconde étape consiste à séparer l'uranium et le plutonium. Pour cela, le plutonium, initialement au degré d'oxydation $+IV$, est réduit au degré d'oxydation $+III$ grâce à l'ajout d'un agent réducteur. En effet, le TBP est un bon extractant pour le plutonium

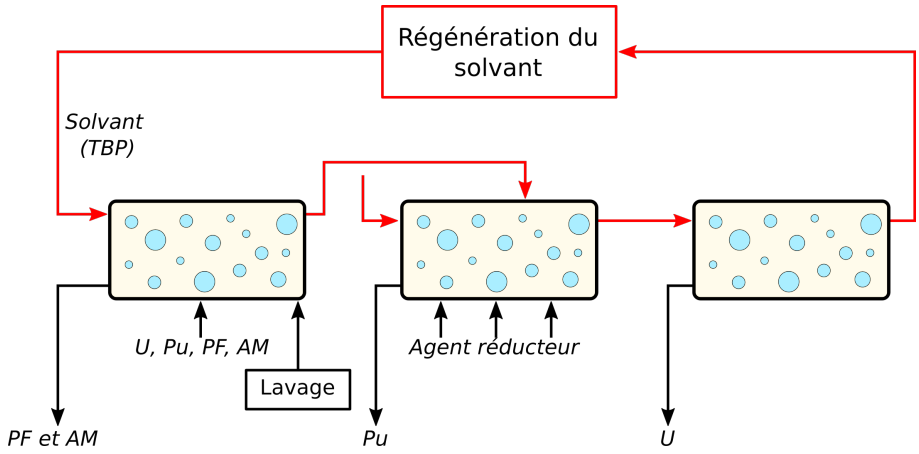


FIGURE 1.2 – Premier cycle d'extraction et partition de l'uranium et du plutonium (adapté de CEA-DEN (2008)).

aux degrés d'oxydation $+IV$ et $+VI$, mais très peu efficace pour le plutonium $+III$. Différents agents réducteurs peuvent être utilisés, comme l'uranium au degré d'oxydation $+IV$ ou le nitrate d'hydroxylamine. Par ailleurs, du nitrate d'hydrazine est ajouté pour stabiliser l'opération. Une fois séparées, les solutions d'uranium et de plutonium suivent à nouveau une étape de lavage, respectivement pour assurer la désextraction complète du plutonium et éliminer les résidus d'agent réducteur. Le solvant, quant à lui, est lavé et régénéré afin d'être réutilisé dans le cycle.

1.1.2.3 Les appareils d'extraction liquide-liquide

Il existe une multitude de contacteurs différents capables de réaliser les opérations d'extraction (Leybros, 2004). Ils peuvent se différencier par leurs apports en énergie, permettant la mise en émulsion, et par leurs méthodes de décantation. Par exemple, les mélangeurs-décanteurs, les extracteurs centrifuges et les colonnes agitées utilisent un ou plusieurs agitateurs mécaniques pour créer une émulsion. Les colonnes pulsées utilisent, quant à elles, un garnissage et une pulsation. De même, les mélangeurs-décanteurs et les colonnes pulsées utilisent la force de pesanteur pour séparer chaque phase après le mélange, tandis que les extracteurs centrifuges utilisent la force centrifuge.

Trois types de contacteurs liquide-liquide sont utilisés pour le traitement du combustible usé : les colonnes pulsées (CP), les mélangeurs-décanteurs (MD) et les extracteurs centrifuges (EC).

Dans les usines de La Hague, les étapes du premier cycle d'extraction sont réalisées en majeure partie dans des colonnes pulsées (CEA-DEN, 2008). Ces dernières ont une forme annulaire et peuvent atteindre jusqu'à 8 m de hauteur. Les colonnes pulsées présentent plusieurs avantages. Tout d'abord, la forme annulaire des colonnes permet de grandement limiter la criticité. La criticité est une réaction en chaîne de fission nucléaire non contrôlée, pouvant notamment provoquer des problèmes de sécurité dans les installations nucléaires. Dans un second temps, de par la nature radioactive des liquides utilisés, l'usure

des appareils électroniques est très rapide. Comme l'émulsion est créée par un dispositif de pulsation situé hors de la zone radioactive, la durée de vie du système est prolongée et sa maintenance est simplifiée. Dans un dernier temps, après une longue utilisation, des précipités solides peuvent se former au sein des contacteurs. Ils nuisent grandement à l'efficacité des procédés et sont difficiles à évacuer dans les mélangeurs-décanteurs et extracteurs centrifuges. En revanche, dans les colonnes pulsées, les résidus solides se déposent dans le décanteur bas et n'altèrent pas le fonctionnement de la colonne.

Les extracteurs centrifuges sont, quant à eux, majoritairement utilisés lors de l'étape de purification du plutonium. Ils présentent l'avantage d'avoir des temps de séjour courts, ce qui limite la dégradation du solvant.

Enfin, la radiotoxicité de l'uranium étant plus faible que celle du plutonium et des actinides mineurs, quelques mélangeurs-décanteurs sont utilisés à La Hague, notamment pour l'étape de purification de l'uranium et de régénération du solvant. Une description détaillée de ces appareils est réalisée dans la section suivante (Section 1.1.3).

De nombreuses recherches sont actuellement consacrées à la simplification et à l'amélioration des procédés du traitement du combustible usé. Ces études visent notamment à adapter le procédé à de fortes concentrations de plutonium pour le traitement du combustible MOX. De manière générale, le développement de nouveaux solvants innovants constitue un enjeu majeur pour les procédés de séparation et de recyclage. Il s'agit notamment de concevoir des solvants plus sélectifs, afin d'améliorer l'efficacité des séparations, et plus respectueux de l'environnement. La première étape vers l'industrialisation consiste à tester les performances de ces solvants à petite échelle, sur des contacteurs de laboratoire. Cela permet notamment de limiter la quantité de solvant à synthétiser.

Ainsi, à l'échelle laboratoire, les colonnes pulsées présentent plusieurs inconvénients. Elles appartiennent à la famille des contacteurs continus, nécessitant une hauteur importante afin d'avoir le nombre d'étages théorique suffisant. Cette grande dimension impose des débits plus élevés que les mélangeurs-décanteurs et génère des contraintes lors de la construction des installations. Par ailleurs, les colonnes pulsées offrent une moins bonne maîtrise de la taille de l'émulsion que les appareils agités. Ainsi, à l'échelle laboratoire, les mélangeurs-décanteurs sont utilisés afin de tester de nouveaux solvants, et *in fine* améliorer le cycle du traitement du combustible usé. Ces derniers sont également utilisés pour le développement de procédés pour diverses opérations d'extraction liquide-liquide hors nucléaire.

1.1.3 Mélangeurs-décanteurs

Les mélangeurs-décanteurs (MD) sont des appareils couramment utilisés en génie chimique pour les procédés d'extraction liquide-liquide. Afin d'obtenir le degré d'extraction souhaité, ils sont généralement disposés en batterie, c'est-à-dire avec plusieurs étages de mélangeurs-décanteurs côte à côte, et avec des liquides qui circulent à contre-courant (voir Section 1.1.2). Un étage de MD se compose de deux dispositifs aux rôles distincts : un mélangeur et un décanteur (voir Figure 1.3).

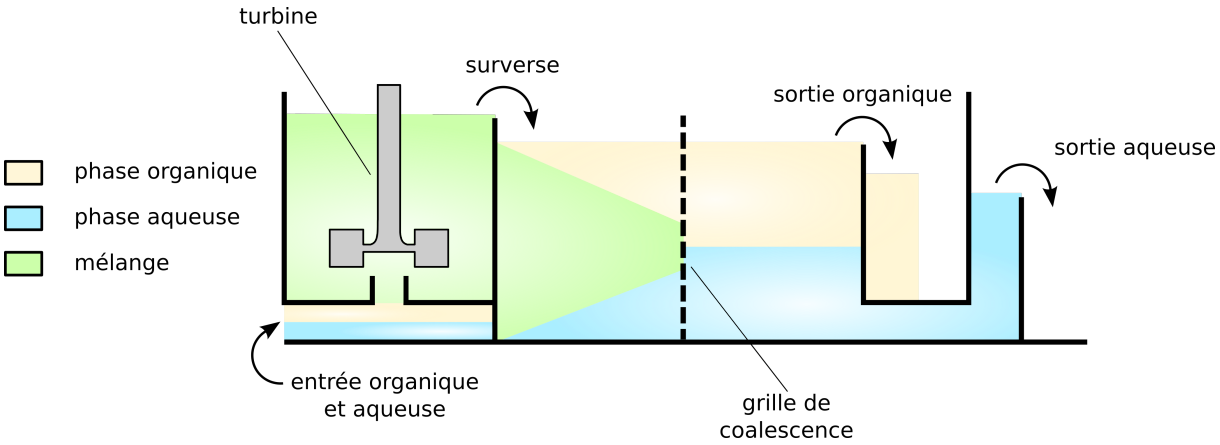


FIGURE 1.3 – Schéma d'un mélangeur-décanteur en vue de profil.

Le mélangeur comporte généralement une anti-chambre, située sous la chambre de mélange, à partir de laquelle les liquides sont aspirés vers cette dernière (voir Figure 1.3). La chambre de mélange est un récipient de forme parallélépipédique ou cylindrique, contenant deux phases liquides immiscibles. Le mélange est assuré par un ou plusieurs agitateurs. De plus, des contre-pales peuvent être intégrées à la chambre de mélange afin de limiter la formation d'un vortex, susceptible de perturber le bon fonctionnement de l'appareil.

L'efficacité du transfert de matière dépend à la fois de la surface de contact entre les deux phases et de leur temps de contact. Ainsi, le système d'agitation permet la formation d'une émulsion, afin d'augmenter l'aire interfaciale, et favoriser le passage de l'élément chimique d'intérêt d'une phase à une autre. Une agitation intense ou une faible tension interfaciale favorisent la formation de petites gouttes, augmentant ainsi l'aire interfaciale (voir 1.36). Par ailleurs, les débits étant généralement imposés par le procédé, augmenter la taille de l'appareil contribue à accroître le temps de séjour.

Il existe de nombreux types et modèles de mélangeurs (Leybros, 2004). Dans les modèles dits *pump-mixers*, la turbine a un double rôle : d'une part, assurer le transfert de matière en générant une émulsion, et d'autre part, jouer le rôle de pompage, pour garantir la circulation des phases dans l'appareil sans avoir recours à des pompes. Un pompage trop faible peut provoquer un engorgement, tandis qu'un pompage excessif risque de favoriser l'aspiration d'air et de réduire l'efficacité du procédé. Le choix de la turbine dans les *pump-mixers* est donc complexe, car les caractéristiques favorisant un bon pompage peuvent différer de celles nécessaires à une bonne émulsification (voir Section 1.2.2). C'est pourquoi certains mélangeurs-décanteurs de type *pump-mix* comportent deux agitateurs : le mélange et le pompage sont alors assurés par deux turbines différentes montées sur le même arbre d'agitation.

Le décanteur, quant à lui, est typiquement de forme parallélépipédique, de même hauteur que le mélangeur. Il est placé en aval de ce dernier et reçoit l'émulsion produite par le mélangeur via une surverse. Des déversoirs pour les phases aqueuse et organique sont

situés respectivement dans la partie inférieure et supérieure du décanteur. Des garnissages peuvent être utilisés pour améliorer l'efficacité de la séparation (voir Figure 1.3). Son objectif est de séparer les deux phases après leur émulsification dans le mélangeur.

En extraction liquide-liquide, plusieurs types de décanteurs existent, chacun exploitant un principe physique distinct pour favoriser la séparation (Leybros, 2004). Généralement, les mélangeurs-décanteurs possèdent des décanteurs gravitaires. Ces derniers utilisent la gravité et la différence de densité entre les phases pour réaliser la séparation : le liquide le plus lourd se dépose au fond du décanteur, tandis que le liquide le plus léger remonte vers la partie supérieure. Ce phénomène, appelé sédimentation, permet la migration des gouttes vers l'interface entre les deux liquides. Dans un décanteur, l'interface n'est généralement pas nette : elle se compose d'une bande d'émulsion, sous forme de brouillard dense, appelée front de coalescence (Leybros, 2004). L'épaisseur de cette couche d'émulsion décroît en s'éloignant du mélangeur. C'est dans le front de coalescence, où le temps de contact entre les phases est maximal, que les gouttes constituant l'émulsion coalescent pour former deux phases parfaitement distinctes. Une mauvaise décantation peut typiquement produire des problèmes d'entraînement de phase (voir Section 1.1.4).

Ainsi, il existe une dualité entre le bon fonctionnement du mélangeur et celui du décanteur. Le mélangeur doit produire des gouttes suffisamment fines pour favoriser le transfert de matière entre les phases. Cependant, des gouttes trop fines rendent la décantation difficile et produisent des problèmes d'entraînement de phase (voir Section 1.1.4). À l'inverse, des gouttes trop grosses ralentissent le transfert de matière mais facilitent la décantation. Il faut donc trouver un compromis sur la taille des gouttes pour optimiser les performances des mélangeurs-décanteurs.

Par ailleurs, au sein de ce procédé, deux modes de fonctionnement peuvent être rencontrés : le Fonctionnement Organique Continu (FOC), lorsque la phase aqueuse est dispersée dans la phase organique, et Fonctionnement Aqueux Continu (FAC), lorsque c'est la phase organique qui est dispersée dans la phase aqueuse. Dans les mélangeurs-décanteurs, le type d'émulsion est notamment contrôlé par les conditions initiales, la phase continue étant généralement celle qui entoure la turbine au démarrage (Poux and Xuereb, 2014), le rapport des débits des deux phases et le matériau de la chambre de mélange et de la turbine (Leybros, 2004). Cependant, le mode de fonctionnement est plus souvent subi que choisi.

Les mélangeurs-décanteurs présentent plusieurs avantages par rapport aux autres types d'extracteurs (Leybros, 2004; CEA-DEN, 2008; Zou et al., 2016; Singh et al., 2007; Zhou et al., 2021a). Tout d'abord, ils possèdent d'excellentes performances, avec une efficacité supérieure à 90 %. Ils offrent également une grande flexibilité, pouvant fonctionner sur une large plage de débits. Leur pilotage est simple, et les arrêts ou redémarrages sont faciles, ce qui les rend particulièrement adaptés au travail en laboratoire.

Néanmoins, en milieu radioactif, un temps de séjour long n'est pas recommandé, car il favorise la dégradation du solvant par radiolyse. De plus, les mélangeurs sont entraînés par des moteurs directement montés sur les appareils. En raison de la radioactivité, la

durée de vie des moteurs est réduite et leur maintenance délicate. Enfin, les mélangeurs-décanteurs sont très sensibles à l'accumulation de particules solides, difficiles à vidanger, et réduisant l'efficacité de l'appareil.

1.1.4 Entraînements de phase

D'un point de vue de la conduite du procédé, l'entraînement de phase constitue un problème majeur car il réduit fortement l'efficacité des appareils. Pour un fonctionnement optimal, les deux phases devraient être totalement séparées à la sortie du décanteur. Toutefois, en présence d'entraînement de phase, la phase dispersée "pollue" la phase continue et empêche une séparation complète (voir Figure 1.4). L'entraînement de phase se produit lorsque de fines gouttelettes sont emportées dans la sortie de la phase continue au cours du processus de décantation. Ces dernières sont généralement la conséquence d'une émulsion de gouttes trop fines dans le mélangeur. Bien que difficilement évitables dans un procédé industriel, ces phénomènes restent généralement peu marqués : ils représentent typiquement entre 0,1 % et 1 % en volume de phase dispersée dans la phase continue (Leybros, 2004).

Le rendement d'une extraction dépend principalement du rapport des débits entre les phases et du coefficient de distribution. Pour des débits et un coefficient de distribution donnés, l'extraction n'est jamais totale : une fraction de l'élément d'intérêt demeure toujours dans la phase aqueuse du fait des équilibres thermodynamiques. Toutefois, en présence d'un entraînement organique dans la phase aqueuse, cette quantité résiduelle augmente de manière significative. En effet, le solvant est fortement chargé en élément d'intérêt, et entraîner une partie de celui-ci augmente considérablement la quantité d'élément à extraire dans la sortie aqueuse. Il en est de même pour un entraînement aqueux dans l'organique, où une quantité non négligeable d'élément non souhaité se retrouve dans la sortie organique (voir Figure 1.4).

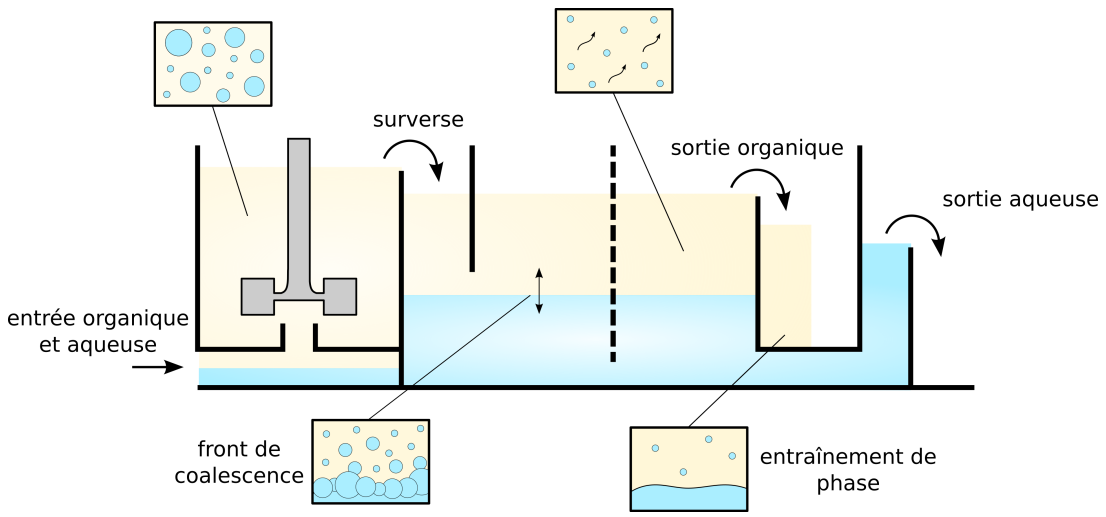


FIGURE 1.4 – Schéma de fonctionnement d'un mélangeur-décanteur et illustration du phénomène d'entraînement de phase aqueux dans organique.

Deux phénomènes physiques peuvent être la cause des entraînements de phase : des problèmes de sédimentation ou de coalescence. Premièrement, des gouttes peuvent être transportées par l'écoulement de la phase continue au lieu de rejoindre le front de coalescence et revenir dans sa phase d'origine. Ce phénomène peut être dû à des gouttes trop petites pour décanter, à une trop faible différence de masse volumique, à une viscosité de phase continue importante ou à des débits imposés trop grands (voir Figure 1.4). Deuxièmement, si le temps nécessaire pour la coalescence est trop long, le front de coalescence peut s'épaissir jusqu'à atteindre les sorties organique ou aqueuse, entraînant alors un débordement d'émulsion. En effet, la coalescence de deux gouttes n'est généralement pas immédiate (voir paragraphe 1.3.2.2). Les gouttes de grande taille coalescent facilement et rapidement, tandis que celles de petite taille ne coalescent qu'après un certain temps, pouvant aller jusqu'à plusieurs heures (Leybros, 2004). Par ailleurs, une phase continue trop visqueuse ou une émulsion trop stable (présence de tensioactifs) tend à augmenter le temps de coalescence.

Typiquement, la mise en place de garnissages, comme des plaques perforées, permet de limiter les entraînements en capturant un maximum de gouttes transportées par l'écoulement de la phase continue (Leybros, 2004; CEA-DEN, 2008). Ces dispositifs sont généralement fabriqués dans un matériau mouillé par la phase dispersée (hydrophile pour un fonctionnement en FOC et lipophile pour un fonctionnement en FAC), à l'image de ceux utilisés dans les MD-NG (voir Section 2.3).

1.2 Hydrodynamique en cuve agitée

La seconde partie de cet état de l'art propose une description générale de l'hydrodynamique au sein des cuves agitées. On y détaillera les géométries des cuves et les types d'agitateurs couramment utilisés, ainsi que les grandeurs caractéristiques globales de ces systèmes. Par ailleurs, les principales méthodes expérimentales et approches numériques employées pour caractériser l'écoulement et la turbulence y seront exposées.

Il peut être noté que, même si les mélangeurs-décanteurs sont des appareils industriels couramment utilisés, ils font l'objet de relativement peu d'études (Singh et al., 2007; Srilatha et al., 2010; Tabib et al., 2010; Zou et al., 2016; Tang et al., 2020; Zhou et al., 2021a). Toutefois, leur fonctionnement peut être assimilé à celui de cuves agitées, pour lesquelles la littérature scientifique est beaucoup plus abondante.

Une cuve agitée est composée d'un réservoir contenant une phase continue, et une éventuelle phase dispersée sous la forme solide, liquide ou gazeuse. Un mobile d'agitation immergé induit le mouvement de la ou des phases présentes au sein de la cuve. Les cuves agitées peuvent assurer différentes fonctions, selon l'opération souhaitée : mise en suspension, dispersion, mélange, émulsification ou encore pompage. La géométrie de la cuve, le type de mobile et les conditions opératoires varient donc en fonction de l'application (Roustan et al., 2023).

1.2.1 Géométrie standard des cuves agitées

La géométrie de la cuve de mélange et le type, la taille et la position du mobile d'agitation varient selon l'opération visée, la taille du système ou les contraintes industrielles. Le mobile peut être installé horizontalement ou verticalement, au centre de la cuve ou incliné par rapport à l'axe principal. Dans les grands réservoirs industriels, l'agitateur est souvent positionné horizontalement dans une cuve très large (Roustan et al., 2023). À l'inverse, certaines cuves sont beaucoup plus hautes que larges. C'est notamment le cas de certains appareils utilisés dans le traitement du combustible nucléaire usé : les mélangeurs-décanteurs « Cyrano ». Pour ce type de configuration, il est courant d'utiliser plusieurs mobiles d'agitation montés sur un même arbre. L'hydrodynamique dans les cuves agitées est complexe et fortement influencée par la géométrie du système, rendant les comparaisons entre configurations difficiles. Pour cette raison, une géométrie dite « standard » a été introduite par Rushton (1950). Cette géométrie est très largement utilisée dans la littérature et sert de référence pour l'étude expérimentale et la modélisation des réacteurs agités. Elle a également servi de base pour établir des abaques, notamment pour le nombre de puissance N_p (voir Eq. 1.3) en fonction du régime d'écoulement (Roustan, 2023).

Les dimensions d'une cuve agitée standard sont illustrées sur la Figure 1.5a. Ces dernières sont fréquemment utilisées dans la majeure partie de la littérature. Il s'agit d'une cuve cylindrique, dont la hauteur de liquide est égale au diamètre $H = T$. L'agitateur a un diamètre $D = H/3$ et est positionné à une hauteur $C = T/3$ au-dessus du fond. Pour éviter la formation d'un vortex lors de la rotation, quatre contre-pales (également appelées chicanes ou pales anti-vortex) sont fixées sur la paroi interne de la cuve. Le vortex est indésirable car il réduit la puissance dissipée et peut entraîner de l'air dans le liquide. Pour limiter ce phénomène, il est également possible d'excentrer ou d'incliner l'arbre d'agitation. La largeur typique des contre-pales est de $b = T/10$. Ces dernières permettent également d'améliorer le mélange.

1.2.2 Mobile d'agitation

L'hydrodynamique produite au sein d'une cuve agitée dépend fortement du type de mobile d'agitation utilisé. Un agitateur peut assurer deux fonctions principales, qui dépendent de l'opération de mélange que l'on souhaite réaliser : le pompage ou la génération de contraintes hydrodynamiques. L'intensité de chacune des deux opérations dépend du type et de la géométrie de l'agitateur. On distingue deux types d'agitateurs : les agitateurs de type axial et les agitateurs de type radial (Figures 1.5b et 1.5c).

Les agitateurs axiaux génèrent un mouvement principalement vertical. Dans une coupe en deux dimensions, ils forment une seule boucle de circulation, symétrique par rapport à l'axe d'agitation. On distingue les agitateurs *up-pumping*, qui créent une circulation vers le haut, des agitateurs *down-pumping*, qui orientent la circulation vers le bas (voir Figure 1.5b). Ces agitateurs sont réputés pour leur excellent pompage et une bonne capacité de mélange, assurant une circulation efficace du fluide dans la cuve. Ils sont largement utilisés pour des opérations telles que la mise en suspension, la dissolution ou l'homogénéi-

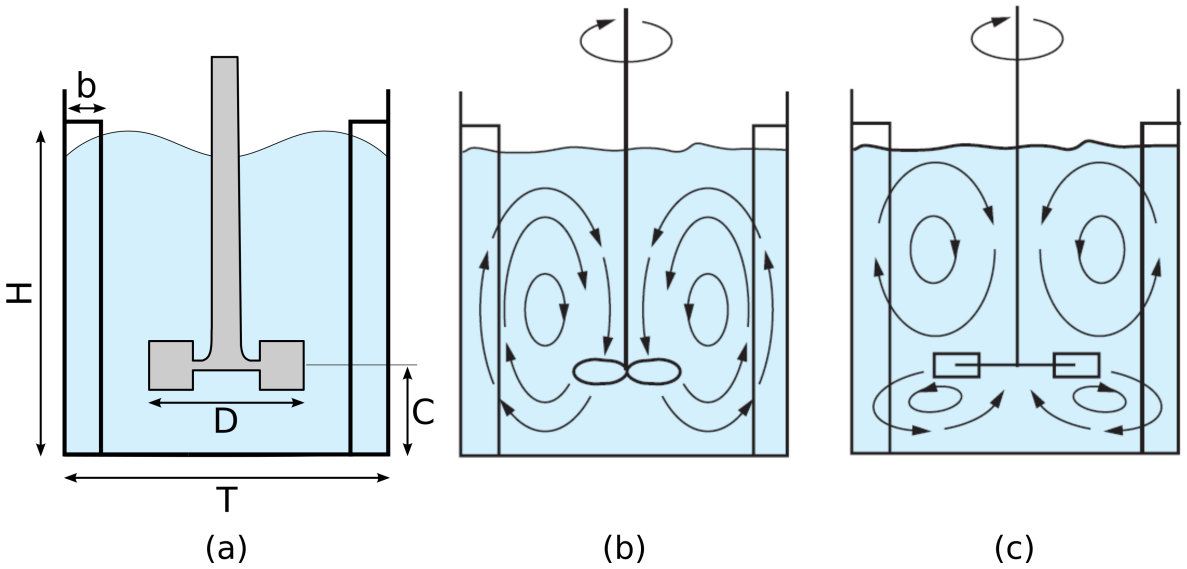


FIGURE 1.5 – (a) Dimensions d'une cuve agitée standard et circulation générée par un agitateur (b) axial et (c) radial (Figure (b-c) issue de Roustan et al. (2023)).

sation. Les turbines de type axial possèdent généralement une forme « aérodynamique » entraînant une puissance dissipée plus faible pour une fréquence d'agitation donnée.

Les agitateurs radiaux génèrent quant à eux un mouvement horizontal, perpendiculaire à l'arbre de l'agitateur. Dans une coupe en deux dimensions, l'écoulement radial forme deux boucles de circulation, une première sous le mobile d'agitation et une seconde au-dessus (voir Figure 1.5c). Ces agitateurs sont réputés pour produire de forts cisaillements et une turbulence relativement élevée à une fréquence d'agitation donnée. Ils sont donc particulièrement utilisés pour les opérations de dispersion, de transfert de matière ou d'émulsification. La turbine Rushton est une turbine radiale typiquement utilisée pour ces opérations. À l'inverse des agitateurs axiaux, les turbines radiales possèdent généralement une forme non aérodynamique.

Un grand nombre d'agitateurs et leurs domaines d'application sont recensés par Roustan et al. (2023); Roustan (2023). Ces derniers diffèrent selon leur type, leurs dimensions, leur position dans la cuve, ainsi que le nombre et l'orientation de leurs pales (Singh et al., 2008a).

1.2.3 Principales grandeurs caractéristiques en cuve agitée

Un agitateur peut engendrer différents régimes d'écoulement, allant du régime laminaire, dans lequel les couches de fluide sont stables dans le temps, et glissent de manière ordonnée les unes sur les autres, au régime turbulent, caractérisé par un écoulement instable, aléatoire et tridimensionnel. Le nombre de Reynolds Re est un nombre adimensionnel permettant de caractériser le régime de l'écoulement. Il représente le rapport entre

les forces inertielles et les forces visqueuses. En cuve agitée, il est défini par la relation suivante :

$$Re = \frac{\rho N D^2}{\mu} \tag{1.1}$$

avec N [s^{-1}], la fréquence (appelée communément « vitesse » malgré sa dimension) d'agitation, D [m], le diamètre de l'agitateur, et ρ [$kg \cdot m^{-3}$] et μ [$Pa \cdot s^{-1}$] respectivement la masse volumique et la viscosité de la phase continue. Typiquement, les valeurs limites des différents régimes d'écoulement sont les suivantes (Roustan et al., 2023) :

$$\begin{cases} Re < 10 - 100, & \text{régime laminaire} \\ 10 - 100 < Re < 10^4, & \text{régime transitoire} \\ Re > 10^4, & \text{régime turbulent} \end{cases} \tag{1.2}$$

Il peut être noté que ces valeurs limites ne sont pas universelles. Elles peuvent différer d'un auteur à l'autre, en fonction de la géométrie et du type d'agitateur. Afin de connaître plus précisément le régime d'écoulement, le nombre de puissance N_p peut être introduit. Il correspond au coefficient de traînée de l'agitateur et il est proportionnel à l'énergie transmise par l'agitateur aux liquides. Ce nombre adimensionnel est défini par :

$$N_p = \frac{P}{\rho N^3 D^5} \tag{1.3}$$

avec P [W] la puissance nécessaire pour entraîner l'agitateur. Elle peut être déterminée par deux approches, que l'on dénotera P_c et P_ε :

$$P_c = 2\pi M N \tag{1.4}$$

avec M [$N \cdot m$] le couple de la turbine. Par ailleurs, en régime pleinement turbulent, la puissance transmise par l'agitateur au fluide est égale à la puissance dissipée dans le liquide. Cela permet d'exprimer la puissance telle que :

$$P_\varepsilon = \langle \varepsilon \rangle_V \rho V \tag{1.5}$$

avec $\langle \varepsilon \rangle_V$ [$m^2 \cdot s^{-3}$], la moyenne volumique du taux de dissipation et V [m^3] le volume de liquide dans la cuve.

Le nombre de puissance dépend à la fois du type d'agitateur et du nombre de Reynolds. Dans une cuve agitée standard, plusieurs abaques ont été établis pour représenter cette relation (Roustan, 2023) (Figure 1.6). Pour un agitateur donné, le nombre de puissance est inversement proportionnel au nombre de Reynolds en régime laminaire. Ensuite, il devient indépendant de Re en régime turbulent. En revanche, aucune expression analytique simple ne permet de décrire précisément le comportement dans le régime de transition.

Par ailleurs, le nombre de Froude Fr est un nombre additionnel qui caractérise le rapport entre les forces inertielles et les forces gravitationnelles :

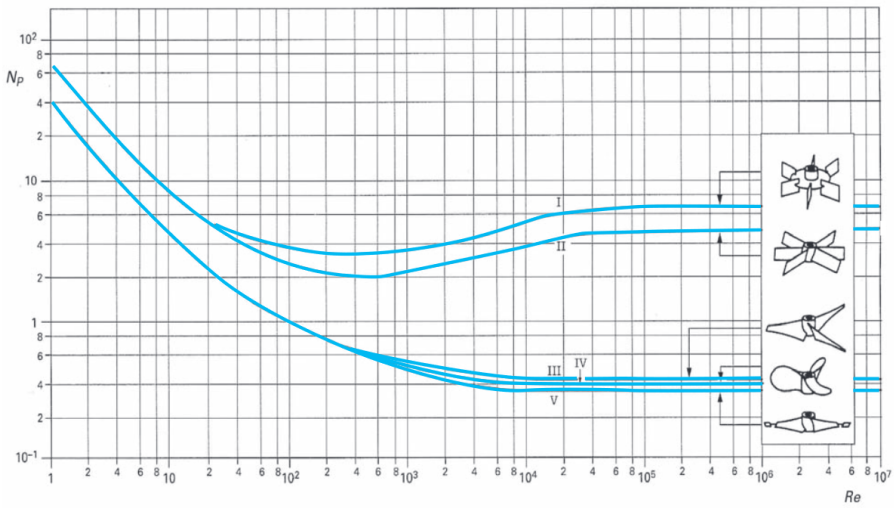


FIGURE 1.6 – Nombre de puissance en fonction du nombre de Reynolds pour différentes géométries d'agitateurs (Roustan, 2023).

$$Fr = \frac{N^2 D}{g} \tag{1.6}$$

En cuve agitée, le nombre de Froude est relié à la profondeur du vortex. Le nombre de pompage N_q est, quant à lui, un nombre adimensionnel qui caractérise la capacité d'un agitateur à déplacer le liquide dans une cuve :

$$N_q = \frac{Q}{ND^3} \tag{1.7}$$

avec Q $[\mathrm{m}^3 \cdot \mathrm{s}^{-1}]$ le débit de liquide qui traverse la turbine. A l'image du nombre de puissance, il est fonction du type d'agitateur et du régime de l'écoulement. Enfin, la vitesse en bout de pale V_p est un paramètre typiquement utilisé en cuve agitée, calculé par la formule suivante :

$$V_p = \pi D N \tag{1.8}$$

1.2.4 Éléments théoriques utiles de caractérisation de la turbulence

Dans un écoulement turbulent, le mouvement du fluide est tridimensionnel, aléatoire et chaotique, avec une large gamme d'échelles spatiales et temporelles. L'écoulement se caractérise par la présence de tourbillons avec une dimension et une vitesse caractéristiques, que l'on notera respectivement l et u dans ce paragraphe.

Les plus grands tourbillons ont des dimensions comparables à l'échelle intégrale de l'écoulement L. En cuve agitée, cette échelle est généralement de l'ordre de grandeur du diamètre de la turbine D. Les grands tourbillons sont les structures les plus énergétiques et déterminent en grande partie la structure globale de l'écoulement. Ils sont généralement anisotropes et dépendent fortement de la géométrie du système.

D'après le processus de cascade d'énergie, l'énergie cinétique est transférée progressivement de proche en proche, des plus grands tourbillons vers les plus petits. À partir d'une certaine échelle de tourbillon, appelée échelle de Kolmogorov η, les effets visqueux deviennent significatifs devant les effets inertiels, entraînant une dissipation de l'énergie cinétique sous forme de chaleur. Cette échelle, correspondant à la taille des plus petits tourbillons, se calcule à partir de la viscosité cinématique ν et du taux de dissipation ε :

$$\eta = \left(\frac{\nu^3}{\varepsilon}\right)^{1/4} \tag{1.9}$$

Le taux de dissipation ε correspond à la quantité d'énergie cinétique turbulente dissipée par unité de masse et par unité de temps sous l'effet de la viscosité. Il a l'unité de l'énergie cinétique turbulente par unité de temps $[\mathrm{m}^2 \cdot \mathrm{s}^{-3}]$. Il est également possible d'exprimer le temps caractéristique de Kolmogorov t_η, qui représente le temps caractéristique des plus petites fluctuations turbulentes :

$$t_\eta = \sqrt{\frac{\nu}{\varepsilon}} \tag{1.10}$$

D'après les hypothèses de similarité de Kolmogorov (1941), pour des écoulements à nombres de Reynolds suffisamment élevés, les petits tourbillons ($L \gg l$) sont considérés comme universels, et localement isotropes. Cela signifie que les informations sur la géométrie de l'écoulement, responsables de l'anisotropie des grands tourbillons, sont perdues à petite échelle (Castellano, 2019). Par ailleurs, leurs statistiques dépendent uniquement du taux de dissipation et de la viscosité cinématique du fluide.

A travers ces mêmes hypothèses de similarité, Kolmogorov (1941) stipule que pour des échelles comprises entre l'échelle intégrale et l'échelle de Kolmogorov ($L \gg l \gg \eta$), les effets visqueux deviennent négligeables devant les effets inertiels et les grandeurs statistiques dépendent uniquement du taux de dissipation. On appelle domaine inertiel cette plage de tourbillons située entre L et η tandis que le domaine dissipatif correspond à l'ensemble des échelles inférieures ou égales à l'échelle de Kolmogorov η.

Avec ces hypothèses de similarité, Kolmogorov (1941) propose de représenter le spectre d'énergie dans le domaine inertiel par le modèle :

$$E(\kappa) = C_\kappa \varepsilon^{2/3} \kappa^{-5/3} \tag{1.11}$$

avec C_κ une constante, généralement de l'ordre de $C_\kappa \approx 1{,}5$ (Pope, 2000). κ représente le nombre d'onde, qui est inversement proportionnel à la taille d'un tourbillon l :

$$\kappa = \frac{2\pi}{l} \tag{1.12}$$

$E(\kappa)$ correspond à la quantité d'énergie cinétique par unité de volume contenue dans un tourbillon de taille κ.

La fonction de structure d'ordre deux $\langle[\Delta u(l)]^2\rangle$, est une grandeur essentielle, définie à partir de la théorie de Kolmogorov. Elle représente la moyenne du carré de la vitesse

relative entre deux points distants de l dans un écoulement pleinement turbulent. Elle est utilisée dans une grande partie des modèles de rupture, car elle informe sur les contraintes de fluctuation turbulente exercées sur une goutte (voir Section 1.3.7). Kolmogorov propose d'exprimer cette fonction, dans le domaine inertiel, par :

$$\langle [\Delta u(l)]^2 \rangle = C_\kappa \varepsilon^{2/3} l^{2/3} \tag{1.13}$$

Avec C_κ un second coefficient de proportionnalité, généralement égal à 2 (Solsvik and Jakobsen, 2016).

Pope (2000) a proposé un modèle plus complet du spectre d'énergie, prenant en compte à la fois le domaine inertiel et le domaine dissipatif. Ainsi, la fonction de structure d'ordre deux prend une forme bien plus complexe (Pope, 2000; Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019).

En outre, au sein d'un écoulement turbulent, on peut définir l'échelle de Taylor λ. Cette dernière est une échelle intermédiaire : $L > \lambda > \eta$. Elle correspond à l'échelle où la viscosité du fluide affecte de manière significative les tourbillons turbulents. Dans un cas où la turbulence est isotrope, l'échelle de Taylor peut être exprimée par :

$$\lambda = \sqrt{\frac{10\nu k}{\varepsilon}} \tag{1.14}$$

avec k [$\mathrm{m^2 \cdot s^{-2}}$] l'énergie cinétique turbulente.

1.2.5 Caractérisation expérimentale des écoulements

Plusieurs techniques expérimentales permettent de caractériser les écoulements en cuve agitée, en mesurant par exemple la vitesse, la pression, le taux de rétention ou encore la qualité du mélange. Ces méthodes se distinguent par la grandeur mesurée, par leur nature intrusive ou non-intrusive, ainsi que par leur capacité à fournir soit une mesure ponctuelle, soit une mesure plus globale.

Dans un premier temps, le temps de mélange constitue un indicateur de l'efficacité du mélange dans une cuve agitée. Pour le mesurer expérimentalement, on utilise un traceur, qui peut prendre différentes formes (colorant...), associé à un capteur adapté (Roustan et al., 2023). Par exemple, l'introduction de chlorure de sodium (NaCl) dans un fluide permet de suivre la variation de conductivité au cours du temps en un point donné grâce à une ou plusieurs sondes conductimétriques (Zhao et al., 2011; Cheng et al., 2013). Le temps de mélange est alors déterminé comme l'instant à partir duquel la variation temporelle de la conductivité devient faible.

En ce qui concerne la mesure du taux de rétention, plusieurs approches peuvent être utilisées. La première repose sur des techniques de prélèvement (Wang and Mao, 2005; Abu-Farah et al., 2010; Onink et al., 2010). Ces dernières consistent à prélever un petit échantillon du mélange à l'aide d'une pompe, en un point localisé de la cuve. La fraction volumique de chaque phase est ensuite déterminée après centrifugation ou évaporation.

Ce même processus peut être répété à différentes positions afin d'établir des profils de taux de rétention. Toutefois, cette méthode est ponctuelle et de nature intrusive, pouvant perturber l'écoulement et altérer la précision des mesures. Une autre approche repose sur la mesure de conductivité électrique (Pfleger and Becker, 2001). Le principe est basé sur la variation de la résistance électrique entre deux électrodes lors du passage d'une bulle dans l'écoulement. Cependant, cette technique est jugée peu efficace pour des systèmes liquides-liquides. Enfin, la LIF (Laser Induced Fluorescence) est une méthode optique non intrusive permettant de mesurer la distribution spatiale de la fraction volumique (Randriamanantena, 2011). Pour cela, un traceur fluorescent est incorporé dans une des deux phases. L'écoulement est ensuite éclairé par une nappe laser, provoquant une émission lumineuse du traceur.

Concernant les mesures de vitesses d'écoulement, on peut citer les méthodes intrusives, comme par exemple les différentes sondes de mesure de vitesse (tube de Pitot) ou de pression, ainsi que l'anémométrie à fil chaud (Hot Wire Anemometry). Cette dernière consiste à mesurer la vitesse en exploitant le refroidissement d'un fil chauffé par un courant électrique, plongé directement dans l'écoulement. Bien que précises, ces techniques intrusives peuvent perturber le comportement local de l'écoulement, et par conséquent fausser les résultats obtenus.

Des méthodes de mesure de vitesse non intrusives, reposant principalement sur des principes optiques, peuvent également être utilisées. On peut citer, par exemple, la LDV (*Laser Doppler Velocimetry*), également appelée LDA (*Laser Doppler Anemometry*). Cette technique permet de mesurer la vitesse instantanée locale d'un écoulement en s'appuyant sur l'effet Doppler de particules présentes dans le fluide (Pfleger and Becker, 2001; Olmos et al., 2003; Svensson and Rasmuson, 2004; Hartmann et al., 2004b). La LDV est reconnue pour sa précision (même si les petites échelles sont difficilement mesurables) et sa très bonne résolution temporelle (Hartmann et al., 2004b). Toutefois, elle ne fournit qu'une mesure ponctuelle, ce qui nécessite un grand nombre de points de mesure pour obtenir un champ en deux ou trois dimensions.

La PIV (Particle Image Velocimetry) permet de surmonter cette limitation en mesurant directement un champ de vitesses. Il s'agit aujourd'hui de la technique expérimentale la plus utilisée pour la caractérisation d'un écoulement, notamment en cuve agitée (Drumm and Bart, 2006; Svensson and Rasmuson, 2006; Gabriele et al., 2009; Delafosse et al., 2011; Tabib et al., 2012; Zou et al., 2016; Liu et al., 2016; Mortensen et al., 2018; Laine et al., 2023; Kamkeng et al., 2024). Son principe consiste à éclairer un plan de l'écoulement à l'aide d'une nappe laser, émettant deux impulsions séparées par un intervalle de temps bref. Le fluide est préalablement ensemencé avec de fines particules solides inertes, spécialement choisies pour, d'une part, suivre fidèlement le mouvement du fluide (avec un temps caractéristique inférieur à celui de Kolmogorov) et, d'autre part, émettre de la lumière à la longueur d'onde du laser. Une caméra rapide, synchronisée avec les impulsions laser, enregistre deux images successives de ce plan éclairé. Une fois capturées, ces images sont divisées en fenêtres d'interrogation (IA), typiquement de 16×16 ou 32×32 pixels avec un chevauchement de 50 %. Dans chaque surface d'interrogation,

une corrélation croisée est réalisée afin de déterminer le mouvement le plus probable de chaque particule d'ensemencement, et par conséquent, la vitesse locale du fluide.

Dans la littérature, deux grandes limites ont été remarquées vis-à-vis de la PIV, et notamment pour la mesure du taux de dissipation. Dans un premier temps, la résolution spatiale de la PIV (Δx) conditionne la fiabilité des mesures (Saarenrinne and Piirto, 2000; Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2011; Liu et al., 2016). En effet, pour capturer les plus petites échelles de l'écoulement, la résolution PIV doit être de l'ordre de grandeur de l'échelle de Kolmogorov η. Selon Saarenrinne and Piirto (2000), 90 % de la dissipation est résolue pour $\Delta x/\eta = 2$, mais la résolution de ε chute à 65 % pour $\Delta x/\eta = 9$ et à 15 % pour $\Delta x/\eta = 24{,}7$. Delafosse et al. (2011) démontre qu'une diminution de la résolution spatiale par un facteur deux peut entraîner une augmentation de 220 % du taux de dissipation. Par ailleurs, en cuve agitée, il existe une grande variation locale de l'échelle de Kolmogorov, qui peut diminuer jusqu'à un facteur trois près des pales (Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2011). Cependant, il n'est pas toujours possible de résoudre ces plus petites échelles par PIV. Pour pallier cette limitation, différents modèles permettent d'estimer la dissipation non mesurée en adoptant, comme dans les modèles LES (voir Section 1.2.6.2), une approche sous-maille (Khan, 2005; Gabriele et al., 2009; Mortensen et al., 2018; Liu et al., 2016). Puisque les grandes échelles, plus énergétiques, sont responsables en grande partie de l'écoulement, modéliser uniquement les petites échelles constitue une approximation raisonnable. Cependant, ces modèles dépendent de la constante de Smagorinsky, qui nécessite d'être ajustée en fonction des configurations (Gabriele et al., 2009; Delafosse et al., 2011; Wang et al., 2021).

Dans un second temps, dans la majeure partie des cas, la PIV mesure seulement deux composantes de vitesse dans une coupe en deux dimensions (2D-2C PIV). En effet, la composante orthogonale au plan d'éclairage n'est pas disponible. Afin d'estimer la troisième composante, la turbulence peut être supposée homogène et isotrope. Toutefois, cette hypothèse est critiquable en cuve agitée, où l'écoulement ne respecte pas ces hypothèses, notamment dans le sillage des palles (Huchet et al., 2009). Sharp and Adrian (2001) mesure un écart allant jusqu'à 80 % avec cette hypothèse. Une seconde hypothèse possible est de considérer la turbulence localement isotrope. Cela permet de modéliser la composante non mesurée par les deux autres composantes mesurées (Khan, 2005). Cette hypothèse est plus commune et donne une meilleure estimation du taux de dissipation, avec une légère sous-estimation.

Au fil des années, les techniques PIV se sont considérablement améliorées, offrant la possibilité de réaliser des mesures plus globales. Par exemple, Huchet et al. (2009) a combiné des mesures PIV 2D-2C sur cinq plans distincts (certains étant perpendiculaires aux autres), afin d'avoir une estimation de l'énergie cinétique turbulente sans faire l'hypothèse simplificatrice de l'isotropie. Plus récemment, des méthodes avancées telles que la Tomographic PIV (Tomo-PIV) sont de plus en plus utilisées (Shinkai et al., 2025). Cette méthode permet de reconstruire l'écoulement dans un volume observé avec au moins quatre caméras. Cela permet d'en déduire les trois composantes de la vitesse dans les trois directions de l'espace (3D-3C PIV).

Une méthode alternative à la PIV pour la caractérisation des écoulements est l'algorithme Shake-the-Box (STB) (Schanz et al., 2013; Laine et al., 2023). Cette dernière est une technique avancée de suivi de particules (PTV). Elle repose sur le suivi lagrangien des particules en quatre dimensions, combinant les trois coordonnées spatiales avec l'information temporelle. Contrairement à la méthode PIV, l'algorithme STB capture les fluctuations turbulentes sans avoir recours à des moyennes. Par ailleurs, la méthode STB possède une configuration expérimentale plus simple (moins de caméras avec un *Mini-Shaker*), et une meilleure précision locale. Dans une cuve agitée, Laine et al. (2023) a ainsi montré que les mesures obtenues par STB étaient en accord avec les résultats de la 2D-2C PIV. De plus, cette méthode a permis de vérifier l'hypothèse de pseudo-isotropie, essentielle pour une estimation fiable des grandeurs turbulentes par 2D-2C PIV.

Enfin, les mesures expérimentales de PIV diphasique en cuve agitée sont très rares dans la littérature (Svensson and Rasmuson, 2006; Laurenzi et al., 2009; Liu et al., 2016). Leur principe est très similaire à celui de la PIV monophasique. La phase dispersée doit être selectionnée pour être optiquement invisible dans la phase continue. Les deux liquides doivent donc présenter un indice de réfraction identique (Svensson and Rasmuson, 2006; Drumm and Bart, 2006; Tabib et al., 2012; Liu et al., 2016). Si ces mesures sont rares, c'est qu'elles sont délicates a mettre en œuvre. En effet, d'une part, les particules d'ensemencement ont tendance à s'accumuler autour des interfaces de gouttes, ce qui dégrade la qualité des mesures (Svensson and Rasmuson, 2006). D'autre part, lorsque la fraction de gouttes devient trop élevée, l'opacité du mélange augmente, les images deviennent floues et la mise au point de la caméra est difficile (Svensson and Rasmuson, 2006; Tabib et al., 2012).

1.2.6 Mécanique des fluides numérique (CFD)

La mécanique des fluides numérique (*Computational Fluid Dynamics*, CFD) désigne la modélisation et la simulation des mouvements et des forces des fluides à l'aide de méthodes numériques. Elle peut être étendue pour tenir compte de la chaleur, de la thermodynamique, de réactions et des interactions avec les solides (Greenshields and Weller, 2022). En d'autres termes, la CFD utilise des méthodes numériques pour résoudre les équations régissant la physique des fluides, connues sous le nom d'équations de Navier-Stokes, dans des situations réelles, souvent complexes et chaotiques. Elle donne accès aux grandeurs caractéristiques de l'écoulement, telles que la vitesse, la pression ou encore la turbulence.

Les équations qui régissent le mouvement d'un fluide sont complexes. Elles peuvent être résolues analytiquement dans certains cas très simples, comme pour les écoulements de Couette ou de Poiseuille. Cependant, dans la plupart des applications, leur résolution nécessite le recours à des méthodes numériques. Différentes méthodes numériques permettent de résoudre les équations de la mécanique des fluides, comme les méthodes des différences finies ou des éléments finis, mais la méthode des volumes finis reste la plus répandue dans les codes de CFD. Cette dernière consiste à discrétiser le domaine en un nombre fini de cellules, dans lesquelles les équations de Navier-Stokes sont résolues. De plus, certains codes de calcul utilisent la méthode de Boltzmann sur réseau (LBM), qui sera détaillée dans le paragraphe 1.2.6.5.

La difficulté de la modélisation CFD réside dans le choix des discrétisations spatiales et temporelles des équations, des conditions aux limites et des modèles physiques utilisés. Ces choix dépendent directement du degré de précision souhaité : plus on cherche à se rapprocher de la réalité physique, plus les modèles sont complexes et le coût des calculs est élevé. Il est donc crucial de formuler des hypothèses de modélisation adaptées, de sélectionner judicieusement les paramètres de discrétisation et les conditions aux limites, ainsi que les modèles les plus appropriés, afin d'obtenir des résultats fiables dans un temps raisonnable et avec les ressources numériques disponibles.

Cette problématique se retrouve notamment dans la modélisation de la turbulence, pour laquelle trois grandes familles de modèles existent : l'approche RANS (*Reynolds-Averaged Navier-Stokes*), l'approche LES (*Large Eddy Simulation*) et l'approche DNS (*Direct Numerical Simulation*). Lors de l'utilisation de la CFD, le choix du modèle de turbulence est particulièrement important pour une estimation précise du taux de dissipation.

1.2.6.1 Reynolds-Averaged Navier-Stokes (RANS)

La modélisation RANS repose sur une approche statistique de la turbulence. Elle consiste à résoudre numériquement la moyenne de l'écoulement et l'effet que peuvent avoir les fluctuations sur les champs moyens. Cette approche est très répandue, car elle possède un coût numérique relativement faible.

D'après la décomposition RANS, la vitesse u_i est exprimée comme la somme d'une valeur moyenne $\bar{u}_i$ et d'une fluctuation u'_i, telles que :

$$u_i = \bar{u}_i + u'_i \tag{1.15}$$

La pression suit également la même décomposition. Il peut être noté que la moyenne temporelle des fluctuations est nulle. Dans le cas d'un fluide incompressible ($\rho = \text{cst}$), en injectant cette décomposition dans les équations de Navier-Stokes, on obtient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_i} = 0 \\ \dfrac{\partial \bar{u}_i}{\partial t} + \bar{u}_j \dfrac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} = -\dfrac{1}{\rho}\dfrac{\partial \bar{p}}{\partial x_i} + g_i + \nu \dfrac{\partial^2 \bar{u}_i}{\partial x_j^2} + \dfrac{1}{\rho}\dfrac{\partial \tau_{ij}^{Re}}{\partial x_j} \end{cases} \tag{1.16}$$

En moyennant l'équation de conservation de la quantité de mouvement, on note l'apparition d'un nouveau terme dans les équations de Navier-Stokes, appelé tenseur de Reynolds τ_{ij}^{Re}. Il représente le transport de quantité de mouvement dû aux fluctuations turbulentes de vitesse. Boussinesq a proposé l'un des premiers modèles de fermeture en introduisant la viscosité turbulente μ_t, et propose la formulation du tenseur de Reynolds suivante :

$$\tau_{ij}^{Re} = -\rho\overline{u'_i u'_j} = \mu_t \left(\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{u}_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3}\rho k \delta_{ij} \tag{1.17}$$

avec δ_{ij} le symbole de Kronecker et k l'énergie cinétique turbulente définie par :

$$k = \frac{1}{2}\overline{u_i' u_i'} \tag{1.18}$$

Afin d'estimer le terme de viscosité turbulente μ_t, différents modèles de turbulence sont disponibles dans la littérature. Ces modèles peuvent être algébriques, à une équation ou à deux équations. Le modèle de turbulence le plus répandu est le modèle $k-\varepsilon$ (Wang and Mao, 2005; Laurenzi et al., 2009; Delafosse et al., 2009; Abu-Farah et al., 2010; Zou et al., 2016). Ce modèle a été développé pour des écoulements pleinement turbulents, et fait l'hypothèse que la turbulence est isotrope. Il s'agit d'un modèle de fermeture à deux équations, qui permet de calculer la viscosité turbulente à partir de :

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \tag{1.19}$$

avec C_μ une constante et k et ε déterminés par deux équations de transport. Il existe également d'autres modèles de turbulence, comme le modèle $k-\omega$, le modèle $k-\omega$ SST (Hartmann et al., 2004b; Zamiri and Chung, 2017), qui combine les modèles $k-\varepsilon$ et $k-\omega$, ou encore le modèle RSM (*Reynolds Stress Model*), qui résout des équations de transport pour le tenseur de Reynolds (Drumm and Bart, 2006). Ce modèle est considéré comme plus précis, car il ne repose ni sur l'hypothèse de Boussinesq, ni sur l'isotropie de la turbulence.

Les modèles RANS sont largement utilisés dans la littérature pour la modélisation d'un procédé liquide-liquide, aussi bien pour simuler l'écoulement monophasique ou diphasique (Singh et al., 2008a; Laurenzi et al., 2009; Onink et al., 2010), que pour l'estimation des contraintes hydrodynamiques nécessaires pour alimenter les modèles de fermeture des bilans de population (PBE) (Amokrane, 2014; Castellano, 2019). Ce choix s'explique principalement par leur coût numérique raisonnable, contrairement aux approches LES (paragraphe 1.2.6.2) ou DNS (paragraphe 1.2.6.3). Les modèles RANS permettent une bonne estimation du mélange, des champs de vitesses moyennes et de l'énergie cinétique totale (Delafosse et al., 2008). En revanche, ils sous-estiment généralement le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente (Deen et al., 2001; Hartmann et al., 2004b; Delafosse et al., 2011; Mortensen et al., 2018; Laine, 2024). De plus, les modèles RANS ne sont pas capables de prédire précisément la répartition spatiale du taux de dissipation dans la zone de la turbine (Hartmann et al., 2004b; Delafosse et al., 2008, 2011; Tabib et al., 2012). Ils ne permettent également pas de prédire la répartition de l'énergie cinetique totale entre l'écoulement périodique et l'écoulement turbulent (Delafosse et al., 2008). Enfin, la majorité des modèles RANS ($k-\varepsilon$, $k-\omega$...) repose sur l'hypothèse d'isotropie de la turbulence, alors que les écoulements en cuves agitées sont fortement anisotropes, notamment à proximité des pales. Ainsi, les modèles LES sont plus coûteux numériquement, mais ces modèles semblent essentiels pour obtenir une estimation plus fiable du taux de dissipation (Delafosse et al., 2008, 2009; Tabib et al., 2010, 2012; Laine, 2024).

1.2.6.2 La simulation aux grandes échelles de la turbulence (LES)

La simulation aux grandes échelles de la turbulence (LES) est le modèle de turbulence intermédiaire entre approches RANS et DNS. En effet, dans ce modèle, les grandes échelles de l'écoulement sont résolues, alors que les petites échelles sont modélisées par un modèle de sous-maille. D'après la cascade d'énergie proposée par Kolmogorov, les grands tourbillons sont très énergétiques et sont responsables de la majeure partie du transfert de quantité de mouvement. Le rôle des petits tourbillons est moindre. Ils sont indépendants de la géométrie et considérés comme isotropes et universels. L'effet des petites échelles sur les grandes est introduit par un modèle de sous-maille.

Dans les modèles LES, la discrétisation spatiale est plus grossière que celle nécessaire en DNS, ce qui réduit le coût numérique. Par ailleurs, ils sont plus précis que les modèles RANS, car les grands tourbillons sont directement résolus, au lieu d'être moyennés. De plus, par rapport aux modèles RANS, les modèles LES résolvent plus précisément les phénomènes instationnaires créés par le passage des pales.

Pour distinguer les grandes et les petites échelles, un filtre est appliqué aux équations de la conservation de la masse et de la quantité de mouvement. Ce dernier décompose l'écoulement en une partie correspondant aux grandes échelles et une autre correspondant aux petites échelles, encore appelées échelles de sous-maille. Dans la plupart des cas, aucun filtre explicite n'est appliqué, c'est le maillage qui en joue le rôle. De la même manière que la décomposition RANS, en LES, on décompose la vitesse instantanée u_i en une vitesse résolue $\tilde{u}_i$ et une vitesse de sous-maille u_i^{SGS} telle que :

$$u_i = \tilde{u}_i + u_i^{SGS} \tag{1.20}$$

Ainsi, pour un fluide incompressible, les équations de Navier-Stokes filtrées s'écrivent :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_i} = 0 \\ \dfrac{\partial \tilde{u}_i}{\partial t} + \tilde{u}_j \dfrac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_j} = -\dfrac{1}{\rho}\dfrac{\partial \tilde{p}}{\partial x_i} + g_i + \nu \dfrac{\partial^2 \tilde{u}_i}{\partial x_j^2} + \dfrac{1}{\rho}\dfrac{\partial \tau_{ij}^{SGS}}{\partial x_j} \end{cases} \tag{1.21}$$

avec τ_{ij}^{SGS}, le tenseur des contraintes de sous-maille, défini comme :

$$\tau_{ij}^{SGS} = \tilde{u}_i \tilde{u}_j - \widetilde{u_i u_j} \tag{1.22}$$

Comme dans l'approche RANS, l'hypothèse de Boussinesq permet de fermer le système d'équation, en introduisant la viscosité dynamique turbulente μ_t telle que :

$$\tau_{ij}^{SGS} = -2\mu_t \tilde{S}_{ij} + \frac{1}{3}\tau_{kk}^{SGS}\delta_{ij} \tag{1.23}$$

avec $\tilde{S}_{ij}$ la partie résolue du tenseur des taux de déformation, définie par :

$$\tilde{S}_{ij} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \tilde{u}_j}{\partial x_i}\right) \tag{1.24}$$

Pour simplifier les équations, le terme de la trace du tenseur des contraintes de sous-maille τ_{kk}^{SGS} peut être ajouté dans le terme de pression.

Le modèle LES le plus populaire dans la littérature est le modèle Smagorinsky-Lilly, proposé par Smagorinsky (1963) (Deen et al., 2001; Hartmann et al., 2004b; Tabib et al., 2012; Laine, 2024). Ce dernier repose sur l'hypothèse que la production et la dissipation de la turbulence sont à l'équilibre. Par ailleurs, les échelles de turbulence de sous-maille sont supposées isotropes. Le modèle de Smagorinsky-Lilly modélise la viscosité turbulente μ_t, encore appelée viscosité de sous-maille, par la relation (Smagorinsky, 1963) :

$$\mu_t = \rho(C_s\Delta)^2\sqrt{2\tilde{S}_{ij}\ \tilde{S}_{ij}} \tag{1.25}$$

avec C_s la constante de Smagorinsky et $\Delta = (V_{cell})^{1/3}$, une grandeur caractéristique liée au maillage. Le choix de la constante de Smagorinsky C_s est essentiel pour la précision du modèle. Pope (2000) a montré que, dans le cas d'une turbulence homogène et isotrope, sa valeur est C_s = 0,173. Toutefois, cette constante n'est pas universelle et varie selon les auteurs : elle est généralement comprise entre $C_s = 0.065$ et $C_s = 0.25$ (Tabib et al., 2012).

Par ailleurs, d'autres modèles LES ont été proposés dans la littérature. Le modèle dynamique, par exemple, se base sur le modèle de Smagorinsky-Lilly. Toutefois, la valeur de C_s n'est pas constante mais est calculée par le modèle (Ničeno et al., 2008; Tabib et al., 2010). Une autre approche est le modèle 1-Eqn-SGS-TKE-LES, introduit par Ničeno et al. (2008), dans lequel l'énergie cinétique turbulente de sous-maille k_{SGS} est résolue à l'aide d'une équation de transport. Ce modèle fournit une meilleure prédiction de l'écoulement par rapport aux modèles de type Smagorinsky, car il résout explicitement l'énergie cinétique de sous-maille (Ničeno et al., 2008; Tabib et al., 2012; Tabib and Schwarz, 2011).

1.2.6.3 La simulation numérique directe (DNS)

La simulation numérique directe (DNS) consiste à résoudre directement les équations de Navier–Stokes sans aucune modélisation de la turbulence. Cette approche est la plus précise, mais son coût de calcul est extrêmement élevé et nécessite des ressources numériques considérables. En effet, la DNS impose une discrétisation spatiale et temporelle très fine, permettant de capturer les structures les plus énergétiques jusqu'aux plus petites échelles de l'écoulement : l'échelle de Kolmogorov. Ce niveau de détail est généralement trop coûteux pour simuler un écoulement à l'échelle d'un procédé industriel. A ces échelles, des modèles de turbulence moins coûteux, tels que les modèles RANS et LES, sont privilégiés.

Ainsi, la DNS est principalement utilisée dans un cadre de recherche fondamentale, notamment pour l'étude de la turbulence et des écoulements diphasiques. Dans le contexte de la dispersion liquide–liquide, cette approche permet d'analyser de manière détaillée les phénomènes de rupture, de coalescence ou de transfert de matière à l'échelle de la goutte (Komrakova et al., 2015; Shao et al., 2018; Riviere et al., 2021; Håkansson and Brandt, 2022; Olad et al., 2023; Godé, 2023; Li et al., 2024). Ces travaux permettent notamment

de mieux appréhender ces phénomènes à l'échelle locale, afin de développer ou valider des modèles théoriques, comme typiquement des fermetures utilisées dans les bilans de population (Karimi and Andersson, 2020).

1.2.6.4 Modélisation de la rotation en cuve agitée

Afin de modéliser la rotation de la turbine au sein d'un mélangeur, deux approches principales peuvent être utilisées en CFD : l'approche MRF (*Multiple Reference Frame*) et l'approche à maillage tournant, plus communément appelée SM (*Sliding Mesh*).

L'approche MRF, fréquemment employée dans la littérature (Laurenzi et al., 2009; Zou et al., 2016; Castellano, 2019; Guan et al., 2020), est une approximation en régime permanent d'un mouvement de rotation instationnaire. Elle repose sur l'utilisation d'un repère tournant qui modifie les équations de Navier-Stokes en y ajoutant des termes sources simulant l'effet de la rotation. Dans ce cas, ni le maillage ni la géométrie ne sont mis en mouvement : la rotation est uniquement représentée de manière mathématique. Cette méthode permet d'obtenir un champ d'écoulement instantané correspondant à une position donnée des pales, dans un régime pseudo-périodique. Son principal avantage est son faible coût de calcul, mais elle se révèle moins précise et peu adaptée à la capture des grandes échelles instationnaires.

L'approche *Sliding Mesh*, quant à elle, est purement instationnaire : le maillage est numériquement mis en rotation. Elle repose sur la création de deux domaines maillés, l'un fixe et l'autre en rotation. Le transfert des informations d'écoulement entre les deux domaines s'effectue à l'interface, où des interpolations sont réalisées. Lorsque les maillages ne coïncident pas parfaitement, une notion de poids est introduite afin de quantifier la contribution relative de chaque surface à l'interface. Cette méthode offre une meilleure précision et permet de décrire plus fidèlement l'écoulement dans une cuve agitée. C'est principalement pour ces raisons qu'elle reste la méthode la plus populaire (Hartmann et al., 2004a; Singh et al., 2008a; Delafosse et al., 2008, 2009; Tabib et al., 2010, 2012). Toutefois, elle nécessite un temps de calcul plus important que l'approche MRF.

1.2.6.5 Méthode de Boltzmann sur réseau (LBM)

Depuis quelques années, on assiste à l'essor rapide de l'utilisation de la méthode de Boltzmann sur réseau (LBM) (Xi and Duncan, 1999; Hartmann et al., 2004b; Thomas et al., 2022; Kersebaum et al., 2024) en complément des approches par volumes finis. Elle permet notamment de modéliser des écoulements pour des applications allant des problèmes d'advection-diffusion monophasique aux écoulements polyphasiques et aux interactions fluide-structure (Krüger et al., 2017).

Comme évoqué précédemment, la qualité des résultats de la CFD traditionnelle est conditionnée par une bonne discrétisation spatiale, ce qui nécessite une maîtrise rigoureuse du maillage. Pour réduire le coût numérique, elle fait également appel à des modèles, dont la bonne utilisation implique une compréhension approfondie de leur fonctionnement et de leurs limites (Kersebaum et al., 2024).

Les méthodes LBM permettent de s'affranchir d'une partie des contraintes précédentes. D'une part, elles ne nécessitent pas la construction d'un maillage complexe. D'autre part, elles offrent une bonne robustesse numérique, et surtout d'excellentes performances de parallélisation. Elles sont également particulièrement adaptées aux cartes graphiques (GPU), ce qui permet d'accélérer considérablement les simulations. Ainsi, tandis que les méthodes traditionnelles par volume finis sont « bridées » par leurs méthodes de résolution, la LBM permet de réaliser des calculs beaucoup plus complexes et précis avec des temps de calcul raisonnables (Krüger et al., 2017).

Contrairement aux outils CFD conventionnels, qui décrivent les variations et le transport de variables d'écoulement macroscopiques, telles que la vitesse ou la pression, la méthode Boltzmann sur réseau (LBM) est un outil de modélisation mésoscopique [1]. À l'échelle macroscopique, le mouvement d'un fluide est décrit par les équations de Navier-Stokes, où les variables sont continues, mesurables et visualisables à l'échelle humaine. À l'échelle mésoscopique, le fluide est représenté par des particules, et la notion de continuité n'est plus respectée. Par ailleurs, on ne suit pas chaque particule individuellement, mais plutôt une population de particules.

L'équation de Boltzmann décrit l'évolution de la fonction de distribution $f(x_j, \xi_\beta, t)$ des particules. Cette dernière correspond à la densité des particules de vitesse ξ_β à la position x_j et au temps t. A l'échelle mésoscopique, le mouvement d'un fluide est décrit par l'équation de Boltzmann suivante (Krüger et al., 2017) :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \xi_\beta \frac{\partial f}{\partial x_\beta} + \frac{F_\beta}{\rho} \frac{\partial f}{\partial \xi_\beta} = \Omega(f) \tag{1.26}$$

À l'image des équations de transport classiques, les deux premiers termes du membre de gauche traduisent le transport de la fonction de distribution à une vitesse ξ_β. Le troisième terme représente l'action des forces externes exercées sur le fluide. Dans le membre de droite, on retrouve un terme source, $\Omega(f)$, appelé opérateur de collision. Il décrit la redistribution locale de la fonction de distribution due aux collisions entre particules (Krüger et al., 2017).

Il existe un grand nombre d'opérateurs de collision différents. Toutefois, l'opérateur le plus simple et le plus généralement utilisé en LBM est l'opérateur BGK (Bhatnagar-Gross-Krook) (Krüger et al., 2017) :

$$\Omega(f) = -\frac{f - f^{\mathrm{eq}}}{\boldsymbol{\tau}} \tag{1.27}$$

Cet opérateur est basé sur la relaxation de la fonction de distribution par rapport à une distribution d'équilibre f^{eq}. $\boldsymbol{\tau}$ représente, quant à lui, le temps de relaxation, c'est-à-dire le temps pour que le système atteigne un état d'équilibre.

La fonction de distribution $f(x_j, \xi_\beta, t)$ est fonction à la fois de l'espace, de la vitesse des particules et du temps. Elle ne peut pas être discrétisée par un maillage spatial classique : il faut également discrétiser la vitesse. Pour cela, il existe plusieurs réseaux qui

1. Échelle intermédiaire entre l'échelle microscopique (moléculaire) et l'échelle macroscopique

permettent de discrétiser l'espace des vitesses. Ils prennent généralement la forme DdQq, où d représente le nombre de dimensions spatiales et q le nombre de vitesses discrétisées. En trois dimensions, les réseaux les plus couramment utilisés pour la résolution des équations de Navier-Stokes sont les réseaux D3Q15, D3Q19 et D3Q27 (voir Figure 1.7). A titre d'exemple, le réseau D3Q15 correspond à une discrétisation sur un maillage cartésien où une particule peut rester sur son nœud, ou être transportée sur un des 14 (q-1) nœuds voisins. Selon M-Star Simulations (2025b) et Krüger et al. (2017), le réseau D3Q19 constitue le meilleur compromis entre stabilité numérique et coût de calcul.

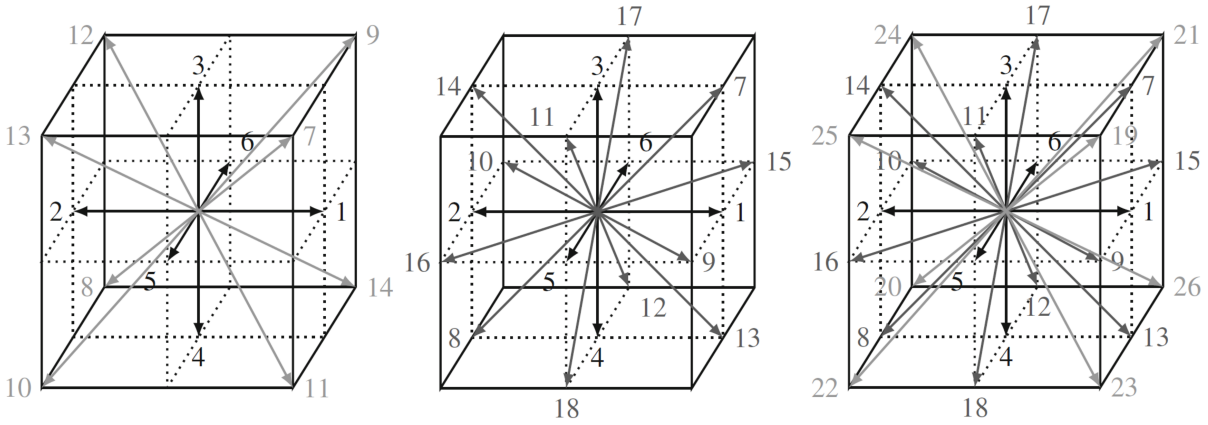


FIGURE 1.7 – De gauche à droite, les réseaux D3Q15, D3Q19 et D3Q27 (Krüger et al., 2017).

Ainsi, en discrétisant la vitesse en un ensemble $\{c_{i\beta}\}$, on se ramène à écrire la fonction de distribution comme $f_i(x_j, t)$. Elle représente la densité de particules avec une vitesse $c_{i\beta} = (c_{ix}, c_{iy}, c_{iz})$ à une position x_j et au temps t. Dans la discrétisation des vitesses, on retrouve également une constante c_s, qui correspond à la vitesse du son. Elle permet de mettre en relation la pression et la densité par :

$$p = \rho c_s^2 \tag{1.28}$$

Ainsi, en discrétisant l'équation de Boltzmann 1.26 en vitesse, en espace physique et en temps, on se retrouve avec l'équation de lattice Boltzmann suivante (Krüger et al., 2017) :

$$f_i(x_j + c_i\Delta t, t + \Delta t) = f_i(x_j, t) + \Delta t \Omega_i(x_j, t) \tag{1.29}$$

avec Ω_i l'opérateur collision explicité par l'équation 1.27. On note que les forces externes sont considérées comme nulles ici. L'équation de lattice Boltzmann discrétisée se décompose donc en deux étapes successives (voir Figure 1.8) :

- la collision, ou chaque population est relaxée vers sa distribution d'équilibre f^{eq} :

$$f_i^\star(x_j, t) = f_i(x_j, t) - \frac{\Delta t}{\boldsymbol{\tau}} \left[f_i(x_j, t) - f_i^{\text{eq}}(x_j, t) \right] \tag{1.30}$$

  avec $f_i^\star$ la fonction de distribution après la collision.

- la propagation, où la fonction de distribution après collision $f_i^\star$ est transportée vers les nœuds voisins :

$$f_i(x_j + c_i\Delta t, t + \Delta t) = f_i^\star(x_j, t) \tag{1.31}$$

Une fois que l'ensemble des particules a été transporté sur l'un des nœuds voisins, elles entrent à nouveau en collision avec les autres ensembles de particules arrivant sur le même nœud au même instant. Ce processus est répété à chaque pas de temps.

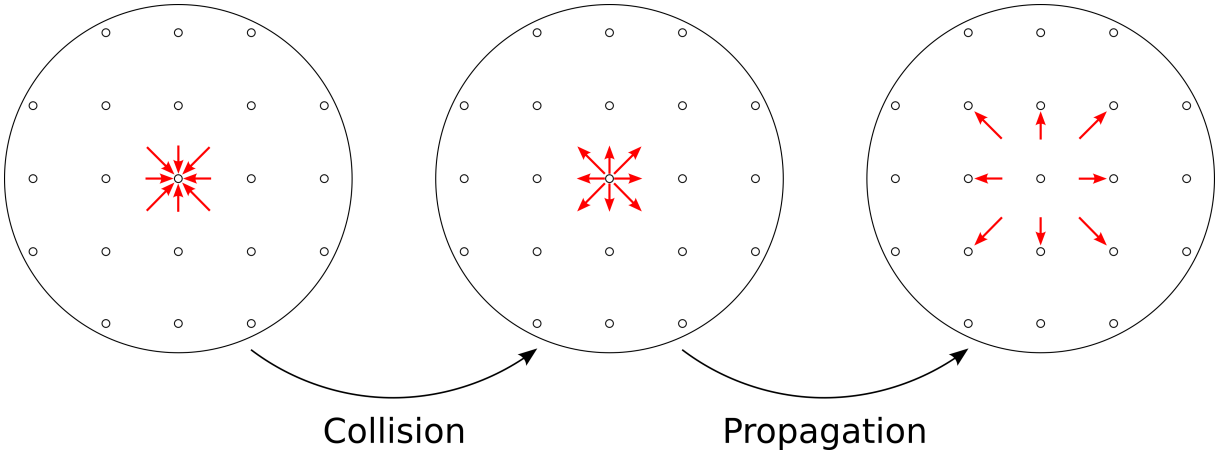


FIGURE 1.8 – Processus de collision et de propagation des particules représenté en 2D par le modèle D2Q9 (adapté de Rak et al. (2023)).

La fonction de distribution à l'équilibre f^{eq} dépend des variables locales ρ et u_β. Ces grandeurs macroscopiques sont calculées, à chaque pas de temps, à partir de f_i tel que (Krüger et al., 2017) :

$$\begin{aligned} \rho(x_j, t) &= \sum_i f_i(x_j, t) \\ \rho u_\beta(x_j, t) &= \sum_i c_{i\beta} f_i(x_j, t) \end{aligned} \tag{1.32}$$

L'extension de Chapman-Enskog permet de réaliser le lien entre les équations LBM et les équations de Navier-Stokes. Elle permet de montrer que les équations LBM se comportent macroscopiquement, avec une viscosité cinématique exprimée par (Krüger et al., 2017) :

$$\nu = c_s^2 \left(\boldsymbol{\tau} - \frac{\Delta t}{2} \right) \tag{1.33}$$

La pression p est, quant à elle, calculée par l'équation 1.28.

1.3 Modélisation et caractérisation de l'émulsion

La troisième partie de cet état de l'art a pour objectif de décrire le comportement de l'émulsion en cuve agitée. Les grandeurs caractéristiques ainsi que les phénomènes typiques (rupture, coalescence) associés à ce type de réacteur y seront présentés. Une attention particulière sera portée sur la rupture et sa phénoménologie. Une revue des différents modèles numériques et des méthodes expérimentales permettant de caractériser les émulsions sera également proposée. Enfin, cette analyse de l'état de l'art distinguera les approches en fonction du régime d'écoulement, laminaire, transitoire ou turbulent.

1.3.1 Diamètre moyen et aire interfaciale des gouttes

Une population de gouttes est souvent décrite par sa distribution de tailles, pouvant être exprimée en fonction du nombre, du volume, ou encore de la masse. Elle peut être représentée sous une forme continue, ou de manière discrète, où chaque taille est divisée en classes.

L'analyse d'une distribution n'est pas toujours évidente, et plusieurs grandeurs statistiques peuvent être utilisées pour la représenter. Par exemple, le D_{10}, le D_{50} (diamètre médian) et le D_{90} correspondent respectivement aux diamètres pour lesquels 10 %, 50 % et 90 % de la population des gouttes présentent une taille inférieure à ces valeurs. Par ailleurs, il existe plusieurs définitions du diamètre moyen, qui dépendent de ce que l'on souhaite caractériser. Dans sa forme la plus générale, et pour une distribution discrète, le diamètre moyen d_{pq} s'exprime par :

$$d_{pq} = \left(\frac{\sum n_i d_i^p}{\sum n_i d_i^q} \right)^{\frac{1}{p-q}} \tag{1.34}$$

avec n_i le nombre de gouttes dans la classe de diamètre d_i, et p et q, des entiers choisis selon le type de moyenne calculée. Par exemple, pour $p = 1$ et $q = 0$, on reconnaît la moyenne arithmétique. Dans le cadre de l'extraction liquide-liquide, le diamètre de Sauter d_{32} est généralement utilisé. Il représente le rapport entre le moment d'ordre trois et le moment d'ordre deux de la distribution :

$$d_{32} = \frac{\sum n_i d_i^3}{\sum n_i d_i^2} \tag{1.35}$$

Il est particulièrement pertinent pour les phénomènes de transfert de matière, car il est lié à l'aire interfaciale des gouttes. En effet, connaissant le diamètre de Sauter, on peut alors déterminer l'aire interfaciale par unité de volume par :

$$a = \frac{6\alpha}{d_{32}} \tag{1.36}$$

avec α le taux de rétention. Ce dernier désigne la fraction volumique de la phase dispersée. Il est défini comme le rapport du volume de la phase dispersée par rapport au volume total :

$$\alpha = \frac{V_d}{V_{tot}} = \frac{V_d}{V_d + V_c} \tag{1.37}$$

On appelle un système « dilué » lorsque l'émulsion a un taux de rétention faible, typiquement inférieur à $\alpha = 1$ %. De manière générale, dans un contacteur liquide-liquide industriel, les taux de rétention varient typiquement entre 20 % et 60 %. Ce dernier est généralement imposé par le fonctionnement du procédé.

1.3.2 Rupture et coalescence

Comme explicité ci-dessus, la taille des gouttes est un paramètre clé dans un procédé d'extraction liquide-liquide, car elle est directement reliée à l'aire interfaciale et donc au transfert de matière. Au sein d'un mélangeur, la variation de taille de la dispersion est étroitement liée à deux phénomènes complexes et antagonistes : la rupture et la coalescence. Dans un procédé industriel, la taille des gouttes en régime stationnaire correspond généralement à un état d'équilibre entre ces deux phénomènes.

1.3.2.1 Rupture

Lorsqu'une goutte est immergée dans un écoulement, deux types de forces opposées s'affrontent : les contraintes destructives et les contraintes cohésives. Les premières tendent à déformer la goutte, tandis que les secondes tendent à la stabiliser, afin de maintenir sa forme sphérique. Une goutte se rompt lorsque les contraintes destructives sont supérieures aux contraintes cohésives. L'intensité de chaque contrainte dépend notamment de l'hydrodynamique de la phase continue, des propriétés physico-chimiques des phases et de la taille de la goutte.

Plusieurs forces destructrices sont recensées dans la littérature (Liao and Lucas, 2009; Liao et al., 2015) : (1) les fluctuations de pression ou de vitesse turbulente qui résultent d'une collision particule-tourbillon, (2) les forces de cisaillement causées par un tourbillon turbulent, (3) les forces de cisaillement visqueuses laminaires , (4) les différences de vitesse à l'interface (rupture par « érosion ») ou *shearing-off* (5) les instabilités capillaires.

Dans la littérature, les contraintes de fluctuation de pression turbulente sont généralement prises en compte, car elles sont prépondérantes en régime pleinement turbulent. Elles sont typiquement induites par la collision avec un tourbillon turbulent. Par ailleurs, elles sont proportionnelles à la fonction de structure d'ordre deux telle que (Andersson and Andersson, 2006b) :

$$\tau \propto \frac{\rho_c \langle [\Delta u(l)]^2 \rangle}{2} \tag{1.38}$$

En régime inertiel, cette fonction de structure s'exprime par l'équation 1.13. Il peut être noté que, d'après la théorie de Hinze (1955) et Kolmogorov (1949), il est supposé que la rupture se produit lorsqu'une goutte entre en collision avec un tourbillon turbulent de même taille. Les grands tourbillons ne contribuent qu'au transport des gouttes, et les petits

n'ont pas assez d'énergie pour provoquer la rupture. Les forces de cisaillement visqueux s'expriment, quant à elles, sous la forme (Liao et al., 2015; Karimi and Andersson, 2019) :

$$\tau \propto \mu_c \dot{\gamma} \tag{1.39}$$

avec $\dot{\gamma}$, le taux de cisaillement induit par un tourbillon ou par un gradient de vitesse laminaire.

À l'inverse, les forces interfaciales et les forces visqueuses internes sont les deux principales forces cohésives. La tension interfaciale minimise l'énergie en réduisant la surface de l'interface ; elle tend donc à maintenir les gouttes sphériques. Les contraintes interfaciales sont de la forme (Taylor, 1934; Andersson and Andersson, 2006b) :

$$\tau \propto \frac{\sigma}{d} \tag{1.40}$$

tandis que les forces de viscosité interne de la goutte s'expriment par :

$$\tau \propto \frac{\mu_d}{d}\sqrt{\frac{\tau_{ext}}{\rho_d}} \tag{1.41}$$

avec τ_{ext} la contrainte externe. Ainsi, on remarque que plus une goutte a un petit diamètre, plus les forces cohésives sont grandes et plus il est difficile de la rompre. Par ailleurs, une forte tension interfaciale ou une forte viscosité de goutte tend à limiter les déformations et la rupture. De plus, le nombre d'Ohnesorge Oh [2] est un nombre sans dimension qui permet de décrire le rapport entre les deux contraintes cohésives :

$$Oh = \frac{\mu_d}{\sqrt{\rho_d d \sigma}} \tag{1.42}$$

Pour un faible nombre d'Ohnesorge, les forces cohésives sont majoritairement les forces interfaciales, tandis qu'elles deviennent négligeables par rapport aux forces visqueuses internes pour un nombre d'Ohnesorge très grand.

1.3.2.2 Coalescence

La coalescence entre deux gouttes n'est pas immédiate et peut se décomposer en plusieurs étapes. Dans un premier temps, il est nécessaire que deux gouttes entrent en contact. Cette étape est régie par une probabilité de collision, qui dépend notamment de l'écoulement et de la turbulence dans le réacteur. Lors de leur mise en contact, un film de phase continue se forme entre les deux gouttes. Ce film se draine progressivement, réduisant son épaisseur jusqu'à ce qu'il devienne assez fin pour se rompre, entraînant la coalescence. Au fur et à mesure que le film s'amincit, les forces de Van der Waals deviennent prédominantes par rapport aux forces hydrodynamiques et à la tension superficielle, provoquant son instabilité puis sa rupture. En définitive, la coalescence entre deux gouttes a lieu si le temps de collision est supérieur au temps de drainage du film, c'est-à-dire si le temps d'interaction entre les gouttes est supérieur au temps nécessaire pour atteindre l'épaisseur critique du film.

2. Certains auteurs appellent ce terme *viscosity group* (Singh et al., 2008b)

Le phénomène de coalescence est favorisé par un taux de rétention élevé ainsi que par un écoulement présentant de forts gradients de vitesse ou une turbulence bien développée. Ces conditions augmentent notamment la probabilité de collision entre les gouttes. En revanche, une viscosité importante de la phase continue augmente le temps de drainage du film, limitant ainsi la coalescence (Poux and Xuereb, 2014). Par ailleurs, une émulsion trop stable (caractérisée par une faible tension interfaciale) souvent due à l'utilisation de tensioactifs, tend à retarder la coalescence. Enfin, pour éviter l'influence de la coalescence, de nombreuses études sont menées dans des systèmes dilués, c'est-à-dire à faible taux de rétention. Ces études ne sont pas représentatives des conditions industrielles, avec des taux de rétention généralement compris entre $\alpha = 20$ % et $\alpha = 60$ %, où la coalescence devient significative et non négligeable.

1.3.3 Modèles semi-empiriques pour la taille des gouttes

Un grand nombre de corrélations ont été développées dans la littérature, afin de caractériser l'aire interfaciale (Singh et al., 2008b; Tang et al., 2020). Ces corrélations sont basées sur l'estimation du diamètre de Sauter d_{32} ou encore du diamètre maximal stable $d_{\max}$. Ce dernier correspond au diamètre à partir duquel les forces destructrices ne sont plus suffisantes pour surpasser les forces cohésives. Selon les travaux pionniers de Kolmogorov (1949) et Hinze (1955), dans le cas d'un système dilué sans coalescence, mettant en jeu des gouttes non visqueuses, on peut calculer le diamètre maximal stable $d_{\max}$. En régime inertiel, en supposant la turbulence homogène et isotrope, Hinze (1955) l'exprime sous la forme :

$$d_{max} = C_1 \left(\frac{\sigma}{\rho_c}\right)^{3/5} \varepsilon^{-2/5} \tag{1.43}$$

avec C_1 une constante. Sachant que $\varepsilon \propto N^3 D^2$, Shinnar and Church (1960) ont exprimé ce diamètre maximal stable en cuve agitée par :

$$\frac{d_{max}}{D} = C_2 We^{-3/5} \tag{1.44}$$

avec C_2 une constante et We le nombre de Weber en cuve agitée. Ce dernier est un nombre adimensionnel caractérisant le rapport entre les forces d'inertie et les forces interfaciales et se calcule en cuve agitée par :

$$We = \frac{\rho N^2 D^3}{\sigma} \tag{1.45}$$

Le diamètre de Sauter d_{32} étant proportionnel au diamètre maximal stable $d_{\max}$ (Zhou and Kresta, 1998), on peut exprimer le diamètre moyen par :

$$\frac{d_{32}}{D} = C_3 We^{-3/5} \tag{1.46}$$

Au cours des années, un grand nombre de recherches ont été réalisées afin de prédire le diamètre d'une goutte dans une cuve agitée. En suivant le même principe, d'autres

corrélations dérivées ont été développées. Par exemple, pour des systèmes non dilués, où le taux de rétention devient non négligeable, on peut exprimer le diamètre de Sauter par :

$$\frac{d_{32}}{D} = C_4(1 + C_5\alpha)We^{-C_6} \tag{1.47}$$

La constante C_4 est reliée au nombre de puissance de l'agitateur et peut varier de 0,04 à 0,08, tandis que la constante C_5 est liée aux propriétés des phases et varie de 2,5 à 5,4 (Poux and Xuereb, 2014). Enfin, la constante C_6 est associée au caractère coalescent du système, mais elle est généralement fixée à $C_6 = -3/2$.

Ainsi, pour une vitesse de rotation constante, augmenter le taux de rétention augmente la taille des gouttes. Le terme $(1 + C_5\alpha)$ correspond à l'influence de l'augmentation du taux de rétention qui, d'une part, augmente le taux de coalescence dû à une augmentation de la densité de gouttes (paragraphe 1.3.2.2) et, d'autre part, amortit la turbulence (Singh et al., 2008b; Tang et al., 2020). Par ailleurs, la valeur C_6 dépend du caractère plus ou moins coalescent du système.

Lorsque la viscosité interne des gouttes devient non négligeable par rapport aux forces interfaciales, le diamètre de Sauter est fonction de We et du rapport adimensionnel V_i (Calabrese et al., 1986a; Singh et al., 2008b) :

$$\frac{d_{32}}{D} = C_7(1 + C_8\alpha)We^{-3/5}\left[1 + C_9(1 - C_{10}\alpha)V_i\left(\frac{d_{32}}{D}\right)^{1/3}\right]^{3/5} \tag{1.48}$$

avec :

$$V_i = \left(\frac{\mu_d N D}{\sigma}\right)\left(\frac{\rho_c}{\rho_d}\right)^{1/2} \tag{1.49}$$

1.3.4 Mesures expérimentales des distributions de tailles de gouttes (DSD)

Depuis plusieurs années, les mesures expérimentales de distribution de tailles de gouttes (*Droplet Size Distribution*, DSD) font l'objet de nombreuses recherches. Différentes techniques ont été développées pour les mesurer. Elles peuvent être regroupées en deux grandes catégories : les mesures *in situ*, directement dans le dispositif, et externes, effectuées à l'extérieur du procédé. Chacune de ces catégories se divise en deux approches principales : d'une part, les méthodes basées sur l'utilisation d'un système laser, et d'autre part, les méthodes reposant sur le traitement d'images. Enfin, les mesures peuvent être réalisées en temps réel (*inline*), ou de façon différée après émulsification (*offline).*

Abidin et al. (2013) a publié une revue complète des différentes techniques utilisées pour mesurer les DSDs. L'une des premières techniques développées est la méthode de prélèvement, qui consiste à prélever une petite quantité de l'émulsion directement dans le mélangeur (El-Hamouz et al., 2009; Singh et al., 2008a, 2009; Srilatha et al., 2010). La taille des gouttes est ensuite mesurée par traitement d'image. Afin d'éviter la coalescence pendant la mesure, un tensioactif est utilisé pour stabiliser l'émulsion. Cependant, il est

difficile de confirmer que l'émulsion n'a pas évolué pendant le prélèvement et la mesure. De plus, la quantité d'émulsion prélevée risque d'avoir une influence sur l'écoulement et donc sur la taille des gouttes encore dans le réacteur. Par ailleurs, les granulomètres (Malvern Mastersizer), qui utilisent la diffraction laser pour mesurer la distribution de taille des particules, sont également très répandus dans la littérature (Desnoyer et al., 2003; Sis et al., 2005; Li et al., 2005; El-Hamouz et al., 2009). Cependant, c'est une technique *offline*, possédant les mêmes inconvénients que les méthodes de prélèvement. Enfin, Maaß et al. (2011) a testé trois méthodes laser *in situ* basées sur les techniques de réflexion laser : FBRM (*Focus Beam Reflectance Measurement*), 2D ORM (*Optical Reflectance Measurement*) et FBR sensor (*Forward-Backward Ratio*). Ces méthodes permettent d'obtenir des résultats très rapides, ce qui les rend adaptées à la mesure en temps réel. Par ailleurs, ces techniques sont fiables pour des taux de rétention élevés. Cependant, la surface lisse des gouttes peut introduire des erreurs de mesure, les rendant moins précises que les techniques de traitement d'images.

Néanmoins, les méthodes de traitement d'images restent les plus répandues et sont considérées comme la technique de référence pour la mesure de DSD (Maaß et al., 2011; Abidin et al., 2013; Emmerich et al., 2019). Cela est dû à la grande précision de ces méthodes. Leur principal inconvénient apparaît à des taux de rétention élevés, lorsque le nombre d'objets augmente et entraîne des chevauchements (superposition d'objets), rendant la détection plus difficile. La qualité de ces méthodes dépend à la fois de la technique d'acquisition des images et de l'algorithme utilisé pour le traitement et la détection des objets.

Pour l'acquisition d'images, les sondes endoscopiques sont les appareils les plus couramment utilisés dans la littérature (Kraume et al., 2004; Maaß et al., 2010, 2011; Amokrane et al., 2016; Tang et al., 2020). Ces dernières sont immergées directement dans le dispositif expérimental, permettant de réaliser des mesures *in situ* et en temps réel. Une autre approche consiste à utiliser une caméra externe, placée à l'extérieur du dispositif (Zhou et al., 2021a). Cependant, à cause du grand nombre de gouttes présentes dans le système même à faible taux de rétention, la caméra externe possède une zone d'observation limitée. En effet, les objets situés entre le plan focal et l'objectif peuvent interférer avec ceux mesurés. Ces objets hors champ apparaissent flous, ce qui dégrade la qualité des images capturées. Pour pallier ce problème, les mesures doivent généralement être effectuées dans une zone en amont du contacteur. À l'inverse, les sondes endoscopiques peuvent être positionnées dans différentes régions, offrant une meilleure flexibilité spatiale des observations. Néanmoins, elles ont l'inconvénient d'être une méthode intrusive, pouvant perturber localement l'écoulement et, par conséquent, modifier la distribution de taille de gouttes observée.

Deuxièmement, diverses techniques de traitements d'images sont proposées dans la littérature, afin de mesurer la taille des gouttes sur des images préalablement acquises. La technique la plus ancienne consiste à compter manuellement les objets. Cependant, cette approche a rapidement été abandonnée au profit de méthodes automatiques, à la fois plus rapides et plus précises. Ces dernières reposent généralement sur des algorithmes mathématiques, fondés sur des hypothèses simples concernant la forme et les caractéristiques

des objets à détecter. Pour la détection des gouttes, l'algorithme le plus couramment utilisé est la transformée de Hough (Hough, 1962; Illingworth and Kittler, 1988; Khalil et al., 2010; Randriamanantena, 2011; Becker et al., 2014b,a), de par la forme circulaire des objets à détecter. Au fil du temps, ces outils mathématiques ont évolué pour traiter des formes plus variées et complexes, avec des hypothèses moins strictes. Néanmoins, le temps de traitement augmente significativement avec le nombre d'objets et la complexité de leur forme. Maaß et al. (2012) ont développé un algorithme spécifique pour la mesure de taille de goutte : les images sont d'abord filtrées afin de supprimer les informations non pertinentes, puis un traitement d'image basé sur la reconnaissance de formes est réalisé. Il s'agit d'un algorithme très répandu aussi bien dans la recherche que dans l'industrie.

Enfin, grâce aux avancées récentes de l'intelligence artificielle et des puissances de calcul, les méthodes d'apprentissage automatique tendent à remplacer progressivement les approches traditionnelles de traitement d'image. Les réseaux de neurones les plus utilisés pour ce type de tâche sont les réseaux de neurones convolutifs (CNN) (Krizhevsky et al., 2017; Ilonen et al., 2018; Burke et al., 2024). Ces méthodes permettent de traiter des images plus complexes, comportant des formes variées. De plus, le temps de traitement est très court, permettant l'analyse des images en temps réel. Bien que ces méthodes soient très puissantes et très efficaces, elles dépendent fortement de la qualité de l'entraînement du réseau. La génération d'un jeu de données disponible pour l'entraînement, à la fois diversifié et de bonne qualité, est complexe et difficile à obtenir. Afin de surmonter cette difficulté, Bana et al. (2024) ont récemment proposé l'algorithme BYG-drop. À l'aide du logiciel de rendu 3D, Blender, et d'un réseau de neurones antagonistes génératifs (CycleGAN), Bana et al. (2024) ont pu obtenir des images de synthèse à la fois réalistes et très variées. Ces dernières ont servi pour l'entraînement supervisé du réseau de neurones YOLO, permettant a posteriori, la détection automatique de gouttes sur des images expérimentales. Les auteurs ont montré que la méthode BYG-drop surpasse les approches traditionnelles (transformée de Hough et algorithme proposé par Maaß et al. (2012)), à la fois en termes de précision et de capacité à détecter un plus grand nombre de gouttes.

1.3.5 Rupture de goutte isolée

Dans les études portant sur les dispersions dans un réacteur, la plupart des travaux se concentrent sur la distribution de taille de gouttes (DSD) (voir paragraphe ci-dessus), car elle impacte directement l'efficacité du transfert de matière. Cependant, ces expériences ne permettent pas de décrire la phénoménologie de la rupture en elle-même. Pour développer des modèles et mieux comprendre les mécanismes mis en jeu, de nombreux auteurs se sont donc appuyés sur des observations expérimentales menées à faible rétention (*droplet swarm*) (Zhou et al., 2017, 2019b, 2021b) ou sur des gouttes isolées (voir ci-dessous). Ces dispositifs permettent d'analyser localement le phénomène de rupture et de déterminer précisément la probabilité, le temps, le type et la localisation de la rupture, ainsi que la taille et le nombre de gouttes filles produites. Ces observations sont généralement réalisées à l'aide d'une ou de plusieurs caméras rapides positionnées à l'extérieur de l'écoulement, avec une fréquence d'image élevée (de l'ordre de 1000 fps). Elles permettent typiquement

de valider et développer des modèles de fermeture, tant de fréquence que de distribution de taille de goutte fille, pour les bilans de population (Maaß et al., 2007; Maaß and Kraume, 2012). Leur difficulté réside dans la bonne connaissance de l'écoulement environnant et des contraintes qu'il produit. Cela permet de comprendre précisément comment la surface de la goutte se déforme.

Ces études expérimentales portant sur les phénomènes de rupture de bulle et de goutte font l'objet de recherches depuis presque 100 ans. Dans un premier temps, les études se sont concentrées sur des écoulements relativement simples et bien caractérisés, tels que les écoulements élongationnels et cisaillés. Plus récemment, grâce à une meilleure compréhension des mécanismes de rupture et au développement d'outils de mesure plus performants (comme les caméras rapides), l'attention s'est portée sur des cas plus complexes, notamment les écoulements turbulents homogènes et isotropes, ainsi que des ruptures au sein de cuves agitées.

1.3.5.1 Rupture à faible Reynolds

La première étude consacrée à la rupture de gouttes a été menée par Taylor (1932). Pour caractériser la rupture, l'auteur a introduit un nouvel appareil nommé le *Four Roll Mill* (Taylor, 1934). Ce dispositif consiste à mettre en rotation quatre cylindres immergés dans une phase continue, et d'y injecter une goutte au centre de ces cylindres. En ajustant la vitesse et le sens de rotation des cylindres, il est possible de contrôler finement l'écoulement de la phase continue au centre du dispositif et ainsi de générer différents types d'écoulements : irrotationnels (purement élongationnels), rotationnels ou mixtes. Depuis son développement, cet appareil a été largement utilisé dans la littérature pour étudier la déformation et la rupture de gouttes dans ce type d'écoulement (Rumscheidt and Mason, 1961; Grace, 1982; Stone et al., 1986).

Pour des ruptures en régimes faiblement turbulents, le nombre capillaire Ca est généralement utilisé. Ce dernier est un nombre sans dimension, défini comme le rapport entre les forces visqueuses, qui tendent à déformer la goutte dans ces régimes, et la tension interfaciale, qui tend au contraire, à maintenir sa sphéricité. Ces dernières sont dues à la différence de pression à travers l'interface, causée par la tension interfaciale (équation de Laplace). Par ailleurs, pour des écoulements laminaires, les forces destructrices sont principalement gouvernées par les forces visqueuses, et les forces inertielles peuvent être négligées. Le nombre Capillaire s'exprime par la relation suivante :

$$Ca = \frac{\mu_c d\dot{\gamma}}{\sigma} \tag{1.50}$$

avec $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement et d le diamètre d'une goutte. A partir de ce nombre adimensionnel, (Taylor, 1934) introduit la notion de nombre capillaire critique $Ca^\star$. La rupture a lieu si ce nombre critique est atteint, c'est-à-dire, lorsque les forces visqueuses deviennent supérieures aux forces interfaciales. Ce seuil critique est notamment fonction de l'écoulement environnant et du rapport de viscosité entre les phases p, défini comme :

$$p = \frac{\mu_d}{\mu_c} \tag{1.51}$$

Au cours des années, les travaux pionniers de Taylor (1934) ont été approfondis en utilisant deux appareils spécifiques, le *Four Roll Mill* et la colonne de Couette [3], qui permettent de générer des écoulements élongationnels et/ou cisaillés. Ils ont permis d'étudier de manière approfondie la déformation et la rupture de gouttes allongées en fonction du rapport de viscosité p. A titre d'exemple, dans un écoulement élongationnel, Rumscheidt and Mason (1961) ont identifié deux modes principaux de rupture : pour $p < 0{,}2$, la goutte s'allonge avant que de petites gouttes ne se détachent aux extrémités (*tip streaming*), et pour $p > 0{,}2$, elle prend la forme d'un « haltère », avec la formation d'un filament, conduisant après rupture, à deux gouttes de même taille et trois gouttes satellites. Dans un écoulement cisaillé, les mêmes types de phénoménologie de rupture sont observés (Figure 1.9a). Il peut être noté que, lorsque le rapport de viscosité est trop élevé, la goutte reste stable peu importe la déformation (Figure 1.9a, mécanisme C). Les travaux de Karam and Bellinger (1968) confirment ces changements de la phénoménologie de rupture en fonction du rapport de viscosité. Ils montrent qu'un même rapport de viscosité peut conduire à plusieurs morphologies et des distributions de tailles de gouttes filles différentes (Figure 1.9b). Même s'il ne s'agit que d'observations qualitatives, les auteurs mettent en évidence la formation d'une ou plusieurs petites gouttes satellites lors de la rupture. Par ailleurs, Karam and Bellinger (1968) note que la circulation interne dans la goutte peut modifier sa morphologie lors de sa déformation : une circulation à l'intérieur d'une goutte exerce une pression sur les parois extérieures, limitant sa déformation en forme d'haltère et favorisant une forme plus ellipsoïdale.

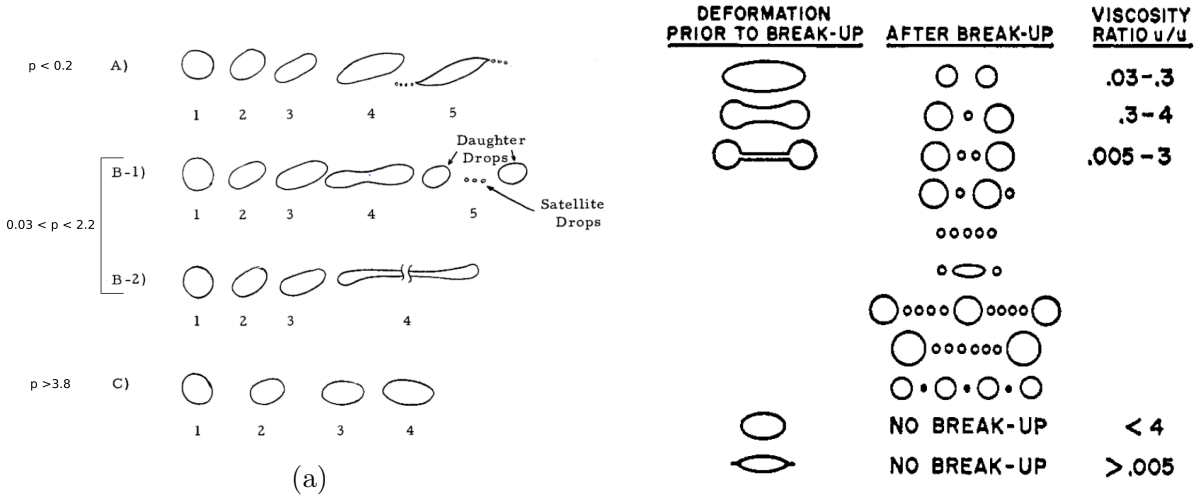


FIGURE 1.9 – Phénoménologie de la rupture en fonction du rapport de viscosité p, d'après les travaux de (a) Rumscheidt and Mason (1961) et (b) Karam and Bellinger (1968).

Les travaux présentés ci-dessus ont été prolongés par Grace (1982), qui propose une

3. Appareils de génie chimique à travers lesquels un cylindre intérieur est mis en rotation dans un cylindre extérieur. Une étude approfondie sur ces appareils a été réalisée par Dherbecourt (2015).

représentation détaillée du nombre Capillaire critique $Ca^\star$ en fonction du rapport de viscosité p pour une goutte soumise à un écoulement élongationnel ou cisaillé. Cette analyse a conduit à la « courbe de Grace » (Figure 1.10a), qui sert de référence pour de nombreuses publications. Cette dernière montre que la rupture à lieu pour un cisaillement moins intense lorsque le rapport de viscosité se situe entre 0,2 et 1. Grace (1982) met également en évidence que la rupture est plus facile en écoulement élongationnel qu'en écoulement cisaillé. Par ailleurs, contrairement aux écoulements cisaillés, où, lorsque le rapport de viscosité est trop élevé, la rupture est impossible, la rupture est possible quel que soit le rapport de viscosité pour des écoulements élongationnels.

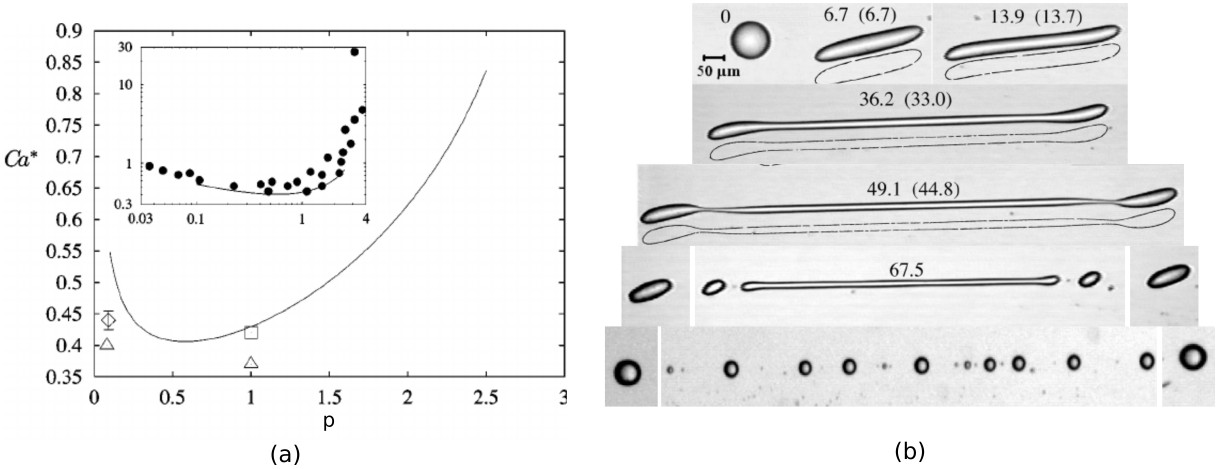


FIGURE 1.10 – Figures issues des travaux de Cristini et al. (2003) : (a) courbe de Grace (1982), représentant le nombre de capillaire critique $Ca^\star$ en fonction du rapport de viscosité p dans un écoulement cisaillé et (b) séquence d'images d'une rupture de goutte soumise à un écoulement cisaillé.

Au fil des années, de nombreux travaux ont étudié la rupture de gouttes dans ce type d'écoulement, s'appuyant à la fois sur des observations expérimentales (Stone et al., 1986; Tjahjadi and Ottino, 1991; Tjahjadi et al., 1992; Cristini et al., 2003) et sur des simulations numériques de type CFD (Xi and Duncan, 1999; Khismatullin et al., 2003). L'ensemble de ces études illustre typiquement des gouttes qui prennent une forme d'haltère au cours de leurs déformations, avec deux lobes de grande taille reliés par un fin filament. La rupture de ce filament conduit à la formation d'un nombre conséquent de petites gouttes satellites. Un exemple typique est présenté sur la Figure 1.10.

Plus récemment, l'ensemble des mécanismes susceptibles d'induire la rupture ont été décrit par Liao and Lucas (2009) et Liao et al. (2015). En plus des mécanismes dus à la turbulence, les auteurs exposent deux autres mécanismes : les ruptures causées par des cisaillements visqueux générés par des gradients de vitesse de l'écoulement global (Figure 1.11a) et la rupture due à un différentiel de vitesse à l'interface, qui provoque une rupture par « érosion » (*shearing off*) (Figure 1.11b). Cette dernière est similaire a celle décrite pour des faibles rapports de viscosité (Rumscheidt and Mason, 1961; Grace, 1982), avec

des gouttes qui prennent une forme de « S » pendant leur déformation et qui forment des petites gouttes à ses extrémités (Figure 1.9a, mécanismes A).

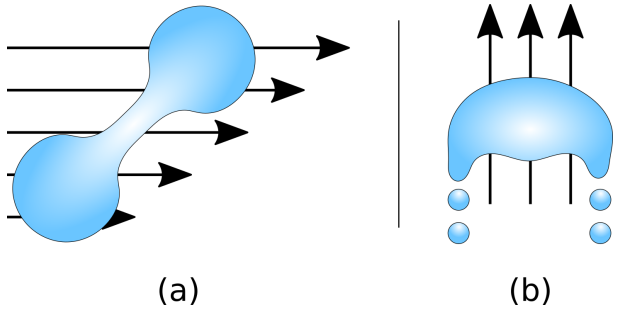


FIGURE 1.11 – Schéma de la rupture d'une goutte soumise à un écoulement faiblement turbulent (adapté de Liao et al. (2015)) : (a) rupture induite par un cisaillement visqueux et (b) rupture par *shearing off*.

1.3.5.2 Rupture en régime pleinement turbulent

Les premières études portant sur la rupture en régime turbulent remontent aux travaux de Kolmogorov (1949) et Hinze (1955). Dans la continuité des recherches de Taylor (1934), un nombre sans dimension critique à partir duquel la rupture devient possible est introduit : le nombre de Weber $We^\star$. En effet, dans ces régimes, les forces inertielles sont prédominantes, et le nombre de Weber exprime le rapport entre ces forces destructrices et les forces interfaciales par :

$$We^\star = \frac{\rho_c d_{max} \langle [\Delta u(l)]^2 \rangle}{\sigma} \tag{1.52}$$

Des modèles semi-empiriques sur le diamètre maximal stable $d_{\max}$ et le diamètre de Sauter d_{32} ont été développés pour diverses conditions opératoires à partir de cette relation (voir paragraphe 1.3.3). Il peut être noté que, dans leurs travaux, il est supposé que seuls les tourbillons plus petits ou de l'ordre de grandeur de la taille des gouttes sont susceptibles de causer la rupture. Les grands tourbillons participent, quant à eux, uniquement à leur transport.

Contrairement au régime laminaire, la rupture en régime turbulent est plus complexe en raison de son caractère aléatoire et instationnaire. La rupture dépend de la taille, de l'intensité et de la durée de vie des tourbillons environnants (Risso and Fabre, 1998; Andersson and Andersson, 2006a). De plus, une même goutte peut être soumise successivement à plusieurs tourbillons, rendant le processus encore plus complexe. La caractérisation précise de ces structures tourbillonnaires est un défi majeur, autant d'un point de vue numérique qu'expérimental. En effet, ces dernières se manifestent sur des échelles spatiales et temporelles très petites, les rendant difficiles à capturer. Face aux difficultés à théoriser ces phénomènes dans ces régimes (Andersson and Andersson, 2006b), de nombreux auteurs ont donc cherché à observer expérimentalement la phénoménologie de la rupture de gouttes ou de bulles, afin de construire des modèles empiriques.

En régime pleinement turbulent, la rupture est généralement provoquée par des fluctuations de vitesse et de pression turbulente à la surface de la goutte, ou par une collision entre une goutte et un tourbillon (Hinze, 1955; Zhou and Kresta, 1998; Liao and Lucas, 2009; Hasan, 2017). Lorsqu'un tourbillon possède suffisamment d'énergie cinétique pour surmonter les forces cohésives pendant une période de temps suffisamment longue, celle-ci peut successivement se déformer et se rompre. D'après Andersson and Andersson (2006a), dans le domaine inertiel, l'interaction entre une goutte et un tourbillon turbulent peut prendre quatre formes (voir Figure 1.12). Ces interactions dépendent de la position de la goutte dans le champ turbulent, du rapport entre sa taille et celle des tourbillons environnants, ainsi que de la durée de vie des tourbillons. Le gradient de vitesse local agissant sur une goutte peut être généré par :

- des tourbillons plus petits que le diamètre de la goutte (Figures 1.12a–b). Des paires de tourbillons avec des sens de rotation inverse sont fréquemment présentes dans les écoulements turbulents. Une goutte peut donc se retrouver piégée entre ces deux structures tourbillonnaires de petite taille et finir par rompre (Figures 1.12b). Ces configurations engendrent des contraintes localisées sur une petite portion de la surface, provoquant un pincement et, *in fine*, la rupture. Dans ce cas, la rupture est induite par une contrainte concentrée et localisée plutôt que d'un allongement global de la goutte.

- Des tourbillons plus grands que le diamètre de la goutte (Figures 1.12c–d). Une goutte peut se trouver à l'intérieur ou à l'extérieur d'un tourbillon de grande taille. Lorsqu'elle est située à l'intérieur, son comportement dépend du rapport de densité entre les phases. En fonctionnement FAC (phase aqueuse continue), une goutte moins dense est aspirée vers la région de basse pression au centre du tourbillon, tandis qu'en configuration FOC (phase organique continue), une goutte plus dense est expulsée vers l'extérieur par effet centrifuge. Dans ces situations, le gradient de vitesse entre le tourbillon et l'écoulement environnant entraîne une déformation globale de la goutte, qui s'étire puis se rompt. Contrairement au cas précédent, les contraintes exercées ne sont pas localisées à la surface de la goutte, mais affectent celle-ci dans son ensemble.

La rupture d'une goutte immergée dans un écoulement pleinement turbulent étant complexe, la plupart des études expérimentales se sont d'abord concentrées sur des écoulements contrôlés et bien caractérisés préalablement (Eastwood et al., 2004). Cela permet d'avoir une bonne connaissance de l'écoulement environnant, afin de mieux appréhender les contraintes subies par une goutte à sa surface, et *in fine* les phénomènes physiques mis en jeu lors de la rupture.

Les premières observations expérimentales de rupture ont été menées dans des tuyaux cylindriques en régime turbulent (Sleicher Jr, 1962; Collins and Knudsen, 1970; Walter and Blanch, 1986; Hesketh et al., 1991; Galinat et al., 2005). Par la suite, les études se sont orientées vers des écoulements plus complexes, au sein de dispositifs produisant une turbulence homogène et isotrope. Certains auteurs ont étudié la rupture en injectant des

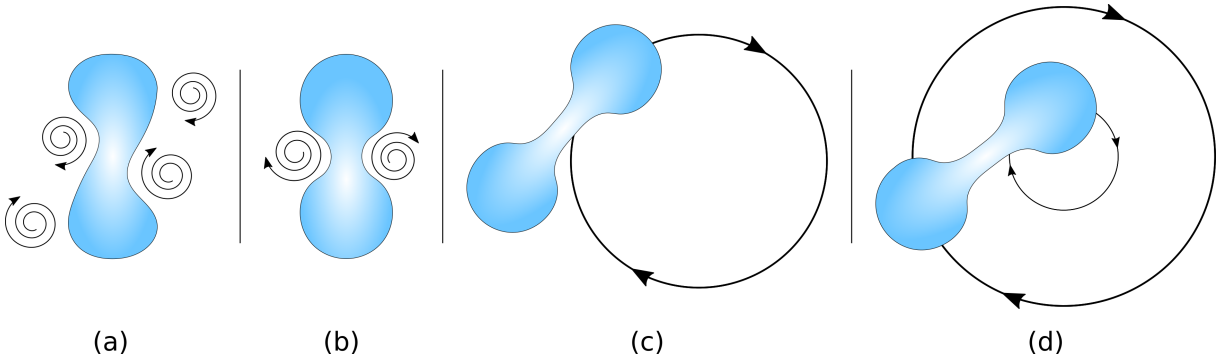


FIGURE 1.12 – Interaction entre une goutte et (a–b) un tourbillon plus petit que la goutte, et (c–d) un tourbillon plus grand que la goutte (adapté de Andersson and Andersson (2006a)).

gouttes ou des bulles dans des jets d'eau turbulents (Risso and Fabre, 1998; Martínez-Bazán et al., 1999a,b; Eastwood et al., 2004), tandis que d'autres ont étudié la rupture au contact d'anneaux tourbillonnaires (Zednikova et al., 2019), dans des réacteurs agités horizontaux (Kuriyama et al., 1995), ou encore au sein de dispositifs spécifiquement conçus pour générer une turbulence contrôlée (Andersson and Andersson, 2006b). Maaß et al. (2007) expliquent qu'étudier la rupture dans une cuve agitée est trop complexe. Ils reproduisent, quant à eux, le taux de dissipation local observé à l'extrémité des pales d'une turbine au sein d'un canal.

Dans la littérature, plusieurs revues bibliographiques présentent de manière chronologique les travaux portant sur la rupture de gouttes/bulles uniques en régime turbulent (Andersson and Andersson, 2006b; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Solsvik et al., 2016; Krakau and Kraume, 2019b). Les temps de rupture et le nombre de gouttes filles générées pour différentes tailles de gouttes mères y sont typiquement résumés. Il est généralement démontré que le temps de rupture et le nombre de gouttes filles générées augmentent avec l'énergie injectée et l'intensité de la turbulence (typiquement le taux de dissipation moyen $\langle\varepsilon\rangle_V$ ou le nombre de Weber We), la taille de la goutte mère et la viscosité interne de la goutte. A l'inverse, ces paramètres tendent à diminuer la taille des gouttes produites. L'ensemble de ces travaux met en évidence que les gouttes subissent un fort étirement avant la rupture, avec généralement une déformation en forme d'haltère. Cet étirement est d'autant plus marqué que la viscosité interne des gouttes est importante (Collins and Knudsen, 1970; Eastwood et al., 2004; Andersson and Andersson, 2006b). En revanche, tous les auteurs ne mesure pas quantitativement la taille des gouttes filles générées, et les conclusions concernant la distribution de taille des gouttes filles divergent : certains auteurs observent une rupture binaire symétrique, produisant deux gouttes de taille approximativement identique (Sleicher Jr, 1962; Walter and Blanch, 1986), tandis que d'autres décrivent des ruptures binaires non symétriques, caractérisées par une distribution en forme de U ou de M (une goutte de grand volume et une seconde de plus petit volume) (Hesketh et al., 1991; Zednikova et al., 2019). D'autres observent des ruptures multiples, pouvant aller jusqu'à 30 gouttes filles (Kuriyama et al., 1995), et certains observent la formation d'une ou d'un très grand nombre de petites gouttes satellites (Collins

and Knudsen, 1970; Zednikova et al., 2019).

Plus spécifiquement, Andersson and Andersson (2006b) ont montré que les mécanismes de rupture diffèrent sensiblement entre les bulles et les gouttes, avec des différences significatives sur les distributions de taille et dans le nombre de gouttes filles produites. Cela peut expliquer en partie les divergences des observations entre les auteurs. Contrairement aux bulles, la rupture binaire des gouttes est minoritaire, et un événement génère le plus souvent un grand nombre de gouttes filles. D'après leur observation, sous l'effet des contraintes hydrodynamiques et des tourbillons environnants, les gouttes s'étirent progressivement pour former un filament qui se rompt ensuite, générant typiquement plusieurs petites gouttes satellites encadrées par deux gouttes plus volumineuses à ses extrémités. Ainsi, l'extrapolation des observations sur les bulles pour les gouttes n'est pas pertinente.

De plus, il n'existe pas de définition universelle de l'événement de rupture dans la littérature (Solsvik et al., 2016). Certains auteurs considèrent la rupture d'une goutte mère comme un processus global, constitué d'une succession de ruptures intermédiaires dépendantes les unes des autres (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b). Dans ce cas, le temps de rupture débute à partir de la déformation de la goutte mère et se termine à la dernière rupture en cascade. La distribution des gouttes filles correspond donc à la population finale obtenue après l'ensemble des ruptures successives. À l'inverse, d'autres auteurs définissent la rupture comme un événement élémentaire et indépendant, ne tenant pas compte des ruptures antérieures (Maaß and Kraume, 2012; Zhou et al., 2021b; Zhang et al., 2023). Le temps de rupture est alors mesuré entre le début de la déformation et la première rupture, et la distribution des gouttes filles correspond à celle issue de chaque rupture individuelle.

Ainsi, une comparaison directe entre toutes ces études est complexe, et les conclusions peuvent différer d'un auteur à l'autre. Comme exposé ci-dessus, ces écarts peuvent s'expliquer par la diversité des dispositifs expérimentaux employés, qui de plus peuvent opérer dans des régimes d'écoulement et des conditions opératoires variées. De plus, certains travaux portent sur la rupture de bulles, d'autres sur celle de gouttes, où les mécanismes de rupture sont différents (Andersson and Andersson, 2006b). Les études sont par ailleurs réalisées avec des propriétés physico-chimiques des fluides et des tailles de gouttes mères pouvant être très différentes. Enfin, l'absence d'une définition universelle de la rupture contribue également à expliquer les divergences observées dans la littérature (Solsvik et al., 2016).

1.3.5.3 Rupture en cuves agitées

En cuves agitées, comme le souligne la revue bibliographique de Krakau and Kraume (2019b), les études expérimentales portant sur la rupture de gouttes uniques sont très rares, comparées aux travaux de mesure de distributions de tailles. Cela est notamment dû à la complexité des écoulements observés en cuve agitée (Maaß et al., 2007), fortement inhomogènes et anisotropes, comportant des zones de cisaillement et de taux de dissipation

importants et localisées, notamment à proximité des pales de la turbine (Eastwood et al., 2004).

L'une des premières observations de rupture de goutte en cuve agitée a été réalisée par Konno et al. (1983), qui a décrit la dynamique de la rupture en combinant deux points de vue de caméra. Plus récemment, plusieurs études expérimentales sur la rupture de gouttes uniques en cuve agitée ont été menées (Solsvik and Jakobsen, 2015a,b; Hamed et al., 2024). Tous ces travaux étudient notamment l'influence de la géométrie de la cuve, de la tension interfaciale, de la viscosité interne des gouttes et de la taille de la goutte mère sur la probabilité, le temps et la localisation de la rupture, le degré de déformation, ainsi que le nombre de gouttes filles produites. Toutefois, peu d'entre elles estiment la taille des gouttes filles résultantes. Par ailleurs, ces mesures sont réalisées en deux dimensions, à partir d'une vue de profil, avec un post-traitement manuel qui permet d'analyser un nombre limité d'événements. Sanjuan-Galindo et al. (2015) ont conduit une analyse quantitative de la rupture de gouttes très visqueuses ($p = 560$) dans une cuve agitée turbulente. En combinant des mesures PIV monophasique à des observations optiques de la rupture, ils ont identifié plusieurs mécanismes de rupture.

Enfin, récemment, de nouveaux travaux ont apporté des avancées majeures permettant une observation de la rupture en cuve agitée (Krakau and Kraume, 2019a,b). Leur dispositif contient deux caméras rapides synchronisées, couplées à un post-traitement automatique. Cela leur permet une visualisation tridimensionnelle des événements de rupture et de corréler ces événements à la position des pales. De plus, le post-traitement automatique permet d'obtenir un échantillon statistiquement suffisant, bien supérieur à celui du post-traitement manuel. Enfin, un dispositif permet d'améliorer grandement la reproductibilité des expériences grâce à un contrôle précis du diamètre initial des gouttes mères, indépendamment des conditions opératoires.

1.3.6 Modélisation CFD d'un système diphasique

Afin de modéliser un système diphasique, plusieurs approches sont disponibles. Une énumération non exhaustive de différents modèles polyphasiques est présentée dans les paragraphes suivantes (ANSYS, 2017). Le choix de la méthode dépend du niveau de précision souhaité dans la représentation des phénomènes physiques, des échelles de temps et d'espace considérées, ainsi que des ressources de calcul disponibles.

1.3.6.1 L'approche Euler-Lagrange

Dans ces modèles, la phase continue est résolue par une approche eulérienne à partir des équations de Navier-Stokes, tandis que la phase dispersée est suivie de manière discrète. Les particules de la phase dispersée sont traquées individuellement : pour chacune d'elles, les équations de Newton sont résolues afin de déterminer leur trajectoire et leur vitesse (ANSYS, 2017). Il existe plusieurs niveaux de couplage, permettant de distinguer la manière dont les deux phases interagissent. La trajectoire des particules peut être calculée à partir d'un écoulement de phase continue fixe (« *one-way coupling* »). Des modèles

plus avancés prennent en compte l'interaction entre le fluide et les particules, où chacun influence le mouvement de l'autre (« *two-way coupling* »). Lorsque, en plus de cette interaction, les collisions entre particules sont également considérées, on parle de « *four-way coupling* ». Les méthodes de type Euler-Lagrange offrent une grande précision pour décrire les phénomènes à l'échelle des particules, tels que les collisions entre particules et les interactions fluide-particule. En revanche, elles sont coûteuses en ressources de calcul, en particulier lorsque le nombre de particules devient très élevé.

1.3.6.2 L'approche Euler-Euler

L'approche Euler-Euler considère que les phases sont « interpénétrantes » au sens mathématique. Cette approche introduit la notion de fraction volumique α, qui représente, dans chaque cellule du maillage, la proportion du volume occupé par une phase par rapport au volume total de la maille. Par définition, la somme des fractions volumiques de toutes les phases dans une cellule est égale à un. Dans ce modèle, chaque phase est traitée séparément : on résout pour chacune d'elles les équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement. Les termes de ces équations sont pondérés par la fraction volumique correspondante. Les interactions entre les phases sont modélisées à travers la pression et un terme d'échange interfacial. Ce dernier représente le transfert de la quantité de mouvement entre les phases.

Dans la littérature, l'approche Euler-Euler est la plus couramment utilisée pour modéliser un écoulement polyphasique au sein d'un contacteur liquide-liquide (Wang and Mao, 2005; Zhang et al., 2005; Ničeno et al., 2008; Laurenzi et al., 2009; Onink et al., 2010; Abu-Farah et al., 2010; Tabib et al., 2010; Tabib and Schwarz, 2011; Tabib et al., 2012; Zou et al., 2016). Ces derniers permettent notamment de décrire la répartition spatiale des gouttes dans un reacteur et de quantifier l'effet de l'émulsion sur l'écoulement et sur la turbulence de la phase continue.

Si ces approches sont si populaires, c'est qu'elles constituent un bon compromis entre le coût numérique et la précision du calcul. En effet, ces modèles sont moins coûteux en temps de calcul que les approches de suivi/capture d'interface (voir paragraphe suivant), car ils ne décrivent pas explicitement la forme de l'interface. La difficulté des modèles de type Euler-Euler réside en deux points principaux : (i) la modélisation de l'interaction entre les phases à travers le terme $I_{q\to k,i}$ et le choix de ces modèles de fermeture, et (ii) l'impact des gouttes sur l'écoulement de la phase continue ainsi que la modélisation de la turbulence de la phase dispersée.

Premièrement, dans le terme des forces interfaciales $I_{q\to k,i}$, on distingue les quatre forces suivantes :

- la force de traînée $F_{\text{drag},c}$, qui représente la résistance exercée par le fluide sur une goutte en mouvement.

- la force de portance $F_{\text{lift},c}$, une force perpendiculaire à la direction du mouvement. Elle est générée lorsqu'une goutte se déplace dans un fluide en présence de cisaillement.

- la masse virtuelle $F_{\mathrm{VM},c}$, qui résulte de l'accélération d'une phase par rapport à l'autre, nécessitant également l'accélération d'une partie du fluide environnant.

- la dispersion de la turbulence $F_{\mathrm{TD},c}$, qui traduit la diffusion de la phase dispersée causé par les tourbillons de la phase continue.

Pour la modélisation d'un contacteur gaz-liquide, ou liquide-liquide, de nombreux auteurs s'accordent à dire que les forces de portance, de masse virtuelle et de dispersion turbulente sont négligeables par rapport à la force de traînée (Pfleger and Becker, 2001; Drumm and Bart, 2006; Laurenzi et al., 2009; Onink et al., 2010; Tabib et al., 2010, 2012; Cheng et al., 2011; Zou et al., 2016). À titre d'exemple, Wang and Mao (2005) a comparé la contribution des forces de traînée, de portance et de masse ajoutée sur l'écoulement moyen. Il a notamment observé que l'influence des forces de portance et de masse ajoutée est nettement moins significative que celle de la traînée, ce qui signifie que cette dernière est la force prépondérante. Pour le terme de dispersion turbulente, son influence dépend notamment du rapport entre la taille de la phase dispersée et la taille des mailles (Ničeno et al., 2008; Tabib and Schwarz, 2011).

Pour modéliser la force de traînée, de nombreux modèles de fermeture existent pour le coefficient de traînée C_D. Dans la littérature, deux corrélations sont fréquemment utilisées : le modèle de Schiller and Naumann (1935) (Drumm and Bart, 2006; Onink et al., 2010; Cheng et al., 2011; Zou et al., 2016; Guan et al., 2020; Shayunusov et al., 2024), et le modèle de Ishii and Zuber (1979) (Deen et al., 2001; Wang and Mao, 2005; Ničeno et al., 2008; Zhang et al., 2005; Abu-Farah et al., 2010; Tabib et al., 2010; Cheng et al., 2011; Tabib et al., 2012; Liao et al., 2015). Ces deux modèles font intervenir le nombre de Reynolds particulaire, déterminé comme :

$$Re_p = \frac{\rho_c |u_c - u_d| d}{\mu_c} \tag{1.53}$$

Le modèle de Schiller and Naumann (1935) suppose que la phase dispersée est une phase rigide et sphérique (n'autorisant aucune déformation). Il est très simple à implémenter et s'exprime par :

$$C_D = \begin{cases} \dfrac{24}{Re_p}\left(1 + 0,15 Re_p^{0,687}\right) & Re_p \leq 1000 \\ 0,44 & Re_p > 1000 \end{cases} \tag{1.54}$$

Le second modèle du coefficient de traînée, proposé par Ishii and Zuber (1979), prend en compte la déformation des gouttes. Pour ce modèle, deux régimes sont considérés : le régime visqueux (coefficient $C_{D,1}$) et le régime de déformation (coefficient $C_{D,2}$) (ANSYS, 2017) :

$$\begin{cases} C_D = \min\left(C_{D,1}, C_{D,2}\right) \\ C_{D,1} = \dfrac{24}{Re_p}\left(1 + 0.1 Re_p^{0.75}\right) \\ C_{D,2} = \dfrac{2}{3}\mathrm{E\ddot{o}}^{1/2} = \dfrac{2}{3} d \sqrt{\dfrac{(\rho_c - \rho_d) g}{\sigma}} \end{cases} \tag{1.55}$$

avec Eö le nombre d'Eötvös. Ce dernier est un nombre adimensionnel, utilisé pour caractériser la forme des bulles ou des gouttes en mouvement dans un liquide, à travers un diagramme proposé par Clift et al. (2005). Le nombre d'Eötvös représente le rapport entre la poussée d'Archimède et la tension interfaciale :

$$\text{Eö} = \frac{gd^2|\rho_c - \rho_d|}{\sigma} \tag{1.56}$$

La seconde difficulté de l'approche Euler-Euler réside dans l'interaction de la phase dispersée avec la turbulence de la phase continue et de la description de la turbulence de cette même phase dispersée. Pour les écoulements gaz-liquide, plusieurs modèles ont été développés pour représenter l'influence des bulles sur la turbulence de la phase continue. L'objectif est de modéliser la turbulence générée par le sillage des bulles traversant la phase continue. La turbulence induite par les bulles peut être modélisée par deux approches possibles. La première approche consiste à incorporer un terme de viscosité additionnelle (μ_{BIT}) dans l'équation de la quantité de mouvement (Sato and Sekoguchi, 1975; Deen et al., 2001; Ničeno et al., 2008; Zhang et al., 2005), tandis que la seconde consiste à ajouter un terme source dans les équations de la turbulence de la phase continue (Pfleger and Becker, 2001; Zhang et al., 2005; Ničeno et al., 2008; Tabib and Schwarz, 2011). Des études sur la comparaison entre les deux approches ont été réalisées et suggèrent que la seconde approche est la plus efficace, en résolvant l'écoulement plus en détail (Zhang et al., 2005; Ničeno et al., 2008). Cependant, cette notion de turbulence induite par les bulles ne semble que très rarement appliquée aux écoulements liquide-liquide (Cheng et al., 2011). Par ailleurs, dans certains cas, elle ne semble pas jouer un rôle prédominant sur la turbulence (Ničeno et al., 2008; Tabib and Schwarz, 2011).

Enfin, dans les modèles de type Euler-Euler, la phase dispersée est généralement modélisée comme laminaire (Pfleger and Becker, 2001; Zhang et al., 2005; Drumm and Bart, 2006; Ničeno et al., 2008). Une autre approche repose sur l'utilisation de modèles de turbulence de mélange, basée sur les modèles de turbulences monophasiques avec les propriétés physico-chimiques des phases pondérées par la fraction volumique (Onink et al., 2010; Guan et al., 2020). Une troisième approche consiste à modéliser la turbulence de la phase dispersée à partir de celle de la phase continue (Deen et al., 2001; Tabib et al., 2010; Tabib and Schwarz, 2011; Tabib et al., 2012).

1.3.6.3 Les modèles de capture d'interfaces

Les méthodes VOF (*Volume of Fluid*) et level-set sont deux approches couramment utilisées en CFD pour capturer l'interface entre deux fluides immiscibles. Elles permettent de décrire le mouvement de deux ou plusieurs phases lorsque la position et la forme de l'interface doivent être déterminées avec précision. La encore, dans les méthodes VOF, la notion de fraction volumique α est utilisée. Celle-ci représente, dans chaque cellule du maillage, la proportion du volume occupé par une phase par rapport au volume total de la maille. Typiquement, dans un système liquide-liquide, $\alpha = 1$ signifie que la cellule contient exclusivement la phase continue, $\alpha = 0$ qu'elle contient uniquement une goutte,

et $0 < \alpha < 1$ indique l'interface. Par définition, la somme des fractions volumiques de toutes les phases dans une cellule est égale à un.

Dans la méthode VOF, les équations de conservation sont résolues pour une seule phase : toutes les phases partagent le même champ de vitesses et de pression. Les équations s'écrivent, pour un écoulement incompressible, de la forme :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \\ \rho\left(\dfrac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \dfrac{\partial u_i}{\partial x_j}\right) = -\dfrac{\partial p}{\partial x_i} + \rho g_i + \dfrac{\partial}{\partial x_j}\left[\mu\left(\dfrac{\partial u_i}{\partial x_j} + \dfrac{\partial u_j}{\partial x_i}\right)\right] + F_{s,i} \end{cases} \tag{1.57}$$

Dans l'équation 1.57, la présence des différentes phases est prise en compte à travers leurs propriétés physiques. Ces dernières sont interpolées localement grâce à la fraction volumique. Ainsi, la masse volumique et la viscosité sont définies par :

$$\begin{cases} \rho = \alpha\rho_c + (1-\alpha)\rho_d \\ \mu = \alpha\mu_c + (1-\alpha)\mu_d \end{cases} \tag{1.58}$$

L'interface est, quant à elle, suivie par une équation de transport de la fraction volumique, qui s'écrit :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} + \frac{\partial\left(\alpha u_i\right)}{\partial x_i} = 0 \tag{1.59}$$

Pour fermer le système d'équations, il est nécessaire d'exprimer la force de tension interfaciale $F_{s,i}$. Plusieurs techniques existent dans la littérature, mais la plus couramment utilisée en VOF est la méthode CSF (*Continuum Surface Force*) (Karimi and Andersson, 2020; Vashisth and Andersson, 2025). Dans cette approche, la force de tension de surface est modélisée à partir de la tension interfaciale et de la courbure locale de l'interface.

Les méthodes de capture d'interface sont particulièrement adaptées pour modéliser des écoulements stratifiés, des écoulements à surface libre ou encore le mouvement de grosses bulles et de gouttes (ANSYS, 2017). Elles sont toutefois rarement utilisées pour modéliser des écoulements liquide–liquide à l'échelle d'un procédé. Bien qu'elles offrent une grande précision, avec un accès aux petites échelles et une modélisation explicite et précise de l'interface et de ses déformations, leur coût numérique est élevé à l'échelle industrielle. En effet, pour obtenir une représentation précise de l'interface, elles nécessitent un maillage très fin à l'interface.

Grâce à l'augmentation significative des ressources numériques ces dernières années, les méthodes de capture d'interface sont de plus en plus populaires pour étudier les déformations, la rupture et la coalescence de gouttes dans des écoulements laminaires ou turbulents. Ces travaux sont majoritairement limités à l'échelle d'une goutte, typiquement dans des boîtes périodiques en conditions idéalisées, où la turbulence est homogène

et isotrope (HIT) (Komrakova et al., 2015; Shao et al., 2018; Riviere et al., 2021; Håkansson and Brandt, 2022; Olad et al., 2023). Récemment, des travaux ont commencé à être réalisés à l'échelle d'un procédé (Shayunusov et al., 2024; Olad and Håkansson, 2025).

Par ailleurs, les méthodes VOF sont connues pour bien conserver le volume, mais elles possèdent un coût numérique important lié à la reconstruction de l'interface (Karimi and Andersson, 2020). A l'inverse, les méthodes level-set permettent une description plus précise des interfaces, mais elles sont limitées par leur perte de masse. Ainsi, des approches hybrides, combinant les deux méthodes (CLSVOF), sont de plus en plus utilisées pour décrire la rupture de gouttes (Shayunusov et al., 2024). Ces approches sont souvent associées à des méthodes de raffinement de maillage adaptatif (AMR), permettant un maillage fin uniquement prés des interfaces, afin de réduire significativement le coût des simulations (Vashisth and Andersson, 2025).

1.3.7 Bilans de population (PBE)

Les bilans de population sont largement utilisés dans de nombreux domaines scientifiques, et en particulier pour la modélisation des systèmes multiphasiques, qu'ils soient liquide-liquide, gaz-liquide ou solide-liquide (Ramkrishna, 2000). Ils permettent de décrire l'évolution spatiale et temporelle des tailles d'une population de particules. Dans le cas des systèmes liquide-liquide, cette évolution est exclusivement gouvernée par deux phénomènes : la rupture et la coalescence.

La *Population Balance Equation* (PBE) est une équation intégro-différentielle qui décrit l'évolution d'une fonction de densité de nombre (*Number Density Function*, NDF) n. Cette fonction dépend du temps t, d'une coordonnée spatiale x_i et d'une coordonnée interne φ, laquelle caractérise une propriété des gouttes pertinente pour le suivi de la population (par exemple le volume v ou le diamètre d). En l'absence de croissance ou de nucléation, l'évolution de la NDF est gouvernée par la PBE, qui s'écrit sous la forme (avec $\varphi = v$) :

$$\frac{\partial n(v, x_i, t)}{\partial t} + u_j \frac{\partial n(v, x_i, t)}{\partial x_j} = S(v, x_i, t) \tag{1.60}$$

avec u_j la vitesse de la phase dispersée dans la direction j. Par ailleurs, la PBE est une équation de transport qui se distingue par la présence d'un terme source $S(v, x_i, t)$. Ce dernier quantifie la création et la disparition des gouttes du fait des événements de rupture et de coalescence. Ce terme se décompose de la manière suivante (Charton et al., 2022) :

$$S(v, x_i, t) = B_b(v, x_i, t) - D_b(v, x_i, t) + B_c(v, x_i, t) - D_c(v, x_i, t) \tag{1.61}$$

avec B_b et D_b, respectivement les termes source de naissance et de disparition des gouttes par rupture. B_c et D_c sont, quant à eux, les termes source de naissance et de disparition des gouttes par coalescence.

$$B_b(v, x_i, t) = \int_v^\infty \Gamma(v', x_i)\beta(v|v')n(v', x_i, t)dv' \tag{1.62}$$

$$D_b(v, x_i, t) = \Gamma(v, x_i, t) n(v, x_i, t) \tag{1.63}$$

$$B_c(v, x_i, t) = \frac{1}{2} \int_0^v Q(v - v', v', x_i) n(v - v', x_i, t) n(v', x_i, t) dv' \tag{1.64}$$

$$D_c(v, x_i, t) = n(v, x_i, t) \int_0^\infty Q(v, v', x_i) n(v', x_i, t) dv' \tag{1.65}$$

avec Γ et Q, respectivement les noyaux de rupture et de coalescence. Ils représentent la fréquence d'occurrence de ces événements. La distribution de gouttes filles $\beta(v|v')$ est, quant à elle, la distribution statistique des tailles des gouttes résultantes de la rupture d'une goutte mère. En d'autres termes, elle représente comment se répartissent les volumes des gouttes filles par rapport à celui de la goutte mère.

La principale difficulté des modèles de bilan de population réside dans le choix des modèles de fermeture, c'est-à-dire des noyaux de rupture et de coalescence ainsi que de la distribution des tailles des gouttes filles. En effet, il n'existe actuellement aucun modèle universel, que ce soit pour les noyaux ou pour β. Par ailleurs, les noyaux sont des fonctions complexes, dépendant à la fois de l'écoulement environnant, des propriétés physico-chimiques des phases et du taux de rétention.

1.3.7.1 Noyaux de rupture

Les modèles de rupture ont fait l'objet de nombreux travaux depuis plusieurs années. Plusieurs revues bibliographiques ont dressé une liste non exhaustive des modèles disponibles dans la littérature (Lasheras et al., 2002; Liao and Lucas, 2009; Singh et al., 2009). On note toutefois que la plupart d'entre eux ont été développés pour des écoulements pleinement turbulents et dans le régime inertiel de la turbulence.

Les modèles proposés dépendent généralement de l'hydrodynamique de la phase continue, des propriétés physico-chimiques des phases et de la taille des gouttes. Leur principe repose sur l'idée que les contraintes hydromécaniques exercées par l'écoulement de la phase continue sur la surface des gouttes entraînent leur déformation, puis leur rupture. Par conséquent, le régime d'écoulement joue un rôle essentiel, car il conditionne la nature, l'intensité et la distribution des forces appliquées à une goutte.

Noyaux en régime pleinement turbulent

Le modèle proposé par Coulaloglou and Tavlarides (1977) est le modèle de rupture précurseur, qui a servi de base à la construction de nombreux autres modèles. Il s'agit du modèle de rupture le plus répandu dans la littérature (Drumm and Bart, 2006; Singh et al., 2007; Amokrane, 2014; Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019; Zhou et al., 2021a). Ils expriment le noyau (fréquence) de rupture par un temps de rupture t_b multiplié par la fraction de goutte qui va rompre :

$$\Gamma(d) = \frac{1}{t_b} \frac{N_{rupt}(d)}{N_{tot}(d)} \tag{1.66}$$

avec $N_{tot}(d)$, le nombre total de gouttes de diamètre d , $N_{rupt}(d)$ le nombre de gouttes de diamètre d pouvant se rompre. Le principe du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) est basé sur l'idée qu'une goutte casse si l'énergie cinétique transmise par la collision goutte-tourbillon E_c est supérieure à l'énergie de surface de la goutte E_σ. Par analogie avec les formules de cinétique des gaz et en considérant une répartition équiprobable des tourbillons turbulents, il exprime la fraction de goutte en rupture par :

$$\frac{N_{rupt}(d)}{N_{tot}(d)} = \exp\left[-\frac{E_\sigma}{E_c}\right] \tag{1.67}$$

avec :

$$E_\sigma = C_1 \sigma d^2 \tag{1.68}$$

$$E_c = C_2 \rho_d d^3 \langle [\Delta u(d)]^2 \rangle \tag{1.69}$$

avec $\langle [\Delta u(d)]^2 \rangle$, la fonction de structure d'ordre deux. Cette dernière est exprimée en utilisant la formulation définie par la théorie de Kolmogorov en régime inertiel (voir Eq. 1.13). Le temps caractéristique de rupture pour une goutte dans le régime inertiel est, quant à lui, exprimé par :

$$t_b = C_1 d^{2/3} \varepsilon^{-1/3} \tag{1.70}$$

En combinant les équations 1.67 et 1.70, le noyau de rupture proposé par Coulaloglou and Tavlarides (1977) est donné par :

$$\Gamma(d) = C_1 \varepsilon^{1/3} d^{-2/3} \exp\left[-\frac{C_2 \sigma}{\rho_d \varepsilon^{2/3} d^{5/3}}\right] \tag{1.71}$$

avec C_1 et C_2, des constantes à calibrer à partir de mesures expérimentales.

On note que le modèle précédemment défini est valide pour des nombres de Reynolds élevés, avec une turbulence bien développée et localement isotrope. Les gouttes doivent se situer dans le domaine inertiel de la turbulence, où les effets inertiels prédominent sur les effets visqueux ($L > d > \eta$). Par ailleurs, ce modèle ne prend pas en compte la viscosité interne de la goutte dans les forces cohésives. Cette simplification peut donc conduire à une surestimation de la fréquence de rupture.

Par la suite, Alopaeus et al. (2002) a proposé une amélioration du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977), afin de prendre en compte la viscosité interne de la phase dispersée. Par ailleurs, ils proposent une autre approche pour modéliser la rupture , où celle-ci se produit dès que les fluctuations de vitesse autour d'une particule dépassent une valeur critique (Liao and Lucas, 2009). Un troisième modèle communément utilisé est celui proposé par Martínez-Bazán et al. (1999a). Ce dernier se base sur l'idée qu'une goutte se rompt si l'énergie exercée par les contraintes turbulentes est supérieure à celle des contraintes cohésives.

Noyaux turbulent généralisé

Plus récemment, de nouveaux modèles proposent une extension des noyaux inertiels traditionnels utilisée sur tout le spectre de la turbulence (Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019; Karimi and Andersson, 2019).

En effet, les modèles traditionnels (voir 1.3.7.1.0) sont valides uniquement dans le domaine inertiel de la turbulence. Cette hypothèse est généralement justifiée par le fait qu'une grande partie des études de la littérature porte sur des phases continues aqueuses, peu visqueuses, dans des régimes d'écoulement pleinement turbulent.

Cependant, l'échelle de Kolmogorov η est étroitement reliée à la viscosité de la phase continue (voir 1.9). Comme le souligne Carrillo De Hert and Rodgers (2019), l'augmentation de la viscosité de la phase continue tend à augmenter la taille de l'échelle de Kolmogorov, et donc diminuer celle du régime inertiel. Ainsi, il se peut qu'une partie, voire la totalité des tailles de gouttes, se retrouvent dans le domaine dissipatif de l'échelle de Kolmogorov ($d < \eta$) où les modèles habituellement utilisés ne sont plus valides.

Dans ses travaux, Castellano (2019) introduit une fonction de structure de second ordre valable sur tout le domaine de la turbulence issue des travaux de Davidson (2004). En couplant cette fonction de structure et la représentation complète de l'énergie du spectre de turbulence de Pope (2000), Castellano (2019) étend les noyaux de rupture et coalescence de Coulaloglou sur toute l'échelle de la turbulence.

Karimi and Andersson (2019) proposent également un modèle complet valable sur tout le spectre de la turbulence qui prend en compte le changement du régime avec le passage du domaine inertiel au domaine dissipatif. Ils considèrent comme contraintes destructives la contrainte inertielle pour la rupture dans le domaine inertiel, à l'image des modèles traditionnels, et la contrainte visqueuse turbulente de cisaillement pour le domaine dissipatif. Cette dernière correspond à la force de cisaillement visqueux induite par le gradient de vitesse d'un tourbillon. Le modèle prend également en compte les contraintes cohésives d'origine interfaciale et visqueuse interne. Le modèle complet proposé par Karimi and Andersson (2018) ne présente aucune constante à ajuster et choisit la contrainte destructive en fonction de la taille de la goutte mère relativement au régime.

De manière générale, la contrainte visqueuse turbulente de cisaillement τ_{vt} s'exprime sous la forme (Liao et al., 2015; Karimi and Andersson, 2019) :

$$\tau_{vt} = K_{vt}\mu_c\dot{\gamma}_{vt} \tag{1.72}$$

avec K_{vt} une constante et $\dot{\gamma}_{vt}$ le gradient de vitesse des tourbillons.

En comparant son noyau généralisé avec des données expérimentales, Karimi and Andersson (2018) montrent que, dans certaines conditions opératoires, les taux de rupture des modèles classiques sont très largement surestimés, avec des erreurs relatives allant de 400 % à 900 %, alors que le modèle proposé par Karimi and Andersson (2018) ne commet qu'une erreur relative de 20 %.

Noyaux en régime laminaire

Dans la littérature, la rupture de goutte en régime laminaire est très rare, voire même quasiment inexistante au sein d'un procédé (Rueger and Calabrese, 2013; Shayunusov et al., 2024). Ceci s'explique notamment par le plus faible nombre d'applications industrielles opérant dans ce régime d'écoulement. La rupture en régime laminaire est donc encore mal comprise, notamment car elle dépend fortement de la géométrie d'étude.

Les seules études de rupture en régime laminaire proviennent de celles portant sur des gouttes uniques dans des écoulements simples et cisaillés (Taylor, 1934; Rumscheidt and Mason, 1961; Karam and Bellinger, 1968; Stone et al., 1986). Ces travaux expérimentaux utilisent le nombre capillaire critique Ca_{crit} pour caractériser la rupture : une goutte se rompt lorsque son nombre capillaire dépasse une valeur seuil donnée. Ce nombre capillaire critique dépend à la fois du rapport de viscosité et du type d'écoulement (écoulement extensionnel ou cisaillé).

D'après la review de Liao and Lucas (2009), on peut exprimer le noyau de rupture induite par un cisaillement visqueux par :

$$\Gamma(d) = \frac{C_\mu}{t_b} \tag{1.73}$$

avec C_μ une constante à ajuster et t_b le temps de rupture dans un tel écoulement. Pour exprimer ce temps de rupture, les résultats des études expérimentales précédemment citées peuvent être utilisés. Ainsi, dans un écoulement cisaillé, différentes corrélations ont été proposées pour déterminer le temps de rupture (Grace, 1982; Cristini et al., 2003). Il est généralement proportionnel à la viscosité de la phase continue, à la taille de la goutte ainsi qu'au rapport de viscosité entre les phases.

Dans son étude, Liao et al. (2015) a présenté une liste non exhaustive de modèles de fermeture utilisables pour modéliser un écoulement à bulles. Il a notamment décrit des modèles de fermeture pour la rupture et la coalescence de bulles dans un écoulement laminaire et cisaillé. Le noyau de rupture est exprimé comme une compétition entre deux contraintes - une contrainte destructive et une contrainte cohésive - telles que :

$$\Gamma(d_m, d_i) = \begin{cases} \dfrac{1}{d_m}\left(\dfrac{\tau(d_m) - \tau_{cri}(d_m, d_i)}{\rho_c}\right)^{1/2}, & \text{si } \tau > \tau_{crit} \\ 0, & \text{si } \tau < \tau_{crit} \end{cases} \tag{1.74}$$

avec d_m, le diamètre de la goutte (ou bulle) mère. Dans la littérature, deux approches ont été proposées pour définir la contrainte cohésive : une approche énergétique (Luo and Svendsen, 1996) et une approche par bilan de forces (Lehr and Mewes, 2001). Le modèle proposé par Liao et al. (2015) combine ces deux approches en prenant comme valeur critique le maximum des deux contraintes. On peut noter que seules les forces interfaciales ont été considérées dans les forces cohésives. Par ailleurs, les auteurs font l'hypothèse d'une rupture binaire, avec d_i et d_j respectivement le diamètre des deux gouttes filles.

$$\begin{cases} \tau_{crit} = \max(\tau_{crit,1}, \tau_{crit,2}) \\ \\ \tau_{crit,1} = E_{\sigma,i} + E_{\sigma,j} - E_{\sigma,m} = \dfrac{6\sigma}{d_m}\left[\left(\dfrac{d_i}{d_m}\right)^2 + \left(\dfrac{d_j}{d_m}\right)^2 - 1\right] \\ \\ \tau_{crit,2} = \dfrac{\sigma}{\max(d_i, d_j)} \end{cases} \tag{1.75}$$

avec E_σ l'énergie de surface des gouttes m, i et j. Enfin, Liao et al. (2015) expriment la contrainte destructive induite par le cisaillement visqueux laminaire par :

$$\tau = C_{br}\mu_c\dot{\gamma} \tag{1.76}$$

avec C_{br} une constante à déterminer. En appliquant ce modèle, Shayunusov et al. (2024) considèrent une valeur de la constante de l'ordre de un : $C_{br} \sim 1$.

1.3.7.2 Méthodes de résolution et couplage avec la CFD

Les bilans de population sont résolus à l'aide de méthodes numériques. Parmi les approches les plus couramment utilisées dans la littérature, on trouve :

- La méthode des classes, basée sur la discrétisation des coordonnées internes dans le but d'obtenir un ensemble d'équations à résoudre individuellement sur chaque intervalle, appelé classe. Par exemple, il est possible de discrétiser une population de gouttes en N classes de volume différents. La ième classe correspond aux gouttes possédant un volume compris entre un volume v_i et un volume plus grand $v_i + dv$, dv étant la largeur de la classe. Cette méthode permet de calculer directement la distribution d'une population, mais la précision des résultats dépend notamment du nombre de classes. D'après (Drumm and Bart, 2006; Zhou et al., 2021a), une discrétisation en au moins 15 classes est requise pour obtenir des résultats satisfaisants.

- La méthode des moments consiste à résoudre les équations pour les moments de la distribution au lieu de la distribution elle-même. Plusieurs variantes existent, mais la plus utilisée est la méthode QMOM (*Quadrature Method of Moments*), qui exprimes les moments de la distribution par le biais de noeuds et de poids. Cette approche est particulièrement courante lorsqu'elle est couplée avec la CFD, car elle permet de réduire le problème à un nombre restreint d'équations, ce qui limite le coût de calcul. D'après Drumm and Bart (2006), seulement six moments suffisent pour obtenir des résultats satisfaisants. En revanche, cette méthode ne donne pas directement accès à la distribution complète : une étape de reconstruction à l'aide d'un algorithme spécifique est nécessaire (Amokrane, 2014).

- La méthode de Monte Carlo est une méthodes probabiliste qui permettent de suivre l'évolution d'une population de particules. Cette évolution est simulée en tenant compte des phénomènes de rupture et de coalescence, appliqués de manière

aléatoire avec des probabilités proportionnelles à l'intensité de ces mécanismes (Amokrane, 2014). Ces méthodes sont considérées comme très précises, mais leur temps de calcul est généralement très élevé.

Par ailleurs, les noyaux de rupture et de coalescence reposent sur des grandeurs hydrodynamiques, typiquement le taux de dissipation ou de cisaillement. La moyenne volumique de ces grandeurs peut être estimée à partir de la puissance dissipée ou du nombre de puissance (voir Eq. 1.5). Cependant, l'écoulement dans une cuve agitée est loin d'être homogène, avec des taux de dissipation particulièrement élevés à proximité de la turbine. Pour estimer ces grandeurs localement, les bilans de population sont alors avantageusement couplés à des simulations CFD. Ce couplage peut se réaliser selon différentes approches.

L'approche la plus précise consiste en un couplage complet CFD-PBE. Les équations de Navier-Stokes diphasiques et le bilan de population sont résolues pour chaque classe de goutte et à chaque pas de temps. Ce couplage est bidirectionnel (« *two-way coupling* ») et permet de modéliser à la fois l'effet de l'écoulement sur la taille des gouttes et l'influence de la taille des gouttes sur l'écoulement. Ces modèles offrent une représentation très fidèle de l'hydrodynamique d'un procédé, mais leur coût numérique est extrêmement élevé. Une seconde approche, moins précise, repose sur le couplage via un diamètre équivalent, typiquement le diamètre de Sauter. Dans ce cas, le diamètre moyen est déterminé à chaque pas de temps via le PBE, puis intégré dans les équations de mécanique des fluides (Drumm and Bart, 2006; Zhou et al., 2021a). Cette méthode réduit drastiquement le coût numérique, car les équations de Navier-Stokes diphasiques ne sont résolues que pour une seule taille de goutte.

La dernière approche correspond à un couplage unidirectionnel (« *one-way coupling* »), où la CFD et la PBE sont résolues séparément et successivement (Castellano, 2019; Charton et al., 2022). La CFD est d'abord résolue par une approche monophasique, et les grandeurs hydrodynamiques en régime stationnaire sont ensuite transmises au bilan de population. Ainsi, l'effet des tailles des gouttes sur l'hydrodynamique n'est pas modélisé. Avec cette approche, les grandeurs hydrodynamiques estimées par CFD peuvent être intégrées de différentes manières. Il est possible, par exemple, de déterminer la moyenne volumique et temporelle du taux de dissipation. Bien que cette méthode donne une estimation plus précise du taux de dissipation qu'avec la formule théorique (voir Eq.1.5), elle ne rend pas compte des variations locales de l'hydrodynamique. Une seconde approche, proposée par Buffo et al. (2016), utilise la densité de probabilité du taux de dissipation afin de tenir compte à la fois de l'inhomogénéité et des valeurs locales de la turbulence.

1.4 Bilan de l'état de l'art et démarche de la thèse

Les mélangeurs-décanteurs sont des appareils largement utilisés pour les opérations d'extraction liquide-liquide, notamment dans le cadre du traitement du combustible nucléaire usé (CEA-DEN, 2008). Au sein de ces appareils, **la distribution des tailles de gouttes** est une grandeur clé, car d'une part, elle détermine l'aire interfaciale qui est

directement reliée aux transferts de matière et, d'autre part, elle fournit des informations sur la présence de petites gouttes responsables des entraînements de phase à la sortie du décanteur. Ainsi, être capable de la caractériser et de la modéliser revêt une importance de premier ordre.

L'écoulement au sein d'une cuve agitée n'est généralement **pas homogène**, avec des valeurs d'énergie cinétique turbulente et de taux de dissipation plus élevées au contact de la turbine (Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2009). L'estimation de ces paramètres à partir de grandeurs globales n'est donc pas adaptée, car elle ne permet pas de représenter leurs variations locales.

Néanmoins, obtenir une estimation fiable de ce paramètre n'est pas simple, car il nécessite de mesurer les plus petites échelles de l'écoulement, jusqu'à l'échelle de Kolmogorov. En régime turbulent, la taille des gouttes est directement liée au **taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente** (Hinze, 1955). Ce dernier est généralement mesuré expérimentalement par des méthodes PIV (Escudié and Liné, 2003; Liu et al., 2016; Laine et al., 2023), ou estimé par simulation numérique, à travers la **CFD** (Delafosse et al., 2008, 2009; Li et al., 2011). Toutefois, l'estimation du taux de dissipation par ces deux approches dépend fortement de la résolution spatiale, et une mesure directe de ce paramètre est difficile car elle nécessite de capturer les plus petites échelles de l'écoulement (Saarenrinne et al., 2001; Liu et al., 2016; Wang et al., 2021). Lors de l'utilisation de modèle CFD, **le choix du modèle de turbulence utilisé est crucial** afin d'avoir une estimation précise du taux de dissipation. Les modèles de turbulence RANS possèdent un faible coût de calcul, mais tendent à sous-estimer ce paramètre, et ne sont pas capables de prédire précisément la répartition spatiale de ε dans la zone de la turbine (Delafosse et al., 2008, 2011). À l'inverse, **l'approche LES** est plus coûteuse en ressources numériques, mais permet d'avoir une estimation plus **fiable** du taux de dissipation (Tabib et al., 2012; Laine, 2024). En parallèle, **la méthode LBM** devient de plus en plus utilisée, notamment grâce à sa très bonne capacité de parallélisation et à son utilisation sur GPU (Krüger et al., 2017). Cela permet de réduire drastiquement les temps de simulation, rendant ainsi **accessibles des approches normalement très coûteuses**, comme la LES.

Par ailleurs, de nombreux travaux s'appuient sur des modèles CFD diphasiques avec l'approche Euler-Euler pour modéliser le comportement d'un procédé polyphasique (Ničeno et al., 2008; Laurenzi et al., 2009; Zou et al., 2016). On note que la littérature est bien plus riche pour les écoulements gaz-liquide que pour les écoulements liquide-liquide. Les modèles Euler-Euler permettent notamment de décrire la répartition spatiale des gouttes dans l'appareil et de caractériser l'effet de l'émulsion sur l'écoulement et sur la turbulence de la phase continue. Cependant, ils reposent généralement sur l'hypothèse d'une distribution de taille monodisperse, qui reste fixe au cours de l'émulsification. Une telle approche ne semble pas **adaptée** à la problématique de la thèse, car ces modèles ne permettent pas de prédire la formation de gouttes responsables des entraînements. Il en est de même pour les mesures PIV diphasiques, qui sont également très délicates à mettre en œuvre (Liu et al., 2016).

Afin d'obtenir des informations sur la taille des gouttes en fonction des conditions opératoires, un grand nombre de corrélations ont été développées (Tang et al., 2020).

Cependant, ces corrélations sont, d'une part, valides uniquement en régime pleinement turbulent et, d'autre part, permettent d'estimer uniquement un diamètre moyen ou un diamètre maximal stable. Elles sont également valides uniquement pour la gamme de conditions opératoires dans laquelle elles ont été développées. Ces méthodes ne semblent pas pertinentes pour la **prédiction de l'apparition d'entraînement de phase**.

Les modèles de **PBE**, souvent **couplés à la CFD** pour estimer les grandeurs hydrodynamiques, sont largement utilisés en génie des procédés pour modéliser la taille des gouttes dans un réacteur (Coulaloglou and Tavlarides, 1977; Ramkrishna, 2000). Ils permettent de suivre l'évolution d'une distribution de tailles de gouttes sous l'action des deux phénomènes antagonistes que sont la rupture et la coalescence. La principale difficulté de ces modèles **réside dans le choix des lois de fermeture**, très nombreuses dans la littérature (Lasheras et al., 2002; Liao and Lucas, 2009). De plus, la grande majorité de ces modèles a été développée pour des **régimes pleinement turbulents**. Des noyaux généralisés prenant en compte à la fois le domaine inertiel et dissipatif ont récemment été développés (Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019; Karimi and Andersson, 2019). Toutefois, ils ne semblent **pas applicables** aux écoulements au sein des MD-NG, en régime de transition et très faiblement turbulents. Par ailleurs, les études portant sur **la morphologie de la rupture** dans ces régimes faiblement turbulents sont très rares, voire quasiment inexistantes dans la littérature dédiée aux cuves agitées.

Enfin, les nombreux modèles de fermeture du PBE peuvent parfois fournir des prédictions contradictoires, rendant leur sélection complexe et nécessitant des **validations expérimentales**. Dans la littérature, on distingue trois grandes catégories d'expériences permettant d'alimenter et de calibrer un PBE.

La première catégorie d'expériences vise à mesurer des **distributions de taille de gouttes (DSD)** dans le mélangeur, afin de les **comparer** directement aux **prédictions du PBE** (Khalil et al., 2010; Maaß et al., 2012). Ces données permettent notamment d'ajuster les constantes présentes dans les noyaux de rupture et de coalescence. Toutefois, la majorité de ces études sont menées dans des géométries standards, avec des volumes supérieurs au litre, dans des régimes pleinement turbulents et avec une phase continue (aqueuse) peu visqueuse. L'effet de la vitesse d'agitation, des caractéristiques géométriques (position, dimensions et type d'agitateur, nombre de pales), de la tension interfaciale et de la viscosité interne des gouttes sur la distribution de taille est généralement étudié, car ces facteurs sont directement liés aux contraintes destructrices et cohésives.

La seconde catégorie d'expériences examine plus **localement les mécanismes de rupture**, à travers des études de **gouttes uniques**. Bien que beaucoup moins répandues que les expériences précédentes, elles sont particulièrement utiles pour le développement de modèles de fermeture. Elles permettent, par exemple, d'estimer le temps ou la probabilité de rupture, ainsi que la taille et le nombre de gouttes filles (Maaß et al., 2007; Maaß and Kraume, 2012). Leur mise en œuvre nécessite toutefois une caractérisation fine de l'écoulement environnant et des contraintes qu'il exerce, afin de comprendre précisément la manière dont la surface de la goutte se déforme. Ces études ont été réalisées aussi bien en écoulement laminaire simple (extension, cisaillement) (Taylor, 1934; Karam and Bellinger, 1968; Grace, 1982) qu'en écoulement turbulent homogène et isotrope (Sleicher Jr, 1962;

Eastwood et al., 2004; Maaß et al., 2007). En revanche, les expériences de gouttes uniques en cuves agitées sont très rares, en raison de la complexité des écoulements qui y prennent place (inhomogène et anisotrope) (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b).

La troisième catégorie est très proche de la deuxième et implique une étude approfondie de la rupture au sein d'un essaim de gouttes (*droplet swarm*). L'objectif est de déterminer directement la fréquence de rupture, ainsi que la distribution des gouttes filles, en observant la rupture de plusieurs gouttes à l'aide d'une caméra rapide (Zhou et al., 2021b).

Récemment, avec la croissance exponentielle des capacités de calcul, les **simulations hautes résolutions** couplant LES/DNS et méthodes de suivi d'interface sont devenues de plus en plus populaires (Karimi and Andersson, 2020; Håkansson and Brandt, 2022). Ces approches permettent d'analyser localement les mécanismes de rupture de bulles ou de gouttes, à l'image des études expérimentales mentionnées précédemment. Cependant, ces simulations permettent d'accéder directement aux champs d'écoulement de la phase continue et aux contraintes exercées à la surface des gouttes, permettant une compréhension plus détaillée des phénomènes mis en jeu.

Pour répondre à la problématique de la thèse portant sur les entraînements de phase, plusieurs hypothèses ont été formulées concernant le fonctionnement des MD-NG en conditions réelles. Dans un premier temps, l'**étude s'est concentrée principalement sur le mélangeur**, car c'est dans ce compartiment que se forment les gouttes responsables des entraînements de phase. La géométrie de la chambre de mélange des MD-NG a également été légèrement simplifiée afin de faciliter les mesures expérimentales de la taille des gouttes. Ces simplifications géométriques ont été jugées négligeables sur l'hydrodynamique du mélangeur. Le décanteur a, quant à lui, été découplé du mélangeur et n'a été étudié que partiellement.

Ensuite, cette thèse ne représente qu'un premier volet, **uniquement consacré à l'hydrodynamique** au sein des MD-NG, sans considérer le phénomène de transfert de matière. L'évolution des propriétés physico-chimiques des phases avec le transfert de matière, et notamment l'augmentation de la viscosité de la phase continue, a été représentée par cinq mélanges de propriétés constantes.

Enfin, l'ensemble de la thèse a été mené avec un **système dilué**, avec un faible taux de rétention ($\alpha = 1$ %). Cette approche a permis de se concentrer sur le phénomène de **rupture des gouttes**, qui est au cœur de la formation de petites gouttes et des problèmes d'entraînement. Cela a également permis de négliger la coalescence. De plus, le choix d'un système dilué a facilité les mesures expérimentales, notamment en limitant le chevauchement de gouttes lors du traitement d'images. Enfin, cette approche a permis de s'assurer que l'émulsion n'influence pas ou peu l'écoulement et les contraintes de la phase environnante, autorisant ainsi la réalisation de simulations CFD avec une approche monophasique, lors de son couplage avec le PBE.

Sur la base des éléments présentés précédemment, ce travail se propose d'adresser les verrous scientifiques suivants, verrous peu ou pas traités dans la littérature :

1. **La géométrie spécifique et miniaturisée du mélangeur**. Le dispositif étudié est un mélangeur non standard, conçu pour imiter le comportement des MD-NG. Ces derniers sont utilisés en laboratoire dans le cadre de recherches sur l'extraction liquide-liquide, notamment pour le traitement du combustible nucléaire usé (Roussel and Dutilh, 2024). Les principales particularités de la géométrie d'étude résident dans sa petite taille ($\boldsymbol{V = 10}$ **mL**), sa forme **cubique** et l'**absence de contre-pales**.
2. **Les phases continues organiques et visqueuses**. Dans un premier temps, le procédé du traitement du combustible usé implique une succession de cycles d'extraction et de désextraction. Afin de garantir le bon fonctionnement du procédé, certaines étapes nécessitent d'être conduites en phase organique continue (FOC). Dans un second temps, certains solvants présentent une augmentation notable de leur viscosité lorsqu'ils se chargent en uranium. Les études de la littérature portant sur des systèmes en phase organique continue sont peu nombreuses, et l'effet de la viscosité de la phase continue n'est que très rarement abordé.
3. **Le régime de transition**. Les points (1) et (2) conduisent à travailler dans un régime de transition, « tout juste » turbulent et proche du laminaire. La taille des gouttes en régime pleinement turbulent est relativement bien comprise dans la littérature, où de nombreuses corrélations et modèles sont disponibles (Lasheras et al., 2002; Liao and Lucas, 2009). Cependant, les études décrivant l'évolution des mécanismes menant aux ruptures de gouttes dans des conditions de régime de transition ($200 < Re < 1300$) sont très rares, voire inexistantes.
4. **Les entraînements de phase**. L'objectif de la thèse étant de traiter les problèmes d'entraînement de phase, une attention particulière a été portée sur les **populations de petites gouttes**. Ainsi, ce travail se distingue des études traditionnelles, qui se concentrent principalement sur l'évaluation du transfert de matière généralement via un diamètre de Sauter. En outre, le diamètre de Sauter est davantage influencé par la contribution des grosses gouttes que par celle des petites, ce qui le rend moins adapté à l'analyse des mécanismes liés aux phénomènes d'entraînement.

La démarche de la thèse est résumée sur la Figure 1.13 et le manuscrit est structuré comme suit :

Le **Chapitre 2** vise à définir le cadre de l'étude. La **géométrie d'étude** mise en place au cours de la thèse sera d'abord présentée. Cette dernière permettra à la fois de reproduire le comportement hydrodynamique des MD-NG tout en facilitant les mesures expérimentales de taille de gouttes. Ce chapitre sera également consacré à la **sélection des fluides** d'intérêt. Ce choix sera orienté par leur aptitude à reproduire le comportement des liquides cibles. Enfin, en modélisant l'écoulement dans le décanteur par CFD, **les diamètres de gouttes responsables des entraînements de phase** seront identifiés.

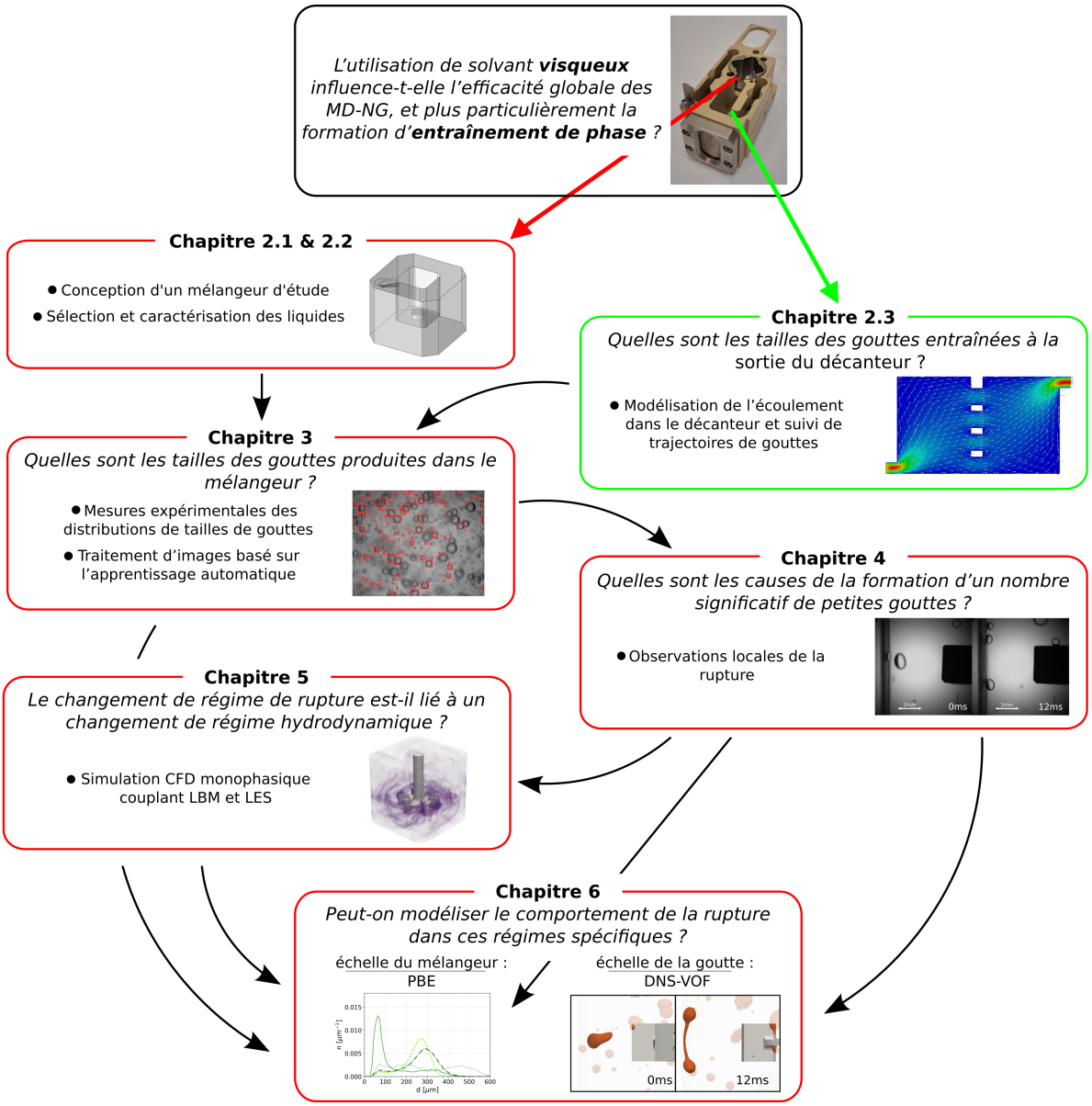


FIGURE 1.13 – Schématisation de la démarche de la thèse.

L'objectif du **Chapitre 3** est d'identifier les **conditions opératoires produisant des gouttes problématiques** vis-à-vis des entraînements de phase. Pour cela, des distributions de taille de gouttes (DSD) seront mesurées expérimentalement. Les acquisitions seront réalisées à l'aide d'une caméra rapide non intrusive, permettant la capture d'images, et d'un algorithme de traitement d'images basé sur le machine learning (BYG-drop), afin de détecter et de mesurer les tailles des gouttes. Cet algorithme sera spécifiquement entraîné sur des images expérimentales acquises au sein du mélangeur d'étude, puis validé avant d'être appliqué pour différentes conditions opératoires.

Le **Chapitre 4** se focalise sur l'analyse expérimentale de l'influence de la viscosité du fluide environnant sur la **dynamique locale de la rupture** de gouttes. L'objectif sera

de comprendre les raisons de l'augmentation du nombre de petites gouttes avec la viscosité (Chapitre 3). En utilisant le même montage optique que celui du chapitre précédent, mais avec une fréquence d'acquisition plus élevée, la rupture des gouttes sera caractérisée localement en identifiant les mécanismes responsables de la rupture, en mesurant la localisation des évènements, le temps de rupture, et le nombre et la distribution de tailles des gouttes filles.

Dans le **Chapitre 5**, les contraintes hydrodynamiques locales à l'origine de la rupture des gouttes seront évaluées. Pour ce faire, l'écoulement sera modélisé à l'aide d'une approche **CFD monophasique**, combinant la **méthode de Boltzmann sur réseau (LBM)** et la **simulation aux grandes échelles (LES)**. Le régime d'écoulement sera caractérisé pour différentes viscosités de la phase continue. Cette analyse permettra de quantifier les différents types de contraintes hydrodynamiques et de comparer la taille des gouttes à l'échelle de Kolmogorov. Enfin, l'écoulement dans une zone propice à la rupture, identifiée dans le Chapitre 4, sera caractérisé en appliquant la méthode de classification proposée par Chella and Ottino (1985).

Enfin, des **modèles** capables de reproduire le comportement de la **rupture des gouttes** dans un mélangeur miniaturisé en régime de transition, impliquant des solvants visqueux, seront développés au **Chapitre 6**. Pour cela, deux approches complémentaires seront réalisées : d'une part, une approche **globale**, basée sur la résolution d'un **PBE**, et d'autre part, une approche plus **locale**, à travers des **simulations CFD hautes résolutions**. Dans un premier temps, plusieurs modèles de fermeture PBE issus de la littérature seront évalués. Chacun d'eux repose notamment sur des contraintes destructives différentes (de cisaillement ou turbulentes). Ces modèles seront alimentés par les résultats du Chapitre 5 pour les grandeurs hydrodynamiques, ainsi que par les mesures expérimentales du Chapitre 3 pour l'ajustement des constantes des modèles de fermeture. Enfin, le phénomène de rupture sera étudié numériquement de manière plus précise par des **simulations DNS** et une approche couplant **LBM** et l'approche ***Volume Of Fluid* (VOF)**. Ces simulations permettront d'analyser finement la rupture à l'échelle d'une goutte, en reproduisant les expériences du Chapitre 4.

Chapitre 2

Préparation de l'étude : conception du mélangeur, caractérisation des liquides et estimation des tailles de gouttes responsables des entraînements de phase

Sommaire

2.1 Géométrie du dispositif 69
2.1.1 Mélangeurs-décanteurs nouvelle-génération « MD-NG » 69
2.1.2 Géométrie du mélangeur d'étude 70
2.2 Description et caractérisation des liquides utilisés 74
2.2.1 Sélection des fluides d'intérêt 74
2.2.2 Appareils de mesure des propriétés physico-chimiques et incertitudes associées 75
2.2.3 Mesure des propriétés physico-chimiques 77
2.3 Estimation des diamètres de gouttes responsables des entraînements de phase 81
2.3.1 Introduction 81
2.3.2 Approche balistique 83
2.3.3 Approche CFD 87
2.3.4 Conclusion 94

Dans le cadre de leur fonctionnement pour le traitement du combustible usé, les MD-NG présentent un comportement très complexe, caractérisé par l'interaction simultanée de phénomènes hydrodynamiques et physico-chimiques. Le procédé met en œuvre une succession d'appareils en série, au sein desquels les liquides circulent en continu et à contre-courant. Ces dispositifs font intervenir des mécanismes complexes, tels que la rupture et la coalescence de gouttes, ainsi que des distributions de temps de séjour variables, dépendant des conditions opératoires. Par ailleurs, ils mettent en jeu un transfert de matière entre deux phases, contenant de la matière radioactive, et qui entraîne une évolution des propriétés physico-chimiques des liquides au cours du procédé.

Ainsi, il apparaît indispensable de simplifier le problème étudié, de manière à isoler le phénomène de rupture, prédominant dans la formation d'entraînement de phase, et à réduire le nombre de paramètres à considérer. Par ailleurs, cette démarche permet de se placer dans des conditions expérimentales mieux contrôlées, permettant d'avoir des mesures de distributions de taille de gouttes plus robustes et reproductibles.

Ce second chapitre a donc pour objectif de définir le cadre de l'étude. Une géométrie d'étude a été développée, afin de reproduire le comportement hydrodynamique des MD-NG réels. Par ailleurs, des fluides non radioactifs ont été sélectionnés, et leurs propriétés physico-chimiques ajustées, afin de simuler fidèlement celles des liquides réels.

Enfin, aucune étude n'a actuellement permis de mesurer précisément les entraînements de phase au sein des MD-NG en présence de solvant visqueux. Comme la thèse se concentre principalement sur le comportement d'une émulsion au sein du mélangeur, il est donc nécessaire de quantifier la taille des gouttes susceptibles d'être entraînée à la sortie du décanteur. Pour ce faire, une étude combinant une approche balistique et des simulations CFD a été menée dans le décanteur, afin de caractériser les tailles de gouttes problématiques et responsables des entraînements de phase.

2.1 Géométrie du dispositif

2.1.1 Mélangeurs-décanteurs nouvelle-génération « MD-NG »

Les MD-NG (Mélangeur-Décanteur Nouvelle-Génération) ont été développés au CEA pour tester à l'échelle du laboratoire les performances de nouveaux solvants pour des opérations d'extraction liquide-liquide (Roussel and Dutilh, 2024). Ils sont principalement utilisés pour la R&D dans le cadre du traitement du combustible nucléaire usé. Leur développement a été motivé par l'absence d'appareils commerciaux adaptés au travail à échelle laboratoire, c'est-à-dire avec des débits inférieurs à 1 $L \cdot h^{-1}$.

Ces appareils se caractérisent par leur petite capacité, avec un volume de mélangeur et de décanteur de respectivement 6 et 20 mL, fonctionnant avec des faibles débits, allant de 200 à 600 $mL \cdot h^{-1}$. Leur petite taille met en jeu des faibles quantités de réactif permettant, d'une part, de limiter la quantité de solvant innovant généralement synthétisé en faible quantité, et d'autre part, de contrôler le risque de criticité (réaction nucléaire en chaîne

non contrôlée) dû à leur utilisation en milieu nucléarisé. Enfin, cette compacité facilite leur utilisation dans des enceintes fermées et ventilées. Des photos de différentes vues de MD-NG sont présentées sur la Figure 2.1.

Les MD-NG sont des appareils de type « pump-mix », la turbine jouant à la fois le rôle d'émulsifieur et de pompage. Un étage de MD-NG possède une anti-chambre, connectée à la chambre de mélange (1) par une cheminée d'aspiration (2). La chambre de mélange est de forme globalement cubique, avec des coins arrondis, et de légers reliefs au centre de ses faces. Cette forme spécifique permet notamment de limiter la formation d'un vortex au cours du mélange. Ce dernier est réalisé par une turbine Rushton (3), immergée dans les liquides, et positionnée à une faible distance par rapport à la cheminée, afin de favoriser le pompage des phases. La turbine Rushton est notamment connue pour avoir une bonne capacité d'émulsification (Roustan et al., 2023). Après quelques minutes de temps de séjour, la dispersion déborde dans le décanteur (4) par la surverse (5). Une plaque de rabattement et deux grilles de coalescence (6) (une hydrophile et l'autre lipophile) favorisent la séparation des phases et limitent les entraînements de phase. Les deux phases sortent ensuite de part et d'autre du décanteur, la phase lourde (généralement la phase aqueuse) dans la partie inférieure (7) et la phase légère (généralement la phase organique) dans la partie supérieure (8). Une présentation plus détaillée du fonctionnement du décanteur sera réalisée dans la partie 2.3. Un dispositif mécanique permet de contrôler le niveau de l'interface en ajustant la hauteur de la sortie de la phase lourde. Cette interface est visible à travers un hublot (9) dans le décanteur. Enfin, chaque phase circule dans son canal respectif (10) et (11), et est pompée dans les étages voisins par les turbines adjacentes.

2.1.2 Géométrie du mélangeur d'étude

Le fonctionnement des MD-NG est contrôlé de manière globale par des paramètres opératoires tels que les débits des phases et leurs rapports, ou encore la vitesse de rotation des turbines. Ces paramètres sont réglés afin d'atteindre le niveau de performance souhaité, notamment en termes d'extraction. Par ailleurs, ces paramètres conditionnent la capacité de pompage et la circulation interne des phases, affectant également l'efficacité globale du procédé.

Toutefois, à l'échelle locale, le comportement de l'appareil est particulièrement complexe en raison de l'interaction simultanée de phénomènes hydrodynamiques et physico-chimiques. En effet, la variation des paramètres opératoires influence directement des grandeurs clés telles que les temps de séjour, le taux de rétention local, ou encore la taille des gouttes, tous étroitement reliés aux transferts de matière.

Afin de mieux appréhender les phénomènes de rupture à l'origine des entraînements de phase, l'étude s'est appuyée sur un dispositif simplifié, inspiré des MD-NG. Ce dispositif comprend un seul étage, pas de décanteur, et fonctionne en mode batch. Ce choix se justifie par le fait que les gouttes problématiques vis-à-vis des entraînements de phase se forment dans la chambre de mélange. De plus, le fonctionnement en batch permet d'isoler les mécanismes de rupture et de coalescence, facilitant une analyse fine et une meilleure

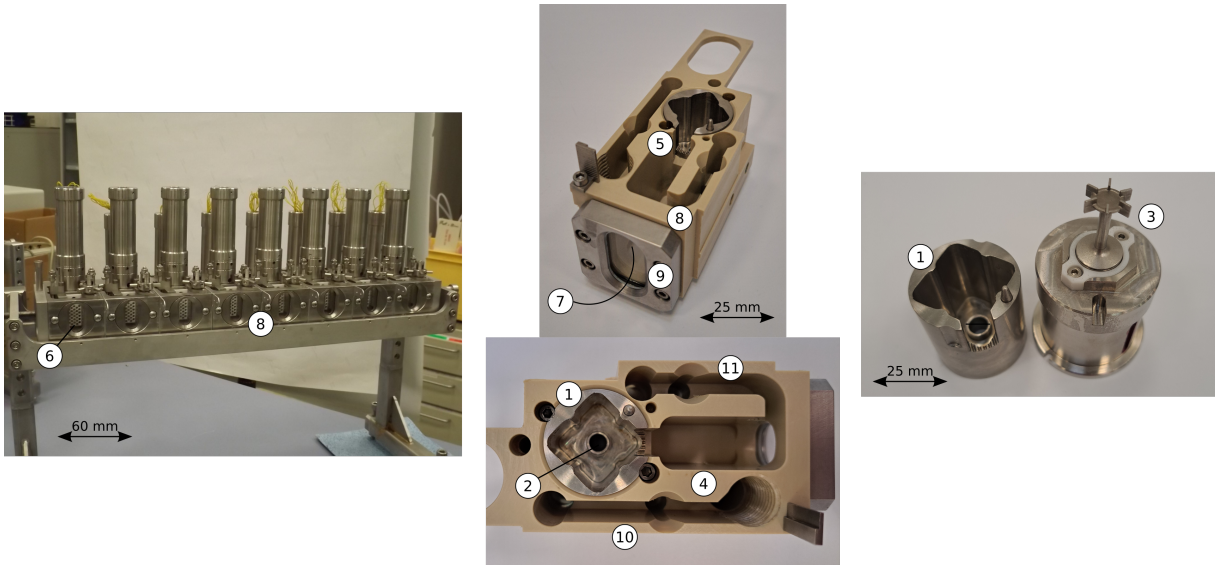
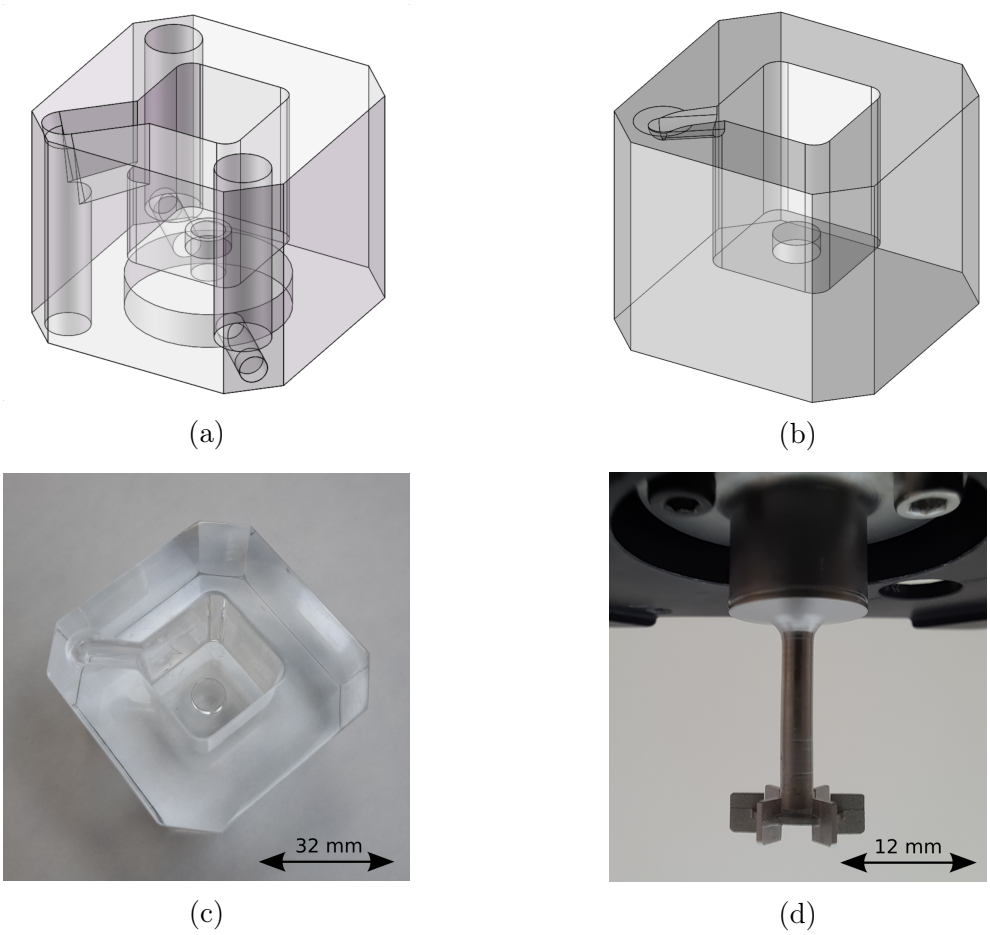


FIGURE 2.1 – Photo d'une batterie, d'un étage, de la chambre de mélange et de la turbine des MD-NG : (1) chambre de mélange, (2) cheminée d'aspiration, (3) turbine Rushton, (4) décanteur, (5) surverse, (6) grille de coalescence, (7) sortie phase lourde, (8) sortie phase légère, (9) hublot de visualisation, (10) et (11) canaux de circulation phase lourde et phase légère.

compréhension de ces phénomènes. Enfin, cela permet un meilleur contrôle du taux de rétention en émulsion pendant les expériences.

Un mélangeur expérimental de géométrie très proche de celle du compartiment mélangeur des MD-NG a été conçu lors des travaux précédents (Laine, 2024) (voir Figure 2.2a). L'introduction des phases était réalisée par un orifice dans la partie supérieure, directement relié à une anti-chambre et une cheminée d'aspiration. De plus, la chambre de mélange était équipée d'un système de surverse, reproduisant la configuration de l'appareil réel. Toutefois, plusieurs limitations ont été identifiées lors des premières utilisations du dispositif, ce qui a conduit au développement d'un nouveau mélangeur expérimental au cours de la thèse. La géométrie a été volontairement simplifiée afin de se placer dans des conditions expérimentales plus facilement mesurables et exploitables. Cette adaptation permet tout de même de reproduire le comportement hydrodynamique de la chambre de mélange des MD-NG. Le mélangeur d'étude est exposé sur la Figure 2.2b et 2.2c. Les modifications géométriques vis-à-vis du compartiment mélangeur des MD-NG sont présentées dans les points suivants :

- Au sein des MD-NG, l'anti-chambre permet l'introduction des phases dans la chambre de mélange lors d'un fonctionnement en continu. Toutefois, en fonctionnement *batch*, elle n'a aucun intérêt : elle n'a donc pas été intégrée à la géométrie d'étude. Par ailleurs, des essais préliminaires menés sur la maquette expérimentale conçue lors des travaux de Laine (2024) (Figure 2.2a), ont montré que les phases introduites via l'anti-chambre n'étaient pas entièrement aspirées par la turbine, en particulier lorsque ces dernières sont visqueuses. L'anti-chambre ne permet



(a) (b) (c) (d)

FIGURE 2.2 – (a) Mélangeur expérimental utilisé dans les travaux précédents (Laine, 2024) et (b-d) mélangeur expérimental et turbine Rushton utilisés dans la présente étude.

donc pas un contrôle précis du taux de rétention dans la chambre de mélange.

- La cheminée d'aspiration, reliant l'anti-chambre à la chambre de mélange, a par conséquent été fermée.

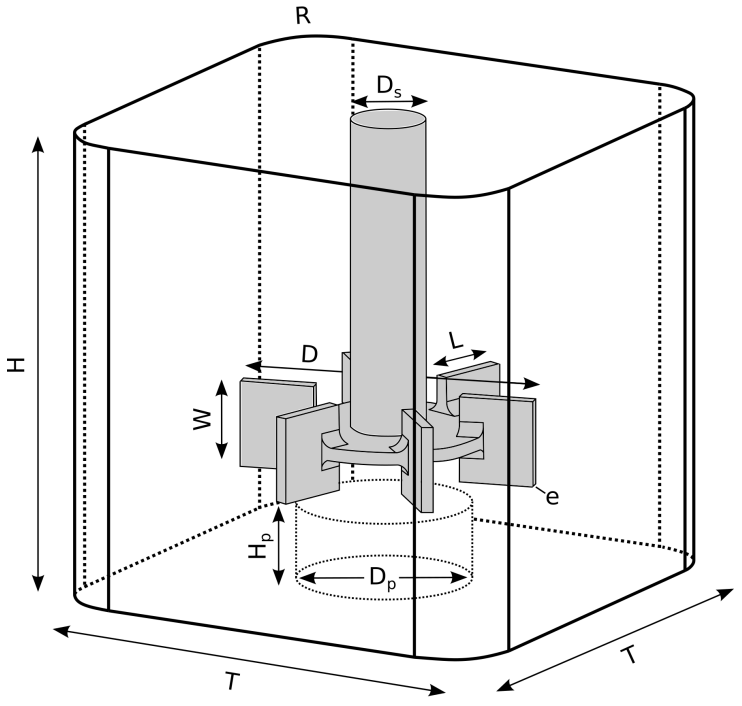
- Les reliefs situés au centre des faces du mélangeur, jouant normalement le rôle de contre-pales dans la chambre de mélange (voir Figure 2.1), ont été volontairement omis. Cela a permis de limiter la distorsion optique causée par leur courbure, pouvant gêner l'observation et la mesure de l'émulsion à l'intérieur de la cuve.

- Le système de surverse est également inutile en batch. De plus, il complique le contrôle du taux de rétention dans la cuve : il est impossible de quantifier précisément la quantité de chaque phase sortant du mélangeur. Enfin, la surverse impose une hauteur de liquide faible, générant un vortex opaque même à faible vitesse de rotation. Ce dernier gêne la visualisation expérimentale et limite les conditions opératoires explorables. La fermeture de la surverse a donc permis

d'augmenter la hauteur de liquide dans le mélangeur de 9,5 mm, retardant ainsi l'apparition du vortex et atteignant une hauteur égale au diamètre de la cuve, conformément aux recommandations pour les cuves agitées standards (Roustan et al., 2023).

- Un petit orifice légèrement incliné a été usiné en haut du mélangeur. Il permet notamment l'injection de la phase dispersée via un capillaire durant l'émulsification.

Ainsi, le mélangeur étudié est de forme cubique ($H = T = 22$ mm), avec des coins arrondis ($R = 3$ mm) et un volume de $V = 10$ mL . Une aspérité géométrique cylindrique, représentant la cheminée d'aspiration, de diamètre $D_p = 8$ mm et de hauteur $H_p = 3{,}5$ mm, est placée au centre du fond de la cuve. Le mélangeur est fabriqué en PMMA (*poly(méthacrylate de méthyle)*), un matériau transparent permettant l'observation de l'émulsion à l'aide d'un dispositif optique externe. La turbine est une Rushton en acier inoxydable de diamètre $D = 12$ mm, positionnée à $C = 6$ mm au-dessus du fond du mélangeur. Elle comporte six pales, chacune mesurant $W = 3{,}5$ mm de large, $L = 3$ mm de haut et $e = 0{,}5$ mm d'épaisseur. Les pales sont connectées entre elles par un disque d'épaisseur e, et de diamètre $D_d = 8$ mm. Ce disque est monté sur un arbre de diamètre $D_s = 3$ mm, directement connecté à un moteur. Un schéma du mélangeur reportant ses dimensions est présenté sur la Figure 2.3.



Grandeurs	Longueur [mm]
T	22
H	22
D	12
C	6
D_p	8
H_p	3.5
R	3
W	3.5
L	3
e	0.5
D_d	8
D_s	3

FIGURE 2.3 – Schéma et dimensions du mélangeur d'étude.

.

2.2 Description et caractérisation des liquides utilisés

L'utilisation de certains solvants visqueux apporte de nouvelles contraintes, ne permettant pas d'atteindre le niveau de performance souhaité dans les MD-NG. La diminution de l'efficacité de l'appareil se manifeste principalement par des problèmes de circulation liés à un défaut de pompage, et à l'apparition d'entraînement de phase. Elle peut être attribuée à l'augmentation de la viscosité du solvant lorsqu'il se charge en uranium au cours de l'extraction. Par ailleurs, le procédé de traitement du combustible usé implique une succession de cycles d'extraction et de désextraction, avec des appareils disposés en série et des liquides circulant à contre-courant (voir paragraphe 1.1.2.2). Cela met en jeu des systèmes diphasiques avec une large gamme de concentrations en uranium, se traduisant par une grande variété de viscosités au sein du procédé.

La thèse ne représente qu'un premier volet, se limitant à l'hydrodynamique des phases, en excluant les phénomènes de transfert de matière. Afin de faciliter les manipulations et de limiter les coûts expérimentaux, les liquides réels n'ont pas été utilisés. En effet, ces derniers impliquent de la matière radioactive, et des extractants innovants, difficilement synthétisables. Le choix des liquides s'est donc reporté sur des simulants, afin de reproduire le comportement hydrodynamique des liquides réels. Pour ce faire, la masse volumique, la viscosité et la tension interfaciale ont été ajustées aux valeurs cibles du procédé. Par ailleurs, la viscosité de la phase organique doit rester facilement ajustable, afin de simuler le comportement des fluides à différents points de fonctionnement du procédé, contenant différentes concentrations en uranium.

2.2.1 Sélection des fluides d'intérêt

A l'image des solvants classiquement employés dans les systèmes d'extraction, la phase organique utilisée est constituée du mélange d'un extractant et d'un diluant. Le diluant est lui-même composé d'un mélange de deux isoparaffines, respectivement de basse et haute viscosité. La phase organique est donc constituée des trois composés chimiques suivants :

- l'Isane IP175 (Total Energies), un mélange d'alcanes linéaires ramifiés constitué principalement de chaînes de 11 à 13 atomes de carbone. Il est notamment utilisé dans la formulation de peintures, de revêtements ou de colles adhésives. L'Isane IP175 possède des propriétés similaires à celles du tétra-propylène hydrogéné (TPH), diluant utilisé dans le procédé PUREX. L'Isane IP175 est un liquide transparent inerte, et possède une densité et une viscosité faible, respectivement de $\rho = 758$ kg·m^{-3} à 15°C et $\mu = 1{,}40$ mPa·s à 20°C. Ces propriétés lui permettent à la fois d'augmenter la différence de masse volumique entre le solvant et la phase aqueuse, et de réduire la viscosité du solvant, facilitant ainsi la séparation des phases et leur circulation. A titre de comparaison, l'Isane IP175 possède des propriétés similaires à celles du kérosène, un liquide très couramment utilisé dans la littérature.

- le Marcol 82 (ExxonMobil), un mélange purifié d'hydrocarbures saturés, composé d'alcanes linéaires et cycliques. Il est principalement utilisé dans l'industrie cos-

métique et pharmaceutique. Il possède l'avantage d'être une huile transparente, miscible avec l'Isane IP 175, et surtout d'avoir une viscosité élevée, $\mu = 29{,}6$ mPa·s à 22,5°C. En faisant varier sa proportion dans le solvant, le Marcol 82 permet de moduler facilement la viscosité de la phase organique.

- l'HDEHP (*Bis(2-ethylhexyl) phosphate*, Thermo Fisher Scientific), un acide organophosphoré portant deux chaînes alkyles. Il joue le rôle d'extractant dans de nombreuses applications industrielles, allant du nucléaire à l'extraction de métaux lourds. Dans notre cas d'utilisation, l'HDEHP joue le rôle de tensioactif, permettant d'ajuster la tension interfaciale entre les phases à la valeur souhaitée. Sa concentration dans le mélange a été fixée à $c = 0{,}3$ mol·L^{-1} conformément à la concentration utilisée dans certains procédés d'extraction. Il peut être noté que les valeurs intermédiaires des tensions interfaciales cibles auraient été difficiles à atteindre avec un tensioactif traditionnel. Par ailleurs, l'utilisation de tensioactifs présente certaines limites, notamment leur possible dégradation en présence d'acide.

La phase aqueuse, quant à elle, est un mélange d'eau distillée et d'acide nitrique à une concentration de $c = 0{,}05$ mol $\cdot$ L^{-1}. L'ajout d'une faible concentration d'acide nitrique a permis d'améliorer la répétabilité des expériences (voir Annexe A), et de limiter l'effet des impuretés présentes initialement dans l'eau distillée, ou introduites au cours des préparations et manipulations successives.

Étant donné que les volumes de solution utilisés au cours des expériences sont très faibles - typiquement 10 mL pour la phase continue et 100 µL pour la phase dispersée - les impuretés peuvent fortement influencer les résultats et diminuer drastiquement la reproductibilité des mesures. Ainsi, une attention particulière a été portée sur la préparation des mélanges afin de limiter l'incorporation d'impuretés. Pour cela, un minimum de matériel a été utilisé, et un soin rigoureux a été apporté à la propreté de la verrerie lors de la préparation des mélanges. Les phases organique et aqueuse ont été préparées en proportions équivalentes. Elles ont ensuite été mises en contact volume à volume ($\alpha = 50$ %) pendant 5 à 6 heures avec un agitateur magnétique et un barreau aimanté. En effet, lors d'une émulsification, les deux phases sont susceptibles d'échanger de la matière, notamment en présence d'un extractant comme l'HDEHP. La mise en contact permet d'atteindre l'équilibre thermodynamique entre les deux phases, limitant à la fois la complexation et la solubilisation. Cela permet d'avoir des grandeurs physico-chimiques plus stables au cours du temps, afin que le transfert de matière ne perturbe pas les mécanismes physiques de rupture lors des expériences. Après mise en contact, la séparation des deux phases a été réalisée par une centrifugeuse (permettant d'accélérer la coalescence) et une ampoule à décanter.

2.2.2 Appareils de mesure des propriétés physico-chimiques et incertitudes associées

Après la préparation des solutions, les propriétés physico-chimiques de chaque mélange sont mesurées. La masse volumique a été mesurée avec un densimètre à tube oscillant, le

modèle DMA 4100 M de la marque Anton Paar. L'incertitude de mesure spécifiée par le fabricant est de 0,1 $kg \cdot m^{-3}$.

Les viscosités ont été mesurées à l'aide de deux appareils distincts : le MicroVISC, fourni par RheoSense, et le ViscoQC 100, commercialisé par Anton Paar. Le recours à deux viscosimètres s'explique par l'acquisition d'un nouvel appareil plus performant survenue au cours de la thèse. Les principes de mesure des deux appareils sont différents : le MicroVISC estime la viscosité à partir des pertes de charge le long d'un capillaire parcouru à vitesse constante, alors que le ViscoQC 100 mesure la résistance à la rotation d'un mobile immergé dans le fluide. Afin de contrôler la température pendant les mesures, le MicroVISC a été installé dans un dispositif de régulation thermique fourni par le constructeur, tandis que le ViscoQC 100 est équipé du module PTD 100. RheoSense annonce une incertitude de mesure de 2 %, contre 1 % pour Anton Paar. Pour un mélange de référence, un écart relatif de 5,3 % entre les deux appareils a été observé. Enfin, le comportement newtonien des liquides a été confirmé par des mesures réalisées à différentes vitesses de rotation du mobile.

La tension interfaciale a été mesurée à l'aide de l'appareil KRÜSS DSA30, selon la méthode de la goutte pendante. Pour ce faire, une aiguille contenant la phase aqueuse est immergée dans une phase continue organique. La valeur de la tension interfaciale est déterminée en s'appuyant sur la forme de la goutte, extraite par traitement d'image, ainsi que sur la différence de densité entre les deux phases. Un exemple de mesure réalisée pour différents systèmes liquide-liquide étudiés est présenté à la Figure 2.4. Les mesures de tension interfaciale ont été réalisées à température ambiante. L'incertitude de mesure annoncée par le constructeur est de 2 % de la valeur mesurée.

Enfin, l'indice de réfraction a été mesuré par le réfractomètre Abbemat 550, fabriqué par Anton Paar. Pour cela, un faisceau lumineux est envoyé à travers un prisme en contact avec l'échantillon liquide, et détermine l'indice de réfraction en mesurant l'angle de réfraction limite. Le constructeur annonce une incertitude de mesure de l'appareil à $\pm$ 0,0001.

Au cours des différentes expériences, plusieurs mélanges de compositions identiques ont été préparés. En effet, les propriétés des phases peuvent évoluer entre une solution fraîchement préparée et une autre conservée pendant plusieurs mois dans un flacon. Cela peut être attribué à la volatilité de certains composés chimiques (Isane IP175) contenus dans la phase organique. Par ailleurs, l'équilibre thermodynamique entre les phases peut légèrement évoluer au cours du temps. Enfin, la tension interfaciale est particulièrement sensible à la contamination par des impuretés, qui peuvent être incorporées avec le temps et/ou au cours des manipulations.

Les mesures de chaque grandeur physico-chimique ont été réalisées entre trois et six fois pour chaque système diphasique, puis moyennées. L'estimation de l'incertitude combine une composante de type A (corrigée par un coefficient de Student), liée à la répétabilité des mesures et à la reproductibilité des mélanges, et une composante de type B, correspondant aux erreurs de mesure des appareils. Par ailleurs, l'écart observé entre les deux



FIGURE 2.4 – Tension interfaciale mesurée par la méthode de la goutte pendante pour les systèmes liquide-liquide (a) Isane IP175-Marcol 82 & H_2O-Tween 20 (b) Isane IP175-Marcol 82-HDEHP & H_2O-HNO_3 et (c) Isane IP175-Marcol 82 & H_2O-HNO_3.

viscosimètres a été pris en compte comme une contribution supplémentaire à l'incertitude de type B. L'incertitude globale a été obtenue par combinaison quadratique des différentes contributions.

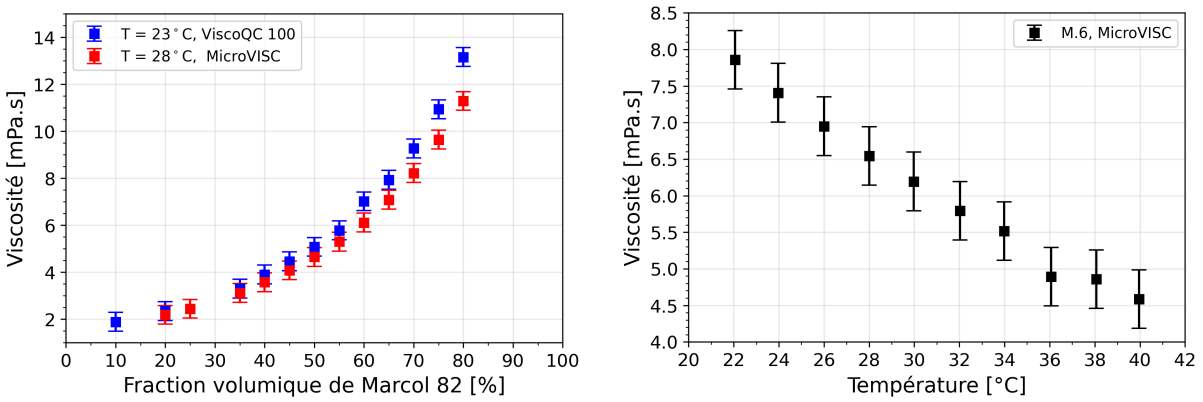
Ainsi, une incertitude de mesure globale de 0,7 kg·m^{-3}, 0,4 mPa·s et 0,5 mN·m^{-1} a été respectivement estimée pour la masse volumique, la viscosité et la tension interfaciale.

2.2.3 Mesure des propriétés physico-chimiques

Cinq mélanges de phase organique ont été préparés, présentant des viscosités comprises entre 2 mPa·s (M.2) et 10 mPa·s (M.10). Le mélange de plus faible viscosité possède des propriétés physico-chimiques similaires à celles du TBP, utilisé actuellement dans le procédé PUREX, tandis que les quatre autres ont été conçus pour simuler le comportement d'un solvant contenant une concentration croissante d'uranium. Pour ajuster le mélange à la viscosité désirée, la proportion de Marcol 82 a été adaptée. La Figure 2.5a expose la viscosité du mélange Isane IP175 - Marcol 82 en fonction de la proportion volumique de Marcol.

Par ailleurs, l'impact de la température sur la viscosité d'une phase organique de référence est illustré sur la Figure 2.5b. La viscosité diminue presque de moitié lorsque la température double, passant de 7,9 mPa·s à 4,6 mPa·s pour une augmentation de température de 22°C à 40°C. Au cours des travaux de thèse, deux études expérimentales ont été menées : la première visant à mesurer des distributions de taille de goutte (Chapitre 3) et la seconde à étudier la rupture de gouttes uniques (Chapitre 4). Chaque expérience étant conduite à des températures différentes, deux séries de mélanges ont été réalisées : la première où la viscosité est ajustée à une température de 28°C (Chapitre 3), alors que la seconde est ajustée à 22°C (Chapitre 4). L'effet de la variation de température a également été mesuré pour la masse volumique, qui diminue de 828,7 kg·m^{-3} à 823,2 kg·m^{-3} entre 22°C et 30°C. Concernant la tension interfaciale, une augmentation de 1 mN·m^{-1} pour une élévation de température de 15°C a été rapportée par Cerino (2024),

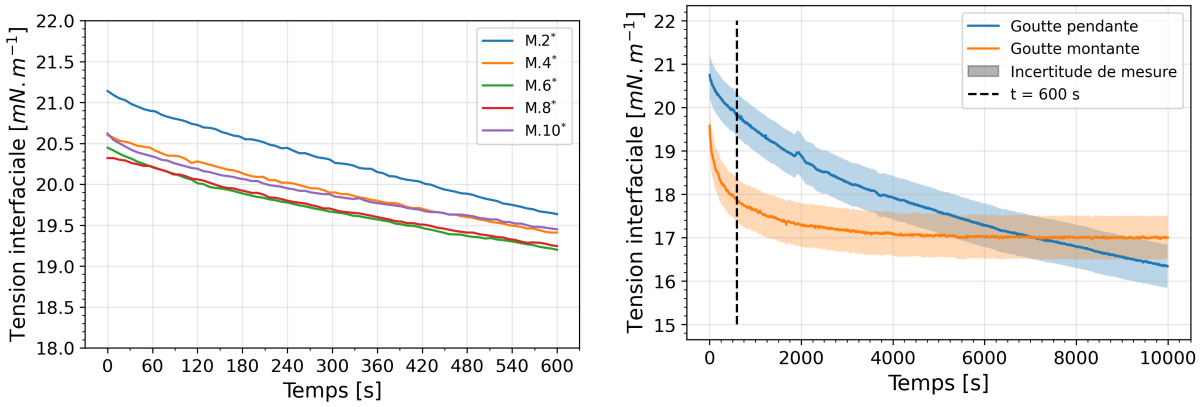
pour des liquides équivalents. La variation de la masse volumique, non prépondérante sur la rupture-coalescence, et de la tension interfaciale avec la température, ont donc été jugées négligeables.



(a) (b)

FIGURE 2.5 – (a) Viscosité du mélange organique en fonction de la fraction volumique de Marcol 82 et (b) viscosité du mélange M.6 en fonction de la température.

Par ailleurs, une attention particulière a été portée à la mesure de la tension interfaciale, car elle a une influence majeure sur les phénomènes de rupture et de coalescence. Afin de laisser se stabiliser l'interface, la norme AFNOR (2004) recommande d'effectuer la mesure au moins cinq minutes après la formation de la goutte. Par souci de rigueur, des mesures ont été enregistrées toutes les 4 secondes, pendant une durée de 10 minutes.



(a) (b)

FIGURE 2.6 – (a) Tension interfaciale des systèmes liquide-liquide utilisées dans le Chapitre 4, mesurée à température ambiante ($T = 22{,}5 \pm 1$ °C) et (b) Tension interfaciale au cours du temps pour le système M.6 à température ambiante ($T = 22{,}5 \pm 1$ °C)

La Figure 2.6a présente la tension interfaciale pour les cinq systèmes diphasiques utilisés dans le Chapitre 4. On observe que, malgré la modification de la proportion de Marcol 82 dans le mélange, la tension interfaciale reste inchangée. L'écart type entre les cinq mélanges organiques est calculé à 0,2 $mN{\cdot}m^{-1}$, ce qui est inférieur à l'incertitude de mesure. Pour les mélanges du Chapitre 3, ce même écart type est mesuré à 0,5 $mN{\cdot}m^{-1}$. Par ailleurs, on remarque sur la Figure 2.6a que la valeur de la tension interfaciale diminue au cours du temps.

Afin d'étudier plus en profondeur ce phénomène, la Figure 2.6b montre l'évolution temporelle de la tension interfaciale pour un système diphasique de référence. Pour une goutte pendante, lorsque la goutte est fraîchement formée, la tension interfaciale est mesurée à 20,7 $mN{\cdot}m^{-1}$. Elle diminue à 20,1 $mN{\cdot}m^{-1}$ après 5 minutes, puis atteint 16,3 $mN{\cdot}m^{-1}$ après 2 heures de mesure. A partir de cet instant, la goutte s'est détachée de l'aiguille, rendant la mesure impossible.

Cette diminution temporelle de la tension interfaciale peut être attribuée à la diffusion progressive de tensioactifs (comme le HDEHP, de nature amphiphile) ou d'impuretés vers l'interface. Ces impuretés peuvent être présentes initialement dans les liquides (Goebel and Lunkenheimer, 1997), introduites lors de la préparation des mélanges, ou encore provenir de l'environnement ambiant. La migration vers l'interface étant régie par le phénomène de diffusion, les liquides visqueux typiquement utilisés tendent à ralentir ce processus, ce qui explique la décroissance lente observée au cours du temps. Cette diminution lente de la mesure est classiquement observée dans la littérature, notamment en présence d'une phase environnante visqueuse (Grace, 1982; Goebel and Lunkenheimer, 1997; Rueger and Calabrese, 2013; Cerino, 2024), où la valeur à l'équilibre est souvent extrapolée par des modèles.

La même mesure a été réalisée par la méthode de la goutte montante, basée sur le même principe, mais avec une inversion des phases : une goutte de phase organique est formée dans une phase environnante aqueuse, au lieu d'une goutte aqueuse dans une phase environnante organique. Avec cette méthode, la tension interfaciale diminue rapidement, passant de 19,58 $mN{\cdot}m^{-1}$ à une valeur stationnaire de 17,34 $mN{\cdot}m^{-1}$ en 30 minutes (Figure 2.6b). En effet, dans le cas de la goutte montante, la quantité de tensioactif disponible est non seulement plus faible, mais également localisée plus près de l'interface. Ceci explique la diminution initiale plus rapide, ainsi que la valeur finale plus élevée obtenue.

TABLE 2.1 – Tension interfaciale en fonction de la concentration d'HDEHP dans le mélange organique à température ambiante ($T = 22{,}5 \pm 1$ °C).

Concentration d'HDEHP [$mol{\cdot}L^{-1}$]	0,15	0,3	0,6
σ [$mN{\cdot}m^{-1}$]	20,09 ± 0,5	19,12 ± 0,5	19,08 ± 0,5

Par ailleurs, des mesures ont été réalisées avec différentes concentrations d'HDEHP, afin de vérifier que la concentration micellaire critique (CMC) était atteinte. Au-delà

de cette concentration, l'interface est saturée en tensioactif. L'ajout supplémentaire de tensioactif n'affecte plus la valeur de la tension interfaciale, mais conduit à la formation de micelles. D'après Kumar et al. (1991), une concentration trop faible en tensioactif peut entraîner l'apparition de gradients de concentration à l'interface, susceptibles d'influencer la dynamique de rupture.

Le Tableau 2.1 montre que la tension interfaciale est identique pour des concentrations en HDEHP de 0,3 $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ et 0,6 $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$, indiquant que la concentration micellaire critique est atteinte. Cela permet de s'assurer que la tension interfaciale est plus stable, ce qui contribue à réduire les phénomènes interfaciaux comme l'effet Marangoni, caractérisé par des gradients locaux de tension interfaciale dus à des variations de concentration en tensioactif (Carrillo De Hert and Rodgers, 2019).

Ainsi, les résultats précédents mettent en lumière plusieurs questions concernant la mesure de la tension interfaciale. D'une part, la physique des interfaces est complexe, notamment en présence de tensioactifs (ou d'extractants). D'autre part, les conditions expérimentales lors des mesures diffèrent sensiblement de celles rencontrées dans le mélangeur. En effet, lors des mesures, la migration du tensioactif vers l'interface est principalement gouvernée par la diffusion, tandis que, dans le mélangeur, la convection induite par la turbine peut accélérer ce processus. Par ailleurs, les différences de taux de rétention entre les deux configurations impliquent des quantités de tensioactif disponibles pour une interface différente, pouvant modifier la valeur de tension interfaciale.

Dans le cadre de cette étude, les mesures de tension interfaciale ont été réalisées dans les mêmes conditions pour tous les systèmes diphasiques, à l'aide de la méthode de la goutte pendante, avec une mesure effectuée 10 minutes après la formation de la goutte. Par ailleurs, les mélanges ont été préparés de manière à isoler le phénomène de rupture, en minimisant autant que possible les autres phénomènes physiques tels que le transfert de matière (complexation et solubilisation), ainsi que l'effet Marangoni.

TABLE 2.2 – Propriétés physico-chimiques des mélanges organiques (Isane IP175 - Marcol 82 - HDEHP) utilisés dans le Chapitre 3 : la masse volumique, la tension interfaciale et l'indice de réfraction ont été mesurés à 25°C, et la viscosité à 28°C.

Mélange	Marcol 82 dans Isane IP175 [%]	ρ [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]	μ[1][mPa·s]	σ [$\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$]	n [-]	Re[2][-]
M.2	20	792,9	2,2	18,5	1,433	1030
M.4	45	813,6	4,0	19,6	1,443	580
M.6	62	827,5	6,5	19,5	1,450	365
M.8	70	834,4	8,3	19,9	1,453	290
M.10	80	840,4	9,9	19,5	1,456	245

[1] Mesuré avec le MicroVISC RheoSense.

[2] Valeur approchée pour $N = 1200$ rpm à 28°C, en raison de la légère variation de la masse volumique avec la température.

Les propriétés physico-chimiques des cinq mélanges organiques de chaque série d'expériences sont présentées dans le Tableau 2.2 et 2.3. Les propriétés des phases aqueuses sont, quant à elles, exposées dans le Tableau 2.4. Pour chaque mélange organique, une phase aqueuse spécifique lui a été associée par mise en contact. Il a été vérifié que toutes les phases aqueuses utilisées présentaient des propriétés physico-chimiques équivalentes. Enfin, les tableaux présentent les nombres de Reynolds (Eq. 1.1) pour chaque viscosité de phase continue. Ces derniers ont été déterminés pour une vitesse de rotation fixe, à $N = 1200$ rpm.

TABLE 2.3 – Propriétés physico-chimiques à 22°C des mélanges organiques (Isane IP175 - Marcol 82 - HDEHP) utilisés dans le Chapitre 4.

Mélange	Marcol 82 dans Isane IP175 [%]	ρ [kg·m^{-3}]	μ[3][mPa·s]	σ [mN·m^{-1}]	n [-]	Re[4][-]
M.2*	10	785,7	1,8	19,6	1,429	1260
M.4*	40	810,2	3,9	19,4	1,441	600
M.6*	57.5	825,5	6,3	19,2	1,448	380
M.8*	65	832,0	8,1	19,2	1,452	295
M.10*	72.5	837,9	10,3	19,4	1,454	235

[3] Mesuré avec le viscoQC 100 d'Anton Paar.
[4] Pour $N = 1200$ rpm à 22°C

TABLE 2.4 – Propriétés physico-chimiques de la phase aqueuse (H_2O-HNO_3).

Chapitre d'utilisation	ρ [kg·m^{-3}]	Température de mesure de ρ	μ[5][mPa·s]	Température de mesure de μ	n [-]
Chapitre 3	999,2	25	0,8	28	1,333
Chapitre 4	999,7	22	1	22	1,333

[5] Mesuré avec le viscoQC 100 d'Anton Paar.

2.3 Estimation des diamètres de gouttes responsables des entraînements de phase

2.3.1 Introduction

Le rôle principal du décanteur est de séparer les deux phases suite à leur émulsification dans le mélangeur. Les mélangeurs-décanteurs utilisent un décanteur gravitaire, où la séparation des deux phases est régie par deux phénomènes : la sédimentation et la coalescence. Un schéma du décanteur est présenté sur la Figure 2.7.

L'émulsion arrive dans le décanteur par la surverse du mélangeur. Une plaque de rabattement la dirige ensuite vers le front de coalescence. Le front de coalescence correspond

à une couche d'émulsion, dans laquelle les gouttes coalescent progressivement avant de former de nouveau une phase continue (Figure 2.8). Le front de coalescence est généralement de forme triangulaire, avec une épaisseur plus fine en aval qu'en amont. Sous l'effet des débits imposés, les deux phases sont poussées vers leurs sorties respectives, situées de part et d'autre du décanteur. L'émulsion traverse une grille de coalescence, en amont de la sortie, fabriquée avec un matériau qui a une affinité avec la phase dispersée (hydrophile en FOC, lipophile en FAC). Cette grille permet notamment de capturer les gouttes qui échappent au front de coalescence, et *in fine*, de limiter les phénomènes d'entraînement.

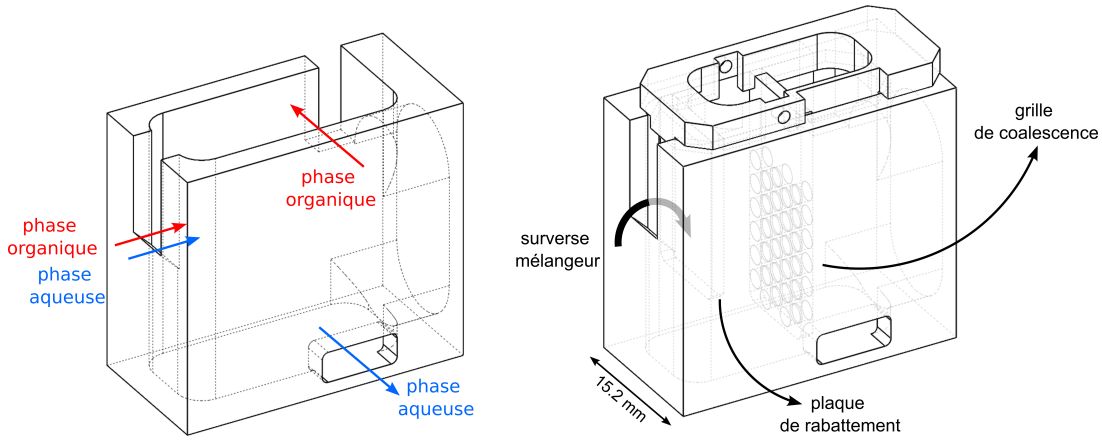


FIGURE 2.7 – Schéma 3D du décanteur des MD-NG.

Pour un fonctionnement optimal, les deux phases doivent être totalement séparées à l'issue de la décantation. En pratique, la séparation est rarement parfaite et une petite fraction de chaque phase peut se retrouver dans la sortie opposée : c'est ce que l'on appelle l'entraînement de phase. Dans un procédé d'extraction, un entraînement est généralement considéré comme acceptable lorsque moins de 0,1% de volume se retrouve dans la mauvaise sortie du décanteur.

Comme expliqué dans la section 1.1.4, deux phénomènes physiques peuvent être la cause d'une mauvaise décantation : des problèmes de sédimentation ou de coalescence. Premièrement, une goutte peut être transportée par l'écoulement de la phase continue, au lieu de rejoindre le front de coalescence et de revenir dans sa phase d'origine. Deuxièmement, si le temps nécessaire à la coalescence est trop long, le front de coalescence peut s'épaissir jusqu'à atteindre les sorties organique ou aqueuse, entraînant alors un débordement d'émulsion. D'après des observations visuelles en laboratoire, les problèmes de coalescence ne semblent pas être la cause principale des entraînements au sein des MD-NG.

Ainsi, l'objectif de cette section est de quantifier les entraînements de phase synonyme d'une mauvaise sédimentation. Plus précisément, il s'agit de déterminer le diamètre des gouttes susceptibles d'être entraînées, et ce, pour différentes viscosités de phase continue organique. Pour cela, deux approches ont été utilisées : une approche balistique, plus théorique, permettant une compréhension physique de la trajectoire des gouttes dans le

décanteur, puis une modélisation plus fine par mécanique des fluides numérique (CFD), afin de mieux représenter l'écoulement de la phase continue et d'avoir une estimation des taux d'entraînement plus précise.

L'étude a été menée uniquement en régime FOC (Fonctionnement Organique Continu), où les problèmes d'entraînement (aqueux dans organique) sont les plus critiques. Dans ce régime, l'entraînement résulte principalement du transport de petites gouttes de phase aqueuse par l'écoulement ascendant de la phase organique. En amont de la plaque de rabattement, l'émulsion arrive de la surverse et suit une trajectoire descendante : cette région n'a donc pas d'effet sur l'entraînement, et seule la partie en aval de la plaque de rabattement a été étudiée. Par ailleurs, un débit constant de 150 mLh^{-1} de phase organique a été employé pour l'ensemble de l'étude. Ce débit correspond à ceux classiquement utilisés au sein des MD-NG. Enfin, la position de l'interphase a été supposée à mi-hauteur du décanteur, à 13 mm du fond. L'épaisseur de front de coalescence a été estimée à 4 mm, à partir d'observations visuelles expérimentales. Un schéma de la géométrie étudiée et de ses dimensions dans cette section est présenté sur la Figure 2.8.

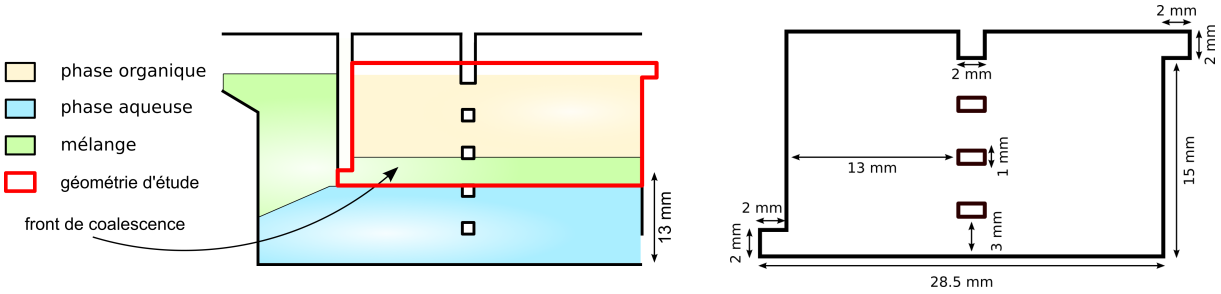


FIGURE 2.8 – Représentation simplifiée du décanteur en 2D (à gauche) et géométrie simulée par CFD et ses dimensions (à droite).

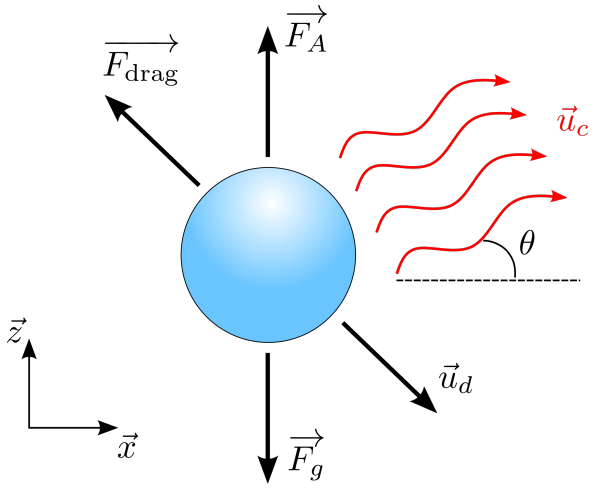
2.3.2 Approche balistique

Afin d'estimer la taille des gouttes responsables des entraînements de phase, une première approche analytique a été adoptée. Cette dernière repose sur un bilan des forces s'exerçant sur une goutte dans un fluide en mouvement. Trois forces agissant sur le mouvement d'une goutte ont été considérées : la force gravitationnelle, la poussée d'Archimède et la force de traînée. Les forces radiales (portance), transitoires (masse virtuelle, Basset) et de pression n'ont pas été prises en compte ici. Leur influence a été jugée négligeable dans le décanteur. La force de traînée s'exprime, dans sa forme générale, par :

$$F_{\text{drag}} = \frac{1}{2}\rho_c A C_D \left(u_d - u_c\right)^2 \tag{2.1}$$

avec A la surface projetée d'une goutte, et C_D son coefficient de traînée. Ce dernier dépend notamment de la forme de la goutte, ou encore du nombre de Reynolds. Dans le cas où le nombre de Reynolds particulaire Re_p (voir Eq. 1.53) est très inférieur à 1 (ou $\sim$ 1), il est possible d'appliquer la loi de Stokes. En effet, dans ce type d'écoulement, la résistance

du fluide est dominée par les forces visqueuses plutôt que par les forces inertielles. Ainsi, la loi de Stokes permet de simplifier l'expression de la force de traînée, pour des gouttes de petites tailles dans un écoulement visqueux. Un bilan des forces s'exerçant sur une goutte dans le décanteur est présenté sur la Figure 2.9. Les forces ont été décomposées selon l'axe horizontal $\vec{x}$ et l'axe vertical $\vec{z}$. La vitesse de la phase continue $\vec{u}_c$ est supposée rectiligne, uniforme, et dirigée vers la sortie organique. L'angle θ représente l'angle entre l'interphase et la surverse de la phase organique à partir de la plaque de rabattement. La vitesse d'une goutte est dénommée $\vec{u}_d$.



Bilan des forces :

$$\begin{cases} \overrightarrow{F_g} = -\rho_d V g\, \vec{z} \\ \overrightarrow{F_A} = \rho_c V g\, \vec{z} \\ \overrightarrow{F_{\text{drag}}} = -3\pi\mu_c d(\vec{u}_d - \vec{u}_c) \end{cases}$$

avec :

$$\vec{u}_d = u_x\vec{x} + u_z\vec{z}$$
$$\vec{u}_c = u_c\cos(\theta)\vec{x} + u_c\sin(\theta)\vec{z}$$

FIGURE 2.9 – Bilan des forces exercées sur une goutte dans un fluide en mouvement.

En appliquant le principe fondamental de la dynamique, il est possible de décrire l'évolution de la vitesse et de la position des gouttes au cours du temps :

$$\begin{cases} u_x(t) = u_c\cos(\theta)\left(1 - e^{-t/\tau}\right) \\ u_z(t) = \left(g_{\text{eff}}\tau + u_c\sin(\theta)\right)\left(1 - e^{-t/\tau}\right) \end{cases} \tag{2.2}$$

$$\begin{cases} x(t) = u_c\cos(\theta)\left[t - \tau(1 - e^{-t/\tau})\right] \\ z(t) = \left(g_{\text{eff}}\tau + u_c\sin(\theta)\right)\left[t - \tau(1 - e^{-t/\tau})\right] \end{cases} \tag{2.3}$$

avec :

- $\tau = \dfrac{d^2\rho_d}{18\mu_c}$ un temps caractéristique,
- $g_{\text{eff}} = \left(\dfrac{\rho_c}{\rho_d} - 1\right) g$ l'accélération gravitationnelle effective.

La vitesse de la phase continue a été calculée à $u_c = 1{,}83 \times 10^{-4}$ m·s^{-1}. Elle a été déterminée pour un débit de phase organique uniforme, de 150 mL·h^{-1}, et à partir de la largeur du décanteur, et de la hauteur de la phase organique dans ce dernier. Par ailleurs, l'angle θ entre l'interphase à partir de la plaque de rabattement et la surverse de la phase organique a été évalué à 24,5° (Figure 2.9).

A partir de la vitesse verticale en régime permanent (Eq. 2.2), et de la vitesse de phase continue, le nombre de Reynolds particulaire a été estimé à $Re_p = 0{,}15$ pour une goutte de 200 µm dans la phase organique la moins visqueuse (M.2). Les gouttes supérieures à 200 µm ne sont pas étudiées ici, car ces dernières ne semblent pas être impliquées dans les entraînements. L'hypothèse de Stokes est donc valide, y compris pour les autres phases liquides, plus visqueuses.

Par ailleurs, en l'absence d'écoulement de la phase continue ($u_c = 0$), et en régime permanent ($t \to \infty$), on reconnaît dans l'expression de u_z l'expression de la vitesse terminale de chute u_t d'une particule en régime de Stokes. La vitesse terminale de chute correspond à la vitesse maximale qu'un objet atteint lorsqu'il tombe dans un fluide, sous l'influence de la gravité. En effet, en régime permanent, la vitesse verticale d'une goutte est définie comme :

$$u_z = \frac{(\rho_c - \rho_d)d^2 g}{18\mu_c} + u_c \sin(\theta) = u_t + u_c \sin(\theta) \tag{2.4}$$

Par la suite, la trajectoire d'une goutte d'eau en fonction de son diamètre est représentée sur la Figure 2.10. Cette trajectoire est exposée pour les cinq mélanges de phase organique de viscosité croissante, de M.2 ($\mu = 2{,}2$ mPa·s) à M.10 ($\mu = 9{,}9$ mPa·s). Leurs propriétés physico-chimiques sont reportées dans le Tableau 2.2. Uniquement le compartiment après la plaque de rabattement du décanteur est représenté ici. Les gouttes sont considérées comme étant initialement positionnées à $z_0 = 13$ mm. Cette hauteur correspond à la hauteur des gouttes à l'entrée du décanteur, sous la plaque de rabattement (voir Figure 2.8). Sur la Figure 2.10, l'interphase est représentée en pointillées, et les parois du décanteur par une ligne continue. La sortie aqueuse se situe à droite du décanteur, entre $z = 0$ mm et $z = 5$ mm et la sortie organique à une hauteur de $z \geq 26$ mm. Enfin, les trajectoires des gouttes dans la phase aqueuse (sous les pointillés) n'ont pas de réel sens physique, mais sont tout de même représentées afin de faciliter la compréhension des graphiques.

D'après la Figure 2.10, plus le diamètre d'une goutte d'eau est grand, moins elle a de chances d'être entraînée vers la sortie du décanteur organique. Pour le mélange M.2, par exemple, les gouttes de 100 µm présentent une trajectoire descendante : elles restent donc à l'interphase, où elles peuvent coalescer avec elle. En revanche, en deçà d'un diamètre de 30 µm, les gouttes sont entraînées par l'écoulement continu et adoptent une trajectoire ascendante. Leur poids n'est plus suffisant pour qu'elles décantent. En effet, plus le diamètre d'une goutte est petit, plus sa vitesse terminale est faible. Il est donc plus facile pour l'écoulement de l'entraîner.

Par ailleurs, l'augmentation de la viscosité de la phase continue se traduit par un entraînement de gouttes de plus en plus grandes. En effet, le diamètre au-delà duquel les gouttes n'atteignent plus le front de coalescence passe de 30 µm pour M.2, à 70 µm pour M.6, puis à 90 µm pour M.10. Cette tendance s'explique par l'accroissement de la force de traînée lorsque la viscosité de la phase continue augmente, ce qui favorise l'entraînement des gouttes par l'écoulement de la phase environnante. En effet, l'augmentation de la

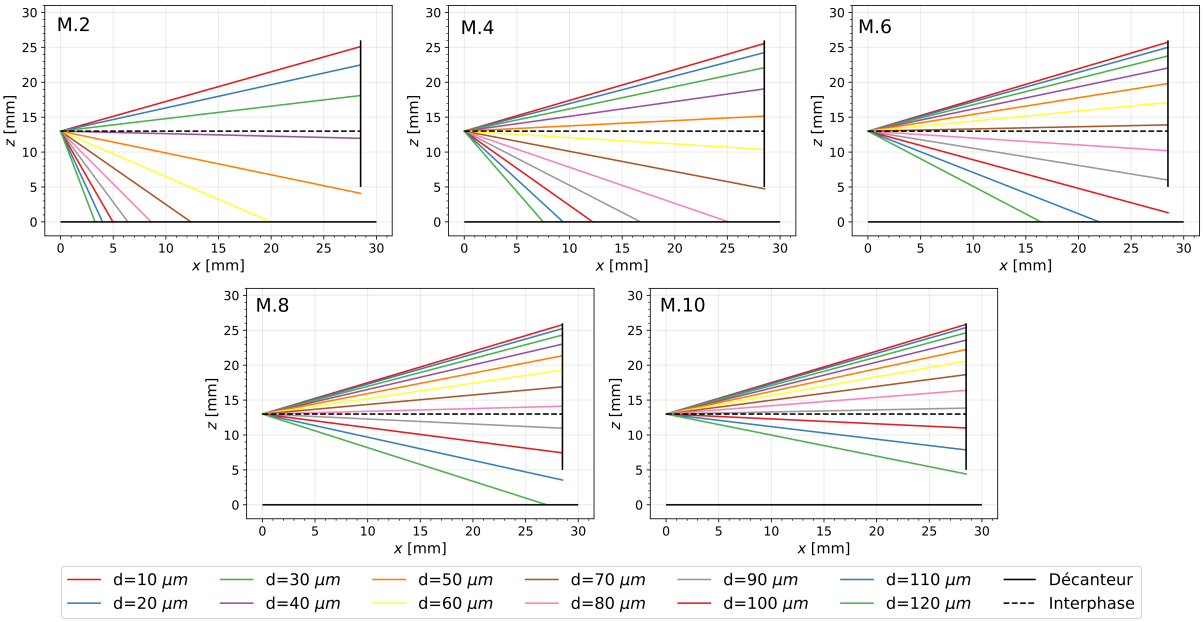


FIGURE 2.10 – Trajectoire d'une goutte d'eau en fonction de son diamètre pour différentes viscosités de phase organique continue : (—) parois du décanteur et (- - -) interphase.

viscosité de la phase continue tend à diminuer la vitesse terminale de chute. De plus, d'après la Figure 2.10, la viscosité de la phase continue n'a pas d'influence majeure sur la trajectoire des petites gouttes $d < 20$ µm : elles semblent entraînées, quelle que soit la viscosité.

Enfin, le temps nécessaire pour qu'une goutte atteigne 99 % de sa vitesse terminale est d'environ 5τ. Par exemple, pour une goutte d'eau de 120 µm, dans une phase continue organique M.2, ce temps est de l'ordre de 2 ms. Ce temps est négligeable devant le temps de décantation, de l'ordre de la minute : une goutte atteint donc presque instantanément sa vitesse terminale.

D'après la Figure 2.10, un nombre important de diamètres de gouttes ne parvient ni à atteindre l'interphase ni la surverse organique. On peut toutefois considérer qu'une goutte est entraînée si elle ne rejoint jamais le front de coalescence. Cela revient à considérer qu'une goutte est entraînée si elle possède une vitesse verticale positive, c'est-à-dire lorsque :

$$g_{\text{eff}}\tau + u_c \sin(\theta) > 0 \tag{2.5}$$

Il est donc possible d'exprimer le diamètre critique à partir duquel une goutte sera entraînée par l'écoulement ascendant continu $d_b^\star$:

$$d_b^\star = \sqrt{\frac{18\mu_c}{(\rho_d - \rho_c)g} u_c \sin(\theta)} \tag{2.6}$$

Ainsi, d'après l'équation 2.6, une augmentation du débit (traduit par une augmentation de la vitesse continue), une augmentation de la viscosité de la phase continue, et une diminution du rapport de masse entre les phases tendent à augmenter le diamètre des gouttes entraînées $d_b^\star$. Cela confirme bien les observations de la Figure 2.10. Le diamètre critique pour chaque viscosité de phase continue, obtenu par une approche balistique, est présenté dans le Tableau 2.5.

TABLE 2.5 – Diamètres critiques à partir desquels une goutte de phase aqueuse est entraînée à la sortie du décanteur organique (estimé pour un débit de phase organique de 150 $\mathrm{mL \cdot h^{-1}}$).

Mélange	**M.2**	**M.4**	**M.6**	**M.8**	**M.10**
$d_b^\star$ [µm]	38,5	54,7	72,5	83,7	93,1
$d_{\mathrm{CFD}}^\star$ [µm]	42	60	80	90	100

Ainsi, la modélisation de la trajectoire de goutte présentée ci-dessus permet d'avoir une première idée des tailles de gouttes responsables des entraînements. Elle permet, par ailleurs, de mieux appréhender les phénomènes physiques derrière cette problématique. Néanmoins, cette approche reste simplifiée par rapport au fonctionnement réel du décanteur. En effet, la vitesse de la phase continue a été modélisée comme constante rectiligne uniforme et dirigée vers la surverse organique. Cette hypothèse reste discutable, d'autant plus en présence d'une grille de coalescence. D'autre part, il est difficile de conclure pour les tailles de goutte qui n'atteignent ni le front de coalescence ni la surverse organique. Cela vient du fait de la méconnaissance de l'écoulement à la fin du décanteur, près de la surverse. Ainsi, dans un second temps, l'écoulement dans le décanteur a été modélisé par CFD avec OpenFOAM, afin d'avoir une meilleure compréhension de l'écoulement de la phase continue et de ses vitesses ascendantes. Cela permettra d'estimer plus finement la taille des gouttes responsables des entraînements de phases.

2.3.3 Approche CFD

2.3.3.1 Matériels et méthodes

La géométrie simulée par CFD est présentée sur la Figure 2.8, à droite. L'écoulement dans le décanteur étant principalement unidirectionnel, l'écoulement transversal a été considéré comme négligeable. Ainsi, les simulations ont été réalisées en 2D, dans le plan central du décanteur. Il est supposé que la trajectoire obtenue dans le plan central du décanteur correspond à la trajectoire moyenne d'une goutte de diamètre d. En effet, en fonction de la position de la goutte selon l'axe transverse (perpendiculaire au plan 2D), sa trajectoire réelle peut être légèrement différente de celle prédite par la simulation, car la phase organique s'échappe sur un côté du décanteur (voir Figure 2.7).

Dans la littérature, les décanteurs sont généralement modélisés par une approche Euler-Euler, où les gouttes sont considérées comme des sphères rigides de tailles fixes

(Sadeghi et al., 2011; Lane et al., 2016; Ye et al., 2016, 2020). La coalescence est en effet très rarement modélisée. Par ailleurs, le décanteur est caractérisé par des vitesses d'écoulement faibles. Il a été observé que l'écoulement du « lit » de phase aqueuse (en bleu sur la Figure 2.8) a très peu d'influence sur l'écoulement de la phase organique. C'est également ce qui a été observé au cours de simulations CFD diphasiques préalables.

Ainsi, à l'instar de la section présente, uniquement l'écoulement au sein de la phase organique en aval de la plaque de rabattement a été simulé (voir Figure 2.8, à droite). La géométrie utilisée comporte une entrée de phase organique à gauche, représentant la zone située sous la plaque de rabattement dans le décanteur, et une sortie en haut à droite, correspondant à la surverse organique. Afin de simplifier la condition de surverse, la hauteur de la phase organique a été légèrement augmentée de 2 mm. Par ailleurs, la sortie a été prolongée de 2 mm. En moyenne, l'interphase se situe à mi-hauteur du décanteur, soit à 13 mm du fond. En tenant compte du front de coalescence (dispersion de phase aqueuse dans la phase organique), estimé à 4 mm d'épaisseur, la hauteur de phase organique prise en compte dans la simulation est de 15 mm. La géométrie inclut également une grille de coalescence perforée et régulière, constituée de trous de 3 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur, espacés entre eux de 1 mm. La grille de coalescence est positionnée à 13 mm de la plaque de rabattement, conformément à la position de la grille de coalescence hydrophile utilisée dans les MD-NG.

La géométrie présentée sur la Figure 2.8 a été discrétisée par un maillage structuré et régulier, composé de 48 250 cellules, avec une taille de maille $\Delta x = 100$ µm. Ce maillage permet de représenter l'entrée et la sortie avec 20 cellules chacune, et la hauteur de l'entrefer de la grille de coalescence avec 30 cellules. Un maillage plus fin, avec une résolution quatre fois plus grande (193 000 cellules), a également été testé, sans impact significatif sur les résultats obtenus.

Une vitesse constante de $1{,}4 \times 10^{-3}$ $\mathrm{m \cdot s^{-1}}$ a été fixée en entrée. Cette vitesse a été calculée de manière à reproduire un débit de 150 $\mathrm{mL \cdot h^{-1}}$ de phase organique s'écoulant uniformément de part et d'autre de la plaque de rabattement. Elle est donc légèrement supérieure à celle estimée dans la section 2.3.2, qui représente une vitesse moyenne de la phase organique, entre la plaque de rabattement et la sortie organique. On note que pour une phase organique peu visqueuse (M.2), le nombre de Reynolds à l'entrée est de l'ordre de l'unité, justifiant l'écoulement laminaire dans le décanteur. Une augmentation de la viscosité de la phase continue diminue le nombre de Reynolds, validant le régime laminaire pour toutes les viscosités étudiées. En sortie, une condition de Dirichlet a été imposée pour la pression et une condition de Neumann pour la vitesse.

Pour modéliser la trajectoire des gouttes dans le décanteur, des particules avec inertie ont été utilisées. Ces particules possèdent une masse et leur mouvement est gouverné par la deuxième loi de Newton. Les forces externes qui agissent sur ces particules sont la gravité, la poussée d'Archimède et la force de traînée. Le coefficient de traînée est modélisé à partir d'une variante empirique du modèle de Schiller and Naumann (1935) (voir Eq. 1.54). Ce dernier est valable pour des particules sphériques, sans déformation. A l'image de la section précédente, les forces radiales, transitoires et de pression ont été supposées négligeables. La modélisation adoptée implique que les gouttes sont uniquement

transportées par l'écoulement et n'exercent aucune influence ni sur le champ d'écoulement, ni entre elles (*one-way coupling*). Les phénomènes de coalescence ne sont donc pas représentés dans la modélisation.

Enfin, une condition de non-glissement (*no-slip*) a été imposée sur l'ensemble des parois du décanteur. La collision entre les particules et les parois a été modélisée selon trois approches. Dans un premier temps, une condition *stick* a été appliquée pour la collision particule-grille de coalescence. Cette condition impose une vitesse nulle à la particule lorsqu'elle entre en contact avec la grille. Cela permet de représenter le caractère hydrophile de cette dernière. Ensuite, une condition *escape* a été appliquée à la sortie de la phase organique, autorisant la sortie des gouttes du domaine. Enfin, le contact avec les autres parois du décanteur a été modélisé comme un rebond parfaitement élastique, c'est-à-dire sans aucune perte d'énergie cinétique : la vitesse des particules est identique avant et après la collision.

Une fois que l'écoulement de la phase continue a atteint un régime stationnaire, 1000 gouttes de chaque diamètre d sont introduites sous la plaque de rabattement. Les diamètres des gouttes injectées ont été discrétisés par pas de 10 µm, et possèdent des tailles allant de 10 à 120 µm. La probabilité d'entraînement est déterminée comme le rapport entre le nombre de gouttes de diamètre d sortant du domaine et le nombre total de gouttes de diamètre d injectées. Cela permet de déterminer la probabilité qu'une goutte de diamètre d soit entraînée. Les simulations ont été réalisées pour les cinq viscosités de phase continue organique, dont les propriétés sont affichées dans le Tableau 2.2. Elles ont été réalisées pendant 15 minutes de temps physique.

Pour le modèle numérique, le solveur *incompressibleFluid* d'OpenFOAM 11 a été adopté dans les simulations. Ce dernier permet de résoudre des écoulements isothermes incompressibles turbulents et transitoires (ou stationnaires). La simulation a été résolue en utilisant l'algorithme PIMPLE (PISO-SIMPLE). Les calculs ont été lancés avec un pas de temps initial de $\Delta t = 10^{-2}$ s et avec un nombre de courant (voir Eq. 5.1) $Co = 0{,}5$. Par ailleurs, la pression a été calculée avec la méthode *multi-grid GAMG* et la vitesse avec la méthode Gauss-Seidel. Pour la résolution temporelle, un schéma d'Euler de premier ordre a été utilisé. En ce qui concerne la résolution spatiale, un schéma Gauss *linearUpwind* a été adopté pour le terme de la convection, tandis que des schémas Gauss *linear* ont été choisis pour tous les autres termes.

2.3.3.2 Résultats et discussion

Dans un premier temps, la norme de la vitesse en régime permanent d'une phase organique M.10 continue est présentée sur la Figure 2.11a. Aucune différence notable sur les vitesses n'a été observée lors du changement de la viscosité de la phase continue. La géométrie présente deux maximas de vitesse, de norme $2{,}1 \times 10^{-3}$ m·s^{-1}, une à l'entrée et l'autre à la sortie du décanteur. Ces derniers sont notamment dus au fait que la section est plus étroite dans ces deux régions par rapport au reste du décanteur. De plus, deux zones mortes sont observées en haut à gauche et en bas à droite du décanteur, avec des magnitudes de vitesse inférieures à 10^{-5} m·s^{-1}.

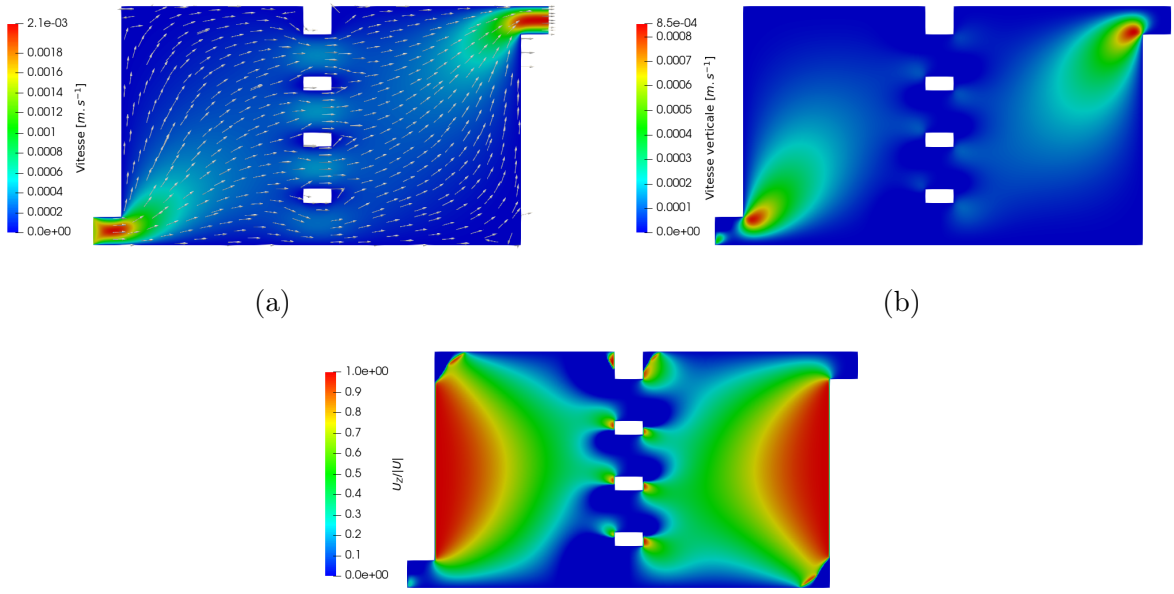


FIGURE 2.11 – (a) Norme de la vitesse de la phase continue en régime permanent, (b) vitesse verticale ascendante de la phase continue ($u_z > 0$) en régime permanent et (c) rapport entre la vitesse verticale ascendante et la norme de vitesse.

La distribution spatiale de la vitesse verticale en régime permanent est présentée sur la Figure 2.11b. Uniquement les vitesses ascendantes sont représentées, c'est-à-dire lorsque $u_z > 0$. Il est constaté que, en aval de la plaque de rabattement et en amont de la surverse, les vitesses ascendantes sont très importantes, avec des valeurs maximales de $8{,}5 \times 10^{-3}$ m·s^{-1}. La Figure 2.11b met également en lumière que l'écoulement ascendant en aval de la plaque de rabattement n'est pas uniforme le long de la direction verticale : si une goutte se situe initialement près de l'interphase (partie inférieure de la géométrie simulée), elle ne subira pas l'écoulement ascendant de la phase continue. La position des gouttes sous la plaque de rabattement semble donc essentielle, et peut avoir une influence majeure sur la capacité d'une goutte à être entraînée.

La Figure 2.11c illustre, quant à elle, le rapport entre la vitesse verticale ascendante (Figure 2.11b) et la norme de la vitesse (Figure 2.11a). Elle démontre que l'écoulement dans le décanteur peut être décomposé en trois parties : un écoulement majoritairement vertical et ascendant en aval de la plaque de rabattement, puis un écoulement purement horizontal au centre du décanteur à travers la grille de coalescence, et de nouveau un écoulement vertical et ascendant en amont de la surverse. Ainsi, la vitesse ascendante de la phase continue n'est pas constante, rectiligne et uniforme, comme supposé dans l'approche balistique. Toutefois, la vitesse moyenne au centre du décanteur (3×10^{-4} m·s^{-1}) est du même ordre de grandeur que la vitesse estimée dans la partie précédente ($1{,}8 \times 10^{-4}$ ms^{-1}).

Dans un second temps, la trajectoire des particules dans l'écoulement a été analysée. La Figure 2.12 illustre un exemple du mouvement de particule d'eau de 70 µm de diamètre dans une phase continue organique de viscosité M.6.

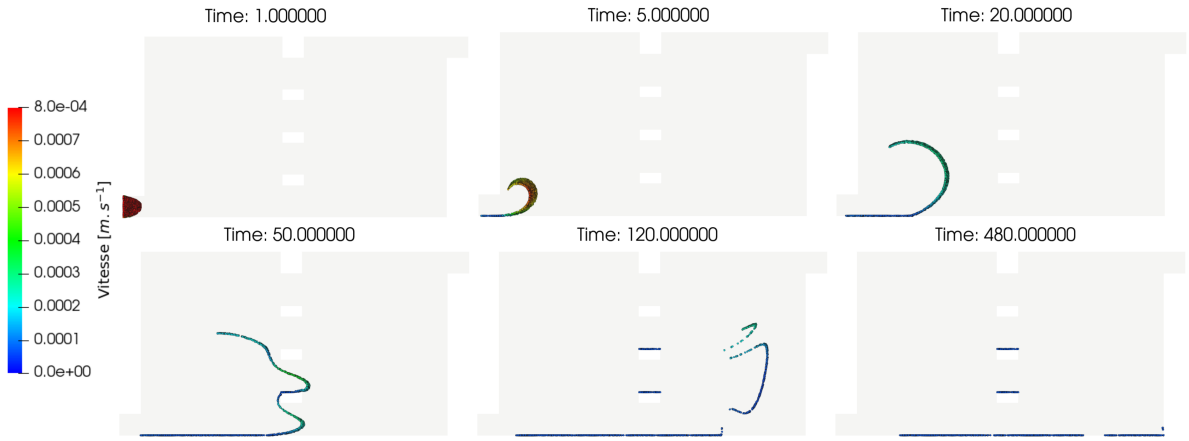


FIGURE 2.12 – Trajectoire de 1000 gouttes de phase aqueuse de 70 µm de diamètre au cours du temps (en secondes), dans une phase continue organique M.6.

Comme supposé précédemment, il est observé que la trajectoire des particules dépend fortement de leur position initiale sous la plaque de rabattement. Les particules situées à proximité de l'interphase à l'entrée de la géométrie ont tendance à rester proches de celle-ci. A l'inverse, les particules positionnées initialement plus haut sont davantage entraînées verticalement en aval de la plaque de rabattement, et *in fine* ont tendance à être aspirées vers la surverse organique. Il est noté que certaines gouttes restent piégées dans l'entrefer de la grille de coalescence. Cette dernière joue donc bien son rôle, et permet de limiter l'entraînement des particules. En effet, dans l'entrefer des grilles, l'écoulement est majoritairement horizontal et ne présente quasiment aucune composante ascendante. Les gouttes suivent donc une trajectoire descendante sous l'effet de la gravité et se déposent naturellement sur la grille. Les vitesses près des parois étant faibles, l'aspiration des gouttes déposées est limitée, favorisant leur accumulation dans l'entrefer. Celles-ci auront tendance à coalescer, puis à décanter, car leur poids sera plus important après coalescence.

Le temps de séjour des particules varie selon leur trajectoire. La majorité des particules entraînées possèdent un temps de séjour dans le décanteur inférieur à 3 minutes. Toutefois, certaines gouttes peuvent rester en suspension jusqu'à 10 minutes avant d'être entraînées dans la surverse organique. C'est principalement le cas des particules situées à l'extrémité droite du décanteur. Cette région correspond à une zone morte de l'écoulement, caractérisée par des vitesses de phase continue très faibles.

Enfin, la probabilité d'entraînement des gouttes de diamètre d pour chaque viscosité de phase continue organique est présentée sur la Figure 2.13. Les tendances observées confirment celles obtenues avec l'approche balistique : plus le diamètre de la goutte est petit et plus la viscosité de la phase continue est élevée, plus la probabilité d'entraînement

à la sortie du décanteur est importante. Par exemple, pour le mélange M.2, 93 % des gouttes de 10 µm sont entraînées, contre 45 % pour les gouttes de 30 µm, et aucune goutte de 50 µm. De manière similaire, une goutte de 40 µm a 4 % de chances d'être entraînée dans la phase continue M.2, 71 % dans le mélange M.6 et 82 % dans M.10.

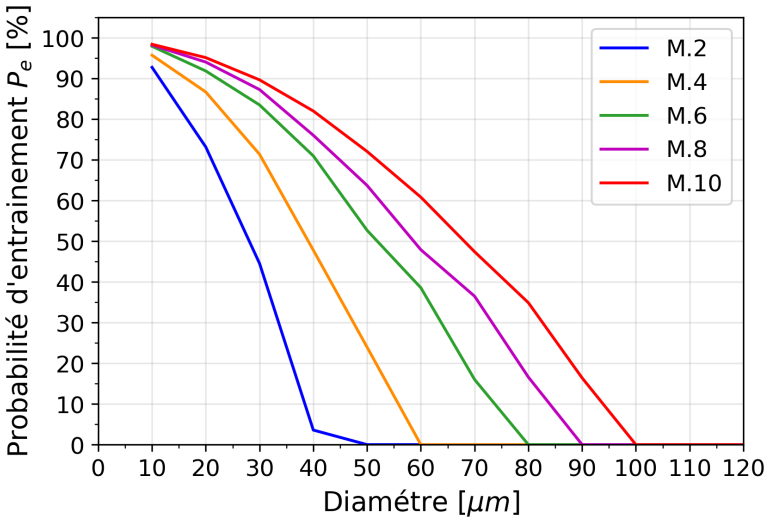


FIGURE 2.13 – Probabilité d'entraînement des gouttes de phase aqueuse à la sortie organique, en fonction de leur diamètre et de la viscosité de la phase continue organique.

À l'image de l'approche balistique, il est possible de définir un diamètre critique au-delà duquel aucune goutte n'est entraînée à la sortie du décanteur. En d'autres termes, une goutte au-dessus de cette valeur décantera quelle que soit sa trajectoire. Ce diamètre critique $d^{\star}_{\mathrm{CFD}}$ a été déterminé lorsque la probabilité d'entraînement devient nulle. D'après la Figure 2.13, le diamètre critique est estimé à 42 µm pour M.2, de 80 µm pour M.6 et atteint 100 µm pour M.10. Ainsi, il double lorsque la viscosité de la phase continue est multipliée par cinq. Ces valeurs critiques sont reportées dans le Tableau 2.5, et comparées avec celles obtenues par l'approche balistique. Les deux méthodes donnent des résultats cohérents, avec un écart moyen de seulement 8 % entre les diamètres critiques estimés pour les différentes viscosités de phase continue.

Il est observé que les diamètres critiques déterminés par CFD sont systématiquement supérieurs par rapport à ceux obtenus en balistique. Cette différence s'explique par la définition même du diamètre critique en CFD : celui-ci est établi à partir de la probabilité d'entraînement nulle. Par ailleurs, il est donc moins restrictif. Ainsi, pour le mélange M.6, l'approche balistique prévoit qu'une goutte est entraînée si elle possède un diamètre inférieur à 72,5 µm, tandis que la CFD indique qu'il y a 13 % de chances pour que ce même diamètre de goutte soit entraîné.

Afin de mieux appréhender le problème des entraînements, il est possible de comparer la vitesse terminale de chute des gouttes u_t à la vitesse ascensionnelle de la phase continue u_c. Si le rapport entre la vitesse de l'écoulement et la vitesse terminale de chute est

supérieur à 1, la goutte suit une trajectoire montante. A l'inverse, elle a une trajectoire descendante pour un rapport inférieur à 1. Le rapport entre ces deux vitesses est présenté sur la Figure 2.14 pour des gouttes de 70 et 90 µm de diamètre dans une phase continue organique M.6. La Figure montre les mêmes tendances que pour l'écoulement de la phase continue (Figure 2.11c) : la trajectoire verticale d'une goutte est ascendante en aval de la plaque de rabattement, descendante au centre du décanteur et de nouveau ascendante en amont de la surverse.

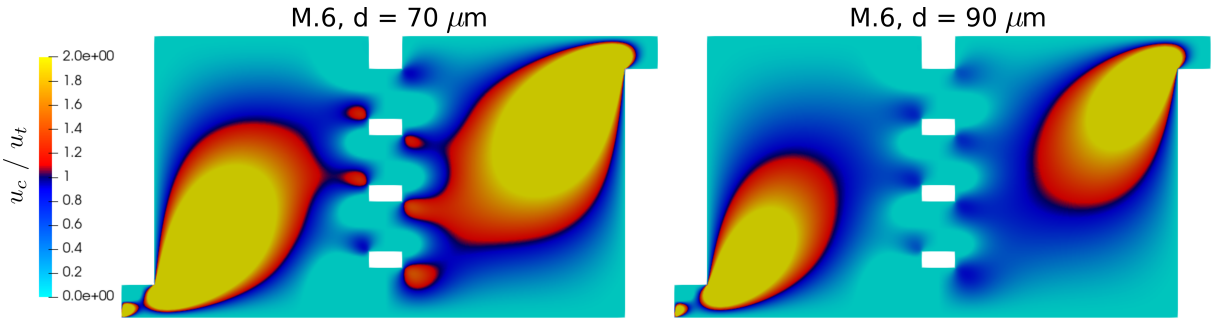


FIGURE 2.14 – Rapport entre la vitesse ascensionnelle de la phase continue u_c et la vitesse terminale de chute u_t pour des gouttes de 70 µm et 90 µm dans une phase continue organique M.6.

Ainsi, mesurer l'entraînement d'une goutte revient à déterminer si celle-ci traverse la zone où $u_c > u_t$ en amont de la surverse. En effet, toutes les gouttes de 70 et 90 µm entraînées sont passées par cette région, tandis que celles qui ne l'atteignent jamais finissent toujours par rejoindre le front de coalescence. Comme l'illustre la Figure 2.14, la taille de cette région critique diminue lorsque le diamètre des gouttes augmente. En effet, cela réduit la probabilité qu'une goutte la traverse et explique la diminution de P_e avec l'augmentation de la taille des gouttes. Par ailleurs, cette région sera plus étendue pour une viscosité de phase continue plus importante.

Ainsi, d'après la Figure 2.14, l'efficacité de la décantation peut donc être améliorée de deux manières. D'une part, en réduisant la taille de la zone critique, où $u_c > u_t$ en amont de la surverse. Pour cela, il est nécessaire d'augmenter la taille des gouttes produites dans le mélangeur, diminuer la viscosité de la phase continue, augmenter le rapport de masse entre les phases ou encore diminuer le débit organique. Toutefois, ces différentes grandeurs sont généralement subies par le fonctionnement du procédé plutôt que choisies. Une seconde approche consiste à empêcher les gouttes d'accéder à cette région critique. Pour cela, il est possible d'augmenter la longueur du décanteur, afin d'augmenter la distance entre les deux écoulements ascendants. En effet, d'après Ye et al. (2020), une augmentation de 1,5 de la longueur du décanteur diminue d'un facteur 15 l'entraînement. Par ailleurs, des singularités géométriques, comme des plaques planes verticales ou des plaques en forme de V (Ye et al., 2020), pourraient permettre d'empêcher les gouttes d'atteindre cette région critique.

2.3.4 Conclusion

L'objectif de cette section était de déterminer **les tailles de gouttes susceptibles d'être entraînées dans le décanteur**. Ces résultats viennent compléter l'étude principale de la thèse, centrée sur la rupture de gouttes dans le mélangeur. Ils serviront d'appui au reste de la thèse et mettent en évidence les tailles de gouttes problématiques à éviter dans le mélangeur.

Au sein de cette section, il a été observé que plus une goutte possède une **petite taille**, plus elle a de chances d'être **entraînée à la sortie du décanteur**. De même, une **augmentation de la viscosité de la phase continue** organique favorise l'**entraînement**. Cette augmentation peut s'expliquer de deux manières (voir Eq. 2.6). D'une part, l'augmentation de la viscosité augmente le terme de traînée, qui diminue la vitesse terminale de chute et favorise le suivi de la goutte par l'écoulement environnant. D'autre part, l'augmentation de la viscosité de la phase continue se traduit par une légère augmentation de la masse volumique organique, et donc une diminution du rapport de viscosité et une moins bonne décantation. Toutefois, il peut être noté que dans le procédé réel, le chargement en uranium augmente certes la viscosité du solvant, mais le rapport de masse volumique reste constant au cours de l'extraction. La probabilité d'entraînement mesurée ici est donc potentiellement légèrement surestimée. Enfin, en plus d'augmenter les phénomènes d'entraînement, l'**augmentation de la viscosité de la phase continue** perturbe également la **coalescence**. En effet, l'augmentation de la viscosité de la phase continue rend le drainage du film plus difficile, réduisant l'efficacité de la coalescence (Poux and Xuereb, 2014). Une phase continue trop visqueuse pourrait se traduire par une augmentation du front de coalescence, qui pourrait déborder dans la sortie organique et causer une augmentation des entraînements.

Bien que l'approche balistique ait fourni des résultats cohérents, la CFD a permis une description plus fine de l'écoulement et une meilleure compréhension de la problématique des entraînements. En effet, les simulations CFD ont montré que l'entraînement d'une goutte à la sortie du décanteur dépendait de sa **position sous la plaque de rabattement**. Les simulations ont également mis en évidence une **zone critique en amont de la surverse**, où $u_c > u_t$. Réduire la probabilité d'entraînement des gouttes à la sortie du décanteur revient à limiter leur passage dans cette région critique. Ces observations ont permis de préconiser des **modifications d'ordre géométrique** et opératoire, afin de minimiser les problèmes d'entraînement de phase. On peut également préconiser d'augmenter l'épaisseur de la **grille de coalescence**, afin de laisser plus de temps à la goutte de s'y poser (voir Figure 2.12). Diminuer la taille des orifices de la grille, ou placer deux grilles en quinconce, permettrait également de forcer les gouttes à rencontrer la paroi hydrophile, favorisant leurs interceptions et leurs coalescences. Il faudra tout de même faire attention à l'augmentation des pertes de charge, pouvant altérer la circulation dans le décanteur, notamment en présence de solvant visqueux. D'autres auteurs ont également développé des systèmes afin de favoriser la coalescence, comme un système avec un ensemble de barreaux ou lames parallèles (Sadeghi et al., 2011; Lane et al., 2016), ou des systèmes avec un rétrécissement de la section, afin de favoriser la rencontre des gouttes et forcer leur coalescence (Shayunusov et al., 2024).

Toutefois, le décanteur n'étant pas au centre de ce travail, l'analyse proposée ici vise principalement à fournir une estimation **approchée** des tailles de gouttes sujettes aux entraînements de phase. Cette approche constitue une première étape et nécessite d'être approfondie pour permettre une détermination plus précise des diamètres de gouttes problématiques. Tout d'abord, la probabilité d'entraînement n'a été estimée que pour un **unique débit** de phase organique (150 $\mathrm{mL{\cdot}h^{-1}}$) et pour une **hauteur d'interphase fixe** (13 mm du fond). Or, le taux d'entraînement dépend fortement de la vitesse d'entrée, sous la plaque de rabattement : plus la hauteur de phase organique sous la plaque est grande, plus l'écoulement ascendant en aval de cette dernière sera faible, et moins les gouttes auront tendance à atteindre la zone critique en amont de la surverse. De même, une augmentation du débit de la phase continue intensifiera les vitesses ascendantes et augmentera la probabilité d'entraînement. Par ailleurs, le fonctionnement réel du décanteur est légèrement plus complexe, avec une position et une épaisseur d'interphase qui varient au cours du temps. Ensuite, la grille de coalescence a un rôle essentiel dans la limitation des entraînements, et la modélisation de son hydrophilie n'est pas optimale. Il en est de même pour la surverse. De manière plus générale, les simulations présentées dans ce chapitre sont des **simulations *« one-way coupling »***, sans prise en compte de la **coalescence**, où les problèmes d'entraînement sont **réduits à une mauvaise sédimentation**. En pratique, lorsqu'une goutte est entraînée par l'écoulement ascendant en aval de la plaque de rabattement, elle traverse le front de coalescence, caractérisé par un champ de gouttes. Ces gouttes peuvent non seulement perturber sa trajectoire, mais surtout provoquer une coalescence, qui augmentera la masse de la goutte résultante, et réduira ses chances d'être entraînée. Par conséquent, les taux d'entraînement estimés au sein de ce chapitre sont probablement surestimés par rapport à la réalité. Par ailleurs, lors d'un fonctionnement réel ($20\ \% < \alpha < 60\ \%$), des mouvements de convection naturelle dus aux différences de densité apparente peuvent également influencer les phénomènes d'entraînement. Afin de modéliser plus finement le décanteur, les méthodes de **capture d'interface** (VOF, *level set...*) semblent être les plus adéquates pour modéliser, d'une part, l'influence des gouttes sur l'écoulement et, d'autre part, les phénomènes de coalescence. Néanmoins, une bonne modélisation du phénomène de coalescence à des échelles bien supérieure à celle de la goutte reste aujourd'hui un verrou scientifique. En effet, avec les approches VOF, la coalescence est généralement surestimée, où les simulations prédisent une coalescence pour chaque contact goutte-goutte si le maillage n'est pas suffisamment fin (Komrakova et al., 2015). Ainsi, une approche Euler–Euler, couplée à un bilan de population, apparaît comme un compromis plus raisonnable pour représenter de manière satisfaisante le comportement d'un décanteur (Sadeghi et al., 2011).

Chapitre 3

Identification des conditions opératoires générant des gouttes susceptibles d'être entraînées par mesure expérimentale des distributions de taille de gouttes (DSDs)

Sommaire

3.1 Introduction et rappels bibliographiques 99
3.2 Matériel et méthodes 100
3.2.1 Dispositif expérimental 100
3.2.2 Conditions opératoires explorées 101
3.2.3 Protocole expérimental 102
3.2.4 Traitement d'image : méthode BYG-drop 105
3.2.5 Validation du traitement d'image 110
3.3 Résultats et discussion 114
3.3.1 Évolution temporelle des distributions 114
3.3.2 Évolution spatiale des distributions 115
3.3.3 Effet de la viscosité de la phase continue 117
3.3.4 Effet du sens de l'émulsion 120
3.3.5 Effet de la vitesse de rotation 122
3.3.6 Fraction volumique de gouttes entraînées 123
3.3.7 Sédimentation dans le mélangeur 125
3.4 Conclusion et discussion 128

3.1 Introduction et rappels bibliographiques

La distribution des tailles de gouttes est au cœur de l'efficacité des procédés d'extraction liquide-liquide, notamment dans les mélangeurs-décanteurs. D'une part, elle gouverne l'aire interfaciale et donc l'efficacité du transfert de matière dans le mélangeur, et d'autre part, elle intervient dans la décantation, où des gouttes trop fines conduisent à une mauvaise séparation des phases et à des problèmes d'entraînement (voir partie 2.3). La taille des gouttes résulte de deux phénomènes antagonistes : la rupture et la coalescence. Les bilans de population (PBE), généralement couplés à la mécanique des fluides numérique (CFD), permettent typiquement de modéliser ces deux mécanismes. Ils permettent d'estimer la variation temporelle et spatiale des distributions de taille d'une population de gouttes au sein d'un réacteur (Ramkrishna, 2000) (voir partie 6.1). Au fil des années, un nombre considérable de modèles a été développé, comme l'ont exposé plusieurs revues de la littérature (Lasheras et al., 2002; Liao and Lucas, 2009). Ces modèles reposent généralement sur des constantes qu'il est nécessaire d'ajuster. De plus, la sélection d'un modèle plutôt qu'un autre n'est pas évidente, d'autant plus que certains conduisent à des prédictions contradictoires.

Dans ce contexte, les mesures expérimentales des distributions de taille de gouttes en cuve agitée sont très populaires (Calabrese et al., 1986b; Stamatoudis and Tavlarides, 1985; Pacek et al., 1998; Desnoyer et al., 2003; El-Hamouz et al., 2009; Raikar et al., 2009; Maaß et al., 2011; Carrillo De Hert and Rodgers, 2018; Zhou et al., 2019a). La plupart sont réalisées dans des dispositifs de laboratoire (capacité de l'ordre du litre), au sein de cuves agitées dites « standard » (cylindriques avec quatre contre-pales), en régime pleinement turbulent, et en utilisant des phases continues aqueuses. L'effet de la vitesse d'agitation, des caractéristiques géométriques de la cuve, de la tension interfaciale ou encore de la viscosité interne des gouttes sur la distribution de taille est généralement étudié, car ces paramètres sont directement liés aux contraintes destructrices et cohésives. Pour mesurer les tailles de gouttes, différentes techniques existent et peuvent être classées comme *in situ*, non-intrusive, *inline* ou *offline* (Abidin et al., 2013). Parmi elles, l'une des méthodes les plus efficaces et les plus répandues consiste à utiliser une sonde endoscopique pour capturer des images de l'émulsion directement à l'intérieur du réacteur (Kraume et al., 2004; Khalil et al., 2010; Maaß et al., 2010, 2011; Amokrane, 2014; Tang et al., 2020), puis à appliquer des méthodes de traitement d'images pour détecter et mesurer la taille des gouttes. L'efficacité de cette approche dépend fortement des performances de l'algorithme de traitement d'images (Abidin et al., 2013; Emmerich et al., 2019). Dans la littérature, les algorithmes les plus utilisés pour la détection de gouttes sont la transformée de Hough (Illingworth and Kittler, 1988; Khalil et al., 2010; Randriamanantena, 2011; Becker et al., 2014a,b) et un algorithme développé par Maaß et al. (2012), fondé sur un prétraitement spécifique des images et un algorithme de *pattern matching*. Avec la croissance des méthodes d'intelligence artificielle ces dernières années, les méthodes traditionnelles sont progressivement remplacées par des algorithmes d'apprentissage automatique, notamment de la famille des CNNs (réseaux de neurones convolutifs) (Krizhevsky et al., 2017; Ilonen et al., 2018; Burke et al., 2024; Bana et al., 2024). Néanmoins, bien que très performantes, ces approches nécessitent un entraînement préalable, au cours duquel des ensembles de

données étiquetées, fiables et représentatives des conditions réelles sont requis.

Ces données, à la fois variées et de grande qualité, sont très difficiles a acquérir. Pour surmonter ce problème, Bana et al. (2024) a développé la méthode BYG-drop : avec le logiciel Blender et un réseau antagoniste génératif (CycleGAN), les auteurs ont obtenu des images de synthèse à la fois diversifiées et de haute qualité. Cela a permis d'entraîner un algorithme de détection de gouttes (YOLO) et d'augmenter ses performances de détection. Selon l'auteur, cette méthode est à la fois plus précise et permet la détection d'un plus grand nombre de gouttes par rapport aux méthodes de traitement d'images traditionnelles.

En raison du faible volume du mélangeur expérimental considéré dans la thèse, les méthodes de prélèvement (Desnoyer et al., 2003; El-Hamouz et al., 2009; Singh et al., 2008b, 2009; Carrillo De Hert and Rodgers, 2019) ou les méthodes *in situ*, telles que les sondes endoscopiques (Khalil et al., 2010; Maaß et al., 2012), ne sont pas applicables. En effet, ces dernières auraient influencé de manière non négligeable l'écoulement et, par conséquent, modifié la taille des gouttes produites. Par ailleurs, la thèse vise à quantifier la formation de gouttes de petite taille, en particulier pour la résolution des entraînements de phase. Toutefois, en traitement d'images, la mesure de la taille des objets de « petite » taille représente un défi majeur (Castanet et al., 2013; Becker et al., 2014a), et les méthodes traditionnelles (CHT, algorithme proposé par Maaß et al. (2012)) ne sont pas particulièrement efficaces pour les détecter (Bana et al., 2024). Enfin, l'influence de la viscosité de la phase continue sur les distributions de taille de gouttes est rarement abordée dans la littérature (Stamatoudis and Tavlarides, 1985; Carrillo De Hert and Rodgers, 2019), et les études menées en régime de transition sont très limitées (Rueger and Calabrese, 2013).

Ainsi, dans ce chapitre, les distributions de taille de gouttes formées dans un mélangeur expérimental ont été caractérisées. Les mesures ont été réalisées en combinant une caméra rapide, positionnée à l'extérieur de l'écoulement, pour l'acquisition des images, et un algorithme de machine learning (YOLO) pour la détection et la mesure des gouttes. L'influence du temps d'émulsification, de la zone d'observation, de la viscosité de la phase continue, du sens de l'émulsion (FOC/FAC) et de la vitesse de rotation a été étudiée. Une attention particulière a été portée sur la formation de petites gouttes. Les distributions de tailles obtenues ont été mises en relation avec les diamètres de gouttes problématiques, estimés dans le Chapitre 2 (partie 2.3), afin d'évaluer la proportion volumique de phase dispersée entraînée à la sortie du décanteur. Il peut être noté qu'une partie de ce chapitre a fait l'objet d'une publication scientifique (Hardy et al., 2025).

3.2 Matériel et méthodes

3.2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental se compose d'un mélangeur miniaturisé ($T = 22$ mm) et transparent (1), au sein duquel est générée une émulsion. Sa géométrie est explicitée dans le paragraphe 2.1 et ses dimensions sont illustrées sur la Figure 2.3. Le mélangeur est

monté sur un support (2) qui maintient la cuve et permet sa fixation au bloc moteur (3). Un joint assure l'étanchéité entre la partie supérieure de la cuve transparente et le bloc moteur. Une photo du montage expérimental est présentée sur Figure 3.1 ; ce dernier est également schématisé sur la Figure 3.2.

Le dispositif expérimental comprend une caméra rapide (4), fournie par PHOTRON, positionnée approximativement à 20 cm en amont du mélangeur. La caméra est montée sur un rail millimétrique (5), permettant son déplacement avec une précision optimale. Celle-ci a été placée de telle sorte que la mise au point est réalisée sur le devant de la cuve (zone d'observation n°1 sur la Figure 3.12b) avec un zoom maximal. Par ailleurs, la caméra rapide est équipée d'un zoom NAVITAR 6000 II (6). La caméra est connectée à un système informatique externe, permettant la visualisation en temps réel et le contrôle des acquisitions à travers le logiciel FASTCAM Viewer 4 (PFV4). L'émulsion est éclairée par un panneau LED PHLOX (7) qui fournit un éclairage constant et uniforme (back-light illumination). Ce panneau est situé en aval, à environ 6 cm de la cuve expérimentale. La turbine Rushton est entraînée par un moteur fourni par MAXON MOTOR (3). La vitesse de rotation est contrôlée par un dispositif électronique artisanal (8) connecté au moteur. Un pousse seringue (KR ANALYTICAL) (9) régule avec précision le volume de la phase dispersée introduite dans le système. Il permet également d'injecter des gouttes de diamètre approximativement constant (Figure 4.3b). Le pousse seringue est connecté à une seringue de 1 mL (SGE), reliée à un capillaire de diamètre intérieur de 508 µm. Le capillaire est inséré directement dans le mélangeur par un orifice situé dans la partie supérieure du mélangeur (voir paragraphe 2.1.2).

Une mire composée de 9×8 points de 400 µm de diamètre, espacés de 2,5 mm, permet de réaliser la mise au point de la caméra dans le plan central de la cuve. Elle permet également de calibrer l'échelle et de vérifier l'absence de distorsion optique dans la zone de mesure. De la même manière, une règle millimétrique montée sur une vis micrométrique (10) permet de régler précisément la mise au point pour différentes positions x.

3.2.2 Conditions opératoires explorées

Les mesures de distribution sont réalisées dans un système dilué, à faible taux de rétention, avec typiquement une fraction volumique de phase dispersée de $\alpha = 1$ % (en dehors du paragraphe 3.3.2). Dans ces conditions, seule la rupture est prise en compte, et la coalescence est négligée, le faible taux de rétention limitant la probabilité de collision entre les gouttes. Par ailleurs, l'utilisation d'un extractant (HDEHP), jouant le rôle de tensioactif, permet de stabiliser la dispersion et de réduire les phénomènes de coalescence. Le faible volume de la cuve restreint la taille de zones mortes, où la coalescence est généralement favorisée (Becker et al., 2014b). Enfin, les phases continues visqueuses limitent les phénomènes de coalescence (Poux and Xuereb, 2014).

Les mesures de distribution sont réalisées pour deux configurations : phase aqueuse dispersée dans une phase organique (FOC) et phase organique dispersée dans une phase aqueuse (FAC). Il peut être noté que le fonctionnement du FAC a été étudié uniquement

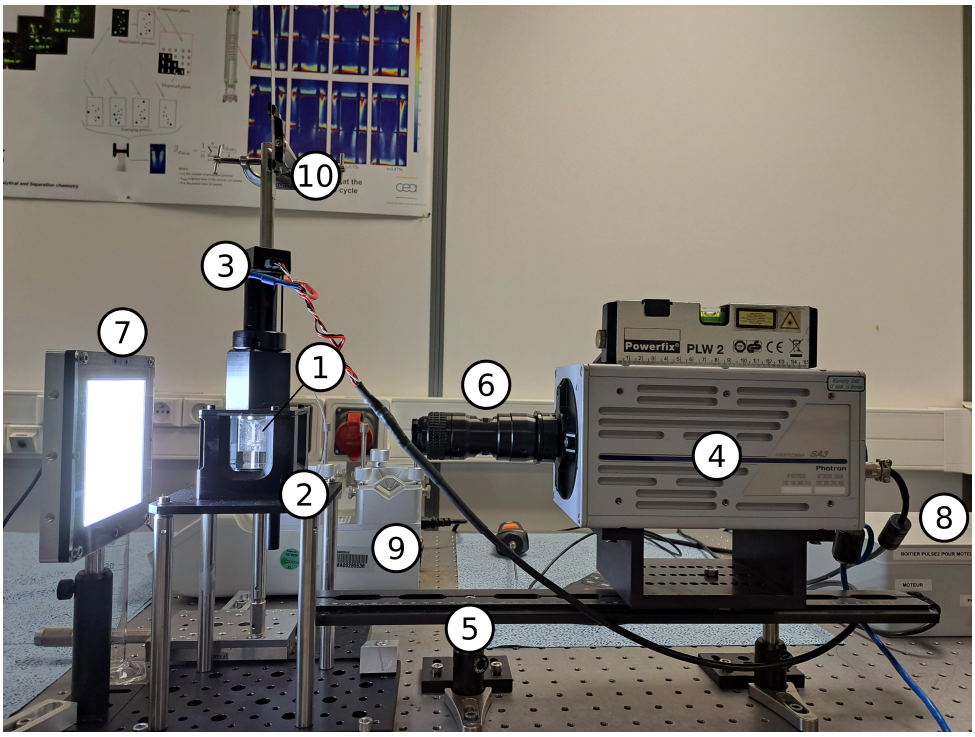


FIGURE 3.1 – Photo du montage expérimental : (1) mélangeur transparent, (2) support optique, (3) bloc moteur, (4) caméra rapide, (5) rail millimétrique, (6) objectif, (7) panneau LED, (8) contrôle de la vitesse de rotation, (9) pousse seringue, et (10) système de mise au point.

dans ce chapitre, et que toute la thèse traite du fonctionnement FOC. Pour ces deux fonctionnements, les mêmes couples de fluides ont été utilisés. Les propriétés physico-chimiques des liquides considérées sont présentées dans les Tableaux 2.2 et 2.4. Les vitesses d'agitation explorées varient entre 900 et 1500 tours par minute. La limite inférieure correspond à la vitesse minimale nécessaire pour maintenir l'ensemble de la phase dispersée en suspension ($N = 800$ rpm pour M.6). La limite supérieure correspond à la vitesse pour laquelle la hauteur du vortex est suffisamment grande pour entraîner de l'air dans la phase liquide ($N = 1700$ rpm pour M.6).

3.2.3 Protocole expérimental

Une représentation schématique des expériences réalisées dans ce chapitre, permettant de mesurer les distributions de taille de gouttes (DSD) dans un mélangeur expérimental, est illustrée sur la Figure 3.3. Le protocole expérimental de ces mesures est, quant à lui, détaillé ci-dessous.

Dans une étape préliminaire, les mélanges organiques et aqueux ont été préparés, puis mis en contact en proportions équivalentes pendant cinq à six heures (voir partie 2.2). Ensuite, le mélangeur est rempli avec un volume $V = 10$ mL de phase continue, et la vitesse de rotation est réglée à la valeur souhaitée (typiquement $N = 1200$ rpm). Une phase d'agitation préliminaire de deux heures est ensuite réalisée uniquement avec la phase continue.

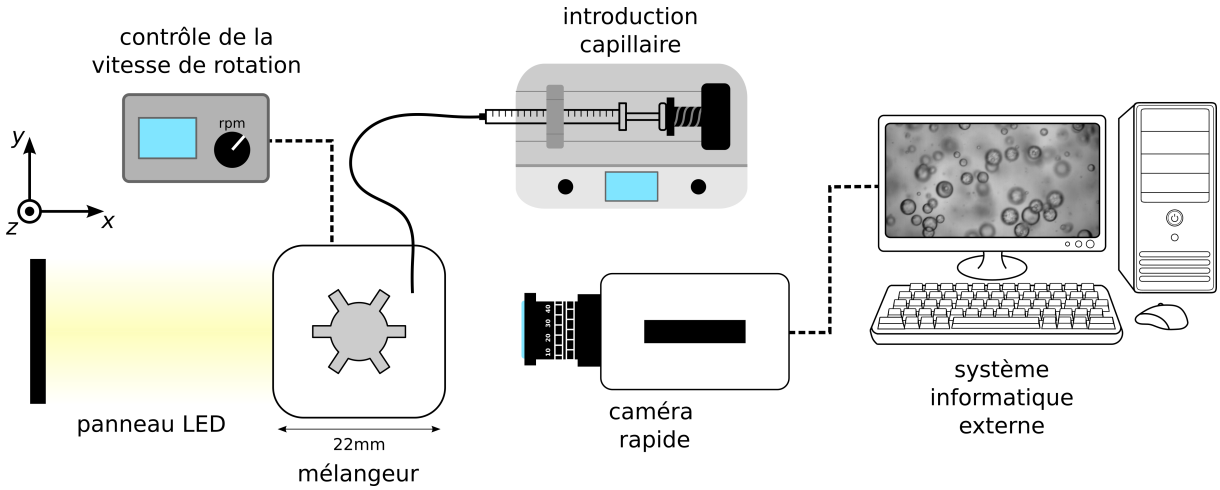


FIGURE 3.2 – Schéma du montage expérimental.

Cette étape permet de stabiliser la température, qui augmente sous l'effet combiné du panneau LED et de la rotation de l'agitateur. Un thermomètre, introduit par l'orifice supérieur, permet de mesurer la température en régime stationnaire, à 28°C ± 1°C après deux heures d'agitation. Comme illustré sur la Figure 2.5b, une élévation de température de 22 à 28°C entraîne une diminution de 17 % de la viscosité de la phase organique. Il est donc essentiel de s'assurer, d'une part, que la viscosité corresponde à la valeur cible (viscosité ajustée à 28°C dans le Tableau 2.2), et d'autre part, que la température reste constante tout au long de l'expérience. Une fois cet état stationnaire atteint, une fraction volumique $\alpha = 1$ % de phase dispersée est injectée goutte à goutte à l'aide d'un capillaire. Cette opération est réalisée sous agitation afin de maintenir toutes les gouttes en suspension et de mieux contrôler le taux de rétention en émulsion. En fonction du système étudié, cela évite que la phase aqueuse (plus lourde) ne stagne au fond de la cuve, ou que la phase organique (plus légère) ne soit pas aspirée et reste bloquée à l'interface liquide-air. Le débit d'injection du pousse seringue est réglé à $D_v = 0{,}6$ mL·min^{-1}. Par ailleurs, afin de minimiser les écarts de taille des gouttes injectées entre les différentes conditions de fonctionnement, l'extrémité du capillaire est placée dans une zone de circulation où le cisaillement est le plus faible. Une fois l'émulsion injectée, l'orifice situé dans la partie supérieure du mélangeur est fermé par un bouchon en Parafilm. Enfin, des images de l'émulsion sont capturées à l'aide de la caméra rapide à différents instants, selon des intervalles de temps progressivement espacés. Un thermomètre a été utilisé après chaque expérience pour vérifier la température dans le mélangeur. Une variation de la température inférieure à 1°C a été obtenue pour chaque condition opératoire.

La fréquence d'acquisition de la caméra est fixée à 500 images par seconde (fps) durant les deux premières minutes de mesure, puis réduite à 125 fps par la suite. Ce réglage résulte d'un compromis entre un temps d'enregistrement suffisant pour observer un nombre représentatif d'événements et une durée d'acquisition et de transfert courte, afin de suivre efficacement la dynamique de rupture. Pour éviter de mesurer plusieurs fois la même goutte entre deux images consécutives, une image sur seize est analysée lors de la pre-

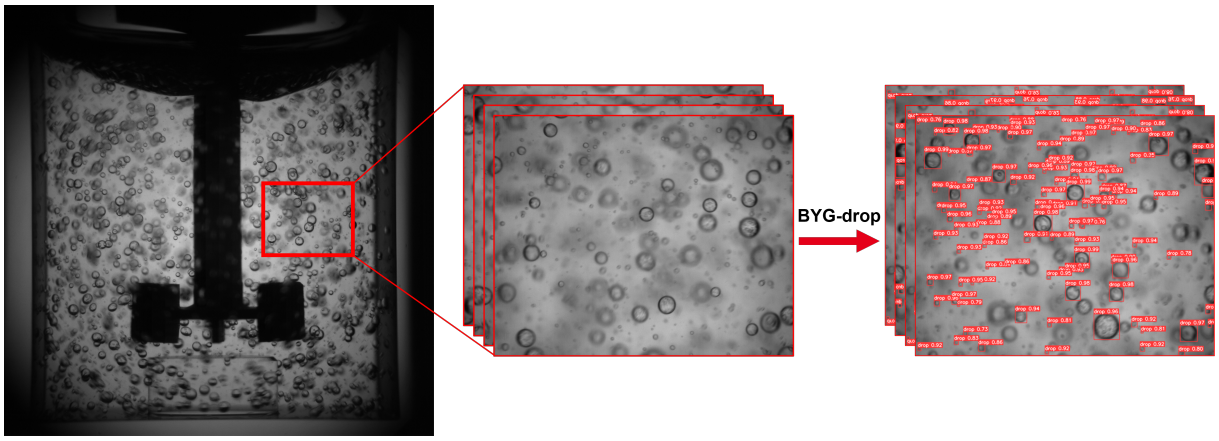


FIGURE 3.3 – Principe de la méthode de caractérisation des distributions de taille de gouttes dans le mélangeur.

mière phase, puis une image sur quatre par la suite. Au total, 274 images sont traitées durant les premières minutes, puis 1089 images, permettant la détection d'environ 35000 et 120000 gouttes, respectivement. Ce nombre élevé de gouttes détectées assure la convergence statistique des mesures (voir Annexe A). Selon les conditions opératoires, la vitesse d'obturation est réglée entre 1/3800 s et 1/10000 s. La vitesse d'obturation est sélectionnée afin de minimiser les flous de mouvement tout en assurant une luminosité suffisante sans saturation de l'image [1].

Le principal inconvénient d'une caméra non-intrusive réside dans son volume de mesure restreint, qui se limite à la zone avant du mélangeur. En effet, la présence de gouttes entre le plan focal et la caméra dégrade la qualité de l'image. Ainsi, les mesures de distributions de taille ont été réalisées dans la zone de circulation à l'avant du mélangeur, comme illustré sur la Figure 3.12b (zone d'observation n°1). Cette zone d'observation présente plusieurs avantages : (i) elle limite le nombre de gouttes entre l'objectif et le plan focal, (ii) elle permet de mesurer des gouttes sphériques non déformées (contrairement au Chapitre 4, ou les observations sont réalisées près de la turbine), et (iii) elle évite les distorsions optiques près des parois de la cuve. Des mesures complémentaires effectuées dans le plan central de la cuve et dans la zone de décharge de l'agitateur seront détaillées dans le paragraphe 3.3.2. Les trois zones d'observation considérées dans ce chapitre sont illustrées sur la Figure 3.12b.

Une mire et une règle micrométrique ont été utilisées pour réaliser la mise au point, calibrer l'échelle et vérifier l'absence de distorsion optique dans les zones de mesure. Les images capturées présentent ainsi une résolution de 512×640 pixels, correspondant à environ 9 µm par pixel. Par ailleurs, afin d'estimer la profondeur de champ du système optique, la mire a été montée sur une vis micrométrique permettant d'acquérir des images à différentes profondeurs x. Le gradient d'intensité lumineuse des points de la mire a ensuite été comparé à celui des gouttes considérées comme floues par le réseau YOLO.

1. L'objectif utilisé ne possède pas de diaphragme. La quantité de lumière sur l'image est donc réglable uniquement par la vitesse d'obturation.

Cette approche a permis d'estimer la profondeur de champ à environ 6 mm. Le volume de mesure du système optique a ainsi été évalué à $4{,}6 \times 5{,}8 \times 6$ mm^3, soit approximativement 2 % du volume total du mélangeur.

Il convient de noter que les mesures des distributions de taille présentées dans ce chapitre ont été particulièrement complexes. Cela est du aux faibles volumes de liquides utilisés (typiquement $V = 10$ mL de phase continue et 100 µL de phase dispersée) et aux valeurs « intermédiaires » de la tension interfaciale ($\sigma \approx 20$ mN$\cdot$m^{-1}), rendant le système très sensible aux impuretés et aux perturbations extérieures. À cela s'ajoutent les variations de la température ainsi que les phénomènes de transfert de matière, qui ont complexifié les expériences. Ces difficultés ont nécessité la réalisation de nombreuses études préliminaires afin de limiter les effets extérieurs et d'isoler le comportement de rupture. Ces dernières ont également permis d'améliorer significativement la répétabilité des expériences. Ainsi, le protocole présenté dans ce paragraphe n'est que le résultat de l'ensemble de ces études. La mise en place de ce protocole, ainsi qu'une étude de répétabilité, est présentée en Annexe A.

3.2.4 Traitement d'image : méthode BYG-drop

Une fois les images capturées, les tailles des gouttes ont été mesurées à l'aide de l'algorithme de détection d'objets YOLOv5. Cet algorithme de machine learning appartient à la famille des réseaux de neurones convolutifs (CNN), reconnus pour leur efficacité dans le traitement d'images. En effet, ils utilisent des filtres de convolution (3×3 ou 5×5 pixels) pour extraire des caractéristiques locales des images, et nécessitent moins de paramètres qu'un réseau de neurones classique grâce au partage de poids.

À l'origine, YOLO (You Only Look Once) a été développé pour la détection d'objets et la segmentation d'images en temps réel, notamment pour les besoins de la vidéosurveillance ou de la conduite autonome (Redmon et al., 2016). Une fois entraîné, le réseau est capable de détecter la présence d'un objet sur une image, qu'il entoure par une boîte englobante rectangulaire (*bounding box*). Chaque boîte est définie par les coordonnées du centre de l'objet détecté, ainsi que par sa largeur et sa hauteur. Dans le cas d'une goutte sphérique, ces dimensions permettent d'estimer son diamètre. Par ailleurs, le réseau associe une classe à chaque objet détecté (type d'objet détecté) et lui attribue un score de confiance, représentant le degré de certitude de la détection (voir paragraphe 3.2.5.2).

L'algorithme YOLO repose sur un apprentissage supervisé : il doit être entraîné sur un jeu de données personnalisé, proche des données réelles, et contenant un grand nombre d'objets étiquetés. Concrètement, les données étiquetées correspondent à des images d'émulsion pour lesquelles les positions et les tailles des gouttes sont connues avec précision. Toutefois, constituer un tel jeu de données, à la fois diversifié et de bonne qualité, est complexe et difficile à obtenir. Pour contourner cette difficulté, la méthode BYG-drop, proposée par Bana et al. (2024), repose sur la génération d'images de synthèse préalablement étiquetées. Les images de synthèse sont générées à l'aide de Blender (logiciel de rendu 3D), combiné à un réseau antagoniste génératif (CycleGAN). Ces images sont

ensuite utilisées pour l'entraînement supervisé de YOLO. Afin d'améliorer la détection du réseau, celui-ci a été entraîné sur des images expérimentales issues des expériences de ce chapitre. Cette méthode d'entraînement est notamment présentée plus en détail ci-dessous.

3.2.4.1 Génération d'une base de données d'images de synthèse : Blender 3.5

Dans un premier temps, à l'aide d'un script Python, un nuage de points est généré aléatoirement dans un espace 3D de faible épaisseur. Pour chaque point, trois tirages aléatoires indépendants suivant une loi uniforme sont effectués afin de déterminer leurs coordonnées spatiales (x, y, z). À chaque point est ensuite associée une taille. Cette taille est tirée aléatoirement selon l'une des trois lois uniformes suivantes, chacune définie sur une classe de taille spécifique : respectivement de 400 à 280 µm, de 280 à 140 µm, et de 140 à 50 µm. Un nombre de tirages est attribué à chaque loi, ce qui permet de contrôler la proportion de gouttes de chaque taille dans le nuage (voir Figure 3.8. Ce découpage permet notamment d'augmenter le nombre de « petites » gouttes, afin d'obtenir une répartition surfacique de chaque taille plus homogène sur les images. De plus, les positions et les tailles des gouttes sont générées de manière à éviter toute collision : chaque sphère est ajoutée uniquement si elle ne chevauche aucune autre. Sinon, un nouveau tirage est réalisé.

Ce même processus est réalisé dans trois volumes distincts, chacun ayant une profondeur x différente. Cette étape permet de générer : (i) des sphères nettes dans le plan focal de la caméra, (ii) des gouttes modérément floues situées à proximité de ce plan, et (iii) des gouttes fortement floues éloignées du plan focal. Les sphères nettes sont utilisées pour l'apprentissage supervisé du réseau de neurones, tandis que les deux autres volumes contribuent à renforcer le réalisme visuel des images de synthèse. L'épaisseur des trois volumes est choisie soigneusement afin que les gouttes possèdent le niveau de flou souhaité [2].

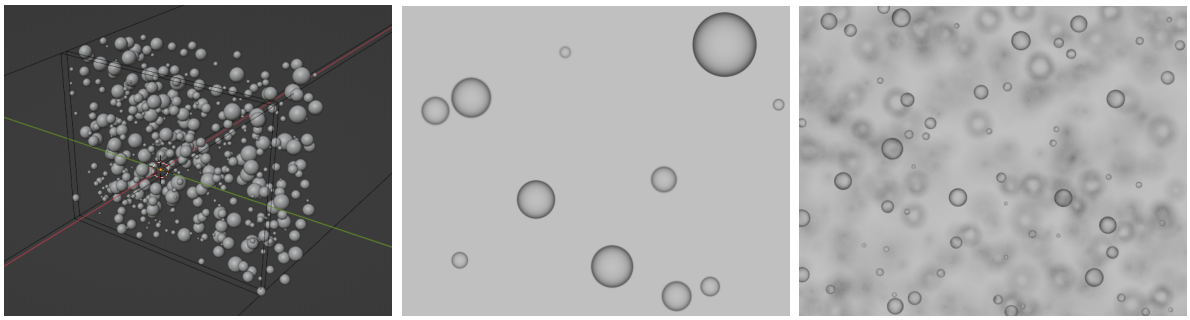
Enfin, à l'aide d'un script Python, ces trois nuages de sphères sont transférés dans le logiciel Blender (version 3.5). Ce dernier permet de créer une scène virtuelle et de projeter les sphères 3D sur un plan 2D à l'aide d'une caméra virtuelle (voir Figure 3.4a). Avec ce logiciel, l'environnement peut être configuré avec précision, notamment en ce qui concerne l'éclairage, les caractéristiques de la caméra, ainsi que la texture et les propriétés optiques des objets. Ainsi, Blender a été paramétré de manière à reproduire les conditions expérimentales. Par ailleurs, une texture de goutte, spécialement conçue lors de la thèse, a été appliquée à chaque sphère de la scène (Figure 3.4b). La résolution des images de synthèse a été fixée à 512×640 pixels, de manière à correspondre à celle des images expérimentales.

La position et la taille de chaque goutte nette sur les images de synthèse ont été enregistrées afin de les étiqueter pour l'apprentissage supervisé de YOLO. En tout, une

2. Il a été observé au cours de cette étape que le plan focal était plus fin pour les petites gouttes que pour les grosses. Cette observation s'est confirmée par des observations visuelles au cours des expériences, et a notamment été mise en évidence par Castanet et al. (2013).

base de données de 3500 images de synthèse a été générée avec cette méthode : 1500 images pour l'entraînement de CycleGAN, et 2000 pour celui de YOLO. Un exemple typique est exposé sur la Figure 3.4c. A titre d'exemple, la génération de 2000 images de synthèse a nécessité 10 heures de calcul sur 4 cartes graphiques NVIDIA A100.

Cette méthode a permis de générer une grande quantité d'images de synthèse, pour lesquelles la position, la taille et la netteté des gouttes sont parfaitement contrôlées. De plus, limiter l'apprentissage supervisé aux gouttes nettes permet d'éviter de définir un critère de netteté, souvent difficile à établir de manière objective.



(a) (b) (c)

FIGURE 3.4 – (a) Scène virtuelle 3D créée sur le logiciel Blender, (b) texture de goutte appliquée à des sphères dans le plan focal et (c) exemple d'image de synthèse finale générée par Blender.

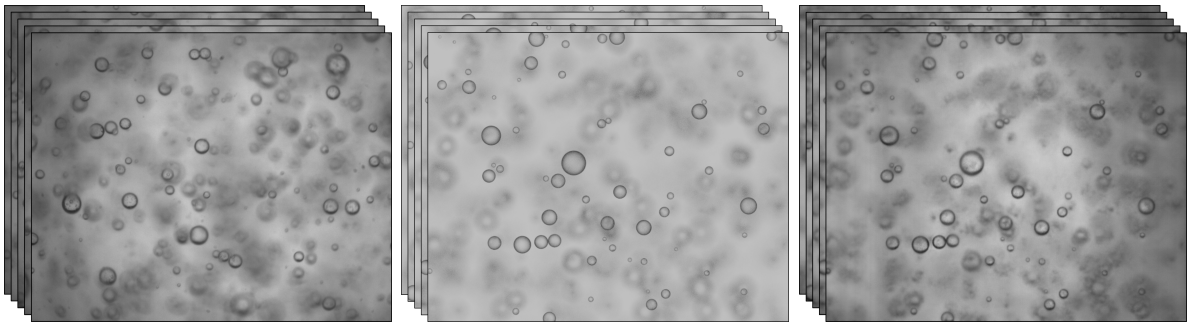
3.2.4.2 Texturation de la base de données d'images de synthèse : réseau CycleGAN

Bien que la texture de goutte réalisée dans Blender améliore l'apparence visuelle des sphères, le niveau de réalisme est insuffisant pour obtenir des images de synthèse de haute qualité. C'est pourquoi celles-ci ont ensuite été texturées à l'aide d'un réseau de neurones appartenant à la famille des *Generative Adversarial Networks* (GANs). Ces derniers reposent sur l'interaction de deux réseaux en concurrence : un générateur, chargé de générer des données synthétiques proches des données réelles, et un discriminateur, dont le rôle est de différencier les données réelles des données générées. Ces deux modèles s'entraînent simultanément dans un processus itératif, le générateur cherchant à maximiser sa capacité à tromper le discriminateur. L'entraînement converge lorsque le discriminateur n'est plus capable de discerner les données produites par le générateur et les données réelles. Un CycleGAN repose sur le même principe (avec deux générateurs et deux discriminateurs), mais il est spécifiquement conçu pour effectuer des transferts de texture entre deux ensembles d'images non appariées (Zhu et al., 2017). Une paire d'images appariées correspond à deux versions d'une même image représentée dans deux styles différents.

Dans notre cas, un CycleGAN a été utilisé pour transférer la texture des images expérimentales (Figure 3.5a) vers des images de synthèse préalablement générées avec Blender (Figure 3.5b), deux jeux de données non appariés. Les images utilisées pour

l'entraînement ont été capturées pour une unique condition expérimentale ($N = 1200$ rpm, M.6, $\alpha = 1\%$). Le réseau a été entraîné à partir de 1500 images de chaque base de données. L'entraînement a été réalisé pendant 200 époques (itérations), en utilisant 128 cœurs et quatre cartes graphiques NVIDIA A100, pour une durée totale d'entraînement de 24 heures. À la fin de l'entraînement, le réseau CycleGAN est capable de donner une texture extrêmement réaliste à la base de données d'images de synthèse (Figure 3.5).

D'après la Figure 3.5a, le réseau tend à rendre légèrement floues certaines gouttes nettes. Toutefois, fournir des images contenant des gouttes légèrement floues et étiquetées rend l'apprentissage supervisé de YOLO plus flexible. Cela rendra le réseau YOLO plus polyvalent et performant, d'autant plus que les images expérimentales présentent un léger bruit. Sur la base de cet entraînement, 2000 images de synthèse ont été texturées en vue de l'apprentissage supervisé de YOLO. La texturation de ces images a duré 7 minutes sur 32 cœurs et une carte graphique NVIDIA A100.



(a) (b) (c)

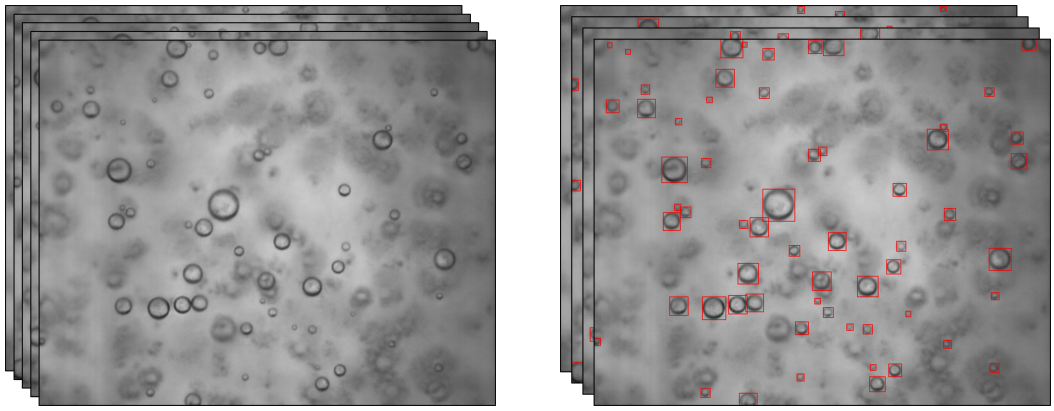
FIGURE 3.5 – Base de données (a) d'images expérimentales, (b) d'images de synthèse issues de Blender, et (c) d'images de synthèse texturées obtenues par le couplage Blender–CycleGAN.

Ainsi, le couplage entre Blender et un réseau CycleGAN a permis de générer des images de synthèse extrêmement réalistes, d'apparence quasiment identique à celle des images expérimentales. De plus, les critères de position, de taille et de netteté des gouttes sont parfaitement maîtrisés, ce qui a permis de fournir au réseau YOLO des données d'entraînement de haute qualité, améliorant ainsi ses performances de détection.

3.2.4.3 Entraînement supervisé du réseau YOLOv5

Une fois la base de données d'images de synthèse générée, elle a été étiquetée pour l'apprentissage supervisé de YOLO, en annotant la position et la taille des gouttes sur chaque image. Uniquement les gouttes nettes (générées dans le plan focal sous Blender) ont été étiquetées (Figure 3.6). Le réseau YOLO a été utilisé dans sa version 5 (Jocher, 2020). Il a été entraîné à partir de 2000 images de synthèse étiquetées (1600 pour l'entraînement et 400 pour la validation). Le réseau a été initialisé avec les poids de YOLOv5l préentraîné sur le jeu de données MS COCO (Common Objects in Context) (Lin et al., 2015). Cela

permet de bénéficier de poids initiaux déjà adaptés à la détection d'une grande variété d'objets, facilitant l'apprentissage spécifique à la détection de gouttes (*transfer learning*). L'entraînement a été réalisé sur 2000 époques (itérations), sur 32 cœurs, et sur une carte graphique NVIDIA A100, et a duré 26 heures.



(a) (b)

FIGURE 3.6 – Base de données (a) d'images de synthèse texturées obtenues par le couplage Blender–CycleGAN et (b) leurs annotations correspondantes.

La Figure 3.7 montre que l'entraînement a convergé à l'époque (itération) 611, moment où la fonction de perte est minimale. Les poids utilisés a posteriori seront donc ceux de cette époque. Une fois entraîné, YOLO est capable de détecter une centaine de gouttes sur une image de résolution 512 × 640 pixels en seulement 13 ms, en utilisant 32 cœurs et une carte graphique NVIDIA A100. Le maximum entre la largeur et la hauteur de la boite englobante a été utilisé pour estimer la taille des gouttes détectées et le diamètre de Sauter 1.35.

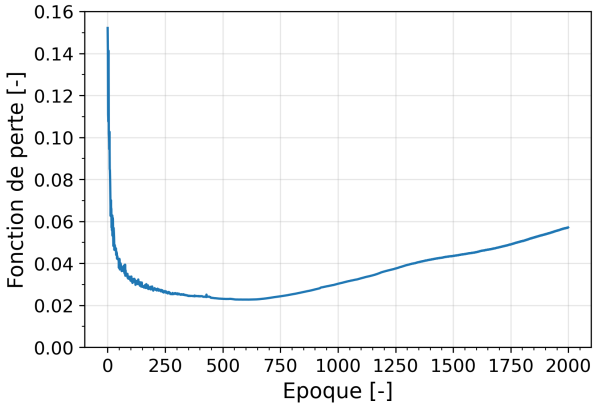


FIGURE 3.7 – Convergence du réseau YOLOv5.

3.2.5 Validation du traitement d'image

3.2.5.1 Métriques de performance

Pour mesurer la performance d'un algorithme de détection, plusieurs métriques sont traditionnellement utilisées. Tout d'abord, la précision mesure la proportion d'objets détectés pertinents parmi l'ensemble des objets détectés. Une grande précision signifie que, lorsqu'un objet est détecté, la probabilité qu'il soit pertinent est élevée. Le rappel mesure, quant à lui, la proportion d'objets pertinents détectés parmi l'ensemble des objets pertinents. Un rappel élevé indique que la majorité des objets pertinents ont été détectés par le modèle. Enfin, la mAP@0.5 (mean Average Precision) représente la précision moyenne du modèle pour chaque classe. Elle correspond à l'aire sous la courbe « précision-rappel », tracée en calculant la précision et le rappel pour différents scores de confiance (Bana et al., 2024).

La précision, le rappel et la mAP@0.5 du réseau entraîné au cours de la thèse sont présentés dans le Tableau 3.1. Ces valeurs sont comparées à celles obtenues par Bana et al. (2024) avec le même réseau et deux méthodes de traitement d'image traditionnelles.

TABLE 3.1 – Comparaison entre les performances de détection du réseau YOLOv5 entraîné au cours de la thèse et celles issues de Bana et al. (2024) : YOLOv5, algorithme développée par Maaß et al. (2012) et transformée de Hough (CHT).

	Précision	**Rappel**	**mAP@0.5**
YOLOv5	0,999	0,999	0,995
YOLOv5[1]	0,997	0,944	0,985
algorithme de Maaß et al. (2012)[1]	0,995	0,361	-
CHT[1]	0,579	0,265	-

[1] Valeurs issues de Bana et al. (2024)

La mAP@0.5 du réseau a été mesurée à 0,995, ce qui indique d'excellentes performances pour la détection des gouttes nettes sur les images expérimentales du mélangeur (voir Tableau 3.1). En effet, d'une part, quasiment toutes les gouttes détectées sont bien des gouttes nettes, et d'autre part, quasiment toutes les gouttes nettes présentes sur les images sont détectées. D'après le Tableau 3.1, le réseau entraîné pendant la thèse est légèrement plus performant que celui entraîné par Bana et al. (2024), qui atteint une mAP@0.5 de 0,985. Cette différence s'explique principalement par les images expérimentales obtenues au cours de la thèse, qui sont moins problématiques pour la détection. En effet, elles présentent un meilleur contraste et moins de chevauchements de gouttes que celles capturées à l'aide d'une sonde endoscopique par Bana et al. (2024). La détection est ainsi facilitée, ce qui réduit fortement les erreurs et explique les excellentes métriques obtenues par le réseau.

Un second avantage de la caméra non-intrusive réside dans le grand nombre de gouttes nettes présentes dans une seule image, ce qui accélère la convergence statistique (voir

Annexe A). Toutefois, contrairement aux sondes endoscopiques, la caméra utilisée ici possède une profondeur de champ plus importante, ce qui la rend beaucoup moins efficace lorsque le taux de rétention est élevé. A titre informatif, dans le cadre de la thèse, la détection a commencé à devenir délicate à partir de $\alpha = 2$ %.

Les performances particulièrement élevées du réseau proviennent du fait qu'il a été entraîné sur une seule condition opératoire : le réseau est donc « spécialiste » de cette condition. Toutefois, ces performances ne seront pas nécessairement aussi élevées pour des conditions opératoires différentes ou avec des images plus complexes.

Enfin, au travers des résultats de Bana et al. (2024), on observe que les valeurs de précision et de rappel du réseau YOLOv5 entraîné par un couplage Blender-GAN sont bien supérieures à celles des algorithmes traditionnels tels que l'algorithme commercial proposé par SOPAT GmbH (issu de Maaß et al. (2012)) ou la transformée de Hough (CHT). Cela met en lumière la pertinence du traitement d'image utilisé.

3.2.5.2 Validation de YOLO et score de confiance

Par ailleurs, une brève validation de la détection du réseau est présentée dans ce paragraphe. Dans un premier temps, YOLO a été testé sur des images de synthèse générées grâce au couplage Blender–CycleGAN. Cela permet de tester le réseau sur une base de données étiquetée, pour laquelle la position et la taille de chaque goutte nette sont connues avec précision. La base de données générée compte 1500 images de synthèse étiquetées, contenant des gouttes dont les diamètres suivent trois lois uniformes définies sur trois plages de tailles distinctes, couvrant des diamètres de 4 à 45 pixels.

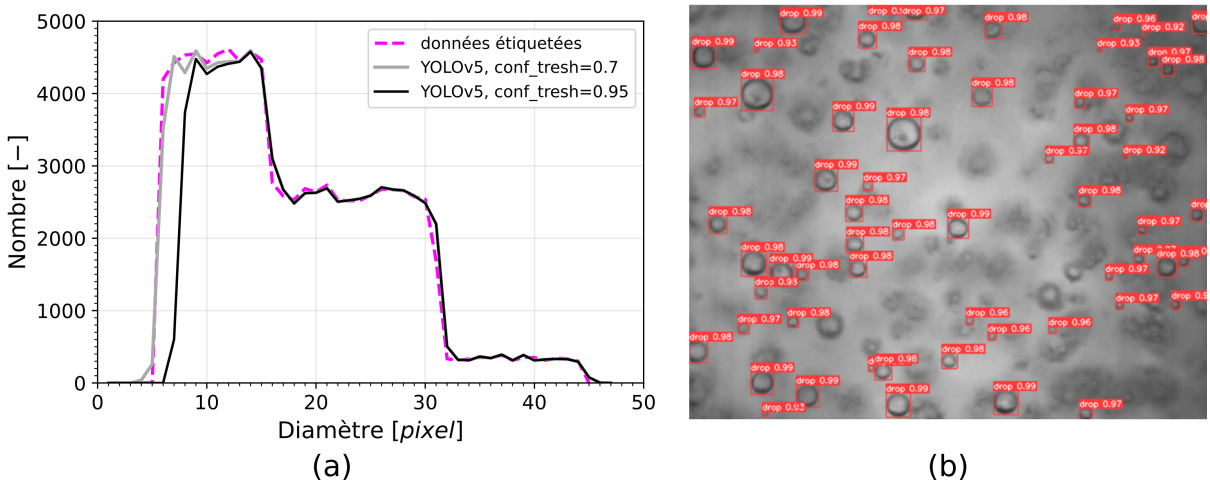


FIGURE 3.8 – (a) Distribution de taille de gouttes en nombre obtenu par YOLO sur des images de synthèse étiquetées pour différents seuils de confiance et (b) détection YOLO sur une de ces images avec score de confiance.

D'après la Figure 3.8, le réseau reproduit presque à l'identique la distribution de tailles présente sur les images de synthèse étiquetées. Cela permet de valider la bonne qualité

de l'entraînement. Par ailleurs, YOLO attribue un score de confiance à chaque détection, correspondant à la probabilité que l'objet détecté soit un vrai positif. Dans les paramètres du réseau, un seuil de confiance peut être fixé afin de ne conserver que les gouttes dont le score de confiance dépasse une certaine valeur. La Figure 3.8 montre qu'en fixant un seuil de confiance à 0,7, le réseau restitue les distributions de taille avec une meilleure précision qu'avec un seuil de 0,95. Cela s'explique par le fait que YOLO est moins performant pour détecter les objets représentés par un faible nombre de pixels. Il a donc tendance à leur attribuer un score plus faible.

Dans un second temps, les prédictions du réseau ont été comparées à celles d'autres méthodes de traitement d'images, notamment la transformée de Hough (Figure 3.9). Cette dernière a été utilisée avec des paramètres standards (Illingworth and Kittler, 1988), en imposant un diamètre minimal de 10 pixels et un diamètre maximal de 80 pixels. Afin de faciliter la détection, une étape de prétraitement consistant à soustraire l'image moyenne a également été réalisée. D'après la Figure 3.9, YOLO reproduit les distributions obtenues par la transformée de Hough : les résultats sont quasiment identiques (pour un seuil de confiance fixé à 0,7) jusqu'à un diamètre de 18 pixels. Cette observation permet de valider la méthode de détection utilisée.

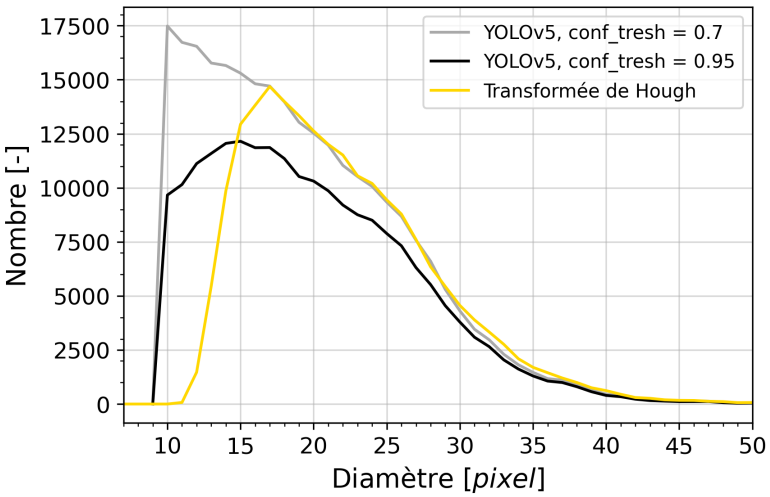


FIGURE 3.9 – Comparaison des distributions de taille de gouttes en nombre entre YOLO pour différents scores de confiance et la transformée de Hough (1 pixel $\approx$ 9 µm).

Par ailleurs, à partir de 18 pixels, le nombre de gouttes détectées par la transformée de Hough décroît. A l'inverse, le nombre de détections du réseau augmente lorsque le diamètre des gouttes diminue. Ainsi, il semblerait que YOLO détecte plus efficacement les petites gouttes. Cette observation est en accord avec Bana et al. (2024), et justifie pleinement l'utilisation de YOLO, entraîné par la méthode BYG-drop, les petites gouttes jouant un rôle essentiel dans l'analyse des phénomènes d'entraînement de phase. Enfin, la Figure 3.9 confirme les observations de la figure précédente : un seuil de confiance fixé à 0,95 est trop restrictif et réduit considérablement le nombre de gouttes détectées, en

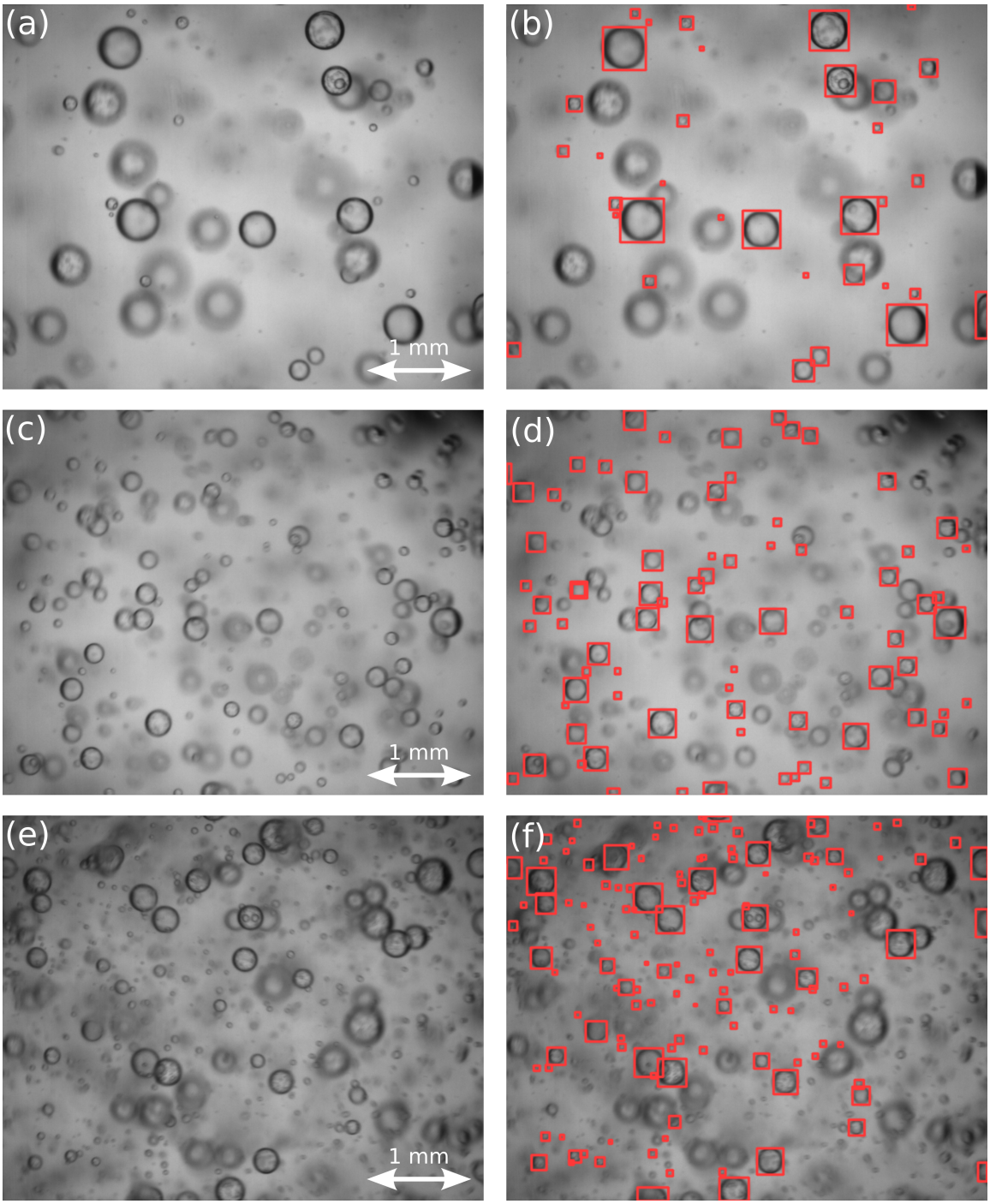


FIGURE 3.10 – Images typiques d'émulsion obtenues dans le mélangeur expérimental avec une caméra non-intrusive et détection YOLO correspondante pour : (a-b) $N = 900$ rpm, M.6, $\alpha = 1\%$, (c-d) $N = 1200$ rpm, M.2, $\alpha = 1\%$, (e-f) $N = 1200$ rpm, M.8, $\alpha = 1$ %.

particulier les plus petites. Par conséquent, un seuil de confiance de 0,7 a été retenu dans ce chapitre, car il offre un compromis optimal entre la qualité de la détection et la capacité

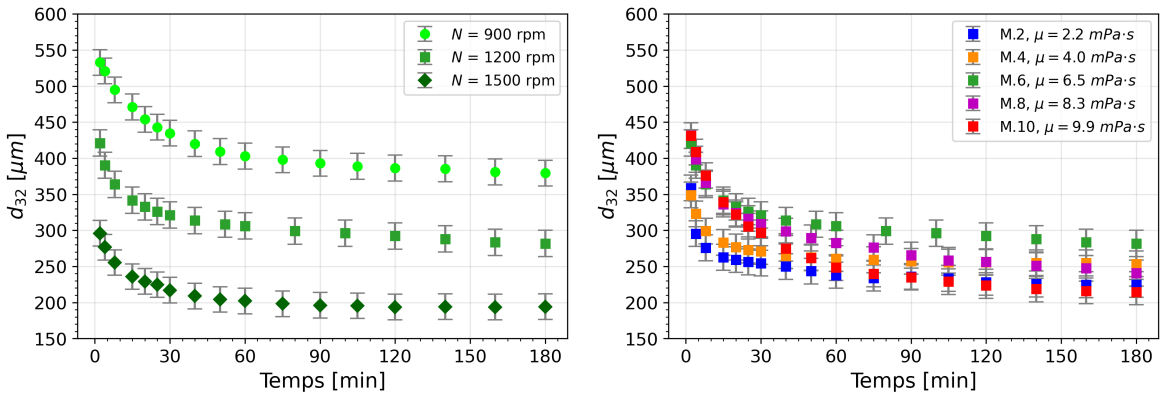
à identifier les plus petites gouttes.

Dans un dernier temps, des images expérimentales obtenues pour différentes conditions opératoires, ainsi que leur détection associée, sont présentées sur la Figure 3.10. Bien que l'entraînement du réseau ait été réalisé sur des images de synthèse proches d'images expérimentales d'une seule condition opératoire, YOLO semble conserver une bonne qualité de détection, quelles que soient les conditions testées. A priori, cela n'était pas évident compte tenu de la variabilité du nombre de gouttes, du déséquilibre entre les classes de tailles et des différences d'arrière-plan selon les expériences. Par ailleurs, en raison de la résolution spatiale limitée de certains objets, YOLO présente une taille seuil en dessous de laquelle la précision des mesures diminue. Le réseau YOLO, reposant sur des filtres de convolution généralement de taille 3×3 pixels, a une limite de détection qui se situe autour de 3 à 4 pixels, soit environ 36 µm. Toutefois, la Figure 3.10 illustre que, même si YOLO ne détecte pas toutes les petites gouttes nettes, il parvient tout de même à identifier une grande proportion d'entre elles.

3.3 Résultats et discussion

3.3.1 Évolution temporelle des distributions

Dans un premier temps, l'évolution temporelle de la taille des gouttes est analysée afin d'identifier l'instant à partir duquel les distributions convergent vers un état stationnaire. La Figure 3.11 présente l'évolution du diamètre de Sauter d_{32} en fonction du temps pour trois vitesses d'agitation et cinq phases continues de viscosités croissantes. Le diamètre de Sauter a été déterminé à partir de l'équation 1.35.



(a) (b)

FIGURE 3.11 – Évolution temporelle du diamètre de Sauter d_{32} pour différentes (a) vitesses d'agitation (M.6, $\alpha = 1\%$) et (b) viscosités de phase continue ($N = 1200$ rpm, $\alpha = 1\%$).

D'après la Figure 3.11a, pour $N = 1200$ rpm, le diamètre de Sauter diminue rapidement au cours des 30 premières minutes, suivi d'une diminution plus lente, jus-

qu'à atteindre un état quasi stationnaire après environ 3 heures d'émulsification, avec $d_{32} = 280$ µm. Cette diminution plus lente s'explique par la réduction de la fréquence de rupture à mesure que les gouttes deviennent plus petites. Bien qu'une très légère baisse soit encore observable entre 3 et 6 heures, la variation reste inférieure à 4 %, ce qui confirme la stabilité de la distribution. Pour une vitesse d'agitation plus faible ($N = 900$ rpm), l'énergie injectée dans le système étant moins importante, la diminution du diamètre est plus lente. Néanmoins, même dans ce cas, les tailles de gouttes convergent vers un état quasi stationnaire après environ trois heures. Ce temps de convergence est également valide, quelle que soit la viscosité de la phase continue (Figure 3.11b). Ainsi, toutes les distributions de taille de gouttes présentées dans les paragraphes suivants ont été obtenues en régime permanent, après 3 heures d'émulsification.

Il peut être noté que, malgré toutes les précautions prises lors de la préparation des mélanges (voir paragraphe 2.2) et au cours des expériences, un transfert de matière entre les phases peut contribuer à la diminution progressive des tailles de gouttes observée entre 1 et 6 heures de mélange. Par ailleurs, cette réduction de taille peut également être liée à la diminution de la tension interfaciale au cours du temps, mise en évidence sur la Figure 2.6b. Cette baisse de la tension interfaciale avait été attribuée à la migration d'impuretés ou de tensioactif (HDEHP) vers l'interface. Dans les conditions expérimentales de ce chapitre, cette migration semble toutefois accélérée par l'agitation : ce phénomène ne semble donc pas être la cause principale de la diminution lente des tailles (Figure 3.11).

Dans un système liquide-liquide soumis uniquement à la rupture, la convergence temporelle est atteinte lorsque toutes les gouttes passent sous le diamètre maximal stable $d_{\max}$. Ce dernier est notamment régi par les contraintes maximales générées par la phase continue. D'après Khalil et al. (2010), une goutte doit traverser entre 3000 et 4000 fois la zone de la turbine, caractérisée par ces contraintes importantes, pour atteindre une taille stabilisée. Toutefois, en régime de transition, le nombre de pompage (Eq. 1.7) décroît avec le nombre de Reynolds (Roustan et al., 2023). Ainsi, à vitesse de rotation et géométrie constantes, le débit de circulation diminue et le temps de circulation augmente à faible Reynolds : le mélange est moins efficace. Par conséquent, le temps nécessaire pour que les gouttes rencontrent les zones où les contraintes hydrodynamiques sont les plus intenses est plus long, ce qui explique le temps de convergence important.

Le Tableau 3.2 rassemble plusieurs temps de convergence de la rupture rapportés de la littérature en fonction de la taille de la cuve agitée et du régime d'écoulement. Malgré une turbulence moins développée et un temps de circulation plus important dans le mélangeur d'étude, les temps de convergence mesurés restent cohérents avec ceux généralement observés, typiquement compris entre 1 et 3 heures d'émulsification (Pacek et al., 1998; Khalil et al., 2010; Maaß et al., 2010, 2012; Rueger and Calabrese, 2013).

3.3.2 Évolution spatiale des distributions

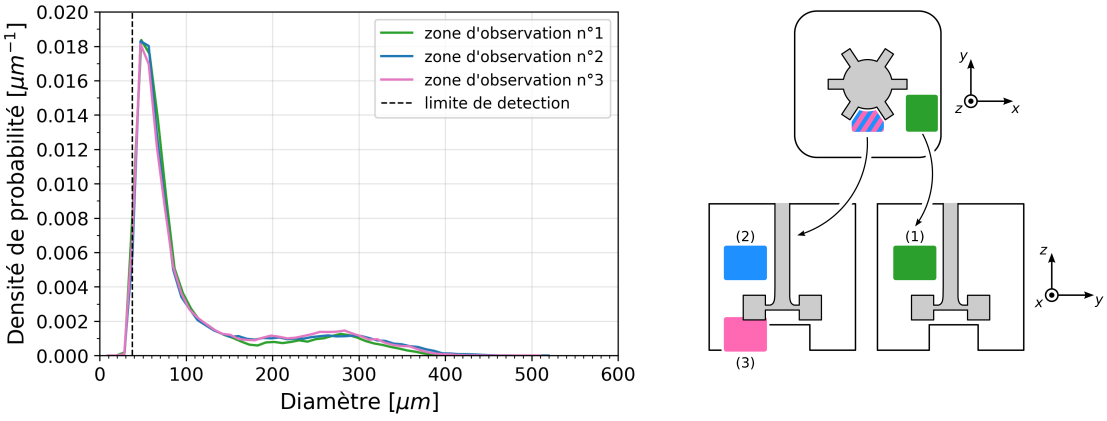
En plus des mesures réalisées au cours du temps, des acquisitions ont été effectuées dans trois zones d'observation distinctes du mélangeur (Figure 3.12a) : (n°1) dans la zone

TABLE 3.2 – Revue non-exhaustive de la littérature sur les temps de convergence des tailles de gouttes soumises essentiellement à la rupture en cuve agitée.

Auteurs (année)	Largeur de cuve T [mm]	Nombre de Reynolds [-]	Temps de convergence [min]
Stamatoudis and Tavlarides (1985)	245	1 000 - 230 000	30 - 480
Pacek et al. (1998)	150	70 000 - 200 000	180
Khalil et al. (2010)	110 - 150	30 000 - 120 000	180
Maaß et al. (2010)	155	30 000 - 90 000	60
Maaß et al. (2012)	150 - 200	10 000 - 50 000	60 - 80
Rueger and Calabrese (2013)	$D = 28$ mm	300 - 5 600	105
Becker et al. (2014a)	100	$< 64\,000$	300
Carrillo De Hert and Rodgers (2018)	137	19 000 - 35 000	1440 (24 h)
Tang et al. (2020)	200	80 000 - 120 000	25
Présente étude	22	200 - 1 100	180

de recirculation située à l'avant du mélangeur, (n°2) dans le plan central du mélangeur, également dans cette même zone de recirculation, et (n°3) dans le plan central sous la turbine. Les mesures effectuées près de la turbine (entre la paroi et le jet radial) se sont révélées délicates : d'une part, la vitesse des gouttes est importante dans cette région, ce qui génère un flou de mouvement, et d'autre part, elles ne sont pas toujours parfaitement sphériques, ce qui les rend difficilement détectables avec l'algorithme de post-traitement actuel. La Figure 3.12b présente une représentation schématique de ces trois zones d'observation. Au sein de ce paragraphe, les mesures ont d'abord été réalisées dans la zone d'observation n°1 jusqu'a atteindre le régime stationnaire, puis des images ont été acquises pour différentes positions de la camera. Le volume d'observation ainsi que les paramètres d'acquisition de la caméra sont identiques pour les trois séries de mesures. Les images enregistrées dans la zone n°3 ont été recadrées afin de supprimer des images les pales et la courbure du tuyau d'aspiration, susceptibles de provoquer respectivement de fausses détections et des déformations. La caméra étant située à l'extérieur du mélangeur, toute goutte présente entre le plan focal et l'objectif dégrade la qualité de l'image en introduisant un flou parasite, qui perturbe la détection. Pour limiter cet effet, la fraction volumique des gouttes a été réduite à $\alpha = 0{,}5$ % (uniquement dans ce paragraphe).

D'après la Figure 3.12a, les distributions sont spatialement homogènes dans le mélangeur expérimental : les trois zones d'observation présentent des distributions de taille de gouttes identiques. La taille des gouttes résulte en général de l'équilibre entre la rupture et la coalescence, deux phénomènes qui se produisent dans des régions distinctes du réacteur. Par exemple, Zhou et al. (2021a) ont observé des gouttes de grande taille dans la partie supérieure du mélangeur, où la coalescence prédomine, tandis que la rupture se produit principalement dans la zone de la turbine, générant des gouttes plus petites. Selon ces auteurs, des vitesses d'agitation élevées favorisent la recirculation et une distribution plus uniforme des tailles dans tout le volume.



(a) (b)

FIGURE 3.12 – (a) Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent pour trois zones d'observation, pour $N = 1200$ rpm, M.6 et $\alpha = 0{,}5$ % et (b) représentation schématique de ces trois zones d'observation.

Ainsi, dans un procédé réel, il n'est pas évident que les distributions de taille soient spatialement homogènes. Toutefois, dans la présente étude, le faible taux de rétention rend la coalescence très peu probable : la taille des gouttes est donc uniquement induite par la rupture et, par conséquent, par les contraintes hydrodynamiques maximales. Les distributions de taille dans les différentes zones d'observation sont donc principalement gouvernées par le mélange. Ainsi, les trois heures d'agitation permettent à toutes les gouttes de se rompre jusqu'à atteindre $d_{\max}$, puis de se disperser suffisamment pour conduire à une distribution homogène dans tout le mélangeur.

Cette homogénéité confirme que la zone d'observation restreinte, imposée par la caméra non-invasive, fournit des mesures représentatives du comportement global du mélangeur. Cette restriction est due à la présence de gouttes entre le plan focal et l'objectif, réduisant la qualité des images. Par conséquent, les distributions de tailles présentées dans les paragraphes suivants ont été mesurées dans la zone d'observation n°1, zone la moins sensible a ce phénomène. Par ailleurs, l'homogénéité des distributions est essentielle pour la simplification des équations de bilan de population (voir partie 6.1).

3.3.3 Effet de la viscosité de la phase continue

Une fois la méthode de traitement d'images validée et l'indépendance temporelle et spatiale vérifiée, l'effet de la viscosité de la phase continue sur la taille des gouttes est examiné dans le paragraphe ci-dessous. D'après la Figure 3.11b, le diamètre de Sauter ne présente pas de tendance claire en fonction de la viscosité de la phase continue. Il apparaît maximal pour la phase continue M.6 ($d_{32} = 280$ µm à $t = 180$ min) et minimal pour les deux viscosités extrêmes, avec au même instant, $d_{32} = 225$ µm pour M.2 et $d_{32} = 215$ µm pour M.10 . Par ailleurs, l'écart-type relatif (coefficient de variation) du diamètre de Sauter entre les cinq phases continues est d'environ 10 %. Ainsi, l'absence de tendance claire

pourrait être attribuée aux tensions interfaciales, qui ne sont pas strictement identiques entre les cinq mélanges (Tableau 2.2). Elle peut également être liée aux incertitudes de mesure importantes, comme l'illustre la Figure A.3. Par ailleurs, dans ce régime de transition, l'augmentation de la viscosité de la phase continue tend à augmenter le temps de circulation, ce qui explique la dynamique plus lente de la rupture pour M.6, M.8 et M.10 que pour M.2 et M.4 (Figure 3.11) : il faut plus de temps pour que toutes les gouttes rencontrent les contraintes hydrodynamiques maximales.

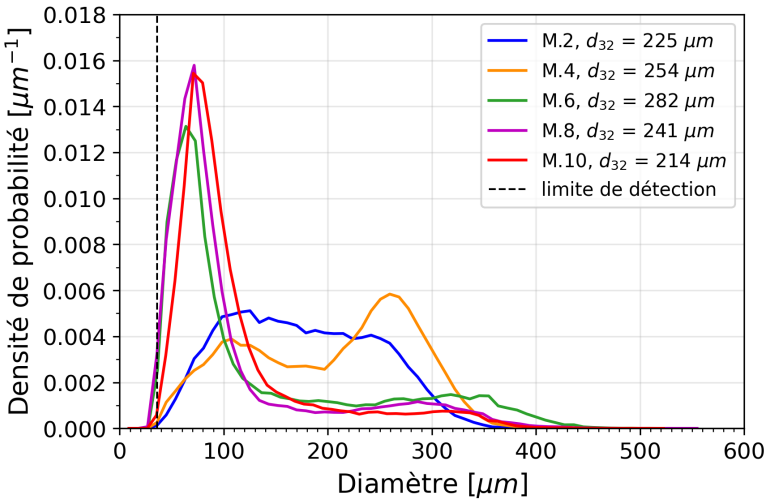


FIGURE 3.13 – Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent en fonction de la viscosité de la phase continue, pour $N = 1200$ rpm et $\alpha = 1$ %.

La Figure 3.13 illustre les distributions de taille de gouttes en nombre, en régime permanent, pour les cinq phases continues de viscosité croissante. Pour la viscosité la plus faible (M.2), la distribution est large et relativement uniforme entre 100 et 300 µm. Lorsque la viscosité double (M.4), la distribution commence à présenter une forme légèrement bimodale, sans modification notable du nombre de gouttes dans chaque classe de taille. En revanche, lorsque la viscosité triple (M.6), la forme de la distribution change complétement. Deux populations distinctes apparaissent : (i) une première, relativement uniforme, entre 150 et 400 µm, et (ii) une seconde présentant un pic marqué entre 30 et 150 µm. Cette tendance est confirmée pour les deux viscosités les plus élevées (M.8 et M.10). L'augmentation de la viscosité conduit ainsi à une augmentation significative du nombre de gouttes avec un diamètre inférieur à 100 µm. A titre d'exemple, pour la phase continue M.10, 68 % des gouttes détectées ont un diamètre inférieur à 100 µm, contre seulement 20 % pour une viscosité de 2,2 mPa·s. Ce changement de forme de distribution met en évidence une transition claire dans le régime de rupture induite par la viscosité de la phase continue.

Comme pour le diamètre de Sauter (Figure 3.11b), aucune tendance claire ne se dégage concernant le diamètre maximal stable. Les gouttes les plus grosses influencent fortement le diamètre de Sauter, puisqu'elles contiennent la majeure partie de la masse. Cela explique

pourquoi ces deux paramètres présentent des variations similaires, malgré l'augmentation marquée du nombre de petites gouttes pour les viscosités les plus élevées. Ainsi, d'après la Figure 3.11b, ni le diamètre de Sauter ni le diamètre maximal stable ne permettent de décrire correctement les populations bimodales observées pour les viscosités les plus élevées. Cette observation souligne les limites des modèles d'estimation de la taille de gouttes dans un procédé, basés sur $d_{\max}$ ou d_{32} (Hinze, 1955; Calabrese et al., 1986a; Zhou and Kresta, 1998; Singh et al., 2008b; Tang et al., 2020). Pour analyser la formation des petites gouttes responsables des entraînements et estimer finement les caractéristiques de taille des distributions bimodales, les modèles de bilan de population sont donc plus adaptés (voir partie 6.1)

Par ailleurs, comme l'ont déjà souligné Castanet et al. (2013) et Becker et al. (2014b), la détection des petites gouttes constitue un défi majeur en traitement d'images. Ces dernières possèdent une profondeur de champ plus faible et nécessitent une résolution d'image importante. Le nombre de petites gouttes dans le pic secondaire des distributions est donc possiblement sous-estimé (Figure 3.13). Toutefois, la présence de petites gouttes dans le mélangeur justifie pleinement l'utilisation de l'algorithme de détection basé sur YOLO, entraîné via la méthode BYG-drop, qui a montré d'excellentes performances pour identifier une proportion importante de ces petites gouttes (voir Figure 3.10) (Bana et al., 2024). Par ailleurs, le pic des petites gouttes se situe autour de 70 µm, au-delà duquel le nombre de gouttes détectées diminue jusqu'à la limite de détection. Cela indique que la majeure partie des distributions dépasse ce seuil, ce qui signifie que l'ensemble de la population de gouttes dans le mélangeur est capturé avec précision.

La littérature portant sur la taille des gouttes dans des régimes de transition impliquant des phases continues organiques et visqueuses est limitée. Stamatoudis and Tavlarides (1985) (pour du kérosène dans du glycérol aqueux) et Rueger and Calabrese (2013) ont rapporté que la viscosité de la phase continue n'avait que peu ou pas d'influence sur la taille moyenne des gouttes. À l'inverse, Stamatoudis and Tavlarides (1985) (pour de l'huile minérale dans du glycérol aqueux) et Carrillo De Hert and Rodgers (2019) ont mis en évidence une diminution de la taille des gouttes lorsque la viscosité de la phase continue augmente. Toutefois, ces observations ont été réalisées pour des rapports de viscosité (deux phases visqueuses) différents de ceux considérés dans cette étude. Concernant les distributions, Carrillo De Hert and Rodgers (2019) ont également montré qu'une augmentation de la viscosité de la phase continue augmente le nombre de petites gouttes, ce qui est cohérent avec la Figure 3.13.

Par ailleurs, selon Stamatoudis and Tavlarides (1985), le temps de convergence du diamètre de Sauter dépend de la viscosité de la phase continue, une tendance qui n'est pas observée dans la Figure 3.11b. De plus, Boxall et al. (2012) et Carrillo De Hert and Rodgers (2019) ont mis en évidence une transition de régime associée à l'augmentation de la viscosité de la phase continue, passant du domaine inertiel au domaine dissipatif de la turbulence. Cette question sera discutée en détail dans le Chapitre 5. Il est, pour le moment, difficile de relier la modification de la forme des distributions de taille à ce changement de domaine de turbulence, mais cette observation met en évidence l'influence

de la viscosité de la phase continue sur l'échelle de Kolmogorov, sur le nombre de Reynolds, ainsi que le passage potentiel d'un écoulement laminaire à un écoulement plus turbulent.

De plus, une augmentation de la viscosité de la phase dispersée semble produire des effets comparables à ceux observés dans la Figure 3.13 (Calabrese et al., 1986b; Becker et al., 2014a; Solsvik and Jakobsen, 2015a; Carrillo De Hert and Rodgers, 2018). Becker et al. (2014a) ont notamment montré que pour des viscosités de phase dispersée allant jusqu'à 50 mPa·s, les distributions sont monomodales et de forme gaussienne, tandis qu'à partir de 100 mPa·s, un second pic prononcé apparaît autour de 50 µm. Ce second pic reste fixe en taille, mais augmente en amplitude au cours du temps, de manière similaire à ce qui a été observé dans nos expériences. Cependant, les effets de la viscosité ne semblent pas symétriques entre les phases continue et dispersée, comme le suggère la courbe de Grace (1982) (Figure 1.10a). La bimodalité apparaît à des viscosités plus faibles pour la phase continue (μ = 6,5 mPa·s dans cette étude) que pour la phase dispersée (μ = 100 mPa·s selon Becker et al. (2014a) et Carrillo De Hert and Rodgers (2018)). Toutefois, des études supplémentaires sont nécessaires pour confirmer ce comportement asymétrique (voir paragraphe suivant). La modification du régime d'écoulement avec la viscosité (voir Chapitre 5) ou la géométrie spécifique du mélangeur étudié pourrait également contribuer à l'apparition de cette bimodalité.

3.3.4 Effet du sens de l'émulsion

Au vu de l'observation réalisée dans le paragraphe précédent, des mesures de distribution ont été effectuées avec des phase dispersées visqueuses. Pour cela, les mêmes liquides ont été utilisés, mais la phase organique a été dispersée dans la phase aqueuse. Cela correspond au mode de Fonctionnement Aqueux Continu (FAC), en opposition avec le mode de Fonctionnement Organique Continu (FOC) étudié dans le paragraphe précédent et dans tout le reste de la thèse. Seules les phases organiques M.2 et M.10 ont été considérées dans cette analyse.

D'après la Figure 3.14, pour une phase organique M.2 dispersée dans une phase aqueuse, la distribution de taille est monomodale, avec des diamètres compris entre 50 et 300 µm. La distribution est très similaire à celle d'un fonctionnement en FOC pour la même viscosité. Lorsque la viscosité de la phase dispersée est multipliée par cinq (M.10), la distribution devient bimodale, avec deux populations : (i) une première, majoritaire, entre 150 et 300 µm, et (ii) une seconde, de plus faible amplitude, entre 40 et 100 µm. Cependant, comparativement aux résultats obtenus avec des phases continues visqueuses (Figure 3.13), la bimodalité présente ici des amplitudes inversées entre les deux populations. En fonctionnement FAC, une population de petites gouttes émerge pour M.10, mais son importance reste limitée : les gouttes de diamètre inférieur à 100 µm ne représentent que 17 % de la population détectée. Cette proportion est environ 3,5 fois plus faible que celle observée en fonctionnement FOC pour une viscosité équivalente. Ainsi, le passage d'un fonctionnement FOC à un fonctionnement FAC semble pertinent pour réduire la formation de petites gouttes et, par conséquent, limiter les phénomènes d'entraînement de phase.

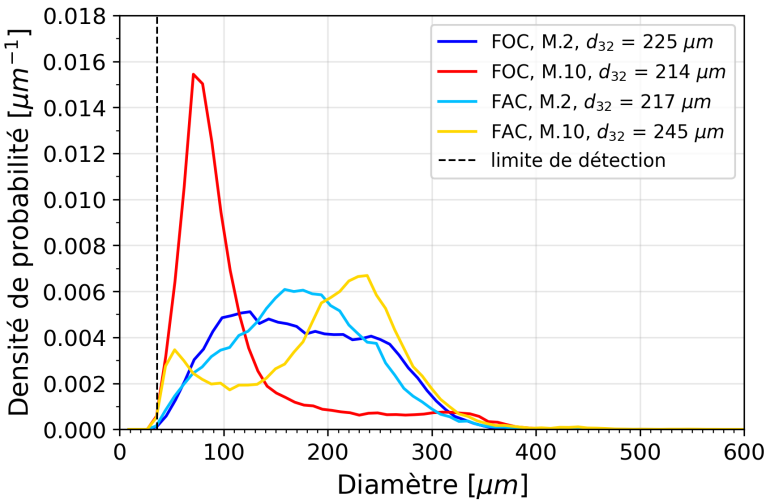


FIGURE 3.14 – Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent en fonction du sens de l'émulsion pour $N = 1200$ rpm et $\alpha = 1$ % : FOC, phases organiques continues M.2 et M.10 et FAC, phases organiques dispersées M.2 et M.10.

La Figure 3.14 confirme également les observations du paragraphe précédent en mettant en évidence un comportement asymétrique de l'effet de la viscosité sur la rupture. Ce type de comportement, lié au rapport de viscosité, est classiquement observé lors d'études de rupture de gouttes uniques dans des écoulements extensionnels et cisaillés (Rumscheidt and Mason, 1961; Karam and Bellinger, 1968; Grace, 1982). Toutefois, le passage de FOC à FAC conduit à une augmentation du nombre de Reynolds, passant de $Re = 245$ pour la phase organique M.10 en FOC à $Re = 3600$ pour la même phase organique en FAC. La bimodalité et le nombre de petites gouttes peuvent donc être influencés par le rapport de viscosité, mais également par la forte variation du nombre de Reynolds et le possible changement de régime d'écoulement.

Par ailleurs, les résultats sont cohérents avec les observations de Becker et al. (2014a) et Carrillo De Hert and Rodgers (2018), qui indiquent une augmentation du nombre de petites gouttes avec μ_d. Toutefois, les deux auteurs rapportent des distributions monomodales pour des viscosités de phase dispersée inférieures à $\mu = 50$ mPa·s, contrairement à la Figure 3.14. Ce désaccord peut être dû au fait que leurs expériences ont été menées avec des tensions interfaciales plus faibles, dans des cuves agitées de géométrie standard et avec des écoulements pleinement turbulents (voir Tableau 3.2).

Ces deux informations mettent en évidence que des études complémentaires sont nécessaires pour confirmer le caractère non symétrique de la rupture avec la viscosité, afin de dissocier les effets de la géométrie spécifique considérée, du rapport de viscosité et du régime d'écoulement.

Par ailleurs, contrairement à la phase continue, l'augmentation de la viscosité de la phase dispersée augmente les forces cohésives de la goutte : ce paramètre joue donc un rôle important sur la taille des gouttes. D'après la Figure 3.14, la viscosité de la phase dispersée tend à augmenter légèrement le diamètre de Sauter, qui passe de $d_{32} = 220$ µm

pour une phase dispersée M.2 à $d_{32} = 245$ µm pour une phase dispersée M.10. Toutefois, cette différence reste faible et pourrait être attribuée à de légères variations de la tension interfaciale ou aux incertitudes de mesure. Le nombre d'Ohnesorge (voir Eq. 1.42) pour un diamètre de 400 µm est calculé à $Oh = 0{,}03$ pour M.2 et $Oh = 0{,}12$ pour M.10. Ces valeurs indiquent que, même pour la phase organique dispersée M.10, les forces cohésives sont dominées par les forces interfaciales. Cela explique la faible influence de la viscosité sur le diamètre de Sauter (Figure 3.14).

3.3.5 Effet de la vitesse de rotation

Par la suite, l'impact de la vitesse de rotation de la turbine sur la taille des gouttes a été étudié. A titre informatif, les nombres de Reynolds (pour la phase continue M.6, voir Eq. 1.1) associés aux vitesses d'agitation de 900 rpm, 1200 rpm et 1500 rpm sont respectivement de 275, 365 et 455.

Comme prévu, la Figure 3.11a montre que le diamètre de Sauter diminue lorsque la vitesse de rotation augmente et que la rupture se produit plus rapidement. Ce comportement est cohérent avec une augmentation de l'énergie injectée dans le système aux vitesses de rotation plus élevées, ce qui intensifie les contraintes hydrodynamiques de la phase continue et favorise une rupture plus efficace (Khalil et al., 2010). Par ailleurs, l'augmentation de la vitesse de rotation conduit à une diminution du temps de circulation et donc, à l'augmentation de la fréquence de passage des gouttes dans la zone de l'agitateur. Cela est en accord avec la dynamique de rupture plus rapide pour $N = 1500$ rpm.

Par ailleurs, les distributions de taille de gouttes en nombre en régime permanent, obtenues pour différentes vitesses de rotation, sont présentées sur la Figure 3.15. Pour la population des plus grosses gouttes, leur évolution suit la même tendance que celle du diamètre de Sauter. En effet, le diamètre maximal stable diminue de 560 µm pour $N = 900$ rpm à 320 µm pour $N = 1500$ rpm (et de 379 µm à 194 µm pour d_{32} pour la même variation de vitesse). Cela est cohérent avec l'augmentation de l'énergie injectée dans le système, qui conduit à la formation de gouttes plus petites. Ces observations confirment également les tendances rapportées dans la littérature, où les distributions se décalent vers des diamètres plus faibles et deviennent plus étroites lorsque la vitesse de rotation augmente (Desnoyer et al., 2003; Maaß et al., 2011; Tang et al., 2020).

En revanche, d'après la Figure 3.15, l'augmentation de la population de petites gouttes n'est pas influencée par la vitesse de rotation. En effet, le pic associé aux petites gouttes est présent quelle que soit la vitesse de rotation. Il semble que moins de gouttes de diamètres inférieurs à 100 µm se forment pour $N = 900$ rpm. Cela peut être attribué à la diminution des contraintes exercées par la phase continue, qui réduit le nombre d'événements de rupture et, par conséquent, le nombre de petites gouttes formées. La Figure 3.15 est donc en contradiction avec les résultats de Carrillo De Hert and Rodgers (2018) obtenus avec des phases dispersées visqueuses. En effet, selon les auteurs, les populations de grosses et de petites gouttes diminuent toutes deux avec l'augmentation de la vitesse de rotation. Il convient de noter que la détection est plus complexe à forte vitesse de rotation, car

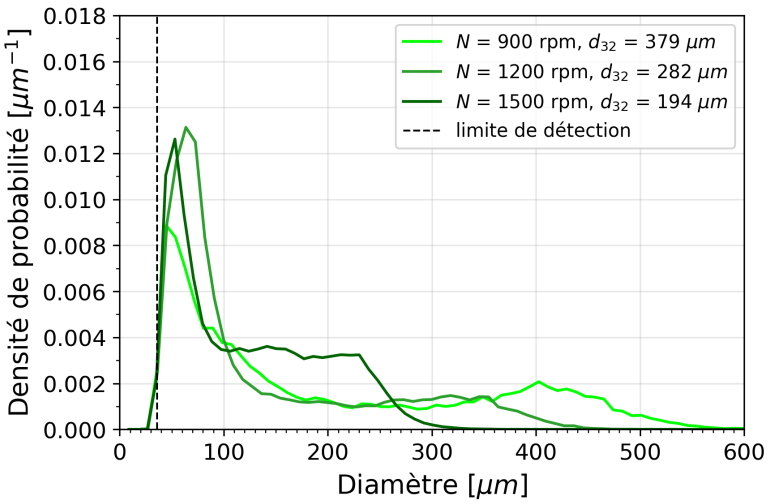


FIGURE 3.15 – Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent en fonction de la vitesse de rotation, pour la phase continue M.6 et $\alpha = 1$ %.

une rupture plus efficace augmente le nombre de gouttes présentes sur les images. Cela favorise les phénomènes de superposition, diminue le contraste entre les gouttes dans le plan focal et le fond de l'image, et peut empêcher une bonne visualisation des petites gouttes, moins imposantes et susceptibles d'être masquées par les plus grosses.

3.3.6 Fraction volumique de gouttes entraînées

Au sein de la thèse, les fonctionnements du mélangeur et du décanteur ont été découplés. D'une part, le nombre de gouttes de diamètre d produites dans le mélangeur à l'instant t a été mesuré en fonction de la viscosité de la phase continue (Figure 3.13). D'autre part, la probabilité que chaque diamètre d soit entraîné à la sortie du décanteur a été estimée dans le Chapitre 2. À partir de ces deux résultats, il est possible d'estimer la fraction volumique β de la phase dispersée entraînée à la sortie du décanteur.

Dans la partie 2.3 (Chapitre 2), la taille des gouttes susceptibles d'être entraînées à la sortie du décanteur a été estimée selon deux approches. Premièrement, par balistique, avec une estimation d'un diamètre critique $d_b^\star$ (voir Tableau 2.5) et deuxièmement, par CFD, avec l'estimation d'une probabilité d'entraînement pour chaque diamètre de goutte (voir Figure 2.13). Ainsi, dans le cadre de l'approche balistique, la fraction de volume de gouttes entraînées est calculée comme la somme des fractions de volume associées aux classes de diamètre inférieurs à $d_b^\star$:

$$\beta_b = \sum_{d_i < d_b^\star} v(d_i) \tag{3.1}$$

où $v(d_i)$ est le volume normalisé (volume occupé par les gouttes de diamètre d_i divisé par le volume total) de la classe d_i, défini comme :

$$v(d_i) = \frac{N_i d_i^3}{\sum_j N_j d_j^3} \tag{3.2}$$

avec N_i le nombre de gouttes de diamètre d_i.

Pour l'approche CFD, la fraction de volume entraînée a, quant à elle, été déterminée par la relation suivante :

$$\beta_{\text{CFD}} = \sum_i v(d_i) P_e(d_i) \tag{3.3}$$

avec $P_e(d_i)$ la probabilité qu'une goutte de diamètre d_i soit entraînée à la sortie du décanteur (voir Figure 2.13). Par ailleurs, deux instants de mesure des distributions de taille dans le mélangeur ont été retenus : $t = 2$ min, correspondant au temps de séjour typique dans les mélangeurs-décanteurs, et $t = 180$ min, moment à partir duquel les distributions de taille atteignent un régime stationnaire dans le dispositif expérimental (Figure 3.11). La fraction volumique de gouttes entraînées à la sortie du décanteur avec ces deux approches et ces deux instants est présentée dans le Tableau 3.3.

TABLE 3.3 – Estimation de la fraction volumique de la phase dispersée entraînée en sortie de décanteur en fonction de la viscosité de la phase continue, à partir de DSDs mesurées à deux instants et d'une probabilité d'entraînement estimée par deux méthodes.

	M2	**M4**	**M6**	**M8**	**M10**
Temps : 2 min					
β_b [%vol]	$1{,}8 \times 10^{-4}$	$4{,}2 \times 10^{-3}$	$3{,}9 \times 10^{-2}$	0,085	0,43
β_{CFD} [%vol]	$1{,}1 \times 10^{-4}$	$8{,}8 \times 10^{-4}$	$9{,}5 \times 10^{-3}$	0,031	0,15
Temps : 180 min					
β_b [%vol]	$6{,}3 \times 10^{-4}$	$2{,}8 \times 10^{-2}$	1,2	3,6	8,1
β_{CFD} [%vol]	$2{,}5 \times 10^{-4}$	$6{,}4 \times 10^{-3}$	0,34	1,2	2,3

D'après le Tableau 3.3, la fraction volumique entraînée augmente significativement avec la viscosité de la phase continue. En considérant les distributions de taille stationnaires dans le mélangeur ($t = 180$ min) et l'approche CFD dans le décanteur, la fraction volumique augmente de $2{,}5 \times 10^{-4}$ % pour M.2 à 0,34 % pour M.6 et jusqu'à 2,3 % pour M.10. Par ailleurs, la fraction volumique entraînée mesurée avec l'approche balistique est surestimée par rapport à l'approche CFD. Cela s'explique par la définition du diamètre critique : une goutte inférieur au seuil est considérée comme entraînée, tandis qu'une goutte légèrement supérieur ne l'est pas. Toutefois, d'après les résultats CFD, l'entraînement dépend de la taille de la goutte, mais aussi de sa trajectoire dans le décanteur (voir partie 2.3). Avec l'approche CFD, le critère est moins restrictif, chaque taille ayant une probabilité d'être entraînée, ce qui explique pourquoi β est plus faible avec cette approche,

malgré une distribution identique dans le mélangeur. Toutefois, en raison d'une meilleure description de l'écoulement de la phase continue, l'approche CFD permet une estimation plus précise de β.

Enfin, le temps de séjour typique de l'émulsion dans le mélangeur étant de l'ordre de $t = 2$ min : la fraction volumique entraînée, calculée à partir des distributions en régime stationnaire, est donc surestimée par rapport à la valeur réelle. D'après le Tableau 3.3, pour les DSDs mesurés à $t = 2$ min, les tendances restent similaires à celles mesurées en régime stationnaire, avec une augmentation significative de la fraction volumique de gouttes entraînées en fonction de la viscosité de la phase continue : $\beta_{\text{CFD}} = 10^{-4}$ % pour M.2, $\beta_{\text{CFD}} = 10^{-2}$ % pour M.6 et $\beta_{\text{CFD}} = 0{,}15$ % pour M.10. L'estimation de β à cet instant est inférieure à β en régime stationnaire, car les tailles des gouttes à $t = 2$ min sont supérieures. D'après Leybros (2004), les gouttes problématiques pour les entraînements possèdent typiquement des diamètres inférieurs à 80 µm, et représentent généralement entre 0,1 et 1 % de la phase dispersée. Ainsi, les observations concordent avec les estimations du Tableau 3.3.

Toutefois, il faut garder en mémoire que les opérations de mélange et de décantation n'ont pas été couplées dans cette étude. Dans un procédé réel fonctionnant en continu, les gouttes présentent une distribution de temps de séjour dans le mélangeur : les gouttes entrant dans le décanteur ne sont donc pas uniquement celles formées après 2 min d'émulsification. Le décanteur reçoit des gouttes de temps d'émulsification variés, correspondant à des tailles différentes.

De plus, à $t = 2$ min, la taille des gouttes dépend des conditions initiales, avec des diamètres injectés qui peuvent légèrement varier selon les conditions opératoires (voir Figure 4.3b), ce qui peut donc fausser les résultats. De plus, les premiers instants sont propices à des erreurs de détection : les gouttes de grande taille peuvent, par effet optique, modifier la taille des gouttes situées derrière elles, les rendant visuellement plus petites et faussant la mesure. Ce phénomène est moins fréquent au cours de l'émulsification, ces gouttes de grande taille étant moins présentes dans le mélangeur. Ce phénomène finit par disparaître en régime stationnaire.

Ainsi, la mauvaise décantation à haute viscosité s'explique par deux facteurs qui se renforcent mutuellement : d'une part, la formation d'un plus grand nombre de petites gouttes, et d'autre part, la diminution de leur vitesse terminale, qui entraîne une augmentation du temps de décantation.

3.3.7 Sédimentation dans le mélangeur

Afin de mettre en évidence les difficultés de décantation aux viscosités de phase continue les plus élevées, des images ont été capturées dans le mélangeur, après l'arrêt de l'agitation, pour chaque condition opératoire. La Figure 3.16 illustre ces observations pour des phases continues de viscosité croissante. Les images ont été prises à 0, 1, 2,5 et 15 minutes après l'arrêt de l'agitation.

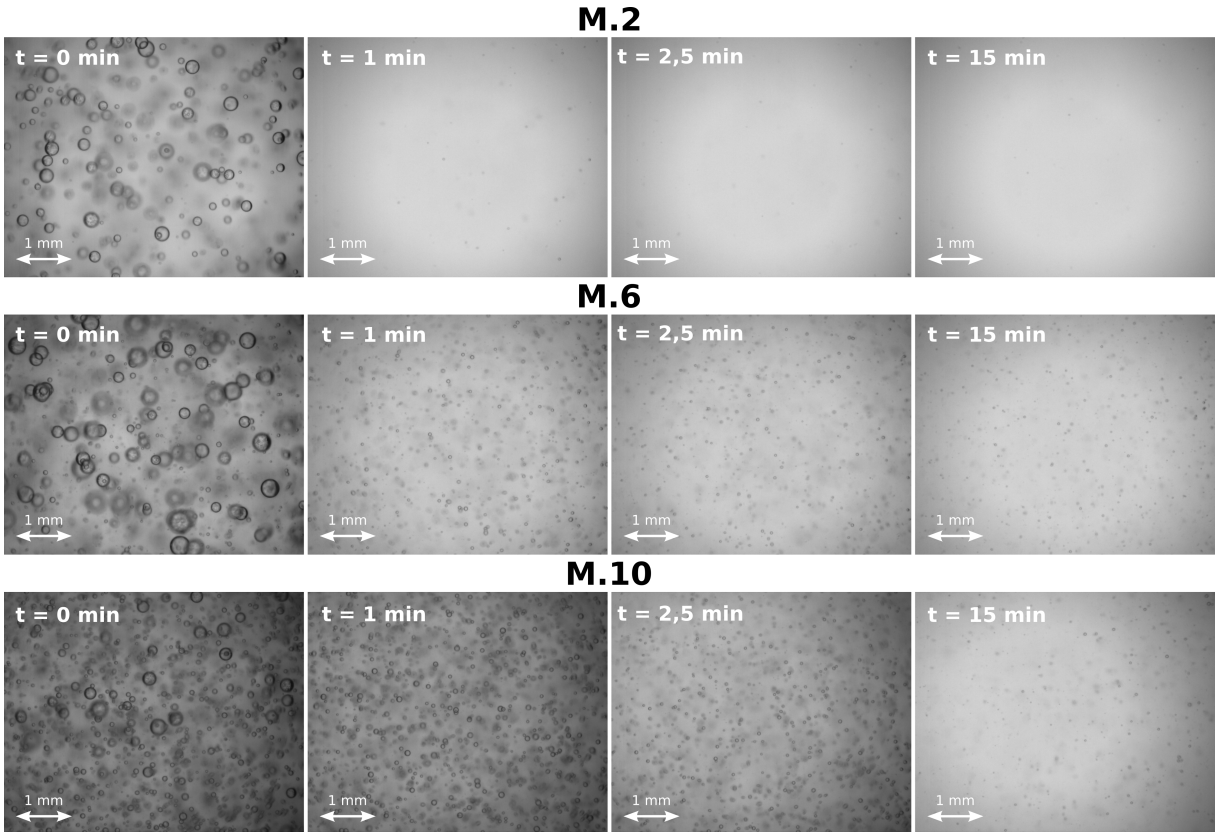


FIGURE 3.16 – Images capturées à $t = 0$, 1, 2,5 et 15 min après arrêt de l'agitation pour les phases continues M.2, M.6 et M.10.

Pour la viscosité la plus faible (M.2), la décantation est relativement rapide : presque toute l'émulsion s'est déposée au fond du mélangeur 30 secondes après l'arrêt de l'agitation. Ainsi, pour $t = 1$, 2,5 et 15 min, les images n'exposent quasiment plus aucune goutte. Pour la phase continue M.6, la décantation devient plus difficile, une fine émulsion étant encore visible dans la zone d'observation à $t = 1$ min. Celle-ci disparaît très lentement, même si de petites gouttes restent encore présentes après 15 minutes. Pour la viscosité la plus élevée (M.10), la décantation des gouttes ralentit encore davantage. Des gouttes de diamètre plus important que celles pour M.6 sont visibles à des instants identiques : $t = 1$ et 2,5 min. De plus, comme pour M.6, à $t = 15$ min, une fine couche d'émulsion apparaît toujours sur les images. Il est à noter que cette fine émulsion résiduelle observée pour les deux viscosités les plus élevées est encore présente 30 min après l'arrêt de l'agitation.

La très fine émulsion présente sur les images des phases continues M.6 et M.10 aux instants de $t = 2{,}5$ et $t = 15$ min n'est pas mesurable par le réseau YOLO. Ceci est dû à une résolution insuffisante des images, où 3 à 4 pixels (≈ 36 µm) sont nécessaires pour une détection satisfaisante du réseau. En utilisant le logiciel ImageJ, on peut estimer la taille de cette émulsion résiduelle entre 5 et 40 µm.

Par ailleurs, les plus grandes tailles de gouttes à $t = 1$ min pour la phase continue M.6 ont été estimées à environ 80 µm. Pour le même instant, ces tailles sont mesurées à 150 µm

pour M.10, ce qui montre de manière plus quantitative que la décantation est défavorisée lorsque la viscosité augmente. Par ailleurs, à t = 2,5 min, les plus grosses gouttes sont mesurées à 80 µm pour la phase continue M.10.

À titre informatif, les temps de séjour dans les décanteurs sont généralement de l'ordre de 10 à 15 min. Il peut être noté que les observations présentées sur la Figure 3.16 sous-estiment la présence de cette fine émulsion problématique : dans cette expérience, la phase continue est au repos, et les gouttes sont uniquement régies par leur vitesse terminale. Toutefois, dans le décanteur, les gouttes sont soumises à un écoulement ascendant de la phase continue (voir partie 1.1.4), ce qui défavorise leur décantation.

De manière plus quantitative, le temps de sédimentation théorique d'une goutte dans le mélangeur a été estimé à partir de la hauteur de liquide dans l'appareil H et de la vitesse terminale de chute u_t, définie par l'équation 2.4. Comme exposé dans la partie 2.3, le nombre de Reynolds particulaire reste toujours inférieur à 1 pour toutes les viscosités, ce qui valide l'hypothèse de Stokes, et les gouttes atteignent quasiment instantanément leur vitesse terminale. Par ailleurs, d'après la Figure 3.16, les gouttes conservent une forme sphérique, quelle que soit leur taille.

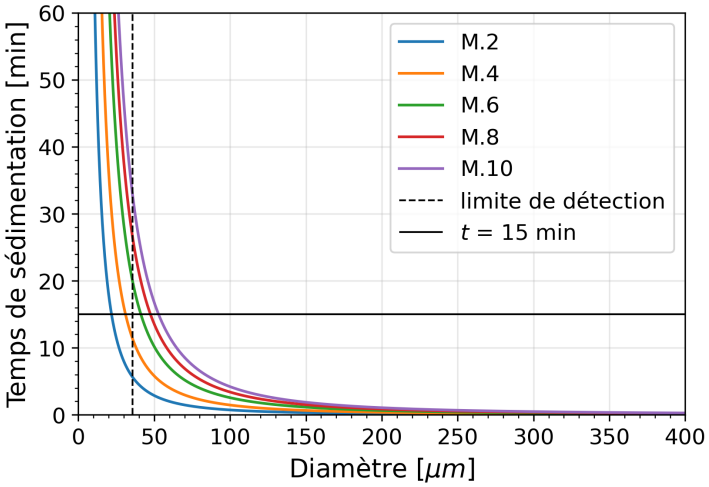


FIGURE 3.17 – Temps de sédimentation théoriques dans le mélangeur en fonction de la taille des gouttes pour différentes viscosités de phase continue.

D'après la Figure 3.17, le temps de sédimentation théorique varie en $1/d^2$. Il augmente donc fortement lorsque le diamètre des gouttes diminue. La formation de gouttes de petites tailles dans le mélangeur est donc à éviter, même à faible viscosité, car celles-ci possèdent des temps de sédimentation significatifs, bien supérieurs au temps de séjour dans le décanteur.

Par ailleurs, pour un diamètre donné, le temps de sédimentation augmente avec la viscosité de la phase continue. Par exemple, pour la phase continue M.2, seuls les diamètres inférieurs à 22 µm n'ont pas encore décanté à t = 15 min. Ces diamètres sont inférieurs à la limite de détection des DSD, mais d'après les observations visuelles des images (voir

Figure 3.10), très peu, voire aucune goutte de cette taille ne se forme à cette viscosité. Cela est donc cohérent avec l'absence d'émulsion sur les images de la Figure 3.16. En revanche, pour M.6, le diamètre limite à $t = 15$ min est de 41 µm, et il atteint 53 µm pour M.10. Cela correspond typiquement aux tailles mesurées sur les images de la Figure 3.16.

3.4 Conclusion et discussion

Au sein de ce chapitre, les **distributions de taille de gouttes** (DSDs) ont été mesurées dans un mélangeur expérimental. Les acquisitions ont été réalisées à l'aide d'une **caméra** rapide positionnée à **l'extérieur** de la cuve, et le traitement des images s'est appuyé sur une méthode de **machine learning** récemment publiée (Bana et al., 2024). Le recours à ces deux approches peu communes s'explique par des contraintes expérimentales et par la nécessité de détecter efficacement les petites gouttes, essentielles à la compréhension des phénomènes d'entraînement de phase. En effet, d'une part, le faible volume du mélangeur considéré ($V = 10$ mL) ne permet pas l'utilisation des méthodes traditionnelles de prélèvement (Desnoyer et al., 2003; Singh et al., 2009) ni l'emploi d'une sonde endoscopique réalisant des mesures *in situ* (Khalil et al., 2010). D'autre part, l'algorithme **YOLO**, entraîné via la méthode **BYG-drop**, a démontré des performances nettement supérieures à celles des méthodes classiques de traitement d'image (transformée de Hough ou l'algorithme proposé par Maaß et al. (2012)), tant en termes de précision qu'en nombre de gouttes détectées (Bana et al., 2024). Des études préliminaires ont confirmé ces observations, avec la détection d'un plus grand nombre de petites gouttes avec le réseau YOLO.

Afin d'améliorer les performances de détection, le réseau YOLO a été spécifiquement entraîné sur les images expérimentales issues du mélangeur. Après la validation du traitement d'image, l'instant à partir duquel les distributions de taille atteignent un régime stationnaire a été identifié, et la variation spatiale des distributions a été analysée. L'ensemble de ces études préliminaires ont permis de confirmer la fiabilité des mesures. A partir de ces approches, les effets de la viscosité de la phase continue (FOC), de la viscosité de la phase dispersée (FAC) et de la vitesse de rotation de la turbine sur la taille des gouttes ont été étudiés.

Il a été observé qu'une **augmentation de la viscosité de la phase continue entraîne une transition du régime de rupture**, révélant une phénoménologie différente : la distribution des tailles de gouttes évolue d'une forme relativement uniforme vers une **distribution bimodale**, avec un pic marqué dans la gamme des petites tailles. En effet, les gouttes de diamètre inférieur à 100 µm représentent seulement 20 % des gouttes détectées à faible viscosité, contre **68 % pour la phase continue M.10**. En couplant ces distributions avec l'estimation des gouttes de diamètres problématiques vis-à-vis de l'entraînement dans le décanteur (Chapitre 2, partie 2.3), on constate une **augmentation drastique de l'entraînement avec la viscosité**. Ce phénomène résulte à la fois de l'augmentation significative du nombre de gouttes de petites tailles dans le mélangeur, ainsi que de l'augmentation des tailles de gouttes susceptibles d'être entraînées dans le décanteur.

Le changement de forme de distribution peut être attribué soit à l'augmentation de la viscosité de la phase continue, soit à la modification du rapport de viscosité, soit à une variation du régime d'écoulement. Des mesures de dispersion organique dans aqueux ont montré que **la rupture réagit de manière asymétrique avec la viscosité** : bien qu'une bimodalité apparaisse également pour une phase dispersée de viscosité $\mu = 9{,}9$ mPa·s, l'amplitude de la population de petites gouttes reste faible. Le passage d'un fonctionnement FOC à FAC semble donc être une stratégie intéressante pour **limiter la formation de petites gouttes avec des solvants visqueux** et, par conséquent, diminuer les entraînements. Cependant, le mode de fonctionnement est souvent imposé par le procédé plutôt que choisi, ce qui limite l'utilisation de cette approche. Il reste également difficile de déterminer si la diminution du nombre de petites gouttes résulte du changement du rapport de viscosité ou d'une augmentation du nombre de Reynolds.

Par ailleurs, la modification de la vitesse de rotation n'a eu aucun effet significatif sur le nombre de petites gouttes produites. Cela s'explique par la gamme de vitesses explorée ($275 < Re < 455$), qui ne couvre pas entièrement la zone de transition observée avec la viscosité de la phase continue ($365 < Re < 1030$). **La vitesse de rotation n'a donc pas permis de dissocier les effets combinés du nombre de Reynolds et de la viscosité de la phase continue.**

Ainsi, au vu de ces deux résultats, la suite de la thèse s'est concentrée **exclusivement sur la variation de la viscosité de la phase continue**. L'objectif de la démarche est de comprendre **l'origine du changement de régime de rupture** et l'augmentation marquée du nombre de petites gouttes. Dans cette optique, la dynamique locale de la rupture a été étudiée expérimentalement (Chapitre 4) et numériquement (Chapitre 6, partie 6.2), et le régime d'écoulement ainsi que les contraintes hydrodynamiques de la phase continue ont été identifiés (Chapitre 5).

Chapitre 4

Analyse expérimentale de la dynamique locale de la rupture de gouttes en fonction de la viscosité de la phase continue

Sommaire

4.1 Introduction et rappels bibliographiques 133
4.2 Matériel et méthodes 135
4.2.1 Montage et protocole expérimental 135
4.2.2 Traitement d'images 138
4.2.3 Taille des gouttes injectées 139
4.3 Résultats et discussion 141
4.3.1 Mécanisme de rupture 141
4.3.2 Localisation de la rupture 153
4.3.3 Temps de rupture 155
4.3.4 Nombre de gouttes filles 158
4.3.5 Distribution de taille des gouttes filles (DDSD) 160
4.4 Discussion, conclusion et perspectives 166

4.1 Introduction et rappels bibliographiques

Au sein d'un procédé d'extraction liquide-liquide, la taille des gouttes est un critère essentiel, car elle permet d'estimer l'aire interfaciale, qui impacte directement l'efficacité du transfert de matière. Les distributions de taille jouent également un rôle clé dans la séparation des phases, notamment pour les problèmes d'entraînement de phase dans les mélangeurs-décanteurs (voir partie 2.3). Les premières études portées sur le développement de modèles semi-empiriques (Shinnar and Church, 1960; Calabrese et al., 1986a; Singh et al., 2008b; Tang et al., 2020), fondés sur l'estimation d'un diamètre maximal stable $d_{\max}$ ou d'un diamètre de Sauter d_{32}. Toutefois, ces dernières ne permettent pas de représenter l'ensemble d'une population de taille. Dans cette optique, les bilans de population (PBE), généralement couplés à la mécanique des fluides numérique (CFD), sont majoritairement utilisés. Ces derniers permettent de modéliser la variation temporelle et spatiale des distributions de taille d'une population de gouttes au sein d'un réacteur (Ramkrishna, 2000) (voir partie 6.1). Pour la rupture, les termes sources des modèles PBE impliquent plusieurs variables telles que : le temps de rupture, la probabilité de rupture à travers la fréquence de rupture (Coulaloglou and Tavlarides, 1977), le nombre de gouttes filles produites, ou encore la distribution de taille des gouttes filles (DDSD). Au cours des années, un nombre conséquent de modèles a été développé dans la littérature. Plusieurs revues de ces modèles sont présentes dans la littérature (Lasheras et al., 2002; Liao and Lucas, 2009). Cependant, ces modèles peuvent parfois prédire des résultats contradictoires, ce qui souligne que ce phénomène n'est pas encore complètement compris et qu'une modélisation universelle n'a pas encore émergé (Andersson and Andersson, 2006a,b).

Afin d'avoir une compréhension fine des phénomènes de rupture et de coalescence, des expériences, pouvant être classées en plusieurs catégories, sont généralement menées. Le premier type, présent de manière exhaustive dans la littérature, réside dans la mesure expérimentale des distributions de taille de gouttes (DSD) (Khalil et al., 2010; Maaß et al., 2012). Ces mesures expérimentales sont essentielles pour quantifier l'efficacité d'un procédé, car elles permettent d'estimer les tailles d'une population pour une condition opératoire donnée (voir Chapitre 3). Ces mesures sont typiquement comparées aux estimations des modèles PBE, afin d'ajuster les constantes des noyaux (Singh et al., 2009; Ribeiro et al., 2011; Amokrane, 2014). Toutefois, elles ne permettent pas de comprendre la phénoménologie de la rupture en elle-même.

Afin de valider et de développer de nouveaux modèles, des études expérimentales portant sur la dynamique de rupture de gouttes uniques sont réalisées. Ces expériences analysent localement le mécanisme de rupture et permettent de caractériser avec précision le temps et la probabilité de rupture, ainsi que la taille et le nombre de gouttes filles générées (Maaß et al., 2007; Maaß and Kraume, 2012). Elles sont généralement réalisées à l'aide de caméras rapides, placées à l'extérieur de l'écoulement, qui capturent des images à une fréquence élevée. Le troisième type d'expérience possède une approche très similaire, en étudiant de manière approfondie le mécanisme de rupture à travers un « essaim » de gouttes (*droplet swarm*) (Zhou et al., 2017, 2019b, 2021b). La difficulté de ces deux derniers Ltypes d'expériences réside dans la bonne connaissance de l'écoulement environ-

nant et des contraintes qu'il produit, afin de comprendre précisément les mécanismes de déformation à la surface de la goutte.

En ce qui concerne les expériences portant sur la rupture de gouttes uniques, la littérature est moins abondante que pour les mesures de taille. Les premières études de rupture de goutte unique datent d'il y a presque 100 ans et ont été réalisées au sein d'écoulements laminaires, simples et facilement contrôlables (colonne couette et/ou *Four Roll Mill*), produisant des écoulements extensionnels ou cisaillés (Taylor, 1934; Rumscheidt and Mason, 1961; Karam and Bellinger, 1968; Grace, 1982; Stone et al., 1986). Plus récemment, grâce à une meilleure compréhension des phénomènes de rupture et à l'utilisation d'instruments de mesure plus performants (comme les caméras rapides), les recherches se sont orientées vers des écoulements plus complexes et turbulents (Sleicher Jr, 1962; Collins and Knudsen, 1970; Hesketh et al., 1991; Kuriyama et al., 1995; Risso and Fabre, 1998; Eastwood et al., 2004; Galinat et al., 2005; Andersson and Andersson, 2006b; Maaß et al., 2007). Cependant, comme le soulignent Krakau and Kraume (2019b), les études portant sur la rupture de gouttes uniques dans des cuves agitées restent rares (Konno et al., 1983; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Hamed et al., 2024). Cela est dû à la complexité des écoulements qui y sont générés, c'est-à-dire turbulents, tridimensionnels et fortement hétérogènes. De plus, la comparaison directe entre les travaux existants est difficile, car chaque étude utilise un équipement spécifique, opère dans des conditions opératoires et des régimes d'écoulement différents, et s'intéresse à des phases dispersées variées (bulles ou gouttes), dont les mécanismes de rupture diffèrent (Andersson and Andersson, 2006b). Pour celles qui traitent la rupture de gouttes, les liquides étudiés peuvent présenter des propriétés physico-chimiques et des tailles de gouttes mères très variables. Enfin, il n'existe pas de définition universelle de l'événement de rupture (Solsvik et al., 2016). Certains considèrent la rupture d'une goutte mère comme un processus global, constitué d'une succession de ruptures intermédiaires dépendantes les unes des autres (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b), tandis que d'autres analysent chaque rupture individuellement (Maaß and Kraume, 2012; Zhou et al., 2021b; Zhang et al., 2023). Ces divergences de définition peuvent conduire à des écarts significatifs dans l'estimation du temps de rupture, du nombre et des distributions de taille des gouttes filles. L'ensemble de ces éléments met en évidence la nécessité de mener ses propres expériences, notamment pour des géométries (mélangeur $V = 10$ mL), des conditions opératoires (phase continue organique et visqueuse) et des régimes d'écoulement ($200 < Re < 1300$) spécifiques, tels que ceux considérés au sein de la thèse. En effet, à notre connaissance, aucune expérience portant sur la dynamique de la rupture n'a été menée dans ces conditions.

Dans le Chapitre 3, des mesures expérimentales des distributions de taille de gouttes ont été réalisées pour une large gamme de conditions opératoires. Il a été montré que le nombre de gouttes de diamètre inférieur à 100 µm augmente significativement avec la viscosité de la phase continue. Cependant, la taille des gouttes n'est que la conséquence du mécanisme de rupture. Dans cette optique, une étude expérimentale a été menée afin d'analyser localement la phénoménologie de la rupture de gouttes. Cette étude repose sur l'enregistrement de vidéos de ruptures avec une caméra rapide placée à l'extérieur du mélangeur expérimental. Ces enregistrements permettront de visualiser directement la

rupture afin d'identifier les différents mécanismes mis en jeu, de déterminer leur localisation, leur temps de rupture, ainsi que le nombre et la taille des gouttes filles générées. Ce chapitre vise, *in fine*, à mieux interpréter les distributions de taille présentées dans le Chapitre 3. En particulier, il permettra de mieux comprendre les mécanismes responsables de la formation des petites gouttes lors de l'émulsification à forte viscosité, et d'apporter des éléments d'explication à la formation d'entraînements de phases. Les résultats obtenus pourront également alimenter un modèle de bilan de population, qui sera discuté en détail dans la partie 6.1 du Chapitre 6. Enfin, une partie de ce chapitre a notamment fait l'objet d'une publication scientifique (Hardy et al., 2025).

4.2 Matériel et méthodes

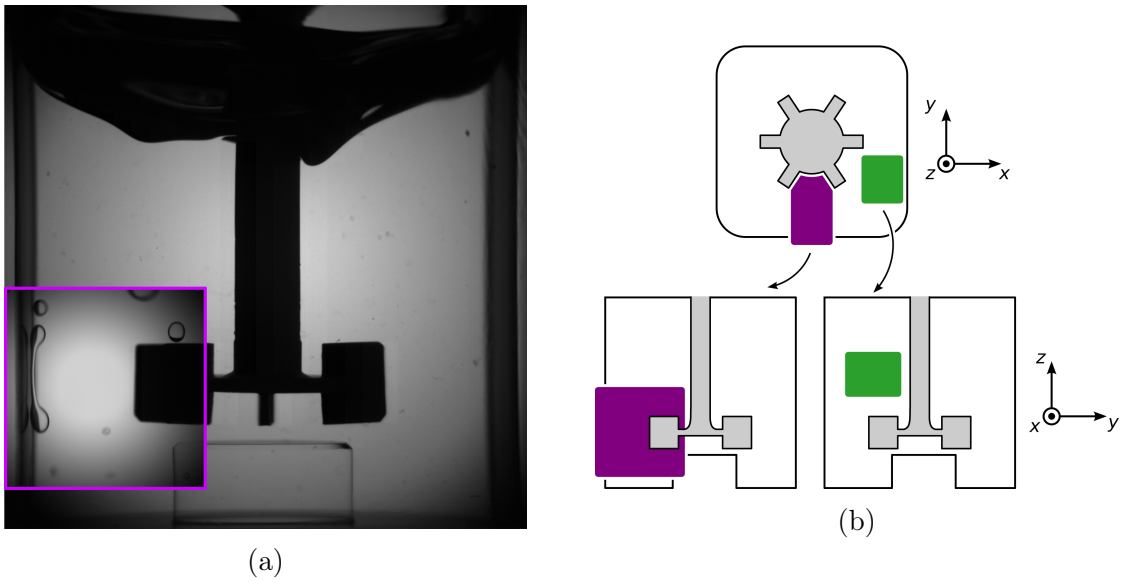
4.2.1 Montage et protocole expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est identique à celui décrit dans le Chapitre 3. Il est principalement constitué d'un mélangeur miniaturisé et transparent, équipé d'une turbine Rushton de diamètre $D = 12$ mm, et dans lequel est généré l'émulsion. Une caméra rapide (PHOTRON), placée en amont du mélangeur, permet l'enregistrement de vidéos, tandis qu'un panneau LED PHLOX, positionné en aval, assure un éclairage constant et uniforme de l'émulsion. L'ensemble du dispositif est présenté plus en détail dans le paragraphe 3.2.1.

Tout comme dans le chapitre précédent, les mesures sont réalisées dans un système dilué (faible concentration de la phase dispersée), ce qui permet de négliger la coalescence et de ne considérer que les phénomènes de rupture. Ainsi, au cours des expériences de ce chapitre, $N_b = 464$ événements de rupture ont été observés contre 14 événements de coalescence. Les événements de coalescence sont spécifiquement discutés en détail en annexe B. Dans ce chapitre, seules les conditions opératoires problématiques vis-à-vis des entraînements de phase ont été post-traitées. Ainsi, l'étude se concentre sur la configuration où la phase aqueuse est dispersée dans une phase continue organique (FOC), afin d'analyser l'influence de la viscosité de la phase continue sur le mécanisme de rupture. Au sein de ce chapitre, la vitesse de rotation est fixée à $N = 1200$ rpm, et le taux de rétention à $\alpha < 0,5$ %. Les expériences sont conduites à température ambiante, soit $T = 22{,}5 \pm 1°\text{C}$. Afin de reproduire les mêmes viscosités que celles obtenues dans les expériences du Chapitre 3, réalisées à $T = 28 \pm 1°\text{C}$, la proportion de Marcol 82 dans le mélange organique a été légèrement ajustée. Les différents mélanges de phase organique seront donc dénommés ici avec une étoile, typiquement M.2*. Les propriétés physico-chimiques des phases utilisées sont exposées dans les Tableaux 2.3 et 2.4.

Le protocole expérimental est détaillé ci-dessous. Tout d'abord, le mélangeur est rempli de $V = 10$ mL de la phase organique souhaitée, et la vitesse d'agitation de la turbine est réglée à $N = 1200$ rpm. Après quelques secondes d'agitation, le régime permanent est atteint (voir Chapitre 5) : une fraction volumique de $\alpha = 0{,}5$ % de phase aqueuse est injectée goutte à goutte, à un débit de $D_v = 3$ mL$\cdot$min^{-1}, à travers un capillaire situé dans la zone de recirculation. Dans cette zone, les effets de cisaillement sont faibles,

ce qui permet de minimiser les écarts de taille des gouttes injectées. L'enregistrement vidéo commence lors du début de l'injection des gouttes et se poursuit pendant 1,3 s. Ainsi, au cours de la mesure, le taux de rétention α est compris entre 0 et 0,5 %. Afin d'augmenter la reproductibilité et d'assurer la convergence statistique des événements de rupture, l'expérience a été répétée cinq fois pour chaque viscosité de la phase continue. Cette procédure a permis d'observer des événements de rupture allant de $N_b = 66$ (pour M.10*) à $N_b = 164$ (pour M.2*) pour chaque condition de fonctionnement.

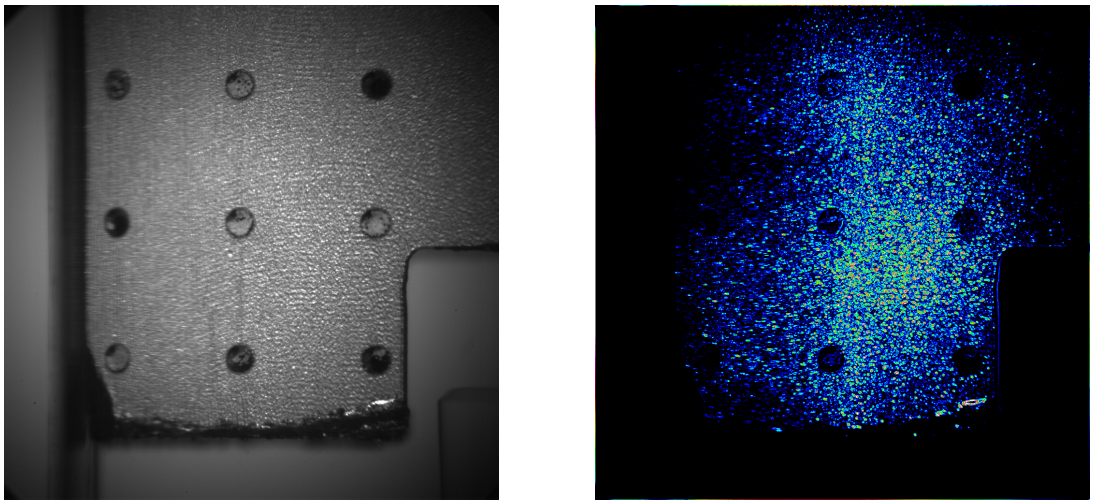


(a) (b)

FIGURE 4.1 – (a) Représentation schématique de l'expérience de rupture de gouttes uniques et (b) comparaison des zones de mesure (■) des DSDs (Chapitre 3) et (■) des ruptures de gouttes uniques (Chapitre 4).

Comme le phénomène de rupture se produit sur des petites échelles de temps, la fréquence d'acquisition de la caméra a été augmentée à 1000 images par seconde. Ce choix garantit, d'une part, une résolution temporelle suffisante pour observer clairement la rupture et, d'autre part, permet de capturer un nombre maximal d'événements. La vitesse d'obturation a été fixée à 1/3800 s. Cette vitesse d'obturation a été sélectionnée afin de minimiser les flous de mouvement tout en assurant une luminosité suffisante dans la saturation de l'image [1]. Les enregistrements vidéo ont été réalisés dans la zone de décharge de la turbine, au niveau du plan central du mélangeur, comme illustré sur la Figure 4.1. En effet, cette région possède une fréquence de rupture importante (Konno et al., 1983; Maaß et al., 2007; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b), notamment en raison des taux de dissipation d'énergie cinétique turbulente élevés qui y sont observés (Escudié and Liné, 2003; Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2009; Laine et al., 2023). Par ailleurs, les images ont été agrandies d'un facteur quatre par rapport au Chapitre 3, avec une résolution de 1024×1024 pixels[2]. Cet agrandissement a permis d'inclure simultanément les pales et la paroi dans la zone de mesure.

1. L'objectif utilisé ne possède pas de diaphragme. La quantité de lumière sur l'image est donc réglable uniquement par la vitesse d'obturation.



(a) (b)

FIGURE 4.2 – (a) Photographie de la mire dans la zone de mesure et (b) algorithme d'aide à la mise au point du logiciel PFV4 (FASTCAM Viewer 4, PHOTRON).

Une mire composée de 9×8 points de 400 µm de diamètre a été utilisée pour effectuer la mise au point, calibrer l'échelle et vérifier l'absence de distorsion optique dans la zone de mesure. Ainsi, le volume d'observation est estimé à environ $8,9 \times 8{,}9 \times 6$ mm^3, soit près de 5 % du volume total du mélangeur. De plus, la résolution des images acquises est de 8,7 µm par pixel. Ce faible volume de mesure illustre bien le caractère hétérogène des cuves agitées, où les ruptures et les contraintes hydrodynamiques maximales sont très localisées. Une photographie de la mire ainsi que de l'algorithme d'aide à la mise au point (PFV4, PHOTRON) est présentée sur la Figure 4.2. La présence des parois dans la zone d'observation induit une légère déformation optique, liée à la courbure des coins du mélangeur. En effet, la circularité C_F peut être définie comme le rapport entre l'aire d'un point de la mire A et l'aire d'un cercle de diamètre $F_{\max}$ (diamètre de Féret maximal, qui correspond à la distance maximale entre deux tangentes parallèles) (Li et al., 2005) :

$$C_F = \frac{4A}{\pi \left(F_{\max}\right)^2} \tag{4.1}$$

Ce paramètre est classiquement utilisé en traitement d'image pour évaluer à quel point un objet est proche d'un cercle parfait. D'après la Figure 4.2, les six points situés à droite de la mire présentent une sphéricité moyenne de 0,97, tandis que les trois situés à gauche possèdent une sphéricité de 0,86. Cet écart relatif de 12 % indique que les points centraux de la mire conservent une forme quasi circulaire, tandis que ceux proches des parois sont légèrement étirés verticalement. Cette déformation étant localisée et modérée, elle a donc été négligée. Toutefois, il est important de garder en tête que de nombreuses ruptures ont été observées près de la paroi, rendant leur estimation de taille légèrement erronée.

Cette déformation aurait pu être minimisée en ajustant l'indice de réfraction de la phase continue à celui de la cuve expérimentale ($n_{\text{PMMA}} = 1{,}491$ à 28°C pour une longueur d'onde de 589,3 nm, (Fan et al., 2023)). Cependant, un ajustement simultané de la

viscosité, de la tension interfaciale et de l'indice de réfraction est difficile à obtenir. De plus, l'indice de réfraction mesuré pour les mélanges organiques varie entre $1,429 < n < 1,454$ (voir Tableau 2.3), soit une valeur déjà relativement proche de celle du PMMA. Une correction numérique aurait également pu être envisagée en appliquant une transformée à l'image. Cependant, la mire ne comportait pas suffisamment de points (9 dans la zone d'observation) pour appliquer une correction fiable.

Enfin, des essais ont été menés pour observer des ruptures à des temps plus éloignés de l'injection, mais leur exploitation était complexe. En effet, la probabilité de rupture diminue avec la taille des gouttes (Coulaloglou and Tavlarides, 1977; Luo and Svendsen, 1996). Par ailleurs, augmenter le taux de rétention augmente la probabilité de rupture, mais entraîne des chevauchements de gouttes, rendant leur visualisation inexploitables. L'utilisation d'une nappe laser permettrait d'observer des ruptures à des instants plus éloignés, tandis que l'ajout d'un colorant dans la phase dispersée faciliterait leur observation.

4.2.2 Traitement d'images

Dans la littérature, le traitement d'images des expériences de rupture de goutte unique repose généralement sur une binarisation suivie d'une détection de contours (Risso and Fabre, 1998; Eastwood et al., 2004; Maaß et al., 2007). Ces approches sont adaptées à des écoulements relativement simples, où les gouttes peuvent être traitées individuellement et séquentiellement. En revanche, en cuve agitée, l'écoulement est tridimensionnel et complexe, et le mouvement des particules est plus difficile à contrôler : les mesures sont donc généralement effectuées manuellement (Kuriyama et al., 1995; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Hamed et al., 2024). Récemment, Krakau and Kraume (2019a) ont proposé un algorithme de suivi de trajectoire automatique, fondé sur la méthode des plus proches voisins. Cette approche permet notamment d'évaluer la probabilité et le temps de rupture, de suivre la position d'une bulle et d'estimer le nombre de bulles filles générées. Toutefois, elle ne permet pas de déterminer leur distribution de tailles. De plus, l'algorithme reste limité à un faible nombre de bulles mères visibles simultanément sur les images et éprouve des difficultés lorsqu'un grand nombre de bulles filles est produit, notamment en cas de chevauchement de bulles ou de disparition temporaire derrière les pales.

L'application de ce type de méthode est toutefois complexe dans notre mélangeur liquide-liquide. Tout d'abord, les bulles sont plus facilement détectables que les gouttes (Krakau and Kraume, 2019a), notamment grâce à leurs propriétés optiques et produisent moins de particules filles (Andersson and Andersson, 2006b), ce qui facilite le traitement de l'algorithme. Par ailleurs, les bulles se déplacent naturellement vers l'interface liquide-air, ce qui permet de les analyser individuellement, sans interférences avec les bulles précédemment injectées. Au sein des expériences de ce chapitre, une résolution spatiale fine a été choisie afin de capturer la formation des « petites » gouttes : la zone de mesure est donc restreinte et l'injection n'est pas visible. Enfin, la présence de reflets et de faible contraste le long de la paroi complique fortement le traitement d'image (voir les Figures 4.4, 4.6...).

De plus, contrairement au Chapitre 3, les gouttes observées ici présentent des formes relativement déformées (elliptiques, allongées, en forme de patatoïde). Cela est notamment dû à la zone de mesure, proche des fortes contraintes hydrodynamiques, et de la taille relativement importante des gouttes mères après leur injection. Par conséquent, l'algorithme de machine learning entraîné et utilisé dans le Chapitre 3 n'a pas pu être appliqué. Par ailleurs, des essais de traitement d'image automatique, basés sur une binarisation et une détection des contours, ont été réalisés. Toutefois, ces méthodes se sont révélées peu fiables, notamment à proximité de la paroi, avec un faible contraste gouttes-fond de l'image et des reflets importants lorsque les gouttes s'en approchent (voir Figures 4.6 et 4.7).

Le traitement d'image a donc été effectué manuellement sur le logiciel ImageJ. La taille des gouttes a été estimée à partir d'un diamètre équivalent d_{eq}, défini par (Li et al., 2005) :

$$d_{\text{eq}} = 2\sqrt{\frac{A}{\pi}} \tag{4.2}$$

avec A l'aire de la goutte sur l'image (aire projetée dans le plan focal). Les mesures ont été réalisées lorsque la forme des gouttes était la plus sphérique possible. Cependant, l'écoulement dans la zone de mesure étant majoritairement orthoradial et perpendiculaire au plan d'observation, les gouttes à l'origine des ruptures post-traitées étaient généralement sphériques hors du plan focal, et commençaient a se déformer une fois arrivées dans le plan.

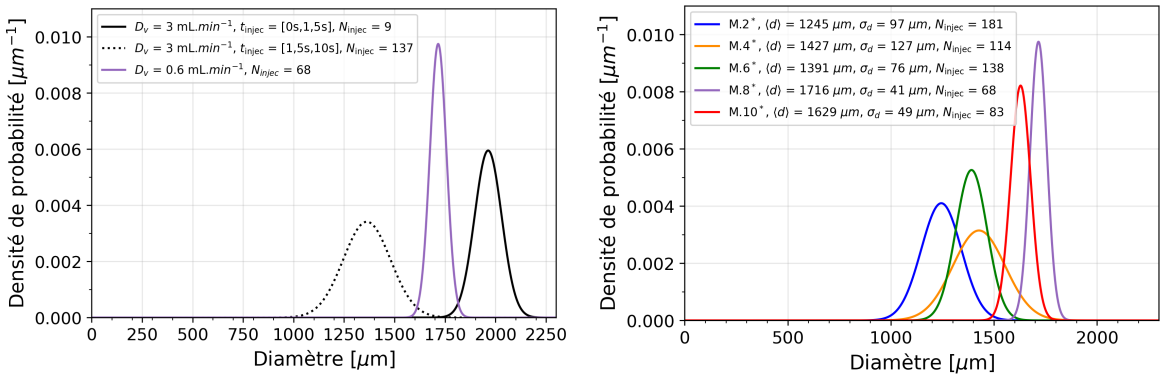
4.2.3 Taille des gouttes injectées

La taille des gouttes mères influence fortement le phénomène de rupture, notamment le temps de rupture, le nombre et la taille des gouttes filles (Kuriyama et al., 1995; Maaß and Kraume, 2012). Il est donc essentiel de contrôler précisément la taille des gouttes à la sortie du capillaire et de vérifier qu'elle reste indépendante des conditions opératoires. Dans cette optique, des mesures de la taille des gouttes injectées ont été réalisées. Dans le cadre du chapitre précédent, la taille des gouttes initiales n'était pas problématique, la comparaison des DSDs étant effectuée en régime stationnaire.

Afin d'améliorer la convergence statistique, la fréquence d'acquisition a été réduite à 125 fps, ce qui permet d'enregistrer l'injection des gouttes sur une durée de $t_{\text{injec}} = 10{,}9$ s. De plus, deux répétitions ont été effectuées pour chaque viscosité de phase continue afin d'augmenter la taille de la population analysée (N_{injec}). Les distributions ont été mesurées à partir de l'équation 4.2, et approximées par des gaussiennes, de valeur moyenne $\langle d \rangle$ et d'écart type σ_d.

Les distributions de taille des gouttes à la sortie du capillaire pour deux débits, $D_v = 0{,}6$ et 3 $\text{mL} \cdot \text{min}^{-1}$, sont présentées sur la Figure 4.3a (pour la phase continue M.8*). Pour le débit le plus élevé, la distribution est bimodale avec : une population de grosses gouttes ($\langle d \rangle = 1960$ µm) formées pendant les 1,5 premières secondes, suivies de

plus petites ($\langle d \rangle = 1360$ µm). Cette bimodalité semble être due à la stabilisation du débit fourni par le pousse-seringue, qui est dans un régime transitoire pendant les premières secondes d'injection. Ce phénomène est nettement visible sur les images expérimentales, où des gouttes relativement grosses se forment dans les premiers instants, suivies d'un filet de gouttes une fois le régime permanent atteint.



(a) (b)

FIGURE 4.3 – (a) DSDs injectées pour $N = 1200$ rpm et M.8*, pour des débits d'injection de $D_v = 0{,}6$ mL·min^{-1} et $D_v = 3$ mL·min^{-1} et (b) DSDs injectées en fonction de la viscosité de la phase continue, pour $N = 1200$ rpm et $D_v = 0{,}6$ mL·min^{-1}.

Les expériences de rupture ont été réalisées à un débit de $D_v = 3$ mL·min^{-1}, et enregistrées pendant les 1,3 premières secondes d'injection. Cependant, la population de gouttes obtenue pendant ce laps de temps ne représente qu'un faible échantillon ($N_{\text{injec}} = 9$). En revanche, pour un débit plus faible ($D_v = 0{,}6$ mL·min^{-1}), la population est monomodale, constante au cours du temps, avec $\langle d \rangle = 1715$ µm, et proche de celle observée précédemment ($t_{\text{injec}} < 1,5$ s). Un écart relatif de 13 % a été estimé entre les deux populations. Par ailleurs, le débit de $D_v = 0{,}6$ mL·min^{-1} permet de générer une population statistiquement satisfaisante en un minimum d'expériences.

La Figure 4.3b présente donc l'évolution de la taille des gouttes injectées en fonction de la viscosité de la phase continue pour un débit de $D_v = 0{,}6$ mL·min^{-1}. On observe une augmentation de la taille moyenne des gouttes injectées avec la viscosité : elle passe de $\langle d \rangle = 1245$ µm pour M.2* à $\langle d \rangle = 1629$ µm pour M.10*. Cette tendance s'explique par l'influence de la viscosité sur les régimes d'écoulement et les contraintes à la sortie du capillaire. Lorsque l'écoulement est plus turbulent (typiquement M.2*), les gouttes se détachent plus rapidement du capillaire, ce qui donne lieu à des volumes plus faibles et à un nombre plus élevé de gouttes. À l'inverse, pour les phases continues M.8* et M.10*, l'écoulement est moins influent, ce qui favorise la formation de gouttes plus grosses. Cette observation se retrouve dans l'écart type des distributions. En effet, il est environ deux fois plus faible pour M.8* et M.10* que pour M.2*, M.4* et M.6*.

Toutefois, la Figure 4.3b illustre que le diamètre moyen est légèrement plus élevé pour M.4* que pour M.6*, et pour M.8* que pour M.10*. Ces écarts mettent en lumière l'in-

certitude de la mesure, probablement liée à la position du capillaire. En effet, ce dernier est positionné dans la zone de recirculation, mais n'est pas rigoureusement fixe au cours des différentes expériences. Par ailleurs, ces écarts peuvent également être dus à la tension interfaciale, qui n'est pas exactement constante pour les cinq systèmes diphasiques. D'après la Figure 4.3b, les différences observées entre les viscosités de la phase continue restent du même ordre de grandeur que l'erreur expérimentale.

Pour minimiser les écarts de taille des gouttes injectées, Krakau and Kraume (2019b) ont développé un dispositif permettant une position fixe et réglable du capillaire, ainsi qu'un petit accessoire monté à son extrémité (cylindre en verre), afin de réduire l'influence de l'écoulement sur la formation des gouttes. Cependant, compte tenu du dispositif expérimental actuel et de la taille du mélangeur étudié (V = 10 mL), la mise en place d'un tel système était impossible. Par ailleurs, bien que la taille des gouttes mères soit un paramètre déterminant, tous les auteurs ne sont pas aussi rigoureux quant à la taille des gouttes injectées. Par exemple, Solsvik and Jakobsen (2015b) ont injecté des gouttes mères de 600 µm à 4 mm, qu'ils regroupent en deux classes principales : une première de 600 µm à 2 mm et une seconde entre 2 mm et 4 mm. Les auteurs ont également montré que la répartition des tailles au sein de ces deux classes variait selon la viscosité des gouttes.

4.3 Résultats et discussion

4.3.1 Mécanisme de rupture

Dans un premier temps, les différents mécanismes de rupture observés sont illustrés par des séquences d'images de caméra rapide et discutés en relation avec les observations de la littérature. Pour faciliter la compréhension des figures, la trajectoire des gouttes est schématisée par des flèches.

4.3.1.1 Rupture par fluctuation turbulente

Les Figures 4.4 et 4.5 présentent des séquences d'images illustrant des mécanismes de rupture typiquement observés pour la plus faible viscosité de la phase continue, M.2*. Sur la Figure 4.4, une goutte, initialement déformée verticalement (t = 0 ms), émerge de derrière une pale. Sa partie supérieure entre alors en rotation, tandis que sa partie inférieure reste quasi immobile, ce qui induit une forte déformation et l'étirement de la goutte. Un filament fin se forme, s'allonge progressivement, puis se rompt dans la zone de décharge de la turbine (4 ms $< t <$ 8 ms). Cette rupture semble être induite par une interaction avec un grand tourbillon turbulent [2]. Elle conduit à la formation de $m = 7$ gouttes filles en environ 8 ms. Sur cette même figure, une seconde rupture est visible à l'arrière-plan entre $t = 4$ et $t = 12$ ms. Là encore, la déformation résulte d'un mouvement

2. Les structures tourbillonnaires n'ont pas été mesurées quantitativement dans le cadre de cette étude. Néanmoins, d'un point de vue qualitatif, les mécanismes de rupture observés semblent être induits par des mouvements de rotation. Les échelles associées à ces structures étant plus petites que celles des mouvements de recirculation générés par l'écoulement radial de la turbine de Rushton, la rupture semble majoritairement gouvernée par des effets turbulents.

de rotation, probablement généré par une interaction avec une structure tourbillonnaire. La rupture semble être provoquée par l'inertie de la goutte, plus dense que la phase continue, qui est éjectée vers l'extérieur du tourbillon sous l'effet de la force centrifuge. Elle s'allonge alors jusqu'à sa rupture, générant $m = 4$ gouttes filles.

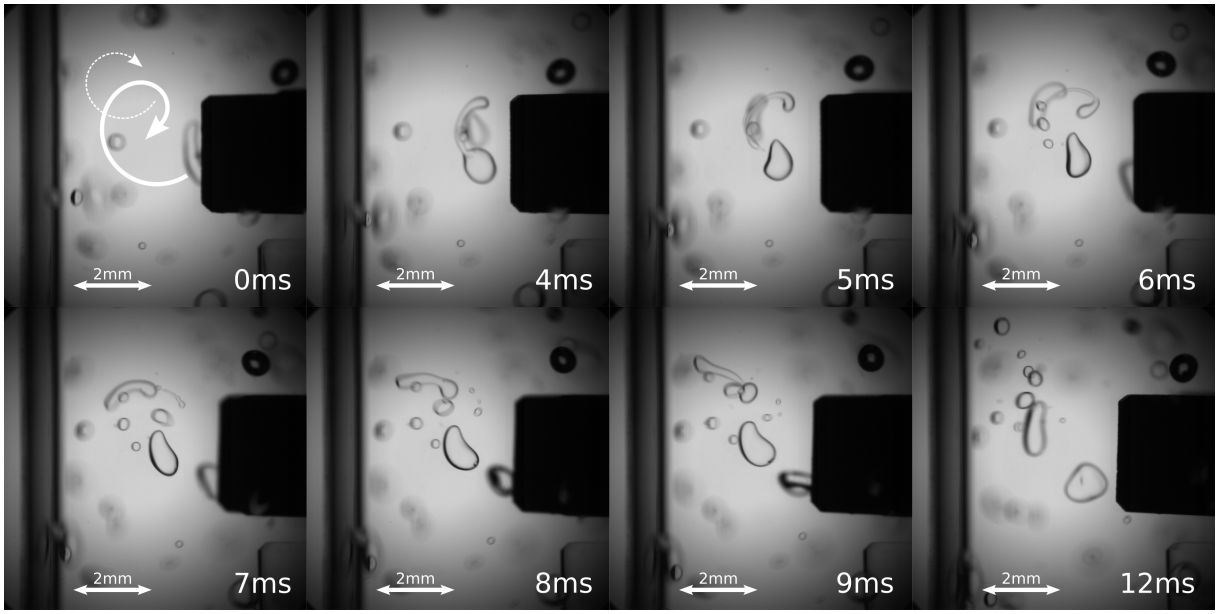


FIGURE 4.4 – Séquence d'images capturées par caméra rapide de ruptures par interaction goutte-tourbillon, observées pour $N = 1200$ rpm et M.2* ($Re = 1260$).

Toutefois, pour ce mécanisme et pour cette viscosité, le nombre de gouttes filles produites est généralement plus faible que celui observé lors de la première rupture présentée sur la Figure 4.4 (voir paragraphe 6.2.3.3). Un deuxième exemple de rupture typiquement observée pour M.2* est illustré sur la Figure 4.5. On y observe une goutte initialement située au-dessus d'une pale ($t = 0$ ms), qui est aspirée par un tourbillon de grande taille dans la zone de décharge ($t = 6$ ms). Une partie de la goutte effectue alors une rotation complète sur elle-même, tandis que l'autre partie est entraînée par le mouvement de rotation avant d'être éjectée vers l'extérieur du centre du tourbillon ($t = 13$ ms). Ce mouvement provoque un étirement de la goutte, qui finit par rompre près de la paroi et produit $m = 2$ gouttes filles en environ 20 ms. Il semble, par ailleurs, que la goutte supérieure coalesce avec le filament généré lors de la déformation (14 ms $< t <$ 15 ms). De plus, malgré une courte période d'oscillation, les deux gouttes vont reprendre une forme sphérique grâce aux forces interfaciales (14 ms $< t <$ 20 ms).

Les ruptures observées pour la phase continue M.2* (Figures 4.4 et 4.5) semblent donc être généralement induites par des fluctuations de vitesse et de pression dues à une collision avec un tourbillon turbulent. En régime pleinement turbulent, ce mécanisme est très bien documenté dans la littérature (Eastwood et al., 2004; Andersson and Andersson, 2006a,b; Liao and Lucas, 2009; Sanjuan-Galindo et al., 2015; Hasan, 2017). Lorsqu'un tourbillon possède suffisamment d'énergie cinétique pour surpasser les forces cohésives pendant une

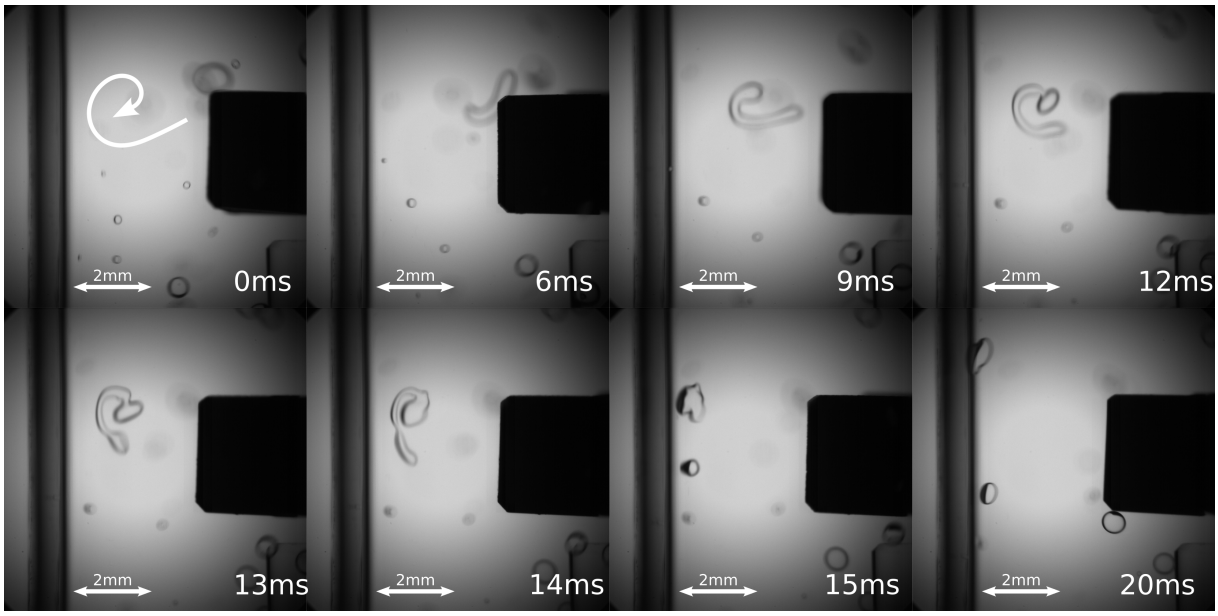


FIGURE 4.5 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture par interaction goutte-tourbillon produisant $m = 2$ gouttes filles, observée pour $N = 1200$ rpm et M.2* ($Re = 1260$).

période suffisamment longue, celui-ci peut successivement provoquer la déformation et la rupture d'une goutte. Ces fluctuations turbulentes sont généralement modélisées à partir de la fonction de structure d'ordre deux, qui dépend elle même du taux de dissipation (Coulaloglou and Tavlarides, 1977). Il peut être noté que les ruptures induites par les fluctuations turbulentes s'inscrivent dans une catégorie plus large, regroupant l'ensemble des effets inertiels.

Par ailleurs, les Figures 4.4 et 4.5 sont cohérentes avec les observations de Eastwood et al. (2004). Ces derniers ont rapporté que la rupture des gouttes se produit lors de la collision avec des structures turbulentes de grande taille, comparables à l'échelle intégrale. Tout comme les deux figures, les auteurs observent également que les gouttes semblent tourner à l'intérieur des tourbillons turbulents environnants. Les Figures semblent également cohérentes avec les observations de Andersson and Andersson (2006a) (voir Figure 1.12) : lorsque qu'une goutte rencontre un tourbillon de grande taille, celle-ci, plus lourde, est projetée vers l'extérieur du tourbillon.

Toutefois, les résultats des Figures 4.4 et 4.5 sont en contradiction avec la théorie de Kolmogorov (1949) et Hinze (1955), sur laquelle se base une grande partie des modèles de rupture (Coulaloglou and Tavlarides, 1977). D'après cette théorie, la rupture se produit lorsqu'une goutte entre en collision avec un tourbillon turbulent de même ordre de grandeur que la taille de la goutte (Eastwood et al., 2004). A l'inverse, les grands tourbillons ne contribuent qu'au transport et ne participent pas à la rupture. Cette contradiction peut s'expliquer par l'écoulement en régime de transition étudié ici ($200 < Re < 1300$), qui diffère des écoulements pleinement turbulents ($Re > 10^4$) typiquement étudiés, avec une turbulence homogène et isotrope. Par ailleurs, il n'est pas évident de dire que la goutte

se trouve dans le domaine inertiel de la turbulence, comme le stipule la théorie. Cela met en lumière que les modèles, basés sur les hypothèses des travaux de Hinze (1955) et Kolmogorov (1949), ne sont pas applicables dans notre cas d'étude.

4.3.1.2 Rupture induite par élongation le long de la paroi

Avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue, le mécanisme de rupture prédominant devient complètement différent. Deux exemples typiques sont présentés sur les Figures 4.6 et 4.7. En raison de l'écoulement radial généré par la turbine Rushton, la phase continue est expulsée radialement des pales vers la paroi externe. Au contact de celle-ci, cet écoulement se sépare verticalement de haut en bas, au niveau du centre du jet, formant deux boucles de recirculation toroïdales (voir Figure 1.5). Au niveau de la zone de séparation, la turbine Rushton génère donc un écoulement élongationnel, avec un fort gradient de vitesse. Ce type d'écoulement est classiquement observé avec les agitateurs radiaux (Lamberto et al., 1999; Escudié and Liné, 2003; Hartmann et al., 2004b; Li et al., 2011; Sanjuan-Galindo et al., 2015; Laine et al., 2023). Il serra par ailleurs détaillé dans le Chapitre 5.

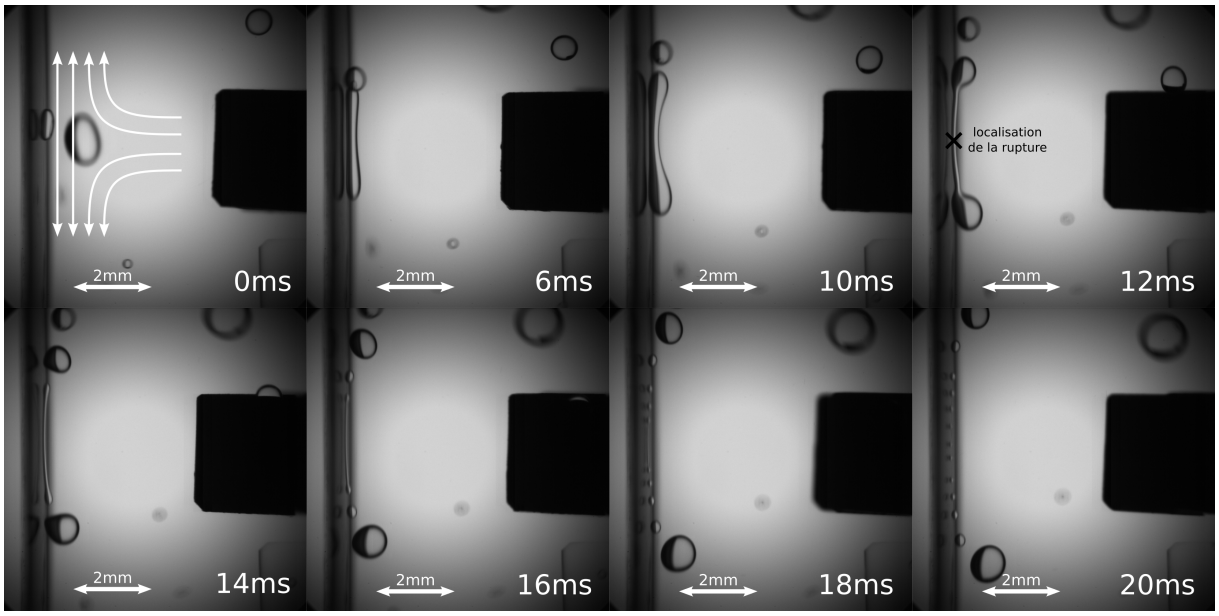


FIGURE 4.6 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite par l'écoulement élongationnel le long de la paroi, observée pour $N = 1200$ rpm et M.10* ($Re = 235$).

Ainsi, lorsqu'une goutte pénètre dans cette zone spécifique, elle s'étire verticalement de manière significative (voir Figure 4.6 et 4.7) : sa partie supérieure est entraînée par l'écoulement ascendant, tandis que sa partie inférieure est aspirée par l'écoulement descendant ($t = 6$ ms). Au cours de sa déformation, la goutte prend une forme d'haltère, constituée de deux lobes sphériques de taille relativement importante à ses extrémités reliés par un filament ($t = 12$ ms). À mesure que la goutte s'étire, le filament s'allonge

verticalement tandis que son diamètre diminue progressivement, jusqu'à atteindre une épaisseur critique conduisant à sa rupture (14 ms $< t <$ 20 ms). La rupture du filament produit généralement un grand nombre de petites gouttes filles, encore appelées gouttes satellites. Par exemple, la rupture illustrée à la Figure 4.6 a donné lieu à deux gouttes de volume égal et à 11 petites gouttes satellites. Sur la Figure 4.4, seulement 6 gouttes satellites sont générées en plus de deux plus grosses gouttes de volume identique.

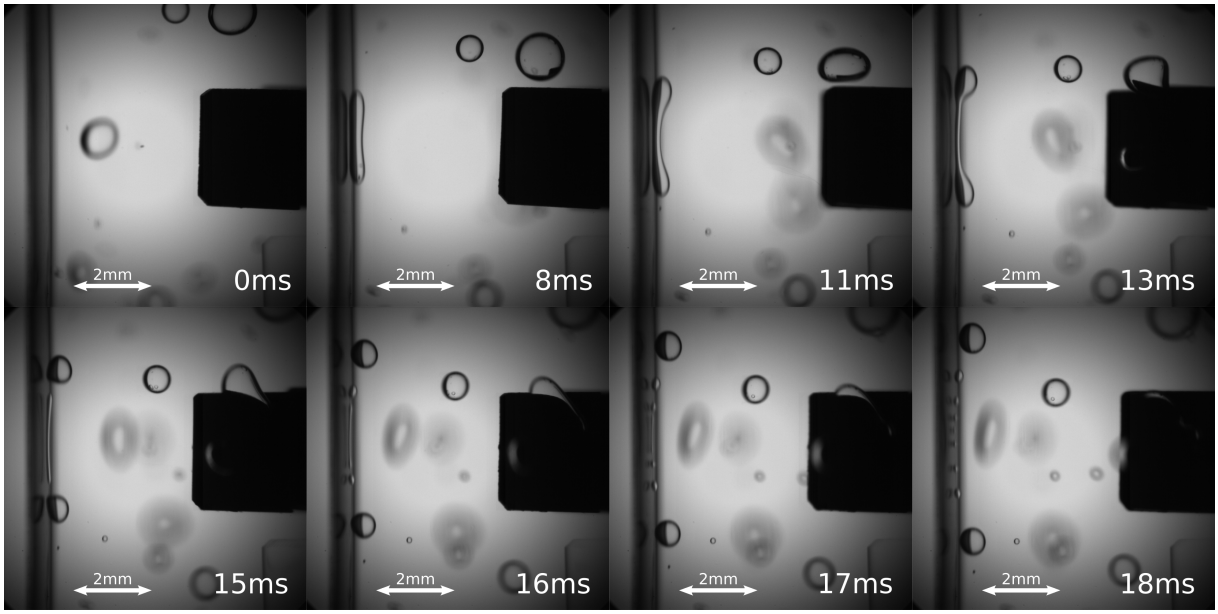


FIGURE 4.7 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite par l'écoulement élongationnel le long de la paroi, observée pour $N = 1200$ rpm et M.10* ($Re = 235$).

De manière générale, les gouttes sujettes à la rupture le long de la paroi sont préalablement étirées horizontalement dans la zone de décharge, sans que les contraintes ne soient suffisantes pour induire la rupture. Il semblerait donc que les contraintes hydrodynamiques dans cette région soient inférieures à celles produites le long de la paroi.

Par ailleurs, il est intéressant de noter que les mécanismes de rupture induits par la paroi (Figure 4.6 et 4.7) sont cohérents avec la distribution bimodale du Chapitre 3 pour la même viscosité (Figure 3.13). En effet, on note la présence de deux populations de tailles : un petit nombre de gouttes de grande taille, correspondant aux deux lobes sphériques, et une population prédominante de petites gouttes, associées aux gouttes satellites. Les distributions de taille des gouttes filles seront discutées en détail dans le paragraphe 4.3.5.

Dans la littérature, peu d'études traitent de la rupture de gouttes dans des cuves agitées opérant en régime de transition. À notre connaissance, le mécanisme de rupture induit par la paroi, illustré sur les Figures 4.6 et 4.7, n'a encore jamais été rapporté dans ce contexte. Ce type de rupture a en revanche été largement observé dans des écoulements simples et

laminaires, généralement irrotationnels (purement élongationnels) et/ou cisaillés (Taylor, 1934; Rumscheidt and Mason, 1961; Karam and Bellinger, 1968; Grace, 1982; Stone et al., 1986; Tjahjadi et al., 1992; Cristini et al., 2003). Ces travaux ont démontré que la rupture survient à partir d'un nombre capillaire critique $Ca^{\star}$, c'est-à-dire lorsque les forces de cisaillement visqueuses dépassent les forces interfaciales. La valeur de ce nombre critique, tout comme la morphologie de la rupture et la distribution des tailles des gouttes filles résultantes, dépend fortement du rapport de viscosité p et du type d'écoulement. Il peut être noté que, d'après les courbes de Grace (1982) (Figure 1.10a), le nombre capillaire critique atteint est minimal pour les écoulements élongationnels et lorsque le rapport de viscosité est compris entre 0,2 et 1, ce qui correspond aux conditions typiquement rencontrées le long de la paroi du mélangeur expérimental ($0,1 < p < 0.5$). Par ailleurs, d'après l'ensemble des travaux cités ci-dessous, pour ces rapports de viscosité, les gouttes adoptent typiquement une forme d'haltère au cours de leur déformation : la phase dispersée s'accumule à ses extrémités, formant deux lobes sphériques reliés par un long et fin filament (voir Figure 1.10b). La rupture engendre deux gouttes de volume identique et un nombre significatif de petites gouttelettes satellites, comme observé sur les Figures 4.6 et 4.7. Il peut être noté que, en régime laminaire, l'écoulement et la rupture sont fortement dépendants de la géométrie considérée, contrairement au régime pleinement turbulent, ou les petits tourbillons sont considérés comme universels et localement isotropes Kolmogorov (1941).

Ensuite, la Figure 4.8 présente une séquence de rupture en cascade du filament. Cette dernière correspond à la rupture observée sur la Figure 4.6, mais avec une résolution temporelle et spatiale plus fine. On observe qu'une fois le filament suffisamment fin pour rompre ($t = 13$ ms), l'écoulement élongationnel de la phase continue engendre deux gouttes de taille comparable et un long et fin filament ($t = 14$ ms). Ce dernier s'allonge à son tour et subit une rupture similaire ($t = 17$ ms), entraînant une succession de ruptures identiques. Il peut être noté que la déformation et la rupture semblent laminaires, avec une rupture parfaitement symétrique dans le plan vertical. Ce type d'écoulement semble donc favoriser la déformation et l'allongement du filament, ainsi que la formation d'un nombre significatif de gouttes satellites.

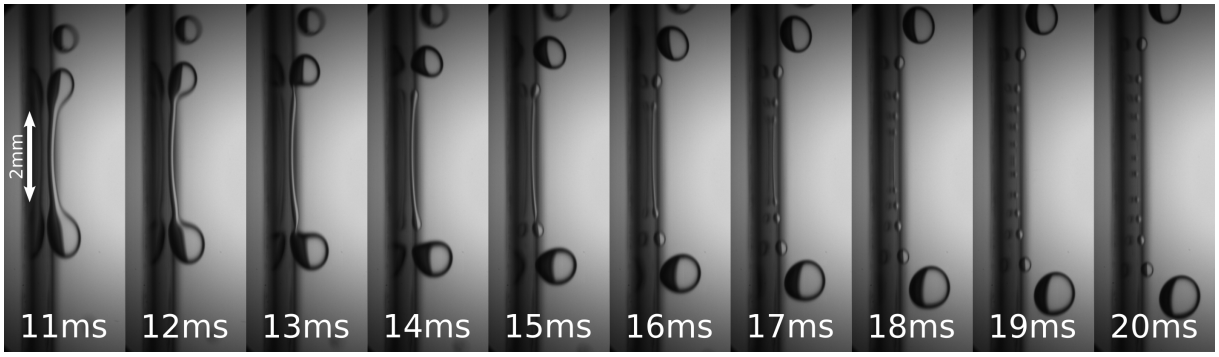


FIGURE 4.8 – Séquence d'images représentant une rupture en cascade du filament, issues de la Figure 4.6, pour $N = 1200$ rpm et M.10* ($Re = 235$).

Dans la littérature, il n'est pas clair si ce type de rupture de filaments est induit par des instabilités capillaires (également appelées instabilités de Rayleigh-Plateau) ou par un phénomène de « *end pinching* » (Stone et al., 1986). Les instabilités de Rayleigh-Plateau se caractérisent par des perturbations sinusoïdales de pression le long d'un fin filament de liquide. Ils génèrent des zones de surpression et de dépression qui provoquent localement un épaississement et un amincissement du filament. Lorsque celui-ci devient suffisamment fin, les forces interfaciales, qui tendent à minimiser l'énergie de surface, amplifient ces variations et entraînent la rupture en plusieurs petites gouttes (Han, 2018). Sur la Figure 4.8 ($t = 13$ ms), le filament semble prendre une forme légèrement sinusoïdale, caractéristique de ces instabilités. Cependant, elles sont rarement observées sur les images, notamment parce qu'elles se produisent à des échelles spatiales et temporelles très fines. À l'inverse, Stone et al. (1986) attribue la rupture des gouttes en forme d'haltère à un pincement local, causé par un gradient de pression élevé lorsque le rayon de courbure entre le filament et la goutte sphérique devient trop important. Cependant, selon l'auteur, les instabilités capillaires se produisent sur des gouttes fortement allongées, alors que son dispositif ne permet qu'un étirement limité.

4.3.1.3 Rupture dans le sillage des pales

Un nombre important de ruptures a également été observé dans la zone de décharge, avec des gouttes fortement déformées qui émergent de l'arrière des pales. Deux exemples typiques sont présentés sur les Figures 4.9 et 4.10. On y distingue des gouttes allongées verticalement, prenant la forme d'une demi haltère avec un lobe sphérique de grande taille et un fin filament, partiellement masqué par la pale ($t = 0$ ms). La goutte allongée se déplace ensuite radialement vers la paroi, ce qui accentue l'étirement et conduit à la rupture dans la zone de décharge. Au cours de la déformation, un second lobe de grand diamètre apparaît sur les images ($t = 5$ ms), caractéristique des formes d'haltère prises par les gouttes durant leur déformation. La rupture illustrée sur la Figure 4.9 génère $m = 8$ gouttes filles en 8 ms, tandis que celle de la Figure 4.10 produit $m = 3$ gouttes filles pour une durée similaire.

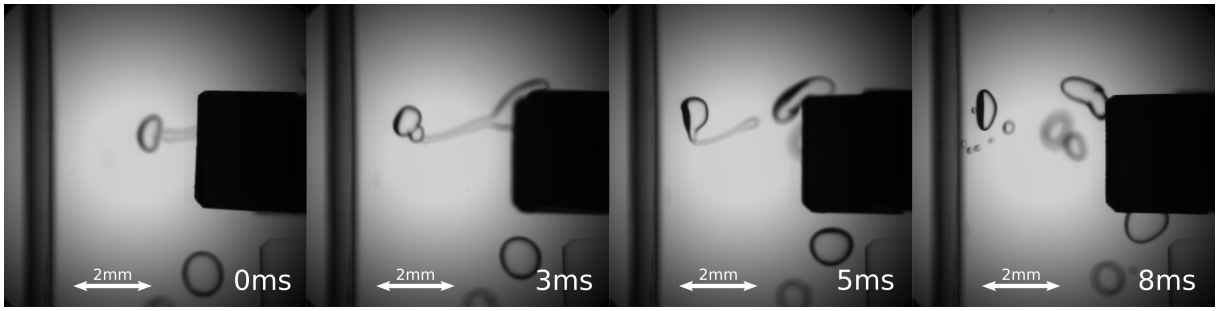


FIGURE 4.9 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite dans le sillage en aval d'une pale, observée pour $N = 1200$ rpm et M.6* ($Re = 380$).

Ce type de rupture est difficile à analyser : les gouttes apparaissent derrière les pales et sont partiellement masquées par la turbine. Ainsi, la goutte mère, initialement sphérique,

et le début de sa déformation ne sont pas visibles. Toutefois, l'apparition de ces gouttes allongées verticalement, partiellement masquées par les pales, a fréquemment été observée au sein des expérimentations, quelle que soit la viscosité de la phase continue. De plus, l'apparition successive d'une grosse goutte, suivie d'un grand nombre de gouttes satellites, puis d'une seconde grosse goutte, suggérant une rupture en forme d'haltère survenue en aval des pales, a couramment été observé. Il peut être noté que les ruptures non visibles n'ont pas été comptabilisées dans le post-traitement des paragraphes suivants. Néanmoins, au vu de ces observations et de l'opacité des pales qui masque la visualisation dans la région de la turbine, le taux d'occurrence de ce mécanisme est probablement sous-estimé.

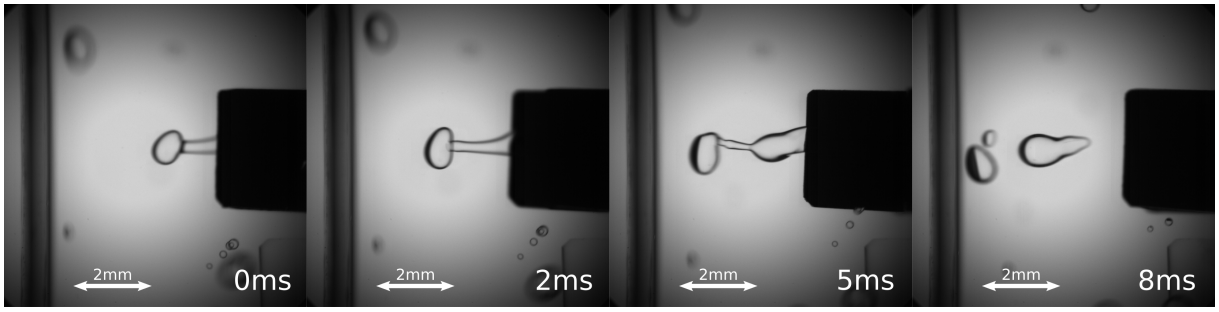


FIGURE 4.10 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite dans le sillage en aval d'une pale, observée pour $N = 1200$ rpm et M.8* ($Re = 295$).

Il semblerait que les ruptures observées sur les Figures 4.9 et 4.10 soient induites par les contraintes hydrodynamiques générées dans le sillage en aval des pales, comme rapporté de nombreuses fois dans la littérature. Les premiers travaux ayant mis en évidence ces ruptures dans la région des pales sont ceux de Kumar et al. (1991, 1998), qui identifient trois types d'écoulements caractéristiques autour des pales susceptibles de provoquer la rupture de gouttes (voir Figure 4.11) : (1) un écoulement élongationnel horizontal en amont des pales, (2) un écoulement intense à l'extrémité des pales (en amont), dû à une forte accélération de la phase continue (la diminution de la section entraînant une augmentation de la vitesse du fluide), et (3) un écoulement situé dans la couche limite en aval des pales. Ce dernier est décrit comme fortement cisaillé, complexe et non linéaire, bien que les gradients de vitesse orthoradiaux soient prépondérants par rapport aux gradients radiaux. Par ailleurs, d'après Maaß (Maaß et al., 2007; Maaß and Kraume, 2012), la rupture peut être induite par trois mécanismes distincts : des fluctuations de pression ou de vitesse turbulente, un écoulement élongationnel, ou un écoulement cisaillé, respectivement en amont et en aval des pales. Ces trois mécanismes se produisent simultanément et peuvent interagir entre eux. Selon les auteurs, ce sont principalement les fluctuations turbulentes ou l'accélération du fluide environnant près des pales qui provoquent une forte élongation des gouttes, menant à leur rupture. Konno et al. (1983) rapporte également un nombre important de ruptures en amont des pales, où les gouttes sont fortement étirées dans la direction de l'écoulement. De manière plus quantitative, en corrélant la position des ruptures avec celle des pales, Krakau and Kraume (2019b) montrent que celles-ci se produisent majoritairement dans le sillage des pales. Les auteurs notent que certaines gouttes peuvent tourner avec la turbine et ne se rompent qu'au moment où elles sont

projetées radialement par les pales. Ces observations rappellent fortement les ruptures mises en évidence sur les Figures 4.9 et 4.10. Enfin, ces phénomènes de rupture dans le sillage des pales apparaissent cohérents avec les études hydrodynamiques monophasiques : c'est dans le sillage des pales que les contraintes destructives (notamment les contraintes visqueuses et le taux de dissipation) atteignent localement leurs valeurs maximales (Escudié and Liné, 2003; Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2009; Laine et al., 2023) (voir Chapitre 5).

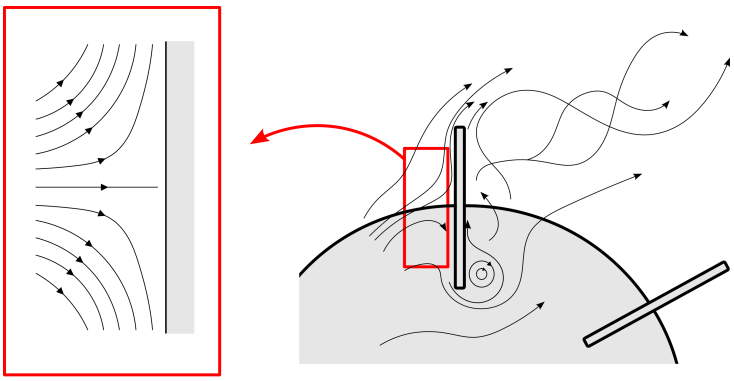


FIGURE 4.11 – Schéma des écoulements autour d'une pale de turbine Rushton, adapté de Kumar et al. (1991) : écoulement élongationnel en amont d'une pale (gauche) et écoulement cisaillé dans son sillage en aval (droite).

4.3.1.4 Autres types de rupture

Il n'a pas toujours été évident d'interpréter le mécanisme physique responsable de la rupture. En effet, les expériences ne donnent qu'un aperçu en deux dimensions de l'écoulement et des ruptures. De plus, la composante orthoradiale, perpendiculaire au plan d'observation, est la composante majoritaire de l'écoulement, rendant l'interprétation plus complexe. Ainsi, pour plusieurs événements, les mécanismes responsables de la rupture n'ont pas été identifiés.

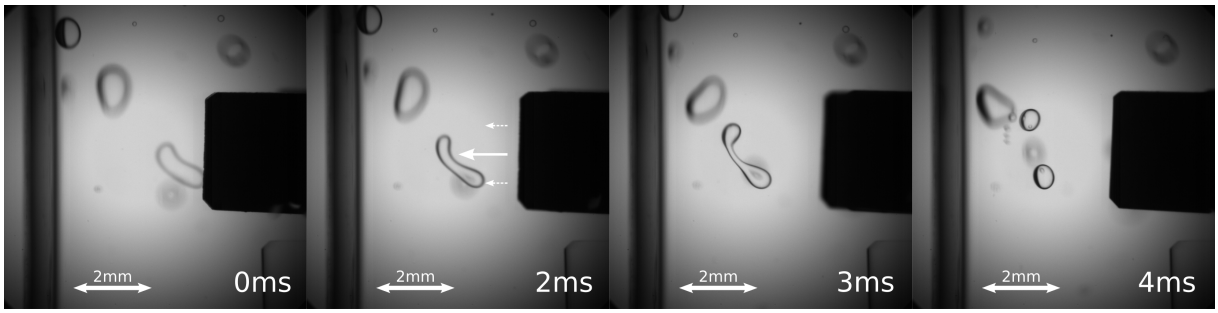


FIGURE 4.12 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une rupture induite par le jet radial, observée pour $N = 1200$ rpm et M.4* ($Re = 600$).

Par exemple, certaines ruptures observées semblent être causées par le jet radial : de par l'écoulement généré par la turbine Rushton, la phase continue est expulsée radialement vers la paroi, avec des vitesses très élevées au centre du jet. Ces vitesses se dissipent ensuite rapidement dans la zone de décharge, horizontalement et verticalement (voir Chapitre 5), générant un gradient de vitesse. Un exemple typique de ce phénomène est présenté sur la Figure 4.12. Les fortes vitesses au centre du jet provoquent la formation d'une cavité au sein de la goutte, qui engendre la formation d'un filament. Ce dernier s'allonge et s'amincit progressivement, jusqu'à ce que la goutte adopte une forme d'haltère en « U » ($t = 3$ ms). Ce mécanisme présente des similitudes avec la rupture produite dans le sillage. Cependant, dans le cas d'une rupture due au jet radial, la goutte émergeant de derrière les pales subit une déformation verticale, alors que, pour celle générée dans le sillage, la déformation est majoritairement horizontale. Ce type de rupture n'a été rapporté que par Sanjuan-Galindo et al. (2015), qui indique que la rupture peut être induite par une intermittence du jet radial. Ce mécanisme dépend donc de la position relative entre la goutte et la pale.

4.3.1.5 Occurrence des mécanismes de rupture en fonction de la viscosité de la phase continue

Enfin, la probabilité d'occurrence des différents mécanismes de rupture en fonction de la viscosité de la phase continue est présentée sur la Figure 4.13. Chaque évènement de rupture observé a été trié et classé dans les différents mécanismes explicités ci-dessus. N_b représente le nombre d'événements de rupture observés pour chaque viscosité.

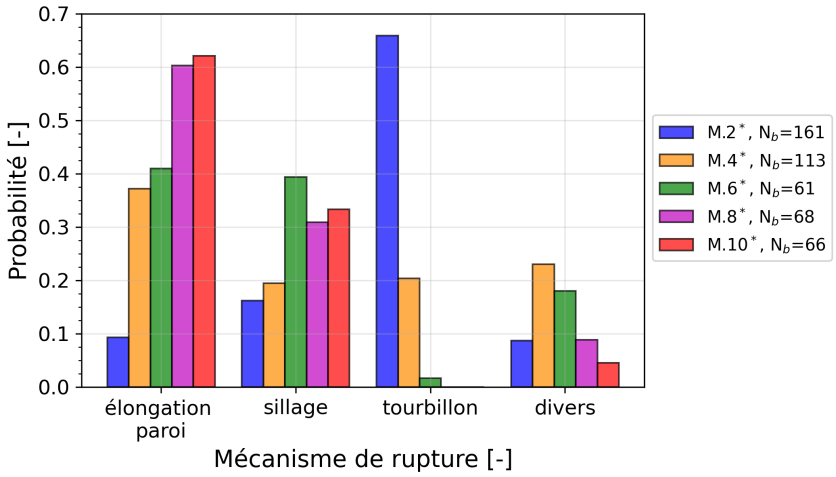


FIGURE 4.13 – Mécanisme de rupture en fonction de la viscosité de la phase continue.

La Figure 4.13 met en évidence la modification significative des mécanismes de rupture avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue. En effet, pour M.2*, parmi les $N_b = 161$ événements de rupture identifiés, 66 % résultent d'une interaction avec un tourbillon turbulent. Ce type de mécanisme ne représente plus que 20 % des événements pour la phase continue M.4* ($N_b = 113$), et aucun événement de ce type n'a été observé

pour M.8* ($N_b = 68$) ni pour M.10* ($N_b = 66$). Cette diminution du nombre d'occurrences traduit une transition de régime liée à l'augmentation de la viscosité de la phase continue, avec le nombre de Reynolds diminuant de $Re = 1260$ à $Re = 235$.

À l'inverse, à mesure que la phase continue devient plus visqueuse, les événements de rupture sont de plus en plus causés par l'écoulement élongationnel le long de la paroi, plutôt que par les fluctuations turbulentes. Pour la viscosité la plus élevée (M.10*), la rupture induite par la paroi représente 62 % des événements observés. Bien que ce mode de rupture soit présent pour toutes les viscosités, sa fréquence diminue avec la diminution de la viscosité, atteignant 41 % pour M.6* et tombant à 9 % des événements de rupture pour M.2*. De la même manière, le taux d'occurrence des ruptures induites par le sillage augmente avec la viscosité de la phase continue. Ce mécanisme engendre 16 % des événements pour M.2*, 39 % pour M.6* et 33 % pour M.10*.

Il est important de noter que la fenêtre d'observation ne permet pas d'observer chaque mécanisme avec la même équité. Comme expliqué précédemment, les ruptures induites dans le sillage ne sont que partiellement observables et sont sans doute sous-estimées. En effet, d'après Krakau and Kraume (2019b), la majorité des ruptures surviennent dans le sillage des pales, alors que, d'après la Figure 4.13, cela ne représente qu'environ un tiers des événements. Toutefois, cette divergence peut également être en partie due au régime d'écoulement exploré : $17000 < Re < 50000$ pour Krakau and Kraume (2019b) contre $200 < Re < 1300$ dans l'étude actuelle.

Une revue de la littérature sur les différents mécanismes de rupture observés dans les cuves agitées a été réalisée par Hasan (2017). D'après l'auteur, la rupture peut être induite par l'un des mécanismes suivants : (1) des fluctuations de vitesse ou de pression turbulentes et des interactions goutte-tourbillon, (2) des contraintes de cisaillement laminaire, (3) des contraintes de cisaillement générées en aval des pales, et (4) des collisions entre les gouttes et une pale. Ces observations sont en accord avec la Figure 4.13, où les trois premiers mécanismes ont été identifiés expérimentalement. Aucune rupture par collision avec une pale n'a été observée, probablement en raison de l'opacité de celle-ci. Par ailleurs, il n'est pas clairement établi si la rupture en cuve agitée est principalement induite par le cisaillement visqueux, par les fluctuations turbulentes de vitesse et de pression, ou par une combinaison des deux (Maaß and Kraume, 2012; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b). Même si ces deux mécanismes sont des effets de cisaillement, ils interviennent à des échelles de temps distinctes et sont représentés différemment dans les modèles. D'après la Figure 4.13, lorsque la turbulence est suffisamment intense, ces mécanismes semblent coexister.

Par ailleurs, la Figure 4.13 montre que le nombre total d'événements de rupture N_b diminue avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue, malgré des conditions d'enregistrement et d'injection identiques. En effet, environ 2,5 fois plus de ruptures sont observées pour M.2* ($N_b = 161$) que pour M.6*, M.8* et M.10* ($60 < N_b < 70$). Il semblerait donc que les contraintes hydrodynamiques soient plus intenses à faible viscosité qu'à forte viscosité, entraînant une rupture plus « efficace » des gouttes pour M.2* que pour M.10*. Cette observation n'est, a priori, pas intuitive dans ce régime de transition, car il est difficile de quantifier l'influence respective des contraintes de cisaillement visqueux

et des contraintes turbulentes (voir Chapitre 5). En régime pleinement turbulent, les contraintes turbulentes sont proportionnelles au taux de dissipation. Ce dernier dépend de la vitesse de rotation et du diamètre de l'agitateur. Cependant, en régime de transition, il n'existe pas de relation claire entre le nombre de puissance N_p et le nombre de Reynolds Re : le taux de dissipation moyen dépend donc simultanément de la viscosité de la phase continue, du diamètre de l'agitateur et de la vitesse de rotation. Toutefois, aucune relation explicite ne permet d'isoler l'influence de chacun de ces paramètres.

Ainsi, l'augmentation d'un facteur cinq de la viscosité de la phase continue semble conduire à une modification du régime d'écoulement (voir Chapitre 5). Il semblerait que la variation de viscosité modifie la nature des contraintes hydrodynamiques responsables de la rupture : pour les viscosités les plus faibles, la rupture est principalement induite par les fluctuations turbulentes de pression et de vitesse, tandis que pour les viscosités plus élevées, elle résulte davantage des effets de cisaillement, notamment à proximité des parois ou dans le sillage des pales. Cependant, la Figure 4.13 montre que plusieurs mécanismes coexistent pour chaque condition opératoire. Cette coexistence des contraintes turbulentes et de cisaillement est fréquemment rapportée dans la littérature en cuve agitées (Maaß and Kraume, 2012; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b).

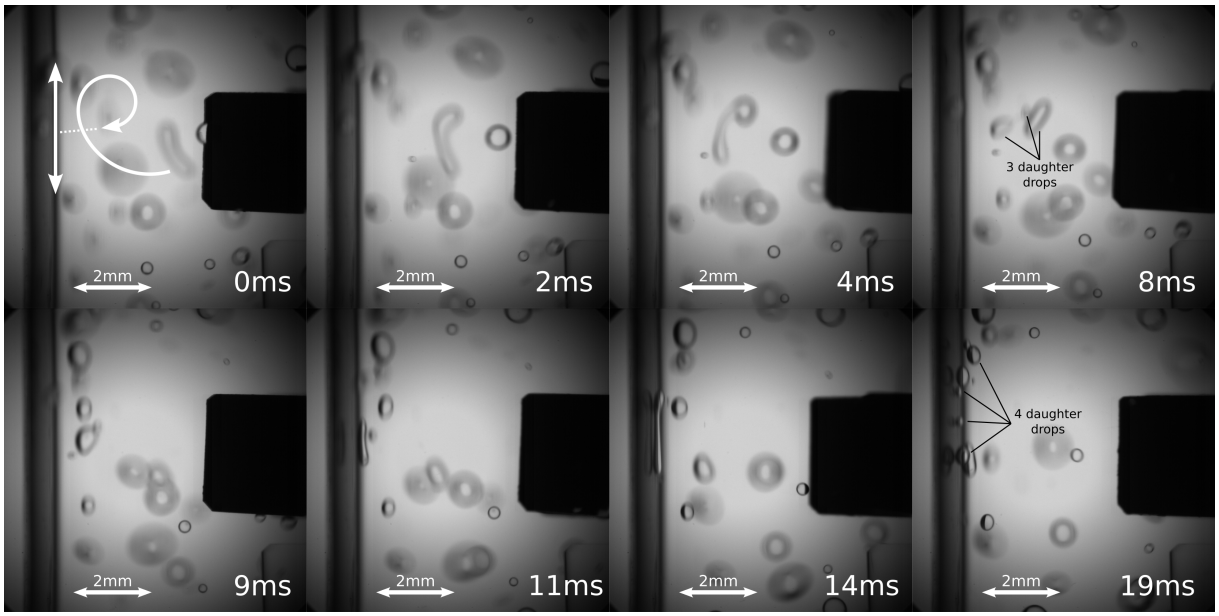


FIGURE 4.14 – Séquence d'images capturées par caméra rapide de ruptures induites à la fois par une structure tourbillonnaire et par la paroi, observées pour $N = 1200$ rpm et M.4* ($Re = 600$).

Enfin, la Figure 4.14 illustre un exemple dans lequel deux mécanismes de rupture se produisent successivement sur une même goutte. La goutte apparaît dans la zone d'observation et tourne avec un grand tourbillon turbulent dans la décharge, avant de se diviser en $m = 3$ gouttes filles ($t = 8$ ms). L'une d'entre elles est ensuite entraînée par son mouvement de rotation et projetée contre la paroi. Cette dernière subit ensuite un

étirement vertical, formant $m = 4$ gouttes filles ($t = 19$ ms). Ainsi, afin de visualiser le changement de régime de rupture de manière plus quantitative, la localisation des ruptures est présentée dans le paragraphe suivant.

4.3.2 Localisation de la rupture

La Figure 4.15 présente la localisation des ruptures dans le plan d'observation pour les cinq viscosités de phase continue. Le nombre de gouttes filles associé à chaque rupture est également indiqué et sera analysé plus en détail dans le paragraphe 4.3.4. La position d'une rupture est définie comme le centre de la goutte allongée, mesuré sur l'image précédant la rupture. Ce centre est généralement situé le long du filament produit lors de la déformation, comme illustré sur la Figure 4.6. Dans le cadre de la thèse, la rupture a été analysée comme un processus global, constitué d'une succession de ruptures intermédiaires dépendantes les unes des autres. Ainsi, seule la position des ruptures primaires est considérée : les ruptures secondaires successives, se produisant à l'intérieur du filament, ne sont pas prises en compte. Autrement dit, la position de la rupture est définie comme celle de la première rupture de la goutte mère. Par ailleurs, l'origine de la figure a été positionnée à la paroi, en bas du mélangeur.

Sur la Figure 4.15, les singularités géométriques du mélangeur sont représentées par des zones grises. La turbine et la cheminée d'aspiration sont situées à droite, tandis que les parois du mélangeur apparaissent à gauche. En raison de la courbure du mélangeur dans les régions proches des bords, la position exacte de la paroi latérale n'a pas pu être déterminée avec précision : son emplacement est donc indiqué entre la zone grise et la ligne pointillée, correspondant à la région la plus sombre des images expérimentales (voir les Figures 4.4, 4.6...). Enfin, la zone grise associée à la turbine a été définie de manière à englober l'ensemble des pales, quelle que soit leur position. En effet, leur largeur dans les images varie selon leur position par rapport au plan d'observation.

Au cours du post-traitement, il a été observé que la position de la turbine et du mélangeur pouvait varier légèrement d'une expérience à l'autre. Cette variation provient d'un léger jeu entre la cuve transparente et son support (voir Figure 3.1), entraînant un décalage de la turbine et de la cuve dans la zone d'observation, ainsi qu'un décalage entre leurs positions relatives. Cette observation est une nouvelle explication des problèmes de répétabilité observés dans le Chapitre 3. Ainsi, les positions des singularités présentées sur la Figure 4.15 ont été tracées par rapport à la moyenne des cinq répétitions pour chaque viscosité. Un écart maximal des singularités par rapport à leur position moyenne a été estimé à 15 pixels. L'incertitude de mesure, liée à la fois à l'estimation du centre, à une discrétisation temporelle parfois insuffisante et à un décalage du dispositif par rapport à la zone d'observation, a été estimée à 30 pixels, soit environ 260 µm. Cette incertitude a été obtenue par combinaison quadratique des différentes contributions.

La Figure 4.15 met clairement en évidence l'évolution du régime de rupture en fonction de la viscosité de la phase continue. Pour la viscosité la plus faible (M.2*), la majorité des ruptures se produisent dans la zone de décharge de la turbine (entre $x = 1$ mm et

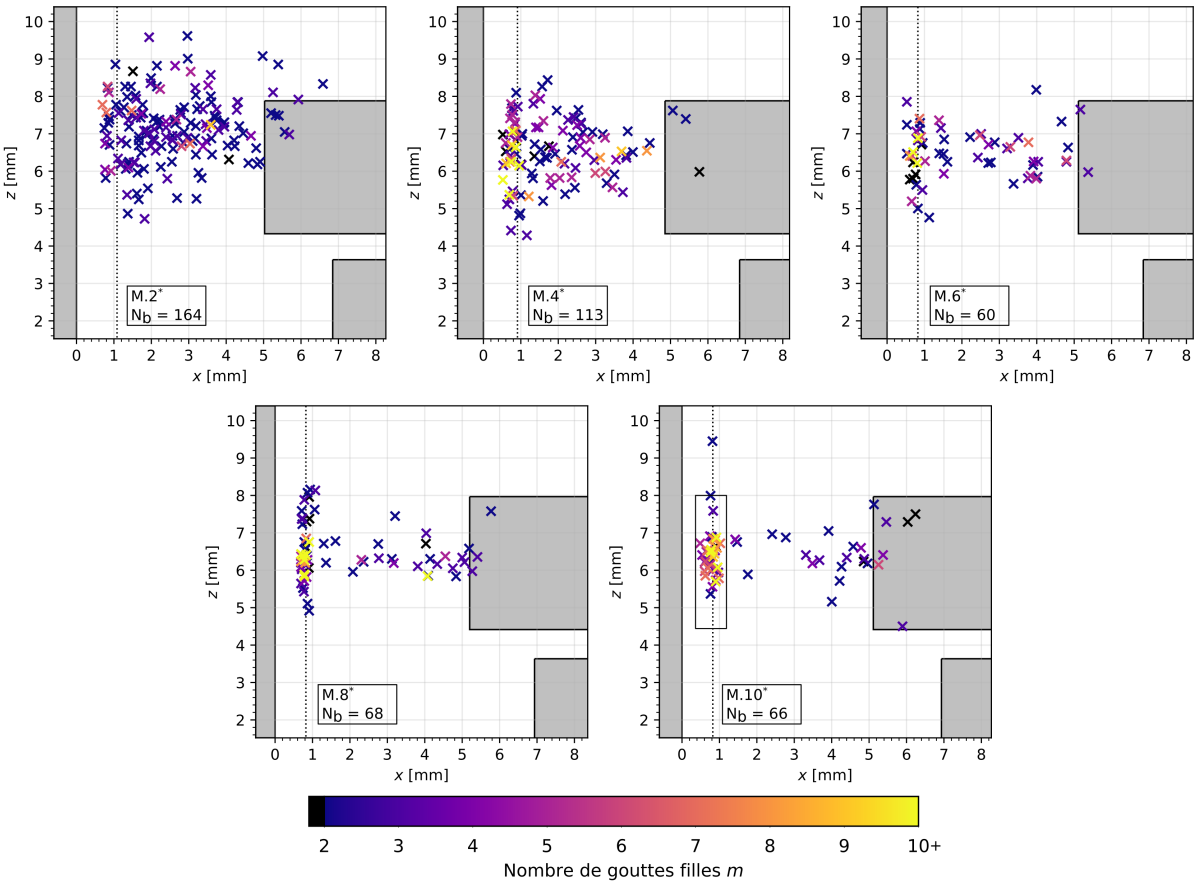


FIGURE 4.15 – Position des évènements de rupture dans un plan vertical xz et du nombre de gouttes filles générées (× correspond à m non mesurable) en fonction de la viscosité de la phase continue, pour $N = 1200$ rpm.

$x = 5$ mm), avec une répartition relativement homogène dans cette zone. En revanche, lorsque la viscosité de la phase continue augmente, les ruptures dans cette zone deviennent plus rares et se concentrent progressivement le long des parois (entre $x = 0{,}2$ mm et $x = 1{,}1$ mm). Pour les deux viscosités les plus élevées (M.8* et M.10*), les ruptures se localisent presque majoritairement dans une région restreinte, à proximité du point de séparation du jet le long de la paroi. Ainsi, pour M.10*, une zone d'environ 2,3 mm^2 a été délimitée entre $z = 4{,}5$ mm et $z = 8$ mm. Parmi les $N_b = 66$ ruptures observées pour cette viscosité, 60 % se sont produites dans cette zone, qui ne représente pourtant que 3 % de la surface totale de la zone d'observation. La probabilité de rupture dans cette zone diminue à 41 % pour M.6* ($N_b = 68$) et à 12 % ($N_b = 164$) pour M.2*.

Pour la phase continue M.2*, la Figure 4.15 montre que les gouttes ont tendance à se briser légèrement au-dessus de la ligne médiane du jet, située à $z = 6{,}1$ mm. Ce phénomène peut être attribué à une légère inclinaison des pales (mesurée à 1,5°), qui entraîne une légère modification de l'orientation du jet. En effet, les faibles dimensions de la turbine et de ses pales ont rendu difficile sa fabrication avec une plus grande précision.

De plus, la région susceptible d'engendrer des ruptures est plus étendue pour les faibles viscosités que pour les fortes (Figure 4.15). Les contraintes hydrodynamiques suffisantes pour provoquer la rupture s'exercent donc sur une région plus large, augmentant ainsi la probabilité qu'une goutte y soit exposée. Cela explique pourquoi l'expérience M.2* ($N_b = 164$) a enregistré près de trois fois plus de ruptures que l'expérience M.10* ($N_b = 66$), alors que les conditions d'injection et d'acquisition étaient identiques pour les deux viscosités. Une tendance similaire a été rapportée par Krakau and Kraume (2019b), qui a montré que la zone de rupture s'élargit lorsque la vitesse d'agitation est augmentée d'un facteur 1,5. La Figure 4.15 confirme également les observations du Chapitre 3 (Figure 3.11), ou la dynamique de la rupture est plus rapide pour M.2 et M.4 que pour les trois viscosités les plus élevées.

Par ailleurs, d'après la Figure 4.15, les contraintes de cisaillement le long de la paroi semblent présentes, quelle que soit la viscosité de la phase continue. Pour les viscosités élevées, les contraintes turbulentes générées dans la zone de décharge ne sont pas suffisamment intenses pour provoquer la rupture à proximité de la turbine. Des gouttes de grande taille peuvent alors atteindre la paroi, où les contraintes de cisaillement induisent leur rupture. Lorsque la viscosité diminue, les contraintes turbulentes deviennent suffisamment élevées pour provoquer la rupture directement dans la zone de décharge. Les gouttes atteignent alors la paroi avec une taille plus faible : les forces interfaciales deviennent alors plus importantes, rendant les contraintes de cisaillement insuffisantes pour provoquer une rupture dans cette région.

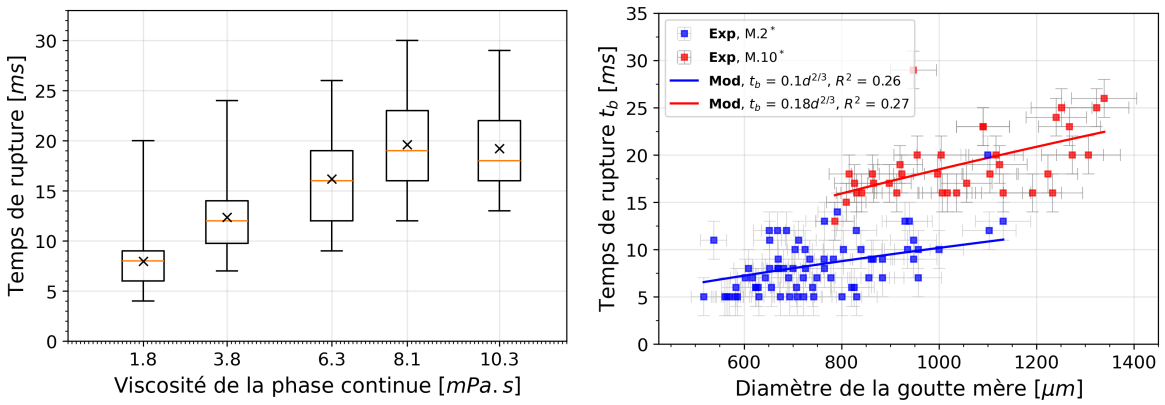
Pour les deux viscosités les plus faibles (M.2* et M.4*), les résultats présentés sur la Figure 4.15 sont cohérents avec ceux rapportés dans la littérature. Konno et al. (1983) a observé un nombre élevé de ruptures dans le jet radial de la turbine, tandis que Hamed et al. (2024) a montré que près de 90 % des ruptures se produisent à proximité des pales, à une distance correspondant à environ la moitié de leur longueur. De même, dans les observations en vue de profil de Krakau and Kraume (2019b), la probabilité de rupture est maximale dans la zone de décharge, où les bulles sont entraînées radialement vers l'extérieur. En revanche, dans une vue horizontale et en corrélant la position des ruptures à celle des pales, les auteurs ont mis en évidence que les bulles se rompent majoritairement dans le sillage en amont des pales. Cette observation est toutefois difficile à confirmer sur la Figure 4.15, la zone d'observation étant vue de profil, et ce type de rupture étant probablement sous-estimé, car partiellement masqué par les pales. Toutefois, d'après les études hydrodynamiques monophasiques, c'est dans la région du sillage des pales que le taux de dissipation locale est maximal (Escudié and Liné, 2003; Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2009; Laine et al., 2023).

4.3.3 Temps de rupture

Dans les bilans de population, la fréquence de rupture est un paramètre clé dans la modélisation du phénomène de rupture. Elle correspond au nombre d'événements de rupture par unité de temps pour une goutte de diamètre donné et est généralement définie à partir du temps de rupture t_b et d'une probabilité de rupture (Coulaloglou and Tavlarides,

1977). De nombreux modèles de fréquence existent dans la littérature (Liao and Lucas, 2009), mais ils conduisent parfois à des résultats contradictoires et nécessitent souvent un ajustement des constantes. Ainsi, la mesure expérimentale du temps de rupture constitue un outil essentiel, à la fois pour valider et développer des modèles (Maaß and Kraume, 2012).

Ainsi, le temps de rupture en fonction de la viscosité de la phase continue est présenté sur la Figure 4.16a. Il correspond au temps entre le début de la déformation de la goutte mère, initialement sphérique, et la formation de la dernière goutte fille. Les barres horizontales se réfèrent aux bornes inférieure et supérieure du temps de rupture, et le bas et le haut des boites correspondent respectivement au premier (25 % des valeurs sont inférieures) et troisième (75 % des valeurs sont supérieures) quartile. La valeur médiane est représentée par une bande horizontale orange, et la valeur moyenne par une croix. En effet, d'après Maaß and Kraume (2012), la distribution des temps de rupture ne suit pas une loi normale, et la valeur moyenne n'est pas suffisante pour décrire son évolution



(a) (b)

FIGURE 4.16 – Temps de rupture en fonction de (a) la viscosité de la phase continue et (b) la taille de la goutte mère ; statistiques réalisées sur : $N_b = 131$ pour M.2*, $N_b = 64$ pour M.4*, $N_b = 35$ pour M.6*, $N_b = 31$ pour M.8*, $N_b = 41$ pour M.10*.

D'après la Figure 4.16a, le temps de rupture augmente avec la viscosité de la phase continue. Il double lorsque la viscosité triple, passant d'une valeur moyenne de $\langle t_b \rangle = 8$ ms pour M.2* à $\langle t_b \rangle = 16{,}2$ ms pour M.6*. Au-delà de cette viscosité, l'augmentation est moins marquée : pour M.10*, la valeur moyenne atteint $\langle t_b \rangle = 19{,}2$ ms. Les valeurs médianes, ainsi que celles du premier et du troisième quartile, suivent les mêmes évolutions.

En utilisant le modèle de temps de rupture de Coulaloglou and Tavlarides (1977) (Eq. 1.70), et en considérant : (i) la moyenne volumique du taux de dissipation turbulent (Chapitre 5) et (ii) l'hypothèse que chaque goutte analysée possède le diamètre d'injection (Figure 4.3b), la constante empirique du modèle est estimée à $C_1 = 0{,}51$ pour la phase continue M.2. Cette valeur se situe dans l'intervalle couramment rapporté dans la littérature, généralement compris entre 0,006 et 0,91 (Maaß and Kraume, 2012).

La Figure 4.16a montre également une forte dispersion des temps de rupture. Pour M.2*, ils varient entre 4 et 20 ms, tandis que pour M.8*, ils s'étendent de 12 à 30 ms. Cette variabilité peut être attribuée à la coexistence de contraintes hydrodynamiques de natures différentes (voir paragraphe 4.3.1) (Krakau and Kraume, 2019b), ainsi qu'à la diversité des trajectoires et des contraintes subies par les gouttes (Maaß and Kraume, 2012). Par ailleurs, cela peut être attribué au caractère stochastique de la turbulence, où une même goutte peut, au sein d'un écoulement similaire, être soumise à différentes contraintes (Karimi and Andersson, 2020; Håkansson and Brandt, 2022).

Par ailleurs, il n'a pas été possible d'analyser précisément le temps de rupture selon le mécanisme de rupture : les événements induits dans le sillage des pales sont partiellement masqués par la turbine, et le temps de rupture de ce mécanisme n'a pas pu être mesuré. De même, celles dues aux fluctuations turbulentes n'apparaissent que sur une plage restreinte de conditions opératoires. Cependant, pour la phase continue M.2*, le temps moyen d'une rupture par élongation le long de la paroi est mesuré à $\langle t_b \rangle = 8{,}4$ ms, contre $\langle t_b \rangle = 8$ ms pour une rupture induite par un tourbillon.

La comparaison avec les résultats de la littérature n'est pas toujours évidente, au vu des fortes différences entre les études en termes d'écoulement, de propriétés physico-chimiques, de taille des gouttes mères et même de définition du temps de rupture (Krakau and Kraume, 2019b). Des synthèses des temps de rupture mesurés dans la littérature sont tout de même proposées par Maaß et al. (2012) et Solsvik and Jakobsen (2015b), avec des valeurs typiquement comprises entre 3 et 100 ms. À titre d'exemple, Solsvik and Jakobsen (2015b) rapportent des temps de rupture compris entre 10 et 60 ms pour des gouttes mères de 750 µm à 2 mm, tandis que Maaß and Kraume (2012) estiment des valeurs moyennes entre 12,4 et 34 ms pour des diamètres de 535 µm à 3 mm. Par ailleurs, Walter and Blanch (1986) ont observé une augmentation du temps de rupture avec la viscosité de la phase continue. Une tendance similaire est également rapportée lorsque la viscosité de la phase dispersée augmente (Collins and Knudsen, 1970; Andersson and Andersson, 2006b; Solsvik and Jakobsen, 2015b). L'ensemble de ces travaux est donc en cohérence avec les résultats de la Figure 4.16a.

Dans la littérature, il a également été observé que le temps de rupture augmente avec la taille de la goutte mère (Konno et al., 1983; Maaß and Kraume, 2012; Solsvik and Jakobsen, 2015b). Cette tendance est également observée avec les expressions classiquement utilisées dans les bilans de population, où le temps de rupture varie généralement comme $t_b \propto d^{2/3}$ (Coulaloglou and Tavlarides, 1977). Toutefois, d'après la Figure 4.3b, la taille des gouttes à la sortie du capillaire augmente avec la viscosité de la phase continue. L'augmentation du temps de rupture avec la viscosité pourrait donc être en partie due à l'augmentation de la taille des gouttes mères. Ainsi, la Figure 4.16b présente le temps de rupture en fonction du diamètre des gouttes mères pour les phases continues M.2* et M.10*. Les données expérimentales ont été ajustées par deux lois de puissance de degré 2/3, selon la méthode des moindres carrés.

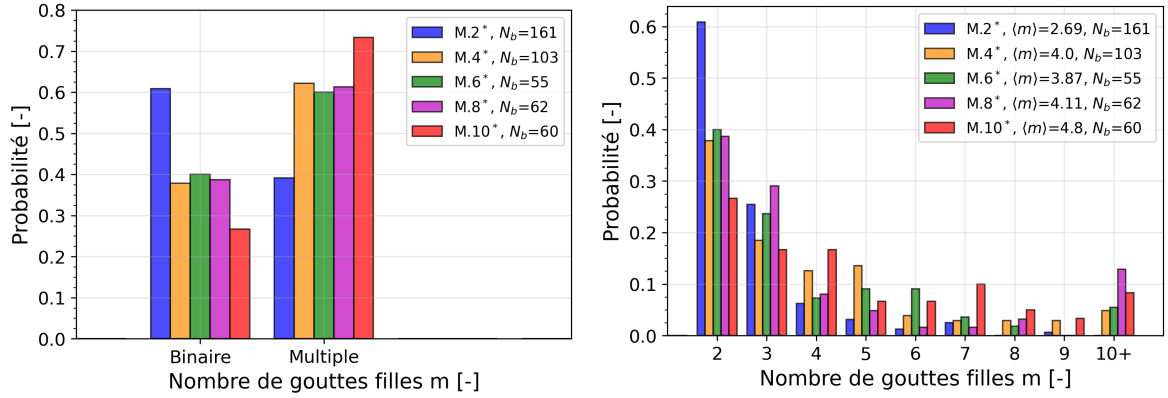
D'après la Figure 4.16b, pour les plages de diamètre de goutte mère entre 800 et 1100 µm, le temps de rupture est effectivement supérieur pour M.10* que pour M.2*.

Par ailleurs, il semblerait que le temps de rupture augmente avec la viscosité selon une pente plus forte que celle estimée par les deux modèles. Ainsi, même si la taille des gouttes mères peut amplifier cette tendance, l'augmentation du temps de rupture est due à l'augmentation de la viscosité de la phase continue. Cette observation pourra s'étendre au paragraphe suivant, qui traite d'autres grandeurs liées à la rupture : même si les diamètres des gouttes injectées diffèrent selon les conditions opératoires, les tendances observées sont principalement induites par les effets de la viscosité.

Enfin, d'après la figure 4.16b, les coefficients de détermination R^2 des deux modèles sont respectivement de 0,26 et 0,27. Ces valeurs indiquent que les modèles ne décrivent pas de manière parfaitement fidèle le comportement du temps de rupture. Ceci est principalement dû à la forte dispersion des temps de rupture, au faible nombre d'événements mesurés et à la gamme restreinte des conditions opératoires considérées. Néanmoins, les modèles reproduisent correctement la tendance générale observée expérimentalement. Par ailleurs, les résultats confirment les conclusions de Maaß and Kraume (2012) et Solsvik and Jakobsen (2015b) : le temps de rupture est une fonction croissante du diamètre de la goutte mère, contrairement à ce que suggère le modèle de Chen et al. (1998).

4.3.4 Nombre de gouttes filles

Tout d'abord, la Figure 4.17a présente une classification des événements de rupture selon qu'ils soient binaires ou multiples ($m \geq 3$). Pour la phase continue M.2*, les ruptures sont majoritairement binaires, avec 61 % des événements produisant deux gouttes filles. À l'inverse, lorsque la viscosité augmente, la fréquence des ruptures binaires diminue. À titre d'exemple, 73 % des ruptures observées pour M.10* forment au moins trois gouttes filles. La probabilité d'occurrence des ruptures multiples est similaire pour les phases continues M.4*, M.6* et M.8*, avec en moyenne 61 % d'événements tels que $m \geq 3$.



(a) (b)

FIGURE 4.17 – Nombre de gouttes filles générées en fonction de la viscosité de la phase continue, pour $N = 1200$ rpm.

En plus de la localisation des événements, la Figure 4.15 illustre le nombre de gouttes filles produites en fonction de leurs positions respectives. Les événements pour lesquels les gouttes filles sont partiellement visibles ou non discernables ont été représentés par des croix noires. Quelle que soit la viscosité de la phase continue, la Figure 4.15 montre que le nombre de gouttes filles reste généralement faible dans la zone de décharge. Pour 2 mm $< x <$ 5 mm et 4,5 mm $< y <$ 8 mm, la rupture engendre en moyenne, pour toutes les viscosités, $m = 3$ gouttes filles. En revanche, dans la zone de séparation du jet le long de la paroi, pour 0,2 mm $< x <$ 1,1 mm et 5,5 mm $< y <$ 7 mm, le nombre de gouttes filles produites double, avec en moyenne $m = 6{,}4$ pour les viscosités comprises entre M.4* et M.10*. Cependant, pour la phase continue M.2*, la rupture génère en moyenne $m = 3{,}3$ gouttes filles dans cette région. Par ailleurs, d'après la Figure 4.15, lorsque la rupture se produit le long de la paroi, mais légèrement au-dessus ou en dessous de la zone de séparation du jet, le nombre de gouttes filles produites est plus faible. Ainsi, il semblerait que l'écoulement le long de la paroi favorise fortement l'étirement vertical des gouttes, la formation de filaments longs et fins et, par conséquent, la production d'un grand nombre de petites gouttes satellites.

Pour compléter les résultats des Figures 4.15 et 4.17a, la Figure 4.17b illustre le nombre de gouttes filles formées pour chaque viscosité de phase continue. Une augmentation de la viscosité de la phase continue correspond à une augmentation du nombre de gouttes filles générées. Le nombre moyen de gouttes filles produites par la rupture double, passant de $\langle m \rangle = 2{,}7$ à $\langle m \rangle = 4{,}8$, lorsque la viscosité augmente d'un facteur cinq. Pour la plus faible viscosité de phase continue (M.2*), la rupture binaire est majoritaire, et la probabilité d'occurrence diminue exponentiellement avec le nombre de gouttes filles. A l'inverse, l'augmentation de la viscosité conduit à une distribution plus uniformément répartie entre $m = 2$ et $m = 10+$, et, *in fine*, à une augmentation du nombre de gouttes filles. Par exemple, à une viscosité de $\mu = 10{,}3$ mPa·s, environ 50 % des ruptures ont donné lieu à au moins cinq gouttes filles. En comparaison, cette probabilité diminue à environ 30 % pour M.4*, M.6* et M.8*, et chute encore à seulement 7 % pour une phase continue de viscosité $\mu = 1{,}8$ mPa·s.

Comme l'ont mentionné de nombreux auteurs (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b), il est assez difficile d'établir des comparaisons avec la littérature en raison des différences significatives entre les expériences menées. Le nombre de gouttes filles formées par rupture dépend fortement du régime d'écoulement, de l'intensité et du type des contraintes destructives, de la taille de la goutte mère et des propriétés physiques des phases. Cependant, les résultats de la Figure 4.17b sont cohérents avec les tendances observées : contrairement aux bulles (Hesketh et al., 1991; Andersson and Andersson, 2006b; Krakau and Kraume, 2019b), pour les gouttes, la probabilité de ruptures multiples est plus élevée que celle des ruptures binaires (Kuriyama et al., 1995; Galinat et al., 2005; Andersson and Andersson, 2006b; Maaß et al., 2007; Maaß and Kraume, 2012). En cuve agitée, Konno et al. (1983) a obtenu une moyenne de trois gouttes filles pour des gouttes mères comprises entre 260 µm et 1 mm. Solsvik and Jakobsen (2015b) a également observé un nombre plus important de ruptures multiples que de ruptures binaires. Pour les liquides à faible viscosité dont la taille initiale varie entre 600 µm et 2 mm, les auteurs ont observé

que la probabilité d'une rupture multiple est d'environ 60 %. Ils constatent également une diminution exponentielle de la probabilité avec l'augmentation du nombre de gouttelettes filles, aucune rupture impliquant plus de dix gouttelettes filles n'étant observée pour les gouttes de faible viscosité.

Ainsi, à l'exception de la plus faible viscosité, la majorité des distributions de taille de gouttes filles (DDSD) proposées dans la littérature (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Liao and Lucas, 2009), basées sur l'hypothèse d'une rupture binaire, ne sont pas applicables ici. Dans leur étude, (Andersson and Andersson, 2006b) ont mis en évidence que la probabilité de rupture binaire des gouttes est inférieure à 40 %. Même si la rupture adopte typiquement une forme en haltère (deux gouttes de grands diamètres et un grand nombre de petites gouttes), les deux plus grosses gouttes filles représentent en moyenne 96 % du volume de la goutte mère. D'après les auteurs, l'hypothèse de rupture binaire utilisée dans les modèles de type PBE conduit ainsi à une sous-estimation de l'aire interfaciale d'environ 8 % en moyenne, et ce pour chaque événement de rupture.

Comme cela a été observé dans le Chapitre 3, l'augmentation de la viscosité de l'une ou l'autre phase présente une tendance similaire. De nombreuses études ont rapporté que les gouttes subissent des déformations significatives lors de la rupture, avec un étirement d'autant plus marqué avec une augmentation de la viscosité interne de la goutte (Collins and Knudsen, 1970; Eastwood et al., 2004; Sanjuan-Galindo et al., 2015; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Hamed et al., 2024). Cette déformation importante favorise la production d'un plus grand nombre de gouttes filles, et particulièrement de très petites tailles (Kuriyama et al., 1995; Andersson and Andersson, 2006b; Carrillo De Hert and Rodgers, 2018; Zhou et al., 2019a). Andersson and Andersson (2006b) ont observé que le filament peut devenir 20 fois plus grand que la taille initiale de la goutte. De manière plus quantitative, (Kuriyama et al., 1995) ont observé que le nombre de gouttes filles augmente de 3 à 5 jusqu'à 30 avec l'augmentation d'un facteur 100 de la viscosité de la goutte. Solsvik and Jakobsen (2015b) ont, quant à eux, constaté que, pour les gouttes mères de moins de 2 mm, la probabilité de rupture multiple augmente de 60 à 80 % lorsque la viscosité de la goutte augmente d'un facteur huit. La probabilité d'obtenir plus de dix gouttes filles passe de 2 % en moyenne à près de 30 % pour la même augmentation de viscosité.

4.3.5 Distribution de taille des gouttes filles (DDSD)

D'après le paragraphe précédent, le nombre de gouttes filles augmente avec la viscosité de la phase continue. Par définition, une augmentation du nombre de gouttes filles générées par une goutte mère de taille donnée entraîne une diminution des tailles individuelles des gouttes filles. Par ailleurs, les séquences d'images présentées dans la partie 4.3.1 montrent que la rupture engendre une large gamme de tailles de gouttes filles, notamment à haute viscosité, avec la formation d'un nombre significatif de petites gouttes. Ce paragraphe se concentre donc sur la taille des gouttes filles générées après rupture. Étant donné que les mesures de volume manuelles sont chronophages, l'étude s'est focalisée sur les deux viscosités extrêmes (M.2* et M.10*). Les volumes/diamètres de chaque goutte mère et fille ont été estimés à partir de leur diamètre équivalent (voir Eq. 4.2). Par ailleurs, les distributions de taille sont systématiquement présentées en nombre.

Tout d'abord, la Figure 4.18 présente une comparaison entre le volume des gouttes mères et la somme des volumes des gouttes filles. Cela permet de vérifier la conservation de la masse au cours du phénomène de rupture. Pour un grand nombre d'événements, il n'a pas été possible de mesurer avec précision à la fois le volume des gouttes mères et celui des gouttes filles. Ceci est du aux pales qui masquent partiellement la zone d'observation, à des problèmes de netteté (écoulement majoritairement perpendiculaire au plan d'observation) ou de superposition de gouttes. Ainsi, par rapport aux autres paragraphes du chapitre, le nombre d'événements N_b est plus faible.

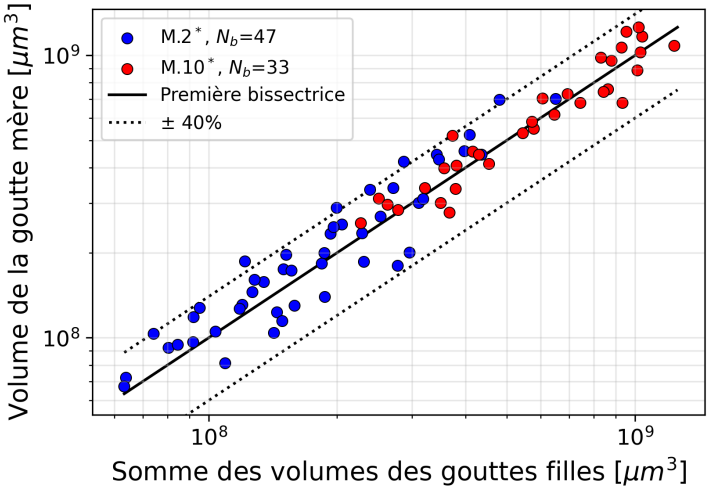


FIGURE 4.18 – Volume des gouttes mères en fonction de la somme des volumes des gouttes filles, pour les phases continues M.2* et M.10*.

D'après la Figure 4.18, pour les deux viscosités considérées, l'écart entre le volume de la goutte mère et la somme des volumes des gouttes filles est majoritairement inférieur à 40 %. En moyenne, l'écart relatif entre ces deux volumes est de l'ordre de 15 %. Selon la Figure 4.18, le volume des gouttes mères sujettes à la rupture est plus élevé pour M.10* que pour M.2*. Cette différence s'explique notamment par la taille des gouttes injectées, qui est plus grande à haute viscosité (voir Figure 4.3b).

La Figure 4.18 met en évidence une incertitude importante lors de l'estimation des volumes de gouttes. En effet, celles-ci présentent généralement une forme non sphérique et sont fortement déformées au moment de la mesure. Leur volume étant estimé à partir de leur projection bidimensionnelle sur les images, la déformation dans la troisième dimension n'est pas prise en compte. De plus, un nombre considérable d'événements se produit à proximité des parois (voir paragraphe 4.3.2), une région sensible aux déformations optiques dues à la courbure du mélangeur en ses bords. Les gouttes filles sont donc typiquement mesurées dans cette région, alors que le volume de la goutte mère est estimé dans la zone de décharge. Ces deux problèmes expliquent notamment l'erreur importante sur l'estimation des volumes. Ainsi, il peut être noté que les tailles de gouttes mesurées dans ce paragraphe ne sont qu'une estimation approximative des tailles réelles.

Les distributions de taille des gouttes filles (observées pour un temps $t < 1{,}3$ s) pour les phases continues M.2* et M.10* sont présentées sur la Figure 4.19. À titre de comparaison, les distributions de taille en régime stationnaire ($t = 180$ min), issues du Chapitre 3, sont également illustrées. Pour une phase continue M.2*, la distribution des gouttes filles présente une forme gaussienne, avec des diamètres généralement compris entre 100 et 800 µm. Cependant, à l'image des distributions de taille stationnaires du Chapitre 3, une augmentation de la viscosité modifie significativement la forme de la distribution. En effet, pour la phase continue M.10*, la distribution présente deux populations distinctes : une première, de faible amplitude, suivant une loi gaussienne avec un écart type élevé entre 400 et 1250 µm, et une seconde, de forte amplitude et de plus faible écart type, comprise entre 100 et 400 µm. Ainsi, l'augmentation de la viscosité de la phase continue conduit à une augmentation marquée du nombre de petites gouttes filles formées lors d'un événement de rupture, typiquement comprises entre 100 et 250 µm.

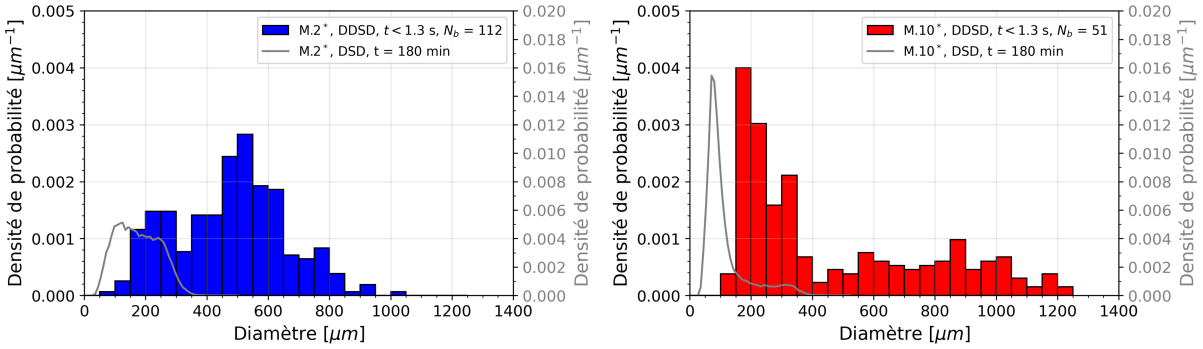


FIGURE 4.19 – Distributions de taille des gouttes filles (DSDD) après injection et distribution de taille de gouttes (DSD) en régime stationnaire (Chapitre 3) pour les phases continues M.2* et M.10*.

D'après la Figure 4.19, la forme des distributions de taille des gouttes filles (DDSD) est très similaire à celle des distributions de taille en régime stationnaire (DSD) pour les deux viscosités considérées. Ainsi, la morphologie de la rupture, c'est-à-dire la répartition des tailles des gouttes filles, est cohérente avec la distribution finale des tailles observée à l'équilibre. Toutefois, un léger décalage vers les faibles diamètres est observé entre les deux chapitres. C'est notamment le cas pour M.10*, et le pic de forte amplitude associé aux petites gouttes : il est centré vers 175 µm pour les DDSD contre environ 70 µm pour les DSD. Ce décalage peut s'expliquer par la différence de temps de mesure. En effet, les DDSD ont été enregistrées juste après l'injection des gouttes ($t < 1{,}3$ s), tandis que les DSD correspondent à un régime stationnaire atteint trois heures après l'injection. Ainsi, les gouttes filles mesurées ici continueront donc de se rompre, entraînant un déplacement progressif de la distribution vers les plus petits diamètres. Il peut être noté que les gouttes filles de diamètre compris entre 100 et 400 µm ne sont théoriquement plus censées se rompre au cours des trois heures d'émulsification, leur diamètre étant inférieur à $d_{\max}$. Par ailleurs, une partie du décalage observé entre les deux distributions pourrait également provenir d'incertitudes de mesure lors de l'estimation des diamètres (voir Figure 4.18).

Enfin, la Figure 4.20 illustre les distributions des tailles des gouttes filles normalisées. Ces dernières représentent la répartition des diamètres des gouttes filles par rapport au diamètre de leur goutte mère. Comme indiqué précédemment (voir Figure 4.18), les événements pour lesquels les volumes ont été mesurés à la fois pour la goutte mère et les gouttes filles résultantes sont rares. Ainsi, le volume des gouttes mères a été estimé comme la somme des volumes des gouttes filles. Cette approche permet d'augmenter le nombre d'événements considérés et de garantir la conservation de la masse, avec un rapport des diamètres fille/mère strictement compris entre 0 et 1. À titre informatif, les ruptures symétriques (m gouttes filles de volume égal) pour $m = 2$, $m = 3$ et $m = 10$ sont également représentées sur les figures. Elles sont modélisées par des distributions gaussiennes centrées sur la valeur correspondant à une rupture en m volumes égaux, avec un écart-type fixé à 0,075.

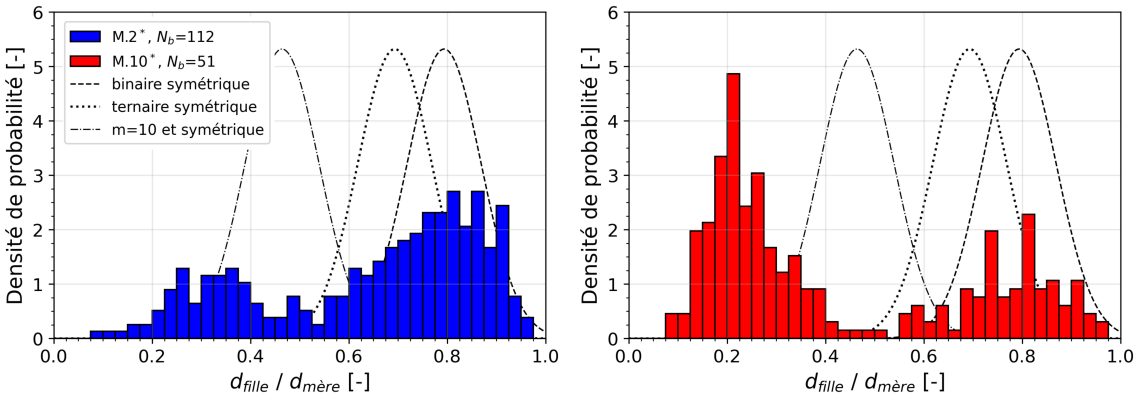
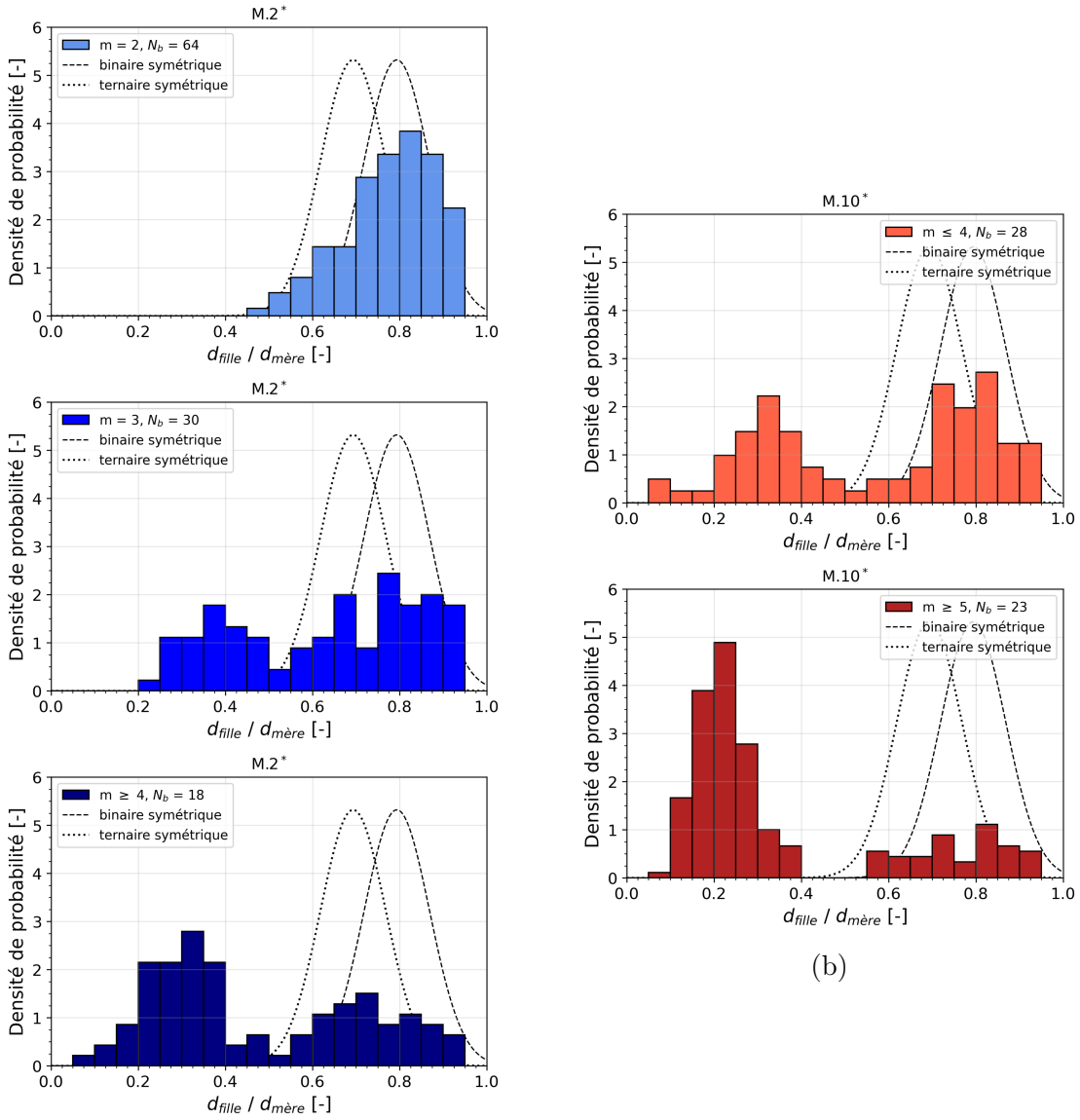


FIGURE 4.20 – Distributions de taille de gouttes filles normalisées pour les phases continues M.2* et M.10*.

D'après la Figure 4.20, les distributions des diamètres des gouttes filles normalisées sont bimodales pour les deux viscosités de phase continue considérées. Toutefois, les amplitudes relatives des deux populations sont inversées entre les deux cas. Pour la phase continue M.2*, une première population, de forte amplitude, est observée pour des rapports de diamètre compris entre 0,6 et 0,9, tandis qu'une seconde population, de plus faible amplitude, apparaît entre 0,1 et 0,5. À l'inverse, pour la phase continue M.10*, la seconde population devient prédominante, son amplitude étant d'environ 3,5 fois supérieure à celle de la première population. Ces résultats mettent en évidence que l'augmentation de la viscosité de la phase continue favorise la formation d'un grand nombre de petites gouttes filles, tandis qu'à faible viscosité, la rupture tend à générer préférentiellement des gouttes de plus grand diamètre. Par ailleurs, par définition, une augmentation de m conduit à une diminution des tailles des gouttes filles. Toutefois, la comparaison des distributions de gouttes filles avec une rupture en $m = 10$ gouttes filles de volume égal montre que le pic de forte amplitude associé aux petites gouttes ne résulte pas uniquement d'une augmentation du nombre de gouttes filles m. L'augmentation de la viscosité de la phase continue tend également à changer la morphologie de la rupture, cette dernière favorisant la formation de gouttes de petite taille (voir Figure 4.13).



(a) (b)

FIGURE 4.21 – Distributions de taille de gouttes filles normalisées en fonction du nombre de gouttes filles générées pour les phases continues (a) M.2* et (b) M.10*.

Pour compléter la figure précédente, les distributions des diamètres des gouttes filles normalisées sont représentées en fonction du nombre de gouttes filles générées, sur les Figures 4.21a et 4.21b, respectivement pour les phases continues M.2* et M.10*. En raison d'un nombre limité d'événements observés, certaines classes de m ont été regroupées. Pour la phase continue la moins visqueuse (M.2*), la rupture binaire est l'événement le plus probable (voir Figure 4.17b), et, lorsqu'elle se produit, elle est majoritairement symétrique (Figure 4.21a). En revanche, lorsque la rupture n'est pas binaire, elle tend à générer un nombre non négligeable de petites gouttes filles. En effet, pour $m = 3$, la distribution normalisée des diamètres des gouttes filles est quasiment uniforme entre 0,25 et 0,9. Pour

des événements produisant un grand nombre de gouttes filles ($m > 4$), la distribution devient bimodale, caractérisée par une population notable de petites gouttes, comprises entre $0{,}05 < d_{\text{fille}}/d_{\text{mere}} < 0{,}5$ (Figure 4.21a). Cependant, les événements de rupture produisant un nombre aussi important de gouttes filles ($m > 4$) sont peu fréquents.

Sur la Figure 4.21b, correspondant à la phase continue M.10*, la distribution des gouttes filles normalisée conserve une forme bimodale, quel que soit le nombre de gouttes filles générées. Toutefois, l'amplitude de la population de petites gouttes ($0{,}1 < d_{\text{fille}}/d_{\text{mere}} < 0{,}4$) augmente avec le nombre de gouttes filles produites m. D'après la Figure 4.15, les événements associés à un grand nombre de gouttes filles ($m \geq 5$) se situent principalement le long de la paroi. Ainsi, comme l'ont déjà illustrées les Figures 4.6 et 4.7, les ruptures observées dans cette région génèrent typiquement deux gouttes de volume identique, ainsi qu'un nombre conséquent de petites gouttes satellites. Cette observation est en accord avec les distributions normalisées illustrées sur la Figure 4.21b pour $m \geq 5$.

Dans la littérature, la taille des gouttes filles issues de la rupture n'est pas toujours mesurée de manière quantitative. Par ailleurs, les observations et conclusions rapportées sont très diverses. Certains travaux décrivent des ruptures produisant deux gouttes de volumes égaux (Sleicher Jr, 1962; Walter and Blanch, 1986; Andersson and Andersson, 2006b), tandis que d'autres indiquent au contraire que ce type de rupture n'a jamais été observé [3] (Solsvik and Jakobsen, 2015b). Certaines études rapportent une distribution des tailles en forme de cloche (Maaß et al., 2007; Martínez-Bazán et al., 1999b), alors que d'autres exposent des distributions en « U » ou en « M », caractérisées par la coexistence de très petites et de très grandes gouttes filles (Hesketh et al., 1991; Zednikova et al., 2019). D'après Calabrese et al. (1986b), pour des nombres de Reynolds très élevés, la rupture se produit par éclatement turbulent (*turbulent bursting*), ce qui génère un nombre important de gouttes filles avec une distribution relativement étroite. En revanche, pour des nombres de Reynolds plus faibles, la rupture se fait plutôt par étirement, avec une déformation importante et la formation d'un filament, conduisant à une large gamme de tailles de gouttes filles.

Par ailleurs, la quasi-totalité des modèles de distribution de taille des gouttes filles (DDSD) utilisés dans les bilans de population (PBE) suppose que la rupture est binaire (Liao and Lucas, 2009). De même, de nombreux modèles considèrent que la rupture la plus probable conduit à la formation de gouttes filles de volumes égaux (Coulaloglou and Tavlarides, 1977; Konno et al., 1983). Pour la phase continue de faible viscosité (M.2*), ces modèles semblent tout à fait valides et applicables. En revanche, lorsque la viscosité de la phase continue augmente, elle favorise les ruptures induites par l'écoulement élongationnel le long de la paroi. Ainsi, pour la viscosité M.10*, les modèles traditionnels utilisés en PBE ne semblent donc plus adaptés : la rupture génère typiquement, d'une part, un grand nombre de gouttes filles et, d'autre part, donne lieu à une distribution de tailles bimodale, avec un pic marqué pour les petites gouttes.

3. Andersson and Andersson (2006b) soulignent que la formation de deux gouttes de volumes égaux correspond à l'événement nécessitant le plus d'énergie.

4.4 Discussion, conclusion et perspectives

Les travaux portant sur la phénoménologie des ruptures en cuve agitée sont rares (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b), voire inexistants pour des phases **organiques continues et visqueuses**, ainsi que pour des régimes de transition (**$200 < Re < 1300$**). Ainsi, dans ce chapitre, la **dynamique locale** de la rupture dans un **mélangeur** a été étudiée expérimentalement en fonction de la viscosité de la phase continue. La rupture des gouttes a été analysée à partir d'enregistrements vidéo réalisés avec une caméra rapide, positionnée à l'extérieur du mélangeur, à une fréquence d'acquisition élevée. Ces enregistrements ont permis de visualiser directement le processus de rupture, d'identifier les différents mécanismes mis en jeu, de déterminer la localisation et le temps de la rupture, ainsi que le nombre et la taille des gouttes filles générées. Cette étude vise à mieux appréhender le changement de forme des distributions de taille stationnaire lié à l'augmentation de viscosité (Chapitre 3), avec notamment une augmentation significative du nombre de gouttes de diamètre inférieur à 100 µm.

Le **changement de régime de rupture** associé à l'augmentation de la viscosité de la phase continue a été **confirmé** dans ce chapitre. Les résultats ont montré que, pour la plus faible viscosité (M.2*), la rupture est majoritairement induite par les **fluctuations turbulentes** de vitesse et de pression. Ce mécanisme conduit à des ruptures uniformément réparties dans la zone de décharge de la turbine, produisant généralement **deux** gouttes filles de **volumes comparables**.

Avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue, la nature des contraintes hydrodynamiques responsables de la rupture est modifiée : le taux d'occurrence des ruptures induites par les fluctuations turbulentes décroît fortement, tandis que la rupture est de plus en plus engendrée par des **contraintes de cisaillement** unidirectionnelles, typiquement par l'écoulement élongationnel le long de la paroi. Ce dernier, relativement laminaire et structuré, favorise un étirement vertical marqué ainsi que la formation d'un long et fin filament. Ce filament est généralement entouré par deux lobes sphériques de grand volume, donnant à la goutte une forme d'haltère au cours de sa déformation. Ce mécanisme de rupture conduit le plus souvent à la formation de deux gouttes de volumes comparables, accompagnées d'un nombre significatif de petites gouttes satellites. Ainsi, l'augmentation de la viscosité de la phase continue tend à accroître à la fois le **nombre de gouttes filles** générées et la **proportion de gouttes filles de petite taille**.

Toutefois, il peut être noté que les mécanismes de rupture observés **coexistent** généralement pour chaque condition opératoire. De plus, les tendances rapportées reposent sur des observations **statistiques**, qui ne se vérifient pas nécessairement pour chaque événement individuel. En effet, pour la phase continue M.2*, certains événements sont induits par élongation à la paroi, ou conduisent à des ruptures multiples et à la formation de petites gouttes. A l'inverse, même avec une viscosité de phase continue élevée, certains événements génèrent un faible nombre de gouttes filles, et cela, même pour les événements localisés le long de la paroi.

L'augmentation du nombre de petites gouttes formées lors d'un événement de rupture

semble donc être liée à la formation d'un long et fin filament lors de la déformation, résultant de l'un ou des deux phénomènes couplés suivants : (i) une diminution du nombre de Reynolds, qui modifie le **régime de l'écoulement**, entraînant un changement de la **nature des contraintes hydrodynamiques**, et/ou (ii) une modification du **rapport de viscosité**, qui affecte la morphologie de la rupture. Le premier point est lié à la nature des contraintes destructrices, qui influencent la localisation de la rupture et l'intensité de la déformation. Cet élément sera discuté en détail dans le chapitre suivant (Chapitre 5). Le second point renvoie aux observations de la littérature, montrant que la morphologie de la rupture dépend du rapport de viscosité (Karam and Bellinger, 1968; Eastwood et al., 2004). Ce dernier influence également le nombre de gouttes satellites générées (Kuriyama et al., 1995; Andersson and Andersson, 2006b).

Toutefois, les expériences présentées dans ce chapitre comportent plusieurs limitations et offrent de nombreuses perspectives d'amélioration. Premièrement, les observations ont été réalisées dans un plan d'observation (2D) vertical, alors que l'écoulement au sein de ce type d'appareil est complexe, tridimensionnel et majoritairement orthoradial. Cela peut entraîner une mauvaise interprétation des phénomènes physiques mis en jeu, ainsi qu'à une incertitude importante sur la mesure des volumes des gouttes. Deuxièmement, les mesures étant effectuées manuellement, elles introduisent à la fois un biais de mesure et une limitation du nombre d'événements considérés. Enfin, la position du capillaire n'étant pas parfaitement fixe, la taille des gouttes injectées n'est pas strictement répétable et dépend légèrement des conditions opératoires, ce qui peut engendrer certains biais lors des observations.

Ces limitations sont relativement communes dans ce type d'expériences (Konno et al., 1983; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Hamed et al., 2024) et ont été identifiées et corrigées pour des ruptures de bulles (Krakau and Kraume, 2019b). Néanmoins, le montage expérimental actuel ne permettait pas d'appliquer ces améliorations. L'**adaptation** des approches développées par **Krakau and Kraume (2019b)** à l'étude des **gouttes** dans un dispositif spécifique pourrait considérablement améliorer la qualité des observations. Il serait également intéressant de reproduire ces expériences en faisant varier la vitesse de rotation, le rapport de viscosité et la tension interfaciale, afin d'identifier des conditions minimisant la production de petites gouttes et, par conséquent, l'entraînement de phase. Par ailleurs, l'étude de la rupture à des moments plus éloignés de l'injection serait particulièrement pertinente. Dans cette optique, l'utilisation d'un laser couplé à un colorant permettrait d'augmenter la concentration de gouttes dans le mélangeur et, de ce fait, la probabilité d'observer des ruptures, tout en limitant les problèmes de superposition. Ce même type d'observation pourrait également être réalisé en étudiant la rupture pour des diamètres de gouttes injectées plus faibles.

Chapitre 5

Estimation des contraintes hydrodynamiques locales à l'origine de la rupture par modélisation CFD monophasique

Sommaire

5.1 Introduction et rappels bibliographiques 171
5.2 Matériel et méthodes 172
5.2.1 Détails des simulations 172
5.2.2 Conditions aux limites 174
5.2.3 Post-traitement 177
5.2.4 Classification des écoulements et efficacité d'étirement 180
5.2.5 Validation des simulations 181
5.3 Résultats et discussion 184
5.3.1 Régime d'écoulement et taille des gouttes 184
5.3.2 Estimation des contraintes hydrodynamiques locales 189
5.3.3 Caractérisation de l'écoulement le long des parois 200
5.4 Conclusion 205

5.1 Introduction et rappels bibliographiques

Au sein d'un procédé d'extraction liquide-liquide, la taille des gouttes est typiquement estimée par des modèles de bilan de population (PBE), et notamment à travers les termes sources de rupture et de coalescence. Ces termes sont directement liés aux contraintes hydrodynamiques de la phase continue, et notamment le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ (Shayunusov et al., 2024) et le taux de dissipation ε (Coulaloglou and Tavlarides, 1977; Liao and Lucas, 2009). Pour obtenir une représentation fidèle de la taille des gouttes et *in fine* des performances du procédé, il est donc essentiel de déterminer ces grandeurs avec une grande précision (Zhou and Kresta, 1998).

L'écoulement généré dans une cuve agitée est fortement hétérogène, les contraintes hydrodynamiques étant localement concentrées dans la zone de décharge, en particulier dans le sillage des pales (Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2009). L'estimation de ces contraintes à partir d'une approche globale, telle qu'avec un nombre de puissance (voir Eq. 1.5), n'est pas optimale, car elle ne tient pas compte des variations locales et sous-estime ainsi les valeurs maximales. Lorsque la coalescence est négligée, ces valeurs maximales déterminent directement la taille des gouttes, puisque ce sont elles qui conditionnent notamment le diamètre maximal stable $d_{\max}$. À titre d'exemple, Delafosse et al. (2011) ont montré que le taux de dissipation maximal pouvait être jusqu'à 50 fois supérieur à la valeur moyenne.

Afin d'accéder à la distribution spatiale des contraintes hydrodynamiques, des méthodes avancées comme la PIV (Escudié and Liné, 2003; Liu et al., 2016; Laine et al., 2023) ou la CFD (Delafosse et al., 2008, 2009; Li et al., 2011) sont des approches expérimentales et numériques reconnues dans la littérature. Toutefois, l'estimation du taux de dissipation par ces deux approches dépend fortement de la résolution spatiale, et une mesure directe de ce paramètre est difficile car elle nécessite de capturer les plus petites échelles de l'écoulement (Saarenrinne et al., 2001; Liu et al., 2016; Wang et al., 2021).

Lors de l'utilisation de la CFD, le choix du modèle de turbulence est particulièrement important pour une estimation précise du taux de dissipation. Par exemple, les modèles de turbulence de type RANS possèdent un faible coût de calcul et permettent une bonne estimation du mélange, des champs de vitesses moyennes et de l'énergie cinétique totale (Delafosse et al., 2008). Toutefois, le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente est généralement sous-estimé (Delafosse et al., 2011; Mortensen et al., 2018; Laine, 2024). De plus, les modèles RANS ne sont pas capables de prédire précisément la répartition spatiale de ε dans la zone de la turbine (Hartmann et al., 2004b; Delafosse et al., 2008, 2011). À l'inverse, l'approche LES est plus coûteuse en ressources numériques, mais semble essentielle pour avoir une estimation plus fiable du taux de dissipation (Delafosse et al., 2008, 2009; Tabib et al., 2010, 2012; Laine, 2024). Dans le cadre d'une simulation LES, un modèle de sous-maille est utilisé, permettant de modéliser la turbulence à des échelles plus petites que la maille de calcul. Le modèle de sous-maille le plus courant est celui de Smagorinsky (1963). Ce dernier fait intervenir une constante, appelée constante de Smagorinsky C_s, dont la valeur ne fait pas consensus dans la littérature (Gabriele et al., 2009; Delafosse et al., 2011; Wang et al., 2021). A titre d'exemple, pour une turbulence

isotropique, la constante par défaut est $C_s = 0.17$ (Smagorinsky, 1963). Toutefois, il peut être noté que l'intensité du taux de dissipation est très dépendante de cette constante (Delafosse et al., 2008), ce qui peut nécessiter un ajustement de celle-ci.

Enfin, les méthodes LBM sont de plus en plus utilisées, notamment car elles possèdent plusieurs avantages par rapport aux méthodes de volumes finis traditionnelles. Elles offrent une excellente capacité de parallélisation et sont particulièrement bien adaptées à une exécution sur GPU (Krüger et al., 2017). Ces caractéristiques permettent de réduire considérablement les temps de calcul, rendant accessibles des approches numériques habituellement coûteuses, telles que la LES.

Dans les Chapitres 3 et 4, un changement de régime de rupture a été mis en évidence lors de l'augmentation de la viscosité de la phase continue. Ainsi, le premier objectif de ce chapitre est de caractériser le régime d'écoulement et d'évaluer la présence éventuelle d'un changement de comportement hydrodynamique. Ensuite, la taille des gouttes étant reliée aux contraintes hydrodynamiques locales exercées par la phase environnante, celles-ci ont été quantifiées pour différentes conditions opératoires. Enfin, les régions à forte occurrence de rupture mises en évidence dans le Chapitre 4 ont été caractérisées en détail, afin de mieux comprendre la dynamique de l'écoulement dans ces régions spécifiques.

Au cours de ce chapitre, il a été supposé que la présence de la phase dispersée n'affectait pas significativement ni l'intensité, ni la répartition des contraintes hydrodynamiques (Castellano, 2019). Cette hypothèse paraît raisonnable compte tenu des faibles taux de rétention utilisés au cours de la thèse ($\alpha < 1$ %). Elle a ainsi permis de réaliser les simulations avec une approche monophasique, en considérant que les contraintes estimées correspondaient à celles rencontrées par les gouttes.

5.2 Matériel et méthodes

5.2.1 Détails des simulations

La géométrie simulée est identique à celle utilisée expérimentalement. Cette dernière reproduit le comportement hydrodynamique de la chambre de mélange des MD-NG. Ses dimensions sont présentées sur la Figure 2.3.

Les simulations ont été menées sur les cinq phases continues organiques de viscosité croissante (2,2 mPa·s $< \mu <$ 9,9 mPa·s), dont les propriétés physico-chimiques sont présentées dans le Tableau 2.2. Par ailleurs, la vitesse de rotation de la turbine a été fixée à $N = 1200$ rpm.

Les simulations ont été réalisées avec une approche monophasique sur le logiciel M-Star. Ce dernier repose sur la méthode de Boltzmann sur réseau (LBM), ce qui lui confère plusieurs avantages par rapport aux volumes finis utilisés en CFD traditionnelle (voir paragraphe 1.2.6.5). Son architecture est hautement parallélisable et optimisée pour une exécution sur GPU, permettant d'obtenir des durées de calcul nettement inférieures à celles des solveurs basés sur CPU (Krüger et al., 2017). Par ailleurs, grâce à son approche

LBM, il n'y a pas d'étape de maillage, souvent complexe et nécessitant une expertise, ce qui simplifie considérablement la préparation des simulations. La méthode de Boltzmann sur réseau, ainsi que les équations associées, est décrite dans le paragraphe 1.2.6.5. L'opérateur de collision retenu au sein des simulations ci-dessous est celui de Bhatnagar-Gross-Krook (BGK).

Conformément à l'approche LBM, le maillage adopté est structuré, uniforme et hexaédrique, tel que $\Delta x = \Delta y = \Delta z$. Le réseau D3Q19 a été utilisé, car il présente le meilleur compromis entre la stabilité numérique et le coût de calcul (Krüger et al., 2017). Le mélangeur a été discrétisé en 300 mailles selon la longueur et la largeur, ce qui conduit à un total de $2,64 \times 10^7$ mailles hexaédriques, soit une longueur caractéristique de maille de 73,3 µm. Cela correspond à environ 41 mailles le long d'une pale de la turbine Rushton, 48 sur sa hauteur et 7 sur son épaisseur. L'entrefer entre l'extrémité d'une pale et la paroi comprend 68 mailles. De plus, il y a 34 mailles entre le haut de la cheminée d'aspiration et le bas du disque de la turbine Rushton. Des coupes transversales du maillage dans la zone de la turbine sont illustrées à la Figure 5.1. Une validation du maillage sera présentée dans le paragraphe 5.2.5.

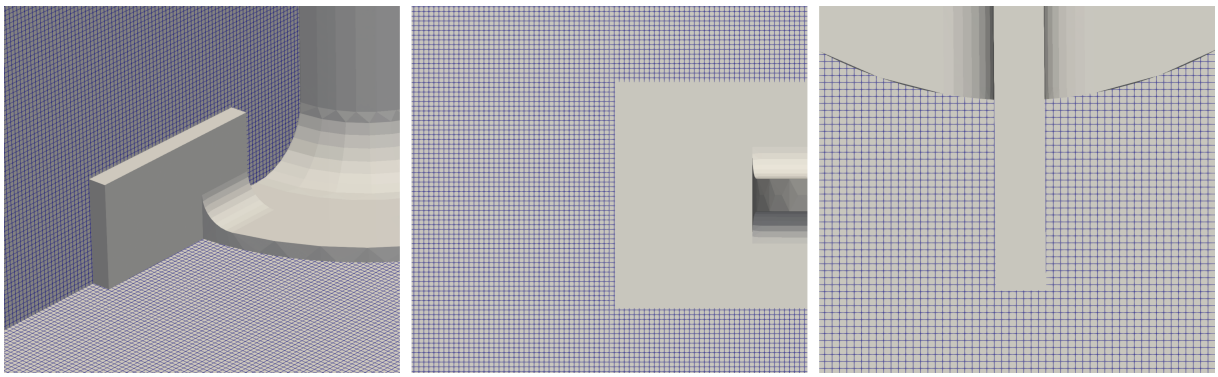


FIGURE 5.1 – Coupes transversales du maillage à proximité de la turbine, de gauche à droite : vue isométrique, coupe verticale et coupe horizontale.

La turbulence a été modélisée par une simulation aux grandes échelles (LES), en utilisant le modèle de sous-maille de Smagorinsky-Lilly. La constante de Smagorinsky a été fixée à $C_s = 0{,}1$ (Delafosse et al., 2008; M-Star Simulations, 2025b), conformément aux recommandations du logiciel. Avec l'approche LES, les grandes structures de l'écoulement sont directement résolues, tandis que les plus petites sont modélisées via un modèle sous-maille. Les équations résolues avec cette approche sont présentées dans le paragraphe 1.2.6.2. Les conditions aux limites utilisées sont discutées en détail dans les paragraphes 5.2.2.

Le nombre de Courant Co, encore appelé nombre CFL (Courant-Friedrichs-Lewy), est un nombre adimensionnel généralement utilisé comme critère de stabilité numérique en CFD. Il représente la fraction de maille parcourue par une particule fluide au cours d'un pas de temps. De manière générale, pour un problème de convection utilisant des

schémas explicites, il est nécessaire que $Co < 1$ dans toutes les cellules. En d'autres termes, la distance parcourue par une particule fluide au cours d'un pas de temps doit être inférieure à la taille d'une maille. En cuve agitée, le nombre de Courant s'exprime par :

$$Co = \frac{V_p \Delta t}{\Delta x} \tag{5.1}$$

avec V_p la vitesse en bout de pale, et Δt et Δx respectivement la discrétisation temporelle et spatiale du maillage LBM. Au sein des simulations, le pas de temps a été fixé à $\Delta t = 1 \times 10^{-5}$ s. Cela correspond à un nombre de Courant de $Co = 0{,}1$. En considérant un nombre de puissance $N_p = 5$ (valeur typiquement utilisée pour une turbine Rushton en régime pleinement turbulent dans une cuve agitée standard (Khalil et al., 2010; Roustan, 2023)), le taux de dissipation moyen a été estimé à $\langle \varepsilon \rangle_V = 1$ m^2·s^{-3} (voir Eq. 1.3). À partir de cette valeur, le temps caractéristique moyen de Kolmogorov est calculé via l'équation 1.10. On constate que le pas de temps utilisé dans les simulations reste bien inférieur à ce temps caractéristique, évalué à 0.001 s pour M2 et 0.0034 s pour M10. Toutes les échelles sont donc bien capturées par les calculs numériques. Enfin, les simulations ont été réalisées sur une carte graphique NVIDIA A100 et 32 cœurs ; ainsi, pour une simulation de 20 secondes de temps physique, la durée totale du calcul est d'environ 10 heures.

5.2.2 Conditions aux limites

Dans les simulations, les conditions aux limites suivantes ont été appliquées : une condition de glissement (*free-slip*) sur la paroi supérieure et une condition de non-glissement (*no-slip*) sur l'ensemble des autres parois. La rotation de la turbine a, quant à elle, été modélisée à l'aide de la méthode IBM (*Immersed Boundary Method*). Les différentes conditions aux limites sont détaillées dans les sous-paragraphes suivants.

5.2.2.1 Parois extérieures

L'approche *bounce-back* est la condition aux limites la plus ancienne et la plus couramment utilisée pour modéliser une paroi solide en LBM (Krüger et al., 2017). Dans cette approche, lorsqu'une population de particules rencontre une paroi, elle est renvoyée dans le fluide selon sa direction d'arrivée. On distingue principalement deux variantes (Krüger et al., 2017) :

1. *fullway bounce-back* : les particules traversent la frontière jusqu'à atteindre un nœud situé à l'intérieur de la paroi solide. Leur vitesse est alors inversée lors de l'étape de collision au pas de temps suivant. Avec cette approche, certains nœuds appartiennent donc à la zone solide, et le rebond s'effectue en deux pas de temps.
2. *halfway bounce-back* : les particules ne traversent pas complètement la paroi solide, mais rebondissent à mi-distance entre le nœud fluide et le nœud solide (voir Figure 5.2). L'inversion de la vitesse a lieu directement pendant l'étape de propagation, ce qui permet de réaliser le rebond en un seul pas de temps. Cela rend cette approche

particulièrement adaptée aux problèmes instationnaires. De plus, la paroi est représentée comme une surface sans épaisseur : il n'est pas nécessaire de discrétiser la paroi par des nœuds à l'intérieur du solide.

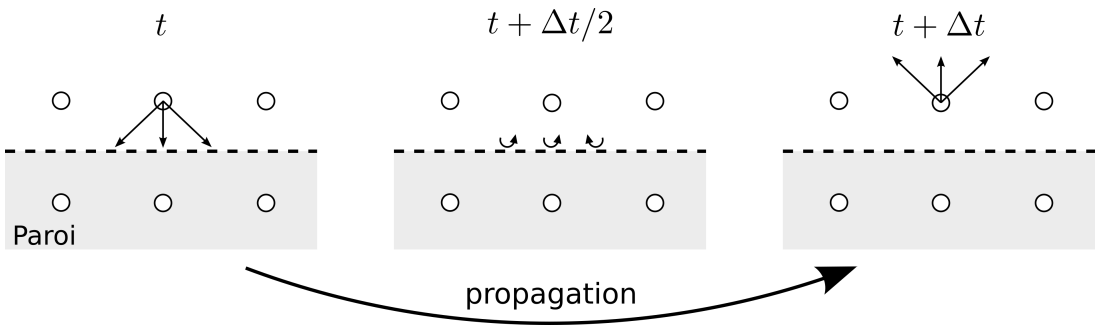


FIGURE 5.2 – Schématisation de la condition aux limites *halfway bounce-back* (adapté de Krüger et al. (2017)). Les flèches indiquent la direction de propagation des populations de particules, la zone grisée correspond au solide et la ligne pointillée représente la frontière.

Pour modéliser les parois solides, M-Star utilise la condition aux limites *halfway bounce-back*, illustrée sur la Figure 5.2. Cette méthode est généralement considérée comme de précision d'ordre deux. On note que les conditions *bounce-back* correspondent à une condition aux limites de non-glissement en CFD traditionnelle. En effet, cette condition impose au fluide d'avoir la même vitesse que la paroi.

Il peut être noté qu'aucune loi de paroi n'a été appliquée ici. En effet, pour une géométrie similaire mais de volume dix fois plus grand, avec des nombres de Reynolds deux fois plus élevés et un maillage plus grossier, Laine (2024) a montré que le centre de ces cellules les plus proches des parois se situe déjà dans la sous-couche visqueuse.

5.2.2.2 Paroi supérieure

La paroi supérieure est, quant à elle, modélisée par une condition aux limites de glissement, aussi connue sous le nom de *free-slip*. Cette condition aux limites permet de modéliser la surface libre, qui n'est pas explicitement modélisée dans les simulations. Elle force le fluide dans la direction normale à être nul, mais ne met aucune restriction sur la vitesse tangentielle.

En LBM, la condition aux limites de glissement (appelée *symmetry*) se base sur le même principe que la condition *bounce-back*. Elle est illustrée sur la Figure 5.3. Lorsqu'une population rencontre une paroi avec une condition de glissement, elle est réfléchie de manière spéculaire, comme si elle rencontrait un miroir : la composante normale de sa vitesse est inversée, tandis que la composante tangentielle reste inchangée (Krüger et al., 2017).

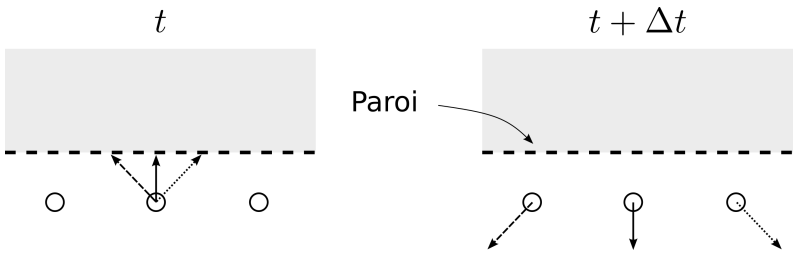


FIGURE 5.3 – Schématisation de la condition aux limites *symmetry* (adapté de Krüger et al. (2017)). Les flèches indiquent la direction de propagation des populations (les populations identiques possèdent le même style de flèches), la zone grisée correspond au solide et la ligne pointillée représente la frontière.

5.2.2.3 *Immersed boundary method* (IBM)

D'après le paragraphe 1.2.6.4 de l'état de l'art, deux approches sont utilisées en CFD traditionnelle (volumes finis) pour modéliser la rotation de la turbine : l'approche MRF et l'approche maillage tournant, ou *Sliding Mesh*. Dans les deux cas, le domaine est décomposé en deux régions distinctes : une zone en rotation contenant la turbine, et une zone fixe correspondant au reste de la cuve. Par ailleurs, le maillage fluide concorde parfaitement avec la géométrie solide, ce qui peut générer des mailles de mauvaise qualité (tétraédriques, étirées...) au contact ou proche des géométries solides.

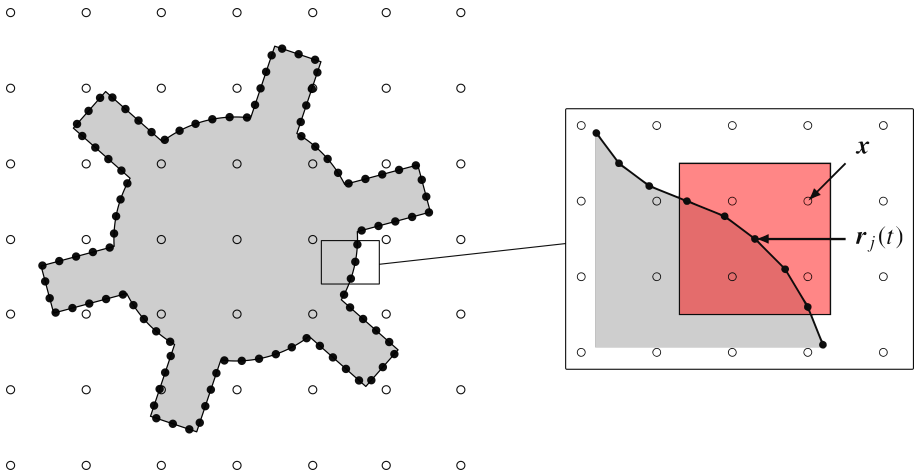


FIGURE 5.4 – Représentation schématique de la méthode IBM (adapté de Krüger et al. (2017)).

En LBM, la rotation de la turbine est simulée à l'aide d'une troisième approche : l'*Immersed Boundary Method* (IBM). Avec cette approche, la turbine est représentée par un nuage de points lagrangiens occupant des positions arbitraires, indépendantes du maillage du fluide. Par ailleurs, contrairement à l'écoulement défini sur une grille fixe, hexaédrique et régulière, les coordonnées des points lagrangiens évoluent au cours du temps. Le couplage entre ce nuage de points et le maillage fluide repose à la fois sur

l'application de la deuxième loi de Newton et sur une condition aux limites de non-glissement. Concrètement, pour les nœuds du maillage fluide situés à proximité de chaque point de la turbine, l'algorithme calcule la force volumique à appliquer de manière à ce que la vitesse du fluide interpolée en ce point corresponde à celle imposée par le mouvement de la turbine (M-Star Simulations, 2025b). La méthode IBM est donc particulièrement efficace pour des géométries complexes, car d'une part le maillage du fluide n'a pas besoin d'épouser la forme de l'objet et d'autre part le maillage ne nécessite pas de changement au cours du mouvement de la turbine. Pour plus de détails sur la méthode IBM, le lecteur peut se référer aux travaux de Peskin (2002) et Krüger et al. (2017).

Une schématisation inspirée de Krüger et al. (2017) illustre le principe de la méthode IBM. La Figure 5.4 représente une turbine discrétisée par un ensemble de points lagrangiens $r_j(t)$ qui évoluent au cours du temps t. La turbine est placée arbitrairement dans un maillage régulier x représentant le domaine fluide. La zone rouge correspond à la zone d'interpolation et de redistribution des forces, permettant le couplage bidirectionnel entre la turbine et le fluide.

5.2.3 Post-traitement

Les grandeurs obtenues à partir d'une approche LES sont des grandeurs instantanées, qui nécessitent l'utilisation d'outils statistiques pour les analyser. Afin d'alléger la lecture des équations présentées ci-dessous, le symbole $\tilde{.}$ n'est pas systématiquement indiqué. Les vitesses considérées, ainsi que les grandeurs qui en découlent, correspondent néanmoins aux vitesses instantanées $\tilde{u}_i$.

L'approche statistique la plus couramment utilisée pour analyser un écoulement est la décomposition de Reynolds : elle exprime un champ instantané comme la somme d'un champ moyen et d'un champ fluctuant (voir Eq. 1.15). Cependant, dans le cas d'un écoulement périodique, cette décomposition n'est pas suffisante, car la composante fluctuante regroupe en réalité à la fois les fluctuations périodiques liées au passage des pales et les fluctuations turbulentes. Ainsi, en cuves agitées, la triple décomposition de la vitesse est généralement utilisée. Cette dernière exprime la vitesse instantanée sous la forme :

$$u_i = \bar{u}_i + u_i^p + u_i' \tag{5.2}$$

avec $\bar{u}_i$ la vitesse moyenne temporelle, u_i^p les fluctuations périodiques dues au passage des pales et u_i' les fluctuations turbulentes. Afin de réaliser cette triple décomposition, deux approches sont disponibles dans la littérature. La première consiste à utiliser la technique POD (*Proper orthogonal decomposition*), afin d'identifier les composantes moyennes et périodiques de l'écoulement et d'en déduire la composante fluctuante (Liné et al., 2013). Toutefois, cette approche est beaucoup trop coûteuse numériquement pour décomposer un écoulement 3D de $2,64\times10^7$ mailles. La seconde approche est une approche statistique, qui se base sur le calcul de la moyenne de phase pour différentes positions de turbine (Delafosse et al., 2008; Gabriele et al., 2009; Liu et al., 2016). Cette dernière est également très lourde, notamment pour déterminer les composantes moyenne et périodique, qui nécessitent des opérations sur un grand nombre de positions de pale. Au sein de ce chapitre, la deuxième

approche a été utilisée. L'objectif étant notamment de quantifier les grandeurs turbulentes, la triple décomposition a été réalisée pour une unique position de turbine : avec deux pales positionnées perpendiculairement aux parois.

Ainsi, pour une position de pale θ donnée, la vitesse instantanée a été décomposée en une vitesse de phase, notée $\langle u_{i,\theta} \rangle_p$, et une vitesse fluctuante turbulente $u'_{i,\theta}$ telle que :

$$u_{i,\theta} = \langle u_{i,\theta} \rangle_p + u'_{i,\theta} \tag{5.3}$$

La vitesse moyenne de phase correspond à une vitesse moyenne pour une position de pale fixe. Cette dernière est déterminée par :

$$\langle u_{i,\theta} \rangle_p = \sum_{l=1}^{n_\theta} \frac{u^l_{i,\theta}}{n_\theta} \tag{5.4}$$

avec n_θ le nombre de tours réalisés par la turbine au cours de la moyenne et $u^l_{i,\theta}$ la vitesse instantanée pour cette position de pale fixe. La vitesse moyenne de phase contient à la fois la composante moyenne $\bar{u}_i$ et la composante périodique u^p_i. L'équation 5.3 permet donc d'isoler les fluctuations turbulentes de l'écoulement. Par ailleurs, la norme de la vitesse a été déterminée comme :

$$\|u_i\| = \sqrt{\sum_i u_i^2} \tag{5.5}$$

Le taux de cisaillement instantané $\dot{\gamma}$ a, quant à lui, été calculé par la formule suivante (Shayunusov et al., 2024) :

$$\dot{\gamma} = \sqrt{2(S_{ij} : S_{ij})} \tag{5.6}$$

avec S_{ij} le taux de déformation des vitesses résolues instantanées. Le symbole : désigne la contraction tensorielle. Dans sa forme développée, le taux de cisaillement se calcule donc comme :

$$\dot{\gamma}^2 = \left\{ \begin{array}{l} 2\left[\left(\frac{\partial u_x}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial u_y}{\partial y}\right)^2 + \left(\frac{\partial u_z}{\partial z}\right)^2 \right] \\ + \left(\frac{\partial u_x}{\partial y}\right)^2 + \left(\frac{\partial u_x}{\partial z}\right)^2 + \left(\frac{\partial u_y}{\partial x}\right)^2 \\ + \left(\frac{\partial u_y}{\partial z}\right)^2 + \left(\frac{\partial u_z}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial u_z}{\partial y}\right)^2 \\ + 2\left[\frac{\partial u_x}{\partial y}\frac{\partial u_y}{\partial x} + \frac{\partial u_x}{\partial z}\frac{\partial u_z}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial z}\frac{\partial u_z}{\partial y} \right] \end{array} \right\} \tag{5.7}$$

avec u_x, u_x et u_x les vitesses résolues instantanées dans la direction x, y et z. En appliquant la même relation que dans l'équation 5.3, la moyenne de phase du taux de cisaillement est alors donnée par la relation :

$$\langle \dot{\gamma} \rangle_p = \sqrt{2 \langle S_{ij} : S_{ij} \rangle_p} \tag{5.8}$$

Ainsi, la contrainte de cisaillement est déterminée par :

$$\langle \tau_c \rangle_p = \mu \langle \dot{\gamma} \rangle_p \tag{5.9}$$

Enfin, le taux de dissipation totale, basé sur le taux de déformation des vitesses instantanées et résolues, est déterminé par :

$$\varepsilon = 2(\nu + \nu_t)(S_{ij} : S_{ij}) = \frac{\nu + \nu_t}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right)^2 \tag{5.10}$$

avec ν la viscosité cinématique du fluide et ν_t la viscosité de sous-maille. Le taux de dissipation totale prend en compte la dissipation associée à l'écoulement moyen, périodique et turbulent. En régime pleinement turbulent, l'énergie cinétique est majoritairement dissipée par la composante turbulente de l'écoulement (Escudié and Liné, 2003; Huchet et al., 2009). Toutefois, pour des régimes intermédiaires comme ceux rencontrés au sein du MD-NG de cette étude, la contribution de l'écoulement moyen et périodique sur la dissipation peut devenir non négligeable. Les termes sources des modèles de rupture étant basés sur la fonction de structure de second ordre, elle-même fonction du taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente, il est donc nécessaire de décomposer l'équation 5.10. D'après Hinze (1975), la dissipation de l'énergie cinétique turbulente est définie à travers les gradients de vitesses fluctuantes. Le taux de dissipation associé à la partie turbulente de l'écoulement [1], pour une position de pale θ donnée, s'écrit alors :

$$\varepsilon'_\theta = 2\nu(S'_{ij,\theta} : S'_{ij,\theta}) = \frac{\nu}{2} \left(\frac{\partial u'_{i,\theta}}{\partial x_j} + \frac{\partial u'_{j,\theta}}{\partial x_i} \right)^2 \tag{5.11}$$

Les vitesses fluctuantes turbulentes $u'_{i,\theta}$ sont déterminées à partir de la décomposition définie par l'équation 5.3. D'après les Figures 5.5 et 5.7, la contribution du modèle de sous-maille vis-à-vis du taux de dissipation total est faible, voire négligeable. Le taux de dissipation de l'écoulement turbulent est donc uniquement calculé à partir des vitesses fluctuantes turbulentes résolues. Par ailleurs, par analogie avec l'équation 5.3, le taux de dissipation turbulent moyen pour une position de pale fixe est calculé par la relation :

$$\langle \varepsilon'_\theta \rangle_p = 2\nu \left\langle S'_{ij,\theta} : S'_{ij,\theta} \right\rangle_p = \frac{\nu}{2} \left\langle \left(\frac{\partial u'_{i,\theta}}{\partial x_j} + \frac{\partial u'_{j,\theta}}{\partial x_i} \right)^2 \right\rangle_p \tag{5.12}$$

1. Il peux être noté que ε'_θ n'est pas rigoureusement égal à la contribution des fluctuations turbulentes de ε. En effet, S_{ij} et ε sont calculés par le logiciel M-Star directement à partir de la fonction de distribution des particules f, non accessible aux utilisateurs. Par conséquent, $\dot{\gamma}$ et ε'_θ ont été calculés par manipulation du taux de déformation S_{ij}, ce qui peut introduire des approximations. Néanmoins, les résultats restent cohérents à l'ordre de grandeur près (M-Star Simulations, 2025b).

5.2.4 Classification des écoulements et efficacité d'étirement

La classification des écoulements permet de définir un ou plusieurs paramètres capables de représenter les caractéristiques prédominantes d'un écoulement quelconque. Elle permet notamment de quantifier la capacité d'un écoulement donné à localement s'étirer ou à se déformer. Cette approche vise à caractériser finement un écoulement de la phase environnante, permettant une meilleure compréhension des mécanismes et l'élaboration de critères sur la rupture. D'après Astarita (1979), une méthode de classification doit satisfaire trois conditions : être locale, « objective » (indépendante du choix du référentiel), et applicable pour plusieurs types d'écoulements. Parmi les différents critères de classification proposés dans la littérature (Sanjuan-Galindo et al., 2015), l'approche développée par Chella and Ottino (1985) a été utilisée au cours de la thèse.

Cette dernière repose sur une description mathématique du gradient de vitesse. En effet, le gradient de vitesse peut être décomposé en une partie symétrique, le taux de déformation S_{ij}, et une partie antisymétrique Ω_{ij}, telles que :

$$S_{ij} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i}\right), \qquad \Omega_{ij} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{\partial u_j}{\partial x_i}\right). \tag{5.13}$$

avec u_i la vitesse instantanée dans la direction i. Le taux de déformation est lié à l'étirement local du fluide, tandis que la partie antisymétrique décrit la rotation. La méthode proposée par Chella and Ottino (1985) repose sur la diagonalisation du tenseur des taux de déformation (Olbricht et al., 1982). En projetant Ω_{ij} dans la base des vecteurs propres du taux de déformation (on notera cette projection Ω^S_{ij}), il est possible de déterminer le nombre de vorticité cinématique W_K^2 tel que :

$$W_K^2 = \frac{\omega^2}{\lambda_1^2 + \lambda_1\lambda_2 + \lambda_2^2} \tag{5.14}$$

avec λ_i les valeurs propres du taux de déformation S_{ij} et ω^2 définies comme :

$$\omega^2 = \left(\Omega^S_{12}\right)^2 + \left(\Omega^S_{13}\right)^2 + \left(\Omega^S_{23}\right)^2. \tag{5.15}$$

A partir de ce changement de repère, il est possible de calculer deux invariants de L, utilisés pour construire le diagramme proposé par Chella and Ottino (1985) :

$$\begin{cases} \mathrm{tr}(L^2) = \dfrac{1 - W_K^2}{1 + W_K^2} \\ \det(L) = -\dfrac{\lambda_1\lambda_2(\lambda_1 + \lambda_2) + (\lambda_1 + \lambda_2)\,\omega^2}{\left(\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 + 2\omega^2\right)^{3/2}}. \end{cases} \tag{5.16}$$

L représente le gradient de vitesse normalisé et n'est jamais explicitement calculé. Toutefois, il est défini par la relation suivante :

$$L = \frac{\nabla u}{\sqrt{\nabla u : \nabla u}} \tag{5.17}$$

Par ailleurs, les courbes d'efficacité sont déterminées à partir de l'efficacité d'étirement e^*_∞, et sont calculées par la relation :

$$\det(L) - \frac{(e^*_\infty)^3}{2^{3/2}}(1+\mathrm{tr}(L^2))^{3/2} + \frac{1}{2}\mathrm{tr}(L^2)\frac{e^*_\infty}{\sqrt{2}}\sqrt{1+\mathrm{tr}(L^2)} = 0 \tag{5.18}$$

5.2.5 Validation des simulations

Dans un premier temps, afin de vérifier la convergence temporelle des simulations, les puissances injectée (Eq. 1.4) et dissipée (Eq. 1.5) ont été suivies au cours du temps. D'après la Figure 5.5, le mélangeur atteint un régime pseudo-stationnaire à partir de 1 seconde de mise en rotation, soit 20 tours de pale, avec des puissances qui fluctuent autour d'une valeur moyenne. Par ailleurs, l'énergie est conservée car la puissance injectée est quasiment totalement dissipée par le liquide. Afin de valider les simulations, une tentative de mesure expérimentale de la puissance consommée par le moteur a été réalisée sur la base d'un suivi électrique. Toutefois, l'écart entre une mesure à vide et une mesure effectuée avec un fluide visqueux est du même ordre de grandeur que l'incertitude de la mesure. En effet, d'après Ascanio et al. (2004), l'estimation de la puissance consommée par mesure électrique est peu précise et, dans un appareil de laboratoire de petite taille, les pertes peuvent représenter jusqu'à 70 % de la puissance totale mesurée.

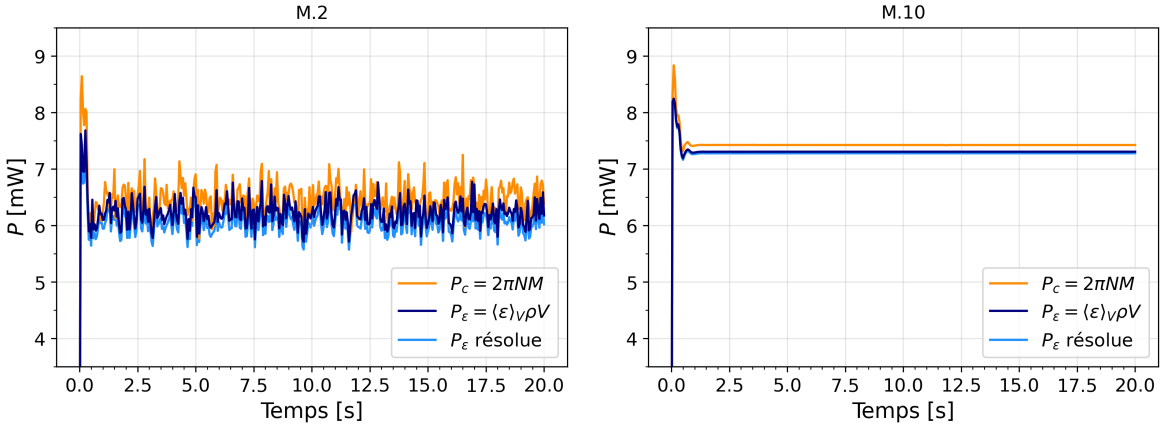


FIGURE 5.5 – Puissance injectée par la turbine P_c et puissance dissipée totale et résolue P_ε dans le liquide au cours du temps pour les phases continues M.2 (à gauche) et M.10 (à droite).

Ensuite, l'effet de la résolution du maillage a été évaluée. Une étude préliminaire de sensibilité au maillage a été réalisée à partir de trois maillages composés respectivement de $3{,}4\times10^6$ ($\Delta x = 146{,}7$ µm), $2{,}64\times10^7$ ($\Delta x = 73{,}3$ µm) et $1{,}63\times10^8$ mailles ($\Delta x = 40$ µm). Pour le cas M.2 (le plus turbulent), une erreur relative inférieure à 1 % a été obtenue sur la moyenne volumique du taux de dissipation totale entre les deux maillages les plus fins. Par ailleurs, la diminution de la taille des mailles d'un facteur deux augmente le temps de simulation d'un facteur dix. Ces résultats ont permis de valider l'utilisation du maillage

intermédiaire (Δx = 73,3 µm) lors des simulations, qui possède un bon compromis entre temps de calcul et précision.

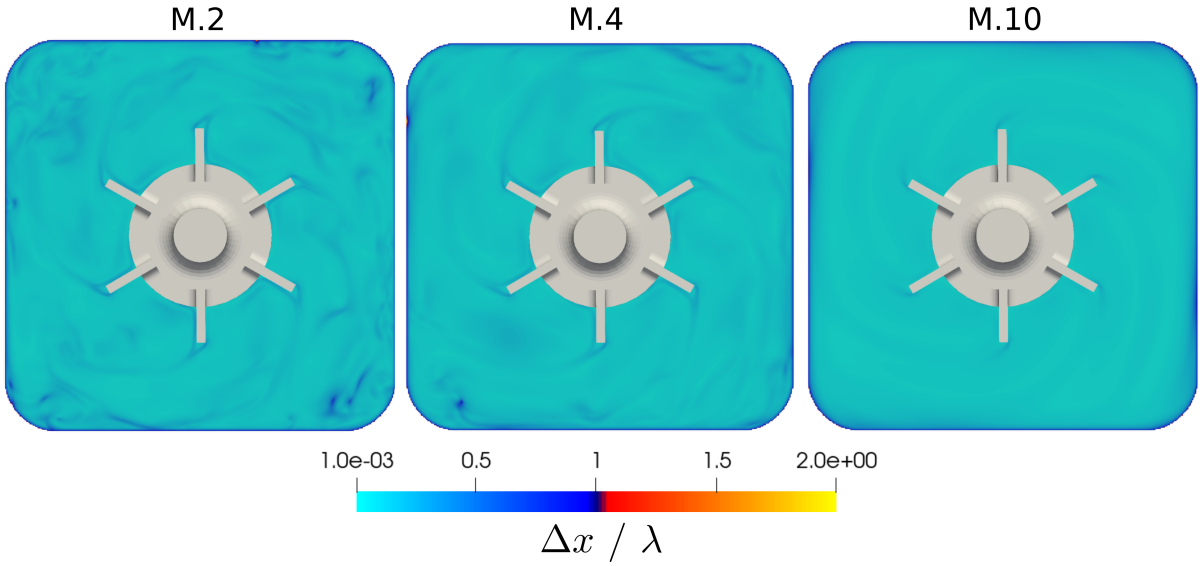


FIGURE 5.6 – Rapport entre la taille des mailles et l'échelle de Taylor λ pour les cas M.2, M.4 et M.10.

De plus, la Figure 5.6 présente le rapport entre la taille des mailles Δx et l'échelle de Taylor λ. Cette dernière a été calculée à partir de l'équation 1.14, avec k l'énergie cinétique totale et ε le taux de dissipation total. La micro-échelle de Taylor est une échelle intermédiaire, comprise entre l'échelle intégrale et l'échelle de Kolmogorov. Elle représente la dimension à partir de laquelle la viscosité commence à influencer la dynamique des tourbillons. D'après la Figure 5.6, quelle que soit la viscosité, la quasi-totalité du maillage possède une taille inférieure à l'échelle de Taylor. De plus, on observe que l'échelle de Taylor diminue lorsque la viscosité diminue, ce qui se traduit par une augmentation du rapport $\Delta x/\lambda$, tout en restant inférieur à 1. Ces résultats montrent que la résolution spatiale est suffisante pour capturer les structures tourbillonnaires les plus énergétiques : ces dernières sont directement résolues par le maillage, sans modélisation.

Par ailleurs, en utilisant les nombres de puissance N_p issus des simulations (Figure 5.9a), l'échelle de Kolmogorov moyenne est estimée à $\langle \eta \rangle_V$ = 70 µm pour M.2, 110 µm pour M.4 et 210 µm pour M.10, soit du même ordre de grandeur ou supérieur à la taille des mailles (Δx = 73,3 µm). De plus, les Figures 5.10 et 5.11 illustrent l'échelle locale de Kolmogorov dans une coupe verticale pour les phases continues M.2 et M.6. Pour M.6, l'échelle de Kolmogorov n'est inférieure à la taille des mailles qu'au voisinage des pales ($\eta \approx$ 50 µm), et reste du même ordre de grandeur dans le sillage et le long de la paroi. En revanche, pour M.2, l'échelle de Kolmogorov est inférieure à la taille des mailles sur une large portion de la zone de décharge, atteignant localement des valeurs environ trois fois plus faibles au contact des pales ($\eta \approx$ 25 µm).

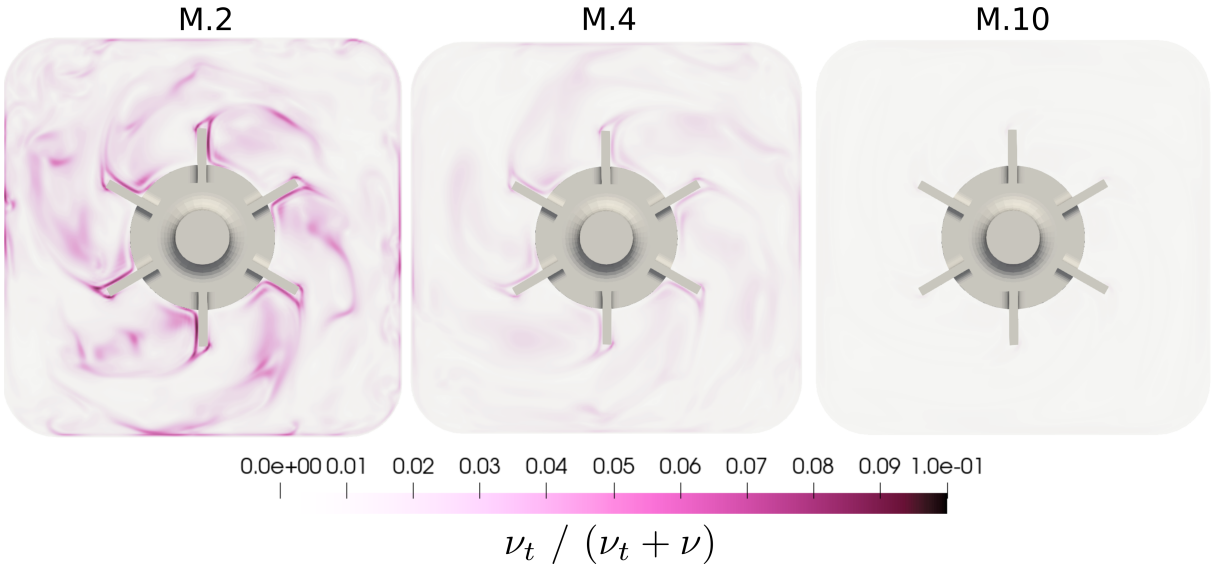
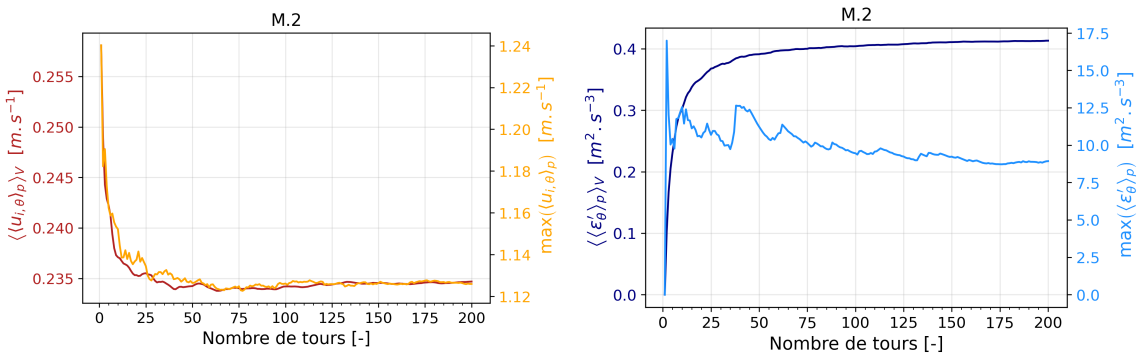


FIGURE 5.7 – Rapport entre la viscosité cinématique de sous-maille et la viscosité cinématique totale, en fonction de la viscosité de la phase continue pour les phases continues M.2, M.4 et M.10.

La Figure 5.7 présente le rapport entre la viscosité cinématique de sous-maille et la viscosité cinématique totale. L'objectif est de quantifier la contribution de la partie résolue et de sous-maille au taux de dissipation. On observe que l'influence du modèle de sous-maille diminue avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue. En effet, pour le cas M.2, la moyenne volumique du rapport $\nu_t/(\nu + \nu_t)$ est d'environ 0,0075, avec des valeurs maximales proches de 0,1 dans la zone de décharge, à proximité des pales. Pour M.4 et M.10, ces valeurs moyennes diminuent respectivement à 0,003 et 0,0008, tandis que les maxima atteignent 0,05 et 0,015. Ces résultats indiquent que la quasi-totalité du taux de dissipation est résolue directement par le maillage (en moyenne 99,25 % pour M.2 et jusqu'à 99,9 % pour M.10), et que la contribution du modèle de sous-maille à la dissipation totale est négligeable. Cela confirme les tendances déjà observées sur la Figure 5.5. Ainsi, les observations ci-dessus et les Figures 5.6 et 5.7 soulignent la grande qualité du maillage, proche d'une simulation DNS, avec la majeure partie de l'énergie et de la dissipation qui est résolue.

Enfin, la convergence des moyennes de phase a été vérifiée pour l'écoulement à plus faible viscosité (M.2). En effet, cette condition opératoire correspond au cas le plus turbulent, pour lequel l'écoulement moyen présente la convergence la plus lente. De plus, d'après la Figure 5.5, un régime pseudo-stationnaire est atteint à partir de 1 seconde de mise en rotation, soit 20 tours de turbine. Par mesure de sécurité, les moyennes de phase ont été calculées à partir de 10 secondes de rotation.

La Figure 5.8 indique qu'il faut environ 150 tours pour que les moyennes de phase atteignent une convergence statistique. En effet, à partir de 150 tours, l'écart entre les moyennes de phase de la vitesse devient inférieur à 0,2 %, tandis qu'il est de l'ordre de 2 % pour la moyenne du taux de dissipation turbulent. Il peut être noté que les moyennes



(a) (b)

FIGURE 5.8 – Convergence statistique des moyennes de phase pour le cas M.2 : évolution de la moyenne volumique et de la valeur maximale (a) de la vitesse de phase et (b) du taux de dissipation turbulente de phase.

de phase ont été réalisées pour chaque tour complet de la turbine, et non pas pour une position fixe de pale. La convergence est donc six fois plus lente (due aux six pales de la Rushton) que celle observée sur la Figure 5.5. De plus, en divisant par six le nombre de tours nécessaires à la convergence, on obtient 25 tours, soit une valeur comparable à celle calculée par Delafosse et al. (2009) pour la convergence des moyennes de phase. Ainsi, les moyennes de phase ont été réalisées à partir de 10 s de simulation, et sur 10 s de temps physique, soit 200 tours complets de turbine.

5.3 Résultats et discussion

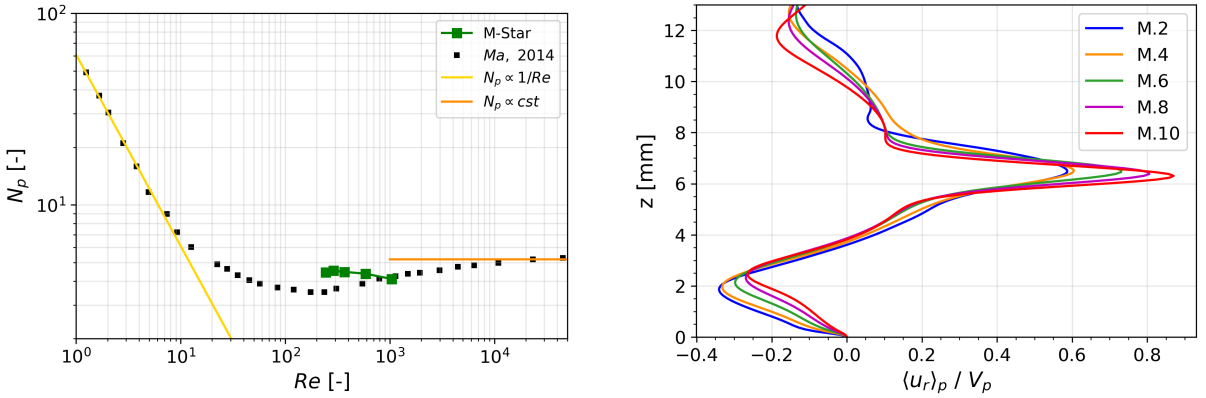
5.3.1 Régime d'écoulement et taille des gouttes

5.3.1.1 Identification du régime d'écoulement

Dans ce paragraphe, le régime d'écoulement du mélangeur a été analysé pour différentes viscosités de phase continue. L'écoulement au sein d'une cuve agitée est considéré comme laminaire pour un nombre de Reynolds inférieur à $10 - 100$, et comme turbulent pour un Reynolds supérieur à 10^4 (voir Eq. 1.2). Cependant, ces seuils proviennent d'études sur des cuves standards, en présence de contre-pales. Il est donc nécessaire de vérifier le régime d'écoulement au sein de notre géométrie spécifique, avec des nombres de Reynolds proches des bornes de transition de régimes ($200 < Re < 1300$).

Dans un premier temps, la variation du nombre de puissance N_p en fonction du nombre de Reynolds Re est présentée sur la Figure 5.9a. Le nombre de puissance a été calculé à partir de la puissance injectée par la turbine (voir Eq. 1.4) et moyenné entre 10 et 20 secondes. Ces valeurs sont comparées aux mesures expérimentales de Ma (2014) pour une turbine Rushton dans une cuve standard équipée de contre-pales.

En régime laminaire, N_p varie proportionnellement à $1/Re$, tandis qu'en régime turbulent, il devient indépendant de Re (Rueger and Calabrese, 2013; Roustan et al., 2023).



(a) (b)

FIGURE 5.9 – (a) Nombre de puissance N_p en fonction du nombre de Reynolds Re (comparé avec les données expérimentales de Ma (2014)) et (b) profils axiaux de vitesse radiale adimensionnée.

En comparant les nombres de puissance estimés sur M-Star et les données expérimentales de Ma (2014), le mélangeur d'étude semble se situer dans le régime de transition, sans relation claire entre N_p et Re (Figure 5.9a). Les écarts entre les résultats de la simulation et les données de Ma (2014) sont probablement dus aux différences géométriques entre les deux cas d'étude. Toutefois, il peut être noté que le nombre de puissance augmente légèrement avec la viscosité de la phase continue, passant de $N_p = 4{,}1$ pour M.2 à $N_p = 4{,}4$ pour M.10. Ces variations laissent penser que les effets visqueux ne sont plus négligeables sur cette plage de conditions opératoires.

Dans un second temps, les profils axiaux de vitesse radiale normalisée par la vitesse en bout de pale ont été comparés pour chaque valeur de viscosité (Figure 5.9b). Ce profil a été extrait à mi-distance entre l'extrémité de la pale et la paroi, soit à 8,5 mm du centre de la cuve. Il correspond à la moyenne de phase de la vitesse radiale, pour une position de pale perpendiculaire à la paroi. D'après Bittorf and Kresta (2000), en régime pleinement turbulent, la forme des profils de vitesse adimensionnée reste similaire quel que soit le fluide. En régime de transition, les forces visqueuses et inertielles influencent les profils de vitesse, et la similitude des profils n'est plus respectée. Dans un mélangeur similaire à celui étudié dans la thèse, de volume dix fois plus élevé ($1700 < Re < 5000$), Laine et al. (2023) avaient observé une superposition des profils adimensionnés, validant le régime turbulent de son écoulement.

Toutefois, d'après la Figure 5.9b, le profil des vitesses radiales adimensionnées semble dépendre de la viscosité de la phase continue, et donc du nombre de Reynolds. En effet, pour les mélanges M.2 ($Re = 1030$) et M.4 ($Re = 580$), les profils semblent légèrement se superposer, avec des vitesses dans le jet de la même intensité $\langle u_r \rangle_p = 0{,}6V_p$. En revanche, à partir de M.6, la vitesse maximale dans le jet augmente, atteignant jusqu'à $\langle u_r \rangle_p = 0{,}87V_p$ pour M.10 ($Re = 245$). Ces observations confirment que les régimes considérés ici ne sont pas pleinement turbulents, mais plutôt dans le régime de transition. L'écoulement est

donc influencé à la fois par les forces visqueuses et les forces inertielles. Il peut être noté que les profils axiaux nous rappellent l'écoulement radial généré par une turbine Rushton en cuve chicanée. En effet, on aperçoit les recirculations classiques de liquide avec des vitesses positives dans le jet et négatives en haut et en bas du centre de la turbine, pour $z = 2$ mm et $z = 12$ mm.

L'écoulement au sein du mélangeur se situe donc dans un régime de transition, entre les régimes laminaire et turbulent. Ce régime est difficile à caractériser, car aucune relation simple ne permet de le décrire. Pour analyser plus précisément les caractéristiques de ce régime, une triple décomposition de la vitesse a été réalisée dans le paragraphe 5.3.2, afin d'isoler la composante turbulente de l'écoulement (voir Eq. 5.3). Cette décomposition permettra une quantification plus précise du régime de l'écoulement en fonction de la viscosité de la phase continue.

5.3.1.2 Taille de goutte et domaine de la turbulence

La turbulence est gouvernée par le principe de la cascade d'énergie, selon lequel l'énergie cinétique est transférée des grandes échelles, où les effets inertiels prédominent (domaine inertiel), vers les plus petites, jusqu'à l'échelle de Kolmogorov η, où les effets visqueux deviennent dominants (domaine dissipatif ou visqueux). Selon leur taille, les gouttes peuvent se situer dans l'un ou l'autre de ces domaines, ce qui modifie la nature des contraintes hydrodynamiques exercées à leur surface (Boxall et al., 2012).

L'effet d'un changement de régime sur les tailles des gouttes associé à l'augmentation de la viscosité de la phase continue a déjà été observé dans la littérature (Boxall et al., 2012; Rueger and Calabrese, 2013; Carrillo De Hert and Rodgers, 2019). En effet, la viscosité de la phase continue influence directement le nombre de Reynolds et l'échelle de Kolmogorov. Bien que cela n'explique pas complètement le passage d'une distribution monomodale à bimodale, il a été suggéré dans le Chapitre 3 que ce changement de forme des distributions pouvait être potentiellement lié à une transition du domaine inertiel vers le domaine dissipatif. Cette hypothèse est explorée et discutée plus en détail au sein de ce paragraphe.

L'échelle de Kolmogorov locale a été comparée aux distributions de taille de gouttes mesurées en régime stationnaire issues du Chapitre 3. Les Figures 5.10 et 5.11 présentent ces comparaisons pour les phases continues organiques M.2 et M.6, respectivement. L'échelle de Kolmogorov a été calculée à partir de l'équation 1.9, en utilisant la moyenne de phase du taux de dissipation totale $\langle \varepsilon \rangle_p$. Trois régions caractéristiques de l'écoulement ont été considérées : (1) au contact de la turbine, (2) dans le jet et (3) dans la zone de recirculation supérieure. Les valeurs de l'échelle de Kolmogorov caractéristique dans ces trois régions ont été reportées sur les distributions de taille expérimentales. De plus, comme indiqué dans le Chapitre 4, les ruptures de gouttes sont observées uniquement dans la zone de décharge, tandis qu'aucune rupture n'est détectée dans la zone de recirculation. La taille des tourbillons dans la zone de recirculation est donc exposée uniquement de manière informative.

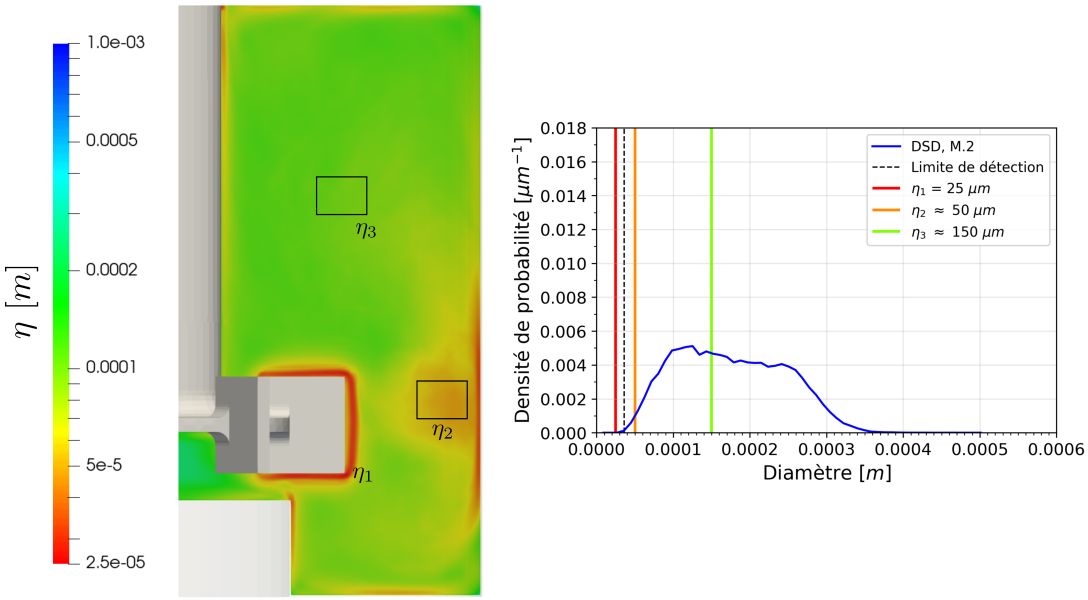


FIGURE 5.10 – Comparaison entre l'échelle de Kolmogorov locale η (à gauche) et la distribution de taille de gouttes en régime stationnaire (à droite) pour une viscosité de phase continue M.2.

D'après la Figure 5.10, pour la phase continue M.2, l'échelle de Kolmogorov présente une valeur minimale au contact des pales, avec $\eta_1 = 25$ µm. Cette valeur double dans le jet de la turbine et dans les sillages, atteignant $\eta_2 = 50$ µm, puis augmente progressivement jusqu'à environ 150 µm dans la zone de recirculation. La distribution de taille de gouttes obtenue pour M.2 montre que la majorité des gouttes possèdent donc une taille supérieure à l'échelle de Kolmogorov dans la zone de décharge. Ainsi, l'ensemble des gouttes possède une taille les plaçant dans le domaine inertiel de la turbulence : les contraintes qui induisent leur rupture sont principalement les contraintes inertielle turbulentes. Cela se traduit par une distribution relativement homogène entre les tailles comprises entre 100 et 300 µm.

Toutefois, l'augmentation de la viscosité de la phase continue d'un facteur trois (M.6) conduit à une augmentation de l'échelle de Kolmogorov locale, comme illustré sur la Figure 5.11. L'échelle de Kolmogorov au contact de la turbine et dans le jet augmente d'un facteur deux, atteignant respectivement $\eta_1 = 50$ µm et $\eta_2 = 100$ µm. Ainsi, une partie de la distribution obtenue avec M.6 se situe désormais dans le domaine dissipatif de la turbulence, avec des tailles inférieures à l'échelle de Kolmogorov. C'est notamment le cas pour la population des petites gouttes, caractérisée par un diamètre inférieur à 100 µm. A l'inverse, la population de « grosses » gouttes, uniformément répartie entre 150 et 350 µm, se situe dans le domaine inertiel ($d > \eta$). Cela met en lumière que les effets visqueux deviennent non négligeables par rapport aux effets inertiels. La transition de domaine coïncide avec la modification de la forme des distributions de taille, caractérisée par une augmentation significative du nombre de gouttes de tailles inférieures à 100 µm à partir de M.6.

Ainsi, les Figures 5.10 et 5.11 mettent en évidence l'une des explications possibles

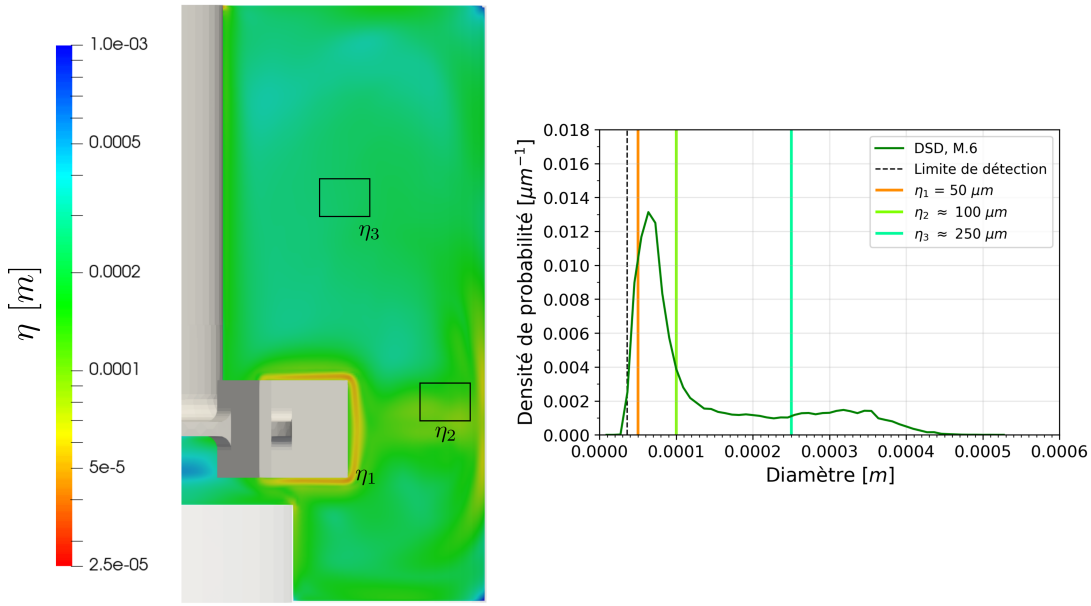


FIGURE 5.11 – Comparaison entre l'échelle de Kolmogorov locale η (à gauche) et la distribution de taille de gouttes en régime stationnaire (à droite) pour une viscosité de phase continue M.6.

du changement de mécanisme de rupture observé avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue (voir Chapitres 3 et 4). L'augmentation de la viscosité conduit à une augmentation locale de la taille des tourbillons, de sorte qu'une goutte de diamètre donné peut passer du domaine inertiel au domaine dissipatif. Dans le domaine inertiel, la taille des gouttes résulte d'une compétition entre les contraintes inertielles turbulentes, proportionnelles au taux de dissipation, et les forces interfaciales et/ou de viscosité internes (viscosité des gouttes). Dans ce cas, la taille des gouttes est indépendante de la viscosité de la phase continue. La taille des gouttes dans le domaine inertiel est bien documentée et s'appuie notamment sur la théorie de Hinze (1955) et Kolmogorov (1949). À l'inverse, les études portant sur la rupture dans le domaine dissipatif sont plus rares. Dans ce domaine, les contraintes visqueuses deviennent prépondérantes par rapport aux contraintes inertielles, et la taille des gouttes dépend à la fois du taux de dissipation et de la viscosité de la phase continue (Shinnar, 1961; Boxall et al., 2012; Rueger and Calabrese, 2013; Carrillo De Hert and Rodgers, 2019). Par ailleurs, lorsque la taille des gouttes devient comparable à l'échelle de Kolmogorov ($d \approx \eta$), les forces inertielles et visqueuses peuvent agir simultanément. Ainsi, l'augmentation de la viscosité de la phase continue modifie la nature des contraintes responsables de la rupture. De plus, comme observé dans le Chapitre 4, la taille des tourbillons par rapport à celle des gouttes joue un rôle déterminant dans la dynamique de rupture. Lorsque les tourbillons sont plus petits que les gouttes, ces dernières subissent des déformations locales. A l'inverse, lorsque les tourbillons deviennent plus grands, les gouttes sont déformées dans leur ensemble, favorisant leur allongement et modifiant la mécanique de leur rupture.

Enfin, il peut être noté que l'estimation de la fonction de structure d'ordre deux à

partir de la théorie de Kolmogorov n'est pas rigoureusement valide ici. En effet, à forte viscosité, les tailles de gouttes ne se situent plus entièrement dans le domaine inertiel de la turbulence. Ainsi, pour améliorer la modélisation des phénomènes de rupture avec une approche PBE, il serait nécessaire d'étendre la fonction de structure d'ordre deux à l'ensemble du spectre turbulent, comme proposé par Solsvik and Jakobsen (2016) et Castellano (2019).

5.3.2 Estimation des contraintes hydrodynamiques locales

5.3.2.1 Description de l'écoulement

Dans un premier temps, l'écoulement généré par la turbine Rushton dans le mélangeur est présenté dans un plan horizontal et vertical, respectivement sur les Figures 5.12 et 5.13. Le plan vertical a été extrait dans le plan d'une pale, et le plan horizontal au niveau du centre des pales de la turbine. Ces figures illustrent la norme de la vitesse de phase pour des viscosités comprises entre 2,2 et 9,9 mPa·s. Afin de faciliter la visualisation du graphique, les vecteurs vitesses sont affichés uniquement pour la phase continue M.10.

D'après la Figure 5.12, l'écoulement produit correspond, comme attendu, à celui produit par un agitateur radial (voir Figure 1.5). En effet, un jet radial horizontal est émis dans la zone de décharge, depuis l'extrémité des pales vers la paroi externe. Au contact de celle-ci, le jet se divise en deux parties, l'une ascendante et l'autre descendante, générant ainsi deux boucles de recirculation situées de part et d'autre du centre de la turbine : la première entre le tuyau d'aspiration et la paroi, et la seconde entre l'arbre d'agitation et la paroi. Cet écoulement génère un écoulement élongationnel important le long des parois, expliquant les ruptures typiquement observées dans le Chapitre 4, notamment à forte viscosité (M.10). De plus, l'écoulement produit est en accord avec les observations et les champs de vitesses recueillis dans la littérature, dans le cas d'un agitateur de type turbine Rushton (Lamberto et al., 1999; Hartmann et al., 2004b; Laurenzi et al., 2009; Li et al., 2011; Sanjuan-Galindo et al., 2015).

La Figure 5.12 montre que la norme de la vitesse au contact des pales est égale à $V_p = 0{,}75\ \mathrm{m \cdot s^{-1}}$. Par ailleurs, pour une faible viscosité, la norme de la vitesse dans le jet est légèrement plus faible, avec une valeur d'environ $0{,}5\ \mathrm{m \cdot s^{-1}}$ pour M.2, contre $0{,}75\ \mathrm{m \cdot s^{-1}}$ pour M.10. Cette tendance avait déjà été mise en évidence sur la Figure 5.9b. À l'inverse, dans les zones de recirculation, la norme de la vitesse est plus élevée pour M.2 que pour M.10. D'après la Figure 5.13, lorsque la viscosité augmente, le sillage des pales est plus allongé, mieux défini et se dissipe principalement dans la direction radiale. Pour les viscosités plus faibles, la zone du sillage apparaît au contraire plus courte, moins structurée mais avec des vitesses légèrement plus élevées. Ainsi, les fortes vitesses observées dans le jet pour les plus fortes viscosités (Figure 5.12) semblent attribuées à l'influence du sillage de la pale précédente.

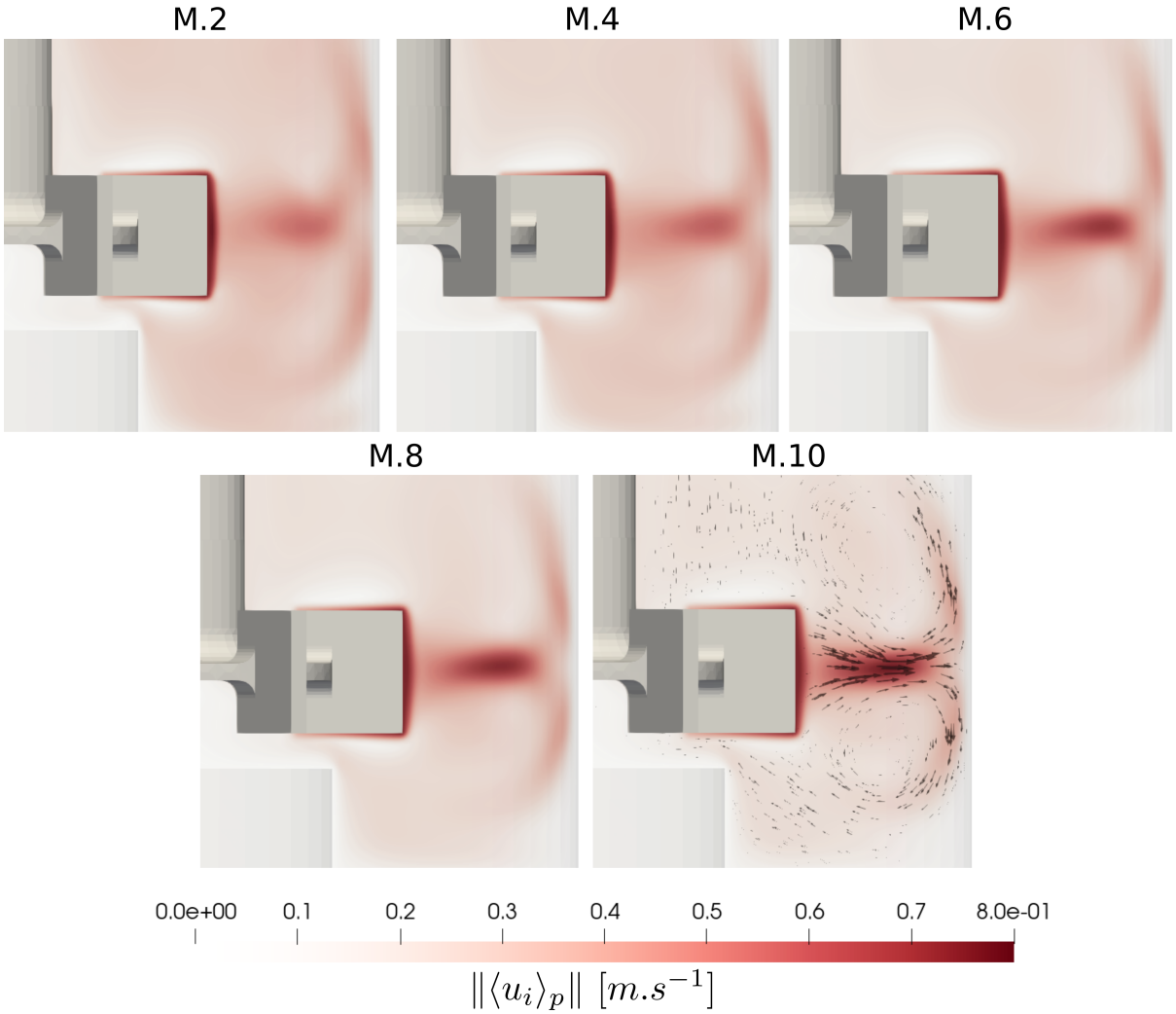


FIGURE 5.12 – Norme de la vitesse de phase dans une coupe verticale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue. Les vecteurs vitesses sont illustrés pour la phase continue M.10 uniquement.

5.3.2.2 Taux et contraintes de cisaillement

La moyenne de phase du taux de cisaillement est représentée sur un plan vertical et un plan horizontal sur les Figures 5.14 et 5.15. Sur ces figures, trois zones de fort cisaillement sont observées, quelle que soit la viscosité de la phase continue : (i) au contact des pales, (ii) dans le sillage des pales, et (iii) le long des parois, dans la région de la séparation du jet. A titre d'exemple, pour M.2, le taux de cisaillement maximal apparaît à proximité de la turbine, juste derrière les pales, avec une valeur de $\langle \dot{\gamma} \rangle_p = 4000$ s^{-1}. Les deux autres zones caractéristiques présentent des valeurs environ deux fois plus faibles, atteignant respectivement 2500 s^{-1} le long des parois (Figure 5.14) et 2000 s^{-1} dans le sillage des pales (Figure 5.15). En dehors de ces régions, les valeurs chutent fortement, avec des taux de cisaillement d'environ 500 s^{-1} entre deux sillages successifs et de 250 s^{-1} dans la zone de recirculation. Il en est de même pour la phase continue M.10, avec des taux de

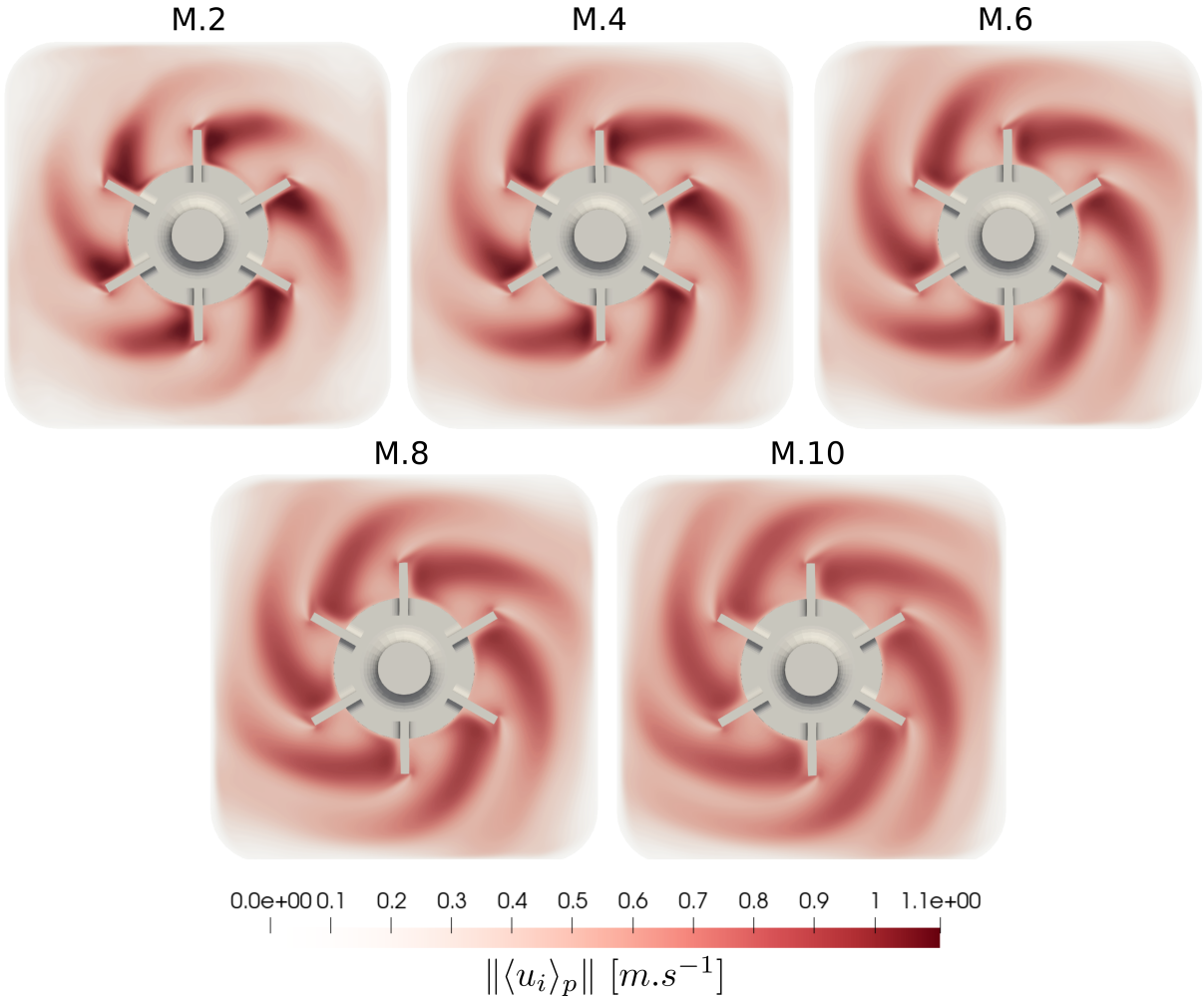


FIGURE 5.13 – Norme de la vitesse de phase dans une coupe horizontale XY en fonction de la viscosité de la phase continue.

cisaillement maximaux atteignant environ 3000 s^{-1} au contact des pales, 1500 s^{-1} le long des parois et 1000 s^{-1} dans le sillage. En revanche, entre deux sillages et dans la zone de recirculation, les valeurs sont nettement plus faibles, comprises entre 100 et 150 s^{-1}.

Ainsi, les résultats présentés sur les Figures 5.14 et 5.15 mettent en évidence que les phénomènes de rupture sont susceptibles de se produire dans la zone de décharge, et plus précisément dans trois régions localisées de la cuve. Ces zones correspondent à celles déjà identifiées dans le Chapitre 4. Toutefois, il apparaît que les gouttes sont soumises aux taux de cisaillement les plus élevés au contact des pales, quelle que soit la viscosité de la phase continue : cette région constitue donc la zone la plus propice à la rupture. Si peu de ruptures y ont été observées, cela peut s'expliquer, d'une part, par des limitations expérimentales liées à l'opacité des pales dans cette région, et d'autre part, par le caractère très localisé des fortes contraintes, qui réduit la probabilité d'interaction avec les gouttes. Par ailleurs, il n'est pas évident d'affirmer que ces foyers de fortes contraintes, très localisés spatialement, soient capables d'induire la rupture. En effet, les ruptures observées se

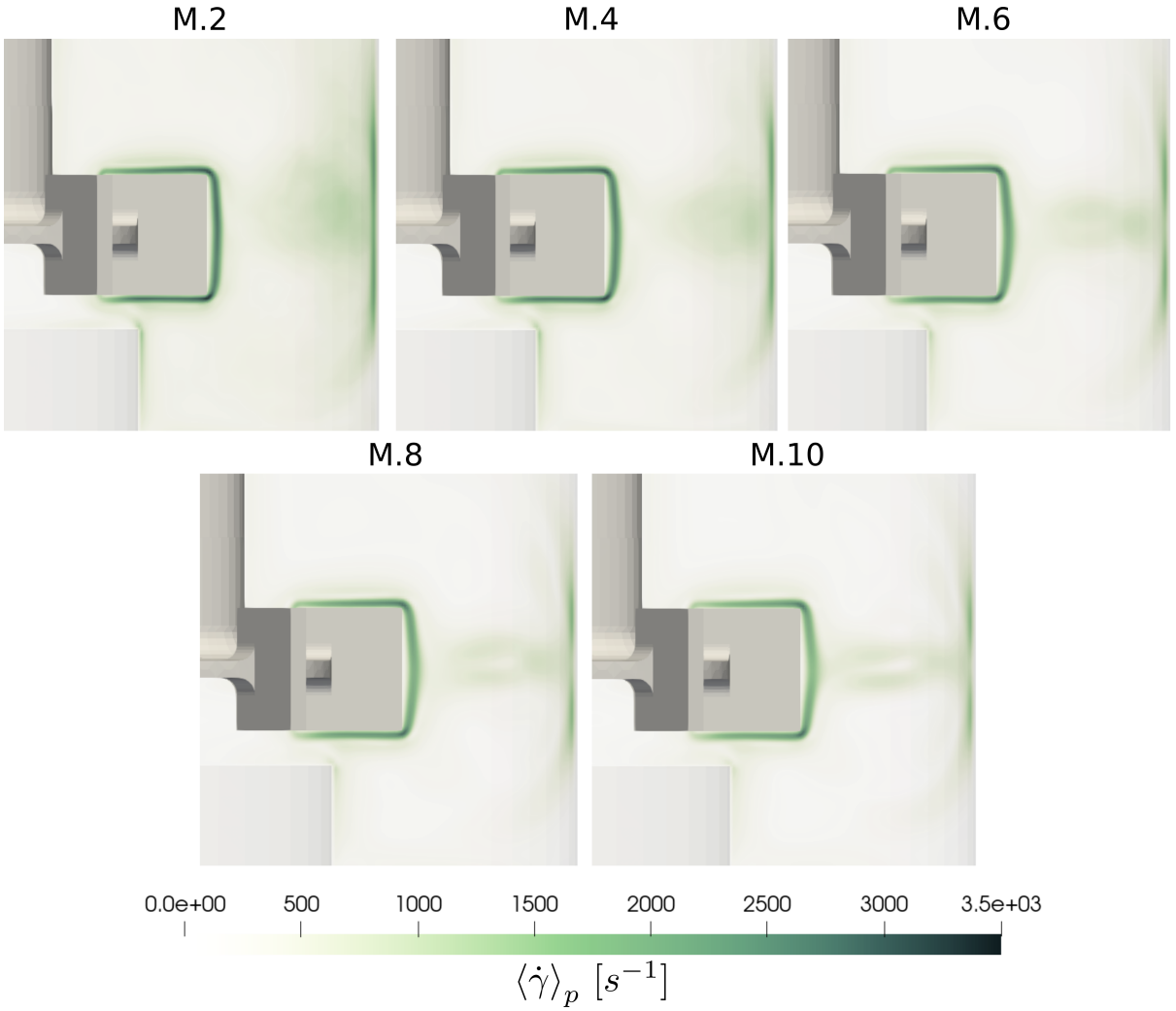


FIGURE 5.14 – Moyenne de phase du taux de cisaillement dans une coupe verticale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue.

produisent sur des zones beaucoup plus étendues (voir Chapitre 4), impliquant des gouttes qui se déforment de manière significative avant de rompre, pouvant atteindre jusqu'à vingt fois leur taille initiale (Andersson and Andersson, 2006b). L'écoulement le long des parois se révèle également favorable à la rupture, en raison des taux de cisaillement élevés qui y sont mesurés. Cette région, plus étendue, constitue ainsi la deuxième zone la plus intense du point de vue des contraintes. Le sillage des pales présente des caractéristiques similaires, mais des intensités légèrement inférieures. Il semblerait donc que ces deux zones favorisent la rupture des gouttes de « grand » diamètre, sans toutefois déterminer directement le diamètre maximal stable $d_{\max}$.

D'après les Figures 5.14 et 5.15, le taux de cisaillement diminue avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue. Toutefois, ce n'est pas directement le taux de cisaillement qui est la source de la rupture, mais plutôt les contraintes de cisaillement. Les distributions spatiales de ces contraintes, en fonction de la viscosité, sont donc présentées

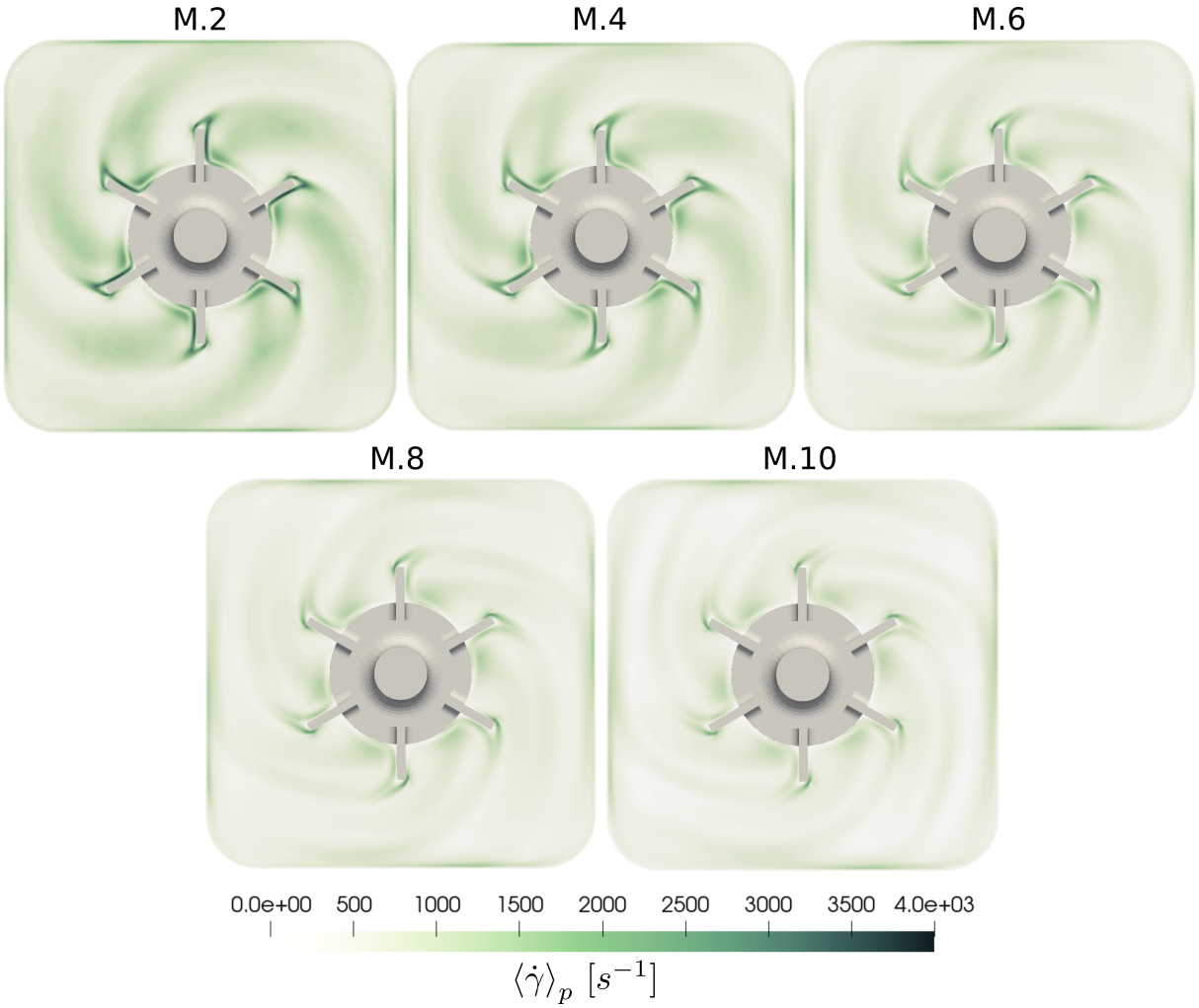


FIGURE 5.15 – Moyenne de phase du taux de cisaillement dans une coupe horizontale XY en fonction de la viscosité de la phase continue.

sur la Figure 5.16. Elles ont été calculées à partir de l'équation 5.9. Tout d'abord, les distributions spatiales des contraintes sont identiques à celles du taux de cisaillement, avec trois foyers de contraintes d'intensité élevée. Cependant, à l'inverse du taux de cisaillement, la contrainte de cisaillement augmente avec la viscosité. En effet, la moyenne volumique de la contrainte de cisaillement passe de 0,92 Pa pour M.2 à 1,53 Pa pour M.6, puis à 1,74 Pa pour M.10. La même tendance est observée pour les valeurs locales. Les maxima sont localisés aux coins extérieurs des pales de la turbine Rushton, avec des valeurs respectives de 28, 21 et 8 Pa pour des viscosités de 9,9, 6,5 et 2,2 mPa·s. Le long des parois, la contrainte de cisaillement diminue également avec la viscosité, passant de 16 à 12 puis à 5 Pa pour la même décroissance de viscosité.

5.3.2.3 Taux de dissipation turbulent

D'après les Figures 5.5 et 5.9a, le taux de dissipation total augmente légèrement avec la viscosité jusqu'à une valeur de 6 mPa·s, avant de se stabiliser. En effet, la valeur moyenne

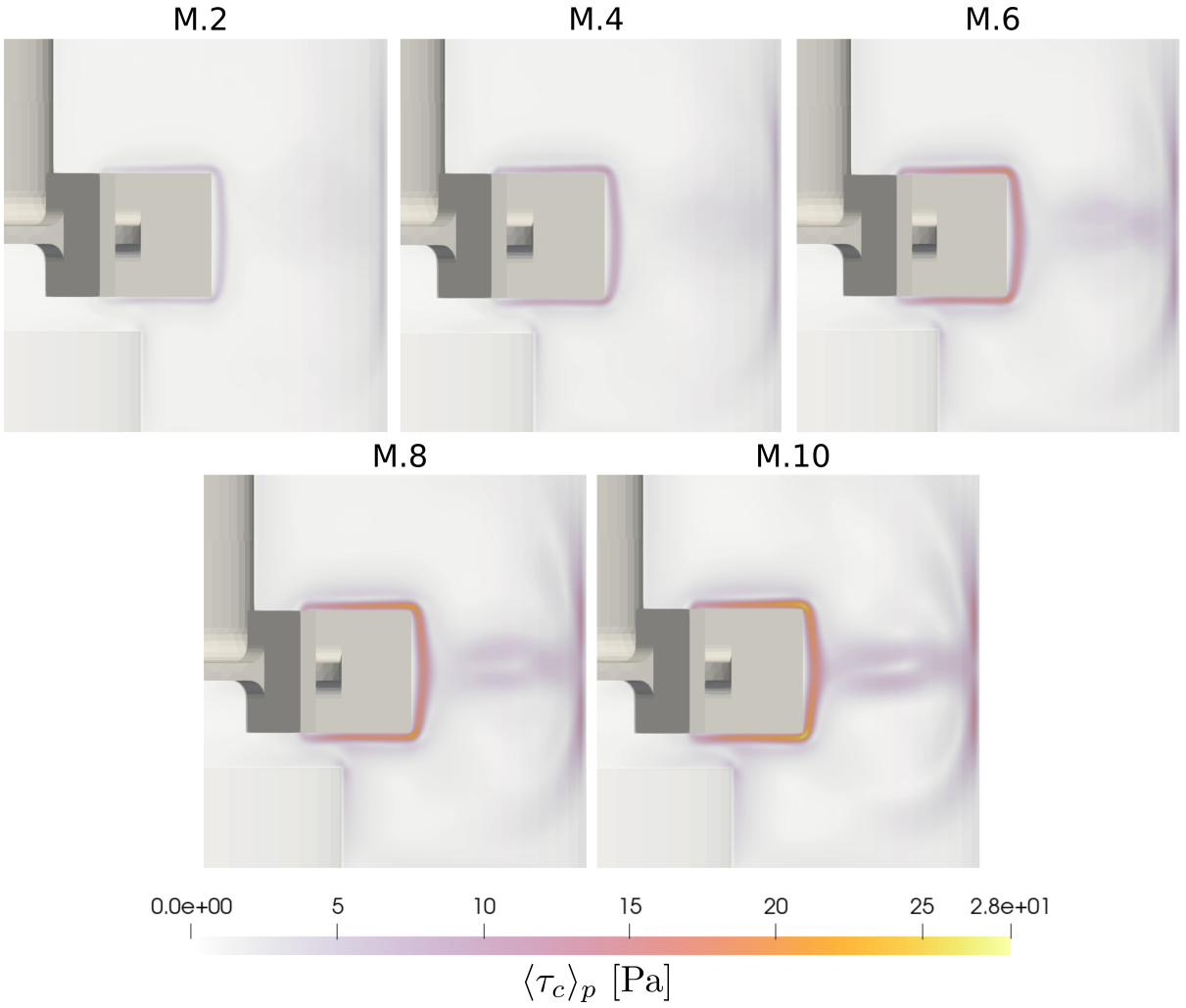


FIGURE 5.16 – Moyenne de phase de la contrainte de cisaillement dans une coupe horizontale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue.

du taux de dissipation totale passe de $\langle \varepsilon \rangle_V = 0{,}793$ m$^2 \cdot$s^{-3} pour M.2 à 0,877 m$^2 \cdot$s^{-3} pour M.6, et reste constante à 0,878 m$^2 \cdot$s^{-3} pour M.10. Cependant, le taux de dissipation total regroupe les contributions de l'écoulement moyen, des fluctuations périodiques dues au passage des pales et des fluctuations turbulentes. Selon les modèles de fermeture des approches PBE, la probabilité de rupture est liée à la fonction de structure d'ordre deux (Coulaloglou and Tavlarides, 1977). D'après la théorie de Kolmogorov, cette dernière s'exprime dans le domaine inertiel en fonction du taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente. Il est donc essentiel d'isoler la part de dissipation associée à la turbulence, afin d'estimer les contraintes inertielles turbulentes susceptibles de rompre les gouttes.

Les Figures 5.17 et 5.18 présentent la moyenne de phase du taux de dissipation turbulent dans les plans XZ et XY. Ce dernier a été calculé pour des viscosités comprises entre 2 et 10 mPa·s, à partir de l'équation 5.12. Les résultats montrent clairement que le taux de dissipation induit par les vitesses fluctuantes turbulentes décroît avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue. En effet, la moyenne volumique de $\langle \epsilon'_\theta \rangle_p$ passe de

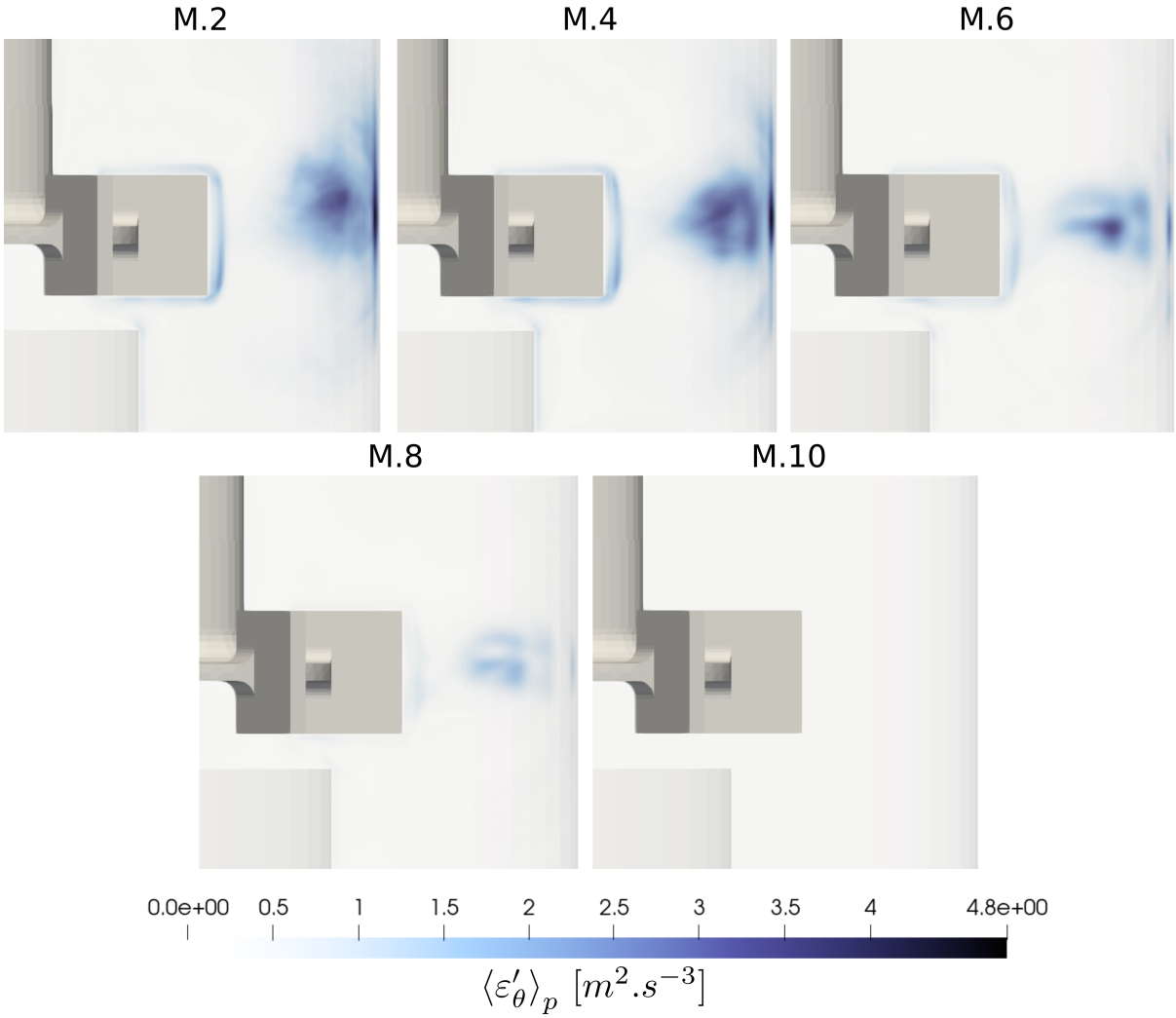


FIGURE 5.17 – Moyenne de phase du taux de dissipation turbulent dans une coupe verticale XZ en fonction de la viscosité de la phase continue.

0,41 $m^2 \cdot s^{-3}$ pour M.2 ($Re = 1030$), à 0,19 $m^2 \cdot s^{-3}$ pour M.6 ($Re = 365$), jusqu'à devenir totalement négligeable pour M.10 ($Re = 245$), avec une valeur moyenne de l'ordre de 10^{-8} $m^2 \cdot s^{-3}$. Cette diminution avec la viscosité est également observée pour les valeurs locales de $\langle \epsilon'_\theta \rangle_p$.

Ainsi, à partir d'une viscosité de $\mu = 10$ mPa·s ($Re = 245$), l'écoulement semble devenir très proche d'un écoulement laminaire : les fluctuations turbulentes deviennent négligeables, et l'écoulement est uniquement induit par les vitesses moyennes et périodiques dues au passage des pales. Ainsi, pour cette viscosité, les contraintes turbulentes sont négligeables, et aucune rupture n'est induite par des fluctuations de pression et de vitesse dues à une collision goutte-tourbillon. Les ruptures semblent uniquement produites par des contraintes de cisaillement visqueuses.

Ensuite, à l'image du taux de cisaillement, trois régions caractéristiques présentent des taux de dissipation turbulent élevés. Pour les phases continue M.2 et M.4, les valeurs

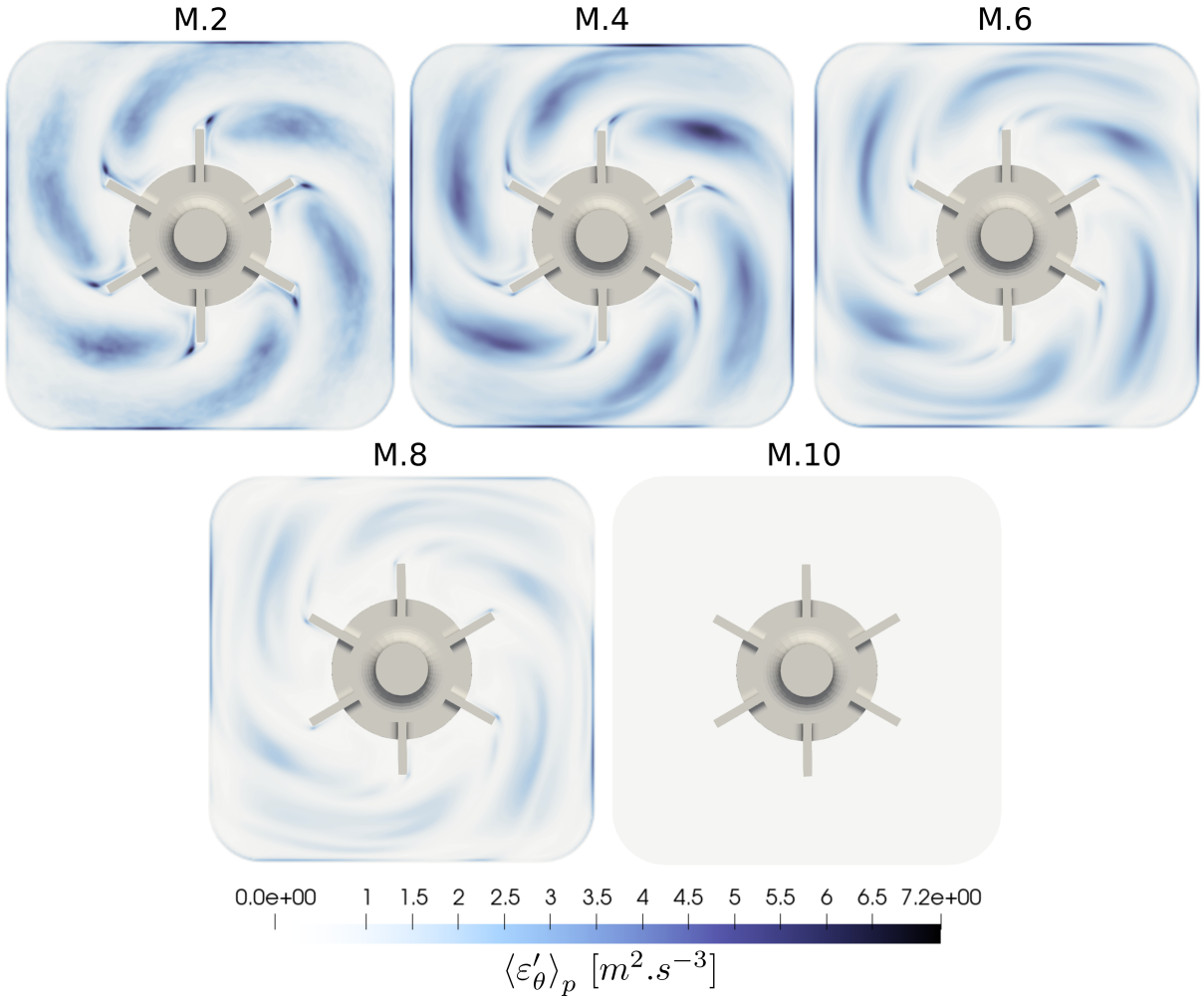


FIGURE 5.18 – Moyenne de phase du taux de dissipation turbulent dans une coupe horizontale XY en fonction de la viscosité de la phase continue.

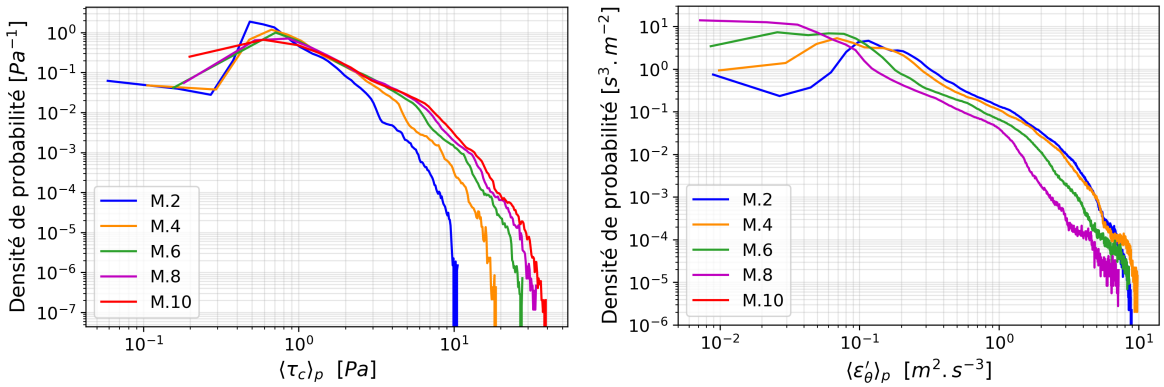
maximales de $\langle \varepsilon'_\theta \rangle_p$ atteignent environ 7,2 $m^2 \cdot s^{-3}$ au début et au cœur des sillages (Figure 5.18). Pour ces mêmes viscosités, le taux de dissipation turbulent diminue légèrement le long des parois, avec des valeurs mesurées jusqu'à 4,8 $m^2 \cdot s^{-3}$ (Figure 5.17). Cela est cohérent avec les observations de la littérature, où les valeurs maximales du taux de dissipation sont typiquement observées à l'intérieur des sillages (Escudié and Liné, 2003; Huchet et al., 2009; Delafosse et al., 2009). De plus, lorsque la viscosité augmente, en plus de diminuer en intensité, la dissipation d'énergie tend à se déplacer vers l'extrémité du sillage. En effet, les valeurs maximales du taux de dissipation turbulente pour M.6 et M.8 se trouvent en aval du sillage avec des valeurs respectives de 3,4 $m^2 s^{-3}$ et 2 $m^2 s^{-3}$. Au centre sillage et le long des parois, les valeurs sont deux fois plus faibles, avec $\langle \epsilon'_\theta \rangle_p = 2{,}5$ $m^2 \cdot s^{-3}$ mesuré pour M.6 et $\langle \epsilon'_\theta \rangle_p = 1$ $m^2 \cdot s^{-3}$ pour M.8 dans ces deux régions.

Ainsi, d'après les paragraphes 5.3.2.2 et 5.3.2.3, un changement clair de régime hydrodynamique de la phase continue apparaît. En effet, avec l'augmentation de la viscosité, les contraintes hydrodynamiques présentent des tendances opposées : les contraintes de ci-

saillement visqueuses augmentent tandis que le taux de dissipation des vitesses fluctuantes turbulentes diminue. Ce phénomène modifie la nature des contraintes responsables de la rupture et pourrait expliquer les raisons du changement du mécanisme de rupture (voir Chapitre 4) et l'augmentation significative du nombre de gouttes de diamètre inférieur à 100 µm (Chapitre 3). Bien que ces deux types de contraintes évoluent de manière inverse, il est actuellement difficile de quantifier précisément leur contribution respective au mécanisme de rupture, les deux pouvant agir simultanément. Néanmoins, pour la phase continue organique M.10, il est clair que la rupture est uniquement gouvernée par les contraintes de cisaillement.

5.3.2.4 Contraintes hydrodynamiques instantanées et moyennes

La densité de probabilité des contraintes moyennes de cisaillement $\langle \tau_c \rangle_p$ et du taux de dissipation turbulent moyen $\langle \varepsilon'_\theta \rangle_p$ sont illustrées sur les Figures 5.19a et 5.19b. Le volume de chaque maille étant rigoureusement identique, ces résultats sont représentés en densités de probabilité en nombre et seront utilisés a posteriori, pour les modèles de fermeture de bilan de population (Chapitre 6).



(a) (b)

FIGURE 5.19 – Densité de probabilité en fonction de la viscosité de la phase continue (a) des contraintes de cisaillement de phase et (b) du taux de dissipation turbulent de phase.

La Figure 5.19a met en évidence les mêmes tendances que celles observées sur les Figures 5.14 et 5.15 : l'intensité des contraintes de cisaillement augmente avec la viscosité de la phase continue. En effet, la contrainte maximale passe de 10,6 Pa pour M.2 à 27,8 Pa pour M.6, puis à 39,3 Pa pour M.10. Au-delà d'une contrainte de 7 Pa, la pente décroissante semble suivre des évolutions similaires quelle que soit la viscosité. Cela suggère que la viscosité de la phase continue influence principalement l'intensité des contraintes, sans modifier leur répartition spatiale. Pour des contraintes inférieures à 7 Pa, la tendance s'inverse, avec un nombre plus important de cellules avec des faibles cisaillements pour M.2 que pour M.10. Toutefois, ces cellules se situent dans la zone de recirculation, dans les coins arrondis du mélangeur ou sous la turbine, des régions non propices à la rupture,

où aucune n'a été observée dans le Chapitre 4 : au sein de ces régions, les contraintes de cisaillement ne semblent donc pas suffisantes pour surpasser les contraintes interfaciales.

La Figure 5.19b montre une tendance inverse à celle observée pour les contraintes de cisaillement, avec une diminution du taux de dissipation turbulent lorsque la viscosité augmente. Comme l'illustre également la Figure 5.9b, le taux de dissipation turbulent reste quasi indépendant de la viscosité pour M.2 ($Re = 1030$) et M.4 ($Re = 580$), suggérant que le régime s'approche d'un régime pleinement turbulent pour ces deux viscosités. Ce régime est caractérisé par un nombre de puissance constant avec le nombre de Reynolds, où $\langle \varepsilon \rangle_V \propto N^3 D^2$. D'après la Figure 5.19b, M.4 présente un plus grand nombre de cellules avec des valeurs de $\langle \varepsilon'_\theta \rangle > 7$ m^2·s^{-3} par rapport à M.2, avec une valeur maximale augmentant d'environ 1 m^2·s^{-3} entre ces deux viscosités. À partir de M.6 ($Re = 365$), les distributions volumiques de $\langle \varepsilon'_\theta \rangle$ deviennent dépendantes à la viscosité, avec une diminution progressive lorsque celle-ci augmente. En effet, les valeurs maximales du taux de dissipation passent de 8,9 m^{2}s^{-3} pour M.2 à 8,6 m^{2}s^{-3} pour M.6 puis à 7,2 m^{2}s^{-3} pour M.8. A partir de cette viscosité, les effets visqueux deviennent donc non négligeables. Enfin, pour M.10 ($Re = 245$), l'écoulement semble se confondre avec un écoulement laminaire, entraînant la disparition des fluctuations turbulentes. Le taux de dissipation turbulent devient négligeable, avec une valeur maximale estimée à $\langle \epsilon'_\theta \rangle = 10^{-4}$ m^2·s^{-3}.

Enfin, d'après les Figures 5.19a et 5.19b, les fortes contraintes de cisaillement et les taux de dissipation turbulente élevés sont très localisés dans la cuve. D'après les paragraphes 5.3.2.2 et 5.3.2.3, ces régions se trouvent principalement au contact des pales, dans leur sillage ou le long des parois. Toutefois, à l'échelle du mélangeur, ces zones représentent une fraction très réduite du volume, ce qui suggère que la rupture des gouttes s'effectue dans des zones particulièrement ciblées.

Toutefois, bien que ces distributions représentent localement toutes les contraintes que les gouttes peuvent rencontrer dans le mélangeur, ces dernières restent des distributions moyennées. La Figure 5.20 compare l'évolution temporelle des taux de cisaillement et de dissipation instantanées et moyennées. Les grandeurs ont été mesurées par une sonde en un point du mélangeur, situé à 1 mm de la paroi et à une altitude de 6,25 mm, correspondant au plan central des pales. Ce dernier correspond à une région typique de rupture : au centre du jet le long de la paroi. Le suivi temporel a été réalisé sur 10 secondes, ce qui représente 200 tours, et pour chaque tour complet de turbine, soit toutes les 0,05 secondes.

Pour la phase continue M.2, le taux de cisaillement instantané oscille autour de la moyenne de phase au cours du temps, et peut atteindre jusqu'à 2,6 fois le taux de cisaillement moyen. De manière similaire, le taux de dissipation turbulent peut atteindre jusqu'à 6 fois la valeur moyenne. Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux rapportés par Huchet et al. (2009), qui ont montré que le taux de dissipation instantané pouvait atteindre jusqu'à 10 fois la moyenne statistique.

Les écarts entre les valeurs instantanées et moyennes sont de plus en plus faibles avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue, ce qui concorde avec les écoulements de moins en moins turbulents qui sont observés. En effet, pour la phase continue M.8,

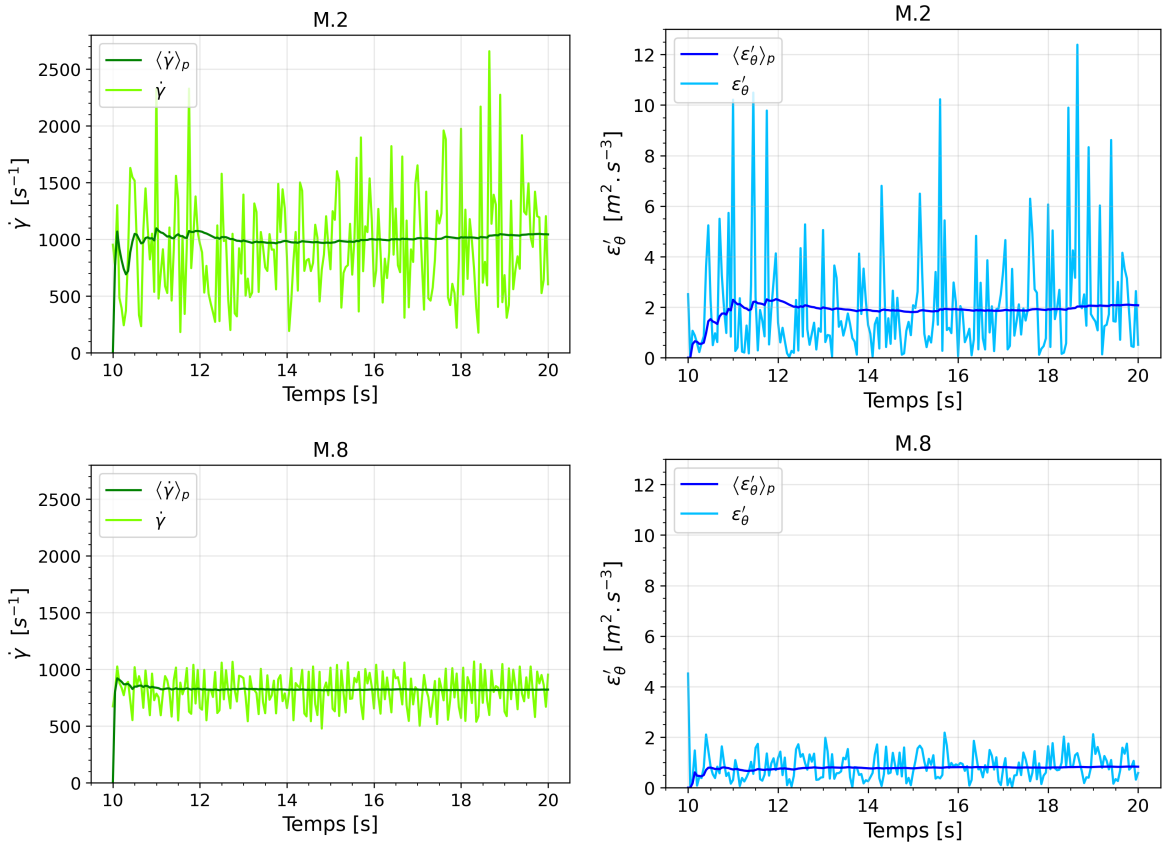


FIGURE 5.20 – Évolution temporelle du taux de cisaillement et de dissipation turbulente instantanés et moyennés en un point local du mélangeur pour les phases continues respectives M.2 et M.8.

le taux de cisaillement instantané est ponctuellement supérieur à la moyenne de 30 %, tandis que pour le taux de dissipation, les grandeurs instantanées n'excèdent pas 60 % de la moyenne.

Ainsi, la Figure 5.20 souligne que, même lorsque les contraintes hydrodynamiques sont estimées localement, une goutte peut être ponctuellement soumise à des contraintes bien supérieures à celles déterminées. Cette observation peut expliquer les temps de convergence importants des DSD mesurés dans le Chapitre 3, où chaque goutte doit avoir rencontré la contrainte hydrodynamique maximale afin de passer au-dessous de $d_{\max}$. Cependant, ces contraintes maximales sont, d'une part, très localisées spatialement et, d'autre part, ponctuelles dans le temps. De plus, il est difficile d'associer ces fortes déviations de la moyenne aux passages des pales, puisque chaque point de la figure a été extrait sur un tour complet de la turbine. Toutefois, cela confirme le caractère fortement fluctuant des écoulements en cuve agitée.

Afin d'obtenir une estimation plus représentative des contraintes hydrodynamiques rencontrées par les gouttes dans le mélangeur, il aurait été nécessaire d'extraire les taux de cisaillement et de dissipation pour plusieurs positions de pales et sur plusieurs tours.

Cependant, cette démarche est très lourde, puisqu'elle nécessite de décomposer la vitesse (voir Eq. 5.3) pour plusieurs positions de pale.

5.3.3 Caractérisation de l'écoulement le long des parois

Le Chapitre 4 a mis en évidence un nombre significatif de ruptures induites par l'écoulement élongationnel le long de la paroi, notamment pour des phases continues organiques visqueuses. Ce type de mécanisme n'a, à notre connaissance, jamais été rapporté dans la littérature en cuve agitée. Ainsi, l'écoulement dans cette région spécifique a été analysé plus en détail afin d'avoir une compréhension fine des mécanismes de rupture s'y déroulant. Pour cela, la méthode de la classification des écoulements proposée par Chella and Ottino (1985) a été utilisée. Cette dernière est détaillée dans le paragraphe 5.2.4.

Chella and Ottino (1985) proposent une méthode de classification des écoulements en déterminant les invariants de L et de les représenter dans un graphique (voir Figures 5.24, 5.23 et 5.25). Les contours noirs de ces figures délimitent le domaine accessible de l'écoulement. Une ligne horizontale caractérisée par $\mathrm{tr}(L^2) = \mathrm{cst}$ correspond à une valeur fixe de W_K^2. Ainsi, la partie supérieure du graphique donnée par $\mathrm{tr}(L^2) = 1$ représente un écoulement purement irrotationnel, c'est-à-dire élongationnel, tandis que la partie inférieure correspond à une rotation pure. De plus, la région supérieure gauche du domaine est associée à une extension biaxiale, alors que la région supérieure droite traduit une extension uniaxiale (Olbricht et al., 1982). En chaque point du graphique, il est possible d'associer une efficacité d'étirement e_∞^*. Les iso-valeurs de $e_\infty^* = 1/\sqrt{2}$ et $e_\infty^* = 1/\sqrt{6}$ sont présentées sur les diagrammes d'Ottino ci-dessous. L'efficacité d'étirement est maximale dans la zone supérieure droite du graphique, avec $e_\infty^* = \sqrt{2/3}$, et nulle au centre, lorsque $\det(L)$ et $\mathrm{tr}(L^2)$ s'annulent. Pour une valeur de $\mathrm{tr}(L^2)$ constante, le maximum d'efficacité se trouve le long de la partie droite du domaine accessible, et diminue jusqu'au centre du graphique.

La zone d'étude est illustrée sur la Figure 5.21 dans les plans XZ et XY. Elle est située le long de la paroi, au centre d'une face du mélangeur. Sa hauteur correspond à celle des pales (W), sa longueur radiale est de 500 µm (soit 2,3 % de T), et sa largeur de 1 mm (soit de $2e$). Afin d'appliquer la méthode, les gradients de vitesse ont été extraits de cette région toutes les 2,5 ms. À cette fréquence, les pales effectuent une rotation de 18°.

Dans un premier temps, la norme des vitesses instantanées de la phase continue M.10 pour six positions de pale est présentée sur la Figure 5.22. Ces positions correspondent à une rotation d'un quart de tour d'une pale, surlignée en jaune sur la figure. Cela permet notamment d'étudier l'écoulement élongationnel près de la paroi en fonction de la position du sillage au cours de la rotation. La région d'intérêt est représentée par un cadre noir. D'après la Figure 5.22, deux cycles de sillage successifs sont observés au sein de la zone d'étude. Ces sillages sont générés à la fois par la pale initialement perpendiculaire à la paroi et par la pale située en amont. Pour $\theta = 18°$ et $\theta = 72°$, le sillage commence à interagir avec la paroi, tandis que pour les positions $\theta = 36°$ et $\theta = 90°$, la zone d'étude coïncide

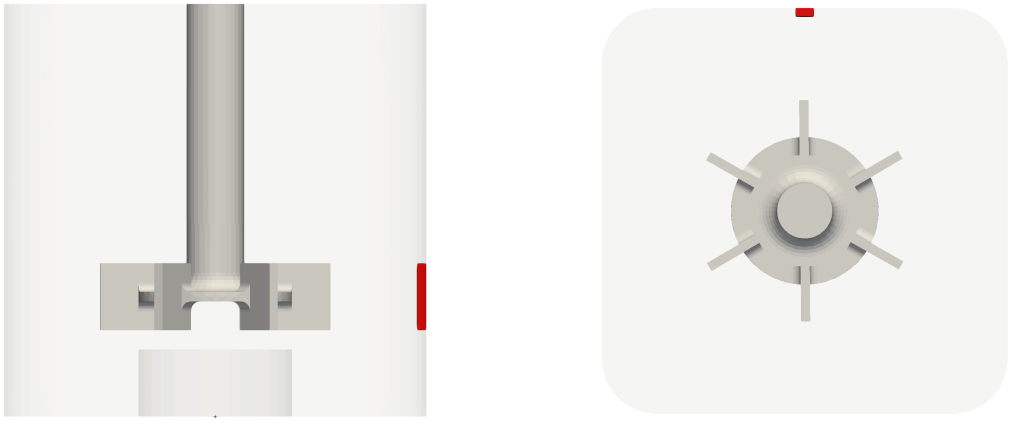


FIGURE 5.21 – Zone de l'écoulement caractérisé par la méthode proposée par Chella and Ottino (1985).

avec le passage de la fin du sillage. Enfin, les positions $\theta = 0°$ et $\theta = 54°$ correspondent à un intervalle entre deux sillages consécutifs.

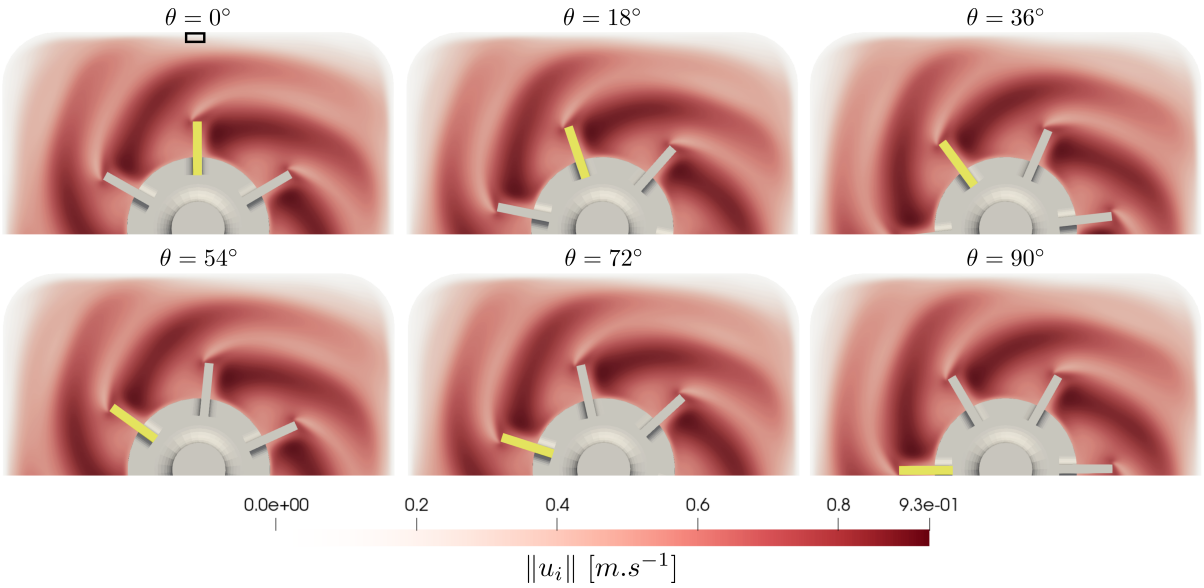


FIGURE 5.22 – Norme de la vitesse instantanée pour des positions de la pale comprises entre $\theta = 0°$ et $\theta = 90°$ et pour une phase continue organique M.10.

Les diagrammes d'Ottino pour les six positions de pale définies précédemment sont présentés sur la Figure 5.23. Chaque point est colorié en fonction de sa position verticale z, le centre des pales se situant à une hauteur de 6,25 mm. La figure révèle la périodicité de l'écoulement dû au passage des pales, avec des diagrammes similaires pour les couples de positions ($\theta = 0°$, $54°$), ($\theta = 18°$, $72°$) et ($\theta = 36°$, $90°$). Par ailleurs, aucune variation notable ni sur le type d'écoulement ni sur l'efficacité d'étirement n'est observée selon la position du sillage.

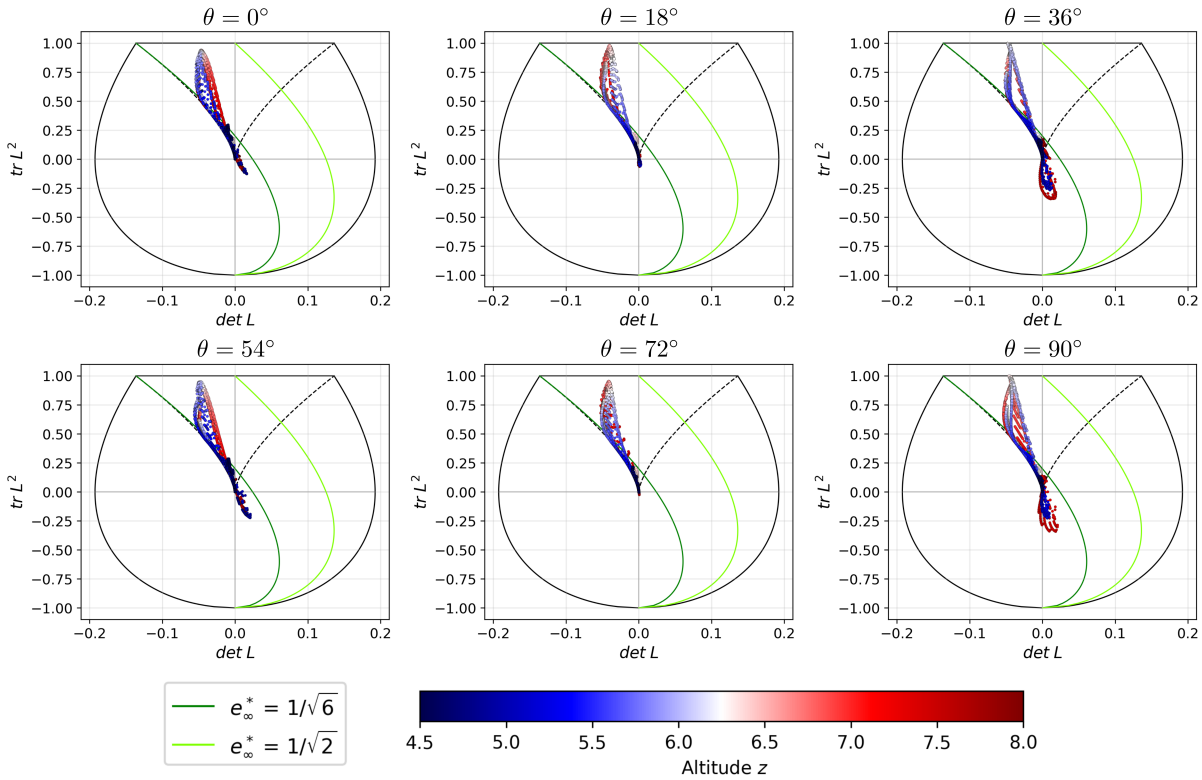


FIGURE 5.23 – Diagramme d'Ottino pour des positions de la pale allant de $\theta = 0°$ à $\theta = 90°$ obtenu pour la phase continue organique M.10.

La Figure 5.23 montre également que l'élongation est maximale au centre du jet (z = 6,25 mm), où le comportement tend vers celui d'une élongation pure. Par ailleurs, l'écoulement de part et d'autre du centre du jet est globalement symétrique, avec des points bleu et rouge de même intensité qui se superposent. Les points situés à proximité du centre du diagramme (lorsque $\mathrm{tr}(L^2)$ et $\det(L)$ sont proches de zéro) correspondent aux zones au contact de la paroi, où les vitesses et l'efficacité d'étirement sont nulles.

Le diagramme d'Ottino démontre que l'écoulement dans la zone d'intérêt est majoritairement élongationnel et biaxial. Cela est cohérent d'une part, avec l'écoulement radial caractéristique d'une turbine Rushton, et d'autre part, avec les champs de vitesse présentés sur la Figure 5.12. Le jet se sépare respectivement de haut en bas au contact de la paroi, ce qui correspond à un premier axe d'extension verticale, tandis que la rotation de la turbine génère un second axe dans la direction orthoradiale. Par ailleurs, un léger mouvement de rotation apparaît pour certaines positions de pale, notamment entre deux cycles de sillage et en aval du sillage.

Enfin, les points du diagramme sont majoritairement positionnés le long d'une efficacité d'étirement modérée, de l'ordre de $e^*_\infty = 1/\sqrt{6}$. Cette observation met en évidence deux points majeurs. Premièrement, bien qu'un nombre significatif d'événements ait été observés dans cette région pour des viscosités élevées (voir Chapitre 4), l'écoulement le long de la paroi ne semble pas être le plus efficace pour induire la rupture. Cette zone

génère des contraintes suffisamment intenses pour causer la rupture de gouttes de relativement « gros » diamètres, au moment de leurs injections. Toutefois, l'écoulement à la paroi ne semble pas être la région la plus efficace à la rupture, celle qui déterminera notamment le diamètre maximal stable $d_{\max}$. C'est typiquement ce qui a été observé sur les Figures 5.14 et 5.15, qui démontrent que cette zone ne représente que le second foyer de taux de cisaillement. Deuxièmement, il convient de noter que le diagramme d'Ottino n'est peut-être pas l'outil le plus adapté pour analyser les phénomènes de rupture dans ces conditions. En effet, cette représentation est très locale, à l'échelle de la maille ($\Delta x = 73{,}3$ µm), alors que les phénomènes de rupture s'étendent généralement sur des zones bien plus larges. En effet, avant de rompre, les gouttes subissent des déformations significatives (voir Chapitre 4), pouvant aller jusqu'à 20 fois leur taille initiale (Andersson and Andersson, 2006b). Par ailleurs, les diamètres maximaux stables (diamètre à partir duquel il n'y a plus de rupture pour un système donné) obtenus dans le Chapitre 3 sont de l'ordre de 400 µm, ce qui est bien supérieur à la taille des mailles.

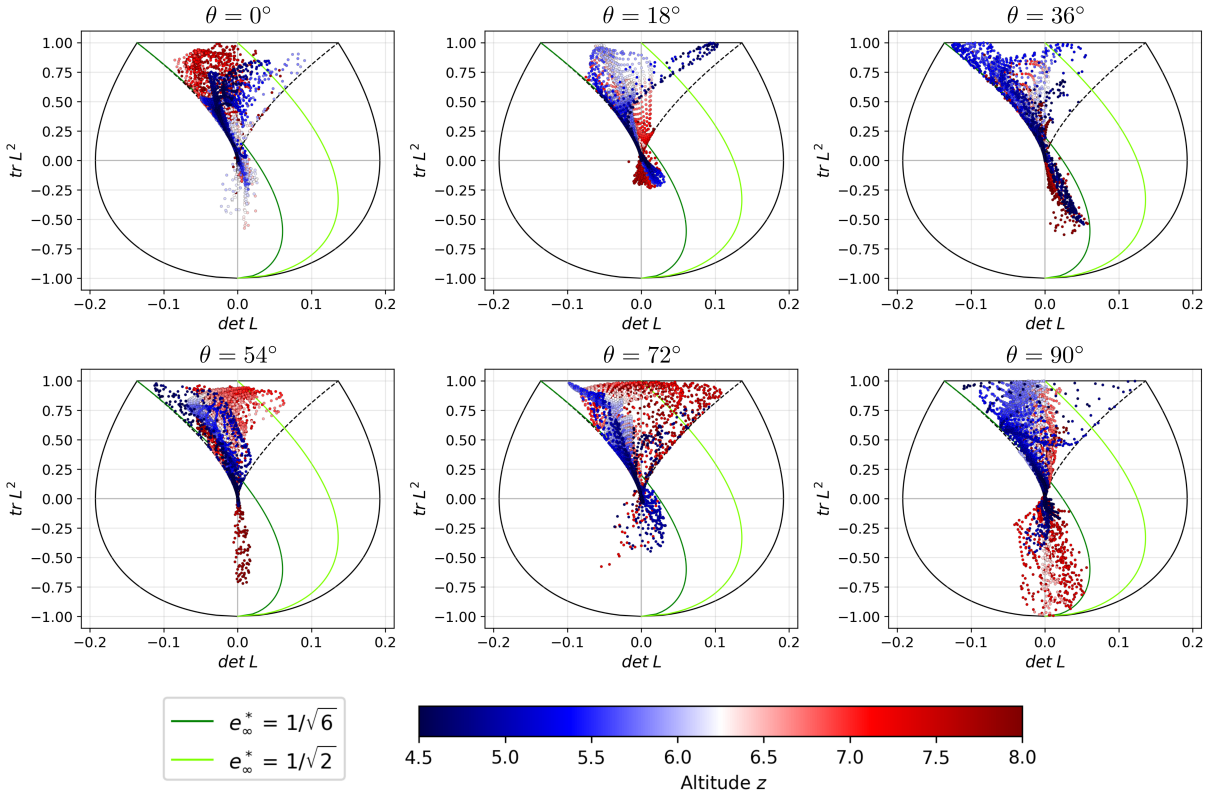


FIGURE 5.24 – Diagramme d'Ottino pour des positions de la pale allant de $\theta = 0°$ à $\theta = 90°$ obtenu pour la phase continue organique M.2.

La Figure 5.24 présente un diagramme similaire pour la phase continue organique M.2. L'écoulement observé dans ce cas apparaît nettement plus turbulent, désordonné et instationnaire que celui obtenu pour M.10. En effet, les points sont plus dispersés sur le diagramme d'Ottino. Ces observations sont en cohérence avec les Figures 5.17 et 5.18, qui démontrent que l'écoulement est bien plus fluctuant et instationnaire pour M.2 que

pour M.10. De plus, les cycles associés aux passages des pales sont moins répétables, avec des différences notables observées entre les couples de positions ($\theta = 0°$, $54°$), ($\theta = 18°$, $72°$) et ($\theta = 36°$, $90°$). Cette observation peut s'expliquer par le fait que les couples de positions ne sont pas rigoureusement identiques, avec un décalage de $6°$. Contrairement à M.10, pour une phase continue organique M.2, le type d'écoulement et son efficacité semblent dépendre de la position du sillage.

Même si l'analyse de l'écoulement pour la phase continue M.2 est plus complexe que pour M.10, l'écoulement est tout de même majoritairement élongationnel, avec un grand nombre de points caractérisés par des valeurs de $\mathrm{tr}(L^2)$ positives et proches de un. Toutefois, contrairement à M.10, cet écoulement élongationnel apparaît asymétrique, avec des valeurs de $\mathrm{tr}(L^2)$ et de $\det(L)$ différentes pour des zones de même intensité de couleur mais de position verticale opposée. Par ailleurs, pour la position de pale $\theta = 90°$, on observe un mouvement de rotation important. Ce comportement peut être attribué à l'intensification de la turbulence lorsque la viscosité de la phase continue diminue, ce qui favorise la formation de structures tourbillonnaires.

D'après la Figure 5.24, l'efficacité d'étirement au voisinage des parois est plus élevée pour la phase continue M.2 que pour M.10. En effet, les points du diagramme se situent plus près de la partie supérieure droite du graphique, caractérisée par une efficacité d'étirement maximale. Ce comportement est particulièrement marqué pour les positions de pales $\theta = 18°$ et $\theta = 72°$, où plusieurs points atteignent des valeurs supérieures à $1/\sqrt{2}$. Ainsi, même si un nombre moins important de ruptures a été observé le long de la paroi pour les faibles viscosités, l'écoulement semble beaucoup plus propice à la rupture pour M.2 que pour M.10.

Pour la phase continue M.2, les contraintes de cisaillement et turbulentes apparaissent suffisantes pour induire la rupture des gouttes situées à proximité des pales et dans leur sillage (voir Figure 5.18). Lorsqu'elles atteignent la paroi, ces gouttes présentent un diamètre plus faible, rendant leur rupture plus difficile en raison de forces interfaciales plus importantes. À l'inverse, pour M.10, les contraintes turbulentes deviennent négligeables, et la rupture est principalement induite par le cisaillement visqueux. Les contraintes hydrodynamiques totales étant plus faibles, la rupture est moins fréquente. Les gouttes conservent ainsi un diamètre plus important lorsqu'elles atteignent la paroi, ce qui accroît la probabilité de rupture à cet endroit. Ce comportement est cohérent avec les observations expérimentales du Chapitre 4, où un nombre de ruptures environ trois fois plus élevé a été mesuré pour M.2 que pour M.10, à conditions d'injection et de visualisation identiques. Cela souligne que les conditions hydrodynamiques sont plus efficaces vis-à-vis de la rupture pour les faibles viscosités de phase continue que pour les plus élevées.

Par ailleurs, les conclusions présentées sur la Figure 5.24 doivent être nuancées en raison d'une seconde limite du diagramme d'Ottino : ce dernier évalue l'efficacité d'étirement à partir des gradients de vitesse normalisés, sans prendre en compte les effets visqueux. Cela est typiquement illustré sur les Figures 5.14 et 5.16. En effet, le taux de cisaillement (c'est-à-dire les gradients de vitesse) diminue lorsque la viscosité augmente, alors que les contraintes de cisaillement, quant à elles, augmentent avec la viscosité.

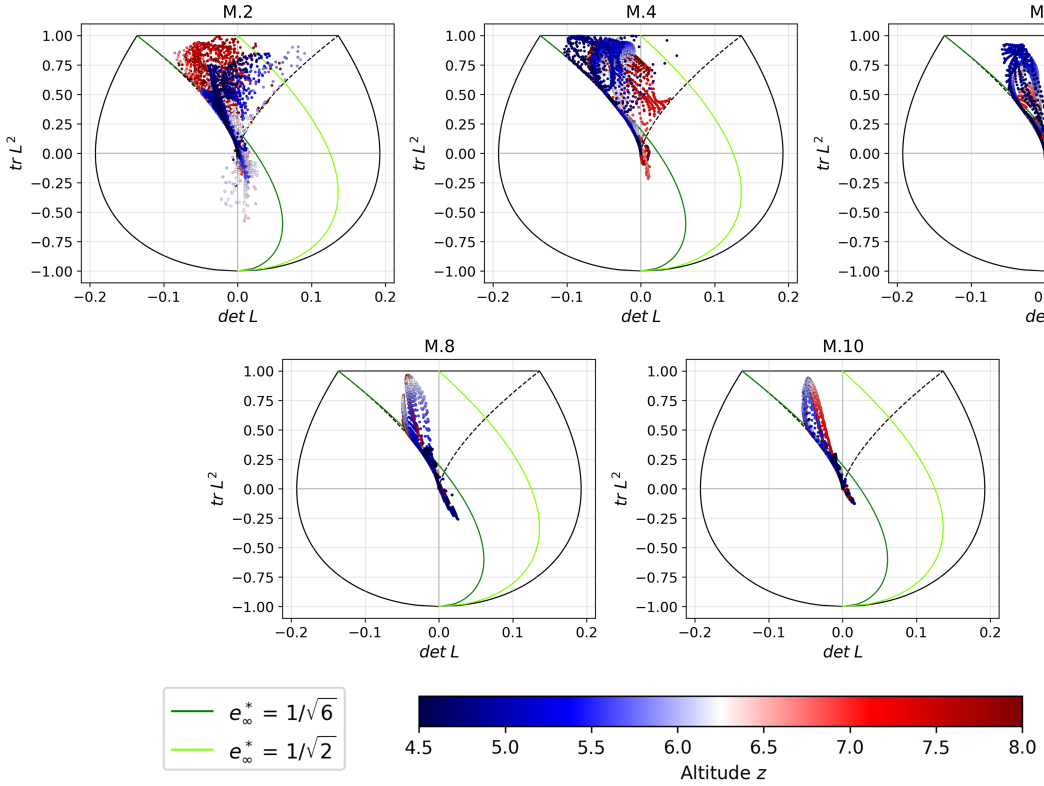


FIGURE 5.25 – Diagramme d'Ottino en fonction de la viscosité de la phase continue organique pour une position de pale $\theta = 0°$.

Dans un dernier temps, le diagramme d'Ottino a été tracé en fonction de la viscosité de la phase continue, pour une position de pale fixe (voir Figure 5.25). Cette position correspond à la position $\theta = 0°$. La Figure 5.25 confirme les observations réalisées dans les paragraphes précédents, avec un changement de régime hydrodynamique lorsque la viscosité augmente d'un facteur cinq. En effet, pour les faibles viscosités (M.2 et M.4), les points sont plus dispersés dans le diagramme, sans superposition entre les positions verticales opposées. Cela traduit un écoulement turbulent, instationnaire et fluctuant. A l'inverse, lorsque la viscosité augmente (M.8 et M.10), les points se concentrent dans une zone restreinte du diagramme, avec une superposition importante entre les hauteurs opposées. Ce diagramme témoigne d'un écoulement plus ordonné, symétrique et proche d'un régime laminaire. Enfin, on retrouve la tendance déjà observée précédemment (Figures 5.23 et 5.24) : le long de la paroi, l'efficacité d'étirement est plus élevée pour les faibles viscosités que pour les fortes.

5.4 Conclusion

Au sein de ce chapitre, l'**écoulement** et les **contraintes hydrodynamiques** de la phase continue ont été étudiés en détail et quantifiés en fonction de la valeur de la viscosité. Cette analyse a été réalisée à l'aide de calculs **CFD monophasique**, basés sur la méthode

de Boltzmann sur réseau (**LBM**) et la simulation aux grandes échelles de la turbulence (**LES**).

Les résultats mettent clairement en évidence un **changement de régime hydrodynamique** notable lorsque la viscosité de la phase continue augmente d'un facteur cinq. En effet, pour les phases continues **M.2** ($Re = 1030$) et **M.4** ($Re = 580$), l'écoulement se rapproche d'un régime **turbulent**, où les **effets inertiels** semblent supérieurs aux effets visqueux. Les profils axiaux de vitesse adimensionnés sont similaires, et les distributions spatiales des contraintes turbulentes sont comparables et d'amplitudes presque identiques. À l'inverse, l'intensité des contraintes de cisaillement visqueuses reste faible pour ces deux viscosités. Par ailleurs, l'écoulement le long des parois est fortement instationnaire, avec des points dispersés dans le diagramme d'Ottino, avec une forte dépendance de l'écoulement vis-à-vis de la position du sillage. Enfin, bien que l'écoulement dans cette région soit majoritairement élongationnel de par la nature de la turbine radiale, la présence de mouvements de rotation, associés à des structures tourbillonnaires, confirme le caractère turbulent de l'écoulement. Ensuite, pour les phases continues **M.6** ($Re = 365$) et **M.8** ($Re = 290$), les **effets visqueux** deviennent **non négligeables** devant les effets inertiels avec (i) une modification de la forme des profils adimensionnés, (ii) une augmentation significative des contraintes de cisaillement visqueux et (iii) une dépendance du taux de dissipation turbulent à la viscosité. De plus, à partir de M.6, le rapport entre la taille des gouttes et le domaine de la turbulence évolue : pour la phase continue **M.2**, l'ensemble de la distribution de taille se situe dans le domaine **inertiel**, tandis qu'une augmentation de la viscosité d'un facteur trois et quatre (**M.6, M.8**) déplace progressivement une partie de la distribution vers le **domaine dissipatif**, où les effets visqueux deviennent non négligeables. Enfin, pour la phase continue organique **M.10** ($Re = 245$), l'écoulement s'apparente à un régime **quasi laminaire**, caractérisé par des fluctuations de vitesse et un taux de dissipation turbulent négligeables, de l'ordre de 10^{-8} $\mathrm{m}^2 \cdot \mathrm{s}^{-3}$ en moyenne. Sur le diagramme d'Ottino, les points se concentrent dans une zone restreinte, le type et l'efficacité de l'écoulement le long de la paroi sont indépendants de la position du sillage, et l'écoulement est symétrique de part et d'autre du centre du jet. Cela traduit un écoulement plus stable et moins dispersé.

Ce changement de régime hydrodynamique, induit par l'augmentation de la viscosité de la phase continue, modifie la **nature des contraintes** exercées à la surface des gouttes. Bien que la contribution respective de chaque type de contrainte reste difficile à quantifier, les contraintes de cisaillement visqueuses et turbulentes présentent des tendances opposées : la première augmente avec la viscosité, tandis que la seconde diminue. Cette évolution du régime de turbulence pourrait expliquer à la fois le changement de mécanisme de rupture mis en évidence dans le Chapitre 4 et l'augmentation significative du nombre de gouttes de petite taille, de diamètre inférieur à 100 µm, observée dans le Chapitre 3.

Chapitre 6

Modélisation de la rupture de gouttes dans un mélangeur en régime de transition impliquant des solvants visqueux

Sommaire

6.1 Modélisation des distributions de taille de gouttes par bilan de population (PBE) 209

6.1.1 Introduction et rappels bibliographiques 209

6.1.2 Matériel et méthodes 210

6.1.3 Résultats et discussion 214

6.1.4 Conclusion et discussion 218

6.2 Simulation DNS de la rupture de gouttes au sein d'un mélangeur par une approche LB-VOF 220

6.2.1 Introduction et rappels bibliographiques 220

6.2.2 Matériel et méthodes 222

6.2.3 Résultats et discussion 228

6.2.4 Conclusion et perspectives 242

« Tous les modèles sont faux »

C. BERTHINIER

6.1 Modélisation des distributions de taille de gouttes par bilan de population (PBE)

6.1.1 Introduction et rappels bibliographiques

Au sein d'un procédé d'extraction liquide-liquide, la taille des gouttes est un critère essentiel qui informe sur l'efficacité d'un procédé : une petite taille de goutte augmente l'aire interfaciale et favorise le transfert de matière, tandis que de grandes tailles favorisent la séparation et empêchent les phénomènes d'entraînement de phase (voir partie 2.3). La prédiction et la modélisation de ces tailles en fonction de la géométrie et des conditions opératoires sont donc importantes. Pour cela, de nombreux modèles semi-empiriques ont été développés dans la littérature (Desnoyer et al., 2003; Singh et al., 2008b; Tang et al., 2020), basés sur l'estimation d'un diamètre maximal stable $d_{\max}$ ou d'un diamètre de Sauter d_{32}. Cependant, ces derniers sont valides dans une gamme de conditions opératoires ou ils ont été établis. Par ailleurs, les diamètres caractéristiques utilisés ne sont pas toujours adéquates pour décrire une distribution de taille, notamment pour des distributions bimodales (voir Chapitre 3). Ces modèles ne semblent donc pas pertinents en ce qui concerne l'apparition de petites gouttes et le traitement des entraînements de phase.

Les bilans de population (PBE) permettent, quant à eux, une modélisation plus précise en estimant la taille d'une population de gouttes. Ces derniers permettent notamment d'estimer la variation temporelle et spatiale des distributions de taille au sein d'un réacteur (Ramkrishna, 2000). Pour cela, ils nécessitent des modèles de fermeture pour décrire les termes sources de rupture et de coalescence. Plusieurs revues de la littérature sont disponibles, détaillant les nombreux modèles développés au fil des années, tant pour les fréquences de rupture que pour les distributions de taille de gouttes filles (Lasheras et al., 2002; Singh et al., 2009; Liao and Lucas, 2009). Toutefois, il n'est pas évident de sélectionner le bon modèle parmi tous ceux qui sont disponibles (Amokrane, 2014). Par ailleurs, ces modèles peuvent prédire des résultats contradictoires (Maaß and Kraume, 2012) et possèdent des constantes à ajuster. De plus, il peut être noté que la quasi totalité d'entre eux a été développée pour des écoulements en régime turbulent dans le domaine inertiel. Plus récemment, de nouveaux modèles proposent une extension des noyaux inertiels sur l'ensemble du spectre de la turbulence (Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019; Karimi and Andersson, 2019). Les études portant sur la rupture à l'échelle d'un procédé en régime laminaire ou faiblement turbulent sont, quant à elles, extrêmement rares (Rueger and Calabrese, 2013; Shayunusov et al., 2024).

Plusieurs méthodes existent pour la résolution des bilans de population (Amokrane, 2014; Castellano, 2019). La méthode des classes (typiquement *Fixed Pivot Method*) (Drumm et al., 2009; Singh et al., 2009; Zhou et al., 2021a; Charton et al., 2022; Mercier, 2023) permet de discrétiser la coordonnée interne et de résoudre les équations sur chaque intervalle. La méthode des moments repose sur la résolution des moments de la distribution (Drumm et al., 2009; Amokrane, 2014), tandis que la méthode de Monte Carlo adopte une approche probabiliste.

De plus, les termes sources du bilan de population dépendent directement des contraintes

hydrodynamiques exercées par la phase continue. Dans une approche simplifiée, ces contraintes peuvent être considérées comme spatialement uniformes dans le réacteur et déterminées à partir du nombre de puissance (Eq. 1.5) (Coulaloglou and Tavlarides, 1977; Singh et al., 2009; Tang et al., 2020). Toutefois, l'écoulement au sein des cuves agitées est fortement inhomogène et anisotrope, avec des contraintes particulièrement élevées près de la turbine. Pour tenir compte des inhomogénéités des contraintes, Buffo et al. (2016) a proposé d'estimer la moyenne volumique des noyaux à partir de la densité de probabilité des contraintes, obtenue par simulation CFD monophasique. Plusieurs travaux récents ont montré que cette méthode permet d'améliorer significativement la précision des prédictions (Castellano, 2019; Charton et al., 2022). Néanmoins, cette approche n'est applicable que si la distribution de taille des gouttes est homogène dans le réacteur. De plus, cette approche n'est qu'un couplage « unidirectionnel » : la CFD et le PBE sont résolus séparément et successivement. Pour prendre en compte l'effet de la taille des gouttes sur les contraintes, un couplage CFD–PBE via un diamètre équivalent (*two-way coupling*), typiquement le diamètre de Sauter, peut être adopté (Drumm et al., 2009; Zhou et al., 2021a). À chaque pas de temps, le PBE détermine le diamètre moyen, qui est ensuite intégré dans les équations de Navier–Stokes diphasiques (typiquement les modèles Euler-Euler), en particulier dans les termes de forces interfaciales. Toutefois, ces méthodes présentent un coût numérique très important.

Ainsi, dans cette partie, les bilans de population ont été utilisés pour modéliser la taille des gouttes dans un mélangeur expérimental en fonction de la viscosité de la phase continue. Leur résolution a été effectuée avec une approche peu commune : la méthode des éléments finis. Afin de considérer les fortes inhomogénéités des contraintes hydrodynamiques, tout en limitant le coût des calculs, l'approche proposée par Buffo et al. (2016) a été adoptée. Pour cela, les contraintes hydrodynamiques de la phase continue, estimées dans le Chapitre 5, ont été utilisées. Au vu du nombre conséquent de modèles disponibles dans la littérature, dont certains sont particulièrement complexes, la sélection des modèles de fermeture a été délicate. Parmi tous ces modèles, deux d'entre eux ont été testés. Le premier est le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977), qui est largement utilisé dans la littérature. Il a également fourni des résultats satisfaisants dans les thèses précédentes (Amokrane, 2014; Castellano, 2019). Le second est une version simplifiée du modèle récemment utilisé par Shayunusov et al. (2024), reposant sur une modélisation de la rupture dans un écoulement laminaire.

6.1.2 Matériel et méthodes

6.1.2.1 Détails des simulations

Dans un système liquide-liquide où la taille des gouttes est essentiellement régie par les mécanismes de rupture et de coalescence, l'équation de bilan de population tridimensionnelle est rappelée au paragraphe 1.3.7. Suite aux hypothèses réalisées au cours de ce travail de thèse, le terme de coalescence a été négligé dans cette partie. Ce choix est justifié par les conditions explorées : faible taux de rétention ($\alpha = 1$ %), présence d'un extractant (HDEHP) jouant le rôle de tensioactif, faible volume de liquide dans le mélangeur et

viscosité élevée de la phase continue. En effet, tous ces facteurs limitent les phénomènes de coalescence. Par ailleurs, la distribution de taille des gouttes a été supposée homogène dans le réacteur. Sur la base de cette hypothèse, l'équation de bilan de population a été simplifiée et résolue avec une approche 0D. Cette hypothèse a été partiellement vérifiée dans le Chapitre 3, où les distributions étaient spatialement uniformes en régime stationnaire (Figure 3.12a). Par ailleurs, cette hypothèse est généralement valide pour les faibles taux de rétention (Castellano, 2019), comme ceux considérés dans ce travail.

Toutefois, la fréquence de rupture n'est pas spatialement homogène dans le mélangeur. En effet, les écoulements dans des cuves agitées sont considérés comme fortement inhomogènes et anisotropes. La répartition spatiale des contraintes hydrodynamiques a notamment été discutée en détail dans le Chapitre 5. Afin de prendre en compte les inhomogénéités spatiales des contraintes avec une approche en 0D, les densités de probabilité du taux de cisaillement $f(\tau_c)$ et du taux de dissipation turbulent $f(\varepsilon)$ ont été utilisées (Buffo et al., 2016; Castellano, 2019). Avec cette approche, chaque intervalle de l'histogramme représente la densité de probabilité que chaque goutte rencontre une maille de contrainte de valeur donnée. Avec ε une grandeur hydrodynamique quelconque, la moyenne volumique de la fréquence de rupture peut s'écrire alors :

$$\langle \Gamma(v) \rangle_V = \frac{1}{V} \int_V \Gamma(v, x_i)\, dx_i = \int_0^\infty \Gamma(v, \varepsilon)\, f(\varepsilon)\, d\varepsilon \tag{6.1}$$

Cela permet de capturer les inhomogénéités des contraintes hydrodynamiques tout en conservant une approche 0D. Cela permet de réduire considérablement le coût numérique des simulations par rapport aux simulations CFD–PBE entièrement couplées.

Les densités de probabilité des contraintes hydrodynamiques ont été obtenues à partir de simulations CFD monophasiques, utilisant la simulation aux grandes échelles de la turbulence (LES) (voir Chapitre 5). Cinq simulations CFD correspondant aux cinq phases continues de viscosité croissante ont été réalisées, avec une vitesse d'agitation fixée à $N = 1200$ rpm. A partir de ces simulations, deux types de contraintes ont été extraits et intégrés dans l'équation 6.1 : (i) les contraintes de cisaillement visqueux $\langle \tau_c \rangle_p$ et (ii) le taux de dissipation turbulente $\langle \varepsilon'_\theta \rangle_p$, directement lié aux contraintes turbulentes. Ces dernières sont illustrées respectivement sur les Figures 5.19a et 5.19b. Il peut être noté que les moyennes de phase de ces contraintes ont été utilisées. Les valeurs instantanées peuvent toutefois atteindre localement jusqu'à six fois leur valeur moyenne de phase (voir Figure 5.20). Une approche plus rigoureuse aurait été d'extraire ces contraintes pour plusieurs positions de pale sur un ou plusieurs tours. Toutefois, cette approche est très lourde, car elle nécessiterait de faire la triple décomposition de la vitesse pour plusieurs positions de pales (voir Chapitre 5).

Les densités de probabilité ont été construites sous forme d'histogrammes comportant 200 intervalles, définis sur une échelle logarithmique. Pour les contraintes de cisaillement, l'histogramme s'étend de 10^{-3} à 50 Pa et, pour le taux de dissipation turbulente, de 10^{-5} à 10 $\mathrm{m^2 \cdot s^{-3}}$. La discrétisation des histogrammes a été vérifiée par une étude de convergence.

Le bilan de population utilisé dans ce chapitre repose sur le modèle ColHySE, initialement développé pour résoudre la PBE dans les colonnes pulsées via une approche 1D (Charton et al., 2022). Ce modèle a été implémenté dans le logiciel Cast3M (2025), qui permet de résoudre les équations de bilan de population par la méthode des éléments finis. Par ailleurs, la résolution est réalisée en masse. Dans le cadre de ce travail, le modèle ColHySE a été adapté à une résolution 0D dans une cuve agitée, en imposant la vitesse des gouttes et la dispersion axiale à une valeur nulle. De plus, le réacteur a été considéré comme fermé, en imposant un débit d'entrée égal à zéro.

Après une étude de convergence, 200 mailles ont été utilisées pour discrétiser les diamètres des gouttes entre 1 µm et 800 µm. Le maillage utilisé est non uniforme, avec la taille des mailles qui augmente selon une loi exponentielle, avec un rapport de 5 entre la maille minimale et la maille maximale. Les distributions expérimentales à $t = 2$ min ont été utilisées comme distribution initiale des modèles. L'ensemble des simulations a été réalisé sur un ordinateur de bureau (Intel Core i5, 1,6 GHz, 8Go de RAM), pour un temps de calcul inférieur à 10 s.

Enfin, les simulations PBE ont été effectuées pour les cinq phases continues de viscosité croissante, dont les propriétés sont présentées dans le Tableau 2.2. Les propriétés de la phase dispersée correspondante sont quant à elles présentées dans le Tableau 2.4.

6.1.2.2 Lois de fermeture et identification des constantes

Dans le cadre de cette partie, deux modèles de fréquence de rupture ont été testés [1]. Le premier est le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977), l'un des modèles les plus populaires de la littérature (Drumm and Bart, 2006; Singh et al., 2007; Amokrane, 2014; Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019; Zhou et al., 2021a; Charton et al., 2022). Il a notamment servi de référence à la construction de nombreux modèles ultérieurs. Ce modèle repose sur l'hypothèse qu'une goutte se rompt lorsque l'énergie cinétique d'un tourbillon turbulent dépasse l'énergie interfaciale d'une goutte. Pour exprimer l'énergie cinétique des tourbillons, il s'appuie sur la théorie de Kolmogorov afin d'exprimer la fonction de structure d'ordre deux. Cela limite, *a priori*, son domaine de validité au régime inertiel de la turbulence. L'expression de la fréquence de rupture de Coulaloglou and Tavlarides (1977) est donnée par l'équation 1.71 et détaillée au paragraphe 1.3.7.

Le second modèle utilisé correspond à une version modifiée d'un modèle récemment utilisé par Shayunusov et al. (2024). Ce dernier est exprimé par l'équation 1.74, et présenté en détail dans le paragraphe 1.3.7. Celui-ci s'inspire du modèle proposé par Liao et al. (2015), en ne considérant comme force destructive seulement les contraintes de cisaillement visqueux. À l'image du modèle de Martínez-Bazán et al. (1999a), Liao et al. (2015) décrivent la rupture comme une compétition entre deux contraintes : les contraintes destructives, qui déforment la surface des gouttes, et les contraintes cohésives, régies uniquement par la tension interfaciale, qui tend à lui redonner une forme sphérique. La rupture se produit

1. Pour ces régimes d'écoulement, il aurait été particulièrement intéressant d'utiliser les noyaux de rupture *full spectrum*, tels que proposés par Solsvik and Jakobsen (2016) et Castellano (2019)

lorsque les forces destructives excèdent une valeur critique, définie par les forces cohésives. Sur la base de ce principe, Shayunusov et al. (2024) exprime la fréquence de rupture sous la forme suivante :

$$\Gamma(d) = \begin{cases} \dfrac{C_1}{d}\sqrt{\dfrac{\tau_c - \tau_{\text{crit}}(d)}{\rho_c}}, & \text{si } \tau_c > \tau_{\text{crit}} \\ 0, & \text{si } \tau_c \leq \tau_{\text{crit}} \end{cases} \tag{6.2}$$

La contrainte de cisaillement visqueux τ_c est exprimée par l'équation 5.9. D'après Liao et al. (2015), deux approches sont généralement utilisées pour définir les contraintes cohésives τ_{crit} : une approche énergétique (Luo and Svendsen, 1996) et une approche basée sur un bilan de forces (Lehr and Mewes, 2001). Le modèle de Liao et al. (2015) et celui repris par Shayunusov et al. (2024) combinent ces deux formulations en retenant la valeur maximale des ces deux expressions. Toutefois, cette combinaison complexifie l'expression de la fréquence de rupture Γ, qui devient dépendante à la fois du diamètre de la goutte mère et de celui des gouttes filles.

Dans un premier temps, la fréquence de rupture proposée par Shayunusov et al. (2024) a donc été simplifiée en ne conservant que la seconde approche. Cela permet d'éliminer la dépendance de la fréquence vis-à-vis du diamètre des gouttes filles. Ainsi, les contraintes interfaciales ont été exprimées sous la forme (Andersson and Andersson, 2006a; Karimi and Andersson, 2019) :

$$\tau_{\text{crit}}(d) = \tau_I(d) = \frac{C_2\sigma}{d} \tag{6.3}$$

En ce qui concerne la distribution de taille des gouttes filles (DDSD), une version modifiée de la distribution proposée par Valentas et al. (1966), le modèle le plus répandu de la littérature (Coulaloglou and Tavlarides, 1977), a été implémentée. Cette distribution représente la taille des gouttes filles par une loi gaussienne, où la probabilité maximale correspond à la rupture en deux gouttes de volumes égaux. La variance a été choisie de sorte que 99,6% des gouttes formées aient un volume compris entre 0 et le volume de la goutte mère Coulaloglou and Tavlarides (1977). Cependant, l'utilisation de ce modèle de distribution a conduit à une croissance non physique du nombre de gouttes dans la maille correspondant au plus petit diamètre. Ceci est dû au fait que le modèle de Valentas et al. (1966) prédit une probabilité non nulle de former de gouttes de volume nul. Pour éviter ce problème, la DDSD a été multipliée par un facteur $f_{bv}(1 - f_{bv})$ (inspiré d'une loi bêta de paramètre (2 ;2)) afin que la densité de probabilité soit nulle aux extrémités (Hsia and Tavlarides, 1983; Liao and Lucas, 2009). Ainsi, la distribution de la taille des gouttes filles a été exprimée par :

$$\beta(f_{bv}, 1) = \frac{f_{bv}(1 - f_{bv}) \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{f_{bv} - 0.5}{\sigma_d}\right)^2\right]}{\displaystyle\int_0^1 f_{bv}(1 - f_{bv}) \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{f_{bv} - 0.5}{\sigma_d}\right)^2\right] df_{bv}} \tag{6.4}$$

avec f_{bv} la fraction volumique des gouttes filles par rapport au volume de la goutte mère. L'écart type σ_d utilisé est identique à celui imposé par Valentas et al. (1966). Une comparaison entre cette distribution et celle proposée par Valentas et al. (1966) est présentée sur la Figure 6.1. Les deux DDSD sont très similaires et modélisent la même phénoménologie de la rupture. Les distributions de taille des gouttes filles issues du Chapitre 4 n'ont pas été utilisées dans cette partie.

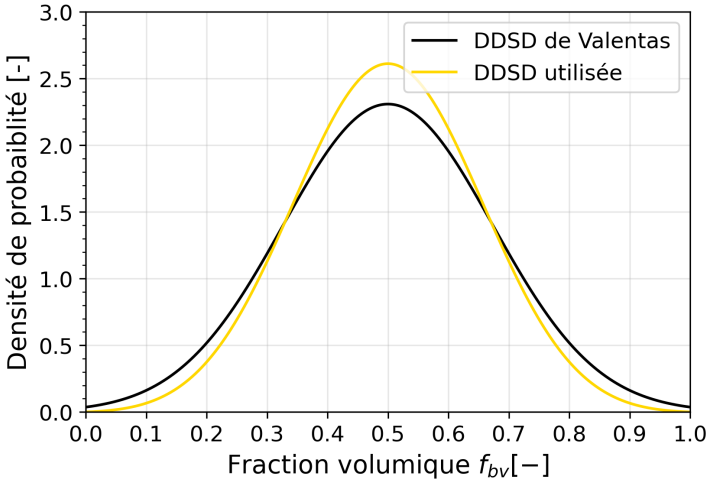


FIGURE 6.1 – Comparaison entre la distribution de taille de gouttes filles (DDSD) introduite par Valentas et al. (1966) et celle utilisée dans cette étude.

Enfin, les constantes empiriques des deux modèles de fréquence de rupture ont été ajustées manuellement à partir des mesures expérimentales présentées dans le Chapitre 3. Cet ajustement a été jugé suffisant pour identifier les paramètres des modèles tout en tenant compte des incertitudes des mesures expérimentales. Pour le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977), les constantes C_1 et C_2 ont été calibrées afin de minimiser l'écart sur le diamètre de Sauter et les distributions de taille pour les phases continues M.2 et M.4. De même, pour le modèle de Shayunusov et al. (2024), les constantes C_1 et C_2 ont été ajustées selon les mêmes critères pour les phases continues M.8 et M.10. Les valeurs finales des constantes obtenues, ainsi que celles des modèles d'origine, sont présentées dans le Tableau 6.1. Il peut être noté que les constantes issues de Coulaloglou and Tavlarides (1977) ont été ajustées à partir d'un taux de dissipation moyen, contrairement aux densités de probabilité utilisées dans cette étude. Les données de ce tableau soulignent aussi la large variabilité des constantes, qui sont valides pour des gammes de conditions limitées et qui nécessitent d'être ajustées pour chaque système (Becker et al., 2014b).

6.1.3 Résultats et discussion

L'évolution temporelle du diamètre de Sauter d_{32} pour cinq phases continues de viscosité croissante est présentée sur la Figure 6.2. Les prédictions du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) sont illustrées sur la figure de gauche, et celles du modèle de (Shayunusov et al., 2024) sont représentées sur la figure de droite. Les viscosités pour

TABLE 6.1 – Comparaison des constantes d'ajustement des modèles entre la littérature (Coulaloglou and Tavlarides (1977); Shayunusov et al. (2024)) et les valeurs déterminées dans cette étude.

	Coulaloglou and Tavlarides (1977)		**Shayunusov et al. (2024)**	
	Originale ($\langle\varepsilon\rangle_V$)	Cette étude	Originale	Cette étude
C_1	$4{,}78 \times 10^{-3}$	1,6	1	$5{,}5 \times 10^{-3}$
C_2	$5{,}52 \times 10^{-2}$	1,5	1,26	$3{,}3 \times 10^{-1}$

lesquelles les modèles ne prédisent aucune rupture n'ont pas été affichées sur les figures. Par ailleurs, les estimations des modèles sont accompagnées des mesures expérimentales issues du Chapitre 3.

D'après la Figure 6.2, le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) fournit une estimation satisfaisante de la dynamique de rupture pour les phases continues M.2, M.4 et M.6. Le diamètre de Sauter est tantôt légèrement surestimé, tantôt légèrement sous-estimé, mais les écarts entre les expériences et les simulations sont du même ordre que l'incertitude des mesures expérimentales. En revanche, pour la phase continue M.8, le modèle surestime nettement le diamètre de Sauter : la simulation conduit à $d_{32} = 305$ µm, contre 240 µm pour les mesures expérimentales. De plus, pour la phase continue la plus visqueuse (M.10), le modèle ne prédit aucune rupture, le taux de dissipation turbulent étant nul pour cette viscosité (voir Figure 5.19b).

Par ailleurs, le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) prédit une augmentation de la taille des gouttes avec la viscosité de la phase continue. Cette tendance n'apparaît pas clairement dans les mesures expérimentales. Les cinq mélanges possèdent des tensions interfaciales quasi constantes et des phases dispersées identiques : la prédiction d'une augmentation des tailles provient donc uniquement de la diminution du taux de dissipation turbulente lorsque la viscosité augmente (voir Figure 5.19b).

À l'inverse, le modèle de Shayunusov et al. (2024) prédit correctement la dynamique de rupture pour les phases continues M.8 et M.10. Pour M.6, la dynamique est légèrement différente, mais le diamètre de Sauter, après 180 min d'émulsification, reste raisonnablement bien estimé. Avec ces constantes d'ajustement, le modèle prédit en revanche très peu de ruptures pour M.4 et aucune pour M.2. Pour ces deux phases continues, les régions où les contraintes de cisaillement dépassent les contraintes interfaciales ($\tau_c > \tau_I$) sont en effet extrêmement localisées : pour une goutte de 600 µm (soit la taille des gouttes présentant une des plus faibles forces interfaciales), environ 500 mailles (10^{-5} % du nombre total de mailles) respectent cette condition pour la phase continue M.4, et seulement 20 mailles (10^{-8} % du nombre total de mailles) pour M.2.

De plus, le modèle de Shayunusov et al. (2024) prédit une augmentation de la taille des gouttes lorsque la viscosité diminue, une tendance opposée à celle du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977). Ce comportement est principalement causé par l'augmentation

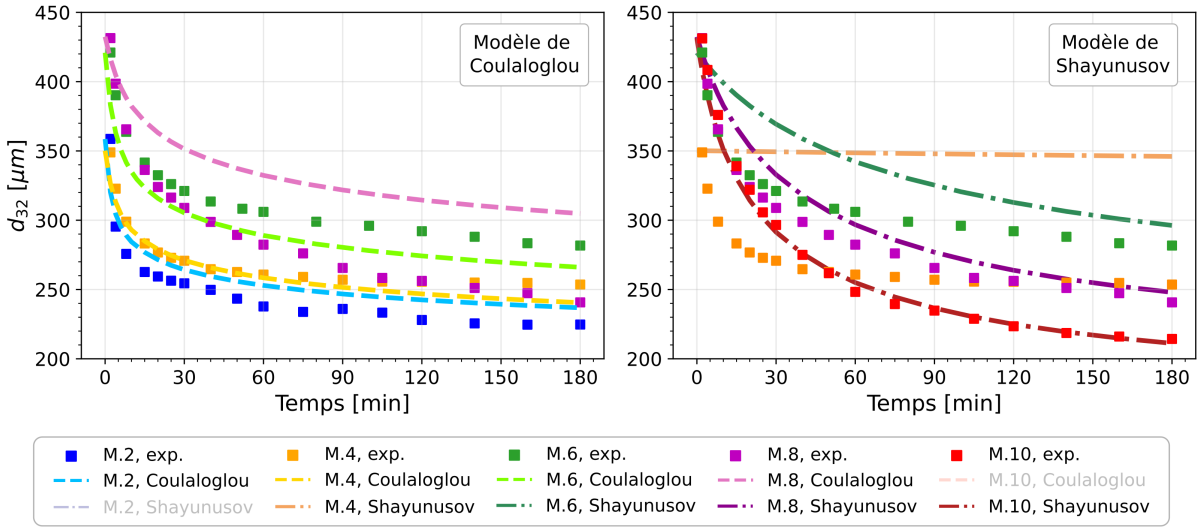


FIGURE 6.2 – Comparaison de l'évolution temporelle du diamètre de Sauter d_{32} entre les expériences du Chapitre 3 et les estimations (à gauche) du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) et (à droite) du modèle simplifié de Shayunusov et al. (2024) : les conditions pour lesquelles les modèles ne prédisent aucune rupture n'ont pas été affichées.

des contraintes de cisaillement avec la viscosité de la phase continue (voir Figure 5.19a), ce qui, d'une part, réduit le diamètre maximal stable (obtenu pour $\tau_c \gtrsim \tau_I$), et d'autre part, conduit à une rupture plus rapide.

Ainsi, les modèles et les mesures expérimentales conduisent à des tendances opposées vis-à-vis de l'influence de la viscosité de la phase continue sur la taille des gouttes : lorsque la viscosité augmente, les expériences ne montrent pas d'effet net sur la taille, le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) prédit une augmentation des tailles, alors que celui de Shayunusov et al. (2024) prédit une diminution. Cette observation confirme la transition des contraintes hydrodynamiques induites par la viscosité de la phase continue. Par ailleurs, la Figure 6.2 confirme les observations des chapitres précédents (Chapitre 4 et 5), avec une rupture qui semble gouvernée par les contraintes turbulentes pour les phases continues M.2 et M.4. À l'inverse, pour la phase M.10, celle-ci semble exclusivement due aux contraintes visqueuses. Pour les viscosités intermédiaires (M.6 et M.8), la rupture semble, quant à elle, induite par la combinaison des deux contraintes. D'après les mesures expérimentales, malgré la modification de la nature des contraintes, ces dernières n'influent pas clairement sur le diamètre de Sauter.

Par ailleurs, la Figure 6.2 souligne que les deux modèles utilisés ne sont pas suffisamment généraux pour prédire correctement le comportement de la rupture dans les régimes de transition considérés, avec un seul jeu de constantes. En effet, le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) a été développé pour modéliser la rupture en régime turbulent dans le domaine inertiel (ce qui n'est pas strictement le cas ici ; voir Figures **??** et 5.11), et celui de Shayunusov et al. (2024) pour des régimes laminaires. Ainsi, des travaux complémen-

taires, notamment le développement d'un modèle de rupture hybride, prenant en compte à la fois les contributions turbulentes et visqueuses (Maaß and Kraume, 2012; Liao et al., 2015), permettraient de mieux décrire la transition de régime. De même, l'intégration des noyaux généralisés (Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019; Karimi and Andersson, 2019), prenant en compte simultanément le domaine inertiel et dissipatif de la turbulence, améliorerait la précision des prédictions des tailles de gouttes dans les régimes explorés au cours de cette étude.

Le diamètre de Sauter ne permet toujours pas de bien décrire les tailles d'une population, notamment lorsqu'elle est bimodale (voir Figure 3.13). À cet effet, les estimations des distributions de taille de gouttes à $t = 180$ min des deux modèles considérés (Coulaloglou and Tavlarides (1977); Shayunusov et al. (2024)) sont présentées sur la Figure 6.3. Ces estimations sont présentées pour les cinq phases continues explorées. Pour une viscosité donnée, les distributions de taille des modèles prédisant un noyau de rupture nul ne sont pas représentées sur la figure. Les distributions initiales des simulations sont présentées en gris. Ces dernières représentent les distributions expérimentales à $t = 2$ min. La figure illustre également les distributions expérimentales en régime stationnaire.

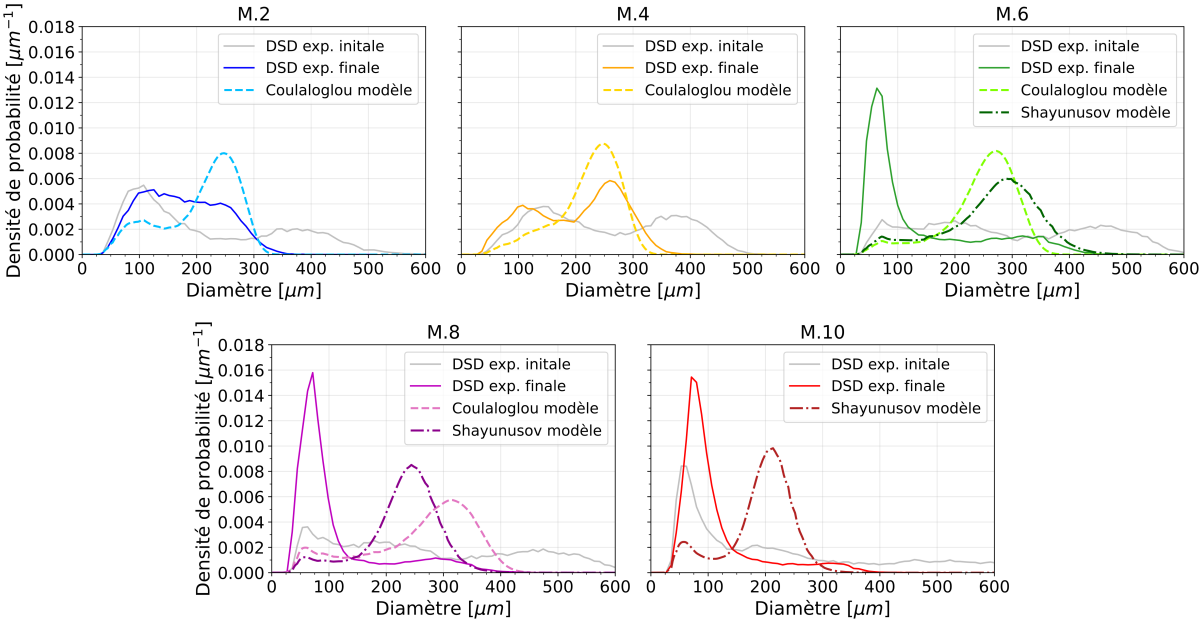


FIGURE 6.3 – Comparaison des distributions de taille de gouttes entre les expériences du Chapitre 3 et les estimations du modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) et celles du modèle simplifié de Shayunusov et al. (2024).

Concernant la population de grande taille ($d > 200$ µm), les tendances observées sont identiques à celles de la figure précédente : le modèle de Coulaloglou and Tavlarides (1977) présente une bonne estimation de la réparation des tailles et du diamètre maximal stable pour les phases continues M.2, M.4 et M.6. A l'inverse, le modèle de Shayunusov et al. (2024) présente une bonne estimation des tailles et du diamètre maximal stable pour les

phases continues M.6, M.8 et M.10. En dehors de ces viscosités, les estimations des deux modèles sont moins précises, voire incorrectes, ne prédisant aucune rupture.

Pour la population de petite taille, la Figure 6.3 illustre une seconde limite de la modélisation utilisée. Aucun des modèles n'est capable de prédire la croissance significative du nombre de petites gouttes ($d < 100$ µm) induites par l'augmentation de la viscosité. Il peut être noté que le pic associé à cette population est uniquement du aux conditions initiales. Cet écart entre les expériences et la modélisation est notamment dû à la distribution de la taille des gouttes filles utilisée, qui modélise une rupture binaire et symétrique.

En effet, d'après le Chapitre 4, hormis pour la viscosité la plus faible (M.2), la rupture est majoritairement multiple. Par ailleurs, un événement donne généralement naissance à un grand nombre de gouttes de très petite taille, avec une distribution de taille de gouttes filles bimodale, notamment à forte viscosité (Figure 4.20). Ainsi, la Figure 6.3 confirme les observations expérimentales du Chapitre 4 : la quasi-totalité des modèles de distribution de taille des gouttes filles développés dans la littérature n'est pas adaptée au système considéré. Ces dernières font majoritairement l'hypothèse d'une rupture binaire Liao and Lucas (2009), et certains d'entre eux considèrent que la rupture la plus probable conduit à la formation de gouttes filles de volumes égaux (Valentas et al., 1966; Coulaloglou and Tavlarides, 1977; Konno et al., 1983).

Les divergences entre les observations expérimentales et les modèles de distribution de taille des gouttes filles sont généralement soulignées dans la littérature (Andersson and Andersson, 2006b,a; Maaß et al., 2007; Solsvik and Jakobsen, 2015b). À cet effet, plusieurs modèles empiriques de DDSD ont été développés (Liao and Lucas, 2009), présentant des formes en « U » ou en « M », modélisant une rupture asymétrique : typiquement, avec la formation d'une grosse et d'une petite goutte. Par ailleurs, certains auteurs considèrent que la rupture multiple peut être approchée comme une succession de ruptures binaires (Becker et al., 2014b). Les constantes de la fréquence de rupture sont alors ajustées pour augmenter artificiellement la rupture.

Toutefois, la forme bimodale avec un pic très prononcé pour les petites gouttes met en évidence les limites de ces deux approches. Elles ne semblent pas adaptées pour reproduire la formation significative de petites gouttes pour des viscosités de phase continue élevées. De manière similaire, elles ne permettent pas de représenter le changement de morphologie de la rupture induit par l'augmentation de la viscosité de la phase continue (Figure 4.20).

6.1.4 Conclusion et discussion

Au sein de cette partie, des modèles de **bilan de population** ont été utilisés afin de prédire la taille de la population de gouttes dans un mélangeur expérimental. Deux modèles de fréquence de rupture ont été explorés : l'un des plus populaires de la littérature, celui de **Coulaloglou and Tavlarides (1977)**, et un modèle de rupture laminaire modifié, récemment utilisé par **Shayunusov et al. (2024)**. La distribution de taille des gouttes filles proposée par Valentas et al. (1966), majoritairement utilisée et reposant sur

une rupture en **deux volumes égaux**, a été adoptée. L'ensemble de ces modèles a été utilisé pour prédire le diamètre de Sauter ainsi que les distributions de taille en fonction de la viscosité de la phase continue. Par ailleurs, les résultats des simulations ont été comparés aux mesures expérimentales du Chapitre 3.

Les comparaisons entre les deux approches ont montré que, avec un unique jeu de constantes d'ajustement, **les modèles considérés ne parviennent pas à reproduire de manière satisfaisante l'influence de la viscosité sur la taille des gouttes**. Cela met en évidence les **limites** des modèles de bilan de population actuels vis-à-vis des conditions spécifiques étudiées. En ce qui concerne la fréquence de rupture, la majorité des modèles disponibles ont été développés pour des écoulements turbulents dans le domaine inertiel (Liao and Lucas, 2009). Bien que des modèles plus récents modélisent la rupture sur l'ensemble du spectre de la turbulence (Solsvik and Jakobsen, 2016; Castellano, 2019; Karimi and Andersson, 2019), les modèles adaptés aux régimes laminaires sont rares, et ceux capables de décrire un changement de régime d'écoulement le sont encore davantage.

Pour la distribution de taille des gouttes filles (DDSD), les modèles reposent sur une hypothèse de rupture binaire, de forme symétrique, en « U » ou en « M » (Liao and Lucas, 2009). Ces modèles sont en désaccord avec les observations du Chapitre 4, qui montrent qu'à viscosité élevée, la rupture est multiple et que les DDSDs sont bimodales, générant un grand nombre de petites gouttes satellites. A notre connaissance, aucun modèle de DDSD ne permet de représenter ce type de morphologie de rupture, ni de prédire son évolution (passant de symétrique à bimodale) avec les conditions opératoires.

De manière générale, les modèles de bilan de population sont largement utilisés dans la littérature et fournissent de bonnes estimations des grandes tailles de gouttes, qui possèdent la majorité de la masse. Ces estimations sont également satisfaisantes en présence de phases dispersées visqueuses (Becker et al., 2014b), dont les morphologies de rupture sont similaires à celles observées avec des phases continues visqueuses (voir Chapitre 4). En revanche, les modèles actuels ne semblent **pas suffisamment** performants pour **prédire** correctement la formation de la population de petites gouttes ($d < 100$ µm) et, par conséquent, l'apparition ou non d'**entraînements de phase** pour une condition opératoire donnée. Dans cette optique, dans la partie suivante, la rupture de gouttes sera modélisée avec une approche plus locale, à l'**échelle de la goutte**. Cette approche, plus physique, semble mieux adaptée pour prédire la formation de gouttes problématiques vis-à-vis des entraînements. Plus globalement, cette approche contribuera à développer des modèles de fermeture de bilan de population plus réalistes et plus prédictifs dans ces régimes spécifiques.

6.2 Simulation DNS de la rupture de gouttes au sein d'un mélangeur par une approche LB-VOF

6.2.1 Introduction et rappels bibliographiques

Pour la modélisation des écoulements diphasiques au sein d'un procédé, la CFD est un outil essentiel pour la compréhension, l'optimisation et la montée en échelle d'un appareil industriel. Plusieurs approches numériques sont disponibles dans la littérature (ANSYS, 2017). Le choix de la méthode dépend du niveau de précision souhaité, des échelles spatiales et temporelles considérées, ainsi que des ressources de calcul disponibles. Parmi ces approches, les modèles Euler–Euler sont majoritairement employés pour modéliser un procédé (Ničeno et al., 2008; Laurenzi et al., 2009; Zou et al., 2016). Ils sont généralement utilisés pour suivre la répartition spatiale d'une émulsion et analyser son influence sur l'écoulement. Cependant, ces modèles ne permettent pas d'estimer la taille des gouttes, essentielle pour caractériser l'efficacité d'un procédé.

Pour modéliser les tailles des gouttes au sein d'un procédé, la méthode la plus répandue repose sur les méthodes de bilan de population (Coulaloglou and Tavlarides, 1977; Ramkrishna, 2000; Amokrane, 2014; Castellano, 2019; Zhou et al., 2021a) (voir partie 6.1). Ces derniers sont généralement couplés à des simulations CFD monophasiques, ce qui permet d'estimer les contraintes hydrodynamiques moyennes ou locales de la phase continue. Malgré le nombre conséquent de modèles développés dans la littérature (Lasheras et al., 2002; Liao and Lucas, 2009), le phénomène de rupture n'est actuellement pas complètement compris (Andersson and Andersson, 2006a,b), avec des modèles qui prédisent parfois des résultats contradictoires (Maaß and Kraume, 2012). Ainsi, les observations expérimentales de ruptures de gouttes isolées permettent une analyse locale du phénomène et une meilleur compréhension des mécanismes physiques mis en jeu (Stone et al., 1986; Risso and Fabre, 1998; Solsvik and Jakobsen, 2015b) (voir Chapitre 4). Ce type d'étude permet typiquement de développer des modèles de fermeture pour les bilans de population. Toutefois, ces mesures expérimentales présentent plusieurs limitations. Elles sont généralement réalisées en deux dimensions, même si plusieurs caméras synchronisées peuvent être utilisées pour accéder à la troisième dimension (Konno et al., 1983; Krakau and Kraume, 2019b). Les observations sont réalisées sur une zone de mesure restreinte, avec une résolution spatiale et une fréquence d'acquisition limitées par la caméra. De plus, avec ces expériences, il est très complexe de suivre à la fois l'évolution de la déformation des gouttes et analyser l'écoulement environnant. Ce dernier est généralement caractérisé à partir de mesures PIV ou CFD monophasiques préliminaires (Eastwood et al., 2004; Andersson and Andersson, 2006b; Maaß et al., 2007; Maaß and Kraume, 2012; Sanjuan-Galindo et al., 2015).

Dans ce contexte, la modélisations CFD haute résolution permettent de contourner les limites expérimentales précédemment évoquées. En effet, elles ne sont limitées que par leur coût numérique et, avec la croissance exponentielle des capacités de calcul au cours des années, la modélisation de la rupture de bulles ou de gouttes uniques est devenue de plus en plus répandu. Ces approches reposent sur des simulations à haute résolution, telles que la LES (Karimi and Andersson, 2020; Vashisth and Andersson, 2025) ou la DNS (Shao et al.,

2018; Riviere et al., 2021; Håkansson and Brandt, 2022), couplées à des méthodes de représentation de l'interface : des méthodes de capture d'interface (VOF, Level Set, ou leur couplage CLSVOF), ou des méthodes de suivi d'interface (front-tracking, Immersed Boundary Method...) (Komrakova et al., 2015; Karimi and Andersson, 2020). Les premières représentent l'interface à l'aide d'un indicateur de phase, tandis que les secondes s'appuient sur un maillage lagrangien séparé qui suit explicitement la déformation de la surface (voir paragraphe 5.2.2.3). L'avantage majeur de ces simulations est qu'elles offrent un accès direct à la dynamique des tourbillons environnants et aux contraintes hydrodynamiques locales agissant à la surface des gouttes au cours du temps, permettant ainsi une compréhension très fine des mécanismes de rupture. Comme pour les approches expérimentales, les premières études numériques ont été menées dans des écoulements simples et laminaires, tels que des écoulements élongationnels ou cisaillés (Xi and Duncan, 1999; Khismatullin et al., 2003; Cristini et al., 2003; Li et al., 2024). Plus récemment, les recherches se sont concentrées sur des écoulements turbulents, notamment dans des boîtes périodiques en conditions idéalisées, où la turbulence est homogène et isotrope (HIT) (Komrakova et al., 2015; Shao et al., 2018; Riviere et al., 2021; Håkansson and Brandt, 2022; Olad et al., 2023). Ces dernières études se concentrent principalement sur l'effet du nombre de Weber sur le processus de rupture. Cependant, les études numériques de rupture à l'échelle d'un procédé restent rares (Olad and Håkansson, 2025). À notre connaissance, aucune étude de rupture, à l'échelle de la goutte, utilisant la CFD ne traite (i) des cuves agitées, (ii) des rupture avec des phases organiques et visqueuses ($2\ \text{mPa·s} < \mu < 10\ \text{mPa·s}$), et (iii) dans des écoulements en régime de transition ($200 < Re < 1300$). Par ailleurs, l'écoulement en cuve agitée est considéré comme fortement inhomogène et anisotrope, ce qui conduit à des mécanismes de rupture différents de ceux observés en turbulence HIT (Olad et al., 2023).

Si les études de ces phénomènes dans ces contextes sont rares, c'est principalement en raison du niveau de précision requis et, donc, du coût numérique élevé des simulations DNS et des méthodes de capture/suivi d'interface. Ce coût devient notamment considérable pour des procédés à échelle industrielle. Toutefois, le mélangeur considéré dans la thèse présente plusieurs avantages, permettant de réduire significativement le coût numérique de ces simulations. Dans un premier temps, ce sont des appareils de laboratoire de petite taille ($V = 10$ mL), bien inférieurs aux systèmes industriels. Ensuite, ils opèrent dans un régime de transition, avec des phases continues visqueuses : les échelles caractéristiques des structures tourbillonnaires sont donc relativement grandes par rapport a des écoulements plus turbulents. Enfin, si ces simulations VOF ont un coût numérique trop important pour simuler ce type d'appareil avec des méthodes de volumes finis, elles deviennent largement plus accessibles avec une approche LBM. Ces dernières sont hautement parallélisables et particulièrement adaptées aux architectures GPU, dont la puissance a considérablement augmenté ces dernières années (Krüger et al., 2017).

À l'instar du Chapitre 4, cette partie vise donc à analyser en détail les mécanismes de rupture au sein d'un mélangeur miniaturisé en régime de transition. L'étude s'appuie sur des simulations numériques directes (DNS), réalisées avec la méthode de Boltzmann sur réseau (LBM), et basées sur une approche *Volume of Fluid* (VOF). Le couplage de ces

trois méthodes ont permis d'examiner localement la déformation et la rupture des gouttes. Les différents mécanismes de rupture, leur localisation spatiale, ainsi que le nombre des gouttes filles produites y seront notamment analysés. Les résultats seront comparés et discutés avec les observations expérimentales, ainsi qu'avec celles de la littérature. En effet, les conditions de fonctionnement des simulations ont été choisies pour reproduire les conditions expérimentales du Chapitre 4. Une attention particulière sera portée à l'influence de la viscosité de la phase continue sur la dynamique de rupture. Dans cette optique, seules les deux conditions extrêmes de viscosité seront considérées : M.2* et M.10*. Au regard des difficultés rencontrées par les modèles PBE traditionnels à capturer le changement de régime de rupture induit par l'augmentation de la viscosité de la phase continue (voir partie 6.1), cette partie a notamment pour objectif final de développer des modèles de fermeture adaptés aux conditions opératoires explorées.

6.2.2 Matériel et méthodes

6.2.2.1 Détails de la simulation

La géométrie simulée est identique à celle utilisée dans le chapitre précédent. Ses dimensions sont présentées sur la Figure 2.3. La discrétisation spatiale de cette dernière sera, quant à elle, discutée en détail dans le paragraphe 6.2.2.3. A l'image du Chapitre 4, la vitesse de rotation de la turbine a été fixée à $N = 1200$ rpm. De plus, seules les viscosités extrêmes M.2* et M.10* ont été traitées. Leurs propriétés physico-chimiques sont, par ailleurs, exprimées dans le Tableau 2.3.

Les simulations ont été réalisées sur le logiciel M-Star, qui se base sur la méthode LBM. Comme dans le chapitre précédent, l'opérateur collision BGK (Bhatnagar-Gross-Krook) a été utilisé. Les simulations ont été effectuées à l'aide du modèle *Immiscible Two-Fluid* de M-Star, qui repose sur une approche VOF. Les équations LBM et VOF sont présentées respectivement dans les paragraphes 1.2.6.5 et 1.3.6.3. De plus, une approche DNS a été retenue dans le cadre de ce chapitre : aucun modèle de turbulence n'a donc été appliqué, ce qui permet de résoudre directement toutes les échelles de turbulence de l'écoulement. La validation de l'approche DNS sera également discutée plus en détail au sein du paragraphe 6.2.2.3.

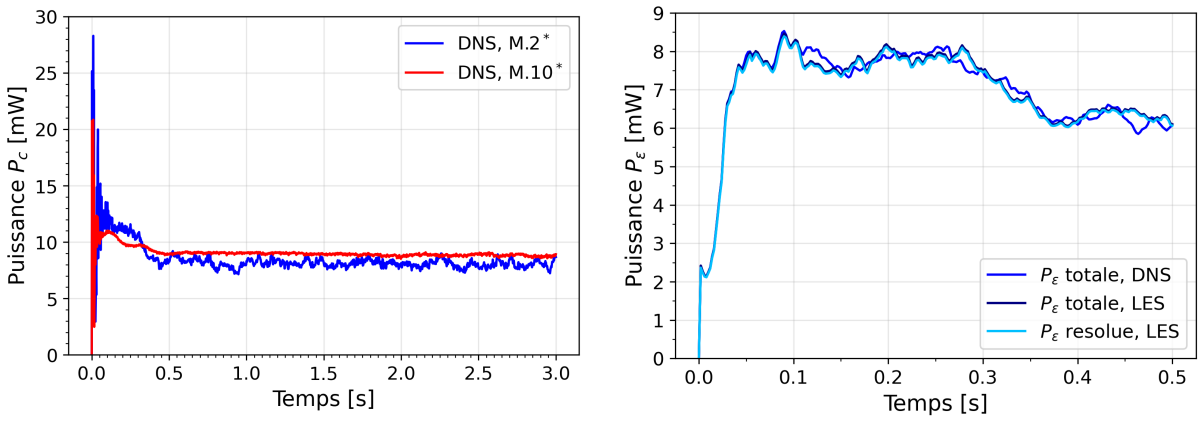
Les conditions aux limites adoptées sont similaires à celles présentées dans le Chapitre 5. Des conditions de glissement sur la paroi supérieure du mélangeur et de non-glissement sur toutes les autres parois ont été appliquées. Pour plus de détails sur ces conditions aux limites, le lecteur peut se référer au paragraphe 5.2. Toutefois, avec la méthode IBM (*Immersed boundary method*), les interfaces liquides avaient tendance à pénétrer dans les surfaces solides. Ainsi, dans le cadre de ce chapitre, la méthode *voxelized* a été utilisée pour modéliser la rotation de la turbine. Cette méthode consiste à représenter les parois localement, sur chaque maille du domaine, par une fraction volumique de solide (M-Star Simulations, 2025a). Ainsi, lorsque la turbine se déplace, cette fraction solide évolue au fil du temps. Par ailleurs, en l'absence de mesure expérimentale, la paroi du mélangeur a été considérée comme une surface superhydrophobe, avec un angle de contact

fixé à 155° pour la phase dispersée. Enfin, une correction est appliquée près des interfaces afin de vérifier la conservation locale de la masse.

Dans cette partie, le nombre de Courant a été fixé à $Co = 0,08$ afin de faciliter la stabilité des simulations. Cela correspond à un pas de temps de $\Delta t = 3 \times 10^{-6}$s. Ce dernier est bien inférieur au temps de Kolmogorov moyen (voir Eq. 1.10), estimé à $\langle t_\eta \rangle_V = 1{,}5 \times 10^{-3}$ s pour la condition M.2*. Les simulations ont été réalisées sur une carte graphique NVIDIA A100 et 128 cœurs. Pour une simulation de 3 secondes de temps physique, la durée totale du calcul a été de 39,8 heures.

6.2.2.2 Conditions initiales

Initialement, le mélangeur a été rempli des phases continues organiques M.2* ou M.10* et la vitesse de rotation est fixée à la valeur souhaitée ($N = 1200$ rpm). A travers l'équation 1.4, la puissance injectée par la turbine est suivie au cours du temps. D'après la Figure 6.4a, la puissance injectée converge vers un état pseudo-stationnaire à partir de 0,5 seconde de temps physique pour les deux viscosités. C'est typiquement ce qui avait été observé sur la Figure 5.5 du Chapitre 5.



(a) (b)

FIGURE 6.4 – (a) Puissance injectée P_c (Eq. 1.4) pour les simulations DNS et les phases continues M.2* et M.10* et (b) puissance dissipée totale et résolue P_ε (Eq. 1.5) en LES et puissance dissipée totale P_ε (Eq. 1.5) en DNS, pour la phase continue M.2*.

La phase dispersée aqueuse a donc été injectée une fois que l'écoulement était devenu permanent, c'est-à-dire à partir de 0,5 seconde. A l'image du Chapitre 4, la phase dispersée est introduite à travers un capillaire positionné dans la zone de circulation. Une comparaison de la position du capillaire entre les simulations et les expériences est illustrée sur la Figure 6.5. La position du capillaire expérimental n'est pas rigoureusement fixe au cours des expériences et n'a pas pu être mesurée avec précision. Toutefois, il a été noté au cours des expériences que le diamètre des gouttes injectées variait en fonction des conditions opératoires. Ainsi, afin de minimiser l'effet du cisaillement à la sortie du

capillaire, celui-ci a été placé dans les simulations à proximité de l'interface, à une hauteur $h = 21$ mm. Le diamètre interne du capillaire a été fixé à 500 µm (valeur expérimentale) et la phase dispersée a été injectée à un débit de $D_v = 3$ mL·min^{-1} pendant 2,5 secondes. La valeur moyenne et l'écart-type des diamètres des gouttes injectées par le capillaire sont présentés dans le Tableau 6.2. Tout comme dans le Chapitre 4, la taille des gouttes en sortie de capillaire est légèrement plus petite pour une viscosité de phase continue de 1,8 mPa·s que pour une viscosité de 10,3 mPa·s. En effet, dans une phase organique peu visqueuse, le diamètre moyen des gouttes de phase aqueuse à la sortie du capillaire est estimé à $\langle d \rangle = 1013$ µm, tandis qu'il est mesuré à $\langle d \rangle = 1395$ µm pour la viscosité la plus élevée. Cela est dû à l'écoulement, plus turbulent pour M.2*, qui favorise le détachement des gouttes à un diamètre plus faible. La comparaison des diamètres injectés entre la Figure 4.3b (Chapitre 4) et le Tableau 6.2 n'est pas évidente, car les tailles ont été mesurées à des débits distincts ($D_v = 0{,}6$ et 3 mL·min^{-1}) et pour des positions de capillaire légèrement différentes (Figure 6.5).

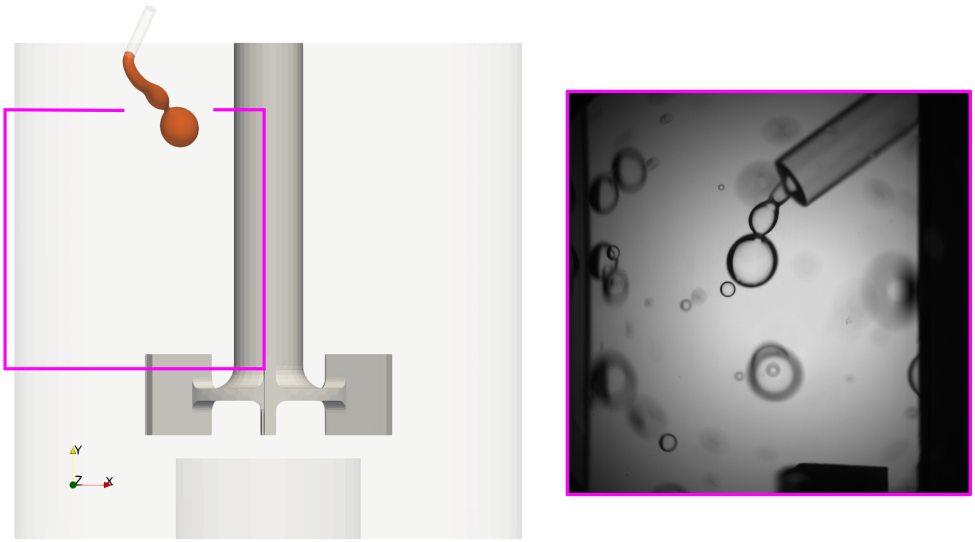


FIGURE 6.5 – Position du capillaire dans le mélangeur lors des simulations et des expérimentations ($D_v = 3$ mL·min^{-1}).

TABLE 6.2 – Diamètre des gouttes de phase aqueuse injectées par capillaire (valeur moyenne et écart type) issu des simulations pour $N = 1200$ rpm, $D_v = 3$ mL·min^{-1}, et deux viscosités de phase continue organique.

Mélange	$\langle d \rangle$ [µm]	σ_d [µm]
M.2*	1013	165
M.10*	1395	145

6.2.2.3 Discrétisation spatiale et validation des simulations

Conformément à l'approche LBM, le maillage est structuré, uniforme et hexaédrique, tel que $\Delta x = \Delta y = \Delta z$. Le réseau $D3Q19$ a été utilisé, car il possède le meilleur compromis entre la stabilité numérique et le coût de calcul (Krüger et al., 2017). Le mélangeur est discrétisé en 800 mailles selon sa longueur et sa largeur, ce qui conduit à un total de $5{,}83 \times 10^8$ mailles hexaédriques, soit une taille caractéristique de maille de 27 µm. Le maillage est donc 2,7 fois plus fin que celui du Chapitre 5. Cela correspond à 111 mailles sur la longueur d'une pale de la Rushton, 130 sur sa hauteur et 18 sur son épaisseur. L'entrefer entre le bout d'une pale et la paroi contient 180 mailles. Des coupes transversales du maillage dans la région de la turbine sont présentées sur la Figure 6.6.

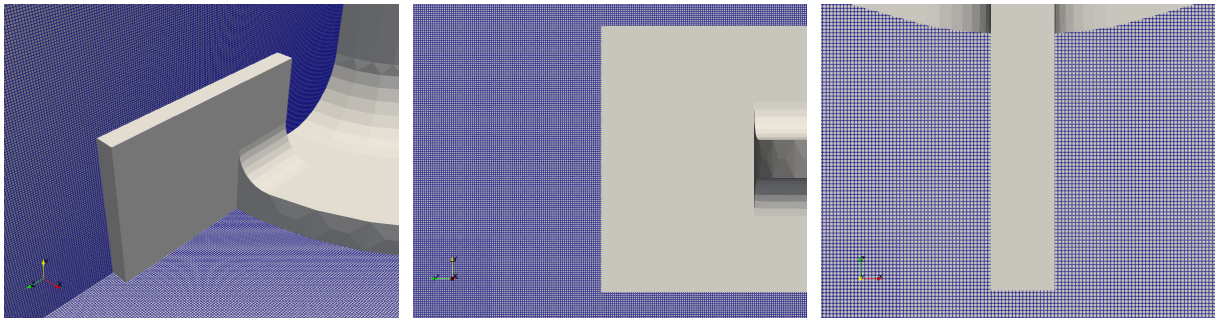


FIGURE 6.6 – Coupes transversales du maillage à proximité de la turbine, utilisée pour les simulations VOF, de gauche à droite : vue isométrique, coupe verticale et coupe horizontale.

Le Chapitre 5 a montré que, pour une discrétisation spatiale de $\Delta x = 73{,}3$ µm, le maillage présentait une grande qualité, proche d'une simulation DNS. En effet, pour la phase continue M.2, la moyenne volumique du rapport $\nu_t / (\nu + \nu_t)$ a été estimée à 0,0075 et diminue jusqu'à 0,0008 pour le cas M.10. Par ailleurs, d'après la Figure 5.5, 97,4 % de la puissance dissipée est directement résolue par le maillage pour M.2, cette proportion atteignant 99,6 % pour M.10.

Ainsi, une simulation LES préliminaire, utilisant le modèle de Smagorinsky avec une constante $C_s = 0{,}1$, a été réalisée sur le maillage $\Delta x = 27$ µm. Pour la phase continue M.2* (la plus turbulente), les puissances dissipées totales et résolues sont présentées sur la Figure 6.4b. Cette figure montre que 99,2 % de la puissance dissipée est directement résolue par la simulation. L'influence du modèle de sous-maille est donc négligeable, ce qui justifie l'utilisation d'une approche DNS avec ce niveau de raffinement. Cela est d'autant plus vrai pour la phase continue M.10*, qui possède un nombre de Reynolds cinq fois plus faible. La Figure 6.4b compare également la puissance dissipée obtenue par une simulation LES et DNS sur le même maillage. La figure montre une bonne concordance entre les deux approches, avec un écart relatif moyen de la puissance dissipée de seulement 2 %.

Par ailleurs, l'échelle de Kolmogorov représente la dimension des plus petits tourbillons de l'écoulement, à partir de laquelle l'énergie est dissipée sous forme de chaleur. Afin de

valider l'approche DNS, il est donc nécessaire de s'assurer que le maillage est suffisamment fin pour capturer l'écoulement jusqu'à cette échelle (Håkansson and Brandt, 2022).

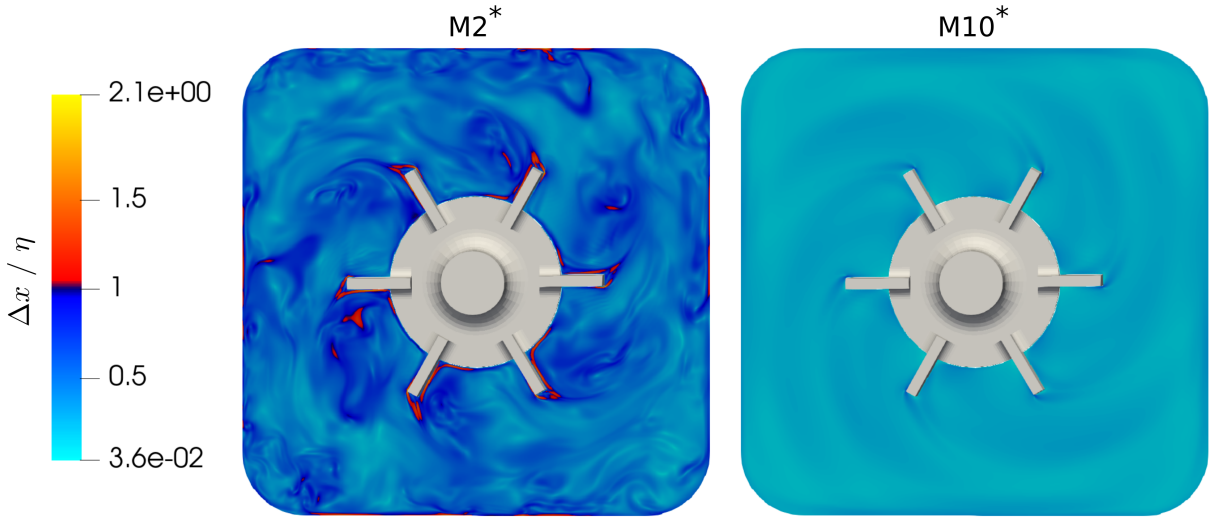


FIGURE 6.7 – Rapport entre la taille des mailles Δx et l'échelle de Kolmogorov locale instantanée η sur une coupe horizontale XY, pour les phases continues M.2* et M.10*.

En utilisant les nombres de puissance N_p issus des simulations, l'échelle de Kolmogorov moyenne est estimée à $\langle\eta\rangle_V = 60$ µm pour M.2* et à $\langle\eta\rangle_V = 205$ µm pour M.10*. Ces valeurs sont donc nettement supérieures à la taille des mailles, $\Delta x = 27$ µm.

Deuxièmement, la Figure 6.7 présente le rapport entre la taille de maille Δx et l'échelle de Kolmogorov locale η. Cette dernière a été déterminée à partir de l'équation 1.9, avec ε le taux de dissipation totale instantanée (voir Eq. 5.10). Pour M.10*, la taille des mailles reste inférieure à l'échelle de Kolmogorov dans l'ensemble du domaine, avec un rapport maximal $\Delta x/\eta = 0{,}66$ au voisinage de la turbine. Ce résultat confirme que la discrétisation spatiale permet une résolution complète de l'écoulement pour cette viscosité. Pour M.2*, le critère $\Delta x/\eta < 1$ est également satisfait dans la quasi-totalité de la cuve, à l'exception de quelques zones très localisées. En effet, près des pales et ponctuellement dans leur sillage, l'échelle de Kolmogorov devient localement plus petite, jusqu'à être environ deux fois inférieure à la taille d'une maille.

Par ailleurs, la résolution des gouttes est généralement le facteur limitant dans les simulations haute résolution de rupture. Ainsi, la résolution spatiale a été comparée à la taille des gouttes typiquement observées au sein des simulations (Figure 6.8). D'après la figure, le maillage est suffisamment fin pour représenter correctement les gouttes mères et leurs déformations. Par exemple, la goutte mère exposée sur la Figure 6.8a possède un diamètre de 1,36 mm et est discrétisée par une cinquantaine de mailles. Lors de son interaction avec la paroi, elle génère un filament d'environ 300 µm de longueur, représenté par environ 12 mailles. Par ailleurs, d'après le Tableau 6.2, les gouttes mères sont discrétisée en moyenne par 37 mailles pour M.2* et 50 maille pour M.10*. Ces valeur sont typiquement dans les ordres de grandeur de la littérature avec généralement $20 < d_{mere}/\Delta x < 100$

(Håkansson and Brandt, 2022; Olad et al., 2023; Vashisth and Andersson, 2025).

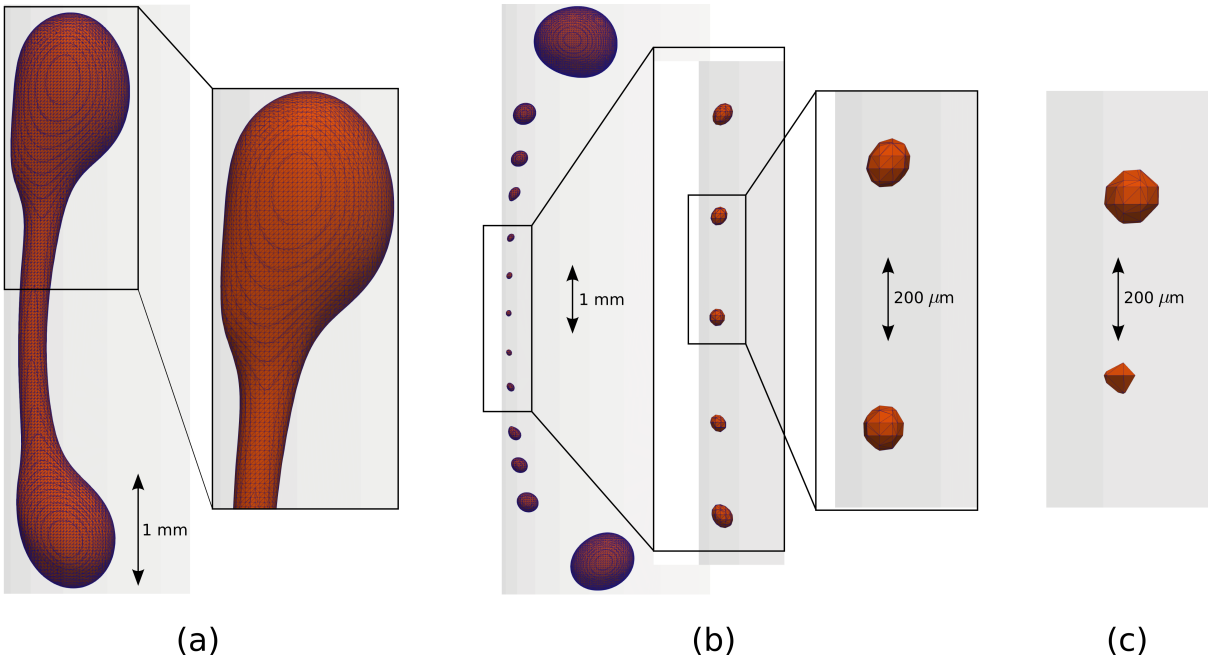


FIGURE 6.8 – Comparaison entre la taille des gouttes et la résolution spatiale des simulations : goutte mère de 1,36 mm (a) déformée et (b) après sa rupture contre la paroi, et (c) plus petite goutte observable.

La Figure 6.8b montre la même goutte après une rupture induite par l'écoulement élongationnel le long de la paroi. Les gouttes satellites issues de cette rupture sont toutes correctement capturées par le maillage, y compris les plus petites. Les deux plus petites visibles sur la figure possèdent des diamètres de 140 µm et 130 µm respectivement.

Il est important de noter que, dans les simulations, la rupture est toujours imposée par la dimension finie du maillage. Par ailleurs, il peut être noté qu'en dessous d'une certaine taille, les gouttes ne sont plus représentées visuellement par une interface. Cette limite de détection visuelle se situe entre 50 µm et 100 µm (Figure 6.8c). Cette disparition est toutefois uniquement liée à l'affichage : l'interface est reconstruite à partir d'une iso-valeur de fraction volumique de $\alpha = 0{,}5$. Les gouttes dont la fraction volumique devient inférieure à ce seuil ne sont donc plus visibles, mais elles restent toujours présentes numériquement. Dans les simulations de ce chapitre, les plus petites gouttes capturées numériquement ont été mesurées aux environs de 10 µm de diamètre.

De plus, a partir d'une certaine taille, il a été observé que la diffusion numérique devenait significative [2] : la taille des gouttes décroît avec le temps jusqu'à disparaître. Cela est principalement dû à un maillage trop grossier pour les représenter correctement.

2. Il peut être noté que M-STAR possède une fonction permettant de convertir les gouttes avec un diamètre inférieur à une taille donnée en particules lagrangiennes, afin de limiter cette diffusion numérique (M-Star Simulations, 2025a). Toutefois, dans le cadre des simulations présentées ici, cette fonction n'a pas été activée.

C'est typiquement le cas pour les petites gouttes présentes sur les Figures 6.8b et 6.8c. Au sein des simulations à haute résolution de rupture, cette problématique est souvent rencontrée dans la littérature (Shao et al., 2018; Håkansson and Brandt, 2022). Dans le cadre de cette étude, cette taille limite n'a pas été déterminée, mais pourra faire l'objet d'une étude plus approfondie. D'après Komrakova et al. (2015), cette dernière apparaît pour des tailles inférieures à 10 fois l'espacement du réseau, soit, dans le cas de notre étude, à partir de 270 µm.

L'objectif étant d'étudier les mécanismes de rupture à l'échelle d'une goutte, ces limitations liées à l'affichage et à la diffusion numérique ne remettent pas en cause les conclusions de ce chapitre. En effet, dans un premier temps, l'analyse porte uniquement sur l'identification des mécanismes, ainsi que sur la position et le nombre de gouttes filles formées immédiatement après la rupture.

Ainsi, le maillage sélectionné (Δx = 27 µm) est, d'une part, suffisamment fin pour résoudre la quasi-totalité des échelles de l'écoulement, jusqu'à l'échelle de Kolmogorov. Il permet donc de reproduire fidèlement la dynamique de l'écoulement, sans devoir recourir à des modèles de sous-mailles. D'autre part, cette résolution spatiale est suffisante pour capturer des gouttes filles d'un diamètre allant jusqu'à 10 µm, ce qui couvre largement la gamme de tailles observées dans le mélangeur (voir Chapitre 3).

6.2.3 Résultats et discussion

6.2.3.1 Mécanisme de rupture

Tout d'abord, différents mécanismes de rupture observés au cours des simulations sont détaillés et comparés aux ruptures expérimentales. La Figure 6.9 illustre un événement de rupture induit par une collision entre une goutte et un tourbillon turbulent dans le jet radial d'une pale. Cet événement a été observé pour la plus faible viscosité de phase continue (μ = 1,8 mPa·s). Après une première rupture, la goutte effectue environ trois quarts de tour dans le mélangeur, sous l'agitateur, avant de remonter légèrement et de pénétrer dans la zone de la turbine, juste derrière une pale. Elle est alors entraînée dans le sillage, région caractérisée par de fortes contraintes hydrodynamiques (voir Chapitre 5), et subit un étirement horizontal (t = 0 ms). La partie en amont de la goutte entame un mouvement de rotation, effectue une révolution complète sur elle-même tout en étant expulsée radialement, tandis que la partie aval est principalement entraînée radialement sans rotation significative (t = 6 ms). Ce mouvement de rotation intensifie la déformation de la goutte et amincit son épaisseur jusqu'à provoquer sa rupture, à t = 14 ms. Cet événement conduit à la formation de m = 7 gouttes filles à partir d'une goutte mère de 1,36 mm. Cette rupture par rotation dans le jet a été observée de nombreuses fois dans les simulations M2*. Elle semble être provoquée par des fluctuations de vitesse ou de pression turbulente induites par la collision avec un tourbillon. Ce dernier est généré dans le sillage, avant d'être expulsé radialement.

La Figure 6.10 illustre un second événement de rupture induit par une collision avec un tourbillon de grande taille. Ce dernier est un exemple typique d'événement observé pour la phase continue M.2*, présentant un comportement très proche de celui des ruptures

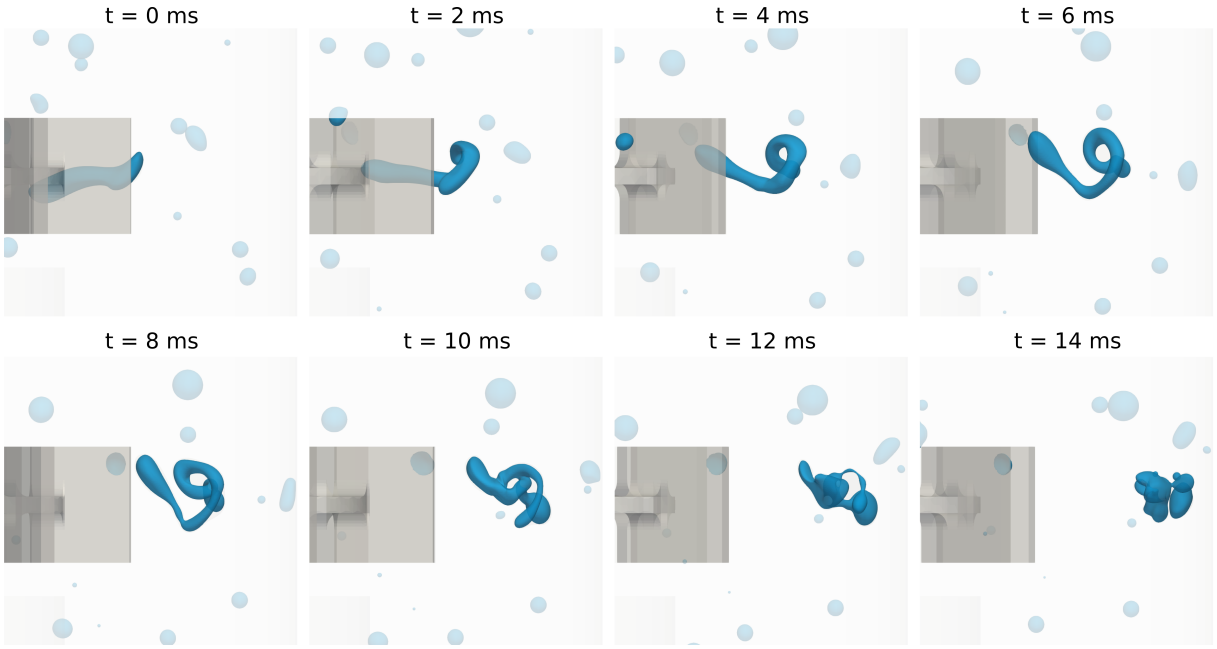


FIGURE 6.9 – Rupture induite par une collision goutte–tourbillon, simulée par LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et M.2*.

visualisées expérimentalement pour cette viscosité (voir Figures 4.4 et 4.5). Après une première rupture provoquée par un tourbillon, l'une des gouttes résultantes effectue trois quarts de tour du mélangeur avant de nouveau entrer dans la zone de décharge, parallèlement à une pale ($t = 0$ ms). Elle est ensuite projetée radialement ($t = 4$ ms), tout en subissant une rotation induite par l'interaction avec un tourbillon de grande taille. À nouveau, une partie de la goutte effectue une rotation complète sur elle-même, tandis qu'une autre partie accompagne le mouvement avant d'être expulsée vers l'extérieur du centre du tourbillon (8 ms $< t <$ 14 ms). Cette dynamique engendre un étirement progressif de la goutte, qui adopte une forme d'haltère avant de se rompre à $t = 16$ ms. La goutte mère, d'un diamètre initial de 950 mm, se fragmente alors en $m = 8$ gouttes filles, dont une de 900 µm, une de 500 µm et 5 de petite taille, présentant des diamètres de l'ordre de 100 µm. Comme explicité ci-dessus, le seuillage VOF semble inadapté à la représentation des petits volumes. Toutefois, toutes les gouttes restent captées numériquement : elles sont représentées par des points gaussiens sur la Figure 6.10.

Ainsi, tout comme dans le Chapitre 4, les Figures 6.9 et 6.10 confirment les observations de Eastwood et al. (2004) : la rupture se produit lors de la collision d'une goutte avec des structures turbulentes de grande taille, et les gouttes accompagnent le mouvement de rotation des tourbillons environnants. Ces résultats sont également cohérents avec les travaux de Andersson and Andersson (2006a) (voir Figure 1.12), qui ont montré qu'une goutte rencontrant un tourbillon de grande taille, plus dense que le fluide environnant, est projetée vers la périphérie de celui-ci. Par ailleurs, une fois encore, les observations sont en désaccord avec la théorie classique de Kolmogorov (1949) et Hinze (1955), même pour la viscosité la plus faible.

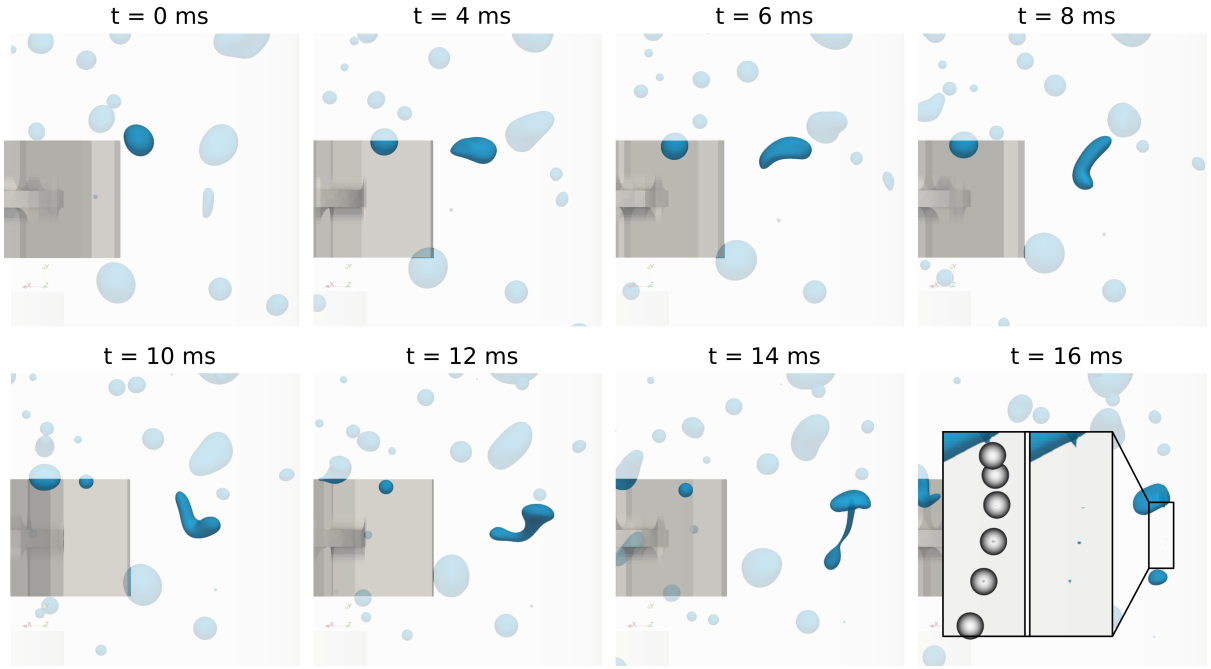


FIGURE 6.10 – Rupture induite par un tourbillon de grande taille, simulée par LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et M.2*.

Les simulations réalisées en conditions de plus forte viscosité M.10* confirment également la tendance observée expérimentalement et prédisent un grand nombre de ruptures induites par l'écoulement élongationnel le long des parois. Un exemple représentatif de ce mécanisme est illustré sur la Figure 6.11. D'après la figure, la goutte est éjectée vers la paroi par l'écoulement radial généré par la turbine Rushton. Elle subit d'abord une légère déformation horizontale sans se rompre, puis, en heurtant la paroi, elle se déforme verticalement sous l'effet combiné de son inertie et de l'écoulement élongationnel local ($t = 4$ ms). Ce double phénomène étire progressivement la goutte de bas en haut, lui donnant une forme d'haltère, avec deux lobes de grand diamètre reliés par un long et fin filament ($t = 12$ ms). Ce dernier continue de s'affiner jusqu'à la rupture en un grand nombre de gouttes satellites ($t = 20$ ms). Comme observé expérimentalement, la rupture se produit en cascade, avec plusieurs ruptures successives le long du filament. Dans l'exemple de la Figure 6.11, la goutte mère, de diamètre initial 1,53 mm, se rompt en deux grosses gouttes filles, de diamètres respectifs 1,25 mm et 1,15 mm, ainsi qu'en 14 gouttes satellites, dont le diamètre varie de 140 µm au centre du filament jusqu'à 400 µm à proximité des extrémités.

La encore, ce mécanisme et la phénoménologie sont identiques à ceux des ruptures observées dans la littérature pour des écoulements extensionnels et cisaillés (Taylor, 1934; Rumscheidt and Mason, 1961; Karam and Bellinger, 1968; Grace, 1982; Stone et al., 1986). Il peut être noté que cette même goutte mère a traversé à deux reprises le sillage des pales, provoquant sa déformation sans que les contraintes hydrodynamiques ne soient suffisantes pour la rompre. Cette observation est en accord avec la Figure 5.15 (Chapitre 5), qui démontre que, pour cette condition opératoire, le taux de cisaillement est plus intense

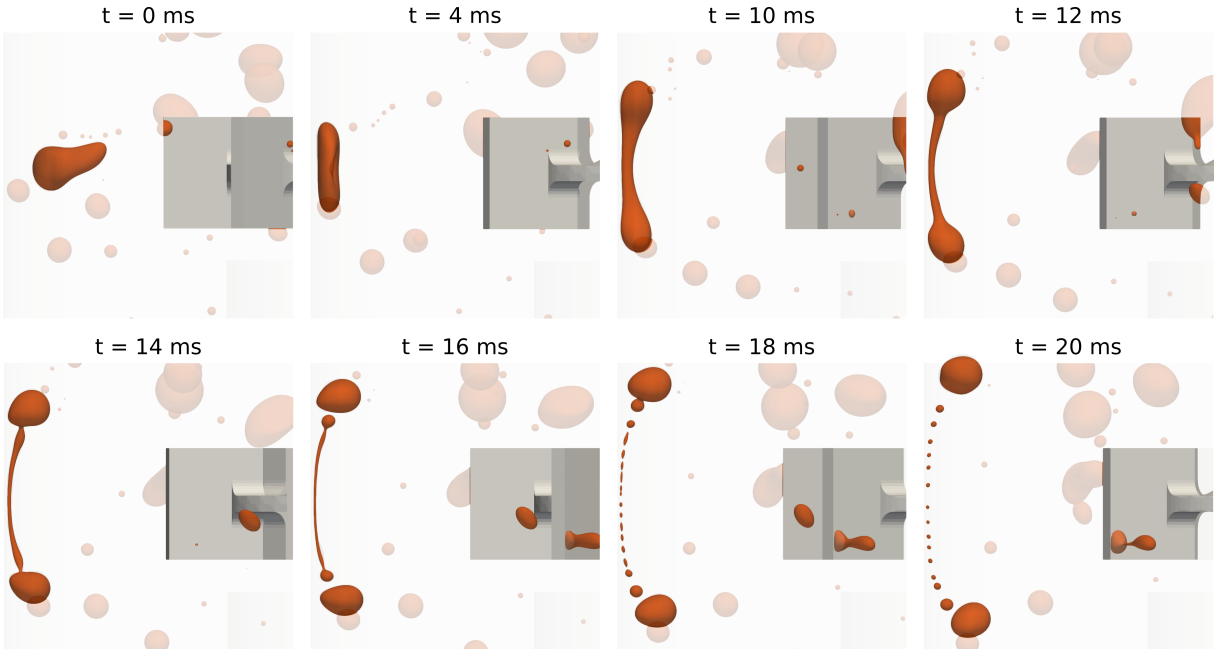


FIGURE 6.11 – Rupture par élongation verticale le long de la paroi, obtenue par simulation LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et une viscosité M.10*.

dans la zone de séparation du jet le long de la paroi que dans le sillage des pales.

Un second mécanisme de rupture, typiquement observé, est illustré sur la Figure 6.12. Une goutte mère de 1,5 mm de diamètre pénètre dans la zone de la turbine en amont d'une pale ($t = 0$ ms). Elle entre alors en collision avec cette dernière : une partie de son volume est expulsée radialement sous l'effet du mouvement de rotation, tandis qu'une autre partie reste temporairement en contact avec la pale, entraînée par son inertie. Cette interaction provoque un étirement significatif dans la direction horizontale et conduit à la formation d'un filament très long et fin, dont la longueur atteint environ la moitié de la taille du mélangeur ($t = 22$ ms). La rupture du filament génère une grosse goutte fille au contact de la paroi, ainsi que 28 gouttes satellites, dont les diamètres varient de 100 à 600 µm. Lors du contact avec la pale, une partie de la goutte glisse au-dessus de la pale et semble y rester accrochée ($t = 12$ ms). En passant par-dessus la pale, la goutte longue et allongée se rompt et donne naissance à une petite goutte en aval de la pale ($t = 18$ ms). À première vue, la longueur du filament peut sembler surprenante et ne peut, actuellement, être vérifiée quantitativement à partir des mesures expérimentales. En effet, ces dernières montrent certes des gouttes fortement allongées horizontalement, mais partiellement masquées par l'opacité des pales. Cependant, des étirements significatifs ont déjà été rapportés dans la littérature (Tjahjadi and Ottino (1991), $0,01 < p < 2.8$).

Par ailleurs, une rupture par élongation verticale est observable à droite de la Figure 6.12 (12 ms $< t <$ 22 ms), formant $m = 16$ gouttes filles, dont 10 de très petite taille ($d < 200$ µm). Il peut être noté qu'en plus de son élongation verticale, la goutte subit un léger déplacement dans la direction orthoradiale au cours de sa déformation. Cette observation est cohérente avec les diagrammes d'Ottino (voir Figure 5.23), qui indiquent

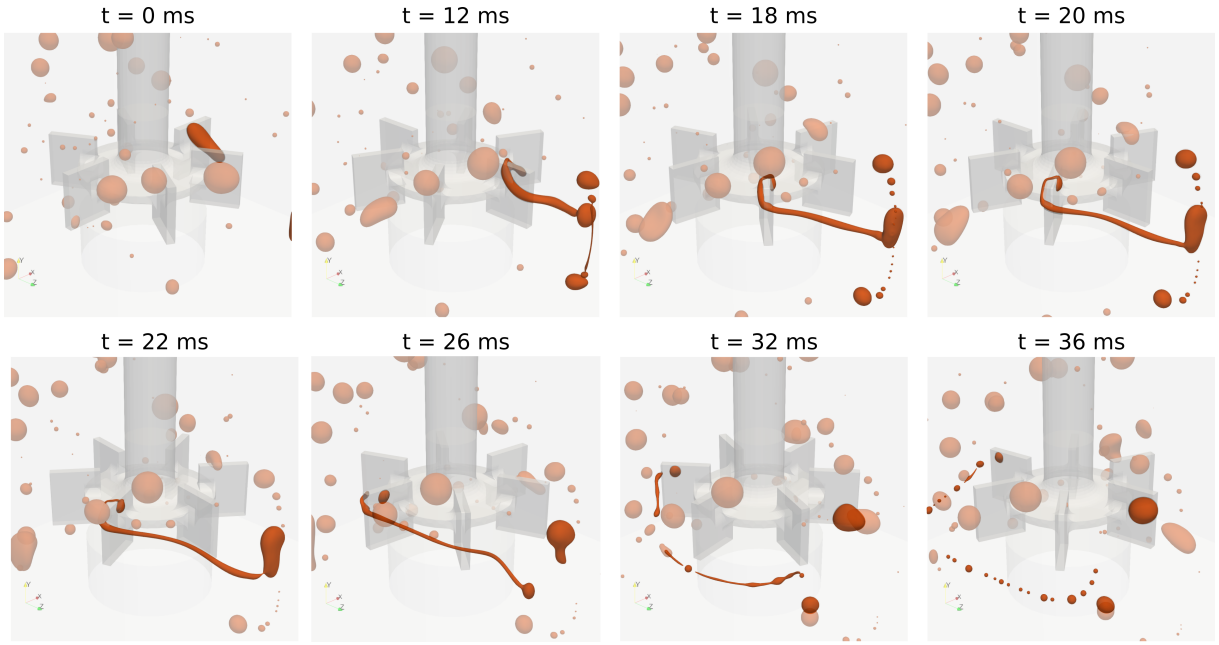


FIGURE 6.12 – Rupture par élongation radiale dans le sillage en aval d'une pale, obtenue par simulation LB-VOF pour $N = 1200$ rpm et M.10*.

la présence d'un écoulement élongationnel et bidirectionnel dans la zone de séparation du jet le long de la paroi.

La rupture principale présentée sur la Figure 6.12 semble donc être induite à la fois par l'écoulement radial dans le sillage et par le contact avec la turbine. Toutefois, ce contact avec la turbine n'est pas systématique, et un nombre important de ruptures est observé uniquement en raison d'une élongation horizontale dans le sillage des pales. Ce mécanisme de rupture dans le sillage en amont d'une pale est observé et décrit par plusieurs auteurs de la littérature (Kumar et al., 1991, 1998; Maaß and Kraume, 2012; Krakau and Kraume, 2019b). Dans son étude, Konno et al. (1983) remarquent que, juste en amont des pales, les gouttes se déforment dans une seule direction, dans le sens de l'écoulement, tandis que dans la zone de décharge, la déformation est plus chaotique, tridimensionnelle et indépendante du moment de rotation de la turbine. Cette observation est totalement cohérente avec les ruptures obtenues pour la phase continue M.2* (ruptures dans la zone de décharge illustrées sur les Figures 6.9 et 6.10), alors que pour la phase continue M.10*, l'allongement semble s'effectuer exclusivement dans le sens de l'écoulement, quel que soit le mécanisme ou la région où se produit l'événement (Figures 6.11 et 6.12).

Enfin, les différents mécanismes de rupture observés par simulation LB-VOF au cours des $N_b = 100$ premiers événements ont été identifiés et classés selon leur nature. La probabilité d'occurrence de chacun de ces mécanismes, pour les deux viscosités considérées (M.2* et M.10*), est présentée sur la Figure 6.13. Ces derniers sont également comparés aux résultats expérimentaux du Chapitre 4. Pour la phase continue de plus faible viscosité, plus de la moitié des événements correspondent à des ruptures induites par une interaction avec un tourbillon turbulent, avec une probabilité de 57 %. Les ruptures provoquées par

une élongation horizontale dans le sillage représentent 31 %, tandis que les ruptures à la paroi représentent seulement 12 % des événements. Ces valeurs sont cohérentes avec les observations expérimentales, qui indiquaient respectivement 66 %, 16 % et 9 % pour ces trois mécanismes. Pour la phase continue M.10*, les simulations prédisent que 72 % des ruptures sont induites à une élongation verticale le long de la paroi, tandis que 28 % résultent d'une élongation horizontale dans le sillage des pales. Expérimentalement, ces proportions étaient respectivement de 62 % et 33 %. Par ailleurs, pour cette viscosité, aucun évènement de rupture causé par des fluctuations turbulentes n'a été observé par les deux approches.

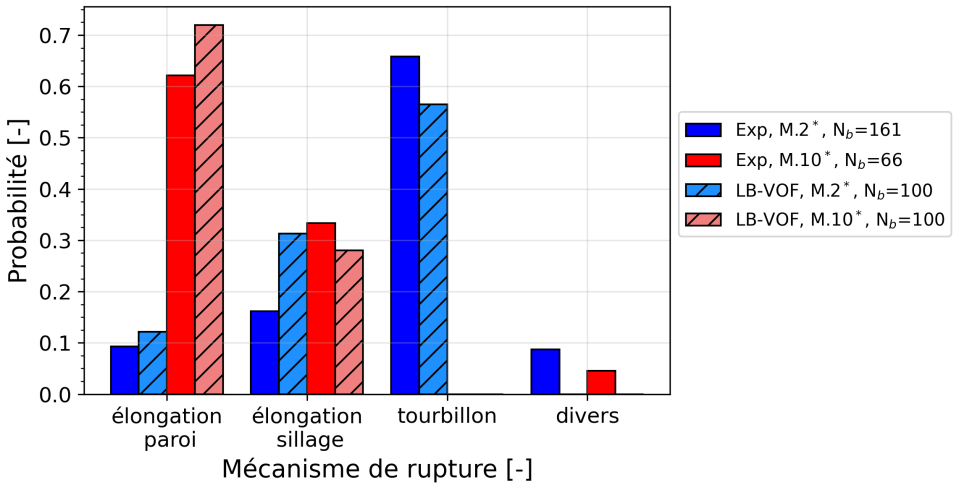


FIGURE 6.13 – Comparaison des mécanismes de rupture entre les expériences (Chapitre 4) et les simulations LB-VOF, pour $N = 1200$ rpm et les phases organiques M.2* et M.10*.

Ainsi, les résultats des simulations confirment clairement les observations présentées dans les chapitres précédents (voir Chapitre 4 et 5). La Figure 6.13 met en évidence un changement de la nature des contraintes hydrodynamiques responsables de la rupture, induit par l'augmentation de la viscosité de la phase continue. De plus, pour la phase continue M.10*, la rupture est exclusivement induite par des contraintes de cisaillement, typiquement dans le sillage ou le long de la paroi. Les simulations numériques confirment également la tendance observée expérimentalement, avec une dynamique de rupture plus rapide pour la phase continue M.2* que pour M.10*. En effet, pour M.2*, les $N_b = 100$ premiers événements de rupture se produisent au cours des 400 premières millisecondes après l'injection, tandis que pour M.10*, le même nombre d'événements est observé sur une durée 2,5 fois plus longue (une seconde). Cette différence souligne que, à faible viscosité, les contraintes hydrodynamiques responsables de la rupture sont plus intenses ou réparties sur une zone plus large.

De plus, conformément aux observations rapportées dans la littérature (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b), pour la phase continue M.2*, les contraintes

de cisaillement visqueuses et les contraintes turbulentes coexistent et sont toutes deux susceptibles d'induire la rupture.

Les écarts entre les prédictions des simulations et les mesures expérimentales peuvent s'expliquer par les limites de la visualisation expérimentale, qui rendent l'identification et la compréhension des mécanismes plus complexes. D'une part, les images capturées sont en deux dimensions, et d'autre part, l'opacité de la turbine masque partiellement certaines zones d'intérêt. Ce biais est amplifié par le caractère turbulent de l'écoulement pour M.2*, qui engendre un mouvement tridimensionnel et instationnaire, rendant l'identification des mécanismes de rupture plus difficile.

6.2.3.2 Localisation de la rupture

Suivant la méthodologie utilisée dans le paragraphe 4.3.2 du Chapitre 4, les positions des 100 premières ruptures ($N_b = 100$) ont été extraites des simulations. La Figure 6.14 présente la projection 2D de ces positions dans une coupe horizontale XY, tandis que la Figure 6.15 illustre leur projection dans les plans verticaux XZ et YZ. Pour ces deux plans verticaux, seules les ruptures situées respectivement dans les plages -4 mm $< Y < 4$ mm et -4 mm $< X < 4$ mm sont représentées. Par ailleurs, ces deux plans ont été concaténés et affichés sur le même axe des abscisses, que l'on notera X^*. Les événements de rupture en double ont ensuite été supprimés. Sur les Figures 6.14 et 6.15, le nombre de gouttes filles produites par chaque rupture m est également rapporté. Cependant, ce dernier sera discuté plus en détail dans le paragraphe suivant (6.2.3.3). La fréquence d'acquisition des images issues des simulations a été fixée à 500 fps, soit une image toutes les 2 ms. La position de chaque rupture est définie comme le centre de masse de la goutte au pas de temps précédant sa rupture. Ce centre se situe généralement le long du filament formé lors de la déformation. Il est important de noter que, comme dans le Chapitre 4, seule la rupture primaire est considérée : les ruptures successives qui se produisent le long du filament ne sont pas comptabilisées comme un événement de rupture (Solsvik et al., 2016). Autrement dit, la position de la rupture est définie comme celle de la première rupture de la goutte mère. Le capillaire est illustré par un disque noir et le sens de rotation est indiqué par une flèche. De plus, les parois du mélangeur et la turbine, pour une position fixe arbitraire, sont représentées sur les figures à échelle réelle.

Les Figures 6.14 et 6.15 confirment les observations des chapitres précédents, avec un changement de régime notable entre les deux viscosités extrêmes. En effet, d'après la Figure 6.14, pour la phase continue M.2*, les ruptures sont réparties de manière homogène dans le plan horizontal, sans région préférentielle, avec de forte probabilité de rupture. Ces dernières peuvent se produire près des pales, dans leur sillage, ou près des parois. Les gouttes ont tendance à se rompre du côté droit de la figure, pour X positif : leur rupture apparaît donc rapidement après leur injection, après avoir fait entre un quart et trois quarts du tour du mélangeur.

A l'inverse, lorsque la viscosité de la phase continue est multipliée par cinq (M.10*), les ruptures deviennent spatialement plus localisées. Elles se produisent majoritairement

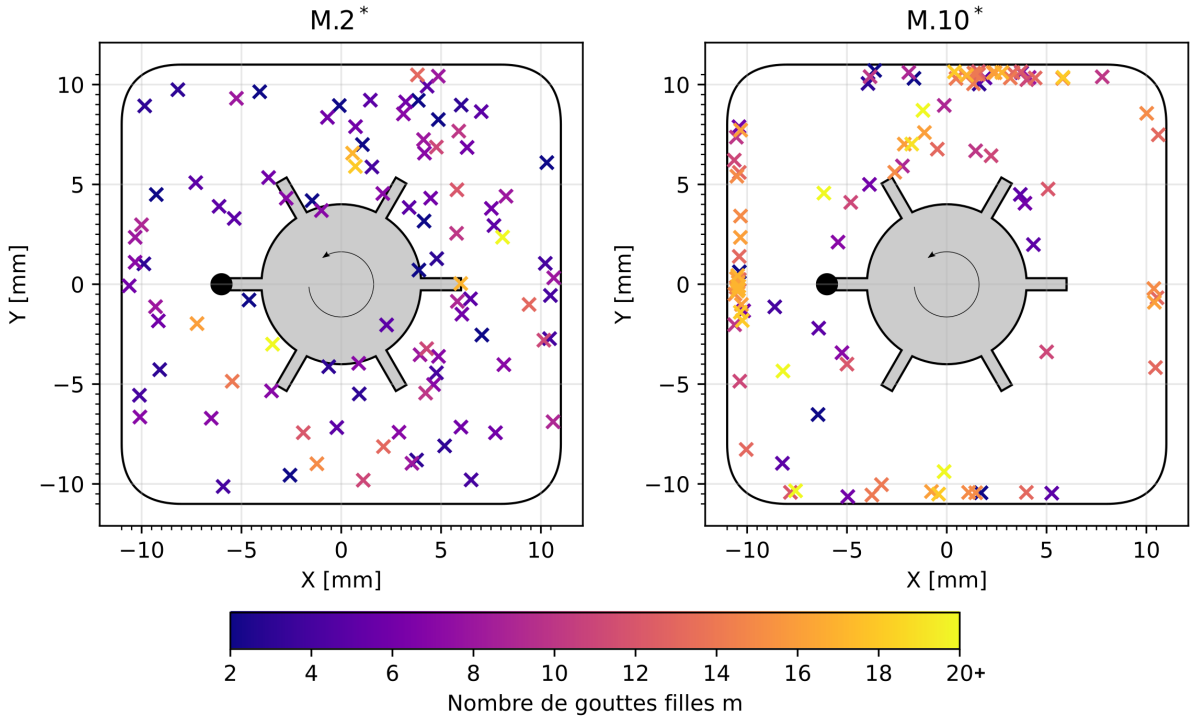


FIGURE 6.14 – Projection dans un plan horizontal XY des positions des $N_b = 100$ premières ruptures et du nombre de gouttes filles générées, pour $N = 1200$ rpm et les phases continues M.2* et M.10*.

le long des parois, pour $X < -10$ mm et $Y > 10$ mm. Ces ruptures surviennent principalement au centre des faces de la cuve, aux environs de $Y = 0$ mm et $X = 0$ mm. Cela confirme le bon positionnement de la zone d'observation de la caméra lors des expériences du Chapitre 4. Toutefois, quelques ruptures sont observées sur les faces opposées du mélangeur ($X > -10$ mm et $Y < -10$ mm), ou proches des coins pour $|X| > 5$ mm et $|Y| > 5$ mm. Quelques événements se produisent également dans le balayage des pales, sans doute dus aux contraintes induites dans le sillage. De plus, après injection, la rupture est plus lente que pour M.2* : les gouttes effectuent généralement trois quarts de tour, voire un tour complet du mélangeur avant de se rompre.

La Figure 6.15 confirme l'ensemble de ces observations. Pour la phase continue M.2*, les ruptures sont majoritairement positionnées dans la zone de décharge ou dans le volume balayé par la turbine ($|X^*| > 3$ mm), à une altitude comprise entre 4,5 mm $< Z <$ 8 mm. Les événements au centre de la figure ($|X^*| < 3$ mm) correspondent à des ruptures localisées dans le sillage des pales, à proximité du disque de la turbine Rushton (voir Figure 6.14). Ils se produisent en réalité sur des plans légèrement en amont et en aval du centre du plan représenté, proches des bornes, pour $|X| \lesssim 4$ mm et $|Y| \lesssim 4$ mm. La Figure 6.15 illustre un événement de rupture survenu à $Z = 11{,}5$ mm. Bien que cette position soit rare, elle n'est pas isolée. Elle correspond à une goutte ayant pénétré dans la zone de décharge aux coordonnées ($X^* = -10$ mm, $Z = 8$ mm), puis entraînée par l'écoulement ascendant généré par la séparation du jet, avant de se rompre sous l'effet

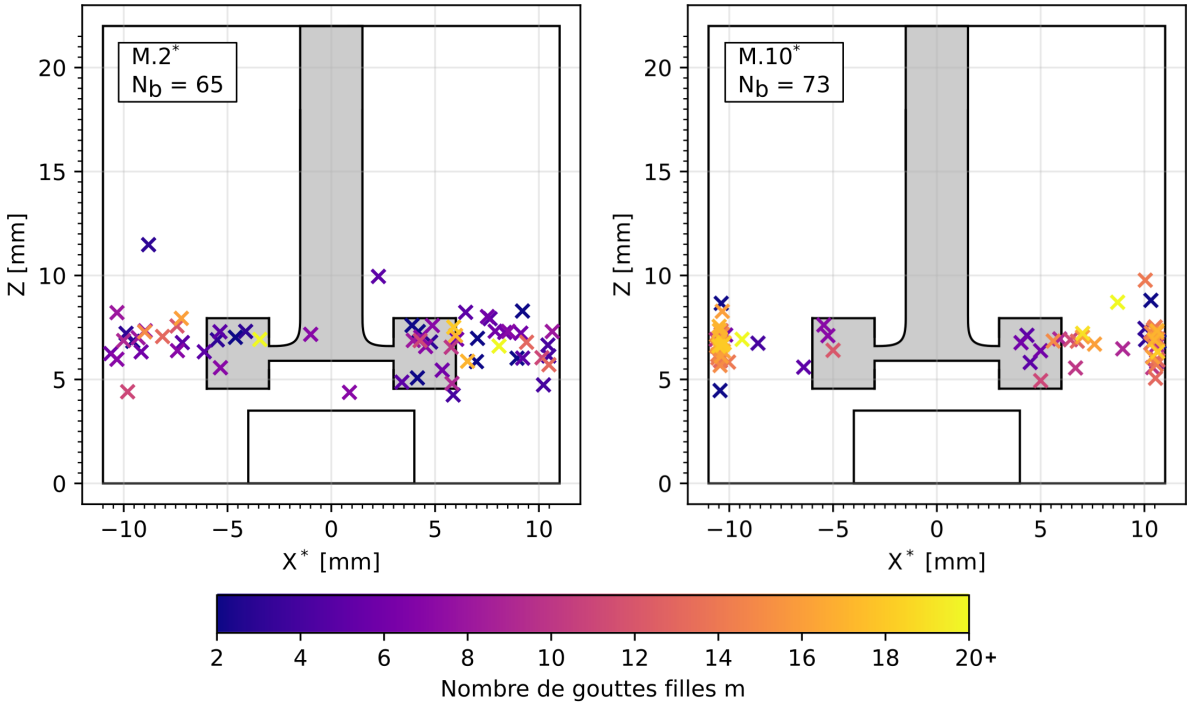


FIGURE 6.15 – Projection des ruptures dans un plan vertical X^*Z et du nombre de gouttes filles générées, pour $N = 1200$ rpm et les phases continues M.2* et M.10*.

d'un mouvement de rotation dans la zone de recirculation.

En revanche, pour la phase continue M.10*, les ruptures se produisent dans une région très restreinte du mélangeur, majoritairement dans la zone de séparation du jet radial, le long de la paroi entre 4,5 mm $< Z <$ 8 mm. En effet, 72 % des ruptures ont lieu près des parois, pour des abscisses $|X^*| \geq 10$ mm. A titre informatif, les évènements dans cette région ne correspondent qu'a 15 % des ruptures pour M.2*. Pour la phase continue M.10*, les 28 % restantes sont positionnées près des pales ou dans le jet radial, et sont induites par une élongation horizontale dans le sillage des pales (voir Figure 6.12).

Les résultats des Figures 6.14 et 6.15 sont en accord avec la localisation des zones de forte contrainte hydrodynamique mises en évidence par les simulations de CFD monophasique (Chapitre 5). En effet, pour la phase continue M.2*, le taux de dissipation turbulent est maximal dans le sillage en amont des pales. Ce dernier est expulsé radialement au cours de la rotation, produisant des événements typiquement localisés pour $|X^*| > 3$ mm. Pour la phase continue M.10*, les contraintes turbulentes sont nulles, et la rupture est exclusivement induite par les contraintes de cisaillement visqueux. Celles-ci sont plus intenses le long de la paroi que dans le sillage, ce qui explique la proportion deux fois plus élevée de ruptures observées dans la première région.

Toutefois, il semblerait que les maxima locaux des taux de cisaillement et de dissipation turbulente, situés au contact immédiat des pales, ne jouent pas un rôle déterminant dans la rupture, contrairement à ce que suggère la théorie, comme en attestent les quelques événements observés dans cette région. Cela s'explique probablement par leur caractère

très localisé, qui ne permet pas une déformation importante des gouttes et, par conséquent, leur rupture.

Les travaux portant sur la rupture de goutte unique en cuve agitée sont rares, et peu d'entre eux rapportent la localisation des événements. Konno et al. (1983) ($10^4 < Re < 10^5$) ont observé des ruptures dans deux régions spécifiques : juste derrière les pales et en dehors du volume balayé par celles-ci, lorsque l'écoulement est projeté radialement. En corrélant la position des ruptures avec celle des pales, Krakau and Kraume (2019b) ($17000 < Re < 50000$), ont constaté que la majorité des événements se produisent dans le sillage en aval des pales, lorsque celles-ci se déplacent radialement vers les parois. Ils ont également noté que la rupture se produit à proximité de la zone d'injection. Ces résultats sont cohérents avec ceux présentés sur les Figures 5.15 et 6.15 pour la phase continue M.2* ($Re = 1260$). Toutefois, à notre connaissance, aucune étude menée en cuve agitée n'a rapporté de ruptures induites par l'écoulement élongationnel le long de la paroi, comme cela est majoritairement observé pour la phase continue M.10*. Ce mécanisme pourrait être du au régime de transition considéré ($200 < Re < 1300$), proche du laminaire (Chapitre 5), loin des régimes pleinement turbulents généralement étudiés. Les ruptures induites par la paroi pourraient également être favorisées par la géométrie spécifique étudiée, qui présente des caractéristiques non standards : un mélangeur cubique, avec un rapport $D/T \approx 0{,}55$. Le jeu réduit entre l'extrémité de la turbine et la paroi pourrait en effet accentuer les contraintes de cisaillement dans la zone de séparation du jet, favorisant ainsi ce mécanisme.

Dans un dernier temps, la Figure 6.16 présente une comparaison des positions des ruptures entre les simulations et les mesures expérimentales (Chapitre 4). Pour augmenter le nombre d'événements, toutes les positions de rupture obtenues par simulation ont été placées du même côté de la cuve. Enfin, pour faciliter la comparaison avec les mesures expérimentales, le référentiel de la figure a été translaté à la paroi, aux coordonnées $(-11, 0, 0)$.

La Figure 6.16 démontre que les localisations des ruptures issues des simulations et celles observées expérimentalement sont très cohérentes. C'est particulièrement le cas pour la phase continue M.10*, où les positions de rupture sont presque identiques entre les deux approches. La majorité des ruptures se produisent dans la zone de séparation du jet radial, entre $z = 5$ mm et $z = 7,5$ mm, le long de la paroi, pour $0,1 < x < 1,1$ mm. En effet, respectivement 57 % et 60 % des ruptures observées expérimentalement et par simulation se produisent dans cette région restreinte de 2,5 mm^2. De plus, quelques ruptures sont observées légèrement au-dessus ou au-dessous de cette région, ou dans le jet des pales (2 mm $< x <$ 5 mm), aussi bien dans les résultats expérimentaux que numériques.

Pour la phase continue M.2*, la concordance entre les observations expérimentales et les résultats numériques semble moins marquée, mais reste qualitativement très bonne. La Figure 6.16 montre que les ruptures observées expérimentalement se produisent principalement dans la zone de décharge, pour 1 mm $< x <$ 5 mm, tandis que les simulations prédisent des ruptures à la fois dans cette région et dans le volume balayé par les pales, entre $x = 5$ mm et $x = 8$ mm. L'absence de ruptures expérimentales dans cette seconde

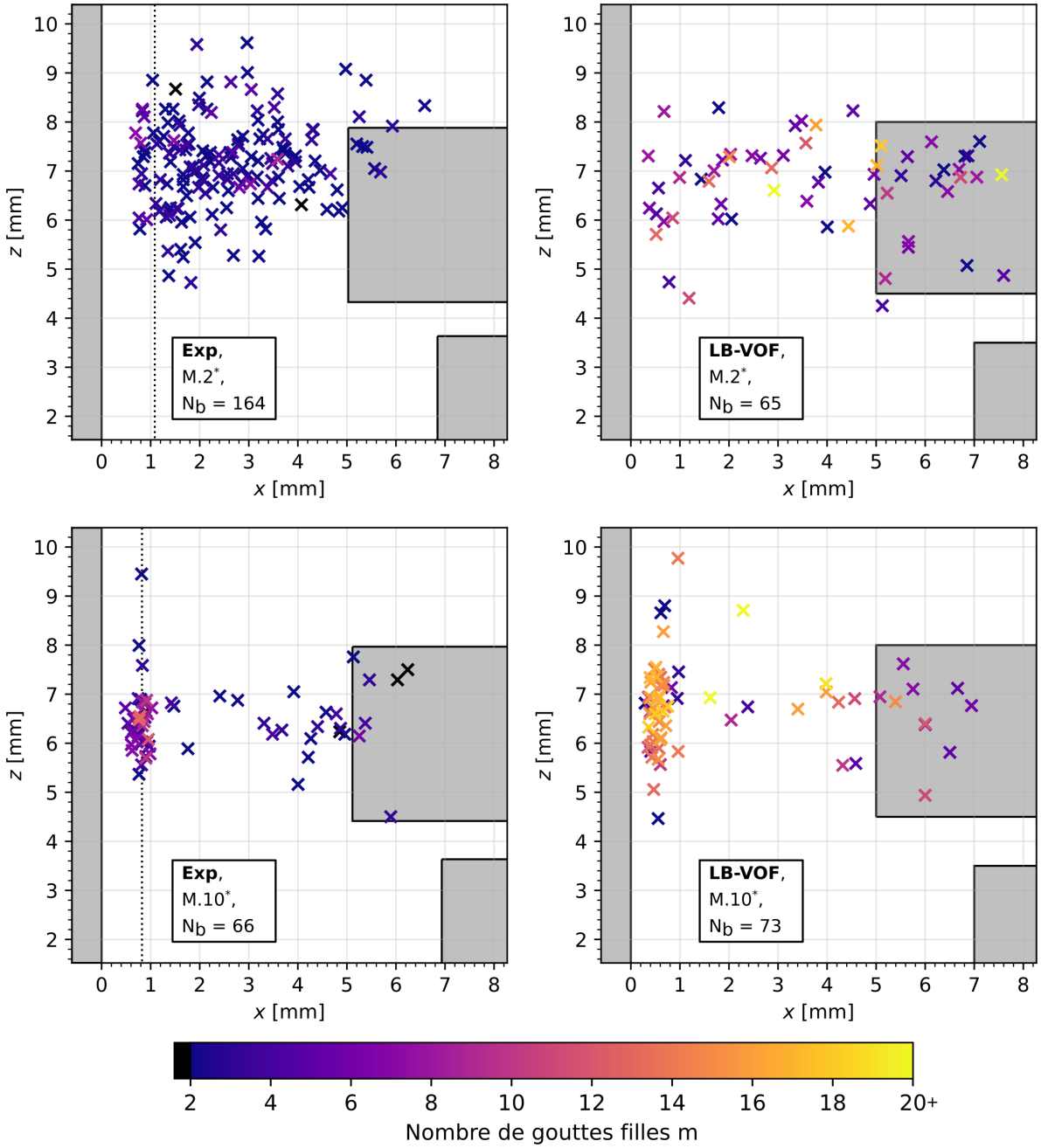


FIGURE 6.16 – Comparaison des positions des ruptures et du nombre de gouttes filles générées entre les expériences (Chapitre 4) et les simulations LB-VOF, pour $N = 1200$ rpm et les phases continues M.2* et M.10*.

zone peut s'expliquer par l'opacité de la turbine, qui a empêché leur visualisation. Cela explique notamment les écarts entre les observations expérimentales et numériques pour la phase continue M.2*, qui présente, par rapport à M.10*, un nombre conséquent de ruptures proches des pales.

Par ailleurs, comme discuté dans le Chapitre 4, des gouttes fortement déformées hori-

zontalement peuvent parfois émerger de derrière les pales. De plus, l'apparition successive d'une grosse goutte, suivie d'un grand nombre de gouttes satellites, puis d'une seconde grosse goutte, a quelquefois été observée expérimentalement. Ces deux phénomènes suggèrent que des déformations, voire des ruptures en forme d'haltère, se produisent derrière les pales dans le dispositif expérimental. Toutefois, comme les ruptures n'étaient pas visibles, elles n'ont pas été reportées sur la Figure 6.16. Les résultats des simulations numériques permettent donc de confirmer l'hypothèse d'un nombre conséquent de ruptures en aval des pales.

Enfin, les observations expérimentales indiquent que les positions des ruptures sont légèrement au-dessus du centre du jet, situé à $z = 6{,}25$ mm. La modification de l'orientation du jet est attribuée à une inclinaison des pales dans le dispositif expérimental de 1,5°. Cela explique pourquoi cette tendance est moins observée au sein des simulations, pour la même viscosité de la phase continue.

Les simulations LB-VOF présentées ci-dessus permettent ainsi non seulement de confirmer les résultats expérimentaux du paragraphe 4.3.2, mais aussi d'accéder à des mécanismes de rupture dans des régions non visibles expérimentalement. En effet, contrairement aux mesures du Chapitre 4, limitées à une observation bidimensionnelle dans une zone restreinte, les simulations fournissent une observation plus globale, en trois dimensions, et permettent une localisation plus précise des positions de rupture.

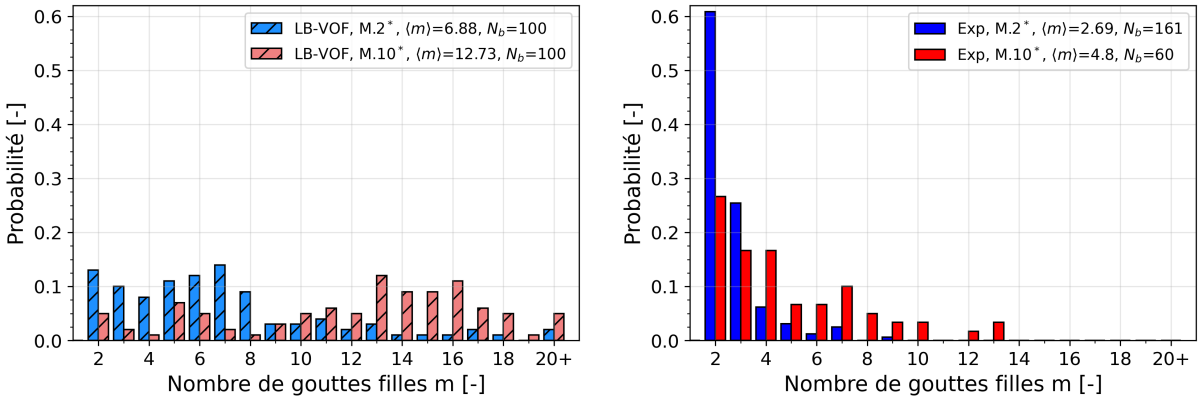
6.2.3.3 Nombre de gouttes filles

La quantification du nombre de gouttes filles associées à chaque localisation de rupture est présentée sur les Figures 6.14 et 6.15. Ces figures montrent que le nombre de gouttes filles issues d'un événement de rupture augmente avec la viscosité de la phase continue. En effet, pour la phase continue M.2*, chaque rupture génère typiquement entre 2 et 10 gouttes filles, bien que certaines ruptures produisent ponctuellement un nombre plus élevé. À l'inverse, pour la phase continue plus visqueuse (M.10*), la tendance s'inverse : la majorité des événements produisent plus de 14 gouttes filles, tandis que quelques ruptures ponctuelles en produisent moins de 10.

Par ailleurs, l'augmentation de m ne semble pas liée à un changement de localisation des ruptures avec la viscosité, mais bien à l'effet direct de l'augmentation de la viscosité. En effet, pour M.10*, les ruptures induites par l'écoulement élongationnel le long des parois ($|X| \geq 10$ mm et $|Y| \geq 10$ mm) produisent en moyenne 12,6 gouttes filles, contre seulement 6,7 pour M.2*. De manière similaire, aucune différence notable sur le nombre de gouttes filles produites n'est observée selon les zones du mélangeur : les ruptures dans le sillage des pales ($|X| < 10$ mm et $|Y| < 10$ mm) produisent en moyenne 13,0 gouttes filles pour M.10*, contre 6,90 pour M.2*. Cette observation est en contradiction avec les résultats expérimentaux, qui montraient pour la phase continue M.10*, en moyenne 2,5 gouttes filles formées pour les événements induits dans la zone de décharge, contre 6,5 pour ceux observés au contact de la paroi. Cette divergence peut s'expliquer par certaines limitations expérimentales, notamment les pales qui masquent partiellement les ruptures

dans cette région et peuvent conduire à une sous-estimation du nombre réel de gouttes filles observées.

Pour compléter ces résultats, la Figure 6.17a présente la distribution du nombre de gouttes filles issues des $N_b = 100$ premières ruptures pour les phases continues organiques M.2* et M.10*. Là encore, l'augmentation de la viscosité conduit à une augmentation du nombre moyen de gouttes filles : une multiplication par cinq de la viscosité double le nombre moyen de gouttes produites, avec $\langle m \rangle = 6{,}9$ pour M.2* et $\langle m \rangle = 12{,}7$ pour M.10*. Pour la viscosité la plus faible ($\mu = 1{,}8$ mPa·s), la distribution du nombre de gouttes filles semble être uniforme entre $m = 2$ et $m = 8$, puis décroît progressivement jusqu'à $m = 20$. Pour cette viscosité, 77 % des ruptures génèrent $m \leq 8$ gouttes filles. Pour la phase continue M.10*, la forme de la distribution se présente plutôt comme la somme de deux gaussiennes : une première de faible amplitude entre $m = 2$ et $m = 8$, et une seconde, beaucoup plus marquée, entre $m = 8$ et $m = 20$. La première population de la distribution ne représente que 22 % des événements de rupture, tandis que 78 % des ruptures génèrent plus de huit gouttes filles. De manière surprenante, les deux distributions semblent s'inverser autour d'une valeur critique, avec autant d'événements produisant $m \leq 8$ gouttes filles pour M.2* que d'événements en produisant $m \geq 8$ pour M.10*.



(a) (b)

FIGURE 6.17 – Nombre de gouttes filles générées pour les phases continues M.2* et M.10* à $N = 1200$ rpm : (a) pour les $N_b = 100$ premières ruptures extraites des simulations et (b) pour respectivement les $N_b = 161$ et les $N_b = 60$ événements expérimentaux.

A titre de comparaison, la Figure 6.17b présente le nombre de gouttes filles produites, mesuré expérimentalement (Chapitre 4). Les deux approches illustrent une même tendance, avec une augmentation du nombre de gouttes filles générées avec la viscosité de la phase continue. Toutefois, les résultats semblent indiquer que les simulations dépassent grandement les mesures expérimentales, avec un nombre moyen de gouttes filles environ 2,5 fois plus élevé. En effet, pour la phase continue M.2*, la moyenne passe de $\langle m \rangle = 2{,}69$ expérimentalement à $\langle m \rangle = 6{,}88$ lors des simulations. La même tendance est observée

pour M.10*, avec une augmentation de $\langle m \rangle = 4{,}8$ à $\langle m \rangle = 12{,}73$. Pour la plus faible viscosité, les résultats expérimentaux indiquent que la rupture binaire est majoritaire, tandis que la simulation prédit un maximum décalé vers des valeurs de m plus élevées. Pour une viscosité de 10,3 mPa·s, seulement 7,5 % des ruptures produisent plus de 10 gouttes filles, alors que les simulations estiment que 10 fois plus d'événements génèrent $m \geq 10$ gouttes filles, ces dernières représentant 74 % des ruptures. Cette différence notable entre les deux approches est également observée sur la Figure 6.16

Les tendances expérimentales et numériques étant similaires, les conclusions tirées dans le Chapitre 4 restent valables. Les simulations confirment que la rupture multiple ($m \geq 3$) est prédominante dans les systèmes liquide–liquide (Konno et al., 1983; Kuriyama et al., 1995; Galinat et al., 2005; Andersson and Andersson, 2006b; Maaß et al., 2007; Maaß and Kraume, 2012; Solsvik and Jakobsen, 2015b). De plus, la phase continue visqueuse considérée (M.10*) présente un comportement similaire vis-à-vis de la rupture par rapport à celui des phases dispersées visqueuses : les gouttes subissent typiquement des étirements marqués, produisent de longs et fins filaments, et génèrent un nombre important de petites gouttes satellites (Collins and Knudsen, 1970; Kuriyama et al., 1995; Eastwood et al., 2004; Andersson and Andersson, 2006b; Sanjuan-Galindo et al., 2015; Solsvik and Jakobsen, 2015b; Hamed et al., 2024). Enfin, les résultats numériques confirment que la plupart des modèles de distribution de taille de gouttes filles (DDSD) employés dans les bilans de population (Liao and Lucas, 2009), fondés sur des ruptures binaires et/ou symétriques, ne sont pas adaptés au système considéré ici. Une comparaison plus qualitative avec la littérature est encore une fois complexe (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Krakau and Kraume, 2019b), en raison des différences significatives entre les expériences menées vis-à-vis du dispositif étudié, de l'écoulement généré, de la taille des gouttes mères et des propriétés physico-chimiques des phases explorées.

Enfin, les écarts observés entre les approches expérimentales et numériques peuvent s'expliquer par des divergences de tension interfaciale et/ou de taille de goutte mère entre les deux approches. En effet, comme le montre la Figure 2.6 présentée au Chapitre 2, la tension interfaciale diminue au cours du temps d'environ 1 $\mathrm{mN \cdot m^{-1}}$ entre la formation initiale de la goutte et la fin de la mesure, soit 10 minutes plus tard. Cela est notamment attribué à la diffusion progressive des tensioactifs (HDEHP) ou d'impuretés vers l'interface. Or, dans les simulations, les valeurs utilisées sont constantes au cours du temps et correspondent à celles mesurées après 10 minutes, conformément aux recommandations de AFNOR (2004). La tension interfaciale prise en compte numériquement est donc possiblement plus faible que celle réellement présente au moment des expériences, ce qui favorise la déformation et l'allongement des gouttes, et conduit ainsi à un nombre plus élevé de gouttes filles générées lors de la rupture (Solsvik and Jakobsen, 2015b; Hamed et al., 2024).

Par ailleurs, lors des expériences $N_b = 161$ (M.2*) et $N_b = 60$ (M.10*) événements de rupture ont été enregistrés sur une durée de 1,3 s d'acquisition (pour cinq répétitions) et dans une zone restreinte du mélangeur. En revanche, dans les simulations, l'observation est effectuée sur l'ensemble du volume du mélangeur, en trois dimensions, et les $N_b = 100$

premières ruptures sont observées sur des durées plus courtes : 400 ms pour M.2* et 1 s pour M.10*. Ainsi, les gouttes mères des événements considérés possèdent possiblement des diamètres plus faibles expérimentalement que numériquement. Par ailleurs, afin de limiter les effets de cisaillement à la sortie du capillaire, ce dernier a été positionné à proximité de l'interface avec l'air dans les simulations. En revanche, expérimentalement, celui-ci est situé dans la zone de recirculation, avec des effets de cisaillement supérieurs. Il est donc possible que les gouttes injectées numériquement aient un diamètre supérieur à celles générées expérimentalement. Sachant que le nombre de gouttes filles augmente avec la taille de la goutte mère (Kuriyama et al., 1995; Maaß et al., 2007; Solsvik and Jakobsen, 2015b), les deux remarques explicitées ci-dessous peuvent expliquer la surestimation du nombre de gouttes filles générées dans les simulations.

6.2.4 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, la dynamique locale de la rupture a été analysée par des simulations en combinant la méthode de Boltzmann sur réseau (**LBM**), la simulation numérique directe (**DNS**) et l'approche *Volume of Fluid* (**VOF**). L'étude expérimentale présentée au Chapitre 4 a été reproduite numériquement afin d'examiner la phénoménologie de la rupture en fonction de la viscosité de la phase continue. Dans cette optique, seules les deux phases continues extrêmes ont été traitées : M.2* et M.10*. Ces simulations de rupture haute résolution sont de plus en plus populaires dans la littérature et traitent typiquement des écoulements extensibles ou cisaillés (Xi and Duncan, 1999; Khismatullin et al., 2003), ou des écoulements turbulents homogènes et isotropes dans des boîtes périodiques (HIT) (Komrakova et al., 2015; Shao et al., 2018; Håkansson and Brandt, 2022). Toutefois, ce type de travaux est **rarement** réalisé à l'**échelle d'un procédé** (Olad and Håkansson, 2025) et, à notre connaissance, n'a jamais été effectué (i) en **cuve agitée**, (ii) avec des phases **continues organiques et visqueuses** et (iii) dans des **régimes de transition**. En effet, à l'échelle d'un procédé, ces études sont trés coûteuses numériquement et ont été rendues possibles grâce à (1) la petite taille du dispositif expérimental considéré ($V = 10$ mL), (2) le régime de transition exploré ($200 < Re < 1300$), et (3) l'utilisation des méthodes LBM, hautement parallélisables et exploitant les architectures GPU.

Dans un premier temps, une étude préliminaire à permis de vérifier que le **maillage** était **suffisamment fin** pour, d'une part, résoudre la quasi-totalité des échelles de l'écoulement, jusqu'à l'échelle de Kolmogorov η, et d'autre part, bien capturer la gamme de tailles de gouttes filles typiquement observées dans le mélangeur.

Les résultats des simulations ont confirmé les observations expérimentales et ont mis en évidence un **changement de régime de rupture induit par l'augmentation de la viscosité de la phase continue**. Cela se traduit par une modification de la **nature des contraintes hydrodynamiques** et, par conséquent, de la **localisation des évènements**. Pour la plus faible viscosité de phase continue (**M.2***), la rupture est majoritairement due à des **fluctuations turbulentes** de vitesse ou de pression. Ces dernières sont principalement formées dans le sillage en aval des pales et sont expulsées radialement, causant respectivement la déformation et la rupture des gouttes par un mouvement de

rotation. En revanche, pour une viscosité cinq fois plus élevée (**M.10***), ce type de mécanisme n'est plus observé, et les ruptures sont exclusivement induites par des **élongations** unidirectionnelles, typiquement le long de la paroi. Par ailleurs, l'augmentation de la viscosité **augmente** significativement le **nombre de gouttes filles** formées. Cependant, contrairement a ce qui avait été observé précédemment dans le Chapitre 4, l'augmentation du nombre de gouttes ne semble pas être induite par la modification du type de contraintes, mais plutôt par la viscosité elle même. Des études complémentaires restent a mener pour confirmer cette affirmation.

Par ailleurs, les simulations reproduisent de manière satisfaisante les **mécanismes** de rupture observés expérimentalement, avec une bonne concordance **qualitative**. Les **taux d'occurrence** des différents mécanismes ainsi que leur **localisation** sont estimés de manière satisfaisante par rapport à l'étude expérimentale. Toutefois, les simulations n'ont pas permis de retrouver le nombre de gouttes filles générées. Ces écarts entre les deux approches peuvent être dus a des différences sur la tension interfaciale et le diamètre des gouttes mères, et nécessiteraient des études complémentaires pour approfondir cette divergence et valider les résultats numériques.

Les simulations réalisées ici présentent une approche **complémentaire** aux résultats expérimentaux, permettant d'avoir accès à des ruptures dans des régions non ou partiellement visibles expérimentalement. En effet, contrairement aux mesures du Chapitre 4, limitées à une observation bidimensionnelle dans une zone restreinte du mélangeur, les simulations fournissent une observation plus globale et en **trois dimensions**. Cela permet d'avoir une meilleure **description** des **mécanismes**, une **localisation** plus **précise** des positions des événements, et surtout d'avoir directement **accès aux contraintes hydrodynamiques** exercées à la surface des gouttes.

Par ailleurs, ces simulations haute résolution permettent une description plus physique de la rupture par rapport à une approche PBE, basée sur des simulations CFD monophasique et des modèles avec des constantes à ajuster. Bien que très prometteuses et de plus en plus populaires, ces approches sont actuellement trop coûteuses en ressources numériques pour simuler le comportement d'une émulsion à l'échelle d'un procédé, avec des volumes de liquides conséquents et des temps de séjour de l'ordre de la minute. Toutefois, ces simulations sont des outils extrêmement puissants pour étudier la **dynamique** de la rupture à l'**échelle de la goutte**, permettant la validation et le développement de nouveaux modèles théoriques pour les modèles de fermeture des PBE. Dans le cas de notre étude, ils sont particulièrement **pertinents** au vu des **difficultés rencontrées** par les modèles **PBE traditionnels** pour capturer le changement de régime de rupture lié à l'augmentation de la viscosité.

Ces approches présentent néanmoins encore plusieurs limites majeures. Dans un premier temps, la résolution des phénomènes de rupture nécessite des discrétisations spatiales et temporelles extrêmement fines afin de capturer la dynamique de ces événements, ce qui se traduit par des coûts numériques élevés. Ensuite, la diffusion numérique des gouttes de petite taille reste un problème récurrent dans les méthodes de capture d'interface. Enfin, ces méthodes rencontrent encore des difficultés dans la modélisation de la coalescence : elle est généralement surestimée, la collision entre deux gouttes conduisant systématique-

ment à une coalescence (Komrakova et al., 2015). Pour éviter ce problème, il est nécessaire de résoudre explicitement le film interstitiel, ce qui impose un nombre de mailles encore irréaliste.

Enfin, les perspectives de cette partie sont nombreuses, compte tenu de la montée en puissance des ressources numériques et des premiers résultats prometteurs obtenus. Dans l'immédiat, des études complémentaires visant à valider l'estimation du nombre de gouttes filles pourraient être réalisées. Celles-ci pourraient s'accompagner de mesures de **temps de rupture** ou encore de **distributions de taille de gouttes filles**, afin de permettre une comparaison avec les résultats expérimentaux présentés dans le Chapitre 4. La mise en place d'un post-traitement **automatique** semble également essentielle pour extraire un nombre plus important d'événements et assurer la convergence statistique des résultats. Par ailleurs, une fois validées, ces simulations offriraient la possibilité de tester de nouvelles conditions opératoires (diamètre de la goutte mère, rapport de viscosité, tension interfaciale...) ou géométriques, non explorées au cours de la thèse, afin de trouver des conditions qui limitent la formation d'entraînement de phase.

De manière plus générale, ces simulations de rupture haute résolution ouvrent des perspectives nouvelles et, une fois validées, elles permettent de combler plusieurs limites expérimentales (Karimi and Andersson, 2020). En effet, le phénomène de rupture est encore partiellement compris, les modèles actuels pouvant parfois prédire des résultats **contradictoires** (Liao and Lucas, 2009; Maaß and Kraume, 2012), et aucune modélisation universelle n'a encore émergé. Ainsi, ces approches numériques de rupture de goutte unique constituent un outil essentiel pour approfondir la compréhension du phénomène et pour tendre vers l'élaboration de **modèles théoriques** plus **généraux**. Ces méthodes permettraient notamment de bâtir des modèles de rupture plus réalistes et prédictifs à l'échelle du procédé. En effet, elles permettent une description précise de la déformation et de la rupture, **en accédant directement à l'écoulement environnant et aux contraintes hydrodynamiques locales générées à la surface de la goutte**.

Conclusion générale et perspectives

Avec l'essor des activités de recyclage, l'extraction liquide-liquide occupe aujourd'hui une place importante, permettant la séparation et la récupération de métaux ou d'éléments d'intérêt à partir de déchets complexes, comme c'est le cas dans le traitement du combustible nucléaire usé. Dans ces procédés, le développement de solvants innovants, à la fois plus sélectifs et respectueux de l'environnement, constitue un enjeu majeur. Avant l'industrialisation, ces nouveaux solvants sont testés sur des appareils d'extraction à l'échelle de laboratoire (MD-NG). Dans ce contexte, l'utilisation de nouveaux solvants visqueux dans ces appareils ne permet pas d'atteindre le niveau de performance souhaité, en particulier en raison de l'apparition **d'entraînements de phase** à la sortie des décanteurs.

Au sein de ce travail, le mélangeur et le décanteur ont été découplés et étudiés séparément. Par ailleurs, une synthèse des principaux résultats obtenus au cours de la thèse est présentée sur la Figure 7.1.

Une étude préliminaire, portant sur la modélisation de l'écoulement dans le décanteur, a été menée afin d'estimer les tailles de gouttes susceptibles de provoquer des entraînements (Chapitre 2, partie 2.3). Les résultats ont montré qu'**une augmentation de la viscosité de la phase continue conduit à une augmentation de la taille des gouttes entraînées**.

La suite de l'étude s'est exclusivement concentrée sur **la rupture** de gouttes dans un mélangeur, dans un système **dilué** ($\alpha \leq 1$ %), sans considérer de transfert de matière. L'étude a été réalisée (i) dans un **mélangeur miniaturisé** non standard ($V = 10$ mL, de forme cubique et sans contre-pales), (ii) fonctionnant avec des phases **continues organiques et visqueuses** (2 mPa·s $< \mu <$ 10 mPa·s) et (iii) produisant des écoulements en **régime de transition** ($200 < Re < 1300$). Les travaux ont porté à la fois sur la **dynamique locale** de la rupture, à l'échelle de la goutte, et sur une approche plus **globale**, à l'échelle du procédé, en combinant **caractérisation expérimentale** et **modélisation**. L'objectif principal de la thèse est de quantifier **l'influence de la viscosité de la phase continue sur les mécanismes de rupture et sur la taille des gouttes formées**. Une attention particulière a été portée sur les **petites gouttes**, qui jouent un rôle majeur dans l'apparition des entraînements de phase.

Tout d'abord, des distributions de taille de gouttes (DSD) en régime stationnaire ont été mesurées expérimentalement avec une camera rapide placée à l'extérieur de l'écoulement et un algorithme de *machine learning* (YOLO) (Chapitre 3). Les résultats ont

montré qu'une augmentation de la viscosité de la phase continue modifie la forme des distributions : elles passent d'une distribution relativement uniforme à une distribution bimodale, avec un pic marqué pour les petits diamètres, indiquant **une augmentation significative du nombre de gouttes de diamètre inférieur à 100 µm**.

Par la suite, l'écoulement monophasique du mélangeur a été modélisé en couplant la méthode de Boltzmann sur réseau (LBM) et la simulation aux grandes échelles de la turbulence (LES) (Chapitre 5). Ces modélisations ont révélé une **transition du régime** hydrodynamique : pour les faibles viscosités, l'écoulement tend vers un régime pleinement turbulent, tandis que, pour la viscosité la plus élevée, il se rapproche d'un régime laminaire. Ce changement de régime influence le rapport entre la taille des tourbillons et celle des gouttes. Il modifie également la **nature des contraintes hydrodynamiques** responsables de la rupture. Bien que leur contribution exacte reste difficile à quantifier, elles présentent des tendances opposées : les **contraintes de cisaillement visqueux augmentent** avec la viscosité, tandis que **les contraintes turbulentes diminuent**, jusqu'à devenir négligeables pour la viscosité maximale.

Ce changement de régime de rupture a été confirmé par deux études complémentaires portant sur la dynamique locale de la rupture, à travers des observations expérimentales (Chapitre 4) et des simulations combinant la méthode de Boltzmann sur réseau (LBM), la simulation numérique directe (DNS) et l'approche *Volume of Fluid* (VOF) (Chapitre 6, partie 6.2). À faible viscosité, les ruptures sont principalement induites par **des fluctuations turbulentes de pression et de vitesse** produites dans le sillage des pales, générant des événements uniformément répartis dans la zone de décharge ou dans le volume balayé par la turbine. De plus, les résultats expérimentaux ont montré que la rupture produit majoritairement **deux gouttes filles de volumes comparables**. Avec l'augmentation de la viscosité de la phase continue, les phénomènes turbulents disparaissent et la rupture devient exclusivement induite par des contraintes de **cisaillement**, typiquement générées par l'**écoulement élongationnel le long de la paroi**. Cet écoulement relativement laminaire favorise un étirement vertical marqué et la formation d'un long et fin filament. Ce dernier génère typiquement deux gouttes de volumes comparables, ainsi qu'un **nombre significatif de petites gouttes satellites**. Les deux approches ont prédit une augmentation du nombre de gouttes filles générées avec la viscosité, tandis que l'approche expérimentale a montré une hausse significative du nombre de petites gouttes produites.

Enfin, ce travail a mis en évidence certaines limites des modèles de bilan de population dans les conditions considérées. En effet, les modèles testés n'ont pas été capables de reproduire la transition de régime induite par l'augmentation de la viscosité, qui modifie à la fois (i) la nature des contraintes hydrodynamiques et (ii) la morphologie de la rupture. Ces modèles n'ont également pas permis de prédire la formation importante de petites gouttes susceptibles d'être entraînées.

Ainsi, les résultats présentés ci-dessus soulèvent de **nouvelles questions**. En effet, la présente étude a mis en lumière une transition de régime induite par la viscosité de la phase continue, se traduisant notamment par une modification de la morphologie de

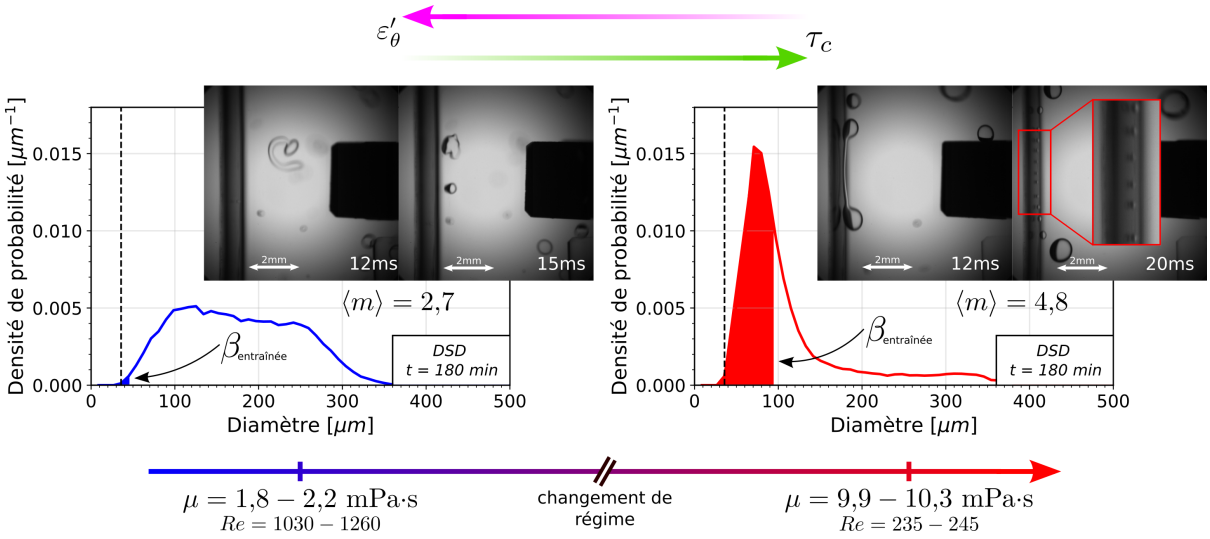


FIGURE 7.1 – Synthèse des résultats principaux de la thèse

rupture et par la formation d'un nombre conséquent de gouttes satellites. Bien que cette transition permette d'expliquer le changement de forme des distributions de taille de gouttes (DSD), le **lien entre les gouttes satellites** (estimées à 100 µm $< d <$ 250 µm) et le **pic d'amplitude significatif** observé dans les distributions ($d <$ 100 µm) reste à établir. Mesurer plus précisément la taille des gouttes satellites et étudier la morphologie à des temps plus éloignés de l'injection (ou avec des gouttes mères de plus petites tailles) permettrait de confirmer si ce changement de mécanisme est effectivement à l'origine des gouttes problématiques.

Par ailleurs, l'augmentation du nombre de gouttes problématiques a été attribuée à la formation d'un long et fin filament au cours de la déformation. Toutefois, il n'est pas encore possible de déterminer si ce phénomène résulte de l'un ou des deux phénomènes couplés suivants : (i) la diminution du nombre de Reynolds, qui modifie le **régime de l'écoulement** et, donc, la nature des contraintes hydrodynamiques et/ou (ii) **la variation du rapport de viscosité**, qui influence la morphologie de la rupture et favorise son étirement. De plus, la formation d'un tel filament pourrait être amplifiée par la **géométrie spécifique** étudiée : un mélangeur cubique avec un rapport $D/T \approx 0{,}55$. En effet, le faible jeu entre l'extrémité de la turbine et la paroi tend à augmenter les contraintes de cisaillement et la rupture le long de la paroi. Des études complémentaires, notamment à plus grande échelle, sont nécessaires pour dissocier les effets combinés de la géométrie, de la viscosité et du régime d'écoulement, afin de parvenir à une interprétation plus universelle.

Ensuite, plusieurs perspectives pourraient constituer une amélioration du travail réalisé. Tout d'abord, pour aboutir à une meilleure estimation des entraînements, une étude plus approfondie du **décanteur** est nécessaire, en complétant la modélisation simplifiée de cette étude (*one-way coupling*...). Les études sur la dynamique locale de la rupture ouvrent également de nombreuses pistes. Sur le plan expérimental, des caractérisations **tridimensionnelles**, associées à un **post-traitement automatisé**, apparaissent essen-

tielles pour affiner l'interprétation des mécanismes, améliorer la précision des mesures et enrichir le nombre d'événements observés. Du côté numérique, les résultats obtenus sont prometteurs et plusieurs axes restent à explorer. Il serait particulièrement intéressant de quantifier les **contraintes hydrodynamiques exercées à la surface** de la goutte, au début de sa déformation, au cours de son étirement, puis au moment de sa rupture. Toutes ces informations à **l'échelle locale** permettraient d'approfondir la compréhension des mécanismes et de **développer des modèles plus généraux** et/ou adaptés aux conditions opératoires spécifiques étudiées dans la thèse. Ces modèles pourraient ensuite être intégrés à des approches PBE afin d'obtenir des **prédictions** fiables des distributions de taille de gouttes à **l'échelle d'un procédé**.

Par ailleurs, la thèse n'a pas permis d'identifier des conditions opératoires ni des modifications d'ordre géométrique permettant de minimiser les entraînements dans les MD-NG en présence de solvant visqueux. Bien que l'étude des effets des propriétés physico-chimiques (sens de l'émulsion, rapport de viscosité, tension interfaciale) puisse s'avérer pertinente pour résoudre ce problème, il est important de rappeler que ces paramètres sont généralement imposés par le procédé et, par conséquent, sont difficilement ajustables.

Du point de vue géométrique, plusieurs pistes peuvent être envisagées. Une modification de la **géométrie du mélangeur** pourrait limiter l'écoulement élongationnel responsable de la formation des gouttes problématiques. L'**agitateur** constitue également un levier intéressant. Par exemple, un agitateur axial pourrait éviter cet écoulement au niveau de la paroi. Toutefois, le choix de l'agitateur est complexe, car il doit à la fois assurer un pompage suffisant et produire une émulsion suffisamment fine pour le transfert de matière, tout en évitant un excès de gouttes trop petites qui favorisent les entraînements. Ces difficultés sont accentuées par des variations des propriétés physico-chimiques des phases au sein des étages de la batterie, rendant le contrôle des tailles dans ces procédés encore plus délicat. Des améliorations géométriques sont également envisageables au niveau du décanteur. La mise en place de **contre-pales** ou l'**augmentation de la longueur du décanteur** permettraient de limiter le passage des gouttes dans les zones d'écoulement ascendant, notamment en amont de la surverse, responsable de l'entraînement. Par ailleurs, les **grilles de coalescence** pourraient être optimisées pour favoriser la capture des gouttes entraînées.

Sur le plan hydrodynamique, des mesures **PIV monophasiques** permettraient de valider la modélisation CFD réalisée. Une comparaison des résultats avec la thèse précédente ($V = 8$ L) (Laine, 2024) permettrait également d'**explorer l'effet du changement d'échelle** sur l'écoulement et les contraintes. Par ailleurs, initialement, il avait été envisagé d'étudier l'écoulement diphasique, et notamment l'**impact de la présence de la phase dispersée**. Cette étude aurait impliqué des mesures PIV diphasiques, ainsi qu'une modélisation CFD combinant des simulations aux grandes échelles (LES) et une approche diphasique de type Euler-Euler. L'approche diphasique visait notamment à analyser la répartition spatiale de l'émulsion dans l'appareil, où l'hypothèse de cuve parfaitement agitée est souvent appliquée. Par ailleurs, l'influence du taux de rétention et de la taille des gouttes sur l'écoulement et les contraintes de la phase continue constitue une problématique intéressante à explorer (Liu et al., 2016).

Pour conclure, la thèse a permis de mieux appréhender le phénomène de rupture dans un mélangeur miniaturé fonctionnant dans des régimes spécifiques. Pour obtenir des **modèles prédictifs** de la taille des gouttes au sein d'un procédé en fonctionnement industriel, des études complémentaires impliquant des **taux de rétention plus élevés** sont nécessaires ($20\ \% < \alpha < 60\ \%$). Ces derniers soulèveraient de nouvelles limites, notamment liées au phénomène de **coalescence**, difficile à modéliser tant par des approches PBE que par des simulations CFD haute résolution. Par ailleurs, dans le cadre des PBE, la distinction entre les phénomènes de rupture et de coalescence est complexe, les deux mécanismes agissant simultanément sur la taille des gouttes. Dans un second temps, des travaux sur les **mélangeurs-décanteurs**, où les deux appareils sont couplés et fonctionnent en **continu**, seraient intéressants pour le développement de modèles prédictifs à l'échelle industrielle. Enfin, la prise en compte du **transfert de matière** représente l'étape finale pour la modélisation de ce type de procédé. Elle permettrait non seulement d'estimer directement l'efficacité de transfert, mais également de modéliser l'évolution des propriétés physico-chimiques des phases au cours de l'extraction. Cela entraînera l'apparition de phénomènes complexes, tels que des changements de régime hydrodynamique et de morphologie de rupture le long des batteries de mélangeurs-décanteurs, mis en évidence dans cette étude.

Annexe A

Mise en place d'un protocole expérimental robuste pour les mesures expérimentales des distributions de taille de gouttes

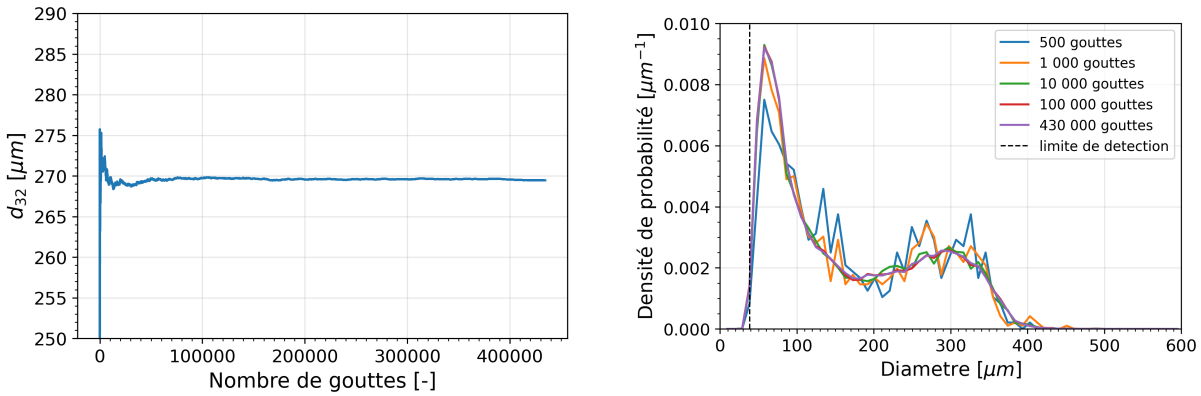
A.1 Convergence statistique

Tout d'abord, une étude statistique a été réalisée afin de déterminer le nombre d'images nécessaires pour que le diamètre de Sauter, ainsi que les distributions de taille, atteignent leur convergence statistique. La Figure A.1a montre que 10000 gouttes suffisent pour obtenir une estimation fiable du diamètre de Sauter, tandis qu'environ 60000 gouttes sont nécessaires pour assurer une convergence statistique complète. En ce qui concerne les distributions, l'acquisition de 10000 gouttes est nécessaire pour représenter correctement leur tendance (Figure A.1b). Toutefois, 100000 détections permettent de représenter plus finement la forme des distributions.

Cette analyse a permis de définir les fréquences d'acquisition utilisées dans le protocole expérimental (voir Section 3.2.3). Ainsi, les 35000 gouttes détectées en moyenne à 500 fps, et les 120000 gouttes détectées en moyenne à 125 fps, sont largement suffisantes pour garantir une population statistiquement convergente.

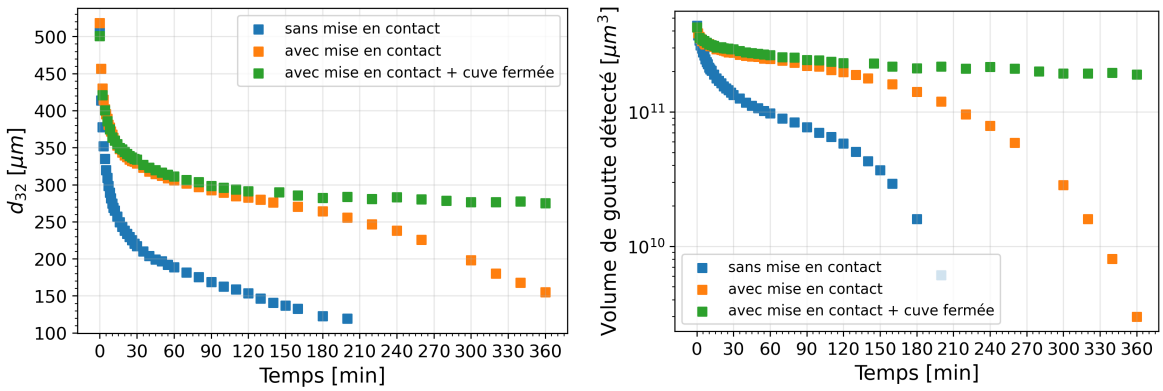
A.2 Mise en contact et fermeture du mélangeur

Au cours des premiers essais expérimentaux, les mesures ont été effectuées dans la zone d'observation n°2 (plan central du mélangeur, zone de circulation) et uniquement pour une fraction volumique de phase dispersée de $\alpha = 0{,}5$ % (50 µL). Ce choix permettait de faciliter le traitement d'images en limitant (i) la coalescence, (ii) les chevauchements de gouttes et (iii) la présence de gouttes situées entre le plan focal et l'objectif. La Figure A.2 présente l'évolution temporelle du diamètre de Sauter ainsi que le volume de gouttes détectées pour chaque pas de temps (à une fréquence de 545 images par pas de temps).



(a) (b)

FIGURE A.1 – Convergence statistique (a) du diamètre moyen de Sauter d_{32} et (b) des distributions de taille de gouttes (DSD) en nombre.



(a) (b)

FIGURE A.2 – Évolution temporelle (a) du diamètre de Sauter d_{32} et (b) du volume total de gouttes détectées à chaque pas de temps.

D'après la Figure A.2 (courbe bleue), le diamètre de Sauter et le volume de goutte détecté diminuent drastiquement avec le temps : la quantité de gouttes en émulsion diminue progressivement, jusqu'à quasiment disparaître après environ quatre heures d'émulsification. Ce phénomène a été attribué à un transfert de matière de la phase aqueuse vers la phase organique, probablement lié à la solubilité de l'eau dans l'HDEHP ou à une faible affinité entre ces deux liquides. Pour limiter ce transfert, les phases ont été préalablement mises en contact avant chaque série d'expériences (voir partie 2.2). Cette étape visait à mettre les deux phases à l'équilibre et à saturer la phase organique en eau afin d'atténuer le transfert de matière.

Cependant, malgré cette mise en contact préalable (courbe orange), une perte de masse, certes plus lente, persiste, et la quantité d'émulsion finit néanmoins par diminuer, voire disparaître, après environ six heures de mélange (Figure A.2). Ces pertes ont été

réduites en bouchant l'orifice situé sur la partie supérieure du mélangeur avec du Parafilm, limitant ainsi les échanges avec l'air et la possible évaporation de la phase aqueuse.

Ces premiers essais ont permis d'établir un protocole expérimental plus strict, présenté dans le paragraphe 3.2.3. Celui-ci a pour objectif de limiter l'influence de phénomènes physiques externes et d'isoler le seul phénomène de rupture.

A.3 Répétabilité

Enfin, au vu des difficultés exposées ci-dessus, une attention particulière a été portée à la répétabilité des mesures. En effet, pour des conditions opératoires, des paramètres d'acquisition et des outils de traitement d'images identiques, des distributions de formes très différentes ont été observées au cours des premières expériences. Plusieurs problèmes liés à des phénomènes externes ont été mis en lumière ci-dessus. Ces problèmes de répétabilité sont également accentués par les faibles volumes de liquide manipulés ($V = 10$ mL de phase continue et 50 µL de phase dispersée), rendant le système particulièrement sensible aux impuretés ou à d'éventuelles perturbations extérieures. Les impuretés affectent notamment la tension interfaciale, qui est un paramètre clé du mécanisme de rupture. Ces impuretés peuvent se manifester sous forme de poussière, parfois observée dans la phase organique en quantité non négligeable. Au vu de ces difficultés, le taux de rétention à été doublé, passant à $\alpha = 1$ % et à l'injection de 100 µL de phase dispersée. Cela a pour conséquence de déplacer la zone d'observation de la zone n°2 à la zone n°1, afin d'améliorer la qualité des images et de limiter les gouttes entre le plan focal et l'objectif.

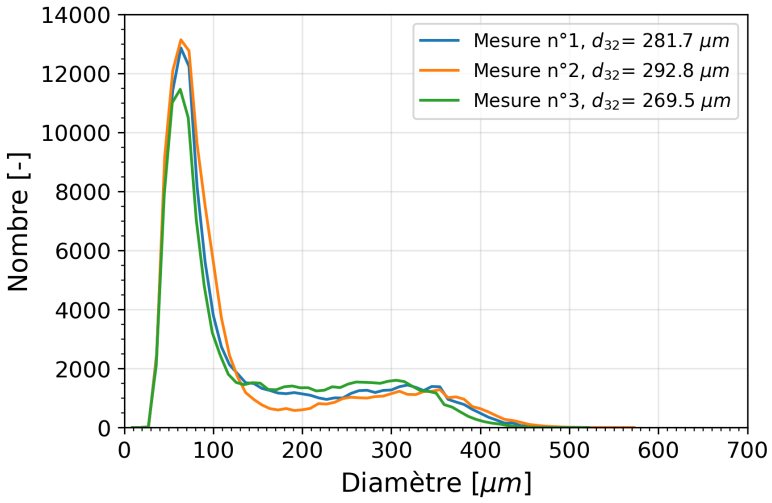


FIGURE A.3 – Distribution de taille de gouttes en nombre en régime permanent pour trois expériences réalisées dans des conditions identiques : 1089 images prises après trois heures d'émulsification pour $N = 1200$ rpm, M.6 et $\alpha = 1$ %.

En appliquant rigoureusement le protocole décrit dans le paragraphe 3.2.3, la reproductibilité des résultats a été significativement améliorée. Cela a été réalisé par l'ajout

d'acide nitrique dans la phase aqueuse et le nettoyage systématique à l'eau distillée et au solvant entre chaque essai [1]. Par ailleurs, l'utilisation d'un système d'injection composé d'un capillaire relié à un pousse seringue a permis d'améliorer la reproductibilité de la distribution initiale, renforçant, *in fine*, celle des expériences.

La Figure A.3 expose des mesures de distribution réalisées pour une condition opératoire de référence (N = 1200 rpm, M.6, α = 1%), une fois ce protocole mis en place. D'après la figure, les mesures sont assez reproductibles, avec un écart relatif moyen de 9 % entre les trois distributions. Ce dernier a été calculé comme la moyenne des écarts relatifs entre chaque intervalle des distributions et leur moyenne. De plus, l'incertitude sur le diamètre de Sauter est estimée à 20 µm.

1. L'utilisation d'éthanol est à proscrire, car celui-ci pourrait opacifier la cuve avec le temps, diminuant la qualité des acquisitions réalisées à l'extérieur du mélangeur transparent.

Annexe B

Rupture vs coalescence

Au cours des différentes expériences réalisées, 475 ruptures et seulement 14 coalescences ont été observées. Ces résultats mettent en évidence la rareté du phénomène de coalescence, qui ne représente qu'environ 3 % des événements. Ces observations indiquent clairement que la coalescence peut être négligée dans notre cas d'étude. Par ailleurs, la coalescence résulte de la collision entre deux gouttes, tandis que la rupture peut engendrer jusqu'à une dizaine de gouttes filles (voir Chapitre 4). Ainsi, dans les conditions étudiées, la coalescence n'a donc qu'un effet très limité sur la taille des gouttes.

Cette faible occurrence s'explique principalement par les faibles taux de rétention étudiés ($\alpha < 0{,}5$ %), qui réduisent fortement la probabilité de rencontre entre les gouttes. De plus, l'utilisation d'un extractant (HDEHP), jouant le rôle de tensioactif, et de phases continues visqueuses, tend également à diminuer le taux d'occurrence de la coalescence. Il est toutefois possible que certains événements n'aient pas pu être détectés. En effet, la coalescence est un phénomène extrêmement rapide (la rupture du film interstitiel se produit en moins d'une milliseconde), inférieur à la fréquence d'acquisition de la caméra (1000 fps). Par ailleurs, la probabilité de coalescence augmente avec le nombre de gouttes dans le système ($\alpha \lesssim 0{,}5$ %), mais une concentration plus élevée rend également la visualisation et la détection plus difficiles.

Le phénomène étant rare et difficile à observer en cuve agitée (Collins and Knudsen, 1970), deux exemples typiques sont présentés sur les Figures B.1 et B.2. Les deux événements se distinguent principalement par l'origine de la collision des deux gouttes ayant conduit à la coalescence. Sur la Figure B.1, la rencontre des deux gouttes résulte du gradient de vitesse le long de la paroi, tandis que sur la Figure B.2, une goutte avec une vitesse importante dans le jet de la turbine heurte une seconde goutte de vitesse inférieure, initialement située dans la zone de recirculation basse. Sur la Figure B.1, les gouttes restent en contact pendant environ 16 ms, durée correspondant au drainage du film interstitiel. La rupture de ce film et la fusion des gouttes se produisent ensuite sur une échelle de temps très courte (< 1 ms). Par ailleurs, après leur coalescence, les gouttes résultantes oscillent pendant quelques millisecondes avant de retrouver une forme sphérique (Figure B.1 et B.2).

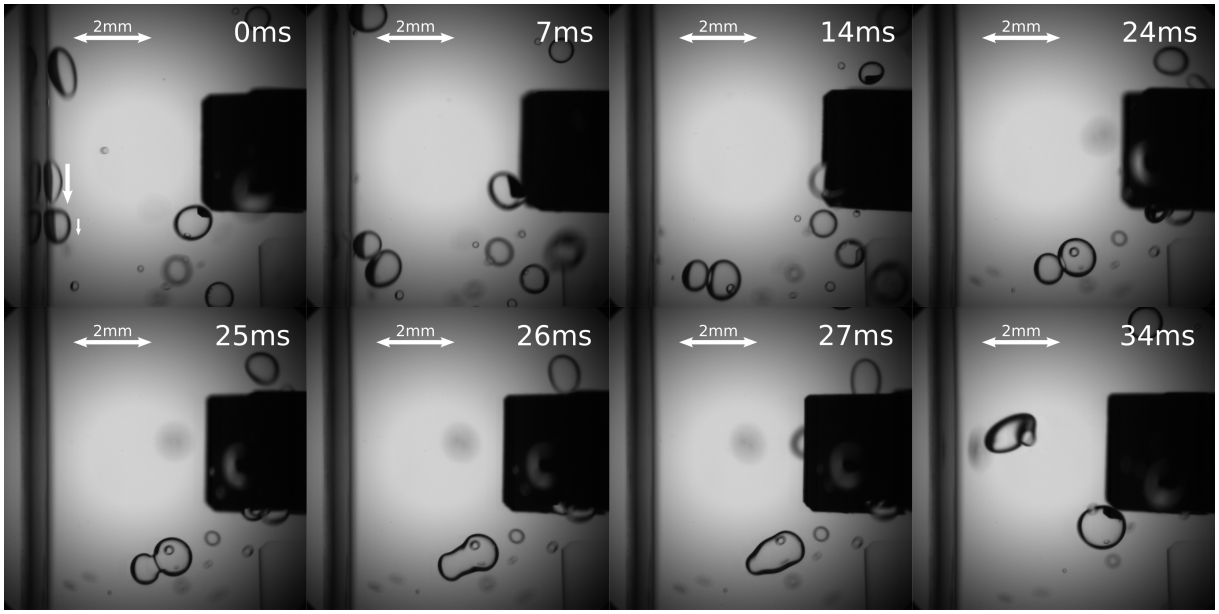


FIGURE B.1 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une coalescence, observée pour $N = 1200$ rpm et M.10*.

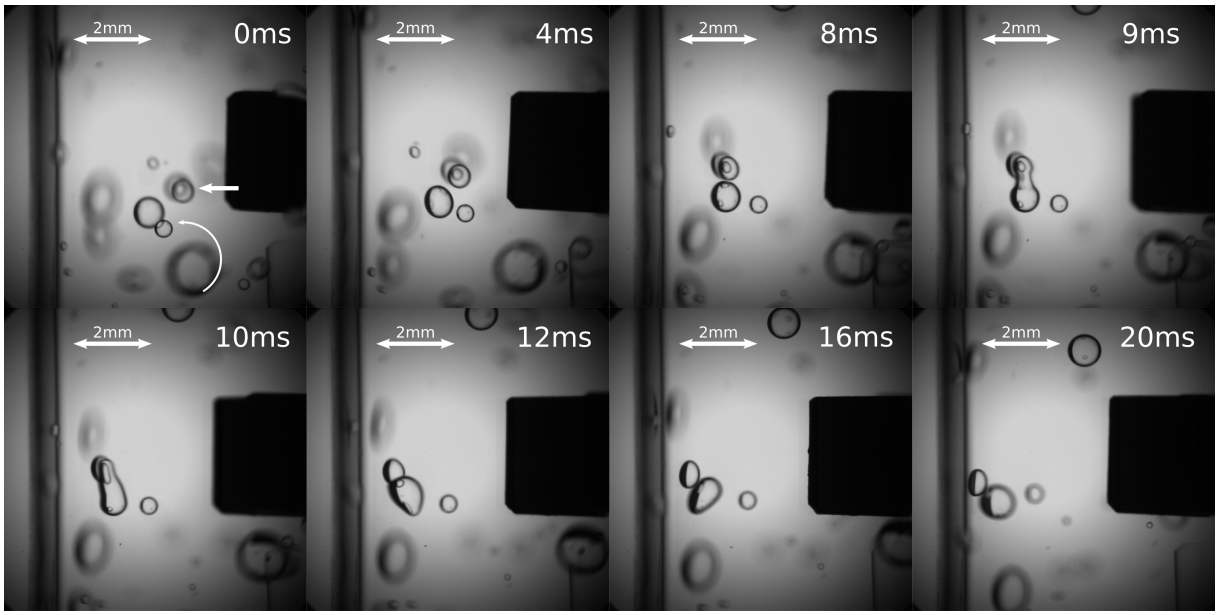


FIGURE B.2 – Séquence d'images capturées par caméra rapide d'une coalescence, observée pour $N = 1200$ rpm et M.6*.

Bibliographie

Abidin, M.I.I.Z., Raman, A.A.A., Nor, M.I.M., 2013. Review on measurement techniques for drop size distribution in a stirred vessel. Industrial & Engineering Chemistry Research 52, 16085–16094.

Abu-Farah, L., Al-Qaessi, F., Schönbucher, A., 2010. Cyclohexane/water dispersion behaviour in a stirred batch vessel experimentally and with cfd simulation. Procedia computer science 1, 655–664.

AFNOR, 2004. NF EN 14210 : Agents de surface - Détermination de la tension interfaciale des solutions d'agents de surface par la méthode à l'anneau ou l'étrier. Normes nationales et documents normatifs nationaux.

Alopaeus, V., Koskinen, J., Keskinen, K.I., Majander, J., 2002. Simulation of the population balances for liquid–liquid systems in a nonideal stirred tank. part 2—parameter fitting and the use of the multiblock model for dense dispersions. Chemical Engineering Science 57, 1815–1825.

Amokrane, A., 2014. Étude et modélisation du comportement de la phase dispersée dans une colonne pulsée : application à un procédé de précipitation oxalique. Ph.D. thesis. Université Claude Bernard-Lyon I.

Amokrane, A., Maaß, S., Lamadie, F., Puel, F., Charton, S., 2016. On droplets size distribution in a pulsed column. part i : In-situ measurements and corresponding cfd–pbe simulations. Chemical Engineering Journal 296, 366–376.

Andersson, R., Andersson, B., 2006a. Modeling the breakup of fluid particles in turbulent flows. AIChE Journal 52, 2031–2038.

Andersson, R., Andersson, B., 2006b. On the breakup of fluid particles in turbulent flows. AIChE Journal 52, 2020–2030.

ANSYS, I., 2017. Ansys fluent theory guide, 18.2.

Ascanio, G., Castro, B., Galindo, E., 2004. Measurement of power consumption in stirred vessels—a review. Chemical Engineering Research and Design 82, 1282–1290.

Astarita, G., 1979. Objective and generally applicable criteria for flow classification. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics 6, 69–76.

Bana, G., Lamadie, F., Charton, S., Randriamanantena, T., Lucor, D., Sheibat-Othman, N., 2024. Byg-drop : a tool for enhanced droplet detection in liquid–liquid systems through machine learning and synthetic imaging. Frontiers in Chemical Engineering 6, 1415453.

Becker, P.J., Puel, F., Chevalier, Y., Sheibat-Othman, N., 2014a. Monitoring silicone oil droplets during emulsification in stirred vessel : Effect of dispersed phase concentration and viscosity. The Canadian Journal of Chemical Engineering 92, 296–306.

Becker, P.J., Puel, F., Jakobsen, H.A., Sheibat-Othman, N., 2014b. Development of an improved breakage kernel for high dispersed viscosity phase emulsification. Chemical Engineering Science 109, 326–338.

Bittorf, K.J., Kresta, S.M., 2000. Limits of fully turbulent flow in a stirred tank, in : 10th European Conference on Mixing, Elsevier. pp. 17–24.

Bourgeois, M., 2000. Retraitement du combustible principales opérations. Techniques de l'ingénieur Génie nucléaire base documentaire : TIP180WEB.

Boxall, J.A., Koh, C.A., Sloan, E.D., Sum, A.K., Wu, D.T., 2012. Droplet size scaling of water-in-oil emulsions under turbulent flow. Langmuir 28, 104–110.

Buffo, A., De Bona, J., Vanni, M., Marchisio, D.L., 2016. Simplified volume-averaged models for liquid–liquid dispersions : Correct derivation and comparison with other approaches. Chemical Engineering Science 153, 382–393.

Burke, I., Dhayaparan, T., Youssef, A.S., Schmidt, K., Kockmann, N., 2024. Two deep learning methods in comparison to characterize droplet sizes in emulsification flow processes. Journal of Flow Chemistry , 1–17.

Calabrese, R., Wang, C., Bryner, N., 1986a. Drop breakup in turbulent stirred-tank contactors. part iii : Correlations for mean size and drop size distribution. AIChE journal 32, 677–681.

Calabrese, R.V., Chang, T., Dang, P., 1986b. Drop breakup in turbulent stirred-tank contactors. part i : Effect of dispersed-phase viscosity. AIChE Journal 32, 657–666.

Carrillo De Hert, S., Rodgers, T.L., 2018. On the steady-state drop size distribution in stirred vessels. part i : Effect of dispersed phase viscosity. AIChE Journal 64, 3293–3302.

Carrillo De Hert, S., Rodgers, T.L., 2019. On the steady-state drop size distribution in stirred vessels. part ii : Effect of continuous phase viscosity. AIChE Journal 65, e16556.

Cast3M, 2025. Cast3m. `https://www-cast3m.cea.fr/`. Consulté le 27 août 2025.

Castanet, G., Dunand, P., Caballina, O., Lemoine, F., 2013. High-speed shadow imagery to characterize the size and velocity of the secondary droplets produced by drop impacts onto a heated surface. Experiments in fluids 54, 1–17.

Castellano, S., 2019. Multiscale study and modeling of dispersion properties relevant for liquid-liquid extraction : adaptation of breakup and coalescence kernels to industrial processes. Ph.D. thesis. Université de Lyon.

CEA-DEN, 2008. Le traitement-recyclage du combustible nucléaire usé : La séparation des actinides, Application à la gestion des déchets. E-den, CEA Saclay ; Groupe Moniteur. URL : `https://cea.hal.science/cea-01153306`.

Cerino, C., 2024. Intensification de la séparation d'émulsions par chauffage micro-ondes : application à l'extraction liquide-liquide de métaux critiques. Ph.D. thesis. Normandie Université.

Charton, S., Castellano, S., Alzyod, S., Sheibat-Othman, N., 2022. Colhyse : An advanced column hydrodynamic-based model for solvent extraction. Chemical Engineering Research and Design 179, 188–200.

Chella, R., Ottino, J., 1985. Stretching in some classes of fluid motions and asymptotic mixing efficiencies as a measure of flow classification. Archive for rational mechanics and analysis 90, 15–42.

Chen, Z., Prüss, J., Warnecke, H.J., 1998. A population balance model for disperse systems : drop size distribution in emulsion. chemical engineering science 53, 1059–1066.

Cheng, D., Cheng, J., Yong, Y., Yang, C., Mao, Z.S., 2011. Cfd prediction of the critical agitation speed for complete dispersion in liquid-liquid stirred reactors. Chemical engineering & technology 34, 2005–2015.

Cheng, D., Feng, X., Cheng, J., Yang, C., 2013. Numerical simulation of macro-mixing in liquid–liquid stirred tanks. Chemical Engineering Science 101, 272–282.

Clift, R., Grace, J.R., Weber, M.E., 2005. Bubbles, drops, and particles .

Collins, S.B., Knudsen, J., 1970. Drop-size distributions produced by turbulen pipe flow of immiscible liquids. AIChE Journal 16, 1072–1080.

Coulaloglou, C., Tavlarides, L.L., 1977. Description of interaction processes in agitated liquid-liquid dispersions. Chemical Engineering Science 32, 1289–1297.

Cristini, V., Guido, S., Alfani, A., Bławzdziewicz, J., Loewenberg, M., 2003. Drop breakup and fragment size distribution in shear flow. Journal of Rheology 47, 1283–1298.

Davidson, P., 2004. Turbulence : An Introduction for Scientists and Engineers. Oxford University Press.

Deen, N.G., Solberg, T., Hjertager, B.H., 2001. Large eddy simulation of the gas–liquid flow in a square cross-sectioned bubble column. Chemical engineering science 56, 6341–6349.

Delafosse, A., Collignon, M.L., Crine, M., Toye, D., 2011. Estimation of the turbulent kinetic energy dissipation rate from 2d-piv measurements in a vessel stirred by an axial mixel ttp impeller. Chemical Engineering Science 66, 1728–1737.

Delafosse, A., Line, A., Morchain, J., Guiraud, P., 2008. Les and urans simulations of hydrodynamics in mixing tank : comparison to piv experiments. Chemical Engineering Research and Design 86, 1322–1330.

Delafosse, A., Morchain, J., Guiraud, P., Liné, A., 2009. Trailing vortices generated by a rushton turbine : Assessment of urans and large eddy simulations. Chemical Engineering Research and Design 87, 401–411.

Desnoyer, C., Masbernat, O., Gourdon, C., 2003. Experimental study of drop size distributions at high phase ratio in liquid–liquid dispersions. Chemical Engineering Science 58, 1353–1363.

Dherbecourt, D., 2015. Influence d'une phase dispersée sur le mélange dans l'écoulement de Taylor-Couette. Ph.D. thesis. Institut National Polytechnique de Toulouse-INPT.

Drumm, C., Attarakih, M.M., Bart, H.J., 2009. Coupling of cfd with dpbm for an rdc extractor. Chemical engineering science 64, 721–732.

Drumm, C., Bart, H.J., 2006. Hydrodynamics in a rdc extractor : single and two-phase piv measurements and cfd simulations. Chemical Engineering & Technology : Industrial Chemistry-Plant Equipment-Process Engineering-Biotechnology 29, 1297–1302.

Eastwood, C.D., Armi, L., Lasheras, J., 2004. The breakup of immiscible fluids in turbulent flows. Journal of Fluid Mechanics 502, 309–333.

El-Hamouz, A., Cooke, M., Kowalski, A., Sharratt, P., 2009. Dispersion of silicone oil in water surfactant solution : Effect of impeller speed, oil viscosity and addition point on drop size distribution. Chemical Engineering and Processing : Process Intensification 48, 633–642.

Emmerich, J., Tang, Q., Wang, Y., Neubauer, P., Junne, S., Maaß, S., 2019. Optical inline analysis and monitoring of particle size and shape distributions for multiple applications : Scientific and industrial relevance. Chinese Journal of Chemical Engineering 27, 257–277.

Escudié, R., Liné, A., 2003. Experimental analysis of hydrodynamics in a radially agitated tank. AIChE Journal 49, 585–603.

Fan, D., Li, R., He, M., Li, X., Li, J., Wen, J., Hu, Y., Li, Y., Li, Y., Gu, L., et al., 2023. Review of refractive index-matching techniques of polymethyl methacrylate in flow field visualization experiments. International Journal of Energy Research 2023, 3413380.

Gabriele, A., Nienow, A., Simmons, M., 2009. Use of angle resolved piv to estimate local specific energy dissipation rates for up-and down-pumping pitched blade agitators in a stirred tank. Chemical Engineering Science 64, 126–143.

Galinat, S., Masbernat, O., Guiraud, P., Dalmazzone, C., Noı, C., et al., 2005. Drop break-up in turbulent pipe flow downstream of a restriction. Chemical Engineering Science 60, 6511–6528.

Godé, H., 2023. Flow and mass transfer prediction based on simulations around a spherical drop : from a local analysis to new models. Ph.D. thesis. Institut National Polytechnique de Toulouse-INPT.

Goebel, A., Lunkenheimer, K., 1997. Interfacial tension of the water/n-alkane interface. Langmuir 13, 369–372.

Grace, H.P., 1982. Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems. Chemical engineering communications 14, 225–277.

Greenshields, C., Weller, H., 2022. Notes on Computational Fluid Dynamics : General Principles. CFD Direct Ltd, Reading, UK.

Guan, X., Li, X., Yang, N., Liu, M., 2020. Cfd simulation of gas-liquid flow in stirred tanks : Effect of drag models. Chemical Engineering Journal 386, 121554.

Håkansson, A., Brandt, L., 2022. Deformation and initial breakup morphology of viscous emulsion drops in isotropic homogeneous turbulence with relevance for emulsification devices. Chemical Engineering Science 253, 117599.

Hamed, M.S., Hasan, B.O., Znad, H.T., 2024. High-speed imaging study for characterizing the effect of physical properties on breakup dynamic behavior of oil drop in turbulent field. Chemical Papers 78, 5921–5935.

Han, F., 2018. Cellular automata modeling of ostwald ripening and rayleigh instability. Materials 11, 1936.

Hardy, A., Philip, N., Roussel, H., Lamadie, F., Randriamanantena, T., Olmos, É., 2025. Influence of continuous phase viscosity on drop breakup mechanisms in a miniature cubic mixer at moderate reynolds numbers. Chemical Engineering Science , 122751.

Hartmann, H., Derksen, J., Van den Akker, H., 2004a. Macroinstability uncovered in a rushton turbine stirred tank by means of les. AIChE journal 50, 2383–2393.

Hartmann, H., Derksen, J., Montavon, C., Pearson, J., Hamill, I., Van den Akker, H., 2004b. Assessment of large eddy and rans stirred tank simulations by means of lda. Chemical Engineering Science 59, 2419–2432.

Hasan, B.O., 2017. Breakage of drops and bubbles in a stirred tank : A review of experimental studies. Chinese journal of chemical engineering 25, 698–711.

Hesketh, R.P., Etchells, A.W., Russell, T.F., 1991. Experimental observations of bubble breakage in turbulent flow. Industrial & engineering chemistry research 30, 835–841.

Hinze, J.O., 1955. Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion processes. AIChE journal 1, 289–295.

Hinze, J.O., 1975. Turbulence .

Hough, P.V., 1962. Method and means for recognizing complex patterns. US Patent 3,069,654.

Hsia, M.A., Tavlarides, L.L., 1983. Simulation analysis of drop breakage, coalescence and micromixing in liquid-liquid stirred tanks. The Chemical Engineering Journal 26, 189–199.

Huchet, F., Liné, A., Morchain, J., 2009. Evaluation of local kinetic energy dissipation rate in the impeller stream of a rushton turbine by time-resolved piv. Chemical Engineering Research and Design 87, 369–376.

Illingworth, J., Kittler, J., 1988. A survey of the hough transform. Computer vision, graphics, and image processing 44, 87–116.

Ilonen, J., Juránek, R., Eerola, T., Lensu, L., Dubská, M., Zemčík, P., Kälviäinen, H., 2018. Comparison of bubble detectors and size distribution estimators. Pattern Recognition Letters 101, 60–66.

Ishii, M., Zuber, N., 1979. Drag coefficient and relative velocity in bubbly, droplet or particulate flows. AIChE journal 25, 843–855.

Jocher, G., 2020. Ultralytics yolov5. URL : `https://github.com/ultralytics/yolov5`, doi :`10.5281/zenodo.3908559`.

Kamkeng, L.M., Loubière, C., Dufaud, O., Marchal, P., Le Creurer, B., Olmos, E., 2024. Anaerobic digester scale-down study : Particle image velocimetry and computational fluid dynamics scaling criteria validation. Chemical Engineering Science 298, 120299.

Karam, H., Bellinger, J., 1968. Deformation and breakup of liquid droplets in a simple shear field. Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals 7, 576–581.

Karimi, M., Andersson, R., 2018. An exploratory study on fluid particles breakup rate models for the entire spectrum of turbulent energy. Chemical Engineering Science 192, 850–863.

Karimi, M., Andersson, R., 2019. Dual mechanism model for fluid particle breakup in the entire turbulent spectrum. AIChE Journal 65, e16600.

Karimi, M., Andersson, R., 2020. Stochastic simulation of droplet breakup in turbulence. Chem. Eng. J 380, 122502.

Kersebaum, J., Flaischlen, S., Hofinger, J., Wehinger, G.D., 2024. Simulating stirred tank reactor characteristics with a lattice boltzmann cfd code. Chemical Engineering & Technology 47, 586–595.

Khalil, A., Puel, F., Chevalier, Y., Galvan, J.M., Rivoire, A., Klein, J.P., 2010. Study of droplet size distribution during an emulsification process using in situ video probe coupled with an automatic image analysis. Chemical Engineering Journal 165, 946–957.

Khan, F.R., 2005. Investigation of turbulent flows and instabilities in a stirred vessel using particle image velocimetry. Ph.D. thesis. Loughborough University.

Khismatullin, D.B., Renardy, Y., Cristini, V., 2003. Inertia-induced breakup of highly viscous drops subjected to simple shear. Physics of Fluids 15, 1351–1354.

Kolmogorov, A., 1949. On the breakage of drops in a turbulent flow, in : Dokl. Akad. Navk. SSSR, pp. 825–828.

Kolmogorov, A.N., 1941. The local structure of turbulence in incompressible viscous fluid for very large reynolds. Numbers. In Dokl. Akad. Nauk SSSR 30, 301.

Komrakova, A.E., Eskin, D., Derksen, J., 2015. Numerical study of turbulent liquid-liquid dispersions. AIChE Journal 61, 2618–2633.

Konno, M., Aoki, M., Saito, S., 1983. Scale effect on breakup process in liquid-liquid agitated tanks. Journal of chemical engineering of Japan 16, 312–319.

Krakau, F., Kraume, M., 2019a. 3d single bubble breakup tracking in a stirred tank. Chemie Ingenieur Technik 91, 980–990.

Krakau, F., Kraume, M., 2019b. Three-dimensional observation of single air bubble breakup in a stirred tank. Chemical Engineering & Technology 42, 1357–1370.

Kraume, M., Gäbler, A., Schulze, K., 2004. Influence of physical properties on drop size distribution of stirred liquid-liquid dispersions. Chemical Engineering & Technology : Industrial Chemistry-Plant Equipment-Process Engineering-Biotechnology 27, 330–334.

Krizhevsky, A., Sutskever, I., Hinton, G.E., 2017. Imagenet classification with deep convolutional neural networks. Communications of the ACM 60, 84–90.

Krüger, T., Kusumaatmaja, H., Kuzmin, A., Shardt, O., Silva, G., Viggen, E.M., 2017. The lattice Boltzmann method. volume 10. Springer.

Kumar, S., Ganvir, V., Satyanand, C., Kumar, R., Gandhi, K., 1998. Alternative mechanisms of drop breakup in stirred vessels. Chemical Engineering Science 53, 3269–3280.

Kumar, S., Kumar, R., Gandhi, K., 1991. Alternative mechanisms of drop breakage in stirred vessels. Chemical engineering science 46, 2483–2489.

Kuriyama, M., Ono, M., Tokanai, H., Konno, H., 1995. The number of daughter drops formed per breakup of a highly viscous mother-drop in turbulent flow. Journal of chemical engineering of Japan 28, 477–479.

Laine, Q., 2024. Influence de la Géométrie sur l'Écoulement et la Formation de l'Émulsion dans un Système d'Agitation Miniaturisé : simulations CFD et études expérimentales. Ph.D. thesis. Thèse de doctorat dirigée par Olmos, Eric Génie des Procédés, des Produits et des Molécules Université de Lorraine 2024. S288214.

Laine, Q., Randriamanantena, T., Lamadie, F., Olmos, E., 2023. Experimental study of velocity and turbulence fields in a square mixer-settler tank : Comparison of shake the box ptv and 2d2c piv. Chemical Engineering Science 275, 118636.

Lamberto, D., Alvarez, M., Muzzio, F., 1999. Experimental and computational investigation of the laminar flow structure in a stirred tank. Chemical Engineering Science 54, 919–942.

Lane, G.L., Mohanarangam, K., Yang, W., Robinson, D.J., Barnard, K.R., 2016. Flow pattern assessment and design optimisation for an industrial solvent extraction settler through in situ measurements and cfd modelling. Chemical Engineering Research and Design 109, 200–214.

Lasheras, J.C., Eastwood, C., Martınez-Bazán, C., Montañes, J.L., 2002. A review of statistical models for the break-up of an immiscible fluid immersed into a fully developed turbulent flow. International Journal of Multiphase Flow 28, 247–278.

Laurenzi, F., Coroneo, M., Montante, G., Paglianti, A., Magelli, F., 2009. Experimental and computational analysis of immiscible liquid–liquid dispersions in stirred vessels. Chemical Engineering Research and Design 87, 507–514.

Lee, H., Calvin, K., Dasgupta, D., Krinner, G., Mukherji, A., Thorne, P., Trisos, C., Romero, J., Aldunce, P., Barrett, K., et al., 2023. Climate change 2023 : synthesis report. Contribution of working groups I, II and III to the sixth assessment report of the intergovernmental panel on climate change.

Lehr, F., Mewes, D., 2001. A transport equation for the interfacial area density applied to bubble columns. Chemical engineering science 56, 1159–1166.

Leybros, J., 2004. Extraction liquide-liquide description des appareils. Techniques de l'ingénieur Opérations unitaires. Génie de la réaction chimique base documentaire : TIP452WEB.

Li, B., Zhang, H., Fu, S., Su, W., Wang, Y., Wang, L., 2024. Simulation of single droplet deformation and breakup in shear flow by the phase-field lattice boltzmann method. Industrial & Engineering Chemistry Research 63, 22104–22117.

Li, M., Wilkinson, D., Patchigolla, K., 2005. Comparison of particle size distributions measured using different techniques. Particulate Science and Technology 23, 265–284.

Li, Z., Bao, Y., Gao, Z., 2011. Piv experiments and large eddy simulations of single-loop flow fields in rushton turbine stirred tanks. Chemical Engineering Science 66, 1219–1231.

Liao, Y., Lucas, D., 2009. A literature review of theoretical models for drop and bubble breakup in turbulent dispersions. Chemical Engineering Science 64, 3389–3406.

Liao, Y., Rzehak, R., Lucas, D., Krepper, E., 2015. Baseline closure model for dispersed bubbly flow : Bubble coalescence and breakup. Chemical Engineering Science 122, 336–349.

Lin, T.Y., Maire, M., Belongie, S., Bourdev, L., Girshick, R., Hays, J., Perona, P., Ramanan, D., Zitnick, C.L., Dollár, P., 2015. Microsoft coco : Common objects in context. arXiv:1405.0312.

Liné, A., Gabelle, J.C., Morchain, J., Anne-Archard, D., Augier, F., 2013. On pod analysis of piv measurements applied to mixing in a stirred vessel with a shear thinning fluid. Chemical Engineering Research and Design 91, 2073–2083.

Liu, N., Wang, W., Han, J., Zhang, M., Angeli, P., Wu, C., Gong, J., 2016. A piv investigation of the effect of disperse phase fraction on the turbulence characteristics of liquid–liquid mixing in a stirred tank. Chemical Engineering Science 152, 528–546.

Luo, H., Svendsen, H.F., 1996. Theoretical model for drop and bubble breakup in turbulent dispersions. AIChE journal 42, 1225–1233.

M-Star Simulations, L., 2025a. M-star cfd home. https://mstarcfd.com/. Consulté le 27 août 2025.

M-Star Simulations, L., 2025b. Theory and implementation – m-star cfd documentation. https://docs.mstarcfd.com/17_Theory/theory-and-implementation.html. Consulté le 27 août 2025.

Ma, Z., 2014. Impeller power draw across the full Reynolds number spectrum. Master's thesis. University of Dayton.

Maaß, S., Gäbler, A., Zaccone, A., Paschedag, A., Kraume, M., 2007. Experimental investigations and modelling of breakage phenomena in stirred liquid/liquid systems. Chemical Engineering Research and Design 85, 703–709.

Maaß, S., Kraume, M., 2012. Determination of breakage rates using single drop experiments. Chemical Engineering Science 70, 146–164.

Maaß, S., Metz, F., Rehm, T., Kraume, M., 2010. Prediction of drop sizes for liquid–liquid systems in stirred slim reactors—part i : Single stage impellers. Chemical Engineering Journal 162, 792–801.

Maaß, S., Rojahn, J., Hänsch, R., Kraume, M., 2012. Automated drop detection using image analysis for online particle size monitoring in multiphase systems. Computers & Chemical Engineering 45, 27–37.

Maaß, S., Wollny, S., Voigt, A., Kraume, M., 2011. Experimental comparison of measurement techniques for drop size distributions in liquid/liquid dispersions. Experiments in Fluids 50, 259–269.

Martínez-Bazán, C., Montañes, J.L., Lasheras, J.C., 1999a. On the breakup of an air bubble injected into a fully developed turbulent flow. part 1. breakup frequency. Journal of Fluid Mechanics 401, 157–182.

Martínez-Bazán, C., Montañes, J.L., Lasheras, J.C., 1999b. On the breakup of an air bubble injected into a fully developed turbulent flow. part 2. size pdf of the resulting daughter bubbles. Journal of Fluid Mechanics 401, 183–207.

Mercier, Z., 2023. Préparation de poudres par broyage cryogénique : Analyse physique, modélisation comportementale et simulations des écoulements de suspension. Etudes numériques et expérimentales. Ph.D. thesis. Toulouse, INPT.

Mortensen, H.H., Arlov, D., Innings, F., Håkansson, A., 2018. A validation of commonly used cfd methods applied to rotor stator mixers using piv measurements of fluid velocity and turbulence. Chemical Engineering Science 177, 340–353.

Ničeno, B., Dhotre, M., Deen, N., 2008. One-equation sub-grid scale (sgs) modelling for euler–euler large eddy simulation (eeles) of dispersed bubbly flow. Chemical Engineering Science 63, 3923–3931.

Olad, P., Håkansson, A., 2025. Single drop turbulent breakup in the anisotropic turbulence inside a high-pressure homogenizer scale-up model. International Journal of Multiphase Flow 184, 105077.

Olad, P., Innings, F., Crialesi-Esposito, M., Brandt, L., Håkansson, A., 2023. Comparison of turbulent drop breakup in an emulsification device and homogeneous isotropic turbulence : Insights from numerical experiments. Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects 657, 130569.

Olbricht, W., Rallison, J., Leal, L., 1982. Strong flow criteria based on microstructure deformation. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics 10, 291–318.

Olmos, E., Gentric, C., Poncin, S., Midoux, N., 2003. Description of flow regime transitions in bubble columns via laser doppler anemometry signals processing. Chemical engineering science 58, 1731–1742.

Onink, F., Drumm, C., Meindersma, G.W., Bart, H.J., de Haan, A.B., 2010. Hydrodynamic behavior analysis of a rotating disc contactor for aromatics extraction with 4-methyl-butyl-pyridinium· bf4 by cfd. Chemical Engineering Journal 160, 511–521.

Pacek, A., Man, C., Nienow, A., 1998. On the sauter mean diameter and size distributions in turbulent liquid/liquid dispersions in a stirred vessel. Chemical Engineering Science 53, 2005–2011.

Peskin, C.S., 2002. The immersed boundary method. Acta numerica 11, 479–517.

Pfleger, D., Becker, S., 2001. Modelling and simulation of the dynamic flow behaviour in a bubble column. Chemical engineering science 56, 1737–1747.

Pope, S.B., 2000. Turbulent Flows. Cambridge University Press.

Poux, M., Xuereb, C., 2014. Agitation des systèmes diphasiques. Techniques de l'ingénieur Opérations unitaires. Génie de la réaction chimique base documentaire : TIP452WEB.

Raikar, N.B., Bhatia, S.R., Malone, M.F., Henson, M.A., 2009. Experimental studies and population balance equation models for breakage prediction of emulsion drop size distributions. Chemical Engineering Science 64, 2433–2447.

Rak, A., Grbčić, L., Sikirica, A., Kranjčević, L., 2023. Experimental and lbm analysis of medium-reynolds number fluid flow around naca0012 airfoil. International journal of numerical methods for heat & fluid flow 33, 1955–1980.

Ramkrishna, D., 2000. Population balances : Theory and applications to particulate systems in engineering. Elsevier.

Randriamanantena, T., 2011. Caractérisation et modélisation du comportement de la phase dispersée dans les colonnes pulsées. Ph.D. thesis. Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.

Redmon, J., Divvala, S., Girshick, R., Farhadi, A., 2016. You only look once : Unified, real-time object detection, in : Proceedings of the IEEE conference on computer vision and pattern recognition, pp. 779–788.

Ribeiro, M.M., Regueiras, P.F., Guimaraes, M.M., Madureira, C.M., Cruz_Pinto, J.J., 2011. Optimization of breakage and coalescence model parameters in a steady-state batch agitated dispersion. Industrial & engineering chemistry research 50, 2182–2191.

Risso, F., Fabre, J., 1998. Oscillations and breakup of a bubble immersed in a turbulent field. Journal of Fluid Mechanics 372, 323–355.

Riviere, A., Mostert, W., Perrard, S., Deike, L., 2021. Sub-hinze scale bubble production in turbulent bubble break-up. Journal of Fluid Mechanics 917, A40.

Roussel, H., Dutilh, F., 2024. Liquid-liquid extractor and battery comprising such extractors. US Patent 12,017,153.

Roustan, M., 2023. Agitation. mélange caractéristiques des mobiles d'agitation. Techniques de l'ingénieur Opérations unitaires. Génie de la réaction chimique base documentaire : TIP452WEB.

Roustan, M., LINÉ, A., PHARAMOND, J.C., 2023. Agitation. mélange concepts théoriques de base. Techniques de l'ingénieur Opérations unitaires. Génie de la réaction chimique base documentaire : TIP452WEB.

Rueger, P.E., Calabrese, R.V., 2013. Dispersion of water into oil in a rotor–stator mixer. part 1 : Drop breakup in dilute systems. Chemical Engineering Research and Design 91, 2122–2133.

Rumscheidt, F.D., Mason, S., 1961. Particle motions in sheared suspensions xii. deformation and burst of fluid drops in shear and hyperbolic flow. Journal of Colloid Science 16, 238–261.

Rushton, J., 1950. Power characteristics of mixing impellers part 1. Chem. Eng. Prog. 46, 395–404.

Saarenrinne, P., Piirto, M., 2000. Turbulent kinetic energy dissipation rate estimation from piv velocity vector fields. Experiments in fluids 29, S300–S307.

Saarenrinne, P., Piirto, M., Eloranta, H., 2001. Experiences of turbulence measurement with piv. Measurement Science and Technology 12, 1904.

Sadeghi, R., Mohebbi, A., Sarrafi, A., Soltani, A., Salmanzadeh, M., Daneshpojooh, S., 2011. Cfd simulation and optimization of the settler of an industrial copper solvent extraction plant : A case study. Hydrometallurgy 106, 148–158.

Sanjuan-Galindo, R., Soto, E., Zenit, R., Ascanio, G., 2015. Viscous filament fragmentation in a turbulent flow inside a stirred tank. Chemical Engineering Communications 202, 1251–1260.

Sato, Y., Sekoguchi, K., 1975. Liquid velocity distribution in two-phase bubble flow. International Journal of Multiphase Flow 2, 79–95.

Schanz, D., Schröder, A., Gesemann, S., Michaelis, D., Wieneke, B., 2013. 'shake the box' : A highly efficient and accurate tomographic particle tracking velocimetry (tomo-ptv) method using prediction of particle positions, in : PIV13 ; 10th International Symposium on Particle Image Velocimetry, Delft, The Netherlands, July 1-3, 2013, Delft University of Technology, Faculty of Mechanical, Maritime and ....

Schiller, L., Naumann, Z., 1935. A drag coefficient correlation. Z. Ver. Deutsch. Ing 77, e323.

Shao, C., Luo, K., Yang, Y., Fan, J., 2018. Direct numerical simulation of droplet breakup in homogeneous isotropic turbulence : The effect of the weber number. International Journal of Multiphase Flow 107, 263–274.

Sharp, K.V., Adrian, R.J., 2001. Piv study of small-scale flow structure around a rushton turbine. AIChE Journal 47, 766–778.

Shayunusov, D., Eskin, D., Zeng, H., Nikrityuk, P., 2024. Behavior of small water droplets in a highly viscous flow in a converging and diverging channel. Physics of Fluids 36, 033333.

Shinkai, T., Hakamada, T., Tanabe, H., Hirowatari, F., Misumi, R., 2025. Tomographic stereo-piv measurement of 3d flow patterns and local power dissipation in a stirring blade turning space in transitional flow regime. Chemical Engineering Science , 121913.

Shinnar, R., 1961. On the behaviour of liquid dispersions in mixing vessels. Journal of fluid mechanics 10, 259–275.

Shinnar, R., Church, J.M., 1960. Statistical theories of turbulence in predicting particle size in agitated dispersions. Industrial & Engineering Chemistry 52, 253–256.

Singh, K., Mahajani, S., Shenoy, K., Ghosh, S., 2008a. Cfd modeling of pump-mix action in continuous flow stirred tank. AIChE journal 54, 42–55.

Singh, K., Mahajani, S., Shenoy, K., Ghosh, S., 2008b. Representative drop sizes and drop size distributions in a/o dispersions in continuous flow stirred tank. Hydrometallurgy 90, 121–136.

Singh, K., Mahajani, S., Shenoy, K., Ghosh, S., 2009. Population balance modeling of liquid- liquid dispersions in homogeneous continuous-flow stirred tank. Industrial & engineering chemistry research 48, 8121–8133.

Singh, K., Mahajani, S., Shenoy, K., Patwardhan, A., Ghosh, S., 2007. Cfd modeling of pilot-scale pump-mixer : Single-phase head and power characteristics. Chemical Engineering Science 62, 1308–1322.

Sis, H., Kelbaliyev, G., Chander, S., 2005. Kinetics of drop breakage in stirred vessels under turbulent conditions. Journal of dispersion science and technology 26, 565–573.

Sleicher Jr, C., 1962. Maximum stable drop size in turbulent flow. AIChE Journal 8, 471–477.

Smagorinsky, J., 1963. General circulation experiments with the primitive equations : I. the basic experiment. Monthly weather review 91, 99–164.

Solsvik, J., Jakobsen, H.A., 2015a. Single air bubble breakup experiments in stirred water tank. International Journal of Chemical Reactor Engineering 13, 477–491.

Solsvik, J., Jakobsen, H.A., 2015b. Single drop breakup experiments in stirred liquid–liquid tank. Chemical Engineering Science 131, 219–234.

Solsvik, J., Jakobsen, H.A., 2016. Development of fluid particle breakup and coalescence closure models for the complete energy spectrum of isotropic turbulence. Industrial & Engineering Chemistry Research 55, 1449–1460.

Solsvik, J., Maaß, S., Jakobsen, H.A., 2016. Definition of the single drop breakup event. Industrial & Engineering Chemistry Research 55, 2872–2882.

Srilatha, C., Mundada, T.P., Patwardhan, A.W., 2010. Scale-up of pump-mix mixers using cfd. Chemical Engineering Research and Design 88, 10–22.

Stamatoudis, M., Tavlarides, L.L., 1985. Effect of continuous-phase viscosity on the drop sizes of liquid-liquid dispersions in agitated vessels. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development 24, 1175–1181.

Stone, H.A., Bentley, B., Leal, L.G., 1986. An experimental study of transient effects in the breakup of viscous drops. Journal of Fluid Mechanics 173, 131–158.

Svensson, F.J., Rasmuson, A., 2004. Lda-measurements in a stirred tank with a liquid-liquid system at high volume percentage dispersed phase. Chemical Engineering & Technology : Industrial Chemistry-Plant Equipment-Process Engineering-Biotechnology 27, 335–339.

Svensson, F.J., Rasmuson, A., 2006. Piv measurements in a liquid–liquid system at volume percentages up to 10% dispersed phase. Experiments in fluids 41, 917–931.

Tabib, M., Lane, G., Yang, W., Schwarz, M.P., 2010. Cfd simulation of a solvent extraction pump mixer unit : evaluating large eddy simulation and rans based models. The Journal of Computational Multiphase Flows 2, 165–178.

Tabib, M.V., Lane, G., Yang, W., Schwarz, M.P., 2012. Cfd study of single phase and multiphase (liquid–liquid) pump-mixer : Analyzing design parameters, flow structures and turbulence. Chemical engineering science 80, 55–69.

Tabib, M.V., Schwarz, P., 2011. Quantifying sub-grid scale (sgs) turbulent dispersion force and its effect using one-equation sgs large eddy simulation (les) model in a gas–liquid and a liquid–liquid system. Chemical engineering science 66, 3071–3086.

Tang, Q., Zhang, J., Wu, Y., Wang, Y., Liu, Z., 2020. An experimental study of immiscible liquid–liquid dispersions in a pump–mixer of mixer–settler. Chinese Journal of Chemical Engineering 28, 33–45.

Taylor, G.I., 1932. The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing papers of a mathematical and physical character 138, 41–48.

Taylor, G.I., 1934. The formation of emulsions in definable fields of flow. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, containing papers of a mathematical and physical character 146, 501–523.

Thomas, J.A., DeVincentis, B., Wutz, J., Ricci, F., 2022. Predicting the diameters of droplets produced in turbulent liquid–liquid dispersion. AIChE Journal 68, e17667.

Tjahjadi, M., Ottino, J., 1991. Stretching and breakup of droplets in chaotic flows. Journal of Fluid Mechanics 232, 191–219.

Tjahjadi, M., Stone, H.A., Ottino, J.M., 1992. Satellite and subsatellite formation in capillary breakup. Journal of Fluid Mechanics 243, 297–317.

Valentas, K.J., Bilous, O., Amundson, N.R., 1966. Analysis of breakage in dispersed phase systems. Industrial & engineering chemistry fundamentals 5, 271–279.

Vashisth, V., Andersson, R., 2025. Dynamics of bubble breakup under turbulent flow conditions. Chemical Engineering Journal 511, 162019.

Walter, J.F., Blanch, H.W., 1986. Bubble break-up in gas—liquid bioreactors : break-up in turbulent flows. The Chemical Engineering Journal 32, B7–B17.

Wang, F., Mao, Z.S., 2005. Numerical and experimental investigation of liquid- liquid two-phase flow in stirred tanks. Industrial & engineering chemistry research 44, 5776–5787.

Wang, G., Yang, F., Wu, K., Ma, Y., Peng, C., Liu, T., Wang, L.P., 2021. Estimation of the dissipation rate of turbulent kinetic energy : A review. Chemical Engineering Science 229, 116133.

Xi, H., Duncan, C., 1999. Lattice boltzmann simulations of three-dimensional single droplet deformation and breakup under simple shear flow. Physical Review E 59, 3022.

Ye, S., Tang, Q., Wang, Y., Fei, W., 2016. Piv measurement and cfd simulation of liquid-liquid flow of a settler in rare earths solvent extraction mixer-settler. International Journal of Heat and Fluid Flow 62, 568–576.

Ye, S., Tang, Q., Wang, Y., Fei, W., 2020. Structural optimization of a settler via cfd simulation in a mixer-settler. Chinese Journal of Chemical Engineering 28, 995–1015.

Zamiri, A., Chung, J.T., 2017. Ability of urans approach in prediction of unsteady turbulent flows in an unbaffled stirred tank. International Journal of Mechanical Sciences 133, 178–187.

Zednikova, M., Stanovsky, P., Travnickova, T., Orvalho, S., Holub, L., Vejrazka, J., 2019. Experiments on bubble breakup induced by collision with a vortex ring. Chemical Engineering & Technology 42, 843–850.

Zhang, D., Deen, N., Kuipers, J., 2005. Numerical simulation of dynamic flow behaviour in a bubble column : comparison of the bubble-induced turbulence models in the k-ε model, in : Fourth International Conference on CFD in the Oil and Gas, Metallurgical & Process Industries, Trondheim, Norway, pp. 6–8.

Zhang, H., Wang, Y., Sayyar, A., Wang, T., 2023. Experimental study on breakup of a single bubble in a stirred tank : Effect of gas density and liquid properties. AIChE Journal 69, e17511.

Zhao, Y., Li, X., Cheng, J., Yang, C., Mao, Z.S., 2011. Experimental study on liquid–liquid macromixing in a stirred tank. Industrial & engineering chemistry research 50, 5952–5958.

Zhou, G., Kresta, S.M., 1998. Correlation of mean drop size and minimum drop size with the turbulence energy dissipation and the flow in an agitated tank. Chemical Engineering Science 53, 2063–2079.

Zhou, H., Jing, S., Fang, Q., Li, S., Lan, W., 2017. Direct measurement of droplet breakage in a pulsed disc and doughnut column. AIChE Journal 63, 4188–4200.

Zhou, H., Yang, J., Jing, S., Lan, W., Zheng, Q., Li, S., 2019a. Influence of dispersed-phase viscosity on droplet breakup in a continuous pump-mixer. Industrial & Engineering Chemistry Research 58, 23458–23467.

Zhou, H., Yu, X., Jing, S., Zhou, H., Lan, W., Li, S., 2019b. Measurement of droplet breakage in a pump-mixer. Chemical Engineering Science 195, 23–38.

Zhou, H., Yu, X., Wang, B., Jing, S., Lan, W., Li, S., 2021a. Cfd–pbm simulation of liquid–liquid dispersions in a pump-mixer. Industrial & Engineering Chemistry Research 60, 1926–1938.

Zhou, H., Yu, X., Wang, B., Jing, S., Lan, W., Li, S., 2021b. Experimental study on drop breakup time and breakup rate with drop swarms in a stirred tank. AIChE Journal 67, e17065.

Zhu, J.Y., Park, T., Isola, P., Efros, A.A., 2017. Unpaired image-to-image translation using cycle-consistent adversarial networks, in : Proceedings of the IEEE international conference on computer vision, pp. 2223–2232.

Zou, Y., Ye, S.S., Wang, Y.D., Fei, W.Y., 2016. Cfd simulation and piv measurement of liquid–liquid two-phase flow in pump-mix mixer. Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers 60, 15–25.

Carpe diem