



HAL
open science

Agglomération avec restructuration dans un écoulement faiblement turbulent

Frédéric Gruy

► **To cite this version:**

Frédéric Gruy. Agglomération avec restructuration dans un écoulement faiblement turbulent. STP 2012 (7^e Colloque Science et Techniques des Poudres), Jul 2012, Toulouse, France. hal-00777583

HAL Id: hal-00777583

<https://hal.science/hal-00777583>

Submitted on 8 Nov 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

AGGLOMERATION AVEC RESTRUCTURATION DANS UN ECOULEMENT FAIBLEMENT TURBULENT

F. GRUY

(1) Ecole Nationale Supérieure des Mines, 158 Cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne, Cedex 2
e-mail : gruy@emse.fr

Résumé. La porosité d'un agglomérat est la conséquence de plusieurs phénomènes comme la collision des particules, leur collage, la restructuration, la fragmentation... Ce papier montre quelques résultats obtenus par des simulations de Monte Carlo appliquées à une population d'objets caractérisés par leur volume de matière et leur volume poreux et subissant ces phénomènes. L'accent est mis sur l'évolution temporelle de la distribution de porosité de la population d'agglomérats.

Mots Clés. bilan de population, agglomération, restructuration, Monte Carlo

1. INTRODUCTION

Le résultat d'une précipitation ou d'une cristallisation en réacteur agité est une suspension de particules ou de cristaux agglomérés. Plus simplement, des particules (primaires) en suspension sont susceptibles d'entrer en collision et de se coller, formant des agrégats ou agglomérats (nous garderons dans la suite du texte les termes agglomération et agglomérat). La collision peut être due au mouvement Brownien ou à l'écoulement de la suspension. Il en résulte des agglomérats (composés de particules primaires) de plus en plus gros, mais aussi de plus en plus poreux et fragiles. La dynamique de formation d'un agglomérat a été quantifiée au travers d'une loi cinétique faisant apparaître des constantes cinétiques, appelées aussi noyaux d'agglomération.

Il a aussi été observé qu'un agglomérat se contracte en présence du fluide de façon à présenter un volume moindre au fluide. Cette contraction est associée à un mouvement relatif des particules primaires dans l'agglomérat. Peu de travaux ont été réalisés pour quantifier la contraction, appelée aussi restructuration. Parmi les quelques mécanismes envisagés, l'effet conjoint des forces attractives de Van der Waals et des grandeurs turbulentes locales est le plus souvent mentionné.

Nous nous proposons, dans ce papier, d'étudier la dynamique du couplage entre l'agglomération et la restructuration, laquelle va déterminer la morphologie des éléments de la suspension.

2. ETAT DE L'ART

2.1 Lois de contraction ou de restructuration

Un agglomérat est souvent considéré comme fractal : son rayon est lié au nombre i de particules primaires par une loi de puissance :

$$R_i / R_1 = (i / S)^{1/D_f} \quad (1)$$

S et D_f sont respectivement le facteur de structure ($S = 0.42D_f - 0.22$) et la dimension fractale. Il est à noter que de nombreux auteurs choisissent pour S la valeur 1.

La contraction de l'agglomérat correspond à l'augmentation de la dimension fractale si celui-ci peut être décrit par ce paramètre. Des approches empiriques de la contraction ont été essentiellement proposées : elles supposent que l'évolution de la dimension fractale obéit à une loi (qui est considérée indépendante des autres phénomènes) de type relaxation (voir, par exemple [1]). Ces relations

empiriques traduisent correctement la réalité des expériences concernées, mais n'ont aucun fondement théorique.

2.2 Intégration à un bilan de population

Les lois quantifiant la restructuration des agglomérats doivent être intégrées dans le bilan de population, lequel permet d'accéder à l'état de la population à tout instant. Deux approches ont été envisagées :

- bilan de population 1D

Classiquement, les particules sont décrites par une seule variable interne p_1 (par exemple, le rayon de la particule si la particule est sphérique, le volume de matière v ou le nombre i de particules primaires dans l'agglomérat). La densité de population d'une suspension homogène dépend alors de t et p_1 : $n(p_1, t)$.

Le bilan de population (avec agglomération, fragmentation ...) fait apparaître des constantes cinétiques (ou noyaux). Ainsi, si la cause de l'agglomération est le cisaillement, le noyau s'écrit (avec $S=1$) :

$$K_A(i, j) = \frac{4}{3} \dot{\gamma} (R_i + R_j)^3 = \frac{4}{3} \dot{\gamma} R_i^3 \left(i^{1/D_f} + j^{1/D_f} \right)^3 \quad (2)$$

Où $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement.

Si le temps de relaxation de la loi de contraction est une constante ou ne dépend que d'une taille moyenne instantanée, la dimension fractale sera recalculée à chaque pas de temps et la nouvelle valeur introduite dans les noyaux (d'agglomération ou de fragmentation) [1].

Une variante due à Baldyga [2] consiste à ajouter un terme « convectif » ou de « croissance » $\frac{\partial G n}{\partial R}$ au bilan de population, où G est la loi de contraction.

- bilan de population 2D

Un bilan de population à deux dimensions contient deux variables internes p_1, p_2 . La densité de population s'écrit $n(p_1, p_2, t)$. Les variables internes peuvent être : $p_1 = R, v, i$ $p_2 = D_f$. Il a été proposé [3] d'utiliser les variables internes $p_1 = v$ $p_2 = D_f$ quand il y a restructuration.

Cependant, ces approches ne sont pas prédictibles, dans le sens où la dimension fractale n'est pas reliée, de façon rationnelle, à un ou des mécanismes d'évolution morphologique.

3. MODELISATION

Nous avons établi récemment [4] un cadre théorique permettant de tenir compte à la fois de l'agglomération-fragmentation et de la restructuration. Il se concrétise par un bilan de population bidimensionnel. Le choix des deux variables internes a été guidé par le désir d'avoir un bilan de population simple à écrire, c-à-d respectant l'additivité lors d'un processus d'agglomération. Les agglomérats étant des objets poreux, volume de matière v (ou nombre de particules primaires supposées identiques) et volume poreux νp ont été sélectionnés. La somme du volume de matière et du volume poreux est le volume de la sphère englobante. Le volume poreux a été préféré en place de la porosité pour sa propriété d'additivité. Cette approche permet de traiter l'agglomération seule et l'agglomération-restructuration avec le même formalisme. Nous en rappelons les grandes lignes.

3.1 Agglomération sans restructuration

Le processus d'agglomération sera décomposé en deux étapes indépendantes :

- collision de deux agglomérats conduisant à un objet « double » où les deux agglomérats initiaux sont en contact, mais gardent leur intégrité. Cette étape obéit à :

$$(v_i, vp_i) + (v_j, vp_j) \rightarrow (v_i + v_j, vp_i + vp_j)$$

Elle apparaît dans le bilan de population sous la forme des termes collisionnels (intégral) habituels avec le noyau $K(v_i + vp_i, v_j + vp_j)$:

- interpénétration des deux agglomérats initiaux pour former l'agglomérat final. La dilatation (contraction négative) résultante sera traduite par un terme « convectif » ou de « croissance » :

$$-\frac{\partial G_{vp}^0 n(vp, v)}{\partial vp}$$

On cherche donc $K(v_i + vp_i, v_j + vp_j)$ et G_{vp}^0 conduisant aux mêmes contenus cinétique et morphologique que les modélisations ou expériences publiées. Il est important de noter que les noyaux et la loi de contraction ne présupposent pas que les agglomérats soient fractals. La difficulté est de lier d'une part, la cinétique mesurée/modélisée et la topologie observée/simulée des agglomérats (ce sont deux choses souvent traitées indépendamment) et d'autre part, une modélisation faisant apparaître un terme G_{vp}^0 sensée conjuguer cinétique et topologie. Il suffit de rappeler que, pour l'agglomération sous cisaillement, le noyau fait apparaître le rayon de l'enveloppe de l'agglomérat tandis que la morphologie (dimension fractale) est obtenue expérimentalement.

L'usage est de représenter les variables sous une forme adimensionnelle : Dans le cas de l'agglomération sous cisaillement, le volume des agglomérats, la densité de population et le temps seront adimensionnés par v_1 (volume d'une particule primaire), Ψ / v_1^2 et t_A ($t_A = \frac{\pi}{\lambda \Psi}$). Ψ est la

fraction volumique en solide dans la suspension. Le noyau d'agglomération et la vitesse de dilatation deviennent [4] :

$$K = \left[\left((v_i + vp_i) / v_1 \right)^{1/3} + \left((v_j + vp_j) / v_1 \right)^{1/3} \right]^3 \quad (3)$$

$$G_{vp}^0 (vp / v_1) = d(vp / v_1) / dt' = 1.03 \left((v + vp) / v_1 \right)^{0.97} \quad (4)$$

3.2 Agglomération avec restructuration

La prise en compte de la restructuration se fait au travers de la vitesse de contraction :

$$G_{vp} = G_{vp}^0 + G_{vp}^1 \quad (5)$$

Où G_{vp}^1 est la vitesse de contraction « vraie » et G_{vp}^0 est la vitesse de contraction négative (dilatation) introduite par modélisation (de l'agglomération).

Nous avons établi l'expression de G_{vp}^1 dans un cas très courant : un agglomérat constitué de particules primaires soumises uniquement à des forces (attractives) de Van der Waals évoluant dans un écoulement faiblement turbulent [5]. Nous la présentons telle qu'elle est écrite dans [5] :

$$\left(\Phi^{1/3} - \Phi_0^{1/3} \right) / \left(1 - \Phi_0^{1/3} \right) = t / t_R = t' (t_A / t_R) \quad (6)$$

$$t_R \approx i^{1/2} \left(1 - \Phi_0^{1/3} \right)^{3/2} t_1 \text{ avec } t_1 \approx 4\mu / \left(AR_1 \rho^2 (\varepsilon / \nu)^2 \right)^{1/3}$$

$\Phi (= v / (v + vp))$, Φ_0 , A , ρ , μ , $\nu (= \mu / \rho)$, $\varepsilon (= \nu \dot{\gamma}^2)$ sont respectivement la fraction volumique en particule dans l'agglomérat (à l'instant t et à sa création), la constante de Hamaker, la masse volumique du fluide, la viscosité dynamique, la viscosité cinématique et le taux de dissipation d'énergie turbulente.

Lors de l'étude de l'agglomération couplée à la restructuration, il apparaît ainsi trois temps caractéristiques : t_A , t_R et t_1 , ce dernier étant le temps caractéristique de restructuration à l'échelle d'une paire de particules primaires. En conséquence, le paramètre unique caractérisant le couplage est le rapport B entre t_A et t_1 :

$$B = \frac{\pi (AR_1 \rho^2 \dot{\gamma})^{1/3}}{4 \mu \Psi} \quad (7)$$

L'équation 6 se met alors sous la forme :

$$G_{vp}^1 (vp/v_1) = d(vp/v_1)/dt = -4B(v/v_1)^{-5/6} ((v+vp)/v_1)^{4/3} \quad (8)$$

Nous nous proposons de résoudre le bilan de population bidimensionnel pour différentes valeurs de B . B est typiquement dans l'intervalle [1-100].

3.3 Simulations de Monte Carlo

Il a été montré que la méthode de Monte Carlo permettait de résoudre un bilan de population bidimensionnel. L'algorithme choisi dans ce travail est celui de Tandon et Rosner [6], déjà utilisé pour l'agglomération avec frittage (conduisant à une réduction de la surface spécifique de l'agglomérat). Il est caractérisé par un nombre maintenu artificiellement constant de particules ou agglomérats susceptibles d'entrer en collision (ici 3000). Le pas de temps choisi, plus sophistiqué que celui de Tandon, est celui de Smith [7]. La loi de réduction de surface est remplacée par la fonction vitesse de restructuration (Eq.5 avec Eqs. 4 et 8).

4. RESULTATS

Trois cas d'agglomération sous cisaillement ont été envisagés :

- cas A : pour une population de gouttes (deux gouttes sphériques qui se rencontrent forment une goutte sphérique) : $G_{vp} = 0$
- cas B : pour une population de particules solides (formation d'agglomérats poreux), mais sans restructuration : $G_{vp} = G_{vp}^0$
- cas C : pour une population de particules solides (formation d'agglomérats poreux), mais avec restructuration : $G_{vp} = G_{vp}^0 + G_{vp}^1$

L'état initial est constitué par une suspension de particules primaires de même taille.

Pour plusieurs nombres de pas de temps et donc valeurs du temps t' , le rayon des agglomérats $((v+vp)/v_1)^{1/3} = R/R_1$ a été porté en fonction de leur nombre de particules primaires v/v_1 . On peut déduire des graphes précédents une distribution des agglomérats sur l'échelle des dimensions fractales ou de la fraction volumique interne en solide Φ . Nous avons choisi, dans ce manuscrit, cette dernière sachant que les deux paramètres sont simplement liés.

La figure 1 présente le résultat d'une simulation, dont les caractéristiques sont communes à toutes les simulations.

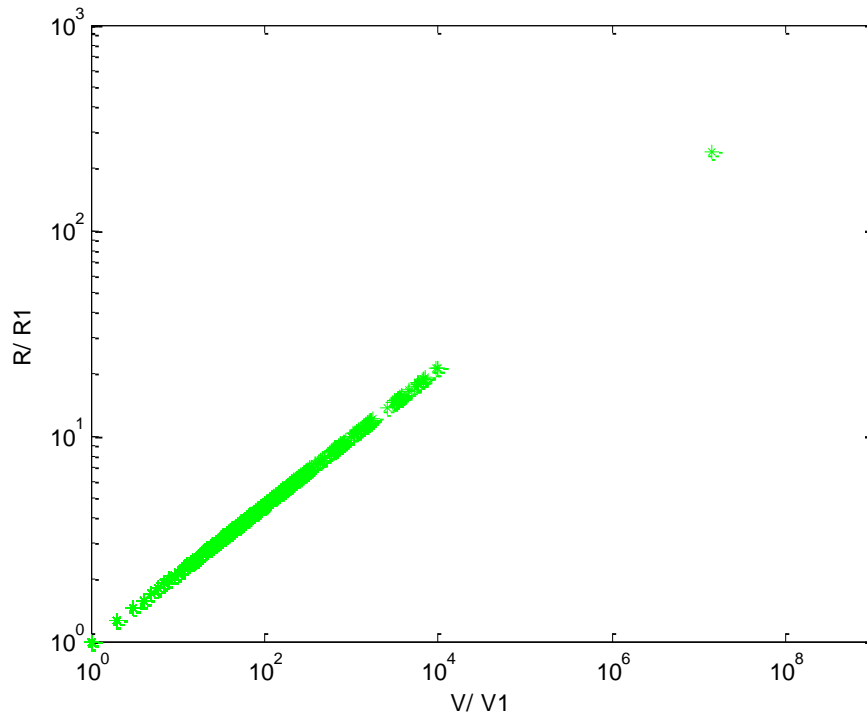


Figure 1 : cas A : $G_{vp} = 0$; $t' = 9$

On constate la présence d'un point (agglomérat ou goutte) isolé et de grande taille, représentant en volume (ou quantité de matière) une grande proportion de la matière du système. Ceci s'explique simplement en examinant l'équation 3. Le noyau correspondant, qui est dit catastrophique, est une fonction homogène dont l'exposant est 1 : l'agglomération est favorable aux gros agglomérats qui vont s'alimenter des plus petits et être, ainsi, de plus en plus gourmand. Ce phénomène n'est pas associé au nombre limité de particules dans l'échantillon simulé. En réalité, ce comportement est contrarié par l'existence d'une efficacité d'agglomération de plus en plus faible et par la fragmentation, ces dernières devenant perceptibles pour $t' \gg 3$.

4.1 Cas A

C'est le cas de référence. Il est caractérisé par une fraction volumique interne égale à 1, comme cela peut être vérifié sur la figure 1.

4.2 Cas B

La figure 2 représente l'évolution de la distribution (en nombre) de la fraction volumique interne avec le temps. La distribution normalisée a été construite sur un échantillon de 3000 particules primaires ou agglomérats à un instant donné. On constate une forte augmentation de la porosité des agglomérats. Cette dernière est associée à une agglomération de plus en plus rapide que l'on peut considérer terminée à $t' = 15$, quand le même état d'agglomération n'est obtenu qu'à $t' = 10^4$ dans le cas A (résultats non reproduits dans ce texte).

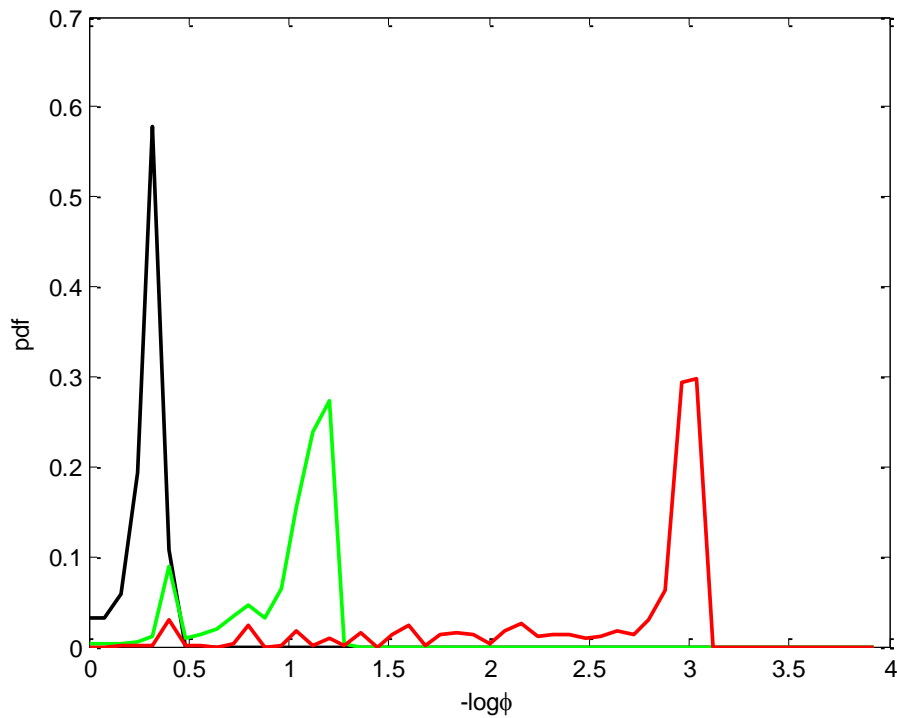


Figure 2 : cas B : distribution (en nombre) de fraction volumique interne à différents instants. noir ($t'=1$), vert ($t'=3$), rouge ($t'=7.3$). $B=0$

4.3 Cas C

L'effet de la contraction a été examiné pour $B=10$. Cette valeur correspond à une suspension aqueuse d'alumine (grains de rayon $1\mu\text{m}$) avec $\Phi = 10^{-4}$ et $\dot{\gamma} = 50\text{s}^{-1}$. La figure 3a montre que la contraction est importante et que les agglomérats sont denses, même si, aux temps élevés, une porosité non négligeable existe. La figure 3b montre aussi que l'agglomérat le plus gros a une porosité de plus en plus grande ; il est moins affecté par la contraction, car son contenu en matière est plus important (Eq.8). La figure 3c montre que, avec le temps, l'ensemble des agglomérats développe une porosité assez importante. La vitesse d'agglomération est sensiblement la même que pour le cas B, i.e. sans contraction (résultats non reproduits dans ce texte).

Une valeur plus grande de B , i.e. pour une suspension plus diluée, rend plus important l'effet de la contraction : on se rapproche du cas A pour lequel l'agglomération a lieu entre agglomérats denses. Une valeur plus petite de B rapproche l'agglomération du cas B.

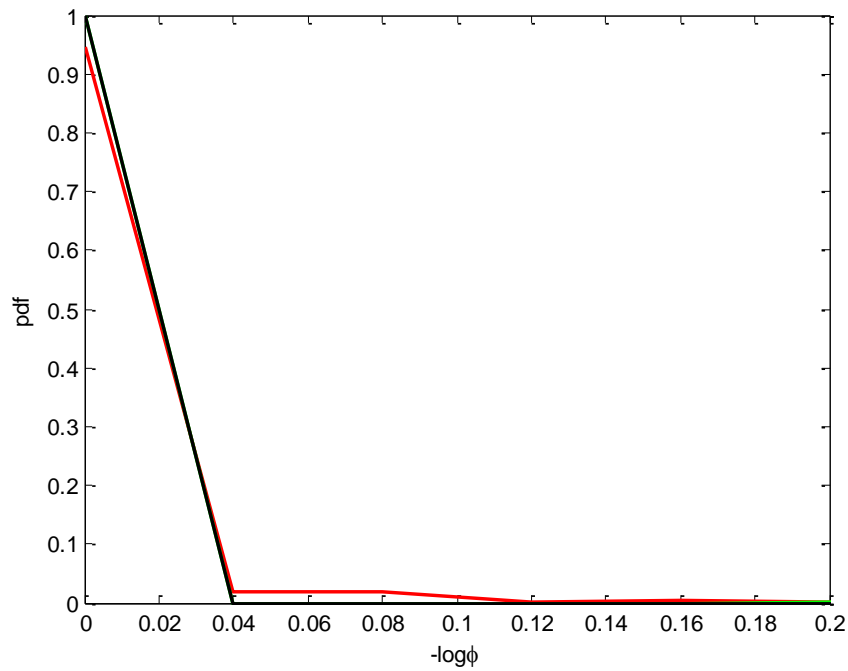


Figure 3a : cas C : distribution (en nombre) de fraction volumique interne à différents instants. noir ($t'=1$), vert ($t'=4.7$), rouge ($t'=7.4$). $B=10$

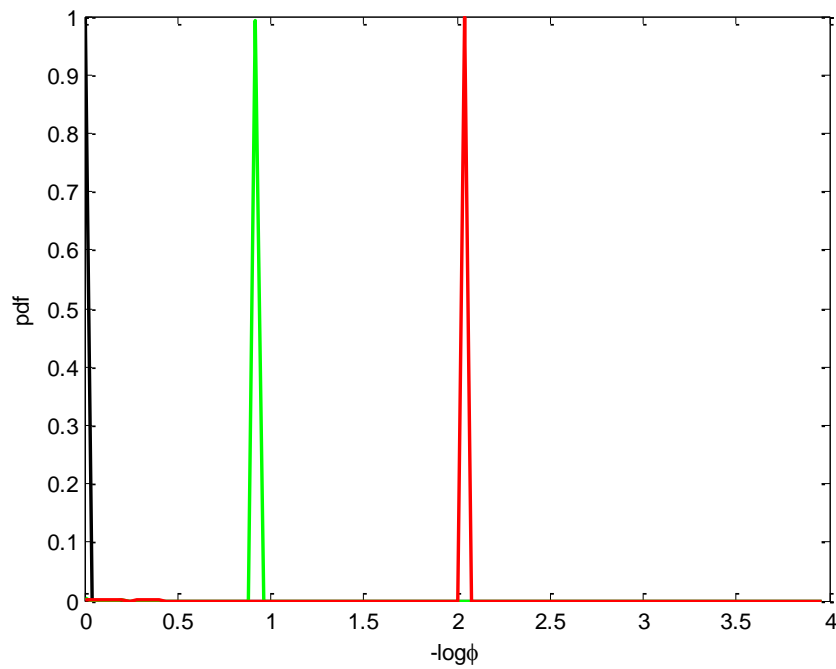


Figure 3b : cas C : distribution (en masse) de fraction volumique interne à différents instants. noir ($t'=1$), vert ($t'=4.7$), rouge ($t'=7.4$). $B=10$

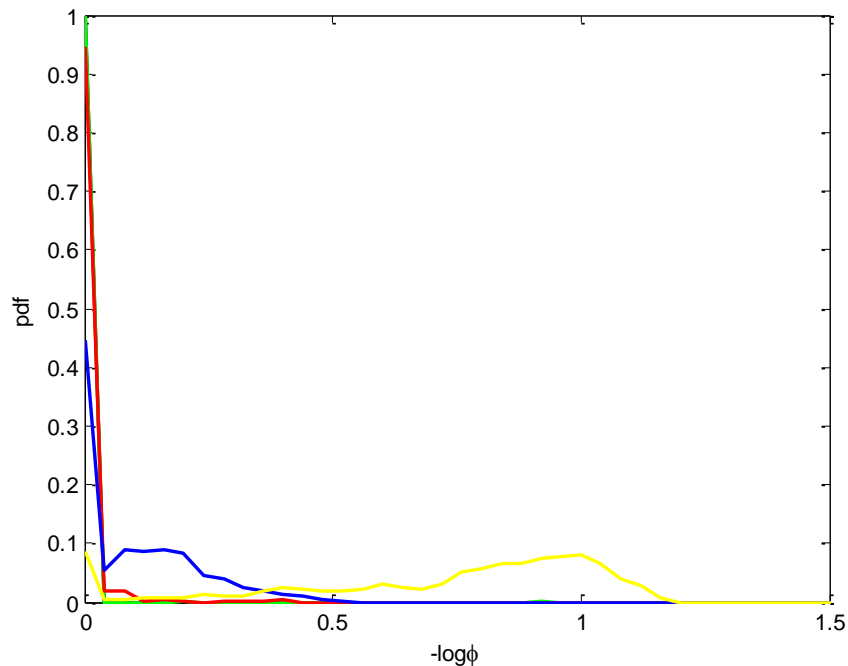


Figure 3c : cas C : distribution (en nombre) de fraction volumique interne à différents instants. noir ($t'=1$), vert ($t'=4.7$), rouge ($t'=7.4$), bleu ($t'=8.9$), jaune ($t'=11.7$). $B=10$

5. CONCLUSION

L'effet de la restructuration (contraction) sur l'agglomération dépend du paramètre B . Son expression montre que le paramètre du système le plus influent est la fraction volumique en solide dans la suspension. Plus faible est celle-ci, plus la contraction d'un agglomérat a le temps de se faire avant que ce dernier entre en collision avec un autre. Il en résulte des agglomérats denses et une dynamique assez lente d'agglomération. A l'inverse, une suspension concentrée conduit rapidement à de grands agglomérats très poreux, la restructuration n'ayant pas le temps de se réaliser.

REFERENCES

- [1] Soos M., Sefcik J., Morbidelli M., "Investigation of aggregation, breakage and restructuring kinetics of colloidal dispersions in turbulent flows by population balance modelling and static light scattering", Chem. Eng. Sci., 61, 2349(2006)
- [2] Baldyga J., Orciuch W., Makowski L., Malski-Brodzicki M., Malik K., "Break up of nano-particle clusters in high-shear devices", Chem. Eng. Progress, 46, 851(2007)
- [3] Kostoglou M., Konstandopoulos A.G., Friedlander S.K., "Bivariate population dynamics simulation of fractal aerosol aggregate coagulation and restructuring", Aerosol Sci. 37, 1102(2006)
- [4] Gruy F., "Population balance for aggregation coupled with morphology changes", Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects 374, 69-76(2011)
- [5] Gruy F., "Modelling of aggregate restructuring in a weakly turbulent flow", Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects, 395, 54-62(2012)
- [6] Tandon P., Rosner D.E., "Monte Carlo simulation of particle aggregation and simultaneous restructuring", J. Coll. Interf. Sci., 213, 273(1999)
- [7] Smith M., Matsoukas T., "Constant-number Monte Carlo simulation of population balances", Chem. Eng. Sci., 53, 1777(1998)