

SUR L'ÉTUDE PAR DIFFRACTOMÉTRIE ARC-EN-CIEL DE L'EXTRACTION LIQUIDE-LIQUIDE EN RÉGIMES STATIQUE ET TRANSITOIRE

Fabrice R.A. ONOFRI^{1,*}, Mariam OUATTARA^{1,2}, Yosri HADDAD^{1,2}, Fabrice LAMADIE^{2,*}

¹ Aix-Marseille Université, CNRS, IUSTI, UMR 7343, 13453, Marseille, France

² CEA, DEN, DMRC, SA2I, F-30207 Bagnols-sur-Cèze, France

(*Auteurs correspondants: fabrice.onofri@univ-amu.fr, fabrice.lamadie@cea.fr)



Résumé

Cette communication s'inscrit dans le cadre des recherches sur le procédé d'extraction liquide-liquide utilisé pour le retraitement du combustible nucléaire (PUREX) [1]. Le besoin d'améliorer les capacités et de réduire le coût de développement de la nouvelle génération de colonnes d'extraction impose le déploiement d'outils de simulation dûment validés. Dans cette perspective, et dans le cadre des thématiques du CFTL, nous présentons ici les travaux menés pour obtenir avec la diffractométrie arc-en-ciel : la granulométrie, la composition ou les gradients de concentration de gouttes de très faible indice relatif, qu'elles soient sessiles ou en écoulement [2].

Régime statique - gouttelettes homogènes

Le diffractomètre développé peut caractériser individuellement (mode SRD: *Standard Rainbow-angle Diffractometry*) [3, 4, 2] ou collectivement (mode GRD: *Global Rainbow-angle Diffractometry*) [5, 6, 2] des gouttes en ascension dans une cuve rectangulaire, voir la figure 1. Les paramètres recherchés (distribution de taille (PSD) et composition des gouttes) sont estimés à l'aide de deux méthodes inverses couplées à différents modèles de diffusion de la lumière: approximation d'optique physique et géométrique (POA, GOA) [7, 8], Théorie de Lorenz-Mie (LMT) [9]. Une étude numérique a permis de montrer qu'en mode GRD, il faut généralement réaliser des statistiques sur 10^4 à 10^5 gouttes pour atteindre une résolution maximale, même si avec des distributions plus simples (quasi-monomodales) 10^2 à 10^3 gouttelettes peuvent suffire [2]. Avec la théorie d'Airy, cette résolution diminue avec la taille des gouttelettes (cela était déjà connu pour les systèmes liquide-gaz) et lorsque la complexité de la PSD augmente (en particulier pour les PSD bimodales). Les écarts observés avec la GOA pourraient être dus à des problèmes de troncature des diagrammes dans le voisinage de la caustique.

L'analyse des résultats expérimentaux montre que les résolutions obtenues en mode SRD et GRD sont sensiblement identiques, voir la figure 2. Sur l'indice de réfraction par exemple, elle est de l'ordre de $1,6 \cdot 10^{-4}$ ce qui correspond à une résolution de 0.8% sur la composition en Marcol de gouttes de mélanges TPH-Marcol dans l'eau. Cette résolution est suffisante pour la réalisation d'études originales sur les mécanismes de transfert [2].

Régime dynamique - gouttelettes inhomogènes

Les études d'extraction sont réalisées avec le triplet fluide: acétone (A, espèce à extraire) avec l'eau (E) et le toluène (T) comme solvants immiscibles entre eux. En régime quasi-statique, le transfert de l'acétone peut être modélisé comme un processus de diffusion moléculaire à symétrie sphérique [10], voir la figure 3. Les propriétés optiques de cet « objet à gradients » (c.-à-d. goutte et environnement) sont modélisées avec la TLM généralisée [9]. Numériquement, ceci pose deux difficultés: la prise en compte de très grands paramètres de taille (plus de 30 000) et le grand nombre de couches (milliers à dizaines de milliers) nécessaires pour discrétiser finement les profils d'indice de réfraction. Ces problèmes ont été résolus en stabilisant le calcul des coefficients externes de diffusion et en raffinant la discrétisation là où cela est nécessaire (interface).

Compte tenu de la difficulté du problème, les expériences ont été réalisées avec la méthode de la goutte sessile, voir la figure 4 (a). La symétrie sphérique n'est pas parfaitement respectée du fait du ménisque. La figure 4 (b) montre les évolutions temporelles des profils d'intensité de l'arc-en-ciel d'une goutte dans laquelle diffuse l'acétone. En inversant ces profils, on peut estimer un certain nombre de paramètres. En guise d'illustration, le tableau 1 compare les estimations obtenues pour ces paramètres : concentrations initiales en acétone dans les deux phases (C_{AT} et C_{AE}), constante de partage du système ternaire ($K_{AT/AE}$), diamètre initial de la goutte (d) et délai entre injection et démarrage de l'acquisition (t_0). Pour ces premières inversions, seules les masses volumiques, les diffusivités et la température des fluides étaient supposées connues. On constate que les estimations sont assez bonnes compte tenu des pas de calcul utilisés ($\pm 0.5\%$ pour les concentrations et ± 0.01 pour $K_{AT/AE}$) par la méthode inverse.

Références

- [1] Simpson et al. (Idaho National Laboratory 2010)
- [2] Ouattara et al. Appl. Opt. 56, 8109-8120 (2017).
- [3] Roth et al, Appl. Opt. 30, 4960-4965 (1991)
- [4] Lohner et al Chemical Engineering & Technology 21, 337-341 (1998).
- [5] van Beeck et al, Opt. Lett. 24, 1696-1698 (1999)
- [6] Vetrano et al, Appl. Opt. 43, 3600-3607 (2004).
- [7] van de Hulst (Dover Publications, New-York, 1957)
- [8] Sentis et al, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. 170, 8-18 (2016).
- [9] Onofri et al, Appl. Opt. 34, 7113-7124 (1995).
- [10] Crank (Clarendon Press, Oxford, 1975).

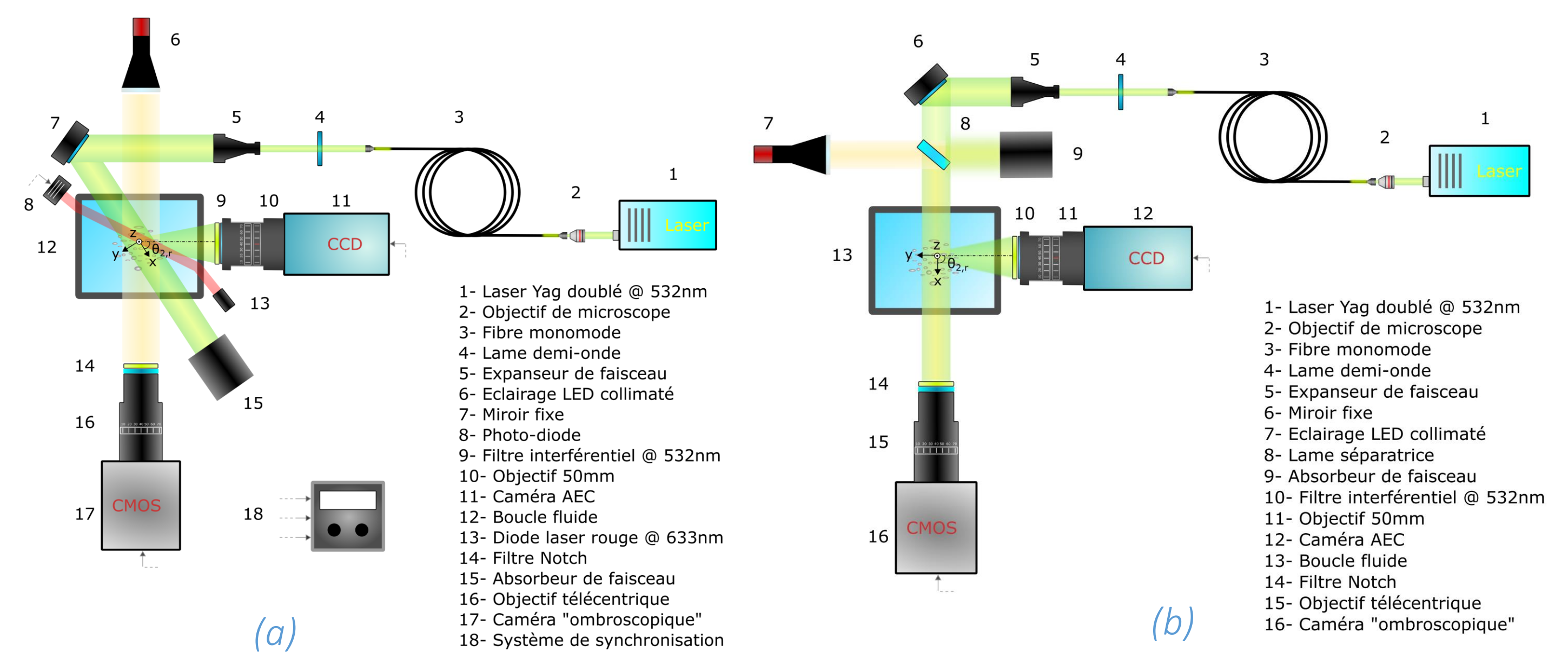


Fig. 1 Montage optique et boucle fluide pour des régimes (a) stationnaires (gouttes individ. ou nuages homogènes en écoulement) et (b) transitoires (goutte sessile avec gradients)

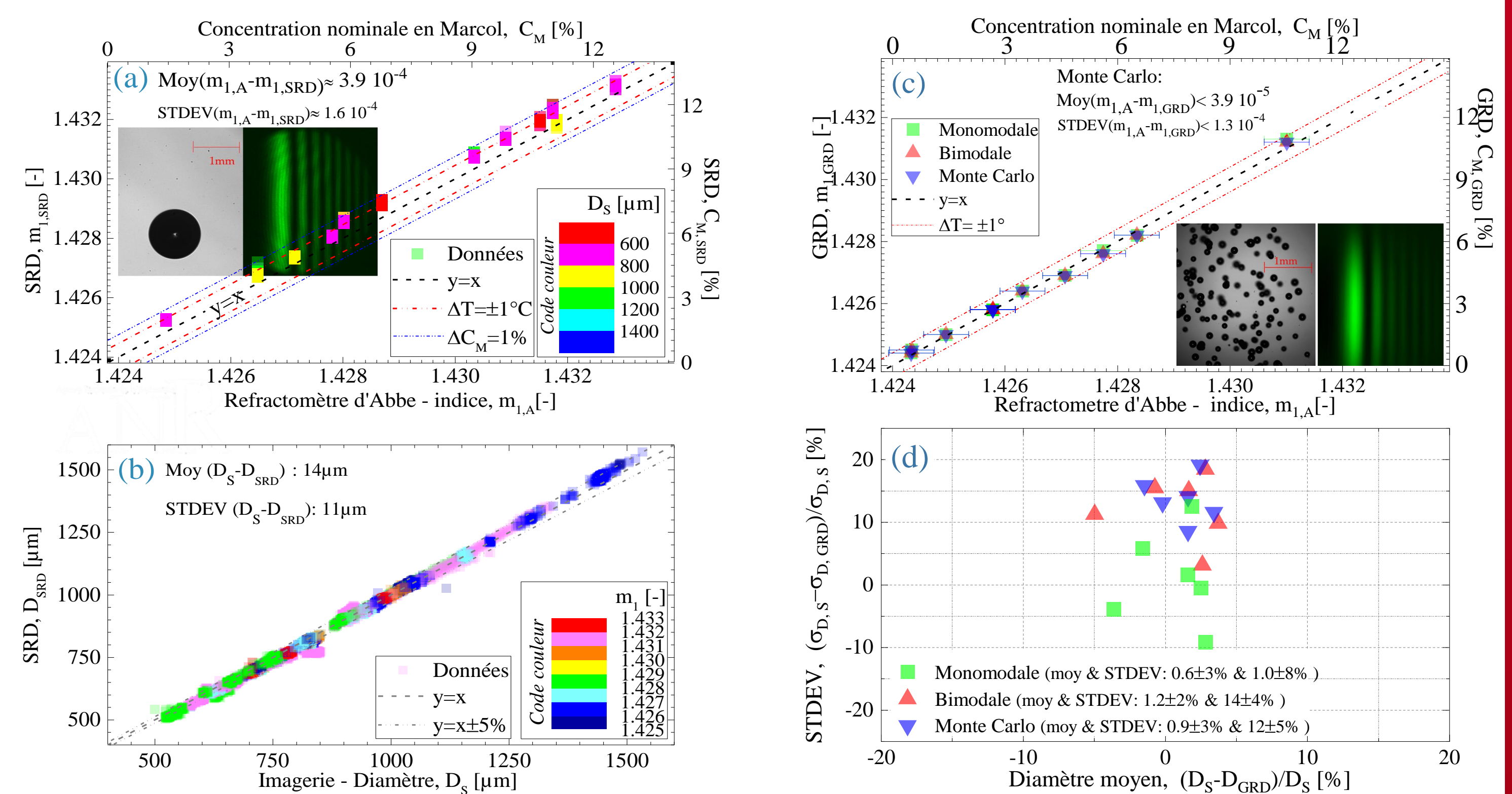


Fig. 2 Régime statique - comparaisons des résultats expérimentaux: (a, c) composition en Marcol des gouttes (indice relatif, référence: refractomètre d'Abbe) et (b, d) Granulométrie (référence: imagerie en transmission). (a, b) Gouttes individuelles (mode SRD); (c, d) Nuages de gouttes (mode GRD)

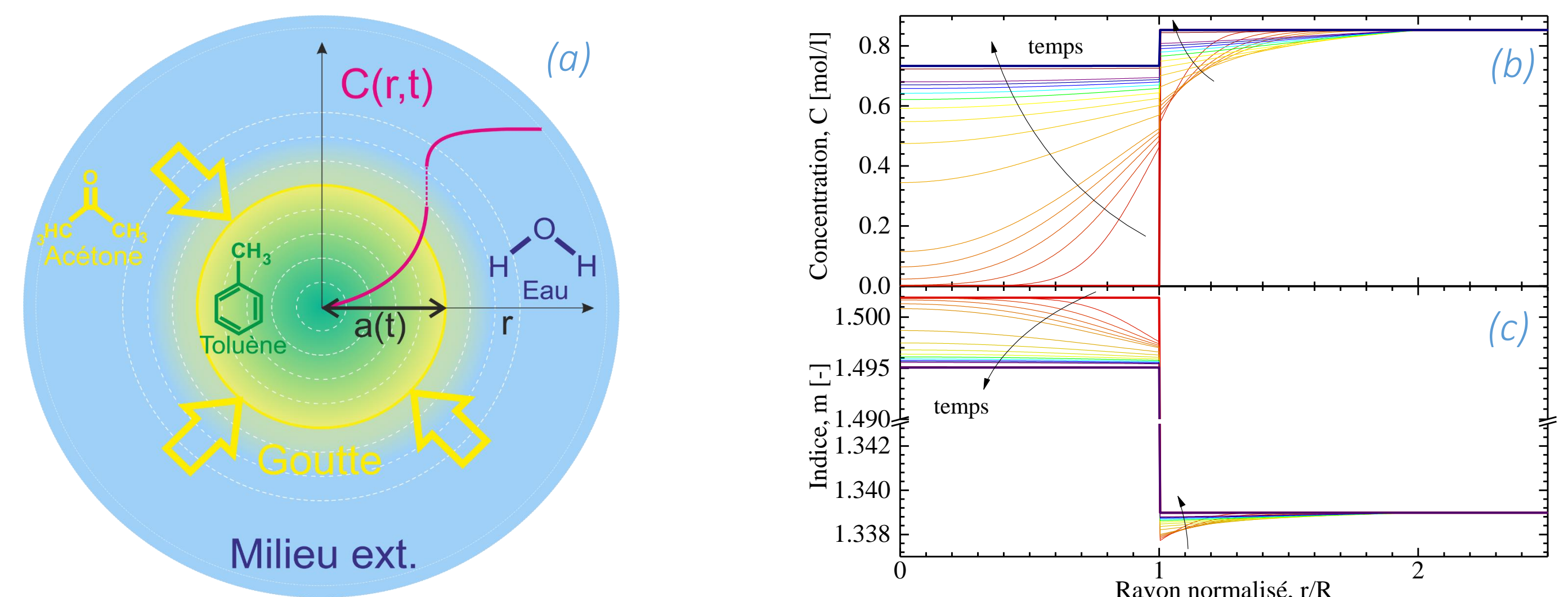


Fig. 3 (a) Modèle simplifié de la diffusion moléculaire de l'acétone. Profils radiaux de concentration au cours du temps : (b) concentration en acétone (initialement de 5% à l'extérieur d'une goutte de 500µm de rayon), (c) profil d'indice (interne/externe).

Paramètres	A priori	Estimé	A priori	Estimé
d [mm]	2.85	2.65	2.55	2.40
$C_{AT}(t=0)$ [%]	0.0	0.0±0.5	0.00	0.0±0.5
$C_{AE}(t=0)$ [%]	1.0	0.5±0.5	5.00	5.0±0.5
$K_{AT/AE}$ [-]	0.86	0.90±0.01	0.86	0.90±0.01
t_0 [s]	-	10	-	5

Tab. 1 Régime transitoire: comparaison des paramètres estimés par inversion.

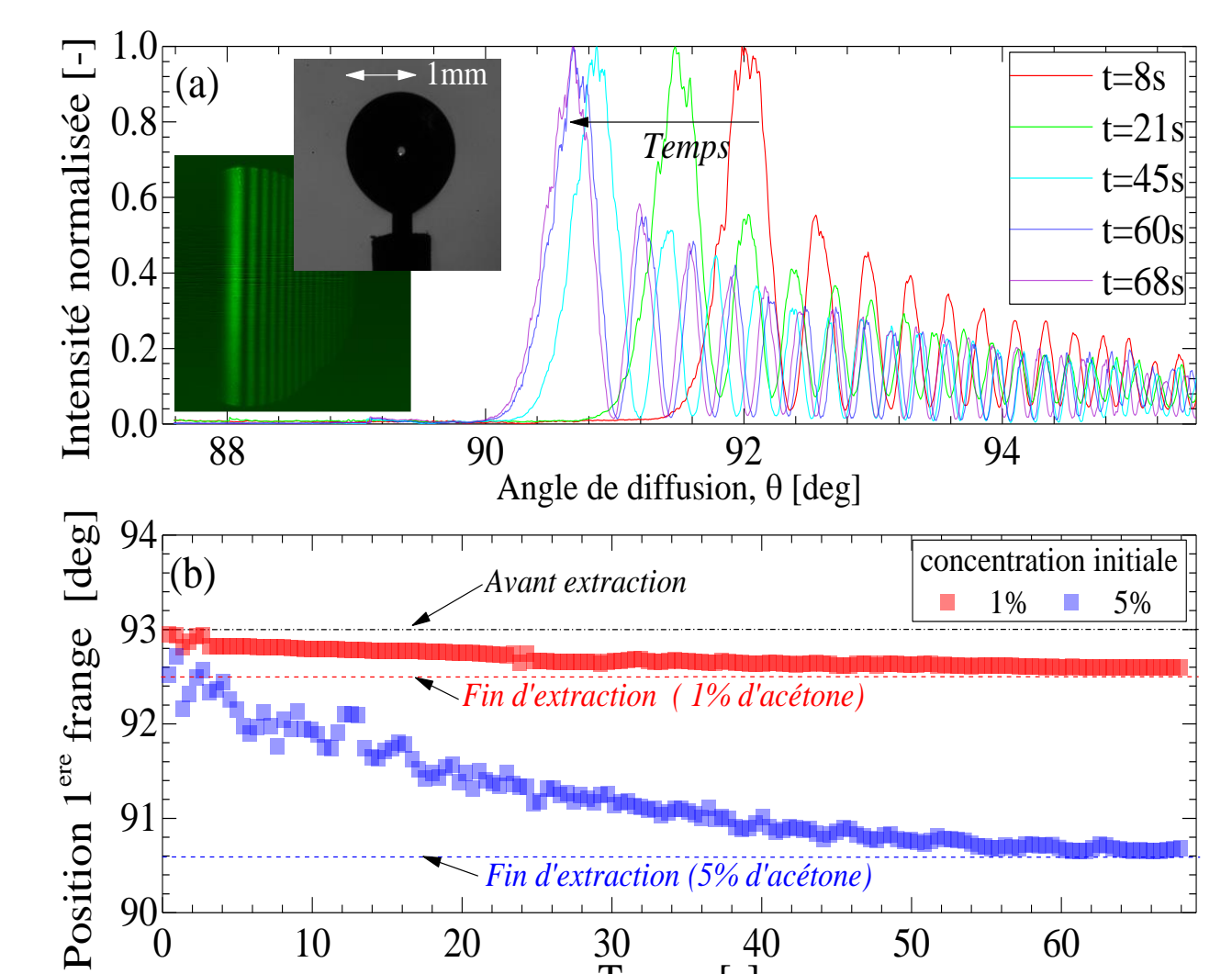


Fig. 4 Expériences : évolutions temporelles (a) des profils d'intensité de l'arc-en-ciel d'une goutte sessile (conc. initiale : 5%) et (b) position de la première frange (pour des concentrations externes de 1 et 5%)