



**HAL**  
open science

## Etude du transfert gaz-liquide en présence d'une troisième phase finement divisée

Cécile Plais, Anne-Marie Billet, Carine Julcour-Lebigue, Henri Delmas

### ► To cite this version:

Cécile Plais, Anne-Marie Billet, Carine Julcour-Lebigue, Henri Delmas. Etude du transfert gaz-liquide en présence d'une troisième phase finement divisée. 10ème Congrès de la Société Française de Génie des Procédés, Sep 2005, Toulouse, France. pp.0. hal-04037775

**HAL Id: hal-04037775**

**<https://hal.science/hal-04037775>**

Submitted on 20 Mar 2023

**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.

## **ETUDE DU TRANSFERT GAZ-LIQUIDE EN PRESENCE D'UNE TROISIEME PHASE FINEMENT DIVISEE**

PLAIS Cécile, BILLET Anne-Marie<sup>1</sup>, JULCOUR-LEBIGUE Carine, DELMAS Henri

Laboratoire de Génie Chimique  
UMR 5503, 5 Rue Paulin Talabot - 31106 Toulouse

### **Résumé**

Le transfert de masse entre l'air et l'eau peut être accéléré ou au contraire ralenti par l'ajout d'une troisième phase, minoritaire, finement divisée. Ces effets peuvent être dus soit à des effets sur le coefficient de transfert côté liquide  $k_L$ , soit à des effets sur l'aire interfaciale,  $a$ . Le but de cette étude est d'identifier le lien entre le transfert gaz-liquide et l'hydrodynamique en système air-eau-troisième phase. Cette phase est, dans notre cas, constituée de particules solides (systèmes gaz-liquide-solide) ou de gouttelettes d'une phase organique non miscible dans la phase aqueuse (systèmes gaz-liquide-liquide). Les liquides organiques utilisés sont le décane, le 2-éthyl-1-hexanol, le toluène et le 1-octène (0,2 à 2% vol.). Pour les solides, deux silices du commerce ont été expérimentées (0,25 à 1 g/l) ; les particules solides ont un diamètre de 4 $\mu$ m ou 28 $\mu$ m. Chaque silice a subi un traitement la rendant partiellement hydrophobe, ceci afin de tester l'influence de l'hydrophobicité sur le transfert. Les résultats obtenus pour le transfert de masse montrent un faible effet positif pour la silice hydrophobe en particules de 4 $\mu$ m. En revanche, l'utilisation de liquides organiques a conduit à une réduction systématique de l'aire interfaciale et à un ralentissement consécutif d'environ 60% du transfert entre l'air et l'eau aux vitesses de gaz les plus élevées par référence au cas diphasique.

**Mots-clés** : transfert gaz-liquide, système triphasique, colonne à bulles, rétention gazeuse, mesures hydrodynamiques

### **1. Introduction**

L'ajout d'une phase liquide inerte et immiscible peut parfois s'avérer efficace pour intensifier le transfert d'oxygène entre l'air et l'eau dans le cas des bioprocédés (Ju et al., 1991), ou dans celui des réactions chimiques pour lesquelles le transfert de matière a un effet significatif sur la conversion et la sélectivité du système réactionnel (Cents, 2003).

Toutefois, les résultats très contradictoires relevés dans la littérature ne permettent pas d'expliquer de manière générale les mécanismes régissant le transfert de matière dans ces systèmes multiphasiques gaz-liquide-liquide (Dumont et Delmas, 2003) ou gaz-liquide-solide (Beenackers et Van Swaaij, 1993). De plus, dans ces systèmes, les paramètres pouvant influencer le transfert de matière sont nombreux, ce qui entraîne une confusion certaine dans l'interprétation des résultats. De nombreux mécanismes proposés reposent sur les interactions entre la phase gazeuse et la troisième phase (Kluytmans, 2003) : l'accélération du transfert serait due à un effet 'navette' des gouttelettes ou des particules entre les bulles et l'eau, ou bien à la modification de la structure hydrodynamique de la couche diffusionnelle autour des bulles en présence de gouttes ou de grains, ou enfin à la rupture des bulles donnant lieu à une aire interfaciale accrue. Ces phénomènes peuvent donc être étroitement liés à l'affinité de la troisième phase avec l'interface gaz-liquide, c'est-à-dire au coefficient d'étalement de la phase organique, ou au caractère hydrophile ou hydrophobe des particules solides.

Notre étude vise à apporter des données expérimentales nouvelles concernant le transfert de matière dans différents milieux triphasiques impliquant l'air, l'eau, et une phase liquide non-miscible ou un solide. Pour que les résultats soient aussi significatifs que possible, les paramètres hydrodynamiques et technologiques doivent être connus et maîtrisés pour toute la campagne de mesures. La démarche adoptée

---

<sup>1</sup> Auteur à qui la correspondance doit être adressée : AnneMarie.Billet@ensiacet.fr

consiste à tester l'addition (en faible quantité) de diverses phases au milieu de référence air/eau, et à collecter les données sur l'efficacité du transfert gaz-liquide ainsi que sur la dispersion gaz-liquide, afin d'identifier les facteurs les plus influents.

## 2. Démarche expérimentale

### 2.1 Installation

Les expériences sont réalisées dans une colonne en verre de 8,3cm de diamètre et de 2m de haut, thermostatée à 20 °C. Le gaz (air ou azote) est distribué dans la colonne par l'intermédiaire d'un manchon de PVC perforé ; sa vitesse superficielle  $U_G$  varie entre 0,4 et 3,5cm/s. Il n'y a pas de circulation du liquide.

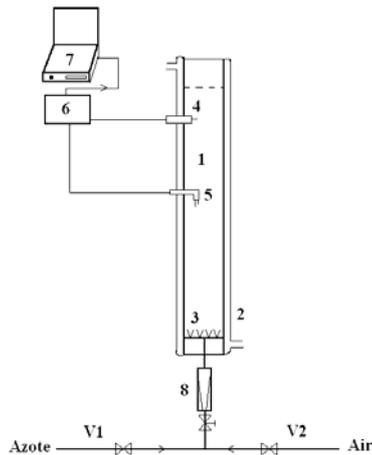


Figure 1 : Dispositif expérimental : 1 : colonne en verre de 8,3 cm de diamètre et de 2 m de haut, 2 : circuit de refroidissement, 3 : distributeur de gaz, 4 : sonde oxymétrique Unisense, 5 : bisonde résistive, 6 : interface d'acquisition, 7 : enregistrement des résultats, 8 : débitmètre, V1 : vanne d'entrée d'azote, V2 : vanne d'entrée d'air.

### 2.2 Grandeurs mesurées et méthodes associées

Des piquages répartis le long de la colonne permettent l'utilisation simultanée de différentes sondes (oxymétrique, résistive, conductimétrique).

#### 2.2.1 Mesure du coefficient de transfert gaz-liquide

Le coefficient de transfert gaz-liquide  $k_L a$  est défini par la modélisation du flux d'oxygène transféré dans la colonne par  $k_L a \times V_L \times (C_L^* - C_L)$ , où  $V_L$  est le volume de liquide dans la colonne,  $C_L$  est la concentration en oxygène dissous et  $C_L^*$  la concentration en oxygène à saturation.

La valeur de  $k_L a$  est déterminée par méthode dynamique - c'est-à-dire par la mesure au cours du temps de la variation de concentration en oxygène dissous - à l'aide d'une sonde oxymétrique (Unisense). La sonde utilisée est une sonde électrochimique de type Clark. La membrane autour des électrodes est de très petite dimension, ce qui lui confère une très bonne dynamique : le temps de réponse à 90% est inférieur à 4s selon le constructeur.

La détermination de  $k_L a$  s'appuie sur les hypothèses suivantes :

- La phase liquide est parfaitement mélangée à cause des boucles de circulation provoquées par l'ascension des bulles. On suppose le temps de mélange  $t_m$  inférieur au temps caractéristique du transfert  $1/k_L a$ . Nous reviendrons sur l'influence du degré de mélange de la phase liquide par la suite.
- Le temps de réponse de la sonde est négligeable par rapport à  $1/k_L a$ .
- Il n'y a pas de contact direct entre la phase gaz et la phase organique : le transfert est dit 'en série'.
- Les deux phases liquides sont à l'équilibre thermodynamique.
- L'addition d'une troisième phase ne change pas la loi d'équilibre (c'est-à-dire la constante de Henry, He) entre l'air et l'eau.

-  $C_L^*$  est constant, c'est-à-dire que la pression partielle d'oxygène dans la phase gazeuse varie relativement peu lors de la traversée de la colonne.

Le calcul de  $k_L a$  peut alors être mis en équations.

\* Système G-L-S :

A partir des hypothèses précédentes, on peut écrire le bilan en oxygène sur la phase liquide, en ayant vérifié en batch que la quantité de gaz pour saturer le milieu n'est pas supérieure en présence de solide :

$$\frac{dC_L(t)}{dt} = k_L a (C_L^* - C_L(t)) \quad (1)$$

Le temps de réponse de la sonde oxymétrique étant négligeable,  $C_L(t)$  correspond exactement à la concentration mesurée par la sonde, et l'expression précédente s'intègre en :

$$\ln \left( \frac{C_L^* - C_L(t)}{C_L^* - C_L(0)} \right) = -k_L a \times t \quad (2)$$

\* Système G-L-L :

Il faut ici considérer également la dissolution de l'oxygène dans la phase organique dispersée, de rétention  $\Phi_{disp}$ . Le bilan en terme de flux molaire d'oxygène s'écrit :

$$-\frac{dn_G}{dt} = -\frac{d[C_G(t)V_G]}{dt} = V_L (1 - \Phi_{disp}) \frac{dC_{L,C}}{dt} + V_L \Phi_{disp} \frac{dC_{L,D}}{dt} \quad (3)$$

$$\text{Et : } -\frac{dn_G}{dt} = V_L \cdot k_L a (C_{L,C}^* - C_{L,C}) \quad (4)$$

où l'indice G fait référence à la phase gaz, C à la phase liquide continue et D à la phase liquide dispersée.

Puisque les deux phases liquides sont à l'équilibre, il vient :  $C_{L,D} = m_R \times C_{L,C}$ . (5)

$$\text{Donc : } -\frac{dn_G}{dt} = V_L (1 + \Phi_{disp} (m_R - 1)) \frac{dC_{L,C}}{dt} \quad (6)$$

$$\text{A partir des équations (4) et (6), on obtient : } (1 + \Phi_{disp} (m_R - 1)) \ln \left( \frac{C_L^* - C_L(t)}{C_L^* - C_L(0)} \right) = -k_L a \times t \quad (7)$$

En traçant le membre de gauche respectivement des équations (2) et (7) en fonction de t, on obtient une droite de pente  $-k_L a$ .

### 2.2.2 Mesure de la rétention globale de gaz

La rétention gazeuse  $\square_G$  représente la fraction volumique occupée par le gaz dans une dispersion gaz-liquide. Cette valeur permet d'estimer la surface d'échange par unité de volume de liquide a ; pour un diamètre moyen de Sauter des bulles  $d_b$ , on a :  $a = 6\varepsilon_G / (d_b (1 - \varepsilon_G))$ . (8)

Cette relation bien connue peut être utilisée en régime de bullage homogène à partir de toute estimation de diamètre de bulles.

La rétention de gaz peut être mesurée expérimentalement par des méthodes variées. La méthode de l'expansion volumique du mélange dans la colonne est fréquemment utilisée : on mesure la hauteur du liquide non aéré puis la hauteur de dispersion à la vitesse superficielle du gaz donnée.

Une mesure exacte de la hauteur de dispersion est difficilement réalisable en raison des fluctuations de la surface libre induites par le dégagement des bulles, en particulier aux forts débits de gaz. C'est pourquoi ces mesures de rétention sont à considérer avec précaution.

### 2.2.3 Mesure de la rétention locale de gaz et de la taille moyenne des bulles

La rétention gazeuse locale  $\varepsilon_{loc}$  est mesurée grâce à une sonde résistive double, placée sur l'axe de la colonne. Cette technique permet de caractériser la phase gazeuse dans un écoulement à bulles (Boyer et al., 2002). La mesure repose sur l'utilisation de deux fils métalliques fins et dont les extrémités sont proches, l'une derrière l'autre dans la direction du déplacement des bulles ; la résistance du milieu entre les fils varie selon que la sonde est plongée dans l'air ou dans l'eau.

L'utilisation d'une sonde résistive double permet ainsi la détermination du taux de vide local et, connaissant la distance entre les deux pointes, elle permet également l'évaluation de la vitesse d'ascension des bulles et de leur diamètre moyen (Kamp et al., 1995).

### 2.3 Validation des méthodes de mesure

#### 2.3.1 Influence du degré de mélange de la phase liquide sur le calcul de $k_L a$

La colonne étant longue et ayant un diamètre relativement faible, il n'est pas certain que la phase liquide soit bien mélangée. Le coefficient de dispersion axiale, D, est le paramètre choisi dans ce travail pour caractériser le mélange de la phase liquide dans le réacteur. En effet, dans cette colonne à bulles étroite, la concentration doit être uniforme sur une section droite. Ce coefficient est mesuré par traçage : quelques centilitres de solution concentrée de soude sont injectés quasi-instantanément en tête de colonne et l'évolution au cours du temps de la concentration en soude est suivie en un point donné à l'aide d'une sonde conductimétrique. Le coefficient de dispersion est alors identifié à partir de l'équation

$$\frac{C_L(t)}{C_0} = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \left( \cos \frac{n\pi}{L} L_z \right) \exp \left( - \frac{n^2 \pi^2}{L^2} D.t \right) \quad (9)$$

où  $C_0$  est la concentration finale,  $L_z$  la distance au point de mesure et L la hauteur de dispersion.

Les valeurs obtenues pour le coefficient D vont de 0,006 à 0,013m<sup>2</sup>/s pour des vitesses superficielles de gaz de 0,004 à 0,03m/s. Ces valeurs de la dispersion sont relativement faibles : des structures larges de recirculation liquide ne peuvent pas se développer dans cet appareil étroit.

De façon rigoureuse, un modèle absorption-dispersion doit donc être utilisé pour calculer  $k_L a$  ; il repose sur les hypothèses suivantes : uniformité de la vitesse et des concentrations dans chaque phase sur une section droite de la colonne ; dispersion axiale sensible pour le liquide (pas d'écoulement), négligeable pour le gaz (écoulement piston) ; variations de  $\epsilon_G$  négligées. On obtient les équations suivantes:

$$\text{Pour le liquide : } (1 - \epsilon_G) \frac{\partial C_L}{\partial t} = (1 - \epsilon_G) D \frac{\partial^2 C_L}{\partial z^2} + (k_L a) \left( \frac{C_G}{He} - C_L \right) \quad (10)$$

$$\text{Pour le gaz : } \epsilon_G \frac{\partial C_G}{\partial t} = U_G \frac{\partial C_G}{\partial z} - (k_L a) \left( \frac{C_G}{He} - C_L \right) \quad (11)$$

où  $k_L a = (k_L a)' / (1 - \epsilon_G)$

\* Conditions initiales :

$$\forall z \quad C_L(t=0) = 0 \text{ (liquide désaéré)} \quad C_G(t=0) = 0 \text{ (N}_2\text{)}$$

\* Conditions aux limites :

$$t > 0 \quad z = 0 \quad C_G = P_{O_2}/RT \quad \text{et} \quad \frac{\partial C_L}{\partial z} = 0 \quad ; \quad z = L \quad \frac{\partial C_L}{\partial z} = 0$$

Le modèle proposé se traduit donc par un système d'équations différentielles partielles, résolu par la méthode des lignes. Ses prédictions sont comparées aux valeurs expérimentales de concentration en oxygène dissous mesurées par deux sondes identiques en haut et en bas de colonne (cf. figure 2) pour identifier le coefficient  $k_L a$  par la méthode de Gauss-Newton. Cette identification conduit aux résultats suivants montrés tableau 1 et comparés aux valeurs issues du « modèle parfaitement mélangé » :

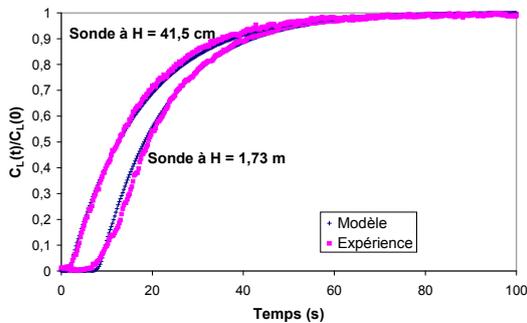


Figure 2 : Comparaison des évolutions de concentration en oxygène dissous ( $U_G = 0,031$  m/s).

$U_G$ (m/s)	$k_L a$ avec l'hypothèse de mélange parfait ( $s^{-1}$ ) ; sondes fixées en $H_1$ et $H_2$		$k_L a$ par le modèle absorption-dispersion ( $s^{-1}$ )
	$H_1 = 0,41$ m	$H_2 = 1,73$ m	
0,0040	0,010	0,011	0,011
0,0084	0,020	0,022	0,024
0,013	0,029	0,032	0,033
0,018	0,036	0,043	0,043
0,024	0,050	0,054	0,054
0,031	0,067	0,069	0,071

Tableau 1 : Comparaison de  $k_L a$  avec ou sans dispersion axiale.

Dans notre cas, les coefficients de transfert gaz-liquide identifiés en faisant l'hypothèse de mélange parfait ou en intégrant la dispersion réelle du liquide sont assez proches. Même si l'hypothèse de mélange parfait n'est pas parfaitement vérifiée dans notre colonne, le calcul de  $k_L a$  effectué avec cette hypothèse n'en est ici que peu affecté. De plus, les valeurs de  $k_L a$  ainsi calculées, avec des sondes placées en haut et bas de colonne, présentent des différences inférieures à 10%. En effet, on voit en figure 2 que l'évolution temporelle des  $C_L$  des sondes est similaire et simplement décalée d'un retard pur (environ 5s) correspondant au déplacement vertical du front d'oxygène. Vu la faible valeur de  $D$ , l'interprétation de ces signaux en  $C_L$  locaux par l'équation 8 se rapproche alors du mélange parfait. Par la suite, on a conservé la méthode simplifiée.

### 2.3.2 Comparaison entre la rétention locale de gaz et la rétention globale de gaz

Les profils radiaux de la rétention gazeuse sont de deux types, selon la vitesse superficielle de gaz (Chaumat, 2004). Dans le cas d'un écoulement homogène, la rétention globale dans la colonne,  $\epsilon_G$ , et la rétention locale de gaz sur l'axe,  $\epsilon_{loc}$ , sont presque égales. Par contre, dans le cas d'un écoulement hétérogène,  $\epsilon_G$  est nettement inférieure à  $\epsilon_{loc}$ .

Ainsi lorsqu'on ajoute de la silice Sipernat hydrophobe au système air-eau (figure 3a), on constate visuellement que le bullage reste homogène et les deux mesures de rétention de gaz sont égales dans la gamme de concentrations étudiées.

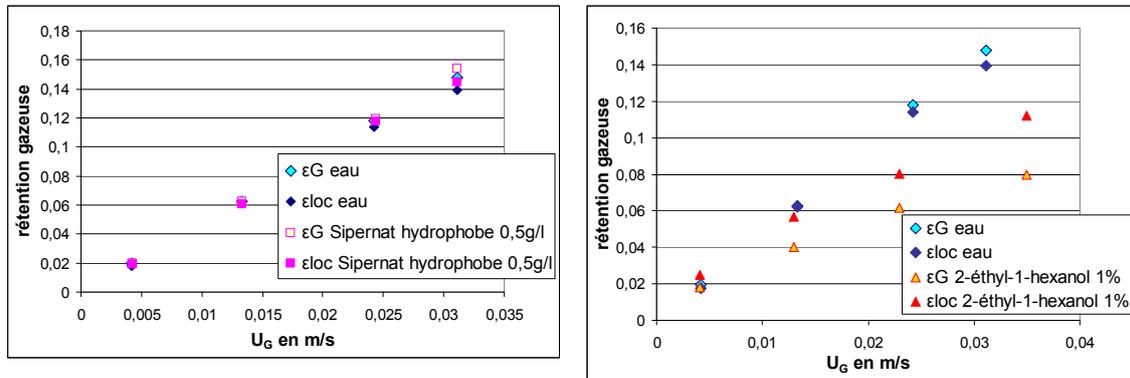


Figure 3 : Evolution de la rétention gazeuse en fonction de la vitesse superficielle de gaz avec (a) la silice Sipernat hydrophobe, (b) le 2-éthyl-1-hexanol.

En revanche, lorsqu'on ajoute du 2-éthyl-1-hexanol au système air-eau (figure 3b), on observe la formation de grosses bulles, dont la taille avoisine le diamètre de la colonne. Le bullage devient alors fortement hétérogène. On observe une chute de la rétention gazeuse. La rétention locale mesurée au centre de la colonne est, comme attendu, supérieure à la rétention globale.

### 2.3.3 Validation de l'ordre de grandeur des diamètres de bulles

Pour valider l'estimation de la taille des bulles par la technique de la sonde résistive double, on photographie les bulles en ascension dans la colonne dans le cas diphasique air-eau, pour différentes valeurs de  $U_G$  ; une mire quadrillée tous les 5mm est introduite dans la colonne pour pouvoir vérifier l'ordre de grandeur de la taille des bulles.

On constate que les diamètres de Sauter (tableau 2) issus de la mesure par sonde double (placée sur l'axe de la colonne) sont cohérents avec les images des bulles (figure 4). Il est intéressant de noter la diversité des tailles observées dès  $U_G=0,013$ m/s.

Tableau 2 : Vitesses axiales et diamètres moyens de Sauter des bulles selon la technique de sonde résistive double (milieu air-eau).

$U_G$ (m/s)	Vitesse moyenne des bulles (m/s)	Diamètre moyen des bulles (m)
0,0042	0,47	0,0049
0,013	0,47	0,0056
0,024	0,58	0,0074
0,031	0,58	0,0075

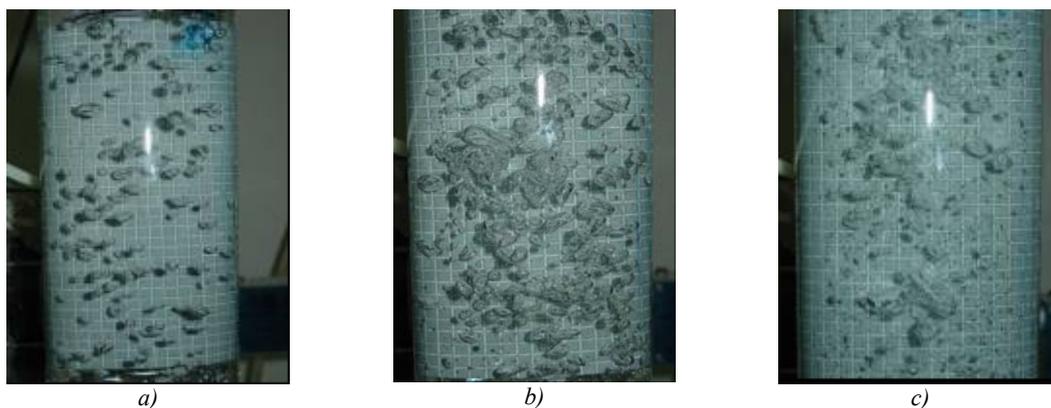


Figure 4 : Photos des bulles dans la colonne pour a)  $U_G = 0,0042 \text{ cm/s}$  ; b)  $U_G = 0,024 \text{ m/s}$  ; c)  $U_G = 0,031 \text{ m/s}$ .

### 3. Résultats obtenus avec les différents systèmes étudiés – Discussion

#### 3.1 Systèmes étudiés

Les différentes propriétés des liquides et des solides sont résumées dans les tableaux ci-dessous :

Tableaux 3 et 4 : Propriétés des liquides organiques (à 20°C) et des solides utilisés (mesurées au LGC [PFGP], sauf indications contraires ;  $\sigma_{\text{eau-air}} = 72,3 \text{ mN/m}$ ).

Liquide organique	$m_R$	Densité (kg/m <sup>3</sup> )	Viscosité (Pa.s) $\times 10^3$	Tension de surface $\sigma^*_{\text{orga-air}}$ (mN/m)	Tension interfaciale $\sigma^*_{\text{orga-eau}}$ (mN/m)	Tension de surface $\sigma^*_{\text{eau-air}}$ (mN/m)	Coefficient d'étalement $S^*$ (S) (mN/m)
n-décane	8,1 <sup>(1)</sup>	729	0,99	23,8 (24,1)	48,8	72,2	- 0,4 (- 0,6)
2-éthyl-1-hexanol	4,1 <sup>(2)</sup>	836	9,30	26,5 (26,7)	12,6	36,2	- 2,9 (33)
toluène	6,2 <sup>(1)</sup>	866	0,53	28,5 (28,8)	32,0	71,7	11,2 (11,5)
1-octène	8,2 <sup>(2)</sup>	715	0,43	21,9 (22,1)	32,7	67,9	13,3 (17,5)

Solide	Nature du solide	D[4,3] (µm)	Surface spécifique (m <sup>2</sup> /g)	$V_{\text{poreux}}$ (cm <sup>3</sup> /g)	Densité de particule (sèche) $\rho_{\text{PG}}$ (kg/m <sup>3</sup> )
Sipernat 320 DS (Degussa)	Silice hydrophile	4	178	0,61	1082
	Silice hydrophobe	4	141	0,88	760
Promeks G-5268 (Promeks)	Silice hydrophile	28	509	1,10	644
	Silice hydrophobe	29	394	0,90	656

(\*) signifie que le liquide cité est saturé par l'autre phase liquide

<sup>(1)</sup> calculé à partir des solubilités référencées dans la revue de Battino et al. (1983) ; <sup>(2)</sup> calculé à partir du paramètre de solubilité, estimé par méthode de contribution de groupes (Kenneth, 1986 ; Dack, 1975)

Les liquides organiques ont été choisis de façon à représenter plusieurs natures chimiques : alcane, alcool, aromatique et alcène. L'ensemble de ces données permet de calculer un coefficient d'étalement  $S^*$  ( $S^* > 0$  correspond à l'étalement du liquide en film sur la bulle et  $S^* < 0$  à la formation de gouttelettes). Les quatre silices commerciales utilisées sont différentes soit par la taille, soit par leur nature : hydrophiles, ou rendues hydrophobes par traitement par de la diméthyl-dichloro-silane (Omota et Bliet, article soumis). Les concentrations des liquides organiques varient entre 0,2 et 2% volumique, celles des solides entre 0,25 et 1 g/l. Les liquides sont injectés à l'aide d'une seringue en verre à la base de la colonne. Les silices sont d'abord bien mélangées dans de l'eau prélevée dans la colonne puis introduites en tête de colonne. Il n'a été observé aucun changement de comportement lors des additions de phase ; dans les deux cas, le bullage d'air assure l'homogénéité des suspensions ou des dispersions.

#### 3.2 Résultats obtenus

Le moyen le plus simple, mais non le plus économique, pour augmenter le transfert gaz-liquide, quel que soit le système considéré, est d'augmenter le débit de gaz (figure 5). Par rapport au cas de référence air-

eau, seule la silice hydrophobe la plus fine (Sipernat) permet une légère accélération de transfert (de 10%). Les liquides organiques provoquent une diminution de  $k_L a$  jusqu'à 60% pour  $S^*$  positif ou négatif. Notons que les effets de la rétention en phase dispersée n'ont pas été représentés ici. En effet, quelque soit la quantité de phase organique ajoutée (dès 0,2%), il y a eu ralentissement du transfert global dans les mêmes proportions. De même, la quantité de solide ajoutée n'a eu que peu d'effet jusqu'à 1 g/l.

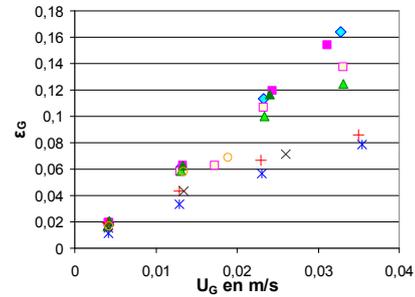
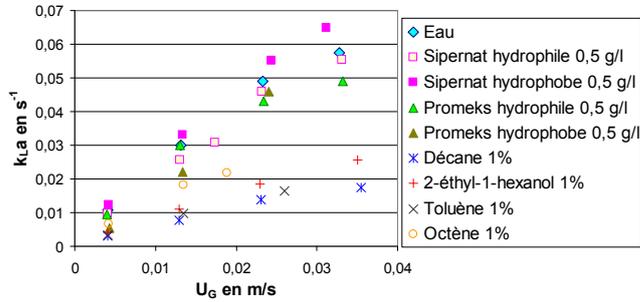


Figure 5 : Evolution du coefficient de transfert de matière en fonction de la vitesse superficielle de gaz. Figure 6 : Evolution de la rétention globale de gaz en fonction de la vitesse superficielle de gaz.

La rétention gazeuse,  $\epsilon_G$ , et  $k_L a$  augmentent dans des proportions semblables avec la vitesse superficielle de gaz (figure 6), ceci avec ou sans troisième phase. Un fort taux de vide conduisant à une aire interfaciale plus élevée, l'augmentation de  $k_L a$  est donc liée, au moins en partie, à l'augmentation de  $\epsilon_G$ .

En effet, l'aire interfaciale augmente de manière significative, de 20 à 120 m<sup>-1</sup>, pour les systèmes homogènes (G-L et G-L-S); en revanche, elle reste à une valeur faible et quasiment constante de 30 m<sup>-1</sup> pour les systèmes hétérogènes (G-L-L, figure 7). Signalons toutefois que les valeurs de  $a$  en régime hétérogène sont à considérer avec précaution vu la forte dispersion en tailles et formes de bulles mettant en défaut les hypothèses de calcul (bulle sphérique, mouvement vertical et distribution étroite de tailles).

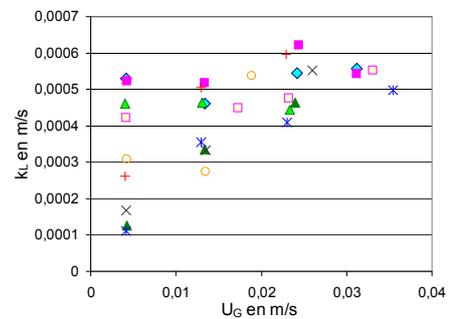
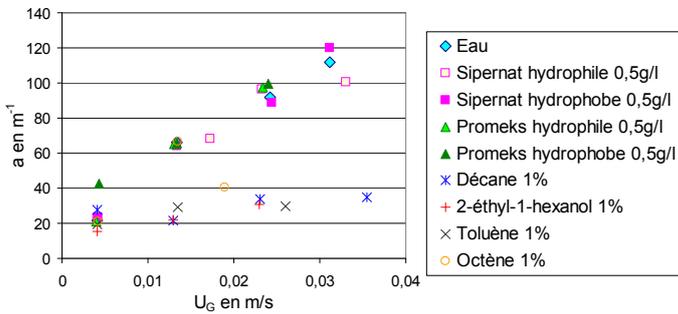


Figure 7 : Evolution de l'aire interfaciale en fonction de la vitesse superficielle de gaz. Figure 8 : Evolution du coefficient de transfert côté liquide en fonction de la vitesse superficielle de gaz.

Parallèlement, le coefficient de transfert côté liquide  $k_L$ , calculé à l'aide des valeurs de  $k_L a$  et de  $a$  (simplement estimatif, par conséquent), reste constant aux alentours de 0,0005 m/s, valeur du cas diphasique, pour les systèmes homogènes (figure 8) sauf pour la silice Promeks hydrophobe. Pour les systèmes à bullage hétérogène,  $k_L$  est de 2 à 5 fois plus faible ; on peut penser que le transfert est gêné par la présence de gouttelettes, voire d'un recouvrement partiel de l'interface par un film ( $S > 0$ , voir tableau 3). De plus  $k_L$  augmente avec  $U_G$ , ce qui peut s'expliquer par la grande concentration de bulles et de sillages pour ces systèmes, et par leur mouvement chaotique : ceci, ajouté à la présence de gouttelettes près de l'interface, doit modifier la structure et en particulier l'épaisseur de la couche diffusionnelle autour des bulles. Rappelons que, dans la plupart des modèles de transfert, le coefficient  $k_L$  est considéré comme étant inversement proportionnel à l'épaisseur de cette couche.

L'augmentation du transfert gaz-liquide avec  $U_G$ , pour les systèmes à bullage homogène, est donc directement liée à l'augmentation de l'aire d'échange. Pour les systèmes hétérogènes, l'augmentation de  $k_L$  ne compense pas la faible valeur de  $a$  et on observe alors une chute du transfert global. Pour tenter d'aller plus loin dans ces interprétations, on trace  $k_L a$  en fonction de  $\epsilon_G$  (figure 9).

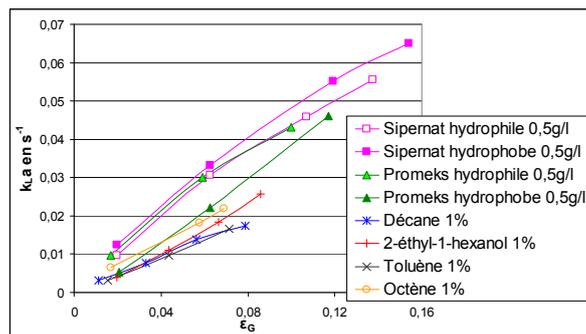


Figure 9 : Evolution du coefficient de transfert de matière en fonction de la rétention globale.

Il apparaît que  $k_L a$  est toujours proportionnel à la rétention gazeuse, ce qui est bien connu. Pour tous les systèmes à bullage homogène (G-L-S), la pente est voisine de  $0,4s^{-1}$ . Pour tous les systèmes à bullage hétérogène (G-L-L), on obtient une pente plus faible (environ  $0,3s^{-1}$ ) ;  $k_L a$  est donc moins sensible à  $\epsilon_G$  dans ce cas, ce qui laisse encore penser que des phénomènes à l'interface, tel un recouvrement partiel par un film organique, constituent une résistance additionnelle au transfert. Cependant les effets sur le coefficient  $k_L$  sont indépendants des propriétés physico-chimiques de la 3<sup>ème</sup> phase, et liés essentiellement aux variations de la rétention gazeuse et à la nature (liquide ou solide) de cette 3<sup>ème</sup> phase.

#### 4. Conclusion

Dans cette étude, aucun des produits ajoutés au système eau-air n'a permis une accélération significative du transfert gaz-liquide :

- Les liquides organiques réduisent la rétention gazeuse jusqu'à 50% par rapport au cas de référence air-eau. On observe dans la colonne la formation de très grosses bulles et un régime de bullage hétérogène. La réduction de l'aire interfaciale de 75% induit une réduction de  $k_L a$  de 60%. On ne peut cependant pas identifier de propriétés physico-chimiques communes pour expliquer cette réduction.

- Les solides n'ont pas d'effet marqué sur la rétention et le transfert de masse. Seule la silice Sipernat hydrophobe provoque une accélération du transfert de 10%. Mais on constate que l'hydrophobicité des particules solides ne peut pas, à elle seule, expliquer le mécanisme d'accélération du transfert qui a pu être observé dans la littérature. En effet, on observe très peu d'effet (plutôt négatif) de la silice Promeks hydrophobe sur le transfert de masse. Dans le domaine de concentrations étudiées, la silice la plus finement divisée semble donner de meilleurs résultats.

Il ressort de ce travail que les variations constatées du coefficient  $k_L a$  sont essentiellement liées à la modification de régime de bullage.

#### Références

- Battino R., T. R. Rettich et T. Tominaga, 1983, J. Phys. Chem. Ref. Data, 12 (2), 163.  
 Beenackers, A. A. C. M. et W. P. M. Van Swaaij, 1993, Chem. Eng. Sc., 48 (18), 3109.  
 Boyer, C., A. M. Duquenne et G. Wild, 2002, Chem. Eng. Sci., 57 (16), 3185.  
 Cents, A. H. G., 2003, Ph.D. Thesis, University of Twente, The Netherlands.  
 Chaumat, H., 2004, thèse de l'INPT, Toulouse, France.  
 Dack, M. R. J., 1975, Techniques of Chemistry (vol. 8), John Wiley.  
 Dumont, E. et H. Delmas, 2002, Chem. Eng. Process. 42 (6), 419.  
 Ju, L. K., J. F. Lee et W. B. Armiger, 1991, Biotechnol. Prog. 7, 323.  
 Kamp, A., C. Colin, et J. Fabre, 1995, Cert Onera, Colloque de Méca. des Fluides Exp., 11, Toulouse, France.  
 Kenneth, C. J., 1986, Solubility and related properties, Marcel Dekker.  
 Kluytmans, J. H. J., 2003, Ph.D. Thesis, University of Eindhoven, The Netherlands.  
 Omota, F. et A. Bliet, article soumis à Applied Catalysis A: General.  
 Urseanu, M. I., 2000, Ph.D. Thesis, University of Amsterdam, The Netherlands.

#### Remerciements

Nous remercions l'équipe technique de Laboratoire de Génie Chimique et la plateforme de mesures analytiques (PFGP) pour l'aide apportée à ce travail.