

Table des matières

Résumé.....	2
Abstract.....	3
Liste des notations	8
Introduction.....	12
Chapitre 1 : Eléments bibliographiques	16
1.1 Procédé de traitement par boues activées.....	16
1.2 Hydrodynamique et transfert gaz-liquide en colonnes à bulles à faible rétention gazeuse	18
1.2.1 Définitions générales	18
1.2.2 Régime de bulles homogène et hétérogène	25
1.2.3 Impact des propriétés des fluides sur l'hydrodynamique	26
1.2.4 Impact du diffuseur de bulles sur l'hydrodynamique	27
1.2.5 Impact de la hauteur de liquide sur l'hydrodynamique et le transfert de matière	28
1.2.6 Modélisation 1D des écoulements et du transfert gaz-liquide	29
1.3 Mécanismes de transfert gaz liquide.....	32
1.3.1 Loi de Fick et modèle du double film	32
1.3.2 Aire interfaciale spécifique (a).....	34
1.3.3 Coefficient de transfert de matière côté liquide k_L	36
1.3.4 Coefficient de transfert global $K_L a$: paramètres impactant le k_L et le a , effets de contamination et facteur alpha	37
1.3.5 Angle de contamination	43
1.4 Eléments de rhéologie	44
1.4.1 Définitions	44
1.4.2 Cas d'un fluide newtonien.....	46
1.4.3 Cas d'un fluide non-newtonien	46
1.4.4 Mesure de la rhéologie	47
1.4.5 Comportement rhéologique des boues activées.....	47
1.4.6 Impact de la rhéologie sur le transfert de matière.....	49
1.4.7 Fluides modèles visqueux	50
1.4.8 Estimation du taux de cisaillement en réacteur aéré et en colonne à bulles	51
1.5 Conclusions et positionnement des travaux de thèse.....	52
Chapitre 2 : Matériel et méthodes	54
2.1 Dispositif expérimental.....	54
2.1.1 Colonne à bulles et diffuseurs utilisés	54
2.1.2 Equipements associés	57
2.2 Mesure des paramètres caractéristiques de l'hydrodynamique et du transfert d'oxygène	58

2.2.1	Mesure de la rétention gazeuse	59
2.2.2	Mesure de la taille des bulles et détermination des paramètres associés : excentricité et diamètres équivalents de bulles	62
2.2.3	Détermination de l'aire interfaciale spécifique des bulles (a).....	72
2.2.4	Mesure du coefficient de transfert d'oxygène global K_{La}	72
2.2.5	Détermination du coefficient de transfert de matière côté liquide K_L	73
2.3	Fluides modèles utilisés	74
2.3.1	Types de fluides et méthodes de préparation associées	74
2.3.2	Caractérisation des propriétés physico-chimiques des fluides	77
2.4	Présentation des outils de modélisation 1D développés	80
2.5	Conclusion sur le Matériel et Méthodes.....	81
Chapitre 3 : Développement et validation d'un modèle 1D global pour la simulation de la rétention gazeuse et du transfert gaz/liquide dans des colonnes à bulles air/eau de forte hauteur ...		
3.1	Introduction	84
3.2	Material and methods	86
3.2.1	Experimental datasets	86
3.2.2	Two-Phase One-Dimensional Model	88
3.3	Results and discussion	96
3.3.1	Hydrodynamic characterization of the datasets studied	96
3.3.2	Mass transfer results.....	99
3.4	Conclusions	106
3.5	Acknowledgments	106
3.6	References	107
Chapitre 4 : Hydrodynamique et transfert d'oxygène dans une colonne à bulles à faible rétention gazeuse : Impact des propriétés des fluides et des conditions opératoires		
4.1	Propriétés physico-chimiques des fluides utilisés.....	116
4.1.1	Comportement rhéologique.....	116
4.1.2	Tension superficielle statique.....	119
4.1.3	Tension superficielle dynamique	120
4.2	Impact du système de diffusion de bulles et des propriétés des fluides sur les paramètres caractéristiques de l'hydrodynamique et du transfert gaz liquide.....	123
4.2.1	Rétention gazeuse	123
4.2.2	Rétention gazeuse locale	125
4.2.3	Rétention gazeuse globale ϵ_G	128
4.2.4	Diamètre des bulles d'air	133
4.2.5	Aire interfaciale spécifique des bulles (a)	148
4.2.6	Coefficient de transfert d'oxygène global K_{La}	153

4.2.7	Coefficient de transfert de matière apparent côté liquide K_L	156
4.2.8	Nombre de transfert	159
4.2.9	Facteur alpha	161
4.3	Conclusions	163
Chapitre 5 : Modélisation des résultats expérimentaux – Réinterprétation des données expérimentales.....		168
5.1	Données d'entrée du modèle et conditions aux limites.....	168
5.2	Modélisation de l'hydrodynamique / Rétention gazeuse globale	169
5.2.1	Eau claire / Diffuseur membrane : Impact de l'évolution du diamètre moyen des bulles	169
5.2.2	Eau déminéralisée (DW) / Diffuseur capillaire (C) : Impact de la distribution de diamètre des bulles.....	172
5.2.3	Eau déminéralisée additionnée de tensioactif non-ionique à 1 mg L ⁻¹ (TA) / Diffuseurs membrane et capillaire (M & C) : Effets de contamination des bulles	173
5.2.4	Breox / Diffuseur capillaire (C/BR) et Gomme xanthane / Diffuseurs capillaire et membrane (C/XG et M/XG) : Impact de la viscosité	175
5.2.5	Synthèse de la comparaison entre la rétention gazeuse modélisée et expérimentale	180
5.3	Comparaison des coefficients de transfert d'oxygène mesurés et simulés.....	180
5.3.1	Eau claire / Diffuseur membrane (M/DW et M/TW)	180
5.3.2	Eau déminéralisée / Diffuseur capillaire (C/DW).....	182
5.3.3	Eau déminéralisée additionnée de tensioactif non-ionique à 1 mg L ⁻¹ / Diffuseurs membrane et capillaire (M/TA et C/TA) : Effets de contamination interfaciale des bulles	184
5.3.4	Effets de viscosité – Fluide newtonien (Breox, diffuseur capillaire).....	185
5.3.5	Effets de viscosité – Fluide non newtonien rhéo-fluidifiant (gomme xanthane, diffuseur membrane).....	186
5.3.6	Conclusion sur la comparaison des coefficients de transfert d'oxygène mesurés et simulés	187
5.4	Synthèse – Calcul de l'angle de contamination pour les différents fluides et conditions opératoires	187
5.4.1	Angle de contamination du point de vue du transfert de matière.....	188
5.4.2	Angle de contamination du point de vue hydrodynamique	190
5.4.3	Angle de contamination du point de vue du transfert de matière modifié.....	194
5.5	Etude du coefficient de transfert de matière côté liquide k_L	198
5.6	Conclusions	201
Conclusions et perspectives		204
Références.....		212
Liste des Figures.....		222

Liste des Tableaux.....	230
-------------------------	-----

Liste des notations

Lettres latines

a	petit-axe (m)
(a)	aire interfaciale des bulles (m^{-1})
b	grand-axe (m)
BR	Breox
C	concentration en oxygène dissous (mg L^{-1})
C	diffuseur capillaire
C_A	concentration de l'espèce A (mol m^{-3})
C_D	coefficient de traînée (-)
C_D^{im}	coefficient de traînée d'une bulle contaminée (-)
C_D^{m}	coefficient de traînée d'une bulle propre (-)
$C_D^*(\theta_{\text{cap}})$	coefficient de traînée normalisé (-)
C_{Gi}	concentration côté gaz à l'interface (mol m^{-3})
C_{Li}	concentration côté liquide à l'interface (mol m^{-3})
C_s	concentration en oxygène dissous à saturation (mg L^{-1})
C_s'	concentration en oxygène dissous à saturation en boues activées (mg L^{-1})
C_0	coefficient de répartition de débit (-)
CFD	mécanique des fluides numérique
d_B	diamètre de bulle (m)
d_{B0}	diamètre de bulle à pression atmosphérique (m)
$d_{\text{eq},V}$	diamètre équivalent en volume (m)
$d_{\text{eq},S}$	diamètre équivalent en surface (m)
d_0	diamètre d'orifice (m)
d_{30}	diamètre moyen équivalent en volume (m)
d_{32}	diamètre de Sauter (m)
D	coefficient de diffusion moléculaire ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)
D_h	diamètre hydraulique (m)
D_t	coefficient de diffusion turbulente ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)
D_z	coefficient de dispersion axiale ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)

DF	facteur d'appauvrissement (-)
DNS	simulation numérique directe
DTB	distribution de tailles de bulles
DW	eau déminéralisée
e	excentricité au sens mathématique (-)
E	excentricité au sens facteur de forme (-)
F	force de cisaillement (N)
f_E	facteur d'excentricité (-)
g	accélération de la pesanteur (m s^{-2})
G	vitesse de glissement (m s^{-1})
H	hauteur d'eau (m)
$\text{He}_{\text{O}_2}(\text{T})$	coefficient de Henry pour l'oxygène dans l'eau à la température T ($\text{mol m}^{-3} \text{Pa}^{-1}$)
$j_{g/l}$	vitesse superficielle de gaz/liquide (m s^{-1})
$j_{g,N}$	vitesse superficielle de gaz dans les conditions normales (m s^{-1})
J_A	flux diffusif de l'espèce A ($\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$)
k_G	coefficient de transfert de matière côté gaz (m s^{-1})
k_L	coefficient de transfert de matière côté liquide (m s^{-1})
K	indice de consistance (Pa s^n)
K_G	coefficient de transfert de matière global côté gaz (m s^{-1})
K_L	coefficient de transfert de matière global côté liquide (m s^{-1})
k_{La}	coefficient de transfert de matière (s^{-1})
K_{La}	coefficient de transfert de matière global (s^{-1})
$K_{La_{20}}$	coefficient de transfert de matière global à 20°C (s^{-1})
K_{La}'	coefficient de transfert de matière global en boues activées (s^{-1})
L	longueur (m)
m	coefficient de partage (-)
M	diffuseur membrane
$\overline{m_k}$	transfert de matière moyen entre les phases gaz et liquide ($\text{kg m}^{-3} \text{s}^{-1}$)
MES	matières en suspension
$M(\text{O}_2)$	masse molaire de l'oxygène (g mol^{-1})
n	indice d'écoulement (-)

p	profondeur de la colonne (m)
P	pression hydrostatique (Pa)
P	puissance dissipée (W)
P_0	pression atmosphérique (Pa)
$Q_{g,l}$	débit volumique de gaz/liquide ($m^3 s^{-1}$)
R	constante des gaz parfaits ($J mol^{-1} K^{-1}$)
R	rayon interne (m)
S	section droite (m^2)
StaRRE	station de récupération des ressources de l'eau
STEP	station d'épuration
t_c	temps de contact (s)
TA	tensioactif
TW	eau du réseau
U_g	vitesse de bulle ($m s^{-1}$)
$U_{g \text{ exp}}$	vitesse de bulle moyenne expérimentale ($m s^{-1}$)
\overline{U}_k	vitesse moyenne de la phase k ($m s^{-1}$)
v_m	vitesse de mélange ($m s^{-1}$)
V_G	volume de gaz (m^3)
V_L	volume de liquide (m^3)
V_T	volume total (m^3)
VOF	volume de fluide
x_g	fraction molaire en oxygène dans la phase gaz (-)
XG	gomme xanthane
z	hauteur dans la colonne (m)

Lettres grecques

α	facteur alpha (-)
α_g	rétenion gazeuse locale (-)
β	facteur bêta (-)
$\dot{\gamma}$	taux de cisaillement (s^{-1})

$\Delta P_{\text{aération/sans aération}}$	différence de pression mesurée avec/sans aération (bar)
--------------------------------------------	---------------------------------------------------------

ϵ_G Global	rétenction gazeuse globale sur l'ensemble de la colonne (-)
ϵ_G Z1	rétenction gazeuse globale sur la partie inférieure de la colonne (-)
ϵ_G Z2	rétenction gazeuse globale sur la partie supérieure de la colonne (-)
$\epsilon_{G,P}$	rétenction gazeuse projetée (-)
θ	facteur de correction de température (-)
θ_{cap}	angle de contamination (rad)
$\theta_{cap,t}$	angle de contamination du point de vue du transfert (rad)
$\theta_{cap,t,corr}$	angle de contamination du point de vue du transfert modifié (rad)
μ_{app}	viscosité apparente (Pa s)
μ_L	viscosité dynamique (Pa s)
μ_{∞}	viscosité à cisaillement infini (Pa s)
$\rho_{L/G}$	masse volumique du liquide/gaz (kg m^{-3})
ρ_m	masse volumique du mélange gaz/liquide (kg m^{-3})
σ	tension superficielle (N m^{-1})
τ	contrainte de cisaillement (Pa)
τ_y	contrainte seuil (Pa)

Nombres sans dimension

E_o	nombre d'Eötvös
N_T	nombre de transfert
Re	nombre de Reynolds
Sc	nombre de Schmidt
Sh	nombre de Sherwood
Sh^*	nombre de Sherwood normalisé

Introduction

L'optimisation énergétique est un objectif et un axe majeur de recherche et de développement dans le contexte actuel, notamment dans le domaine du traitement des eaux résiduaires. Ainsi, les stations d'épuration (STEP) sont de plus en plus considérées comme des stations de récupération des ressources de l'eau (StaRRE). Dans les StaRRE, l'aération demeure le poste majeur en termes de consommation énergétique (jusqu'à 70% de la consommation générale de la station **(Descoins et al., 2012; Longo et al., 2016; Rosso and Stenstrom, 2005)**). Elle permet d'apporter l'oxygène nécessaire au développement de la biomasse épuratoire aérobie via des systèmes d'aération forcée de surface ou d'insufflation d'air. Pour maîtriser la consommation énergétique associée à ce processus, il est nécessaire de bien dimensionner et gérer les systèmes d'aération, et pour cela de disposer d'une connaissance approfondie des phénomènes de transfert d'oxygène gaz/liquide qui sont mis en œuvre. Dans les procédés à boues activées, le milieu réactionnel est complexe et comprend des particules en suspension (biomasse – matières en suspension contenues dans les eaux résiduaires), une phase aqueuse et une phase gazeuse qui interagissent. Aussi, il est nécessaire de comprendre l'impact des propriétés physico-chimiques des eaux usées sur le transfert d'oxygène gaz/liquide (des bulles d'air vers la boue). En ce sens, le recours aux outils de modélisation est essentiel, notamment ceux de mécanique des fluides numériques **(Glover et al., 2006; Xie et al., 2014)**, mais le niveau de détail des modèles existant à l'heure actuelle reste limité. En particulier, l'impact des propriétés physico-chimiques des boues activées sur le transfert d'oxygène n'est pas intégré de manière complète.

Au sein des procédés équipés de systèmes d'insufflation d'air en fines bulles – qui font l'objet de ces travaux –, le transfert d'oxygène est régi par trois grands paramètres : le coefficient de transfert côté liquide k_L , qui correspond à la vitesse de transfert au niveau de l'interface gaz/liquide, l'aire interfaciale d'échange des bulles (a), qui représente le rapport de la surface d'échange des bulles d'air sur le volume aéré, et le potentiel d'échange, correspondant à la différence entre la concentration en oxygène dissous à l'équilibre avec la phase gaz et dans les conditions de mesure. L'impact sur le transfert peut se faire au niveau de la modification de la vitesse de transfert au niveau de l'interface gaz/liquide k_L par modification des propriétés locales au niveau de celle-ci (par exemple diminution du transfert par adsorption de molécules à la surface des bulles induisant l'augmentation de la résistance au transfert au niveau de l'interface), mais également par modification de l'aire interfaciale d'échange (a) (celle-ci dépendant du diamètre de bulle et de la rétention gazeuse) ou de la concentration d'oxygène à l'équilibre avec la phase gaz et donc du potentiel d'échange.

Les modèles actuels sont essentiellement basés sur l'empirisme, et intègrent l'impact des conditions de fonctionnement sur le transfert d'oxygène à l'échelle du procédé. Ainsi, l'impact de la concentration en matières en suspension (MES) **(Germain et al., 2007; Henkel et al., 2009; Jin et al., 2006; Krampe and Krauth, 2003)**, de la composition de la phase dissoute **(Gillot et al., 2000; Jamnongwong et al., 2010; Rosso et al., 2006; Wagner and Pöpel, 1996)** et de l'âge de boues **(Gillot and Héduit, 2008; Henkel, 2010; Rosso et al., 2005)** sur le transfert d'oxygène est mis en évidence. De même, les dynamiques de contamination des bulles d'air à l'échelle macroscopique par l'intégration de l'âge de bulles ou du temps de contact **(Gillot and Héduit, 2008; Rosso and Stenstrom, 2006)** sont considérées comme paramètres explicatifs des performances de transfert. **Durán (2015)** a établi au cours de sa thèse une base de données conséquente de mesures de transfert d'oxygène en colonne à bulles et en boues activées de station couplée à la caractérisation rhéologique des boues considérées, permettant

d'analyser l'impact de la rhéologie des boues sur le transfert d'oxygène, via leur concentration en MES, et ainsi d'aboutir à des modèles empiriques à l'échelle macroscopique (**Durán et al., 2016**). Néanmoins, l'interprétation des phénomènes observés amène à émettre des hypothèses sur l'impact couplé des propriétés physico-chimiques du liquide interstitiel et de la rhéologie des boues sur la dynamique des bulles d'air et donc de l'aire interfaciale à l'échelle locale, non mesurables en boues activées, faute de techniques de mesures robustes adaptées. En effet, la mesure du diamètre de bulle est difficile voire impossible en boues activées du fait de l'opacité du milieu, or il s'agit d'un paramètre fondamental qui détermine l'aire interfaciale des bulles et donc le transfert de matière au niveau de l'interface. Il est alors nécessaire de recourir à des fluides modèles, représentatifs des boues activées du point de vue physico-chimique et permettant la visualisation des bulles d'air (fluides transparents). Des mesures avec des fluides modèles sont présentées dans la littérature (**Amaral et al., 2018**), mais pour des vitesses superficielles de gaz relativement faibles par rapport à celles appliquées en bioréacteurs, inférieures à $1,2 \text{ mm s}^{-1}$ alors que les vitesses d'aération en bassin réel sont de l'ordre de $1,9$ à $5,5 \text{ mm s}^{-1}$ (**Gillot et al., 2005**).

Parallèlement à ces travaux, le développement de méthodes expérimentales permettant la visualisation des transferts locaux à l'interface gaz-liquide, couplés à la simulation directe des écoulements aux interfaces, permettront à terme de proposer des modèles fiables quant à l'impact des propriétés physico-chimiques des boues sur les transferts interfaciaux locaux (modélisation du k_L). C'est ce qu'ont réalisé **Xu (2019)**, **Jimenez et al. (2013)** et **Lebrun (2021)**, en effectuant des mesures de k_L dans le cas d'une bulle d'air isolée, en fluides modèles de viscosités connues et en présence de contamination induite par des tensioactifs.

Le développement de modèles prédictifs du transfert d'oxygène dans les procédés de traitement des eaux, extrapolables à la majorité des conditions de fonctionnement, passe donc par l'intégration des dynamiques de bulles d'air en lien avec les propriétés physico-chimiques des boues pour la modélisation de leurs impacts sur l'aire interfaciale d'échange (a) (via le diamètre de bulle). Il est nécessaire pour cela de disposer d'une base de données expérimentale pour valider les modèles.

L'objectif des travaux de thèse présentés dans ce manuscrit est de mesurer précisément les paramètres explicatifs du transfert d'oxygène, et de modéliser les phénomènes observés pour mieux les comprendre et les interpréter, en colonne à bulles et en fluides modèles. Ce développement passe par la constitution d'une base de données robustes par la réalisation d'expériences en fluide modèle dans un premier temps, et par le développement de modèles numériques dans un second temps, avec une confrontation entre les résultats expérimentaux et les résultats modélisés.

Le manuscrit de thèse comporte cinq chapitres.

Le **Chapitre 1** rassemble des éléments bibliographiques permettant de définir le positionnement des travaux de thèse. Les principales définitions relatives au transfert d'oxygène gaz/liquide et à l'hydrodynamique dans les colonnes à bulles, ainsi que l'impact des propriétés physico-chimiques du système sur le transfert d'oxygène, sont présentées.

Les Matériels et Méthodes utilisés sont présentés dans le **Chapitre 2**, avec d'une part les dispositifs expérimentaux et d'autre part les outils de modélisation utilisés. La colonne à bulles ainsi que les diffuseurs de bulles utilisés sont décrits, de même que les fluides modèles sélectionnés pour les expériences, les méthodes de caractérisation de leurs propriétés physico-chimiques et de mesure des

propriétés hydrodynamiques (rétention gazeuse locale et globale, distributions en tailles de bulles) et de transfert de matière (coefficient de transfert d'oxygène global). Le modèle 1D couplant hydrodynamique et transfert d'oxygène ayant été confronté aux résultats expérimentaux est également présenté.

Le modèle 1D introduit dans le Chapitre 2 a été validé par une confrontation à des bases de données existantes de la littérature pour le transfert d'oxygène, en eau claire et en colonne à bulles, présentée dans le **Chapitre 3**. La confrontation est faite du point de vue hydrodynamique (comparaison entre rétentions gazeuses globales expérimentales et modélisées) et du transfert de matière (comparaison entre coefficients de transfert d'oxygène globaux expérimentaux et modélisés). Une étude de sensibilité de l'hydrodynamique à la pression hydrostatique et au choix de la loi de traînée est également effectuée.

Le **Chapitre 4** fait état des résultats expérimentaux acquis au cours des travaux de thèse. Pour différents fluides modèles, les principales propriétés physico-chimiques impactant le transfert ont été caractérisées, et les mesures permettant de caractériser l'hydrodynamique et de transfert d'oxygène ont été réalisées dans une colonne à bulles, pour deux diffuseurs de bulles (capillaire et membrane) et différentes vitesses superficielles de gaz : rétention gazeuse, distributions en tailles de bulles, aires interfaciales des bulles (a) (déduites des grandeurs indiquées précédemment), coefficients de transfert d'oxygène globaux K_La et enfin coefficients de transfert côté liquide apparents K_L (déduits de K_La et de (a)).

Le **Chapitre 5** traite de l'application du modèle présenté dans le Chapitre 3 aux résultats expérimentaux décrits dans le Chapitre 4. De manière similaire au Chapitre 3, cette confrontation est faite du point de vue hydrodynamique (comparaison des rétentions gazeuses globales expérimentales et modélisées) et du transfert de matière (comparaison des coefficients de transfert d'oxygène globaux expérimentaux et modélisés). Différents niveaux de contamination des bulles sont ainsi mis en évidence, et ces niveaux de contamination sont caractérisés par le calcul d'angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique et du transfert de matière.

Enfin, les principales **conclusions et perspectives** issues de ces travaux sont présentées.

Chapitre 1 : Éléments bibliographiques

Dans cette partie, le procédé de traitement par boues activées mis en œuvre dans les StaRRE est présenté dans un premier temps, avec les procédés conventionnels (boues activées couplé à une décantation) et par filtration membrane. La partie suivante est consacrée à l'étude des mécanismes hydrodynamiques et du transfert de matière au sein des colonnes à bulles en se focalisant sur les systèmes à faible rétention gazeuse (< 5%), ces conditions opératoires étant représentatives des phénomènes observés dans les bassins d'aération à l'échelle industrielle au sein des StaRRE. Ensuite, les mécanismes de transfert gaz-liquide sont présentés de manière plus générale dans la partie 1.3, avec notamment les principaux modèles de transfert, les principaux paramètres du transfert (aire interfaciale, coefficient de transfert côté liquide k_L , coefficient de transfert global K_La , potentiel d'échange) et la manière dont ils peuvent être impactés, ainsi que la caractérisation de la contamination des bulles à l'aide de la détermination de l'angle de contamination. Par la suite, dans la partie 1.4, l'étude de la rhéologie des boues activées est introduite, ainsi que l'impact de cette rhéologie sur le transfert de matière. La problématique de l'utilisation de fluides modèles représentatifs des boues activées d'un point de vue physico-chimique est également traitée dans cette partie. Enfin, les conclusions du chapitre et le positionnement des travaux de thèse qui en résulte sont présentés.

1.1 Procédé de traitement par boues activées

Le procédé de traitement des boues activées a pour objectif de dépolluer les eaux usées (eaux résiduelles urbaines) jusqu'à un niveau suffisant pour qu'elles puissent être restituées au milieu naturel. Le traitement comprend l'élimination des pollutions carbonée, azotée et phosphorée. La Figure 1-1 représente les différentes étapes du procédé de traitement par boues activées conventionnel.

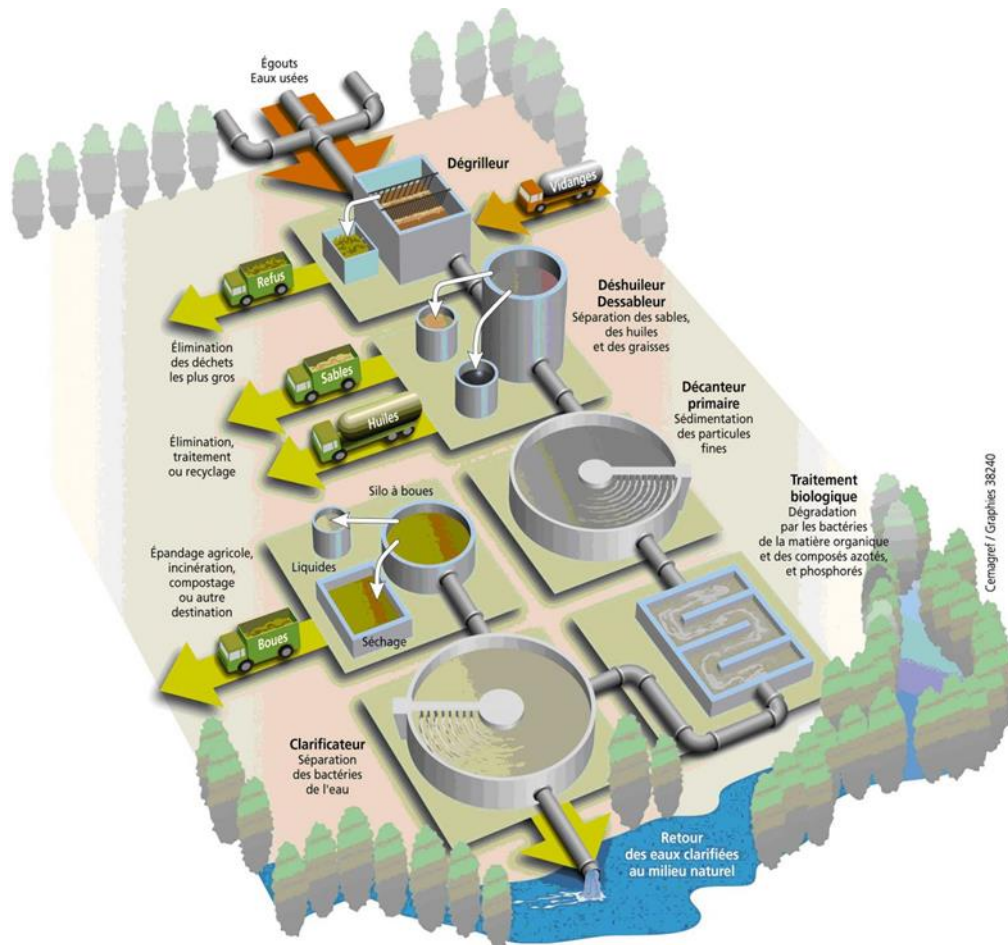


Figure 1-1 : Schéma représentatif du procédé de traitement par boues activées conventionnel (Source : Cemagref)

Avant le traitement à proprement parler, un traitement primaire est mis en place, avec des étapes de dégrillage, de dessablage et de déshuilage. Ce prétraitement permet de retenir à l'aide de grilles des déchets solides pouvant être contenus dans les eaux résiduaires, et les sables et les graisses sont éliminés par dépôt et flottation.

Puis un traitement physico-chimique et/ou biologique est mis en place. Le traitement physico-chimique permet de former des floccs de polluants par l'ajout de produits coagulants. Le traitement biologique quant à lui, consiste en la dégradation de matières organiques dissoutes par l'action de micro-organismes qui les consomment dans le cadre de leur métabolisme. Il s'agit essentiellement de bactéries aérobies dans le cadre de l'élimination de la matière organique (pollution carbonée) et aérobies autotrophes dans le cadre de l'élimination de la pollution azotée. Les bactéries aérobies sont concentrées et ont besoin d'un apport en oxygène pour pouvoir assurer l'élimination de la pollution organique. L'aération peut être réalisée de manière naturelle (lagunage) ou par aération forcée (à l'aide de systèmes d'aération mécanique) : aérateurs de surface, aérateurs plancher ou insufflation de bulles d'air avec agitation mécanique. Dans le cadre d'une aération plancher, les diffuseurs de bulles d'air sont présents au fond du bassin, les bulles sont alors en ascension dans le liquide et transfèrent l'oxygène au cours de leur remontée. Une fois que le traitement de la pollution dissoute carbonée et azotée a été effectué dans le bassin d'aération, l'eau est transférée dans un décanteur, qui permet de séparer l'eau dépolluée des boues résiduelles, ces dernières étant ensuite extraites et revalorisées (en épandage agricole par exemple). L'eau propre quant à elle peut être restituée au milieu naturel. Une

boucle de recirculation permet de renvoyer une partie des boues résiduelles sortant en fond de décanteur vers le bassin d'aération.

A noter qu'il existe un procédé alternatif de filtration par membrane. Au lieu d'utiliser un décanteur pour séparer les boues de l'eau clarifiée comme pour le traitement classique, la séparation est réalisée par des modules de filtration qui sont plongés dans le bassin d'aération ou dans des bassins séparés. L'utilisation de membranes avec des pores fins permet d'obtenir une eau traitée de meilleure qualité que pour le procédé de traitement classique, mais il existe en contrepartie des problèmes de colmatage des membranes.

Les écoulements gaz-liquide au sein des bassins d'aération de StaRRE peuvent être représentés à l'échelle pilote par des colonnes à bulles, étant donné que ces deux types de réacteurs peuvent fonctionner en régime de bulles homogène, avec des hauteurs d'eau et des gammes de rétention gazeuse comparables. Ainsi, le fait d'utiliser une colonne à bulles de forte hauteur (plusieurs mètres) permet de reproduire une hauteur d'eau et un temps de contact gaz-liquide existant dans les bassins d'aération (**Baeten et al., 2020; Durán et al., 2016; Gillot and Héduit, 2008**). De la même manière, le débit d'aération peut être fixé de sorte à obtenir des valeurs de vitesses superficielles de gaz et de rétention gazeuse similaires à celles des bassins d'aération (**Amaral et al., 2018; Durán et al., 2016; Shah et al., 1982**). Ainsi, la partie 1.2 est consacrée à l'hydrodynamique et au transfert gaz-liquide en colonnes à bulles à faible rétention gazeuse (inférieure à 5%).

1.2 Hydrodynamique et transfert gaz-liquide en colonnes à bulles à faible rétention gazeuse

1.2.1 Définitions générales

Cette partie est consacrée aux caractéristiques des dispersions gaz/liquide dans les dispositifs de type colonne à bulles. Les colonnes à bulles sont largement utilisées dans les procédés mettant en œuvre des phénomènes de transfert gaz/liquide, du fait de leurs valeurs d'aires interfaciales élevées (**Bouaifi et al., 2001; Shah et al., 1982**).

1.2.1.1 Vitesse superficielle de gaz/liquide

Dans une colonne à bulles, un débit de gaz (et éventuellement un débit de liquide) est appliqué en entrée. La vitesse superficielle de gaz (respectivement de liquide), également appelée vitesse débitante, est alors définie comme le rapport du débit de gaz (respectivement de liquide) par la section droite de la colonne :

$$j_{g/l} = \frac{Q_{g/l}}{S} \quad (1.1)$$

Avec :

$j_{g/l}$ la vitesse superficielle de gaz (respectivement de liquide) en m s^{-1}

$Q_{g/l}$ le débit de gaz (respectivement de liquide) en $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$

S la section droite de la colonne (m^2)

1.2.1.2 Vitesse de bulle

La vitesse de bulle correspond à la vitesse du gaz à travers la section effective de colonne occupée par le gaz ($\epsilon_G \times S$) avec ϵ_G la rétention gazeuse :

$$U_g = \frac{j_g}{\epsilon_G} \quad (1.2)$$

Le développement de l'équation (1.2) est explicité dans la partie 1.2.6.

Selon le modèle de **Zuber and Findlay (1965)**, la vitesse de bulle a deux composantes, l'une liée au débit global (gaz+liquide) et l'autre liée à la flottabilité de la bulle, la vitesse de glissement G , qui opère même en l'absence de débit. On a alors :

$$U_g = C_0 \times (j_g + j_l) + G \quad (1.3)$$

C_0 est le coefficient de répartition de débit (-), il vaut 1 lorsque le régime de bulle est homogène et 1,5 lorsque le régime de bulle est hétérogène (**Talvy et al., 2005**) . Il est défini par :

$$C_0 = \frac{\langle \alpha_g v_m \rangle}{\langle \alpha_g \rangle \times \langle v_m \rangle} \quad (1.4)$$

Avec v_m la vitesse de mélange ($m s^{-1}$) et α_g la rétention gazeuse locale. Le coefficient de répartition de débit C_0 peut être estimé à partir de simulations de mécanique des fluides numérique (**Vitankar and Joshi, 2002**).

Pour un régime de bulle homogène et en l'absence de débit liquide, l'équation de vitesse de bulle devient :

$$U_g = j_g + G \quad (1.5)$$

1.2.1.3 Vitesse de glissement du gaz

La vitesse de glissement G s'obtient en écrivant l'équilibre entre les forces de flottabilité et de traînée (frottement) et s'exprime :

$$G = \sqrt{\frac{4 \times g \times (\rho_L - \rho_G) \times d_B}{3 \times C_D \times \rho_L}} \quad (1.6)$$

Avec : G la vitesse de glissement ($m s^{-1}$), g l'accélération de la pesanteur ($m s^{-2}$), ρ_L la masse volumique du liquide ($kg m^{-3}$), ρ_G la masse volumique du gaz (kg/m^3), d_B le diamètre de bulle (m), C_D le coefficient de traînée (-)

Lorsque la masse volumique du gaz est négligeable devant celle du liquide (cas de bulles d'air dans de l'eau), on obtient l'équation simplifiée suivante :

$$G = \sqrt{\frac{4 \times g \times d_B}{3 \times C_D}} \quad (1.7)$$

Lorsqu'on est en présence d'un essaim de bulles, un facteur correctif dépendant de la rétention gazeuse et tenant compte des interactions des bulles entre elles est introduit (**Talvy et al., 2007a**) :

$$G = \sqrt{\frac{4 \times g \times d_B \times (1 - \varepsilon_G)}{3 \times C_D}} \quad (1.8)$$

1.2.1.4 Coefficient de traînée

Il existe dans la littérature différents modèles de lois de traînée. Le coefficient de traînée dépend des propriétés hydrodynamiques d'une part (diamètre et vitesse de bulle), et des propriétés physico-chimiques du fluide d'autre part. La viscosité du fluide a un impact sur le coefficient de traînée, de même que des contaminants tels que des tensioactifs adsorbés à la surface des bulles (**Tzounakos et al., 2004**).

Dans le cas d'une particule solide isolée, la loi suivante qui est fonction du nombre de Reynolds est applicable (**Schiller and Naumann, 1938**) :

$$C_D = \frac{24}{Re} \times (1 + 0,615 Re^{0.687}) \text{ pour } Re < 1000 \quad (1.9)$$

$$C_D = 0,44 \text{ pour } Re > 1000 \quad (1.10)$$

Cette corrélation n'est néanmoins applicable que pour des particules rigides, et ne convient donc pas lorsqu'on est en présence de bulles.

La loi de **Karamanev and Nikolov (1992)**, quant à elle, s'applique aux bulles de gaz et est largement employée :

$$\begin{aligned} C_D &= \frac{24}{Re} \times (1 + 0,173 \times Re^{0.657}) \\ &+ \frac{0,413}{1 + 16300 \times Re^{-1.09}} \text{ pour } Re < 135 \end{aligned} \quad (1.11)$$

$$C_D = 0,95 \text{ pour } Re > 135 \quad (1.12)$$

En pratique, pour des bulles d'air dans de l'eau, la limite supérieure de nombre de Reynolds est très souvent dépassée et par conséquent le coefficient de traînée garde une valeur constante de 0,95 (**Karamanev, 1994**).

De la même manière que pour la vitesse de glissement de gaz, lorsqu'on s'intéresse à un essaim de bulles il est pertinent d'intégrer un facteur correctif tenant compte des interactions des bulles entre elles et dépendant du rétention gazeuse (**Ishii and Zuber, 1979; Talvy et al., 2007a**) :

$$C_D = 0,95 \times (1 - \varepsilon_G)^{-2} \quad (1.13)$$

Dans le cas de bulles ellipsoïdales, que l'on obtient à partir d'un diamètre d'environ 2 mm pour de l'eau claire, des effets de tension superficielle apparaissent et les lois de traînée dépendant du nombre d'Eötvös conviennent davantage.

Le nombre d'Eötvös est défini de la manière suivante :

$$Eo = \frac{(\rho_L - \rho_G)gd_B^2}{\sigma} \quad (1.14)$$

Avec ρ_L et ρ_G les masses volumiques respectives du liquide et du gaz (kg m^{-3}), g l'accélération de la pesanteur ($9,81 \text{ m s}^{-2}$), d_B le diamètre de bulle (m), et σ la tension superficielle du liquide (N m^{-1}). Ce nombre sans dimension correspond au rapport des forces de flottabilité et des forces de tension de surface.

Différentes lois de traînée dépendantes du nombre d'Eötvös sont présentées ci-dessous :

- **Tomiyama et al., 1998**

$$C_D = \max \left\{ \frac{24}{Re} (1 + 0,15Re^{0,687}), \frac{8}{3} \frac{Eo}{(4 + Eo)} \right\} \quad (1.15)$$

Cette corrélation est valable pour un système entièrement contaminé, mais il existe également une corrélation pour un système partiellement contaminé (Equation 1.16) et pour un système parfaitement propre (Equation 1.17) (**Tomiyama et al., 1998**).

$$C_D = \max \left(\min \left\{ \frac{24}{Re} (1 + 0,15Re^{0,687}), \frac{72}{Re} \right\}, \frac{8}{3} \frac{Eo}{(4 + Eo)} \right) \quad (1.16)$$

$$C_D = \max \left(\min \left\{ \frac{16}{Re} (1 + 0,15Re^{0,687}), \frac{48}{Re} \right\}, \frac{8}{3} \frac{Eo}{(4 + Eo)} \right) \quad (1.17)$$

Dans le cas d'un système entièrement contaminé (Equation 1.15), la transition entre le régime de bulles sphérique (traînée dépendant du nombre de Reynolds) et le régime ellipsoïdal (traînée dépendant du nombre d'Eötvös) se situe entre des diamètres de bulle de 2 et 3 mm pour l'eau claire (voir Figure 1-2). Par la suite, la loi de traînée de **(Tomiya et al., 1998)** sera appelée simplement « loi de Tomiya ».

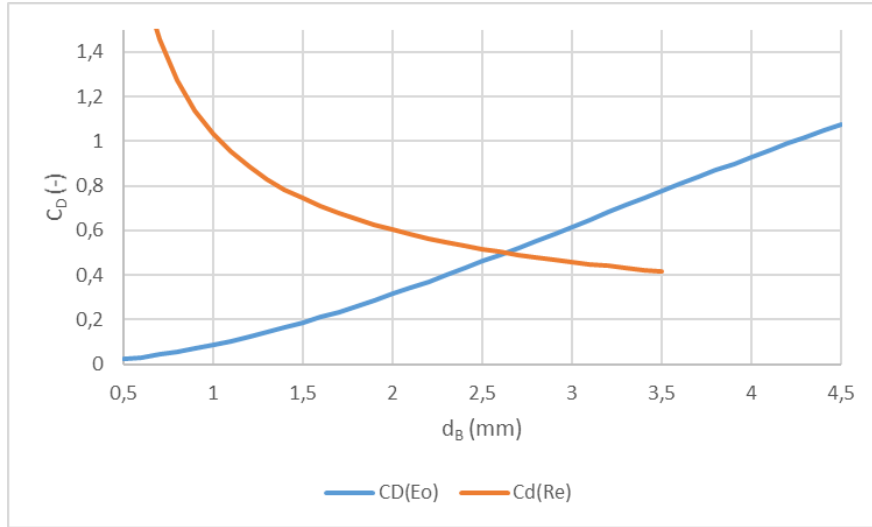


Figure 1-2 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire, pour la loi de Tomiya dans le cas d'un système entièrement contaminé, avec la dépendance au nombre de Reynolds et au nombre d'Eötvös

Pour l'eau claire, en deçà de 2 mm, les effets de tension superficielle sont négligeables et les effets visqueux prédominent, les bulles ont alors une forme sphérique. Au-delà de 3 mm, les effets de tension superficielle prédominent, induisant une déformation des bulles qui prennent alors une forme ellipsoïdale.

De la même manière que pour la loi de Karamanev, lorsqu'on considère un essaim de bulles, le facteur correctif en $(1-\epsilon_0)^{-2}$ est appliqué au coefficient de traînée.

- La loi de Dijkhuizen est valable pour une interface gaz-liquide parfaitement propre. Cette loi a été obtenue par simulation numérique directe (DNS) et validée par comparaison à des expériences de référence de la littérature. Elle est définie par **(Dijkhuizen et al., 2010)** :

$$C_D = \sqrt{C_D(Re)^2 + C_D(Eo)^2} \quad (1.18)$$

Avec

$$C_D(Eo) = \frac{8}{3} \times \frac{Eo}{\frac{19}{3} + \frac{2}{3} \times Eo} \quad (1.19)$$

Et

$$C_D(Re) = \frac{16}{Re} \left(1 + \frac{2}{1 + \frac{16}{Re} + \frac{3,315}{\sqrt{Re}}} \right) \quad (1.20)$$

La partie de la corrélation dépendant du nombre de Reynolds (équation 1.20) est décrite dans **Mei et al. (1994)**.

De manière analogue à la loi de Tomiyama, les régimes de bulle sphérique et ellipsoïdal sont décrits par une corrélation qui est fonction respectivement du nombre de Reynolds et du nombre d'Eötvös, avec une transition entre les deux régimes. Cependant, la transition pour l'eau claire se situe dans la gamme de diamètre de bulle compris entre 1 et 1,5 mm pour la loi de Dijkhuizen (voir Figure 1-3), qui est inférieure à la gamme de transition pour la loi de Tomiyama (entre 2 et 3 mm).

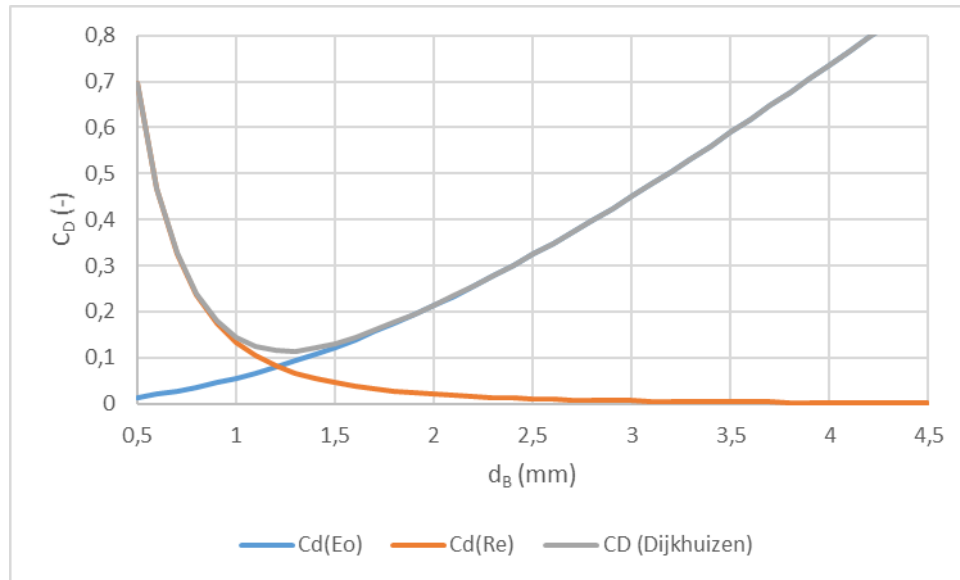


Figure 1-3 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire, pour la loi de Dijkhuizen avec la dépendance au nombre de Reynolds et au nombre d'Eötvös

(Battistella et al., 2020) ont modifié la loi de traînée de Dijkhuizen afin de la rendre applicable à des fluides non newtoniens avec une rhéologie de type loi puissance, en utilisant un nombre de Reynolds modifié et valable pour ces fluides non newtoniens **(Chhabra, 2006)**. Pour des fluides de viscosité plus importante que l'eau claire, le coefficient de traînée est globalement plus élevé à diamètre de bulle équivalent, comme le montrent les Figure 1-4 et Figure 1-5. En particulier, la transition entre les régimes de Reynolds et de Eötvös a lieu pour un diamètre de bulle plus élevé lorsque la viscosité augmente.

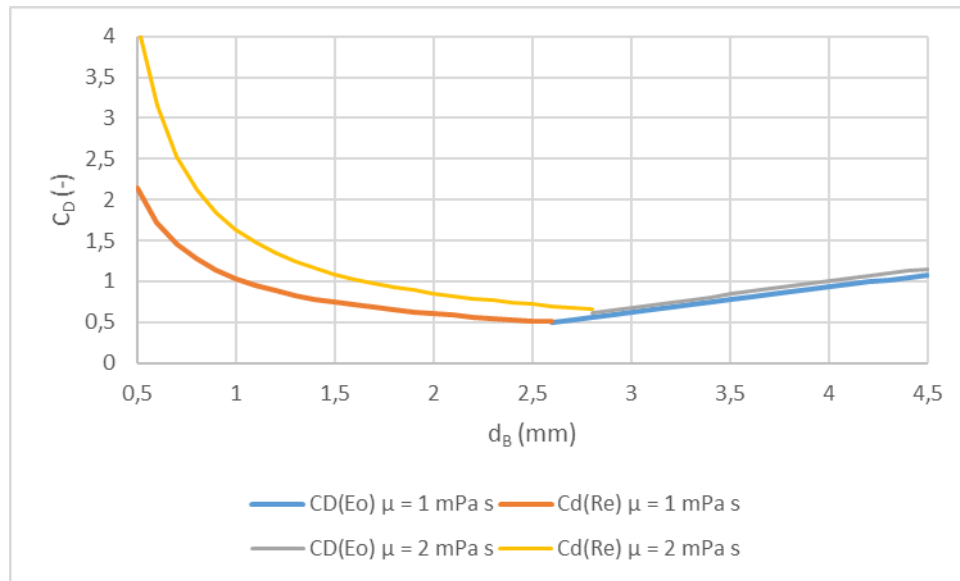


Figure 1-4 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire (1 mPa s) et avec une viscosité de 2 mPa s, pour la loi de Tomiyama entièrement contaminée, avec la dépendance au nombre de Reynolds et au nombre d'Eötvös

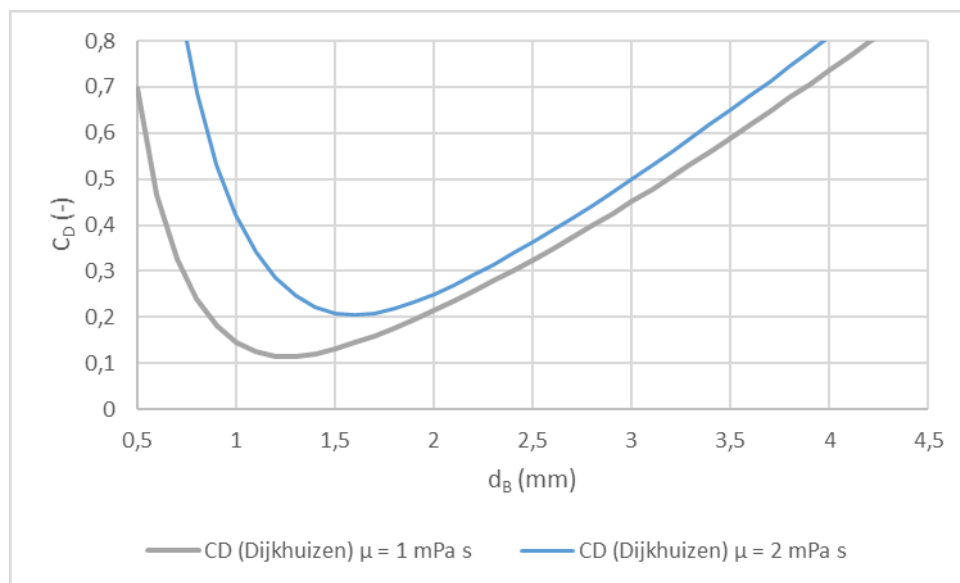


Figure 1-5 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire (1 mPa s) et avec une viscosité de 2 mPa s, pour la loi de Dijkhuizen

Il existe également d'autres lois de traînée dépendant du nombre d'Eötvös :

- **Johansen and Boysan, 1988**

$$C_D = \frac{0,622}{\frac{1}{Eo} + 0,235} \text{ avec } 500 < Re < 5000 \quad (1.21)$$

- **Van Baten et al., 2008**

$$C_D = \frac{2}{3} \times \sqrt{Eo} \quad (1.22)$$

1.2.2 Régime de bulles homogène et hétérogène

A basse vitesse superficielle de gaz et faible rétention gazeuse, le régime de bulle est dit homogène : les bulles ont peu d'interactions entre elles, il y a peu de coalescence et de rupture de bulles, la distribution en taille des bulles est homogène (peu de dispersion), et la rétention gazeuse est uniformément répartie dans la section de la colonne (**Raimundo, 2015**).

Dans le cas d'un régime hétérogène, la vitesse superficielle de gaz et la rétention gazeuse sont plus importantes, il existe de la coalescence, et on observe une distribution de taille de bulles plus large. Certaines bulles peuvent s'éloigner de la forme sphérique et être de taille plus importante, et la rétention gazeuse est répartie de manière moins uniforme. Il existe un régime de transition entre les régimes homogène et hétérogène. Pour une colonne à bulles avec un système air-eau, (**Zahradník et al., 1997**) ont observé l'apparition du régime de transition à une vitesse superficielle de gaz de 0,04 m s⁻¹. Ceci est en accord avec les travaux de **Mudde et al., (2009)** qui ont déterminé, pour une colonne à bulles air/eau avec un diffuseur fines bulles, que la gamme de vitesse superficielle de gaz à partir de laquelle le régime de transition débute s'étale de 0,04 à 0,08 m s⁻¹. En-dessous de cette gamme, le régime homogène avec peu de coalescence peut être maintenu. Dans les bassins d'aération de StaRRE, les vitesses superficielles de gaz sont généralement comprises entre 0,002 et 0,006 m s⁻¹ (**Gillot et al., 2005**), ce qui permet d'assurer que le régime est bien homogène, avec une rétention gazeuse faible (inférieure à 5%) et donc peu de coalescence. Toutefois, les conditions physico-chimiques ou les zones d'accumulation locales de bulles peuvent contribuer à créer de la coalescence dans ces conditions particulières, mais la probabilité d'observer de la coalescence en eau claire reste faible si la distribution du gaz est contrôlée.

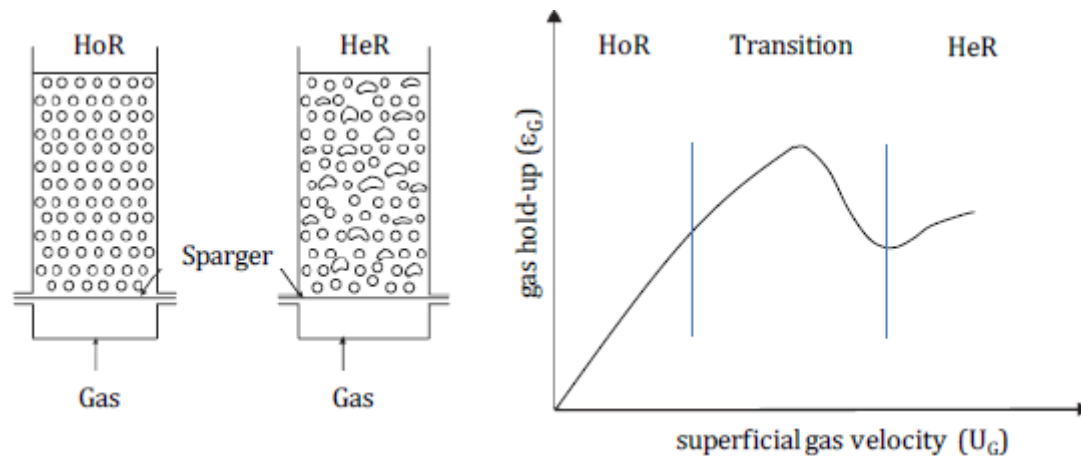


Figure 1-6 : Illustration des régimes de bulles homogène et hétérogène (gauche), schéma indiquant l'évolution du rétention gazeuse en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents régimes d'écoulement (Mena et al., 2005; Zahradník et al., 1997)

1.2.3 Impact des propriétés des fluides sur l'hydrodynamique

1.2.3.1 Impact de la viscosité sur le diamètre de bulle

A faible vitesse superficielle de gaz, la viscosité a très peu d'impact sur le diamètre de bulle. Pour des vitesses plus importantes, le diamètre des bulles augmente avec la viscosité du liquide (**Jamialahmadi et al., 2001**). Pour des fluides à forte viscosité tels que le Carboxyméthylcellulose (fluide non-newtonien rhéo-fluidifiant), il a été observé que le panache de bulles n'occupe pas toute la largeur du diffuseur, et que le diamètre de bulle moyen est significativement plus élevé qu'en eau claire (**Ratkovich et al., 2013**). Pour des écoulements à bulle de Taylor dans une colonne à bulles de 50 mm de diamètre, et avec des fluides de viscosité allant de 5 à 5000 mPa s et une gamme de vitesse superficielle de gaz entre 0,02 et 0,36 m s⁻¹, **Kajero et al. (2012)** ont observé une augmentation de la longueur des bulles de Taylor avec la viscosité du liquide, cependant l'augmentation de taille n'est significative qu'à partir d'une viscosité de 1000 mPa s. Cette augmentation de taille est due à la coalescence des bulles, dont l'impact augmente avec la valeur de viscosité du liquide et avec la vitesse superficielle de gaz (**Kajero et al., 2012**). Ainsi, la longueur initiale de bulle demeure constante pour les différentes viscosités étudiées, excepté pour la viscosité la plus élevée (5000 mPa s). **Zahedi et al. (2014)** ont réalisé des simulations en 2D de formation, détachement, ascension et rupture de bulles, en utilisant la méthode de Volume de Fluide (VOF), pour différentes propriétés de fluide (masse volumique, tension superficielle et viscosité) et différents diamètres d'orifice. Dans leurs simulations, la viscosité du liquide (gamme allant de 1 à 50 mPa s) n'a pas eu d'impact sur le diamètre de bulle et le temps de détachement de celles-ci. Pour des mesures de transfert de CO₂ en colonne à bulles de 0,71 m de hauteur, 0,14 m de diamètre et une gamme de vitesse superficielle de gaz de 7,2 10⁻⁵ à 1,4 10⁻⁴ m s⁻¹, **Kováts et al. (2020)** ont montré que le diamètre de bulle augmente avec l'augmentation de la viscosité (utilisation de glycérol pour une gamme de viscosité de 0,86 à 9,29 mPa s). En revanche, **Gemello et al., (2018)** ont montré la diminution du diamètre de bulle (par une réduction de la coalescence) avec l'augmentation de la viscosité, pour des bulles d'air dans des solutions d'éthanol (0,01 et 0,05% volumique) en colonne à bulles de 3,25 m de hauteur et 400 mm de diamètre (gamme

de vitesse superficielle de gaz comprise entre 3 et 35 cm s⁻¹). A noter qu'il est également probable que la tension superficielle soit affectée dans ce cas.

(Besagni et al., 2017) ont observé un double effet de la viscosité sur l'hydrodynamique (rétention gazeuse, transition de régime d'écoulement et diamètre de bulle) en colonne à bulles, de hauteur 5,3 mètre, diamètre 0,24 m et pour une gamme de vitesse superficielle de gaz de 0,004 à 0,2 m s⁻¹. Les fluides visqueux utilisés sont des mélanges d'eau et de polyéthylène glycol, avec une gamme de viscosité de 0,9 à 7,97 mPa s. Il a été observé que pour les faibles viscosités, le régime homogène est stabilisé et la rétention gazeuse plus élevée, et le diamètre de bulle est plus faible que pour les viscosités plus élevées. Pour ces dernières, le régime homogène est déstabilisé, la rétention gazeuse plus faible et le diamètre de bulle plus élevé.

1.2.3.2 Impact de la tension superficielle sur le diamètre de bulle

La tension superficielle est la propriété physico-chimique essentielle contrôlant le diamètre de bulle au détachement (avec la flottabilité) à faible vitesse superficielle de gaz (Jamialahmadi et al., 2001). En revanche, l'effet de la tension superficielle sur le diamètre de bulle diminue avec l'augmentation de la vitesse superficielle de gaz (Jamialahmadi et al., 2001; Kulkarni and Joshi, 2005). Dans le cadre d'un orifice rigide, le diamètre de l'orifice influe sur le diamètre de bulle, et le temps de détachement augmente avec l'augmentation de la tension superficielle (Zahedi et al., 2014). Pour des vitesses superficielles de gaz inférieures à 1,4 10⁻⁴ m s⁻¹ et des bulles de CO₂, Kováts et al. (2020) ont mis en évidence une diminution du diamètre de bulle avec la diminution de la tension superficielle (utilisation de Dodécylsulfate de sodium, gamme de tension superficielle de 44,8 à 72,24 mN m⁻¹). En effet, la diminution de tension superficielle entraîne une stabilisation des interfaces et une inhibition de la coalescence (Craig, 2004; Raimundo, 2015).

1.2.4 Impact du diffuseur de bulles sur l'hydrodynamique

Dans le cas d'un diffuseur de bulle dont le diamètre d'orifice ne varie pas (type plaque percée ou capillaire), le diamètre de bulle au détachement est donné par la relation de (Gaddis and Vogelpohl, 1986), qui traduit l'équilibre entre les forces de flottabilité et de quantité de mouvement de gaz tendant à faire détacher la bulle et les forces capillaires, de traînée et d'inertie tendant à la retenir :

$$d_B = \left[\left(\frac{6 \times d_0 \times \sigma}{\rho_L \times g} \right)^{\frac{4}{3}} + \left(\frac{81 \times \mu_L \times Q_{Gn}}{\pi \times g \times \rho_L} \right) + \left(\frac{135 \times Q_{Gn}^2}{4 \times \pi^2 \times g} \right)^{\frac{4}{5}} \right]^{\frac{1}{4}} \quad (1.23)$$

Avec d_0 le diamètre de l'orifice (m), σ la tension superficielle du liquide (N m⁻¹), ρ_L sa masse volumique (kg m⁻³), μ_L sa viscosité dynamique (Pa s), g l'accélération de la pesanteur (m s⁻²), et Q_{Gn} le débit de gaz à travers l'orifice (m³ s⁻¹).

Lorsque le débit est nul, on retrouve la loi de Tate qui exprime l'équilibre entre flottabilité et capillarité :

$$d_B = \left(\frac{6 \times d_0 \times \sigma}{\rho_L \times g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1.24)$$

Ainsi, le diamètre de bulle au détachement varie peu avec le débit pour ce type de diffuseur.

Pour un diffuseur de type membrane en revanche, le diamètre de bulle augmente significativement avec le débit de gaz. En effet, plus le débit sera élevé, plus la pression de gaz en amont de la membrane sera grande et plus les pores s'ouvriront pour laisser échapper la bulle (**Loubière et al., 2003**). Les diffuseurs membranaires peuvent avoir tendance à générer des nuages de bulles avec une hétérogénéité plus marquée que des diffuseurs de type capillaire.

1.2.5 Impact de la hauteur de liquide sur l'hydrodynamique et le transfert de matière

Les paramètres hydrodynamiques et notamment la rétention gazeuse sont impactés par la pression hydrostatique pour les colonnes à bulles de forte hauteur. Plus la hauteur de la colonne est importante, plus la rétention gazeuse sera importante, avec des variations importantes selon la hauteur (**Giovannettone et al., 2009**). Du fait de la compressibilité du gaz, la rétention gazeuse diminue le long de la hauteur dans la colonne.

Le diamètre de bulle et la vitesse superficielle de gaz varient avec la pression hydrostatique selon la loi des gaz parfaits (**Fayolle et al., 2010; Pöpel and Wagner, 1994**) :

$$d_B(z) = d_{B0} \sqrt[3]{\frac{P_0}{P}} \quad (1.25)$$

$$j_g(z) = j_{g,N} \times \frac{P_0}{P} \quad (1.26)$$

Avec $d_B(z)$ et $j_g(z)$ respectivement le diamètre de bulle (m) et la vitesse superficielle de gaz (m s^{-1}) à la hauteur z dans la colonne, P la pression hydrostatique à la hauteur z (Pa), P_0 la pression atmosphérique (Pa), et d_{B0} et $j_{g,N}$ le diamètre de bulle (m) et la vitesse superficielle de gaz (m s^{-1}) à la pression atmosphérique.

Dès lors que la hauteur de liquide est supérieure à plusieurs mètres pour une colonne à bulle, la pression hydrostatique a un impact sur le transfert de matière, de par son impact sur la solubilité du gaz dans le liquide (**Rubio et al., 1999 ; Baeten et al., 2020; Dhaouadi et al., 2008**). Celle-ci varie de manière non-linéaire le long de la hauteur dans la colonne, et la non-linéarité des profils de concentration augmente avec la hauteur de la colonne, à partir d'une hauteur de colonne de deux mètres (**Rubio et al., 1999**).

Le profil de concentration en oxygène dissous selon la hauteur peut être décrit par un modèle de dispersion axiale (**Deckwer et al., 1974; Rubio et al., 1999**) :

$$D_z \frac{d^2 C}{dz^2} + k_L a \times (C^* - C) = 0 \quad (1.27)$$

Ainsi, le profil de concentration est impacté par le coefficient de dispersion axiale D_z ainsi que par les paramètres hydrodynamiques (rétention gazeuse globale) et de transfert (coefficient de transfert $k_L a$). En outre, avec ce modèle, pour une colonne à bulles de 4 mètres de hauteur, il apparaît une variation de fraction molaire en oxygène jusqu'à 10% dans la phase gaz. L'oxygène est transféré du gaz vers le liquide dans la moitié inférieure de la colonne, et dans la partie supérieure un transfert inverse du liquide vers le gaz se produit (**Rubio et al., 1999**).

Pour des colonnes en fonctionnement airlift, un réacteur avec une hauteur plus grande aura un coefficient de transfert de matière $k_L a$ plus faible qu'un réacteur avec une hauteur moins importante (**Giovannettone and Gulliver, 2008**).

1.2.6 Modélisation 1D des écoulements et du transfert gaz-liquide

Dans cette partie sont présentés les principaux éléments concernant la modélisation 1D gaz/liquide dans les colonnes à bulles. Afin de s'affranchir de la puissance et du temps de calcul conséquents liés à l'utilisation de la mécanique des fluides numériques (CFD), il est pertinent d'utiliser des modèles gaz/liquide à une dimension pour l'application aux colonnes à bulles (**Cockx et al., 1997; Rubio et al., 2001; Vitankar and Joshi, 2002; Wallis, 1969**). Cette démarche de modélisation est pertinente, en effet l'écoulement de gaz dans les colonnes à bulles est essentiellement vertical. En plus des colonnes à bulles, le modèle à deux fluides à une dimension est également employé pour la modélisation des réacteurs airlift (**Colombet et al., 2013; Talvy et al., 2007b, 2007c**).

Les deux grandes approches de modélisation sont l'approche Lagrangienne et l'approche Eulérienne. L'approche Lagrangienne est de type traçage de particules, la phase dispersée (bulles) est considérée comme une entité discrète dont chaque élément est suivi individuellement. L'approche Eulérienne quant à elle représente de manière continue chacune des deux phases. Les phases continue et dispersée sont chacune caractérisées par leur fraction volumique, et les équations de conservation sont résolues pour chacune des deux phases.

L'approche de modélisation à une dimension (également appelée « filaire ») est une approche de type Eulérienne (**Colombet et al., 2011**). Les équations de conservation de masse et de quantité de mouvement sont résolues pour chacune des deux phases (liquide et gaz), en tenant compte de la fraction volumique de chaque phase.

La plupart des modèles 1D existants considèrent une vitesse superficielle de gaz constante, du fait qu'ils s'appliquent à des colonnes de hauteur peu importante (**Colombet et al., 2013; Talvy et al.,**

2007b), ce qui permet de ne pas tenir compte des effets de pression hydrostatique, mais ces effets doivent être pris en compte pour les colonnes ayant une hauteur d'eau plus importante (voir 1.2.5).

Afin de passer d'un système à trois dimensions à un système à une dimension, les grandeurs sont moyennées sur la section droite de la colonne, en supposant qu'elles soient homogènes au sein de cette section et ne varient que selon la hauteur.

Ainsi, la fraction volumique locale au sein d'une section s'écrit (**Talvy et al., 2007a**) :

$$\varepsilon_k = \langle \alpha_k \rangle = \frac{1}{S} \iint_A \alpha_k dS \quad (1.28)$$

Avec ε_k la fraction volumique de la phase k (gaz ou liquide) au sein de la section (-), α_k la fraction volumique en un point spécifique de la section (-), et S (m²) la surface de la section.

La conservation de la masse s'écrit pour un système diphasique (**Talvy et al., 2007b**) :

$$\frac{\partial \alpha_k \rho_k}{\partial t} + \nabla \alpha_k \rho_k \overline{U_k} = \overline{m_K} \quad (1.29)$$

Avec α_k la fraction volumique (-), ρ_k la masse volumique (kg m⁻³) et $\overline{U_k}$ la vitesse moyenne (m s⁻¹) de la phase k. Le premier terme à gauche de l'équation correspond à la variation de masse au cours du temps au sein de la phase k et le second correspond au transport de matière par advection au sein de la phase k. Le terme à droite de l'équation ($\overline{m_K}$) correspond à un transfert de matière moyen entre les phases gaz et liquide (kg m⁻³ s⁻¹).

Ainsi, pour un système monodimensionnel, la conservation de la masse s'écrit :

$$\frac{\partial (\varepsilon_k \rho_k)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z} (\varepsilon_k \rho_k U_{kz}) = \langle m_k \rangle \quad (1.30)$$

En considérant un écoulement en régime permanent et que le transfert de matière entre phases est négligeable du point de vue de la conservation de la masse, on obtient pour chacune des phases liquide et gaz :

$$\varepsilon_l \rho_l U_l = Cst = \rho_l \frac{Q_l}{S} = \rho_l j_l \quad (1.31)$$

$$\varepsilon_g \rho_g U_g = Cst = \rho_g \frac{Q_g}{S} = \rho_g j_g \quad (1.32)$$

Avec Q_k et j_k respectivement le débit volumique (m³ s⁻¹) et la vitesse superficielle (m s⁻¹) de la phase k.

Dans le cas d'une colonne à bulles en fonctionnement batch, le débit et la vitesse superficielle du liquide sont nuls, et il ne reste que l'équation pour la phase gaz :

$$\varepsilon_g = \frac{j_g}{U_g} \quad (1.33)$$

U_g est la vitesse de bulle (m s⁻¹), qui dépend de la vitesse superficielle de gaz et de la vitesse de glissement (voir 1.2.1.2 et 1.2.1.3).

Concernant le transfert de matière, les équations de transport de l'oxygène dans le gaz et le liquide s'écrivent (Talvy et al., 2007c) :

$$\frac{\partial \alpha_G \bar{C}_G}{\partial t} + \nabla \alpha_G \bar{C}_G \bar{U}_G = -k_L a \times (C_l^* - \bar{C}_l) \quad (1.34)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \alpha_l \bar{C}_l}{\partial t} + \nabla \alpha_l \bar{C}_l \bar{U}_l \\ = \nabla \alpha_l [(D + D_t) \nabla \bar{C}_l] + k_L a (C_l^* - \bar{C}_l) \end{aligned} \quad (1.35)$$

L'évolution de la concentration en oxygène dans le liquide et dans le gaz (premier terme à gauche des deux équations) résulte d'un terme de transport par advection (second terme à gauche des deux équations) et d'un terme de transfert de matière entre les deux phases (négatif pour le gaz, positif pour le liquide). Pour le liquide, il y a également un terme de transport par diffusion, faisant intervenir le coefficient de diffusion moléculaire D et le coefficient de diffusion turbulente D_t.

En négligeant le terme de transport par advection ainsi que le terme de diffusion dans le liquide, et en considérant un système monodimensionnel, l'équation pour le liquide s'écrit :

$$\frac{\partial C_l(t)}{\partial t} = < \frac{k_L a(z)}{1 - \varepsilon_g(z)} (C_l^*(z, t) - C_l(t)) > \quad (1.36)$$

Le liquide étant considéré parfaitement mélangé, sa concentration est homogène. L'évolution de la concentration en oxygène dans le liquide au cours du temps est ainsi égale à la moyenne spatiale (<...>) des termes de transfert locaux. Ces derniers sont fonction du coefficient de transfert de matière local à la hauteur z (lui-même composé du coefficient de transfert de matière côté liquide k_L et de l'aire interfaciale a, voir 1.3.2 et 1.3.3), de la rétention gazeuse locale à la hauteur z, de la concentration à saturation à la hauteur z et au temps t, et de la concentration dans le liquide au temps t.

La concentration à saturation à la hauteur z et au temps t (mg L⁻¹) s'écrit :

$$C_l^*(z, t) = He_{O_2}(T) M(O_2) x_g(z, t) P(z) \quad (1.37)$$

Avec He_{O₂}(T) le coefficient de Henry pour la solubilité de l'oxygène dans l'eau à la température T (mol m⁻³ Pa⁻¹), M(O₂) la masse molaire de l'oxygène (32 g mol⁻¹), x_g(z,t) la fraction molaire locale en oxygène dans le gaz à la hauteur z et au temps t (-), et P(z) la pression hydrostatique à la hauteur z (Pa).

Pour le gaz, l'évolution de la concentration en oxygène au cours du temps s'écrit en monodimensionnel :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_g(z) C_g(z, t)}{\partial t} + \nabla \varepsilon_g(z) C_g(z, t) U_g(z) \\ = -k_L a(z) (C_l^*(z, t) - C_l(t)) \end{aligned} \quad (1.38)$$

Cette équation est applicable lorsque le gaz est peu soluble dans le liquide, ce qui est le cas pour l'oxygène dans l'eau. Contrairement au liquide, l'évolution de la concentration en oxygène dans la phase gaz est calculée localement pour chaque hauteur z. Cette évolution résulte d'un terme de transport dans le gaz par advection, et d'un terme de transfert entre le gaz et le liquide.

En considérant la fraction molaire en oxygène dans le gaz x_g (-) à la place de la concentration massique C_g (mg L⁻¹), et après réarrangement des termes, l'équation (1.38) s'écrit :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial x_g(z, t)}{\partial t} \\ &= - \frac{k_L a(z)}{\varepsilon_g(z) \times \frac{M(O_2)}{RT} (P(z))} (C_l^*(z, t) - C_l(t)) \\ & - \frac{U_g(z)}{\Delta z} \Delta x_g(z, t) \end{aligned} \quad (1.39)$$

Avec T la température (K) et R la constante des gaz parfaits (8,314 J mol⁻¹ K⁻¹).

1.3 Mécanismes de transfert gaz liquide

Dans cette partie sont présentés les principaux mécanismes de transfert de matière gaz-liquide, avec les principaux modèles de transfert existants, les principales grandeurs relatives au transfert et la manière dont elles peuvent être impactées et le transfert perturbé.

1.3.1 Loi de Fick et modèle du double film

Le flux de diffusion de matière en présence d'un gradient de concentration d'une espèce A diluée dans une espèce B est donné par la loi de Fick :

$$J_A = -D_{AB} \times \nabla C_A \quad (1.40)$$

Soit en monodimensionnel :

$$J_A = -D_{AB} \times \frac{\partial C_A}{\partial z} \quad (1.41)$$

Avec : J_A flux diffusif de l'espèce A (mol m⁻² s⁻¹), D_{AB} coefficient de diffusion de l'espèce A dans B (m² s⁻¹), C_A concentration de l'espèce A (mol m⁻³), $\frac{\partial C_A}{\partial z}$ gradient de concentration de l'espèce A dans la direction z (mol m⁻⁴).

Le transfert de matière en monodimensionnel est bien décrit par le modèle du double film (Figure 1-7).

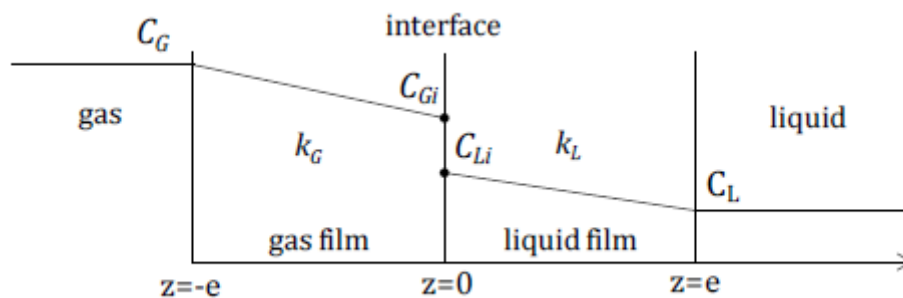


Figure 1-7 : Schéma représentant le modèle du double film (Roustan, 2003)

Dans ce modèle, on considère une interface d'épaisseur nulle entre les deux milieux gaz et liquide, où s'effectue le transfert de matière, et les concentrations côté gaz (C_{Gi}) et liquide (C_{Li}) à l'interface sont celles à l'équilibre entre les deux phases, régies par la loi de Henry. De part et d'autre de l'interface, il existe un film côté liquide et un film côté gaz, d'une certaine épaisseur (e), au sein desquels il existe des gradients de concentration dus à la diffusion et à la vitesse de transfert à l'interface. Les concentrations dans le gaz et dans le liquide à l'extérieur des films sont considérées comme homogènes. Au sein des films, le transfert d'espèce se fait par diffusion. Ainsi, les molécules de l'espèce qui transfère diffusent à travers le film côté gaz, puis elles se solubilisent dans le liquide jusqu'à atteindre l'équilibre thermodynamique, et enfin les molécules diffusent à travers le film liquide jusqu'à atteindre la concentration dans le liquide loin de l'interface.

Les films gazeux et liquide sont chacun caractérisés par un coefficient de transfert de matière (respectivement k_G et k_L). Si on écrit C_G la concentration en soluté dans le gaz et C_L celle dans le liquide, toutes deux loin de l'interface (en mol m^{-3}), le flux molaire transféré (en $\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$) s'écrit côté gaz :

$$J = k_G \times (C_G - C_{Gi}) \quad (1.42)$$

Et côté liquide :

$$J = k_L \times (C_{Li} - C_L) \quad (1.43)$$

Néanmoins, il est expérimentalement très délicat d'accéder aux concentrations à l'interface, c'est la raison pour laquelle on emploie en pratique des coefficients de transfert globaux, afin d'exprimer les flux de matières en fonction de concentration en dehors des films (dans la zone homogène, loin de l'interface). Dans ce cas, le flux molaire transféré s'écrit pour le gaz :

$$J = K_G \times (C_G - C_{Gs}) \quad (1.44)$$

Et pour le liquide :

$$J = K_L \times (C_{Ls} - C_L) \quad (1.45)$$

K_G et K_L sont les coefficients de transfert de matière globaux respectivement côté gaz et côté liquide (en m s^{-1}), et C_{Gs} est la concentration en soluté dans le gaz à l'équilibre avec le liquide (en mol m^{-3}), et C_{Ls} la concentration dans le liquide à saturation, en équilibre avec le gaz (en mol m^{-3}). C_{Gs} et C_{Ls} sont reliés par le coefficient de partage m (-) :

$$C_{Gs} = m \times C_{Ls} \quad (1.46)$$

Ainsi, la résistance globale au transfert s'écrit côté gaz :

$$\frac{1}{K_G} = \frac{1}{k_G} + \frac{m}{k_L} \quad (1.47)$$

Et côté liquide :

$$\frac{1}{K_L} = \frac{1}{k_L} + \frac{1}{m \times k_G} \quad (1.48)$$

Lorsque le gaz est peu soluble dans l'eau (c'est le cas pour l'oxygène dans l'eau), la valeur de m est très élevée, par conséquent toute la résistance au transfert se trouve côté liquide et on obtient pour le flux transféré :

$$J = K_L \times (C_{Ls} - C_L) = k_L \times (C_{Ls} - C_L) \quad (1.49)$$

Il est en outre usuel d'exprimer le transfert avec un coefficient de transfert de matière global volumétrique $K_L a$ (en s^{-1}). Dans ce cas, le flux de matière transféré par unité de volume s'écrit :

$$F = K_L a \times (C_{Ls} - C_L) \quad (1.50)$$

Le flux transféré dépend alors du modèle de transfert côté liquide utilisé (k_L), de l'aire interfaciale spécifique développée par les bulles dans le liquide (a) ainsi que de la concentration dans le liquide à saturation (C_{Ls}) qui impacte le potentiel d'échange $C_{Ls} - C_L$.

1.3.2 Aire interfaciale spécifique (a)

L'aire interfaciale spécifique (en m^{-1}) développée par les bulles s'exprime en fonction du diamètre de bulle moyen de Sauter d_{32} (m) et de la rétention gazeuse ε_G (-) selon :

$$a = \frac{6}{d_{32}} \times \varepsilon_G \times f_E \quad (1.51)$$

Avec le diamètre de Sauter d_{32} (m) qui est défini par :

$$d_{32} = \frac{\sum d_{eq,V}^3}{\sum d_{eq,S}^2} \quad (1.52)$$

Avec d_{32} le diamètre de Sauter et $d_{eq,V}$ et $d_{eq,S}$ les diamètres équivalents respectivement en volume et en surface des bulles de la distribution considérée. Le diamètre de Sauter correspond au diamètre moyen caractéristique du ratio volume surface de l'ensemble d'une distribution de taille.

Le diamètre équivalent en volume $d_{eq,V}$ (m) d'une bulle ellipsoïdale de petit axe a (m) et grand axe b (m) est défini selon :

$$d_{eq,V} = (a \times b^2)^{1/3} \quad (1.53)$$

Le diamètre équivalent en surface $d_{eq,S}$ (m) d'une bulle ellipsoïdale de petit axe a (m) et grand axe b (m) est défini selon :

$$d_{eq,S} = \sqrt{\frac{2 \times \pi \times (\frac{b}{2})^2 + \frac{\pi(\frac{a}{2})^2}{e} \times \ln(\frac{1+e}{1-e})}{\pi}} \quad (1.54)$$

Avec $e(-)$ l'excentricité de la bulle définie par :

$$e = \frac{\sqrt{(\frac{b}{2})^2 - (\frac{a}{2})^2}}{\frac{b}{2}} \quad (1.55)$$

Pour des bulles ellipsoïdales, l'aire interfaciale est plus élevée que pour des bulles sphériques de même diamètre et à rétention gazeuse équivalent : un facteur d'excentricité f_E est ainsi pris en compte dans le calcul de l'aire interfaciale (avec $f_E > 1$).

$$f_E = \frac{1}{2E^{1/3}} \times (E + \frac{\ln(E + \sqrt{E^2 - 1})}{\sqrt{E^2 - 1}}) \quad (1.56)$$

Avec E l'excentricité $(-)$ au sens « facteur de forme » de la bulle définie comme le rapport du grand-axe sur le petit-axe.

La rétention gazeuse (ou taux de gaz) quant à elle est définie comme la fraction du volume occupé par la phase gazeuse sur le volume total (gaz + liquide) :

$$\varepsilon_G = \frac{V_G}{V_T} = \frac{V_G}{V_G + V_L} \quad (1.57)$$

1.3.3 Coefficient de transfert de matière côté liquide k_L

Dans le cas idéal d'une bulle propre (à interface mobile), le coefficient de transfert côté liquide k_L (en m s^{-1}) s'exprime selon le modèle de **Higbie (1935)** :

$$k_L = 2 \sqrt{\frac{D}{\pi \times t_c}} = 2 \sqrt{\frac{D \times G}{\pi \times d_B}} \quad (1.58)$$

Dans ce modèle, on considère que l'interface des bulles se renouvelle, et le transfert de matière se fait par diffusion dans le film côté liquide, et les éléments de liquide sont à l'équilibre avec l'interface gaz/liquide pendant un temps de contact t_c (s). Ce temps est défini comme le rapport du diamètre de la bulle (m) sur sa vitesse de glissement (m s^{-1}). D est le coefficient de diffusion moléculaire ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$).

Le coefficient de transfert côté liquide selon le modèle de Higbie peut également s'écrire comme une fonction des nombres de Reynolds et de Schmidt :

$$k_L = \frac{D}{d_B} \times \frac{2}{\sqrt{\pi}} \times \sqrt{Re \times Sc} \quad (1.59)$$

Dans le cas d'une bulle entièrement contaminée en revanche, l'interface peut être considérée comme rigide (non renouvelable) et le coefficient de transfert s'écrit selon le modèle de **Frössling (1938)** (par analogie avec des particules rigides) :

$$k_L = \frac{D}{d_B} \times (2 + 0,66 \times Re^{\frac{1}{2}} \times Sc^{\frac{1}{3}}) \quad (1.60)$$

D est le coefficient de diffusion moléculaire ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$), d_B le diamètre de bulle (m) et les nombres adimensionnels de Reynolds et de Schmidt sont définis de la manière suivante :

$$Re = \frac{\rho_L \times d_B \times G}{\mu_L} \quad (1.61)$$

$$Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L \times D} \quad (1.62)$$

Avec ρ_L et μ_L respectivement la masse volumique (kg m^{-3}) et la viscosité dynamique (Pa s) du fluide, G la vitesse de glissement de la bulle (m s^{-1}), d_B son diamètre (m), et D le coefficient de diffusion moléculaire ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$).

Ces deux modèles correspondent aux cas « idéaux » extrêmes d'une bulle complètement propre et d'une bulle complètement contaminée, par conséquent les coefficients réels sont situés entre ces deux modèles (**Le Moullec et al., 2010; Sardeing et al., 2006; Vasconcelos et al., 2003**).

Le modèle de **Calderbank et Moo-Young (1961)** propose deux corrélations de k_L , l'une correspondant à des bulles rigides (équation 1.63) et l'autre correspondant à des bulles à interface mobile (équation 1.64).

$$k_L^{rigide} = 0,31 \times \left(\frac{g \times \mu_L}{\rho_L} \right)^{\frac{1}{3}} \times Sc^{-\frac{2}{3}} \quad (1.63)$$

$$k_L^{mobile} = 0,42 \times \left(\frac{(\rho_L - \rho_G) \times \mu_L \times g}{\rho_L^2} \right)^{\frac{1}{3}} \times Sc^{-\frac{1}{2}} \quad (1.64)$$

1.3.4 Coefficient de transfert global K_{La} : paramètres impactant le k_L et le a , effets de contamination et facteur alpha

1.3.4.1 Définition du coefficient de transfert de matière global K_{La}

En eau claire, le coefficient de transfert global K_{La} est déterminé expérimentalement par la méthode dite de réoxygénation (NF-EN-12255-15, 2004). Il s'agit de suivre l'évolution au cours du temps de la concentration en oxygène dissous dans le liquide (à l'aide de sondes à oxygène) en présence d'aération jusqu'à atteindre la concentration de saturation, en ayant au préalable réduit la concentration en oxygène dissous à zéro. Cela est fait par soit par injection d'azote, soit par l'introduction de sulfite de sodium (Na_2SO_3) dans l'eau, qui va consommer l'oxygène dissous en présence de chlorure de cobalt ($CoCl_2$) selon la réaction suivante :



L'évolution de la concentration en oxygène dissous au cours du temps est régie par l'équation suivante :

$$\frac{dC}{dt} = K_L a \times (C_S - C) \quad (1.66)$$

Avec C la concentration en oxygène dissous à un instant t ($mg\ L^{-1}$), K_{La} le coefficient de transfert global (s^{-1}), et C_S la concentration en oxygène à saturation ($mg\ L^{-1}$).

L'équation peut être réécrite sous les deux formes suivantes :

$$C(t) = C_S - (C_S - C_0) \times \exp(-K_L a \times t) \quad (1.67)$$

$$\ln \frac{C_s - C(t)}{C_s - C_0} = -K_L a \times t \quad (1.68)$$

Avec C_0 la concentration en oxygène dissous à l'instant initial $t=0$ (mg L^{-1}).

Ainsi, le coefficient $K_L a$ peut être obtenu en traçant $C = f(t)$ ou $\ln \frac{C_s - C}{C_s - C_0} = f(t)$. Il faut pour cela que les concentrations initiale C_0 et à saturation C_s soient bien déterminées. Le $K_L a$ déterminé de cette manière est un $K_L a$ apparent ou global, c'est-à-dire qu'il ne prend pas en compte les possibles variations de la concentration à saturation C_s dues à une variation de la concentration en oxygène dans le gaz. Par conséquent, plus grande sera la variation de concentration en oxygène dans le gaz due au transfert, plus le $K_L a$ global sera différent du $k_L a$ réel.

Le coefficient de transfert $K_L a$ est exprimé à une valeur standard de 20°C . Sa variation avec la température s'exprime selon

$$K_L a_{20} = K_L a_T \times \theta^{20-T} \quad (1.69)$$

Avec T la température en $^\circ\text{C}$ et $\theta = 1,024$.

En boue activée, du fait de l'activité biologique des micro-organismes qui consomment l'oxygène, la méthode de la réoxygénation n'est pas applicable. D'autres méthodes sont alors mises en œuvre, telles que la méthode des bilans gazeux (mesure de la concentration en oxygène dans le gaz d'entrée et de sortie, et détermination du flux transféré par un bilan de matière), ou la méthode de respiration des bactéries (**Capela et al., 2004**).

1.3.4.2 Facteur alpha et perturbation du transfert en boues activées

Comme indiqué en introduction, les boues activées sont un milieu triphasique complexe gaz/liquide/solide. La phase gaz correspond aux bulles d'air provenant de l'aération, la phase solide correspond aux floccs biologiques et aux particules en suspension et la phase liquide correspond au liquide interstitiel entre les floccs. Les floccs sont un mélange complexe de colonies microbiennes, de fibres, de substances polymères extracellulaires d'origine biologique, telles que des protéines, des polysaccharides et des acides nucléiques (**Durán, 2015; Sheng et al., 2008; Wilén et al., 2008**). Le liquide interstitiel contient de la matière organique, des espèces azotées et phosphorées solubles, des polymères extracellulaires solubles ainsi que des sels dissous et des tensioactifs.

En boues activées, du fait de la complexité du milieu (particules solides en suspension, espèces dissoutes dans le liquide interstitiel), le transfert d'oxygène est impacté et est moindre qu'en eau claire dans les mêmes conditions. Cette diminution du transfert est caractérisée par un facteur α (**Stenstrom and Gilbert, 1981**) :

$$\alpha = \frac{K_L a'}{K_L a} \quad (1.70)$$

Avec $K_L a'$ et $K_L a$ le coefficient de transfert respectivement en boue activée et en eau claire (h^{-1}).

Du fait de la complexité du milieu en boue activée, le facteur alpha est difficile à quantifier (**Jiang et al., 2017**). Il a néanmoins été montré que plus la concentration en matières solides en suspension de la boue est élevée, plus le facteur alpha sera faible (**Germain et al., 2007; Henkel et al., 2009; Jin et al., 2006; Krampe and Krauth, 2003; Mineta et al., 2011**), comme le montre la Figure 1-8 extraite de **Henkel (2010)**.

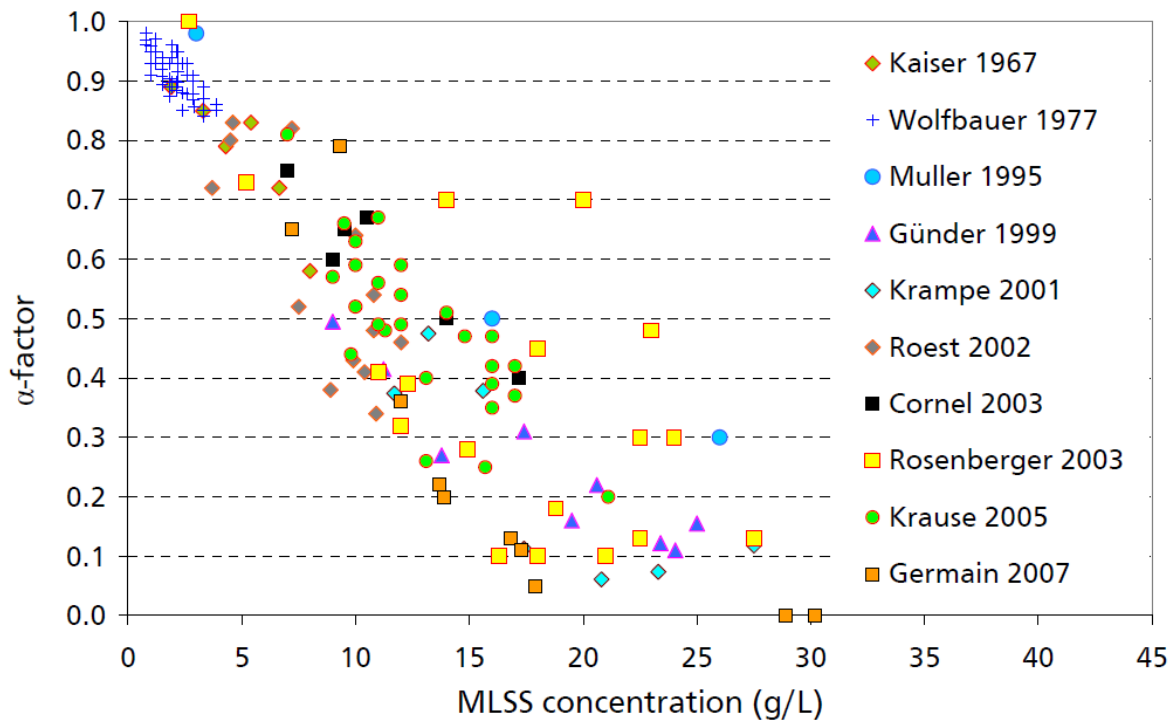


Figure 1-8 : Evolution du facteur alpha en fonction de la concentration en MES en boues activées pour différentes études (Henkel, 2010; Henkel et al., 2009)

Il a été montré que les solides ont un impact négatif sur le transfert, par l'intermédiaire de plusieurs phénomènes. En colonne à bulles, **Mena et al. (2005)** ont montré que des particules solides (billes d'alginate d'aluminium de 2,1 mm à des concentrations volumiques de 0 à 30%) ont un impact sur le régime d'écoulement. En particulier, en occupant un volume autour des bulles, les particules solides induisent un encombrement stérique et réduisent la surface d'échange disponible pour le transfert de matière. En fonction de leur masse volumique, les particules solides peuvent également avoir un effet de flottabilité et impacter la masse volumique du mélange, et avoir ainsi un impact sur la vitesse de bulle et la rétention gazeuse. De plus, les particules solides entraînent une augmentation de la viscosité apparente, ce qui entraîne une augmentation du diamètre de bulle (**Kulkarni and Joshi, 2005; Mena et al., 2005**) et donc de l'aire interfaciale des bulles. En boues activées, il a été montré que la rétention gazeuse globale est inférieure à celle de l'eau claire (**Durán, 2015; Jin et al., 2006; Mineta et al., 2011**), avec une diminution de la rétention gazeuse avec l'augmentation de la concentration en MES pour des conditions d'aération similaires. Ainsi, l'aire interfaciale en boues activées est diminuée par rapport à l'eau claire, induisant un impact négatif sur le transfert. Toutefois, le facteur alpha étant un paramètre global, le coefficient k_L et le potentiel d'échange sont également susceptibles d'être impactés en boues activées. De plus, étant donné qu'il n'existe pas de mesures de tailles de bulles en boues activées, l'aire interfaciale n'est jamais quantifiée directement.

La Figure 1-8 fait également apparaître une large dispersion entre les différentes études (même si la tendance générale de diminution du facteur α avec l'augmentation de la concentration en MES apparaît clairement), ce qui porte à croire que la concentration en MES n'est pas le seul paramètre impactant le facteur α . L'origine et l'âge de la boue ainsi que la granulométrie des floccs biologiques (Germain et al., 2007; Henkel et al., 2009) rentrent également en ligne de compte. Notamment, les polymères extra-cellulaires ont un impact sur la structure des floccs, mais l'absence d'un protocole de mesure normalisé rend délicate leur quantification (Domínguez et al., 2010; Durán, 2015).

A l'inverse, l'âge de boues apparaît comme un paramètre influençant positivement le facteur α , comme on peut le voir sur la Figure 1-9 :

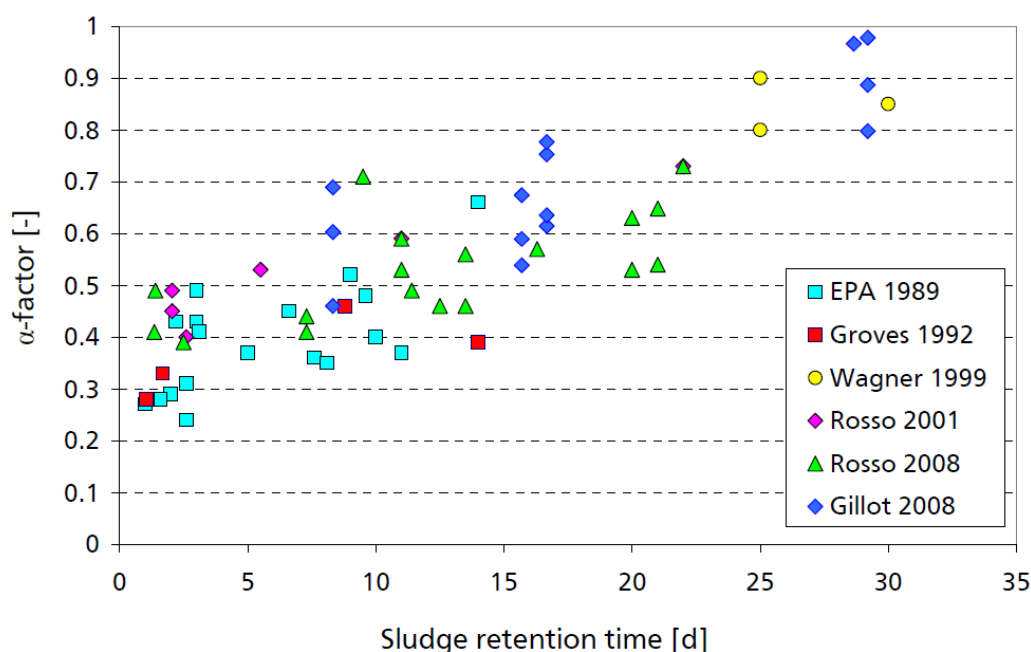


Figure 1-9 : Evolution du facteur alpha en fonction de l'âge de la boue pour différentes études (Henkel, 2010; Henkel et al., 2009)

Les substances dissoutes, et en particulier les substances tensioactives qui impactent négativement le transfert d'oxygène, sont davantage dégradées pour des temps de rétention élevés, ce qui a un effet positif sur le transfert d'oxygène et le facteur α (Henkel, 2010; Henkel et al., 2009).

Ces substances tensioactives (voir 1.3.4.4) sont présentes dans les eaux résiduaires urbaines à des concentrations moyennes de 7 à 15 mg L⁻¹ (Wagner and Pöpel, 1996), et la concentration en tensioactifs dans les boues activées après traitement retombe à environ 2 mg L⁻¹. Pour des eaux grises synthétiques avec des concentrations en tensioactifs comprises entre 62 et 70 mg L⁻¹, et en bioréacteur à membrane, Henkel (2010) a montré que les concentrations en tensioactifs dans la boue activée traitée étaient très basses (de l'ordre de 0,3 mg L⁻¹), et donc leur impact sur le transfert est considéré comme négligeable. Cependant, les bioréacteurs à membrane sont généralement opérés à des âges de boues plus élevés que le procédé de traitement par boues activées classique, ainsi qu'une concentration en biomasse épuratoire plus élevée. Par conséquent, la dégradation des tensioactifs est plus aboutie dans le cas des bioréacteurs à membrane, et la concentration en tensioactifs dans le cas du procédé de boues activées classique est susceptible d'être plus élevée et d'avoir un impact plus significatif.

Certaines études ont montré que des sels dissous (Na_2SO_4 et NaCl) ont un impact positif sur le transfert de matière (**Alves et al., 2005; Jamnongwong et al., 2010; Painmanakul and Hébrard, 2008**) pour des expériences en colonnes à bulles et des concentrations respectivement de $42,6 \text{ g L}^{-1}$ pour le Na_2SO_4 et de $1,2$ à 100 g L^{-1} pour le NaCl , cet impact étant essentiellement imputable à l'augmentation d'aire interfaciale des bulles, causée par une inhibition de la coalescence des bulles par les sels dissous, ce qui entraîne une réduction du diamètre de bulle et une augmentation du rétention gazeuse (du fait de la vitesse de bulle réduite). Dans le cas des boues activées, l'impact des électrolytes dissous sur le transfert d'oxygène est peu documenté dans la littérature. La conductivité des boues activées est environ égale à $1000 \mu\text{S cm}^{-1}$ (**Durán, 2015**), ce qui correspond au double de la valeur en eau du réseau ($550 \mu\text{S cm}^{-1}$), mais demeure inférieur à la limite ($1500 \mu\text{S cm}^{-1}$) fixée pour la norme de réoxygénation en eau claire (NF EN 12255-15, 2004). Cela amène à penser que les électrolytes dissous ne sont pas présents en quantité suffisamment importante en boue activée pour avoir un impact significatif sur le transfert.

1.3.4.3 Facteur bêta

Le facteur bêta caractérise le fait que la concentration d'oxygène à saturation en boue activée C'_s est légèrement moindre que celle en eau claire C_s , pour des conditions de température et de pression identiques :

$$C'_s = \beta \times C_s \quad (1.71)$$

Avec β présentant des valeurs entre 0,95 et 0,99, typiquement 0,99 (ASCE, 1996). Cette modification de la solubilité de l'oxygène en boue activée par rapport à l'eau claire est essentiellement due aux matières organiques en suspension et sels dissous dans les boues activées (**Capela, 1999; Stenstrom and Gilbert, 1981**). Ainsi, du fait de la réduction de la concentration d'oxygène à saturation en boue activée par rapport à l'eau claire, le potentiel d'échange ($C'_s - C$) est réduit également et le transfert de matière est perturbé, même si cette perturbation est peu significative par rapport à celle liée au facteur alpha et au coefficient de transfert global $K_L a$.

1.3.4.4 Impact des substances dissoutes sur le $K_L a$: cas des tensioactifs

Les tensioactifs sont des molécules présentes dans les eaux résiduaires urbaines, provenant de l'utilisation de liquide vaisselle, savons,... Il s'agit de molécules amphiphiles, possédant une tête hydrophile et une queue hydrophobe. Selon la charge électrique de la tête, les tensioactifs peuvent être anioniques, cationiques, non-ioniques ou amphotères (un groupe ionique positif et un groupe ionique négatif). Cette structure leur confère une capacité à s'adsorber aux interfaces gaz/liquide (bulles) et ainsi à perturber le transfert (on parle alors de bulles contaminées). La principale propriété des tensioactifs est en outre de diminuer la tension superficielle du liquide dans lequel ils sont dissous. Au fur et à mesure de l'ajout de tensioactifs, la tension superficielle diminue par adsorption des molécules de tensioactif aux interfaces, jusqu'à atteindre une certaine concentration en tensioactif dans le liquide (la concentration micellaire critique) pour laquelle toutes les interfaces gaz-liquide sont saturées et les tensioactifs forment des micelles : la tension superficielle reste alors constante même avec l'ajout de tensioactif supplémentaire.

Sardeing et al., (2006) ont réalisé des mesures de coefficients k_L et K_La en colonne à bulles, avec des tensioactifs non-ioniques, anioniques et cationiques, pour des concentrations élevées (entre 50 et 3500 mg L⁻¹), et avec un diffuseur de bulles émettant des bulles isolées. Les valeurs de K_La obtenues en tensioactif sont significativement inférieures à celles obtenues en eau claire, et cela est essentiellement dû à une diminution de k_L . Ainsi, le modèle de transfert de Higbie n'est plus valide pour ces conditions, et une nouvelle corrélation pour le coefficient k_L est proposée.

Comme évoqué précédemment, les tensioactifs dissous ont un impact sur le transfert de matière, à la fois sur l'aire interfaciale a et sur le coefficient de transfert côté liquide k_L (**Painmanakul and Hébrard, 2008**) :

-Impact sur a : De par la réduction de la tension superficielle, la coalescence des bulles est également réduite, le diamètre des bulles est plus faible et par conséquent l'aire interfaciale est plus élevée (**Painmanakul et al., 2005; Sardeing et al., 2006**). De plus, la vitesse de bulle est plus faible (du fait de la diminution du diamètre de bulle et de l'augmentation de la traînée due à l'adsorption des molécules de tensioactif), donc la rétention gazeuse est plus élevée ce qui a également un impact positif sur l'aire interfaciale (**Capela et al., 2004, Wagner and Pöpel, 1996**) .

-Impact sur k_L : Le coefficient de transfert de matière côté liquide est réduit, du fait de l'adsorption des molécules de tensioactif et de l'augmentation de la résistance au transfert au niveau de l'interface gaz/liquide. Cette adsorption perturbe la diffusion des molécules de dioxygène au sein du film liquide, ce qui entraîne une diminution du coefficient de diffusion de l'oxygène (**Hebrard et al., 2009; Jamnongwong et al., 2010; Jimenez et al., 2014**). La cinétique d'adsorption des molécules de tensioactif est décrite par des mesures de tension superficielle dynamique (**Sardeing et al., 2006, Masutani and Stenstrom, 1991; Rosso et al., 2006**). Les valeurs de k_L restent néanmoins supérieures aux valeurs théoriques obtenues avec le modèle de Frössling pour les interfaces rigides (**Vasconcelos et al., 2003**).

Pour que l'impact global sur le K_La soit négatif, il faut donc que l'impact sur le k_L soit prédominant par rapport à l'impact sur le a .

La nature du tensioactif (anionique, cationique ou non ionique) joue un rôle dans l'impact sur le transfert. Il a notamment été montré que pour le sodium dodécyl sulfate (SDS, tensioactif anionique) à une concentration de 1 mg L⁻¹ dans un pilote d'aération de 400 L, les valeurs de K_La obtenues sont de même ordre de grandeur qu'en eau claire, alors que pour un tensioactif non-ionique (alcool laurique éthoxylé) à une concentration de 1 mg L⁻¹, le K_La obtenu représente environ 80% du K_La obtenu en eau claire (**Gillot et al., 2000**). Cette différence est expliquée par le fait que le diamètre de bulle est réduit en présence de tensioactif anionique (ce qui augmente l'aire interfaciale et compense la diminution de k_L), alors que le diamètre de bulle en tensioactif non ionique demeure identique à celui de l'eau claire.

Henkel (2010) a étudié l'impact de tensioactifs anioniques sur le transfert pour des bioréacteurs à membrane, avec une concentration en tensioactif dans l'alimentation jusqu'à 70 mg L⁻¹ et pour des temps de séjour (âges de boues) entre 12 et 80 jours. Dans ces conditions, les concentrations mesurées dans les boues activées sont restées faibles (environ 0,3 mg L⁻¹) et ne semblent pas perturber le transfert. Cependant, en réacteur à boues activées classique, les temps de séjour sont plus faibles et les concentrations en biomasse moins élevées, par conséquent il est possible que la dégradation des

tensioactifs soit moins avancée que pour les réacteurs à membrane, et donc que les concentrations en tensioactif dans les boues activées soient plus élevées, ce qui peut entraîner une perturbation plus significative du transfert dans ces conditions.

1.3.5 Angle de contamination

Le niveau de contamination des bulles est caractérisé par leur angle de contamination (**Sadhal and Johnson, 1983**), cet angle correspondant à la surface occupée par les contaminants adsorbés à la surface de la bulle. Lorsque l'angle de contamination est égal à 0°, la bulle est parfaitement propre, et lorsqu'il est égal à 180 ° elle est entièrement contaminée (voir Figure 1-10). Lors de l'ascension de la bulle dans le liquide, les contaminants s'adsorbent progressivement à sa surface, et avec le renouvellement de l'interface ils vont progressivement se déplacer et s'accumuler à l'arrière de la bulle.

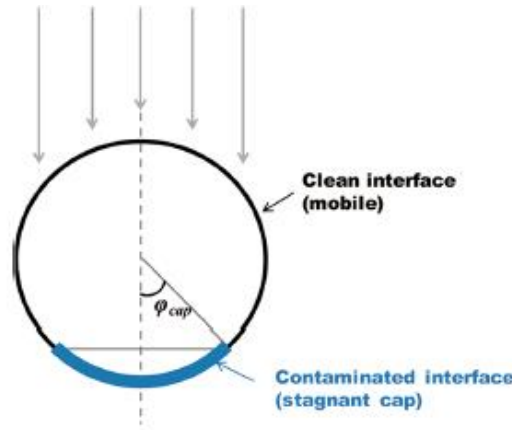


Figure 1-10 : Illustration de l'accumulation des contaminants à l'arrière d'une bulle et de l'angle de contamination (Xu et al., 2018)

L'angle de contamination est calculé à partir du coefficient de traînée normalisé avec (**Sadhal and Johnson, 1983; Xu et al., 2018**) :

$$C_D^*(\theta_{cap}) = \frac{1}{2\pi} \times ((2\theta_{cap}) + \sin(\theta_{cap}) - \sin(2\theta_{cap}) - \frac{1}{3}\sin(3\theta_{cap})) \quad (1.72)$$

Avec θ_{cap} l'angle de contamination (en radian).

Le coefficient de traînée normalisé est fonction du coefficient de traînée de la bulle C_D , et des coefficients de traînée respectivement d'une bulle propre C_D^m et d'une bulle contaminée C_D^{im} et s'exprime comme :

$$C_D^*(\theta_{cap}) = \frac{C_D - C_D^m}{C_D^{im} - C_D^m} \quad (1.73)$$

Ce coefficient de traînée adimensionnel rend compte du niveau de contamination de la bulle d'un point de vue hydrodynamique, les contaminants adsorbés à sa surface augmentant le coefficient de traînée ce qui entraîne une diminution de la vitesse de bulle. Ainsi le coefficient de traînée normalisé vaut 0 dans le cas d'une bulle parfaitement propre et 1 dans le cas d'une bulle entièrement contaminée.

Le niveau de contamination peut également être caractérisé d'un point de vue du transfert de matière de manière analogue, en introduisant un nombre de Sherwood normalisé :

$$Sh^* = \frac{Sh - Sh_{Higbie}}{Sh_{Frössling} - Sh_{Higbie}} \quad (1.74)$$

Avec Sh le nombre de Sherwood de la bulle et Sh_{Higbie} et $Sh_{Frössling}$ les nombres de Sherwood calculés respectivement avec le modèle de transfert de Higbie (interface entièrement propre) et de Frössling (interface entièrement contaminée).

Le nombre de Sherwood est défini comme

$$Sh = \frac{k_L \times d_B}{D} \quad (1.75)$$

Avec k_L le coefficient de transfert de matière côté liquide ($m \ s^{-1}$), d_B le diamètre de bulle (m) et D le coefficient de diffusion du liquide ($m^2 \ s^{-1}$).

De la même manière que pour la vitesse de bulle, le transfert est impacté à la baisse par l'effet de la contamination.

Le nombre de Sherwood normalisé est dépendant du coefficient de traînée normalisé selon la corrélation (Takemura and Yabe, 1999; Xu et al., 2018) :

$$Sh^* = 1 - \left(1 - C_D^*(\theta_{cap})\right)^{0,5} \quad (1.76)$$

1.4 Éléments de rhéologie

1.4.1 Définitions

La rhéologie est « l'étude de la déformation et de l'écoulement de la matière sous l'effet d'une contrainte appliquée », et a été introduite par Bingham en 1928. Elle s'applique aux milieux continus fluides, qu'ils soient newtoniens ou non-newtoniens, avec différents types de comportements possibles (viscoélastique, viscoplastique, rhéo-fluidifiant, rhéo-épaississant...).

Pour caractériser un fluide d'un point de vue rhéologique, il faut y appliquer un écoulement laminaire, en supposant que le milieu est constitué de couches adjacentes de fluide d'épaisseur infinitésimale, et que l'écoulement entraîne un glissement relatif entre ces couches, sans qu'il y ait de transfert de matière entre elles.

La surface élémentaire d'une couche est notée dS , dz étant la distance infinitésimale entre deux couches. Avec l'écoulement et le glissement relatif entre deux couches adjacentes décrit précédemment, des forces de cisaillement apparaissent entre ces deux couches, notées dF (voir Figure 1-11). Ce cisaillement entraîne un déplacement noté dx entre les deux couches.

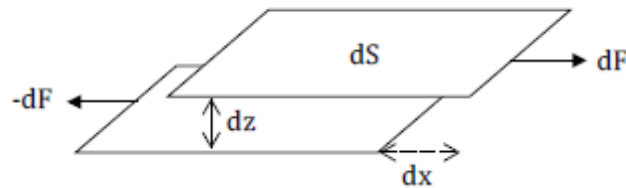


Figure 1-11 : Schéma montrant le cisaillement entre deux couches de fluide dans le cas d'un écoulement laminaire (Durán, 2015)

Le rapport entre la force de cisaillement et la surface d'une couche est appelé la contrainte de cisaillement, définie selon :

$$\tau = \frac{F}{S} \quad (1.77)$$

Avec τ la contrainte de cisaillement (Pa), F la force de cisaillement (N) et S la surface de la couche (m^2).

Le rapport entre le déplacement infinitésimal dx entre les deux couches et l'épaisseur infinitésimale dz entre ces deux couches est défini comme une déformation γ :

$$\gamma = \frac{dx}{dz} \quad (1.78)$$

Enfin la dérivée de la déformation par rapport au temps est appelée taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ (s^{-1}) et est définie selon :

$$\dot{\gamma} = \frac{d\gamma}{dt} \quad (1.79)$$

En d'autres termes, le taux de cisaillement n'est autre qu'un gradient de vitesse.

1.4.2 Cas d'un fluide newtonien

Dans le cas d'un fluide newtonien, la contrainte de cisaillement τ (Pa) est directement proportionnelle au gradient de vitesse (ou taux de cisaillement) appliqué $\dot{\gamma}$ (s^{-1}), et le coefficient de proportionnalité correspond à la viscosité dynamique du fluide (Pa.s) :

$$\tau = \mu \times \dot{\gamma} \quad (1.80)$$

Avec

τ la contrainte de cisaillement (Pa)

μ la viscosité dynamique (Pa.s)

$\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement (s^{-1})

La viscosité est dans ce cas constante, et ne dépend pas du taux de cisaillement appliqué. L'eau est un exemple courant de fluide visqueux newtonien.

1.4.3 Cas d'un fluide non-newtonien

Pour un fluide non-newtonien, la proportionnalité entre gradient de vitesse et contrainte de cisaillement n'est pas vérifiée ; il existe différents modèles de $\tau = f(\dot{\gamma})$, basés pour la plupart sur des lois puissance, avec 2 ou 3 paramètres constants. La viscosité va alors varier en fonction du taux de cisaillement appliqué, elle est alors dite « viscosité apparente ». Si la viscosité apparente du fluide diminue avec l'augmentation du taux de cisaillement, le fluide est dit rhéo-fluidifiant, et si elle augmente avec le taux de cisaillement, le fluide est dit rhéo-épaississant. Différents modèles sont proposés dans la littérature pour caractériser ce comportement :

- *Modèle d'Ostwald*

$$\tau = K \times \dot{\gamma}^n \quad (1.81)$$

Avec

K l'indice de consistance (Pa.sⁿ)

n le « flow index » (indice d'écoulement) (-)

Si $n < 1$, le fluide est rhéo-fluidifiant, et si $n > 1$ il est rhéo-épaississant. La viscosité apparente s'écrit $K \times \dot{\gamma}^{n-1}$, elle varie donc en fonction du taux de cisaillement appliqué.

- *Modèle de Sisko*

$$\tau = \mu_{\infty} \dot{\gamma} + K \dot{\gamma}^n \quad (1.82)$$

Avec

μ_{∞} la viscosité à cisaillement infini (Pa s)

- *Modèle de Herschel-Bulkley* (comportement viscoplastique, fluide dit de Bingham si $n=1$)

$$\tau = \tau_y + K\dot{\gamma}^n \quad (1.83)$$

Avec τ_y la contrainte seuil (Pa)

Dans ce cas, le fluide est dit à seuil, une contrainte seuil doit être atteinte pour pouvoir mettre le fluide en mouvement.

- *Modèle de Casson*

$$\sqrt{\tau} = \sqrt{\tau_y} + \sqrt{K\dot{\gamma}} \quad (1.84)$$

1.4.4 Mesure de la rhéologie

L'étude rhéologique d'un fluide consiste à mesurer dans un appareil (appelé rhéomètre) l'évolution de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement appliqué, en faisant varier ce dernier dans une certaine gamme. La courbe $\tau = f(\dot{\gamma})$ est appelée rhéogramme et permet d'identifier le comportement rhéologique du fluide parmi les différentes lois énoncées précédemment.

Il existe deux grands types de rhéomètre : cylindrique et capillaire.

Dans un rhéomètre capillaire (ou tubulaire), le fluide est mis en mouvement à travers un tube. L'écoulement étant laminaire, les mesures de perte de charge longitudinale au sein du tube et du débit de liquide donnent, à l'aide de la loi de Poiseuille, les valeurs de la contrainte de cisaillement τ et du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$.

Dans un rhéomètre cylindrique, l'écoulement du fluide est un écoulement de Taylor-Couette entre deux cylindres concentriques, dont l'un est en mouvement de rotation par rapport à l'autre. Le taux de cisaillement et la contrainte de cisaillement sont alors calculés à partir du couple exercé et de la vitesse angulaire de rotation.

1.4.5 Comportement rhéologique des boues activées

Les boues activées sont décrites comme ayant un comportement non-newtonien rhéo-fluidifiant (**Durán et al., 2016; Forster, 1982; Henkel, 2010; Khongnakorn et al., 2010; Tixier et al., 2003; Xia et al., 2009; Yang et al., 2009**). Pour décrire leur comportement rhéologique, on utilise le modèle d'Ostwald, qui est le plus couramment utilisé du fait de sa simplicité (**Seyssiecq et al., 2003**), mais il peut également exister une contrainte seuil, auxquels cas peuvent être employés les modèles de Herschel-Bulkley ou de Sisko (**Durán, 2015; Ratkovich et al., 2013; Rosenberger et al., 2002**). La présence de cette contrainte seuil caractéristique du comportement viscoplastique dépend de la concentration en matières solides en suspension. Pour des concentrations inférieures à 11 g L^{-1} , la contrainte seuil peut être considérée comme négligeable (**Forster, 2002**). Le choix du modèle rhéologique à appliquer (Ostwald ou viscoplastique) dépend de la gamme de cisaillement considérée, les modèles d'Ostwald et de Herschel-Bulkley étant les plus communément utilisés pour les boues

activées (**Xia et al., 2009**). Ainsi, pour des faibles valeurs de cisaillement et en présence de contrainte seuil, les modèles viscoplastiques sont adaptés (Herschel-Bulkley, Bingham, Casson) (**Durán, 2015**). Pour une valeur de cisaillement élevée et si la viscosité à cisaillement infini est identifiable, le modèle de Sisko peut être utilisé (**Durán, 2015**). Enfin pour des cisaillements intermédiaires et en l'absence de contrainte seuil et de viscosité à cisaillement infini, le modèle d'Ostwald peut être utilisé (**Durán, 2015**). **Ratkovich et al. (2013)** ont relevé l'importance d'éviter d'utiliser des modèles avec davantage de paramètres que nécessaire (par exemple utiliser un modèle à trois paramètres alors qu'un modèle à deux paramètres est suffisant pour reproduire le comportement rhéologique de la boue activée), sous peine de risquer de perdre en capacité prédictive du modèle en utilisant des paramètres non pertinents.

En plus du comportement non newtonien rhéo-fluidifiant, les boues activées peuvent présenter un comportement thixotrope, c'est-à-dire que la viscosité apparente dépend également du temps, et que pour un même taux de cisaillement, différentes contraintes de cisaillement peuvent être mesurées selon les conditions de la mesure. La présence de bactéries filamenteuses peut expliquer la thixotropie de certaines boues activées (**Tixier et al., 2003**). Pour ce type de boues activées, les mesures de rhéologie doivent être faites en appliquant un taux de cisaillement constant, jusqu'à ce qu'une valeur stable de viscosité apparente soit atteinte (**Forster, 2002**).

Une corrélation de dépendance de la viscosité apparente des boues activées en fonction de la température a été mise en évidence par **Yang et al. (2009)**, valable pour une concentration en matières en suspension de 0 à 18,7 g L⁻¹. La viscosité apparente diminue avec l'augmentation de la température, la température est un paramètre non négligeable dans les mesures rhéologiques, ainsi celles-ci doivent être effectuées dans la mesure du possible à une température constante.

Le Tableau 1-1 regroupe les propriétés rhéologiques des boues mesurées par (**Durán, 2015**) :

Tableau 1-1 : Evolution des indices de consistance et d'écoulement et de la gamme de viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement pour des boues activées de différentes concentrations en MES (Durán, 2015)

C_{MES} (g/L)	2,3	3	4	5	6,1	6,4	7,9	8,6	10,2
K	0,002	0,0019	0,0116	0,0087	0,0257	0,0289	0,0741	0,0656	0,1209
n	0,909	0,938	0,677	0,732	0,605	0,588	0,488	0,480	0,441
$\dot{\gamma}(s^{-1})$	65-363	55-393	56-400	51-384	59-394	57-390	103-383	49-392	62-401
μ_{app} (mPa s)	1,62- 1,29	1,62- 1,34	3,32- 1,71	3,28- 1,77	5,36- 2,45	5,53- 2,54	6,9-3,55	9,4-2,9	13,22- 4,33

Plus les boues sont concentrées en MES, plus le caractère rhéo-fluidifiant sera marqué, ce qui se traduit par une diminution de l'indice d'écoulement n avec l'augmentation de la concentration en MES (ou de manière équivalente, une augmentation de la viscosité apparente avec la concentration en MES, à taux de cisaillement fixé). Ainsi, pour les boues les plus concentrées (10,2 g L⁻¹), la viscosité apparente peut atteindre jusqu'à 13 mPa s à faible taux de cisaillement.

La concentration en MES est le principal paramètre impactant la rhéologie des boues activées (**Jin et al., 2006; Rosenberger et al., 2002; Seyssiecq et al., 2003; Tixier et al., 2003; Yang et al., 2009**), mais il existe également d'autres paramètres ayant un impact, tels que les propriétés des flocs biologiques (taille, cohésion, densité, structure) (**Durán, 2015; Tixier et al., 2003**). Ainsi, pour des boues activées ayant des concentrations en MES similaires mais ayant une origine différente, des différences de comportement rhéologique peuvent être observées, et ces différences peuvent être dues à des différences de propriétés des flocs. En revanche, **Durán (2015)** n'a pas relevé d'impact des propriétés physico-chimiques de la phase dissoute (tensioactifs, tension superficielle, cations) sur les propriétés rhéologiques des boues activées dans les gammes de concentration observées.

1.4.6 Impact de la rhéologie sur le transfert de matière

Durán (2015) a mis en évidence, avec des mesures de rhéologie sur des boues activées provenant de différentes StaRRE d'une part, et des mesures hydrodynamiques et de transfert de matière en colonne à bulles sur ces mêmes boues activées d'autre part, un lien entre les propriétés physico-chimiques des boues activées (notamment leur concentration en MES) et le transfert de matière, et plus spécifiquement l'impact de la rhéologie des boues (essentiellement contrôlée par la concentration en MES) sur le transfert de matière. Etant donné que les propriétés rhéologiques n'ont pas été mesurées dans les mêmes conditions de cisaillement que celles ayant lieu dans la colonne, le cisaillement moyen dans la colonne a été estimé selon la corrélation décrite dans **Sánchez Pérez et al. (2006)** (voir 1.4.8). Il en a résulté l'établissement d'une corrélation empirique d'évolution du coefficient de transfert de matière global en fonction des conditions opératoires (viscosité apparente et vitesse superficielle de gaz), mettant en évidence l'impact de la rhéologie des boues sur le transfert de matière.

$$K_L a_{20} = A \times j_G^B \times \mu_{app}^C \quad (1.85)$$

Avec A, B et C des paramètres dépendant du système de diffusion de bulles utilisé (fines bulles ou grosses bulles). Les valeurs de A, B et C sont respectivement de 0,0284, 0,81 et -0,48 pour le diffuseur fines bulles, et 0,0124, 0,76 et -0,43 pour le diffuseur grosses bulles (**Durán, 2015**). Cette corrélation traduit l'augmentation du coefficient de transfert de matière global avec la vitesse superficielle de gaz, ainsi que la diminution de ce coefficient avec l'augmentation de la viscosité apparente de la boue activée, pour une vitesse superficielle de gaz constante. Cette dépendance du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz et de la viscosité apparente du fluide est également décrite dans **Garcia-Ochoa and Gomez (2009)**. De même, cette corrélation est en accord avec la review de **Seyssiecq et al., (2003)** qui indique que le coefficient de transfert de matière global en fluide non newtonien évolue avec la viscosité apparente selon une loi puissance :

$$K_L a \propto \mu_{app}^{-C} \quad (1.86)$$

Avec des valeurs de C comprises entre 0,25 et 0,84.

Durán (2015) a également établi une corrélation de facteur alpha en fonction de la viscosité apparente de la boue activée, pour une faible charge et avec le diffuseur fines bulles :

$$\alpha = \mu_{app}^{-0,49} \quad (1.87)$$

La perturbation du transfert de matière avec l'augmentation de la viscosité apparente est ainsi mise en évidence, avec une diminution du coefficient de transfert de matière global et donc du facteur alpha.

Cette corrélation est similaire à celle obtenue par **Krampe and Krauth (2003)**, avec des mesures de transfert en colonne à bulles pour des boues ayant des concentrations en MES allant de 8 à 28 g L⁻¹. Le taux de cisaillement moyen dans la colonne a été estimé à 40 s⁻¹, et la variation de facteur alpha avec la viscosité apparente à un taux de cisaillement à 40 s⁻¹ est donnée par

$$\alpha = \mu_{app}^{-0,456} \quad (1.88)$$

Néanmoins, cette corrélation n'est valable que pour un taux de cisaillement de 40 s⁻¹, alors que celle de **Durán (2015)** est valable pour une gamme de cisaillement plus élargie (entre 40 et 400 s⁻¹).

1.4.7 Fluides modèles visqueux

La gomme xanthane (XG) est un fluide modèle largement utilisé, dont la similitude de comportement rhéologique avec celui des boues activées a été prouvée (**Cao et al., 2016**). Il s'agit d'un polysaccharide utilisé comme épaississant dans l'industrie agroalimentaire, se présentant sous la forme d'une poudre soluble dans l'eau. Le comportement rhéologique de la gomme xanthane est non newtonien rhéo-fluidifiant et peut être décrit par le modèle d'Ostwald (**Xu et al., 1996**). Le Tableau 1-2 regroupe, pour différentes références de la littérature, les valeurs d'indice de consistance et d'écoulement mesurées pour des solutions de gomme xanthane de différentes concentrations. **Margaritis (1999)** a observé qu'au-delà d'une concentration de 0,133% massique, la solution de gomme xanthane devient opaque, cette opacité étant vraisemblablement due à des débris cellulaires microbiens.

Tableau 1-2 : Evolution des indices de consistance et d'écoulement de la gomme xanthane en fonction de la concentration massique pour différentes données de la littérature

Concentration XG (% massique)	Indice de consistance K (Pa s ⁿ)	Indice d'écoulement n (-)	Référence
0,036	0,013	0,738	(Margaritis, 1999)
0,05	0,0239	0,682	(Margaritis, 1999)
0,05	0,072	0,515	(Sun et al., 2015)
0,1	-	0,47	(Xu, 2019)
0,1	0,124	0,485	(Sun et al., 2015)
0,1	0,0867	0,55	(Margaritis, 1999)
0,1	0,10	0,52	(Fransolet et al., 2005)
0,23	0,5749	0,32	(Vélez-Cordero and Zenit, 2011)

Ainsi, pour reproduire le comportement rhéologique d'une boue activée, une solution modèle de gomme xanthane avec une concentration massique inférieure ou égale à 0,1 % semble pertinente

(indice d'écoulement n compris entre 0,5 et 1). **Amaral et al. (2018)** ont utilisé des solutions de gomme xanthane de concentrations 0,2 et 0,8 kg m⁻³ (soit 0,02 et 0,08% massique), pour reproduire les comportements rhéologiques de boues activées de concentrations respectives en MES de 5 et 10 g L⁻¹.

Un autre fluide modèle rapporté dans la littérature est le Carbopol, qui est un fluide non newtonien avec un comportement viscoplastique (**Coussot et al., 2009; Curran et al., 2002; Gabelle et al., 2013**). Le Carbopol est un fluide modèle pertinent pour reproduire le comportement rhéologique des boues digérées (**Eshtiaghi et al., 2012**).

Le CMC (Carboxyméthyl cellulose) est un polysaccharide ayant un comportement non newtonien rhéo-fluidifiant, décrit par le modèle d'Ostwald (**Li et al., 2012; Margaritis, 1999; Tzounakos et al., 2004**). Ce comportement rhéologique est similaire à celui mesuré avec des boues digérées, pour des valeurs de cisaillement élevées (**Eshtiaghi et al., 2012**).

Le PAAm (polyacrylamide de méthyle) est un fluide ayant un comportement viscoplastique (**Jung et al., 2016; Xu, 2019**).

Le Breox est un polymère d'éthylène glycol et de propylène glycol, utilisé essentiellement comme lubrifiant dans l'industrie alimentaire et pharmaceutique, ayant un comportement visqueux newtonien (**Butler et al., 2018; Laupsien et al., 2019; Xu, 2019**). Il a l'avantage d'être stable chimiquement et peu sensible à l'évaporation.

1.4.8 Estimation du taux de cisaillement en réacteur aéré et en colonne à bulles

Comme cela a été présenté dans les parties précédentes, la viscosité apparente dans le cas d'un fluide non newtonien rhéo-fluidifiant n'est pas constante et dépend du taux de cisaillement appliqué, qui n'est pas le même dans les conditions de mesure de la viscosité et dans les conditions de la mesure du transfert de matière, en colonne à bulles par exemple. Il est alors nécessaire d'estimer le taux de cisaillement dans les conditions du transfert, résultant des conditions d'injection de la phase aérée.

D'après **Sánchez Pérez et al. (2006)**, la dissipation d'énergie par unité de volume en colonne à bulles ou en cuve agitée dépend de la contrainte de cisaillement et du taux de cisaillement selon :

$$\frac{P}{V} = \tau \dot{\gamma} \quad (1.89)$$

Avec P la puissance dissipée (W) et V le volume du réacteur (m³).

Pour un fluide non newtonien ayant un comportement rhéologique décrit par la loi d'Ostwald, on a

$$\tau = K \times \dot{\gamma}^n \quad (1.90)$$

Et par conséquent

$$\dot{\gamma} = \left(\frac{1}{K} \times \frac{P}{V} \right)^{\frac{1}{n+1}} \quad (1.91)$$

En colonne à bulles, la dissipation d'énergie par unité de volume est liée à la masse volumique du liquide et à la vitesse superficielle de gaz selon **(Sánchez Pérez et al., 2006)** :

$$\frac{P}{V} = \rho_L \times g \times j_g \quad (1.92)$$

Ce qui donne

$$\dot{\gamma} = \left(\frac{\rho_L \times g \times j_g}{K} \right)^{\frac{1}{n+1}} \quad (1.93)$$

Le taux de cisaillement en colonne à bulles dépend ainsi des propriétés physico-chimiques (indices K et n, masse volumique), ainsi que des conditions opératoires (vitesse superficielle de gaz). Plus la vitesse superficielle de gaz est élevée, plus le taux de cisaillement est élevé.

1.5 Conclusions et positionnement des travaux de thèse

Le traitement par boues activées au sein des StaRRE met en jeu des mécanismes de transfert gaz-liquide complexes, impactés par la composition physico-chimique du liquide et par la présence de la phase solide. Les écoulements gaz-liquide ayant lieu dans les bassins d'aération de StaRRE peuvent être représentés de manière pertinente dans des colonnes à bulles, du fait que ces dernières puissent fonctionner dans des gammes équivalentes en termes de hauteur de liquide (plusieurs mètres), de rétention gazeuse (inférieure à 5%) et de vitesse superficielle de gaz (inférieure à 0,01 m s⁻¹). Du point de vue hydrodynamique, le régime de bulle dans ces conditions est homogène, et l'écoulement gaz-liquide peut être considéré comme étant mono-dimensionnel du point de vue de la modélisation de l'hydrodynamique et du transfert de matière.

De manière plus générale, les mécanismes de transfert gaz liquide peuvent être décrits par différents modèles de transfert, selon si la bulle est entièrement propre à interface renouvelable (modèle de Higbie) ou entièrement contaminée à interface totalement rigide (modèle de Frössling). Le diamètre de bulle et la rétention gazeuse définissent l'aire interfaciale des bulles et sont par conséquent des paramètres essentiels impactant le transfert. Ils dépendent des conditions opératoires du système (vitesse superficielle de gaz, géométrie et hauteur d'eau, système de diffusion) mais également des propriétés physico-chimiques du liquide (tension superficielle, viscosité). Ces dernières influencent également le niveau de contamination des bulles, qui est caractérisé par l'angle de contamination. La combinaison du coefficient de transfert côté liquide et de l'aire interfaciale des bulles permet de définir le coefficient de transfert de matière global K_{La}, qui est mesuré expérimentalement à l'échelle globale, sans qu'il puisse y avoir de distinction sur l'impact de l'un ou l'autre des deux paramètres le constituant.

En boues activées, l'impact combiné des propriétés physico-chimiques de la phase dissoute et des solides en suspension perturbe le transfert, ce qui se traduit par un coefficient de transfert de matière global $K_L a$ inférieur à celui qui serait obtenu en eau claire dans les mêmes conditions. Cet impact négatif sur le transfert de matière résulte notamment de la viscosité plus élevée que celle de l'eau claire, avec un comportement non-newtonien rhéo-fluidifiant, lié à la présence des solides en suspension. La présence de tensioactifs dans la phase dissoute est également susceptible d'impacter négativement le transfert, avec l'adsorption de molécules de tensioactifs à la surface des bulles et par conséquent une réduction du coefficient de transfert de matière côté liquide k_L et une augmentation de l'angle de contamination.

Par conséquent, il est pertinent de représenter les fluides complexes que sont les boues activées par des fluides modèles ayant des caractéristiques équivalentes, en prenant en compte l'impact de la viscosité d'une part, et des tensioactifs de la phase dissoute d'autre part, sur le transfert. Il existe des fluides modèles non newtoniens rhéo-fluidifiants (gomme xanthane, Carbopol, CMC, PAAm), et également des fluides modèles newtoniens (Breox), pouvant être représentatifs de conditions opératoires spécifiques du fait de la viscosité constante. Pour des fluides non newtoniens, il est pertinent d'estimer le taux de cisaillement dans les conditions de mesure du transfert afin d'en déduire la viscosité apparente associée.

Chapitre 2 : Matériel et méthodes

L'objectif des expérimentations est la mesure de transfert d'oxygène (incluant mesures hydrodynamiques de distribution de taille de bulle, de rétention gazeuse locale et globale, et de transfert avec des mesures de coefficient de transfert $K_L a$ global) en fluides modèles représentatifs des boues activées, dans une colonne à bulles. Puisque la visualisation de bulles en boue activée est délicate voire impossible du fait de l'opacité du milieu, il s'agit de visualiser des bulles d'air dans différents fluides modèles transparents, de propriétés physico-chimiques comparables aux boues activées (en termes de viscosité/propriétés rhéologiques et de tensioactifs présents dans la phase liquide), pour pouvoir ensuite extrapoler les résultats de transfert obtenus au cas de boues activées. Dans un premier temps, le dispositif expérimental est présenté, avec la colonne à bulles, les diffuseurs utilisés et équipements associés, puis les méthodes de mesure des paramètres caractéristiques de l'hydrodynamique et du transfert d'oxygène sont indiquées : rétention gazeuse globale et locale, taille des bulles et paramètres associés, calcul de l'aire interfaciale des bulles, mesure du coefficient de transfert global $K_L a$, et calcul du coefficient de transfert côté liquide K_L . Par la suite, les fluides modèles utilisés sont présentés, ainsi que les méthodes de caractérisation de leurs propriétés physico-chimiques (tension superficielle et rhéologie). Enfin, le principe de l'outil de modélisation 1D utilisé pour l'interprétation des données est succinctement présenté.

2.1 Dispositif expérimental

2.1.1 Colonne à bulles et diffuseurs utilisés

Les mesures ont été réalisées dans une colonne à bulles parallélépipédique en plexiglas, de hauteur 3 m, largeur 30 cm et profondeur 10 cm. Le pilote est de base rectangulaire afin de caractériser l'hydrodynamique de la phase dispersée par technique ombroscopique (voir partie 2.2.2).

Un schéma et une photo de la colonne sont présentés sur les Figure 2-1 et Figure 2-2, respectivement :

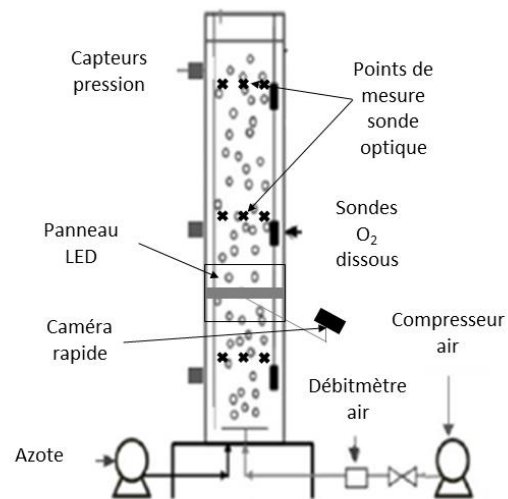


Figure 2-1 : Schéma de la colonne à bulles et des équipements associés



Figure 2-2 : Photo de la colonne et du dispositif expérimental

La hauteur de liquide nominale est fixée à 2,90 m (soit un volume de liquide de 87 L). Elle permet ainsi d'analyser l'impact des effets de pression hydrostatique sur la taille des bulles, la rétention gazeuse et sur le transfert de matière (appauvrissement des bulles en oxygène), même si elle demeure inférieure aux hauteurs d'eau rencontrées dans les bassins d'aération de StaRRE (généralement ≥ 5 m).

Deux diffuseurs fines bulles différents sont utilisés afin d'étudier l'impact de l'hétérogénéité de la distribution du gaz sur l'hydrodynamique et le transfert dans la colonne à bulles :

- Diffuseur capillaire (C) : Un diffuseur capillaire homogène inspiré de **Colombet et al. (2015)** a été conçu. Celui-ci consiste en un réseau de capillaires en inox, de diamètre interne 0,2 mm et de longueur 150 mm, répartis tous les 5 mm sur un support en plexiglas (soit 4,8 perforations par cm^2). La partie inférieure des capillaires se trouve dans une chambre d'homogénéisation de pression sur laquelle est branché le tuyau d'alimentation en air. La Figure 2-3 représente une photo du diffuseur mis en place sur la colonne.



Figure 2-3 : Photo du diffuseur capillaire mis en place dans la colonne

- Diffuseur membrane (M) hétérogène : Un diffuseur membranaire fines bulles en EPDM (membrane polymère) adapté à partir d'un diffuseur neuf, équivalent à ceux installés dans les bassins d'aération des StaRRE pour les procédés de traitement biologique aérobies. Ce type de diffuseur permet d'obtenir une distribution en tailles de bulles semblable à celles qui sont obtenues au sein des bassins industriels de traitement des eaux. Une membrane neuve issue d'un diffuseur tube a été découpée afin de pouvoir être adaptée à la section de la colonne (voir Figure 2-4). Le nombre de perforations est de 16 par cm^2 de surface.



Figure 2-4 : Photo du diffuseur membrane utilisé

2.1.2 Equipements associés

Les instruments de mesure relatifs à la colonne à bulles ainsi que les variables mesurées sont indiqués dans le Tableau 2-1. Pour l'ensemble des variables à l'exception de la rétention gazeuse locale et la taille et forme des bulles, l'acquisition a été réalisée à l'aide du logiciel LABVIEW au pas de temps d'une seconde.

Tableau 2-1 : Instruments de mesure équipant la colonne à bulles

Variable suivie	Système de mesure	Emplacement	Unité
Température du liquide (T)	Sonde Pt100	Haut de colonne, profondeur de 5 cm	°C
Température de l'air injecté (T_{air})	Sonde Pt100	Sortie du débitmètre	°C
Pression hydrostatique à trois hauteurs	Capteurs de pression hydrostatique (Keller PR41X 0-300 mbar +/- 0,2%)	3 capteurs en paroi de colonne (hauteurs 10 cm, 150 cm et 282 cm)	bar
Débit d'air injecté	Débitmètre massique à fil chaud (SMC)	En amont de l'injection dans la colonne	SL min ⁻¹
Concentration d'oxygène dissous dans le liquide	Sondes à oxygène de type Clark	3 sondes disposées à trois hauteurs d'eau (1,10 / 1,90 / 2,80 m ou 0,70 / 1,66 / 2,40 m)	mg L ⁻¹
Rétention gazeuse locale	Sonde optique A2 Photonic Sensors + logiciel associé	3 hauteurs de mesure (0,80 / 1,66 / 2,35 m) ; 3 largeurs de mesure (5, 15, 25 cm à partir de la paroi gauche	-

Taille et forme des bulles	Caméra rapide acA2040-90um (90 fps), panneau LED et système de rails, logiciel PylonViewer	3 hauteurs de mesure : 0,70 / 1,66 / 2,70 m	-
----------------------------	--------------------------------------------------------------------------------------------	---------------------------------------------	---

Alimentation en air

La colonne à bulles est alimentée en air atmosphérique par l'intermédiaire d'un compresseur à piston oscillant (Aqua Assainissement, 87R14710N270X). Le débit d'air est mesuré à l'aide d'un débitmètre massique à fil chaud (série PFM-725S C8 FAS, marque SMC). Le débit d'aération indiqué par le débitmètre massique est donné dans les conditions standard (20°C et 1 atm) en SL min⁻¹ et ramené dans les conditions normales de température et de pression (0°C et 1 atm) selon :

$$Q_{g,N} = Q_g \times \frac{T_0}{T_s} \times \frac{60}{1000} \quad (2.1)$$

Avec $Q_{g,N}$ le débit dans les conditions normales de température et de pression (Nm³ h⁻¹), Q_g le débit dans les conditions standard (SL min⁻¹), T_s la température correspondant aux conditions standard (293,15 K) et T_0 la température correspondant aux conditions normales (273,15 K).

La vitesse superficielle du gaz dans les conditions normales est donnée par :

$$j_{g,N} = \frac{Q_{g,N}}{S_{colonne}} \times \frac{1000}{3600} \quad (2.2)$$

Avec $j_{g,N}$ la vitesse superficielle de gaz (Nmm s⁻¹) et $S_{colonne}$ la section droite de la colonne (0,03 m²).

Les débits d'aération alimentant la colonne pour l'ensemble des mesures ont été fixés à :

- Pour le diffuseur membrane : 1 / 5 / 10 SL min⁻¹, **soit des vitesses superficielles d'environ 0,5 ; 2,6 et 5,2 Nmm s⁻¹** ;
- Pour le diffuseur capillaire : 2 / 5 / 10 SL min⁻¹, **soit des vitesses superficielles d'environ 1,0 ; 2,6 et 5,2 Nmm s⁻¹**, le débit de 1 SL min⁻¹ ne permettant pas de réaliser une distribution homogène du gaz sur l'ensemble de la colonne.

A noter cependant, pour un des fluides étudiés (Eau additionnée de Polyoxyéthylène (23) Lauryl Ether), le débit maximal d'aération est fixé à 7 SL min⁻¹ (**3,6 Nmm s⁻¹**), afin de pallier à la formation trop importante de mousse en surface et ainsi éviter les débordements.

2.2 Mesure des paramètres caractéristiques de l'hydrodynamique et du transfert d'oxygène

2.2.1 Mesure de la rétention gazeuse

2.2.1.1 Mesure de la rétention gazeuse locale

La rétention gazeuse locale est mesurée à l'aide d'une sonde optique A2 Photonic Sensors ainsi que le logiciel d'acquisition associé.

La sonde (pointe de taille 20 μm) est connectée à un boîtier électronique par une fibre optique à travers laquelle un rayon laser est émis. La mesure est basée sur la différence d'indice optique entre le liquide et l'air, ce qui entraîne des variations de tension détectées au passage des bulles au niveau de la pointe de la sonde. L'intégration des niveaux de tension sur une plage de temps de 180 secondes (ou 300 secondes selon les mesures) permet ainsi d'obtenir la rétention gazeuse moyenne en un point spécifique de la colonne. La sonde est orientée vers le bas lors des mesures.

La Figure 2-5 montre un exemple de signal de tension, avec le niveau le plus bas correspondant au liquide et le niveau le plus élevé correspondant au passage d'une bulle au niveau de la pointe de la sonde.

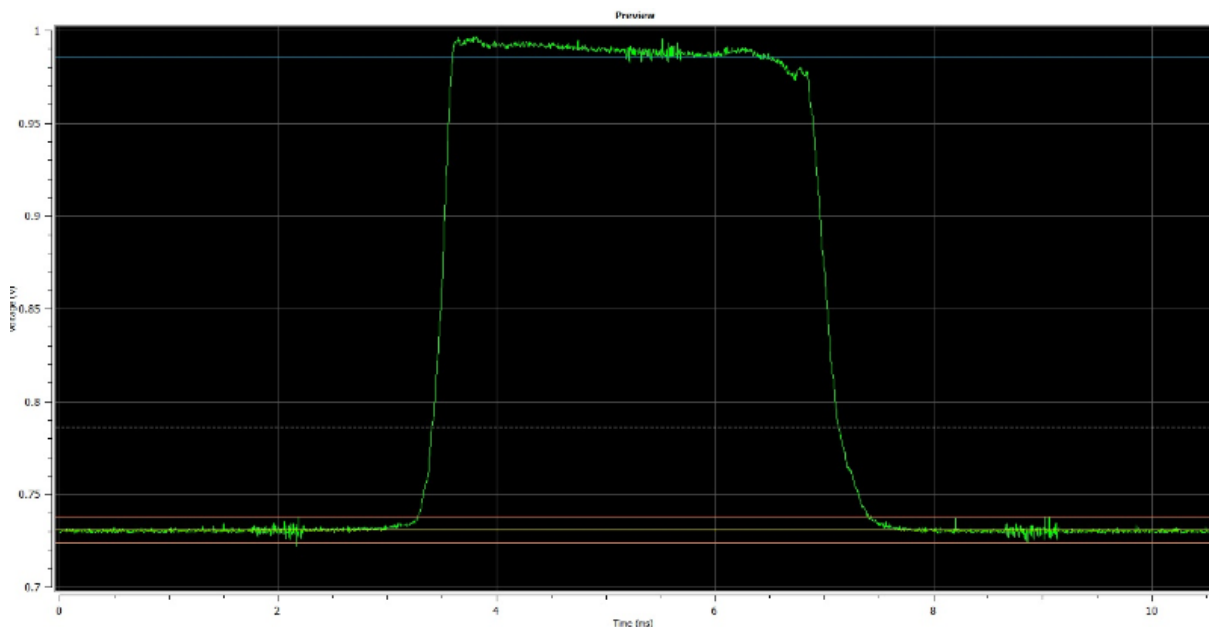


Figure 2-5 : Signal de tension détecté par la sonde optique en fonction du temps au passage d'une bulle (ligne bleue : niveau de gaz ; ligne jaune : niveau de liquide)

Les mesures sont réalisées en neuf points différents de la colonne : à 3 hauteurs (80 cm, 166 cm et 235 cm) et à trois largeurs pour chaque hauteur (une mesure au centre de la colonne et une mesure à 5 cm des parois gauche et droite). Cela permet ainsi d'obtenir une cartographie de la rétention gazeuse locale au sein de la colonne, pour une condition opératoire donnée (diffuseur, fluide et débit donnés).

Les mesures de rétention gazeuse locale ont été réalisées à la vitesse superficielle de gaz intermédiaire de 2,6 Nmm s^{-1} pour chaque fluide ainsi qu'à 5,2 Nmm s^{-1} pour l'eau du réseau avec le diffuseur membranaire, et pour l'ensemble des trois débits d'aération pour chaque fluide avec le diffuseur capillaire (voir Tableau de synthèse des expériences présenté en Annexe 1). La Figure 2-6 montre un exemple de profil de rétention gazeuse locale obtenu avec de l'eau du réseau et le diffuseur membrane, et mesuré à 5,2 Nmm s^{-1} .

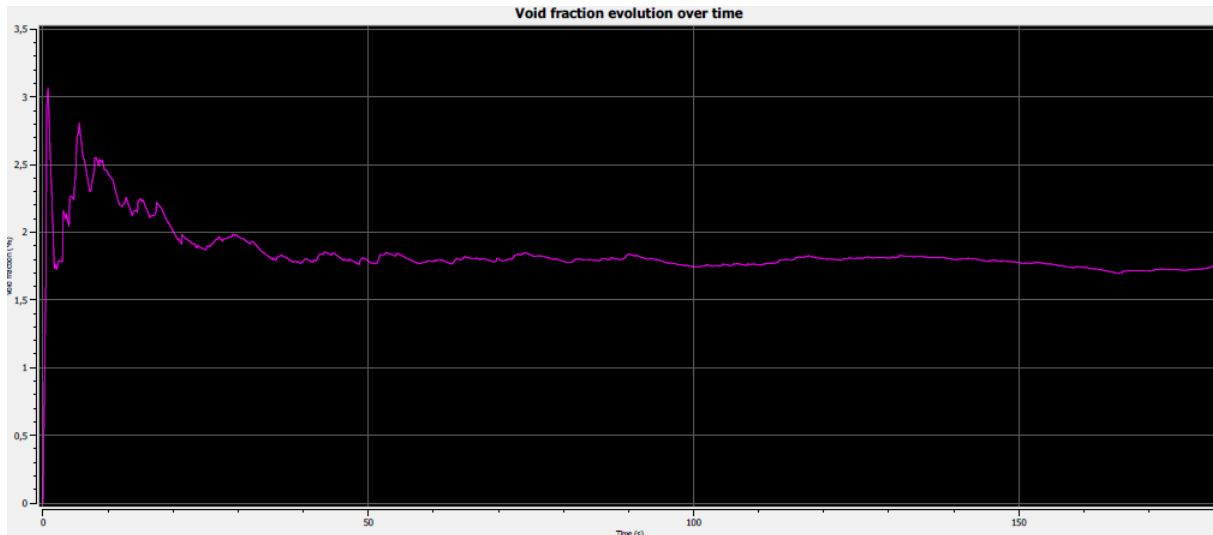


Figure 2-6 : Profil de rétention gazeuse locale pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane, à une vitesse superficielle de gaz de 5,2 Nmm s⁻¹

La convergence de la rétention gazeuse locale est obtenue après une durée de 180 secondes, avec une précision de +/- 5%.

Le tableau en annexe 14 présente, pour les mesures à la hauteur 166 cm au centre de la colonne, les valeurs de temps de convergence pour les différentes conditions, c'est-à-dire la durée au bout de laquelle l'écart entre la valeur instantée de rétention gazeuse et la valeur finale demeure inférieur à 5%. A noter que le temps nécessaire à la convergence diminue lorsque la vitesse superficielle de gaz augmente et que celle-ci n'est pas dépendante du type de fluide utilisé.

2.2.1.2 Mesure de la rétention gazeuse globale

Trois capteurs de pression (Keller, PR41X 0-300 mbar +/- 0,2%) sont disposés sur la paroi de la colonne aux hauteurs 10 cm, 150 cm et 282 cm. Ainsi, la pression hydrostatique dans la colonne est mesurée en condition aérée et en condition non-aérée (voir Tableau 2-1), et en considérant la masse volumique de l'air négligeable devant celle du liquide, la rétention gazeuse globale est donnée par

$$\varepsilon_G = \left(1 - \frac{\Delta P_{a\acute{e}ration}}{\Delta P_{sans\ a\acute{e}ration}}\right) \times 100 \quad (2.3)$$

Avec ε_G la rétention gazeuse globale (%), $\Delta P_{a\acute{e}ration}$ et $\Delta P_{sans\ a\acute{e}ration}$ les différences de pression hydrostatique en conditions respectivement aérée et non-aérée (bar). Le fait d'avoir trois capteurs de pression permet d'obtenir trois rétentions gazeuses globales : la rétention gazeuse globale sur l'ensemble de la colonne (ε_G global) et les rétentions gazeuses correspondant à la partie inférieure (ε_G Z1) et la partie supérieure (ε_G Z2) de la colonne.

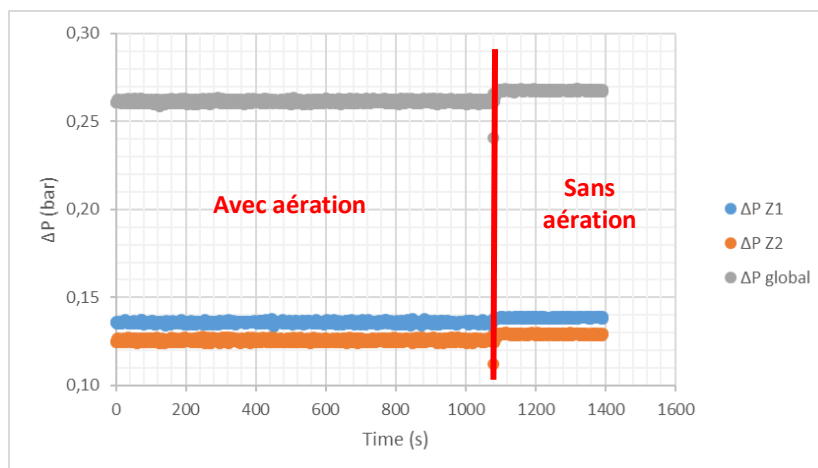


Figure 2-7 : Exemple de profil de ΔP mesuré en gomme xanthane à 0,02% massique avec le diffuseur membrane, à une vitesse superficielle de gaz de $5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$

La Figure 2-7 présente un exemple de profil de ΔP mesuré pour la gomme xanthane à 0,02% massique, à une vitesse superficielle de gaz de $5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$ et avec le diffuseur membrane. L'arrêt de l'aération est effectué au bout d'un temps d'environ 1100 s et entraîne une augmentation des ΔP mesurées, un saut de pression apparaissant au moment où l'aération est débranchée (points de ΔP global et ΔP Z2 apparaissant éloignés). Pour chaque condition opératoire (fluide, diffuseur et vitesse superficielle de gaz fixés), les mesures sont réalisées en triplicat et en parallèle des mesures de réoxygénation (voir 2.2.4) et de distributions de tailles de bulles (voir 2.2.2), afin de déterminer une valeur moyenne de ϵ_G Z1, ϵ_G Z2 et ϵ_G global par condition.

Le calcul d'incertitude sur la rétention gazeuse globale est présenté en Annexe 2. Le Tableau 2-2 montre, pour les trois vitesses superficielles de gaz en eau du réseau avec le diffuseur membrane, les erreurs relatives sur les rétentions gazeuses ϵ_G Z1, ϵ_G Z2 et ϵ_G global.

Tableau 2-2 : erreurs relatives sur les rétentions gazeuses ϵ_G Z1, ϵ_G Z2 et ϵ_G global pour l'eau du réseau

Condition opératoire	Valeur ϵ_G Z1 (%) / Erreur relative (%)	Valeur ϵ_G Z2 (%) / Erreur relative (%)	Valeur ϵ_G Global (%) / Erreur relative (%)
Eau du réseau / membrane/ 0,52 Nmm s^{-1}	0,16 / 672,5	0,22 / 187,1	0,19 / 203,3
Eau du réseau / membrane/ 2,60 Nmm s^{-1}	0,73 / 165,8	1,19 / 39,2	0,95 / 45,3
Eau du réseau / membrane/ 5,20 Nmm s^{-1}	1,69 / 71,0	2,18 / 21,4	1,92 / 22,3

L'erreur relative augmente drastiquement avec la diminution de la vitesse superficielle de gaz et donc de la rétention gazeuse. En effet, plus la rétention gazeuse est faible, et moins la différence entre les pressions mesurées pour les conditions aérée et non-aérée est marquée. En outre, l'erreur est la plus élevée pour la rétention gazeuse sur la partie inférieure de la colonne (ϵ_G Z1), en effet plus le capteur

de pression est situé à une profondeur élevée dans la colonne, moins la pression mesurée diffèrera entre les conditions aérée et non-aérée. A l'inverse, le capteur situé en haut de colonne est beaucoup plus exposé à la variation de hauteur d'eau et donc de pression entre les deux conditions.

A noter que les calculs précédents ont été faits en considérant une valeur fixe des pressions mesurées, correspondant à la valeur moyenne. En réalité, les valeurs de pressions instantanées fluctuent et un aspect temporel entre également en compte dans l'incertitude de mesure. Ainsi, les mesures sont effectuées sur un temps suffisamment long (égal à la durée de la réoxygénation pour la mesure avec aération, et au minimum égal à 300 secondes pour la mesure sans aération) afin de s'affranchir des effets temporels, pour pouvoir considérer que la valeur moyenne est représentative de la mesure.

2.2.2 Mesure de la taille des bulles et détermination des paramètres associés : excentricité et diamètres équivalents de bulles

Les mesures de taille et de forme des bulles sont effectuées à l'aide d'une caméra rapide à l'aide d'une technique d'ombroscopie (Colombet et al., 2011; Laupsien et al., 2019). Une source lumineuse (panneau LED PHLOX 300 x 220 mm) est ainsi positionnée en arrière-plan et les ombres des bulles sont visualisées par la caméra positionnée face à la colonne à une distance fixe de 43 cm.

La colonne à bulles a été conçue afin de favoriser l'application de cette technique de mesure :

- Le choix d'une colonne de section rectangulaire plutôt que circulaire permet de faciliter la prise d'images par cette technique : en effet cela permet d'éviter l'apparition d'objets aberrants (anomalies optiques) à proximité des parois, comme c'est le cas pour les colonnes cylindriques ;
- Le choix d'une profondeur de 10 cm permet d'éviter une trop grande superposition de bulles. En effet, la rétention gazeuse projetée, correspondant au rapport du volume qu'occuperaient les bulles en les assimilant à des cylindres de diamètre d_B et de hauteur égale à la profondeur de la colonne sur le volume total occupé par le liquide et le gaz, est donnée par (voir développement en Annexe 3) :

$$\varepsilon_{G,P} = \frac{3}{4} \times \frac{p}{\frac{d_B}{2}} \times \varepsilon_G \quad (2.4)$$

Avec $\varepsilon_{G,P}$ la rétention gazeuse projetée (%), p la profondeur de la colonne (m), d_B le diamètre de bulle (m) et ε_G la rétention gazeuse globale (%).

En considérant une rétention gazeuse globale au maximum égale à 2,5%, une profondeur de colonne de 10 cm, et un diamètre de bulle de 2,5 mm, on peut estimer une rétention gazeuse projetée d'environ 150%, soit une forte superposition. Pour des bulles de 3 mm avec une rétention gazeuse de 1%, la rétention gazeuse projetée est réduite à 50%, ce qui reste encore élevé en terme de superposition. En ce sens, le diamètre des bulles est calculé uniquement après traitement statistique des bulles qui sont nettes dans le plan focal (et dont le contour est parfaitement décrit), et plus la superposition est forte, plus ce nombre de bulles détecté est faible.

La Figure 2-8 représente un exemple de photo prise en Breox avec le diffuseur capillaire, pour une vitesse superficielle de gaz de $5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$ et à la hauteur de 270 cm. Dans ces conditions, la rétention gazeuse globale est de 2,5% et le diamètre équivalent en volume moyen est égal à 1,76 mm, ce qui représente une rétention gazeuse projetée de 213%. La superposition est alors à la limite envisageable pour une mesure correcte de distributions de tailles de bulles (291 bulles détectées au total sur l'ensemble des images pour cette condition de mesure).

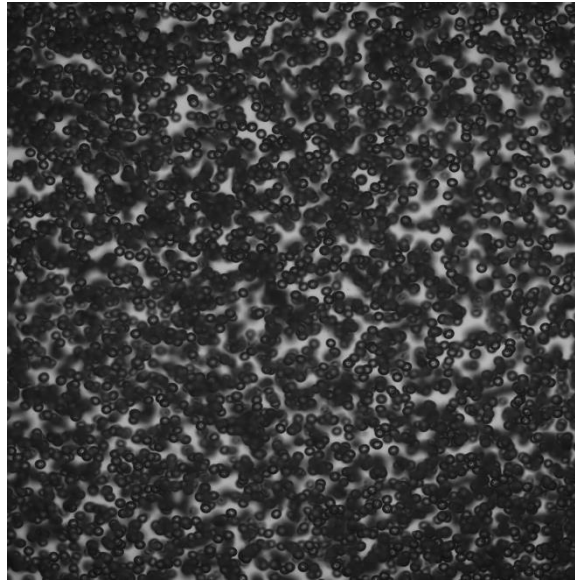


Figure 2-8 : Photo de bulles en Breox, à la vitesse superficielle d'aération de $5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$ et à la hauteur 270 cm pour le diffuseur capillaire

2.2.2.1 Dispositif expérimental de prise d'images

L'ensemble des spécificités du matériel de prise d'images est récapitulé dans le Tableau 2-3.

Tableau 2-3 : Caractéristiques techniques du matériel de prise d'image

Caractéristique	Valeur
Modèle de caméra	Basler acA2040 – 90 um (90 fps)
Nombre de pixels	2048 x 2048
Taille de l'image	100 +/- 1mm x 100 +/- 1mm
Fréquence d'acquisition	2 Hz
Durée d'acquisition	10 minutes
Temps d'exposition	30 μs
Objectif	Edmund Optics (f = 50 mm)
Intensité du filtre	0,6
Source lumineuse	Panneau LED PHLOX 300 x 220 mm
Logiciel de prise d'images	Pylon Viewer
Format d'image	12 bits (4096 niveaux de gris)

Afin d'obtenir une image de taille 100 x 100 mm et en lien avec les caractéristiques techniques de la caméra, l'objectif de celle-ci est placé à une distance de 43 cm de la paroi de la colonne à l'aide d'un banc permettant de régler la distance à la colonne (voir Figure 2-2).

Le panneau lumineux ne disposant pas de variateur d'intensité, cette dernière est trop importante à cette distance. Par conséquent, un filtre est positionné sur l'objectif afin de réduire cette intensité lumineuse. L'étalonnage de la taille de l'image est effectué à l'aide d'une feuille de papier millimétré placée sur la paroi de la colonne. Durant l'étalonnage, le temps d'exposition a été fixé à 300 μ s et la netteté de l'image a été ajustée en jouant sur le contraste de l'objectif, la distance objectif / paroi étant au besoin ajustée pour obtenir la bonne taille d'image.

Une durée d'acquisition d'images de 10 minutes à une fréquence de 2 Hz permet d'obtenir 1200 images par série de mesure, assurant ainsi un nombre suffisamment important de bulles dans le plan focal d'un point de vue statistique (291 à 108360 bulles détectées pour chacune des conditions de mesure).

Un système de rails permet de déplacer l'ensemble banc / caméra / objectif / filtre d'une part, et le panneau lumineux d'autre part, le long de la hauteur de la colonne. Des mesures de prise d'image ont ainsi été réalisées à trois hauteurs différentes (70 cm, 166 cm et 270 cm du fond de la colonne). Pour chaque condition de mesure, des photos dans les mêmes conditions avec la même fenêtre d'acquisition mais sans bulles sont également prises afin d'appliquer l'étape de « flat » du traitement d'images (voir 2.2.2.2) (Laupsien et al., 2019).

2.2.2.2 Méthode de traitement des images

2.2.2.2.1 PRINCIPE ET DESCRIPTION DU TRAITEMENT

Pour chaque série d'images, un traitement automatisé est effectué selon la méthode décrite dans **Laupsien et al. (2019)**. Il permet de trier les objets sur les images selon des gradients de niveaux de gris, afin d'éliminer les superpositions de bulles selon des critères prédéfinis, et ne garder que les bulles isolées et bien identifiées se trouvant dans le plan focal. La fenêtre d'acquisition a une taille de 100 x 100 mm pour une résolution de 2048 x 2048 pixels, ce qui correspond à une taille de pixel de 48,8 μ m.

La première étape du traitement consiste à appliquer un « flat » (ou « blanc ») sur chaque image, dans le but d'éliminer les inhomogénéités sur les images (poussières...) et de corriger les hétérogénéités de la source lumineuse. Ainsi, chaque image est divisée par l'image sans bulles, pixel par pixel, puis multipliée par son niveau de gris moyen. Ensuite, un filtre de niveaux de gris est appliqué, afin de faciliter l'identification des objets par gradient de niveaux de gris. Les images sont des images 12 bits, ce qui correspond à 4096 niveaux de gris. Pour déterminer la position exacte des interfaces gaz/liquide, le seuil de gradient de niveaux de gris est fixé à 0,6, soit 2457 niveaux de gris. Les images sont ensuite binarisées, avec 0 pour la phase liquide et 1 pour la phase gazeuse, et les éventuels trous présents dans les bulles sont comblés.

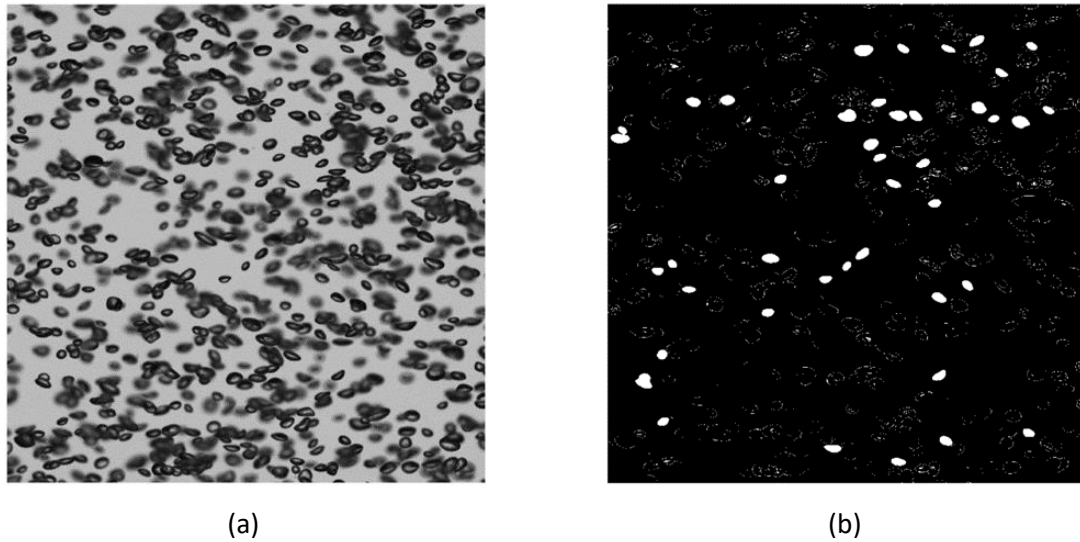


Figure 2-9 :Exemple de photo brute (a) et de photo après traitement (b)

Les Figure 2-9a et Figure 2-9b présentent un exemple de photo obtenue pour l'eau du réseau avec le diffuseur membrane et la même image à l'issue du traitement, respectivement. Les ellipses blanches sur l'image de droite correspondent aux bulles clairement identifiées dans le plan focal présentes sur l'image de gauche, qui sont retenues dans la suite du traitement d'image.

Des paramètres de contrôle additionnels sont ensuite appliqués aux objets, afin d'identifier les bulles isolées d'une part, et les objets correspondant à des superpositions de bulles d'autre part, qui sont par la suite éliminés.

2.2.2.2.2 PARAMETRES DE CONTROLE DU TRAITEMENT D'IMAGES

A partir des distributions brutes et avant analyse des distributions, un pré-traitement en 5 étapes est réalisé afin de supprimer les objets aberrants. Les étapes 1 à 3 sont décrites dans **Laupsien et al. (2019)**.

- **Etape 1 – Critère de bord** : Tous les objets avec au moins 10% de leur contour en contact avec le bord de l'image sont éliminés. Ces objets sont considérés comme coupés et ne peuvent pas être pris en compte dans le traitement d'image ;
- **Etape 2 – Critère de solidité** : La solidité d'un objet est définie comme le rapport entre le nombre de pixels contenus dans un objet après l'étape de binarisation (ellipses blanches dans la Figure 2-9b) et le nombre de pixels contenus dans le plus petit polygone convexe contenant ce même objet :

$$\text{Solidité} = \frac{S_{\text{objet}}}{S_{\text{polygone}}} \quad (2.5)$$

Tous les objets ayant une solidité strictement inférieure à 0,97 sont éliminés. Ils correspondent dans la plupart des cas à la superposition ou à la coalescence de deux bulles, ou encore à la rupture d'une bulle.

- **Etape 3 – Diamètre minimal identifiable** : Tous les objets ayant un diamètre équivalent en volume (voir partie 2.2.2.3) de taille inférieure à la longueur de 10 pixels (soit 0,488 mm) sont éliminés, cette taille correspondant à la limite de la précision de la mesure qui est fixée soit un maximum de 10% d'erreur relative ;
- **Etape 4 – Nombre aberrant d'objets identiques** : Tous les objets rigoureusement identiques (ayant un petit axe et un grand axe rigoureusement égaux) et apparaissant plus de 12 fois dans une distribution sont éliminés car ils correspondent à des poussières ou impuretés présentes dans la colonne et apparaissant dans chaque image pour une condition de mesure.
- **Etape 5 – Critère d'excentricité** : L'excentricité au sens « facteur de forme », notée E , correspond au rapport entre le grand axe et le petit axe d'une bulle et est définie dans la partie 1.3.2. Elle est égale à 1 dans le cas d'une bulle parfaitement sphérique et strictement supérieure à 1 dans le cas d'un ellipsoïde. Un filtre d'excentricité maximale égale à 3 est appliqué dans le traitement, tous les objets ayant une excentricité supérieure sont considérés comme une superposition de bulles ou un objet ne correspondant pas à une bulle (poussière ou impureté dans la colonne). En outre, tous les objets de taille inférieure à 1 mm ne peuvent physiquement pas avoir une excentricité supérieure à celle des bulles de diamètre 1 mm dans les mêmes conditions (une bulle millimétrique ou sub-millimétrique étant nécessairement sphérique ou quasi-sphérique). Par conséquent, tous les objets de taille inférieure à 1 mm et d'excentricité supérieure à celle des bulles de 1 mm (très proche de 1) sont écartés.

La Figure 2-10 représente, pour l'ensemble des bulles détectées et retenues après traitement, l'excentricité en fonction du diamètre équivalent en volume, pour l'eau du réseau avec le diffuseur membrane, à la hauteur 166 cm et à la vitesse superficielle de gaz de $0,52 \text{ Nm s}^{-1}$:

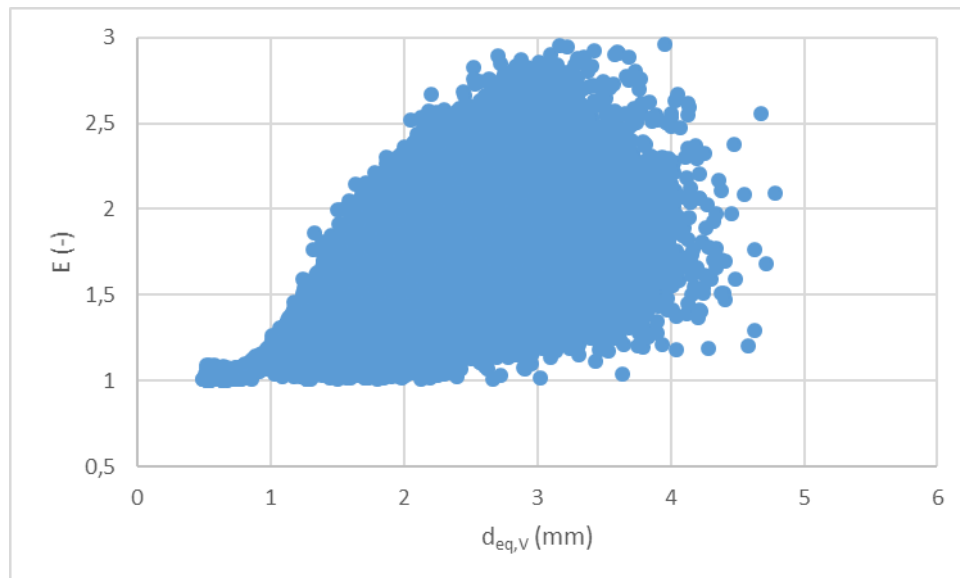


Figure 2-10 :Exemple de profil d'excentricité en fonction du diamètre équivalent en volume, en eau du réseau, avec le diffuseur membrane, à la hauteur 166 cm et à la vitesse superficielle de gaz de $0,52 \text{ Nm s}^{-1}$

2.2.2.3 Exploitation des distributions de taille de bulles

Pour chaque condition opératoire (diffuseur, fluide, débit d'aération et hauteur fixés), on obtient les valeurs de petit axe et de grand axe pour chaque bulle individuelle détectée et retenue à l'issue du traitement d'image. Cela permet de calculer le diamètre équivalent en volume de la bulle $d_{eq,V}$ (également appelé d_{10}), qui correspond au diamètre théorique d'une sphère ayant le même volume que la bulle considérée, selon :

$$d_{eq,V} = (a \times b^2)^{\frac{1}{3}} \quad (2.6)$$

Avec $d_{eq,V}$ le diamètre équivalent en volume de la bulle (mm), et a et b respectivement le petit axe (mm) et le grand axe (mm).

Le diamètre équivalent en surface de la bulle $d_{eq,S}$ correspond au diamètre théorique d'une sphère ayant la même surface extérieure que la bulle, et est donné par :

$$d_{eq,S} = \sqrt{\frac{S_{bulle}}{\pi}} \quad (2.7)$$

Avec S_{bulle} la surface extérieure de la bulle (mm²), calculée selon :

$$S_{bulle} = 2 \times \pi \times \left(\frac{b}{2}\right)^2 + \frac{\pi \left(\frac{a}{2}\right)^2}{e} \times \ln\left(\frac{1+e}{1-e}\right) \quad (2.8)$$

Avec e (-) l'excentricité au sens mathématique définie par :

$$e = \frac{\sqrt{\left(\frac{b}{2}\right)^2 - \left(\frac{a}{2}\right)^2}}{\frac{b}{2}} \quad (2.9)$$

La valeur de e vaut 0 pour une sphère et est strictement inférieure à 1 pour un ellipsoïde.

E (-) est l'excentricité au sens « facteur de forme » et est définie par :

$$E = \frac{b}{a} \quad (2.10)$$

L'excentricité E au sens « facteur de forme » vaut 1 pour une sphère et est supérieure à 1 pour un ellipsoïde. Dans la suite de ce travail, par souci de simplicité, l'excentricité au sens « facteur de forme » sera simplement appelée « excentricité ».

Les distributions en diamètres équivalents en volume et en surface ainsi qu'en excentricités peuvent ainsi être déterminées pour chaque condition opératoire, de même que les valeurs moyennes et les

écarts-types de ces paramètres. La Figure 2-11 montre un exemple d'histogramme de distribution de diamètre équivalent en volume et d'excentricité, pour l'eau du réseau avec le diffuseur membrane, à la vitesse superficielle de gaz de $2,6 \text{ Nm s}^{-1}$ et à la hauteur de 166 cm. Les distributions sont exprimées en pourcentage de bulles pour chaque classe de diamètre par rapport au nombre total de bulles de la distribution.

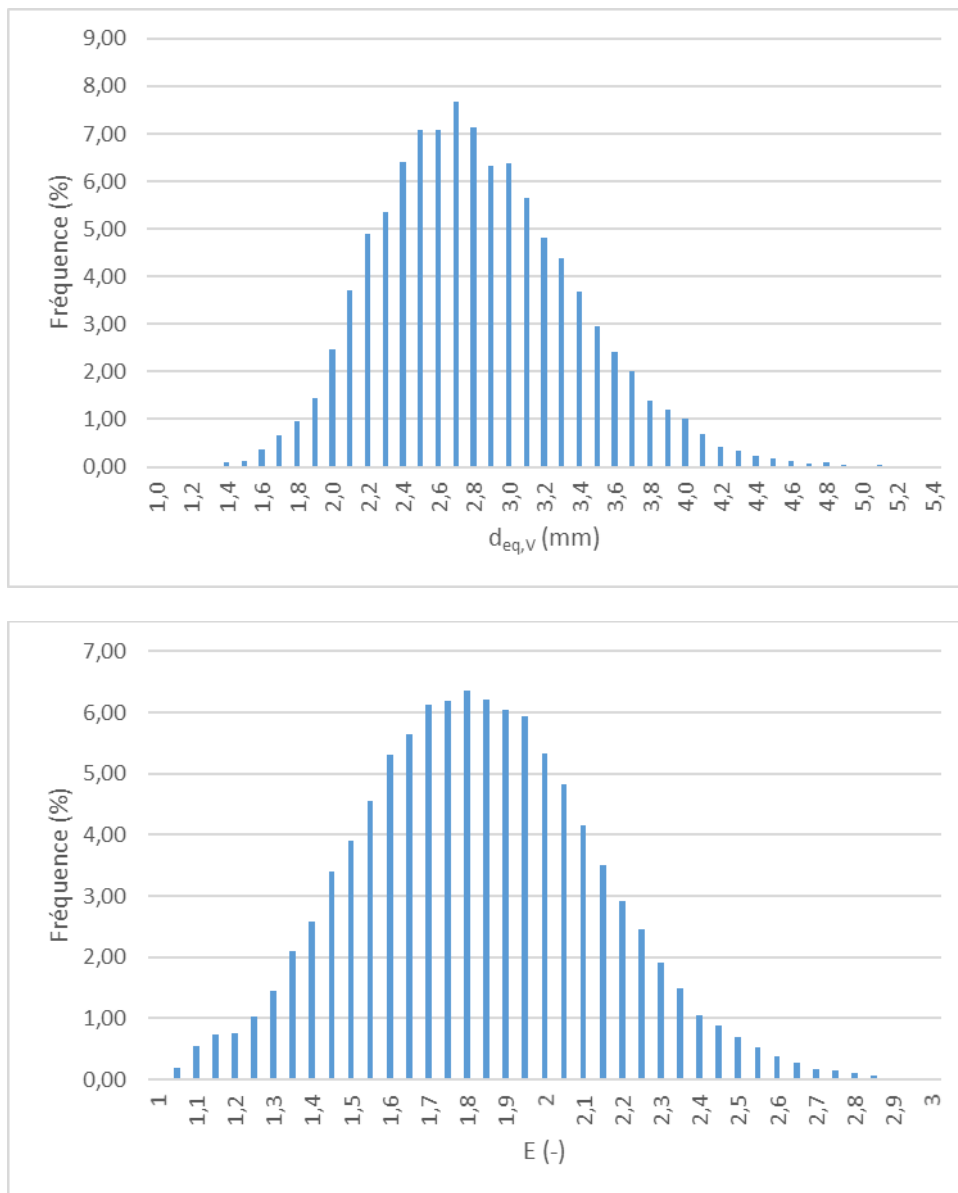


Figure 2-11 : Histogrammes de distribution de diamètre équivalent en volume et d'excentricité pour l'eau du réseau avec le diffuseur membrane, à une vitesse superficielle d'aération de $2,6 \text{ Nm s}^{-1}$ et à la hauteur de 166 cm

Le Tableau 2-4 récapitule les valeurs moyennes et écarts-types de ces deux distributions, ainsi que le nombre total de bulles détectées.

Tableau 2-4 : Valeurs moyennes et écarts-types des distributions présentées sur la Figure 2-11 et nombre de bulles détectées

Paramètre	Moyenne	Ecart-type	Nombre de bulles
$d_{eq,V}$ (mm)	2,77	0,56	24637
E (-)	1,80	0,31	

Le diamètre moyen de Sauter d_{32} (mm) est calculé selon :

$$d_{32} = \frac{\sum d_{eq,V}^3}{\sum d_{eq,S}^2} \quad (2.11)$$

Enfin le diamètre moyen équivalent en volume d_{30} (mm) est calculé selon :

$$d_{30} = \left(\sum d_{eq,V}^3 \right)^{\frac{1}{3}} \quad (2.12)$$

Avec $\langle \dots \rangle$ l'opérateur « moyenne ».

2.2.2.4 Mesures de taille de bulles sur la largeur de la colonne et validation expérimentale du dispositif de prise d'images

Avec l'eau du réseau et le diffuseur membrane, des mesures de distributions de tailles de bulles ont été réalisées à trois largeurs différentes dans la colonne (au centre et au bord des parois gauche et droite), aux trois débits d'aération et à la hauteur de 70 cm, afin de déterminer s'il existe ou non des hétérogénéités de tailles de bulles sur la largeur de la colonne, tous autres paramètres fixés par ailleurs. Les mesures ont été réalisées à la hauteur la plus faible car une hétérogénéité de distribution des bulles, due à des mouvements de fluide, a été constatée pour le diffuseur membrane (voir Figure 2-12), et s'il existe une hétérogénéité de distribution de taille de bulles, elle sera a priori la plus marquée à faible distance du diffuseur avant qu'il y ait une redistribution spatiale plus haut dans la colonne.



Figure 2-12 : Colonne à bulle en aération avec le diffuseur membrane, mettant en évidence un mouvement d'hétérogénéité de diffusion des bulles

Le Tableau 2-5 indique les valeurs moyennes et écarts-type des diamètres équivalents en volume et excentricités ainsi que le nombre de bulles, pour les trois différentes largeurs et pour chacune des trois vitesses superficielles de gaz. Les Figure 2-13 et Figure 2-14 montrent les distributions de diamètres équivalents en volume et d'excentricités pour les trois différentes largeurs à la vitesse superficielle de $2,60 \text{ Nmm s}^{-1}$, les distributions pour les deux autres vitesses superficielles de gaz présentant la même allure (voir Annexes 4 et 5).

Tableau 2-5 : Valeurs moyennes et écarts-type des diamètres équivalents en volume et excentricités et nombre de bulles détectées aux trois positions pour chaque vitesse superficielle de gaz

Vitesse de gaz (Nmm s^{-1})	Position	$d_{\text{eq},v}$ (mm)			E (-)		
		Moyenne	Ecart-type	N_{bulles}	Moyenne	Ecart-type	N_{bulles}
0,52	Gauche	1,98	0,37	51686	1,80	0,24	51686
	Centre	1,94	0,39	69898	1,78	0,27	69898
	Droite	1,91	0,38	62296	1,78	0,25	62296
2,60	Gauche	2,27	0,52	39427	1,77	0,31	39427
	Centre	2,28	0,49	29327	1,77	0,31	29327
	Droite	2,20	0,48	46894	1,78	0,30	46894
5,20	Gauche	2,58	0,57	15903	1,78	0,34	15903
	Centre	2,51	0,54	9678	1,75	0,33	9678
	Droite	2,47	0,55	17994	1,77	0,33	17994

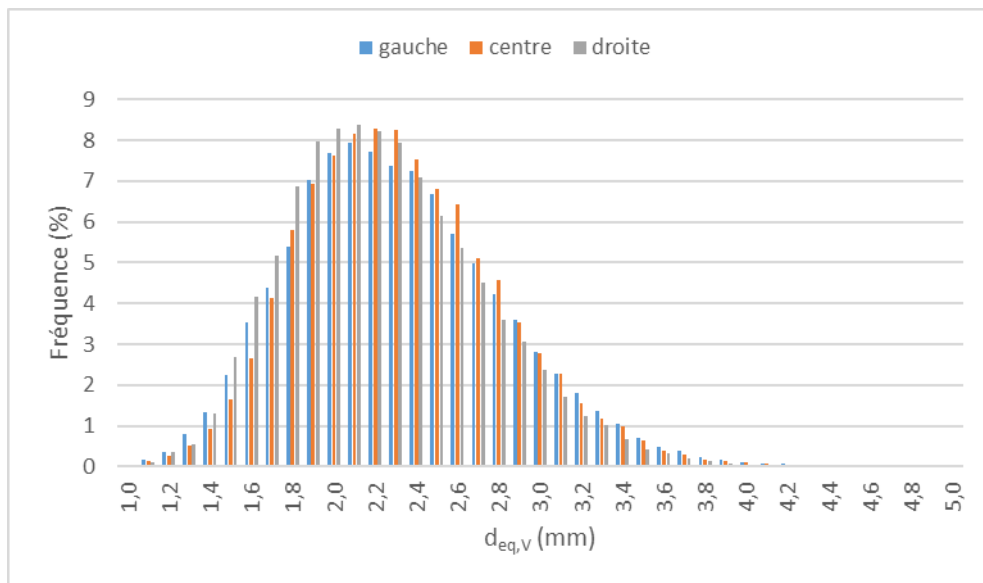


Figure 2-13 : Distribution de $d_{eq,V}$ en fonction de la largeur dans la colonne à 70 cm, en eau du réseau à $2,60 \text{ Nmm s}^{-1}$ pour le diffuseur membrane

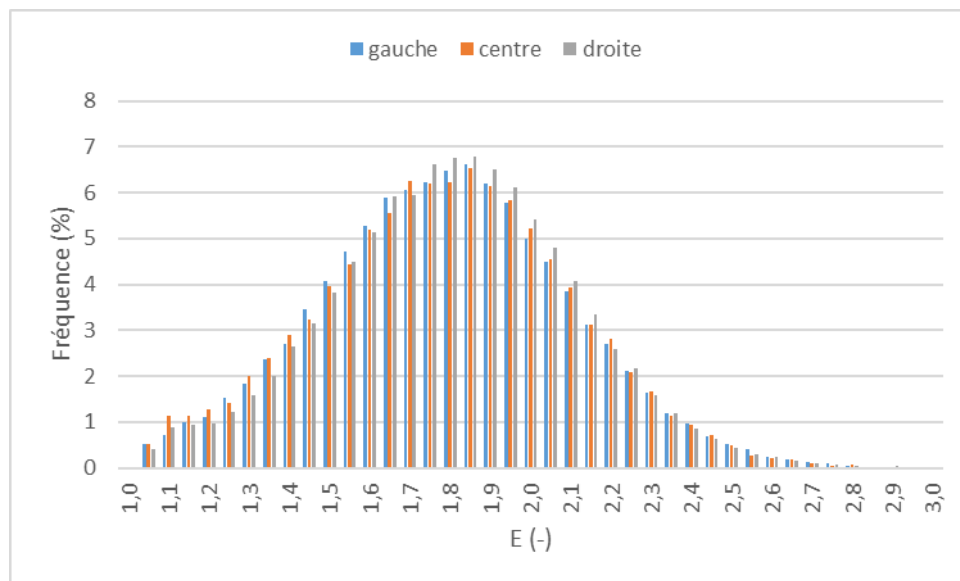


Figure 2-14 : Distribution d'excentricité en fonction de la largeur dans la colonne à 70 cm, en eau du réseau à $2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ pour le diffuseur membrane

Le diamètre de bulle et l'excentricité ne varient pas de manière significative sur la largeur de la colonne (variation inférieure à 4,5% pour le diamètre équivalent en volume et 1,7% pour l'excentricité). Par conséquent, la distribution de tailles de bulles peut être considérée comme homogène sur la largeur de la colonne, et l'apparente hétérogénéité de diffusion des bulles n'a pas d'incidence sur leur distribution en diamètre et en excentricité.

2.2.3 Détermination de l'aire interfaciale spécifique des bulles (a)

L'aire interfaciale des bulles ne pouvant être mesurée directement de manière expérimentale, elle est donnée par l'équation 2.13 :

$$a = \frac{6}{d_{32}} \times \varepsilon_G \times f_E \quad (2.13)$$

Avec a l'aire interfaciale spécifique des bulles (m^{-1}), d_{32} le diamètre de Sauter (m), ε_G la rétention gazeuse (-), et f_E (-) un facteur d'excentricité défini par (Cockx et al., 1997; Colombet et al., 2011) :

$$f_E = \frac{1}{2E^{1/3}} \times \left(E + \frac{\ln(E + \sqrt{E^2 - 1})}{\sqrt{E^2 - 1}} \right) \quad (2.14)$$

Avec E (-) l'excentricité moyenne des bulles. L'aire interfaciale est ainsi plus élevée pour des bulles ellipsoïdales par rapport à des bulles sphériques (à diamètre et rétention gazeuse équivalents), avec une majoration de 5% pour une excentricité de 1,7, de 10% pour une excentricité de 2 et de 25% pour une excentricité de 3. Dans le cas de fines bulles en eau claire, les bulles sont ellipsoïdales mais avec une excentricité moyenne inférieure à 2, par conséquent le facteur d'excentricité peut être négligé.

L'aire interfaciale peut ainsi être calculée de manière globale (avec le diamètre de Sauter moyenné sur la hauteur de la colonne et la rétention gazeuse globale) mais également de manière locale avec la rétention gazeuse locale et le diamètre de Sauter déterminés à une hauteur spécifique dans la colonne.

2.2.4 Mesure du coefficient de transfert d'oxygène global $K_L a$

Les mesures de coefficient de transfert de matière global $K_L a$ ont été réalisées selon la méthode de réoxygénation d'eau claire (NF-EN-12255-15, 2004). Trois sondes à oxygène dissous à membrane de type Clark sont placées dans la colonne, à des hauteurs de respectivement 1,10 / 1,90 / 2,80 m ou 0,70 m, 1,66 m et 2,40 m selon les expériences (voir Tableau de synthèse des expériences présenté en Annexe 1).

Au préalable, les sondes sont étalonnées en étant plongées dans un seau d'eau contenant du sulfite de sodium en excès pour le zéro, et dans un seau d'eau agité et saturé en oxygène dissous à l'aide d'un bulleur pour la concentration à saturation, cette dernière étant déterminée à la température de l'eau et à la pression atmosphérique de l'expérience à l'aide de la table de Mortimer.

L'aération est mise en fonctionnement au débit d'air souhaité jusqu'à obtenir la saturation en oxygène dissous dans la colonne, puis l'aération est débranchée et la colonne est désoxygénée à l'azote au même débit de travail afin de rester dans un régime d'écoulement stationnaire. Lorsque la concentration en oxygène dissous atteint zéro, l'aération est rebranchée et la remontée en oxygène dissous dans le liquide au cours du temps est suivie et modélisée selon l'équation 2.15 :

$$C(t) = C_S - (C_S - C_0) \times \exp(-K_L a \times t) \quad (2.15)$$

Avec C(t) la concentration en oxygène dissous dans le liquide mesurée à l'instant t (mg L^{-1}), C_S la concentration en oxygène dissous à saturation dans les conditions de la mesure (mg L^{-1}), C_0 la

concentration en oxygène dissous au début de la réoxygénation (mg L^{-1}), $K_L a$ le coefficient de transfert de matière global (s^{-1}), et t le temps (s).

Les courbes expérimentales sont modélisées et un ajustement à trois paramètres (C_s , C_0 , $K_L a$) est réalisé pour chaque sonde. Les trois valeurs de $K_L a$ obtenues étant ensuite moyennées pour obtenir une valeur globale (les valeurs de $K_L a$ avec un écart supérieur à 10% par rapport à la moyenne sont écartées). Par ailleurs, les valeurs de temps de réponse des sondes ont été mesurées et sont comprises entre 5 et 10 secondes, par conséquent le temps de réponse des sondes a peu d'impact sur le coefficient $K_L a$ pour des valeurs inférieures à 55 h^{-1} (**Capela, 1999**) et n'est pas pris en compte dans la détermination du $K_L a$, l'ensemble des valeurs expérimentales étant inférieur à cette valeur (voir 4.2.6).

Une correction en température est réalisée afin de normaliser le coefficient de transfert d'oxygène à 20°C :

$$K_L a_{20} = K_L a_T \times 1,024^{20-T} \quad (2.16)$$

Avec $K_L a_{20}$ et $K_L a_T$ les coefficients de transfert respectivement à 20°C et à la température T (h^{-1}), et T la température du liquide ($^\circ\text{C}$). Cette correction est valable pour une température comprise entre 10 et 30°C (NF-EN-12255-15,2004), les expériences ayant été menées avec des températures de liquide comprises entre 15 et 28°C .

Les mesures de coefficient de transfert de matière global sont réalisées en triplicat pour chaque condition de mesure (diffuseur, fluide et débit d'aération donnés), afin de déterminer une valeur moyenne par condition, les valeurs avec un écart supérieur à 10% par rapport à la moyenne étant écartées.

2.2.5 Détermination du coefficient de transfert de matière côté liquide K_L

Le coefficient de transfert de matière côté liquide K_L ne pouvant pas être mesuré directement de manière expérimentale, il est déterminé de manière indirecte avec :

$$K_L = \frac{K_L a}{a} \quad (2.17)$$

Avec K_L le coefficient de transfert de matière côté liquide (m s^{-1}), $K_L a$ le coefficient de transfert de matière global mesuré expérimentalement (s^{-1}) et a l'aire interfaciale spécifique des bulles (m^{-1}).

Le coefficient de transfert côté liquide calculé de cette manière est un coefficient apparent, dont la valeur est inférieure à la valeur réelle.

2.3 Fluides modèles utilisés

2.3.1 Types de fluides et méthodes de préparation associées

2.3.1.1 Fluides utilisés

Cinq types de fluides différenciés ont été sélectionnés pour cette étude, en fonction de leurs propriétés rhéologiques mais également des effets potentiels de contamination des interfaces associés et des propriétés optiques afin de permettre l'application des mesures de diamètre de bulles par ombroscopie (fluide transparent).

- Eau claire (eau du réseau **(TW)** et eau déminéralisée **(DW)**) correspondant à des conditions de référence ;

-Eau déminéralisée avec ajout d'un tensioactif non-ionique (Polyoxyéthylène (23) Lauryl Ether) à une concentration de 1 mg L^{-1} **(TA)** ;

-Fluide visqueux non newtonien rhéo-fluidifiant (solution aqueuse de gomme xanthane à 0,02% massique) **(XG)** ;

-Mélange des deux précédents fluides (Polyoxyéthylène (23) Lauryl Ether à 1 mg L^{-1} et gomme xanthane à 0,02% massique) **(XG + TA)**, permettant ainsi d'obtenir une combinaison d'effet de viscosité et de tension superficielle ;

-Fluide visqueux newtonien (solution aqueuse de Breox 75 W 55000 à 2% massique) **(BR)**.

Le Tableau 2-6 résume les différents composés utilisés comme fluides modèles avec leur numéro CAS et leur formule chimique.

Tableau 2-6 :Caractéristiques des composés utilisés comme fluides modèles

Composé	CAS	Formule chimique
Polyoxyéthylène (23) Lauryl Ether	9002-92-0	$\text{C}_{12}\text{H}_{25}(\text{OCH}_2\text{CH}_2)_{23}\text{OH}$
gomme xanthane	11138-66-2	$(\text{C}_{35}\text{H}_{49}\text{O}_{29})_n$
BREOX 75 W 55000	9003-11-6	$\text{HO} \cdot (\text{C}_2\text{H}_4\text{O})_m \cdot (\text{C}_3\text{H}_6\text{O})_n \cdot \text{H}$

En dehors des conditions « eau claire » de référence, sont ainsi considérés le cas d'une eau contaminée par un tensioactif non-ionique de concentration comparable à celles trouvées dans les bassins d'aération traitant des eaux résiduaires urbaines (Gillot et al., 2000; Wagner and Pöpel, 1996) , d'un fluide de viscosité comparable à celles des boues activées (newtonien dans le cas du Breox et non-newtonien rhéo-fluidifiant dans le cas de la gomme xanthane) (Amaral et al., 2017) , et enfin d'un mélange intégrant les effets couplés de viscosité et de contamination par un tensioactif non-ionique.

Il est à noter que pour les expériences en eau déminéralisée avec le diffuseur membrane, la même eau a été utilisée sur toute la durée des expériences (plusieurs mois). Une contamination partielle de l'eau par des impuretés au cours du temps est ainsi potentiellement observée. Pour les autres fluides, toutes les mesures ont été réalisées dans un délai maximal d'une semaine après le remplissage de la colonne.

Le Tableau 2-7 résume les expériences ayant été menées avec les différents fluides avec les deux diffuseurs.

Tableau 2-7 : Récapitulatif des conditions opératoires par type de fluide et de diffuseur

Fluide	Diffuseur membrane	Diffuseur capillaire
DW	X (eau vieillie)	X
TW	X	
TA	X	X
XG	X	X
XG + TA	X	X
BR		X

2.3.1.2 Méthode de préparation des fluides

2.3.1.2.1 METHODE DE PREPARATION DU TENSIOACTIF

Le protocole de préparation de solution de Polyoxyéthylène (23) Lauryl Ether à 1 mg L^{-1} est le suivant :

- 1) Remplir la colonne d'eau déminéralisée jusqu'à une hauteur $H = 2,90 \text{ m}$
- 2) Diluer une masse m (mg) de granules de tensioactif dans un volume V d'eau déminéralisée (mL) : on obtient une solution mère de concentration C_1 (mg L^{-1}) égale à : $C_1 = \frac{m}{V} \times 1000$
- 3) Prélever un volume V_1 (mL) de solution mère de concentration C_1 et le verser dans la colonne en aération.

$$V_1 = \frac{C_2 \times V_2}{C_1 - C_2} \times 1000 \quad (2.18)$$

Avec V_2 le volume d'eau déminéralisée initialement présent dans la colonne (L) égal à $V_2 = \frac{H \times S_{\text{colonne}}}{1000}$ et C_2 la concentration de la solution fille à atteindre dans la colonne (égale à 1 mg L^{-1}).

2.3.1.2.2 METHODE DE PREPARATION DE LA SOLUTION DE GOMME XANTHANE

Le protocole de préparation de solution de gomme xanthane à 0,02% massique est le suivant :

- 1) Peser une masse m_{DW} (g) d'eau déminéralisée au minimum égale à 110 g et l'introduire dans une cuve de 300 L
- 2) Peser une masse de poudre de gomme xanthane m_{XG} (g) égale à :

$$m_{\text{XG}} = \frac{x_{\text{XG}} \times m_{\text{DW}}}{1 - x_{\text{XG}}} \quad (2.19)$$

Avec x_{XG} la concentration massique à atteindre de la solution en gomme xanthane (égale à 0,02%)

3) Saupoudrer la gomme xanthane dans la cuve contenant l'eau déminéralisée : elle va alors s'agglomérer et former des flocs

4) Diluer la gomme xanthane dans l'eau déminéralisée en utilisant l'une des deux méthodes suivantes : Faire circuler la solution en circuit fermé dans la cuve à l'aide d'une pompe vide-fût jusqu'à ce que les flocs soient entièrement solubilisés (cela peut durer plusieurs heures), ou bien mettre la solution en agitation dans la cuve pendant la nuit à l'aide d'un agitateur à pales

5) Pomper la solution dans la colonne à l'aide d'une pompe vide-fût jusqu'à atteindre une hauteur de liquide de 2,90 m

La solution de gomme xanthane à 0,02% massique dont la tension superficielle a été mesurée par la méthode de la bulle montante a été préparée en suivant le même protocole avec des quantités moindres : $m_{DW} = 414,76 \text{ g}$, $m_{XG} = 82,3 \text{ mg}$ et dilution de la poudre de gomme xanthane dans l'eau déminéralisée dans un bécher avec agitation par un barreau aimanté.

2.3.1.2.3 METHODE DE PREPARATION DU MELANGE GOMME XANTHANE + TENSIOACTIF

Le protocole de préparation de solution de gomme xanthane à 0,02% massique additionnée de Polyoxyéthylène (23) Lauryl Ether à 1 mg L^{-1} est le suivant :

1) Préparer une solution de gomme xanthane à 0,02% massique et l'introduire dans la colonne selon le protocole décrit dans la partie 2.3.1.2.2

2) Effectuer les étapes 2), 3) et 4) du protocole de la partie 2.3.1.2.1

Les propriétés de la solution ayant tendance à évoluer au cours du temps en présence de tensioactif, il est primordial d'effectuer les mesures dès que la solution est prête.

2.3.1.2.4 METHODE DE PREPARATION DU BREOX

Le protocole de préparation de solution de Breox à 2% massique est le suivant :

- 1) Peser 2400 g de Breox et les répartir dans 5 béchers munis de barreaux aimantés
- 2) Compléter les béchers avec de l'eau déminéralisée de sorte à atteindre un rapport d'environ 3 :1 et noter la masse totale d'eau déminéralisée ajoutée
- 3) Pré-mélanger les solutions contenues dans les béchers à l'aide d'une spatule (le BREOX et l'eau déminéralisée forment deux phases distinctes difficilement miscibles) jusqu'à obtenir une solution relativement homogène
- 4) Laisser les béchers en agitation pendant 24 heures
- 5) Peser une masse d'eau déminéralisée égale à 117 600 g moins la masse d'eau déminéralisée pesée à l'étape 2 et la verser dans une cuve de 300 L
- 6) Ajouter le contenu des béchers dans la cuve de 300 L et agiter pendant la nuit à l'aide d'un agitateur à pales

- 7) Pomper la solution dans la colonne à l'aide d'une pompe vide-fût jusqu'à atteindre une hauteur de liquide de 2,90 m

2.3.2 Caractérisation des propriétés physico-chimiques des fluides

2.3.2.1 Comportement rhéologique

Le comportement rhéologique des fluides utilisés est caractérisé à l'aide du rhéomètre tubulaire décrit dans (**Durán, 2015**) et (**Durán et al., 2016**) (Figure 2-15). Le fluide est introduit dans un tube cylindrique à l'aide d'une pompe centrifuge, le débit massique étant mesuré en continu à l'aide d'une balance connectée à un ordinateur. La mesure de perte de charge en deux points fixes du tube est également effectuée à l'aide de capteurs de pression KIMO, permettant de calculer le taux de cisaillement appliqué et la contrainte de cisaillement résultante à l'aide de la loi de Poiseuille (valable pour un écoulement laminaire) :

$$\dot{\gamma} = \frac{4 \times Q}{\pi \times R^3} \quad (2.20)$$

$$\tau = \frac{R \times \Delta P}{2 \times L} \quad (2.21)$$

Avec $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement (s^{-1}), τ la contrainte de cisaillement à la paroi (Pa), Q le débit volumique du fluide ($m^3 s^{-1}$), ΔP la différence de pression mesurée (Pa), R le rayon interne du tube (m) et L la longueur entre les deux points de mesure de pression (m).

Pour les fluides non-newtoniens, le taux de cisaillement est corrigé à l'aide de la relation de Rabinowitsch (**Dupuis, 2008**):

$$\dot{\gamma}_{Rabinowitsch} = \dot{\gamma} \times \frac{3n + 1}{4n} \quad (2.22)$$

Avec n (-) l'indice d'écoulement du fluide, déterminé en traçant $\ln(\tau)$ en fonction de $\ln(\dot{\gamma})$.

La rhéologie des fluides non-newtoniens dans le cadre de ce travail est caractérisée par le modèle d'Ostwald (voir 1.4.3).

L'utilisation de trois tubes différents de rayons internes 4, 7 et 12 mm avec des valeurs de L respectivement de 0,4 , 0,8 et 1 m permet de couvrir une gamme de taux de cisaillement s'étalant de 20 à 2000 s^{-1} . Les mesures sont réalisées dans un environnement contrôlé avec une température de 20°C afin de s'affranchir de l'effet de la température sur la viscosité.

La pompe étant équipée d'un variateur de fréquence, la mesure consiste pour un tube donné, pour différents débits de liquide et donc différentes valeurs de taux de cisaillement, à mesurer la différence de pression moyenne et le débit moyen sur une durée de 30 secondes pour chaque débit. A la fin de la mesure, le zéro de pression est mesuré en coupant la pompe.

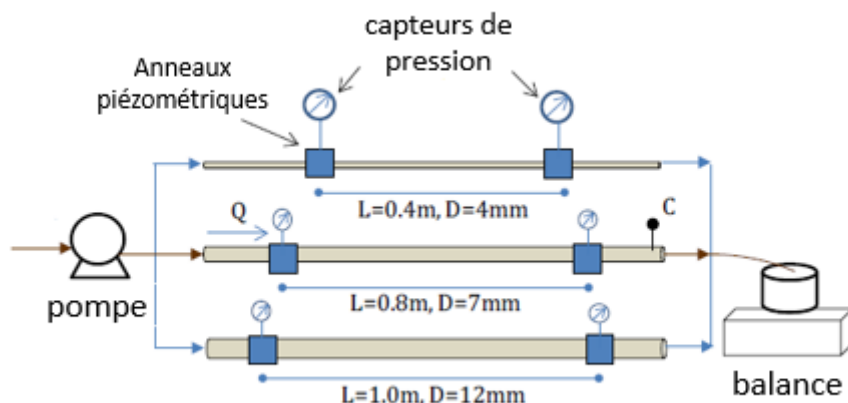


Figure 2-15 : Schéma du rhéomètre utilisé (Durán, 2015)

2.3.2.2 Tension superficielle statique

La mesure de tension superficielle statique a été réalisée à l'aide d'un tensiomètre de surface à arrachement (tensiomètre Kibron). Un cylindre métallique trempe dans un cristalliseur d'un volume de 3 mL contenant la solution à analyser, et la force nécessaire pour arracher le cylindre au liquide est mesurée. La mesure est réalisée de manière automatisée, avec plusieurs immersions et arrachements successifs du cylindre dans la solution à mesurer.

2.3.2.3 Tension superficielle dynamique

La tension superficielle dynamique est mesurée selon la méthode de la bulle montante. Pour cela, un tensiomètre « Tracker » de la marque Teclis est utilisé. Un schéma du dispositif expérimental utilisé est présenté sur la Figure 2-16.

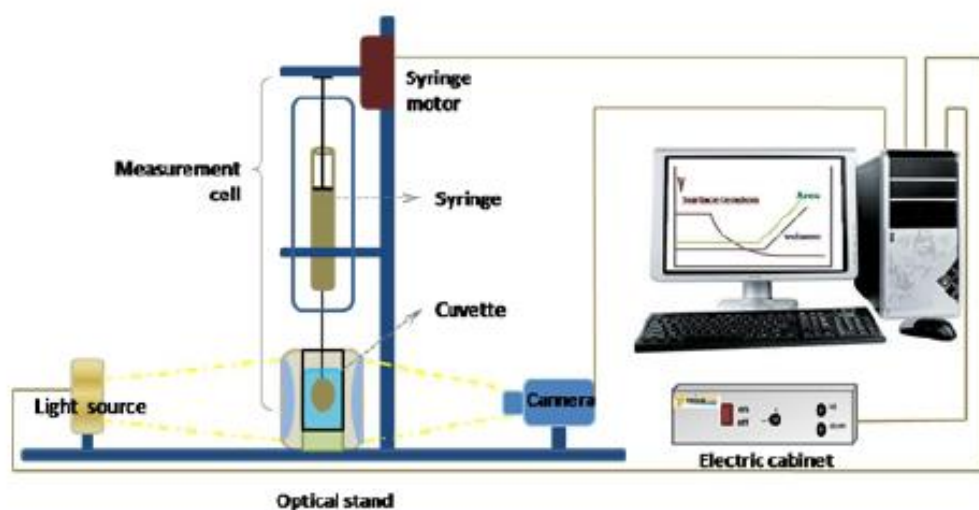


Figure 2-16 : Dispositif expérimental de mesure de tension superficielle dynamique par bulle montante (Yazhgur, 2015)

L'ensemble du dispositif est contrôlé par ordinateur. Une seringue dont l'extrémité est recourbée vers le haut est positionnée dans une cuve de 25 mL contenant la solution à analyser et régulée à une température de 20°C, et une bulle est injectée de sorte à ce qu'elle demeure en équilibre à l'extrémité

de la seringue (voir Figure 2-17). L'évolution de la taille et de la forme de la bulle est suivie au cours du temps à l'aide d'une caméra, ce qui permet de déterminer l'évolution de la tension superficielle du liquide au cours du temps (**Yazhgur, 2015**). Ce dispositif expérimental permet ainsi d'effectuer des mesures de tension superficielle dynamique sur des temps longs (de l'ordre de plusieurs heures). Pour des mesures en présence de tensioactif notamment, les molécules de tensioactif présentes dans le liquide vont progressivement s'adsorber à la surface de la bulle, faisant ainsi diminuer la tension superficielle mesurée au cours du temps, jusqu'à atteindre un plateau correspondant à la tension superficielle statique mesurée à l'équilibre.

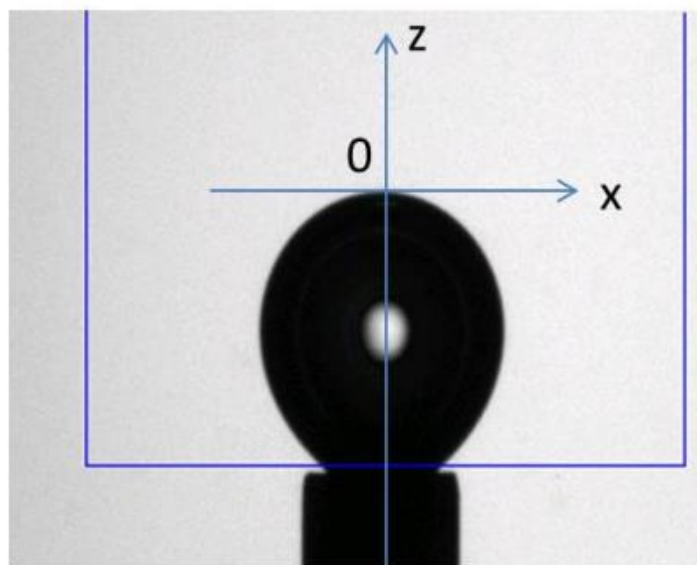


Figure 2-17 : Photo de bulle en équilibre lors d'une mesure de tension superficielle dynamique (**Yazhgur, 2015**)

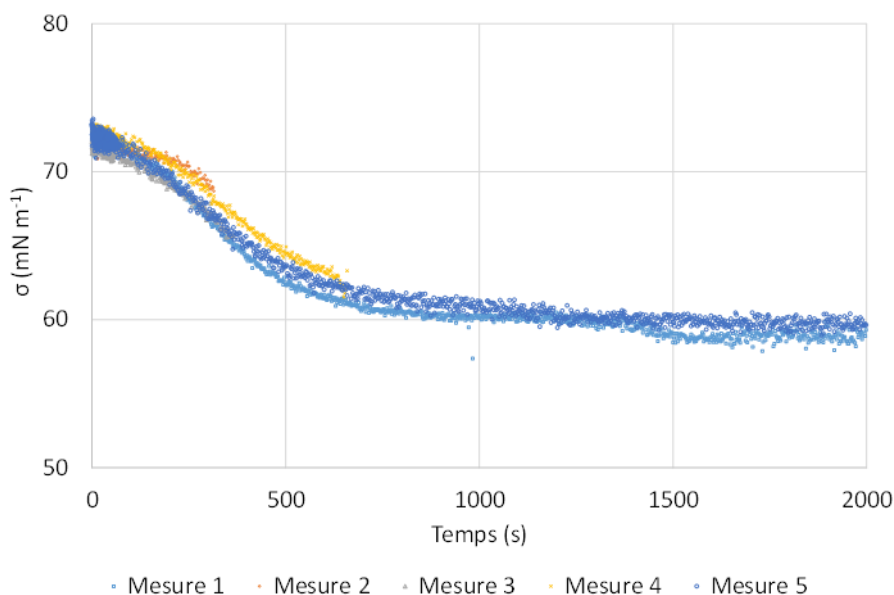


Figure 2-18 : Exemple de mesure de tension superficielle dynamique en fonction du temps en tensioactif non ionique

2.4 Présentation des outils de modélisation 1D développés

Parallèlement aux expérimentations, un modèle 1D Matlab couplant hydrodynamique et transfert de matière est utilisé afin de valider et d'interpréter les résultats expérimentaux obtenus en termes d'hydrodynamique (rétention gazeuse locale et globale) et de transfert de matière (coefficient de transfert de matière global $K_L a$).

La structure générale du modèle est indiquée sur la Figure 2-19.

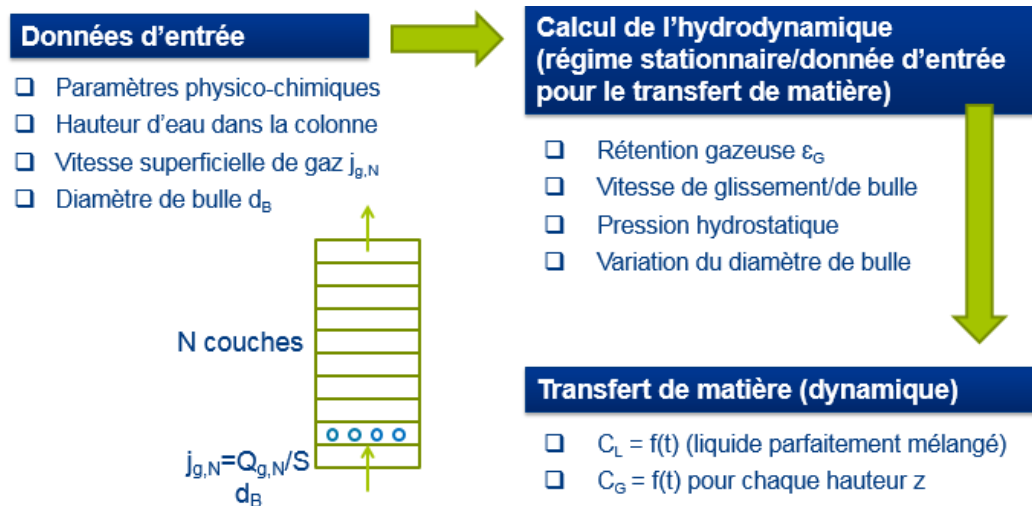


Figure 2-19 : Structure du modèle 1D

La colonne est simplifiée en un système mono-dimensionnel et discrétisée en 50 points, en faisant l'hypothèse que les grandeurs au sein d'une même section droite ne varient pas significativement et peuvent ainsi être moyennées. Pour chaque point de discrétisation sont calculés les paramètres hydrodynamiques (rétention gazeuse, vitesse de gaz, pression hydrostatique et diamètre de bulle) à partir des paramètres d'entrée du modèle : données physico-chimiques et constantes physiques, hauteur d'eau, vitesse superficielle de gaz et diamètre de bulle à pression atmosphérique.

Le couplage entre hydrodynamique et transfert au sein du modèle n'est pas un couplage fort : si l'hydrodynamique a un impact sur le transfert puisqu'elle sert de paramètre d'entrée au transfert, le transfert n'a en retour pas d'impact sur l'hydrodynamique. Cette hypothèse est valable étant donné que l'oxygène est un gaz peu soluble dans l'eau, faisant donc peu varier le diamètre des bulles. Ainsi le transfert de matière entre le gaz et le liquide n'a pas d'impact significatif sur l'hydrodynamique du système.

Les paramètres hydrodynamiques sont donc considérés comme ne variant pas au cours du temps (régime permanent) et servent d'entrée au calcul du transfert de matière. Ainsi, à partir d'une concentration initiale en oxygène, et d'un modèle de coefficient de transfert côté liquide prédéfini, les évolutions au cours du temps des concentrations dans le gaz et dans le liquide sont calculées, en supposant un liquide parfaitement mélangé. Un coefficient de transfert de matière global $K_L a$ modélisé peut ensuite être déterminé à partir de la courbe de remontée en oxygène dissous dans le liquide, de

manière analogue à l'obtention d'un coefficient de transfert K_{La} expérimental à partir de courbes de remontées en oxygène réelles.

Les simulations obtenues avec le modèle 1D seront comparées aux résultats expérimentaux, en matière d'hydrodynamique et de transfert de matière. Pour les hauteurs d'eau, vitesses superficielles d'aération et diamètres de bulles mesurés expérimentalement, le modèle calcule les rétentions gazeuses locales et globales qui seront comparées à celles mesurées expérimentalement, ainsi que les courbes d'évolution de la concentration en oxygène dissous dans le liquide au cours du temps et les coefficients de transfert de matière associés.

Le fonctionnement détaillé du modèle 1D ainsi que sa validation par une confrontation à trois jeux de données de la littérature en eau claire sont explicités en détails dans le Chapitre 3, sous la forme d'un article scientifique rédigé en anglais.

2.5 Conclusion sur le Matériel et Méthodes

Le dispositif expérimental mis en place a permis la réalisation de mesures hydrodynamiques (rétention gazeuse locale et globale, distributions de tailles de bulles) et de transfert de matière (coefficient de transfert K_{La} global) en fluides modèles, représentatifs de boues activées, au sein d'une colonne à bulles rectangulaire de grande taille (3m). Ces fluides sont caractérisés d'un point de vue physico-chimique (tension superficielle statique et dynamique et rhéologie), et les mesures de distributions de tailles de bulles (paramètre hydrodynamique essentiel impactant le transfert) effectuées par ombroscopie sont caractérisées finement par un traitement automatisé. Deux diffuseurs de bulles correspondant à un système de diffusion homogène (diffuseur capillaire) et hétérogène (diffuseur membrane) ont été utilisés. Enfin, un modèle Matlab 1D couplant hydrodynamique et transfert de matière sert d'outil d'interprétation des résultats expérimentaux.

Chapitre 3 : Développement et validation d'un modèle 1D global pour la simulation de la rétention gazeuse et du transfert gaz/liquide dans des colonnes à bulles air/eau de forte hauteur

Dans ce chapitre, un modèle couplant hydrodynamique et transfert de matière, dont la fonction est d'aider à mieux comprendre et interpréter des mesures réalisées avec des colonnes à bulles air/eau à faible rétention gazeuse, est présenté.

Dans un premier temps, le contexte du transfert gaz-liquide dans le cadre du traitement et de la récupération des ressources en eau est présenté, et plus spécifiquement l'application à des colonnes à bulles, avec les outils et principes de modélisation associés. Cela permet de spécifier le contexte de l'étude, à savoir la modélisation 1D de l'hydrodynamique et du transfert de matière appliquée à des colonnes à bulles air/eau à faible rétention gazeuse (inférieure à 5%).

Ensuite, les matériels et méthodes utilisés sont présentés, avec d'une part les jeux de données sélectionnés, et d'autre part une présentation détaillée du modèle utilisé :

- Trois jeux de données expérimentales ont été sélectionnés, présentant des conditions opératoires diverses (qualité d'eau, hauteur de liquide, gamme de vitesse superficielle de gaz et de diamètre de bulle). Les paramètres opératoires ainsi que la représentativité des jeux de données sont mis en avant, ce qui permet de justifier leur choix.
- Le fonctionnement du modèle est présenté en détail, avec les hypothèses utilisées, les données d'entrée et conditions aux limites, et les différentes équations résolues (relatives à l'hydrodynamique et au transfert de matière) ainsi que les méthodes numériques de résolution. Celui-ci intègre l'impact de la pression hydrostatique locale et les effets de contamination sur les paramètres relatifs à l'hydrodynamique et au transfert de matière.

Les principaux résultats obtenus sont présentés et interprétés, une première partie étant consacrée aux paramètres caractéristiques de l'hydrodynamique, et une seconde au transfert de matière et aux effets de contamination :

- Concernant l'hydrodynamique, la sensibilité du modèle à la pression hydrostatique et au modèle de traînée est étudiée. Ainsi, l'impact de la pression hydrostatique sur la vitesse superficielle de gaz et le diamètre de bulle doit être pris en compte pour modéliser l'hydrodynamique de manière adéquate (en particulier pour les colonnes à bulles de forte hauteur), et le choix de la loi de traînée dans le modèle doit être fait au regard de la qualité d'eau du jeu de données considéré (eau contaminée ou faiblement contaminée).
- Pour le transfert de matière, la différence entre les coefficients globaux K_{La} et moyens locaux $\langle k_{La} \rangle$ et par conséquent l'appauvrissement du gaz en oxygène, sont mis en évidence. La phase gaz s'appauvrit significativement en oxygène, ce qui explique la différence entre le coefficient de transfert global K_{La} , issu de l'analyse des remontées en oxygène, et local moyen $\langle k_{La} \rangle$, calculé directement à partir des caractéristiques hydrodynamiques. La différence est d'autant plus significative que la hauteur de liquide est importante et/ou que la taille de bulle moyenne est faible. Les points expérimentaux de K_{La} sont comparés à ceux calculés pour les cas idéaux d'une bulle parfaitement propre (modèle de transfert de Higbie) et entièrement contaminée (modèle de transfert de Frössling), et les angles de contamination sont également calculés

pour les différents jeux de données et conditions expérimentales, permettant ainsi de quantifier le niveau de contamination par rapport aux modèles théoriques de Higbie et de Frössling. Enfin, les principales conclusions de l'étude sont présentées.

Ce chapitre a fait l'objet d'un article scientifique dans Chemical Engineering Science sous la référence, et proposé dans la suite de ce chapitre :

Larsson, T., Duran Quintero, C., Gillot, S., Cockx, A., Fayolle, Y. (2022) Development and validation of a comprehensive 1-D model to simulate gas hold-up and gas–liquid transfer in deep air-water bubble columns. ***Chemical Engineering Science* 248 (2022), 117210.**

Development and validation of a comprehensive 1-D model to simulate gas hold-up and gas–liquid transfer in deep air-water bubble columns

T. Larsson^a, C. Duran^b, S. Gillot^c, A. Cockx^d Y. Fayolle^a

^a Université Paris-Saclay, INRAE, UR PROSE, 1 rue Pierre-Gilles de Gennes, Antony, F-92761, France

^b Université de Nantes, GEPEA, UMR 6144, 37 bd. de l'Université, F-44600, Saint Nazaire, France

^c INRAE, REVERSAAL, 5 Rue de la Doua, Villeurbanne Cedex, F-69625, France

^d TBI, Université de Toulouse, CNRS, INP, INSA, UPS, Toulouse, France

Abstract

This study proposed to develop a model coupling hydrodynamics and mass transfer in order to gain an understanding of measurements taken on air-water bubble columns with low gas hold-up. Three experimental datasets with various operating conditions (water quality, liquid height, air flow range) were chosen. The model analyzes and interprets the significant impact of the local hydrostatic pressure and the effects of contamination on hydrodynamic and mass transfer parameters. The oxygen concentration in gas significantly depletes, which explains the difference between the calculated mean of the local $\langle k_{La} \rangle$ and global K_{La} coefficients. This difference is highly significant for a high bubble column and/or systems with a low mean bubble size. The impact of water quality on mass transfer can be characterized by the contamination angle using comprehensive 1-D modeling and highlights a differentiated impact on the hydrodynamic or mass transfer parameters.

Keywords

1D Model, Oxygen mass transfer, Aeration, Wastewater treatment, Bubble column

3.1 Introduction

In the domain of water and wastewater treatment and recovery, gas–liquid reactors are often used to perform gas–liquid oxygen mass transfer. In particular, air bubbles are injected in aeration tanks to provide microorganisms with the oxygen they require for their growth. Aeration systems in these processes must be efficient in terms of mass transfer coefficients, easy to construct, with no moving parts and a low pressure drop through the air diffusers (**Manjrekar, 2016**). In this study, an analogy is made between bubble columns and wastewater aeration tanks, since they can both operate in the bubbly flow regime with similar heights and gas hold-up ranges. Indeed, using a deep bubble column allows one to reproduce the water heights and gas–liquid contact times encountered in aeration tanks (**Baeten et al., 2020; Durán et al., 2016; Gillot and Héduit, 2008**). Similarly, air flowrates can be set to

obtain gas superficial velocities and gas hold-ups ranges used in aeration tanks (**Amaral et al., 2018; Durán et al., 2016; Shah et al., 1982**). This analogy aims at helping reach a better understanding of fundamental phenomena that affects gas–liquid mass transfer in the bubbly flow regime, in order to optimize the aeration systems that remain the main energy consumer in water resource recovery facilities (**Longo et al., 2016; Rosso and Stenstrom, 2005**).

For systems with low gas hold-ups (< 5%) and fine bubble diffusers, air bubbles are spherical or ellipsoidal with few coalescence and break-up phenomena (**Colombet et al., 2015; Talvy et al., 2007c**). However, bubble coalescence is more likely to occur in systems with denser bubble swarms and higher gas hold-ups and bubble diameters. In an air–water bubble column with fine bubble diffusers, the homogeneous flow regime without coalescence can be maintained under a transitional gas superficial velocity between 0.04 and 0.08 m/s (**Mudde et al., 2009**). In **Besagni et al. (2016)**, the coarse gas sparger used led to an early disruption of the bubbly flow due to both non-uniform distribution and changes in bubble size generation. **Loubière et al. (2003)** also pointed out that bubble size variation depended upon the type of diffuser with a flexible porous membrane, the initial bubble size increases as the superficial gas velocity rises, whereas when using a rigid orifice, bubble size varies slightly depending on superficial gas velocity.

In air-water systems, the effect of bubble contamination on mass transfer is another frequently observed process and is mainly due to surfactants (**Capela et al., 2002; Jimenez et al., 2014; Pöpel and Wagner, 1994; Rosso et al., 2006; Sardeing et al., 2006**) as well as aqueous salt solutions such as in biological media (**Zlokarnik, 2005**). Contaminated bubbles yield lower mass transfer coefficients than perfectly clean bubbles, even though the level of bubble contamination may be difficult to quantify (**Sardeing et al., 2006; Xu et al., 2018**).

Water height also has an impact on overall mass transfer (**Deckwer et al., 1974; Giovannettone and Gulliver, 2008**) since the gradients of the gas–phase composition and pressure appear to have highly interactive non-linear effects (**Baeten et al., 2020**). First, bubble diameter varies with hydrostatic pressure (**Amaral et al., 2018; Capela et al., 2002; Fayolle et al., 2010; Giovannettone et al., 2009**), which has an influence on the gas–liquid interfacial area. In addition, the oxygen saturation concentration varies depending upon column height (**Rubio et al., 1999**) and the dissolved oxygen concentration profile at steady state can be very pronounced, suggesting local variation of the transfer rate even if the overall net transfer of oxygen is close to zero (**Giovannettone and Gulliver, 2008**). The combination of these phenomena induce oxygen depletion in air bubbles, essentially explained by competition between the transfer rate and bubble convection (**Baeten et al., 2020; Giovannettone and Gulliver, 2008; Talvy et al., 2007c**).

To provide a comprehensive description of gas transfer inside deep air-water bubble columns, the classical one-dimensional two-fluid model (**Cockx et al., 1997; Rubio et al., 2001; Vitankar and Joshi, 2002; Wallis, 1969**) developed in previous studies for airlift reactors, aeration tanks or bubble columns has been extended (**Colombet et al., 2013; Talvy et al., 2007b, 2007c**). Since the transfer rate gradient increases with the height of the bubble column via the various well-identified mechanisms discussed above, all these phenomena need to be combined in a new model structure where both hydrodynamics and mass transfer are solved together to consider the effect of pressure and gas depletion.

One-dimensional (1-D) models are simple but rigorous and appear to be relevant when applied to bubble columns since gas flows are mainly in the vertical axis. Most existing models consider a constant superficial gas velocity since they apply to low height columns (**Colombet et al., 2013; Talvy et al., 2007b**) and thus the pressure effect can be ignored. However, this may not be the case for columns

with a high liquid height, as shown in studies taking the effect of pressure on gas solubility into account (**Dhaouadi et al., 2008**), or both gas solubility and gas flowrate (**Baeten et al., 2020; Giovannettone and Gulliver, 2008**). In these investigations, the overall mass transfer coefficient K_{La} was considered, even though representing hydrodynamic variations together with changes in mass transfer (separating k_L from a) would be more useful to better interpret experimental results. In this context, the aim of this study was to develop a model that couples hydrodynamics and mass transfer in order to gain an understanding of measurement results obtained on systems with low gas hold-up under different configurations. Based on a literature review, the correlations that can be used to represent hydrodynamic and mass transfer phenomena (drag coefficient, mass transfer coefficient, collective bubble effects due to high gas hold-up) were identified. The simulation results were compared to observed data obtained in three experimental setups showing contrasting operating conditions (in terms of water height, gas hold-up, bubble diameter and interface contamination). Their specific relevant hydrodynamic and oxygen transfer phenomena were analyzed by modeling and simulation. To begin, after presenting the experimental datasets, the different processes considered in the comprehensive model are described. Subsequently, the simulated results are compared with the experimental data to choose between the different options concerning the model structure (closure relations) and to interpret the experimental results obtained under varied operating conditions.

3.2 Material and methods

The proposed 1-D model is used to investigate the results extracted from three experimental datasets obtained in clear water (**Amaral et al., 2018; Colombet et al., 2015; Durán et al., 2016**).

3.2.1 Experimental datasets

The database is composed of three experimental datasets obtained in bubble columns showing a low gas hold-up (less than 6%). They were selected because of their wide range of operating conditions (superficial gas velocity and gas hold-up) and the availability of data. Table 3-1 presents the main operating conditions for the three experimental datasets.

Tableau 3-1 : Experimental conditions for the bubble column datasets

Dataset	Continuous fluid phase	Bubble sparger type	H_L (m)	d_B expressed at P_{atm} ($\times 10^{-3}m$)	j_g at P_{atm} ($\times 10^{-3}m/s$)	ϵ_g (%)	Reference
D1	Tap water	EPDM membrane	1.30	1.5 - 1.8	0.3 - 1.2	0.1 - 0.4	(Amaral et al., 2018)
D2	Tap water	EPDM membrane	4.40	3.0 - 4.0	2.0 - 4.5	0.5 - 1.5	(Durán et al., 2016)
D3	Filtered tap water	Capillaries	0.76	2.3 - 3.4	2.0 - 15.5	0.5 - 6.0	(Colombet et al., 2015)

With : d_b mean bubble diameter, P_{atm} standard atmospheric pressure (1013 hPa), j_g superficial gas velocity, ε_g overall gas hold-up, H_L liquid height.

The water quality slightly differed from one dataset to another. In particular, the liquid used in Dataset D3 was filtered tap water (15 μm cutoff threshold) and tap water for D1 and D2.

Datasets D1 and D2 were obtained in bubble columns equipped with EPDM membrane diffusers, similar to the ones installed in full-scale aeration tanks. For Dataset D1, the water height was quite low (1.30 m). The superficial gas velocity and associated mean bubble size and gas hold-up were significantly lower in comparison to the other datasets. Dataset D2 corresponds to the experimental bubble column with the highest liquid height (4.5 m) in the lower range of liquid heights found in industrial aeration tanks, which allows for the study of the impact of hydrostatic pressure on hydrodynamics and mass transfer phenomena. A more complete description of this experimental dataset is provided in the following section, given that clear water results are not fully described in the published article (**Durán et al., 2016**).

Figure 3-1 presents hydrodynamic and mass transfer characteristics as a function of the superficial gas velocity for Dataset D2.

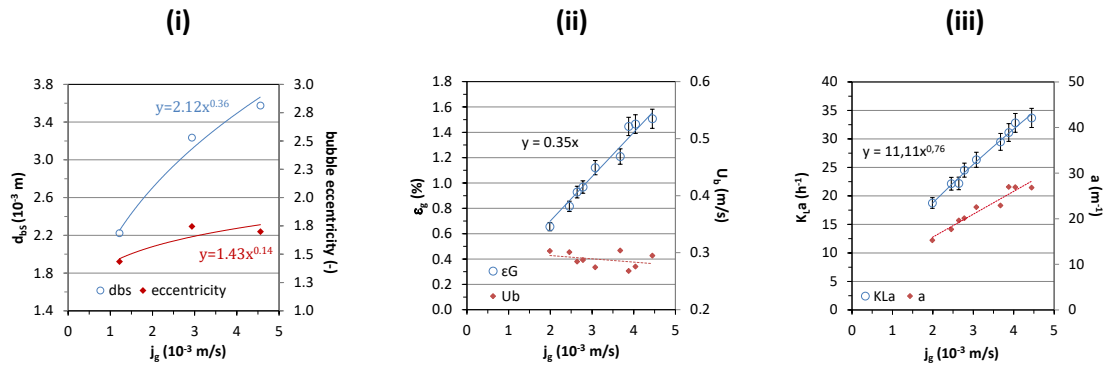


Figure 3-1 : (i) Mean bubble Sauter diameter and mean bubble eccentricity measured at 1 m in height from the diffuser, (ii) overall gas hold-up (ε_g) and mean bubble rise velocity (U_b) at 20°C, (iii) overall oxygen transfer coefficient K_La expressed at 20°C and gas-liquid interfacial area (a) as a function of the superficial gas velocity – dataset D2

The mean bubble Sauter diameter increased from 2.2 to 3.6 mm with an increase in the superficial gas velocity (j_g) from 1.2 to 4.6 mm/s. The effect of the airflow rate on bubble size was more significant at lower superficial gas velocities because the membrane stretches and the pore size increases under the effect of the pressure associated with the airflow rate. Concerning the bubbles' shape, their eccentricity slightly increased from 1.4 to 1.7 with the increase of the superficial gas velocity. Classically, the overall gas hold-up is a linear function of the superficial gas velocity, whereas the oxygen transfer coefficient follows a power law. The mean bubble rise velocity deduced ($U_b = j_g / \varepsilon_g$, for homogeneous distribution of gas along the column's surface) slightly decreased as the superficial air velocity increased. The reduction of U_b can be attributed to the collective effects (the interaction between bubbles) that ended up with higher bubble drag coefficients, as explained by **Colombet et al., (2011)**. Since the estimated K_L coefficient ($K_L = K_La / a$) remains almost constant within the range of the j_g studied, the increase in the overall oxygen transfer coefficient (K_La) is mainly related to the increase in the interfacial area (estimated from d_{bs} , ε_g and bubble eccentricity; see Eq. 3.30 below).

Dataset D3 includes a wide range of superficial gas velocities and gas hold-up, even though the water height is lower in comparison with the other datasets. The bubble injection system consists of a network of stainless steel capillaries (with an inner diameter of 0.2 mm), that makes it possible to obtain a homogeneous bubble swarm. In contrast, the diffuser of the two other datasets, a porous EPDM membrane, provides a more heterogeneous initial bubble size distribution as commonly found in water treatment. In order to focus on low gas hold-up systems, the data considered were limited to gas hold-up lower than 6%, despite the wider range in the complete study (Colombet et al., 2013).

On the basis of transfer numbers (N_T), these datasets were compared with different previous databases from lab-scale (Capela et al., 2002) to full-scale aeration tanks (Fayolle et al., 2011, 2010).

This dimensionless group ($N_T = \frac{K_L a_{20}}{j_g} \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L^2 g} \right)^{1/3}$) defined by Zlokarnik (1979) and Roustan (1996) has the same physical meaning as the specific standard oxygen transfer efficiency (SSOTE in %) per meter of diffuser submergence for clear water operating conditions (Gillot et al., 2005). Figure 3-2 presents the transfer number as a function of the mean Sauter bubble diameter for the different databases selected and datasets D1–D3.

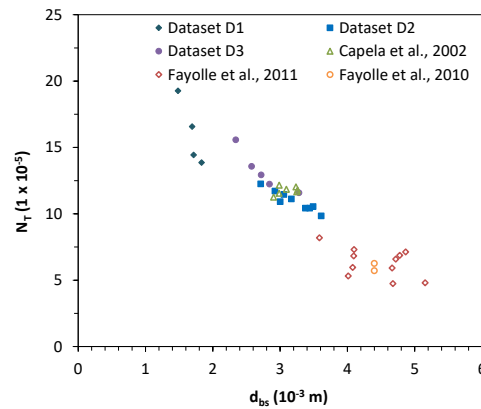


Figure 3-2 : Transfer number (N_T) versus bubble Sauter diameter for selected databases (lab-scale (Capela et al., 2002) and full-scale (Fayolle et al., 2011, 2010)) and datasets 1–3.

For reactors with different configurations (from pilot scale to full-scale reactors), the transfer number (N_T) seemed to be determined by the Sauter diameter, which fixes the bubble surface mobility and the G-L interfacial area by controlling the overall gas hold-up. The results also clearly demonstrate that the transfer number is an adequate scale-up factor for systems equipped with fine bubble diffusers. Likewise, through the comparison with data obtained at full-scale, these results validate the representativeness of the three datasets in terms of mass transfer mechanisms.

3.2.2 Two-Phase One-Dimensional Model

The proposed model is a 1-D model derived for low soluble gas mass transfer into a liquid in deep bubble columns, applied to an air–water system (O_2 is considered to be the only gas transferred). Since the calculated variables are homogenous and evenly distributed along the cross section, a 1-D approach can be considered. The model first calculates hydrodynamic variables (gas hold-up, changes in bubble diameter, gas velocity) considering steady-state conditions. Then, hydrodynamic results are used as input values to calculate the transient oxygen mass transfer from the gas phase to the liquid phase. The impact of the oxygen transfer on the bubble size and associated hydrodynamics is ignored.

Contrary to other existing 1-D models (**Baeten et al., 2020; Giovannettone and Gulliver, 2008**), the impact of pressure on gas superficial velocity and bubble diameter is taken into account and its impact on gas hold-up and mass transfer is fully considered and analyzed. The model is based on a simplified Eulerian two-fluid model such as reported in **Talvy et al., (2007b, 2007c)**, where mass balance for the gas and liquid phases and momentum interactions between the two phases are considered. The proposed model implies different hypotheses related to the considered system (oxygen transfer in batch air-water bubble column with low gas hold-up) : (i) the impact of the mass transfer on the bubble size and associated hydrodynamics is neglected, (ii) no vertical liquid flow is considered, (iii) the bubbly flow is homogeneously distributed along the cross-section of the bubble column and (iv) coalescence is neglected. The column is discretized along its height (50 layers along z), so the variables are calculated locally at each discretization point.

Table 3-2 summarizes the values considered for the fluid properties and the main parameters of the model ($T = 20^\circ\text{C}$ and $P_{\text{ref}} = 1 \text{ atm}$).

Tableau 3-2 : Physico-chemical properties of the system ($T = 20^\circ\text{C}$ and $P_{\text{ref}} = 1 \text{ atm}$)

Parameter	Value	Unit
Water density, ρ_L	998.2	kg/m^3
Water dynamic viscosity, μ_L	1.10^{-3}	Pa.s
Water surface tension, σ	73	mN/m
Air density, ρ_G	1.2	kg/m^3
Oxygen diffusivity in water, D	2.10^{-9}	m^2/s
Gravity constant, g	9.81	m/s^2
Temperature, T	20	$^\circ\text{C}$
Atmospheric pressure, (P_{ref})	1	atm

3.2.2.1 Equation of the 1-D model

All variables were averaged along each cross section of the column in order to provide a simple 1-D model. As an example, the local gas hold-up in a cross-section S is given in Eq.3.1 (**Talvy et al., 2007b**).

$$\varepsilon_k = \langle \alpha_k \rangle = \frac{1}{S} \iint_A \alpha_k dS \quad (3.1)$$

where ε_k is the mean gas hold-up in the section, and α_k is the local gas hold-up at a specific point in the section. For the velocities, only the averaged axial components are different from zero and velocity vectors are thus reduced to scalars in the following.

3.2.2.2 Model structure: steady state hydrodynamic calculation

The hydrodynamic equations solved in the model are presented in the following sections.

3.2.2.2.1 MASS AND FLOW RATE CONSERVATION EQUATION

The mass balance equation in a diphasic system is written as follows (Talvy et al., 2007c) :

$$\frac{\partial \alpha_k \rho_k}{\partial t} + \nabla \alpha_k \rho_k \overline{U}_k = \overline{m}_K \quad (3.2)$$

where α_k is the volume fraction, ρ_k the density and \overline{U}_k the average velocity of phase k, which stands for gas (g) or liquid (l). The first term on the left side corresponds to mass variation over time in phase k, the second to mass transport by advection in the phase k, and the term on the right side (\overline{m}_K) corresponds to a statistical average mass transfer between the two phases.

In a 1-D system, Eq (3.2) becomes:

$$\frac{\partial (\varepsilon_k \rho_k)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z} (\varepsilon_k \rho_k U_{kz}) = \langle m_k \rangle \quad (3.3)$$

With a steady state flow and assuming that average mass transfer between phases implied in the mass balance is ignored, the equation becomes for the liquid and the gas, respectively:

$$\varepsilon_l \rho_l U_l = Cst = \rho_l \frac{Q_l}{S} = \rho_l j_l \quad (3.4)$$

$$\varepsilon_g \rho_g U_g = Cst = \rho_g \frac{Q_g}{S} = \rho_g j_g \quad (3.5)$$

where Q_k and j_k are the flow rate and the superficial velocity (m/s), respectively, of phase k.

If it is considered that there is no liquid flow ($j_l = 0$, as in a batch bubble column), only the equation for the gas phase remains and the previous equation becomes:

$$\varepsilon_g = \frac{j_g}{U_g} \quad (3.6)$$

since the sum of the different phase volume fractions is equal to unity:

$$\varepsilon_l = 1 - \varepsilon_g \quad (3.7)$$

3.2.2.2.2 GAS VELOCITY EQUATION: THE ZUBER AND FINDLAY DRIFT FLUX MODEL

Zuber and Findlay (1965) proposed the following interfacial momentum transfer model:

$$U_g = C_0 j + G = C_0 (j_g + j_l) + G \quad (3.8)$$

Gas velocity (U_g) has two components, the first one corresponds to the gas transport resulting from mixing (induced by mixture velocity j composed of gas and liquid superficial velocity, j_g and j_l respectively) and the second one is gas slip velocity G , which corresponds to gas transport due to buoyancy. The latter will be further developed below. The drift-flux coefficient (C_0) is related to the non-uniformity of the gas-liquid flow field in the cross section and can be estimated from computational fluid dynamics (CFD) simulations, as in (Talvy et al., 2005). However in the case of a

homogeneous flow it can be considered close to 1. On the other hand, its extreme value would be 1.5 in the case of a spatially heterogeneous bubbly flow (Talvy et al., 2005).

With a homogeneous flow ($C_0 = 1$) and without the liquid flow rate ($j_L = 0$), the previous equation becomes:

$$U_g = j_g + G \quad (3.9)$$

For homogeneous bubble columns at a low gas flow rate, $j_g \ll G$ and then the gas velocity U_g is finally assumed equal to the bubble slip velocity G . Note that when the drift flux coefficient C_0 is equal to 1, radial gas fraction profiles are not considered and thus radial interfacial forces as lift and turbulent dispersion are neglected for the axial resolution (Talvy et al., 2007b, 2007c).

3.2.2.2.3 GAS SLIP VELOCITY EQUATION

A force balance applied to a rising gas bubble in a quiescent liquid and at steady state where the bubble has reached its terminal rising velocity consists in equilibrium between buoyancy and drag forces. The added mass force can be neglected in 1D models after a very short distance from the bubble sparger, when the fully developed gas velocity is established (Colombet et al., 2013; Talvy et al., 2007b). Thus, after simplification, the slip velocity G between the two phases can be calculated using Eq 3.10 (Talvy et al., 2007b) :

$$G = \sqrt{\frac{4}{3} \frac{d_v^3 (\rho_l - \rho_g)}{d_p^2 \rho_l} \frac{g}{C_D}} \quad (3.10)$$

with g the gravity constant (9.81 m/s^2), d_v the volume equivalent bubble diameter (m), C_D the drag coefficient (-), and d_p the surface equivalent bubble diameter (m).

Furthermore, if the two equivalent diameters are considered equals ($d_v = d_p = d_B$, for a spherical bubble, for example) and if gas density is ignored in comparison with liquid density, the following simplified equation is obtained:

$$G = \sqrt{\frac{4}{3} d_B \frac{g}{C_D}} \quad (3.11)$$

3.2.2.2.4 DRAG COEFFICIENT EQUATION

Several correlations to calculate the drag coefficient exist in the literature, mostly expressed through dimensionless numbers. In the case of a single rigid particle, the following law involving the Reynolds number can be applied (Schiller and Naumann, 1938) :

$$C_D = \begin{cases} \frac{24}{Re} * (1 + 0.615 Re^{0.687}) & \text{for } Re < 1000 \\ 0.44 & \text{for } Re > 1000 \end{cases} \quad (3.12)$$

However, even though this correlation is often used for rigid spherical bubbles, it is not suitable for oblate ellipsoidal bubbles where the eccentricity effect drastically affects the drag coefficient (Talvy et al., 2007b).

With ellipsoidal bubbles, when the surface tension effects are significant, drag laws based on the Eötvös number are more relevant (**Dijkhuizen et al., 2010; Tomiyama et al., 1998**). The Eötvös number (E_o), the ratio of buoyancy to surface tension, is defined as follows:

$$E_o = \frac{(\rho_l - \rho_g) g d_B^2}{\sigma} \quad (3.13)$$

where d_B is the bubble diameter (m) and σ is the liquid surface tension (N/m).

To analyze the impact of the effects of contamination on hydrodynamics, two drag laws depending on the Eötvös number were selected. On one hand, the drag law proposed by (**Dijkhuizen et al., 2010**), developed using direct numerical simulation (DNS) and without contamination effects, is considered as representative of a perfectly clean bubble surface (Eq 3.14).

$$C_{D0} = \frac{8}{3} \frac{E_o}{\frac{19}{3} + \frac{2}{3} E_o} \quad (3.14)$$

On the other hand, the drag law proposed by (**Tomiyama et al., 1998**), based on experimental results, is considered as representative of classical experimental conditions with a slightly contaminated system (Eq 3.15).

$$C_{D0} = \max \left\{ \min \left\{ \frac{24}{Re} (1 + 0.15 Re^{0.687}), \frac{72}{Re} \right\}, \frac{8}{3} \frac{E_o}{(4 + E_o)} \right\} \quad (3.15)$$

These drag laws are based on single bubbles rising in liquid. For bubble swarms, a corrective factor, depending on gas hold-up, can be taken into account to consider a hindered slipping gas velocity (Eq 3.16; (**Wallis, 1961**)):

$$C_D = C_{D0} (1 - \varepsilon_g)^{-2} \quad (3.16)$$

3.2.2.2.5 HYDROSTATIC PRESSURE EQUATION AND IMPACT ON GAS SUPERFICIAL VELOCITY AND BUBBLE DIAMETER

Hydrostatic pressure at a height z in a deep bubble column is given by Eq 3.17.

$$P(z) = P_0 + \rho_m g (H - z) \quad (3.17)$$

where P_0 is the atmospheric pressure (Pa), g the gravity constant (m/s^2), H the column height (m), and ρ_m the mix density (or apparent density), defined as:

$$\rho_m = \rho_l (1 - \varepsilon_g) + \rho_g \varepsilon_g \quad (3.18)$$

Where ρ_l and ρ_g are the liquid and gas densities, respectively (kg/m^3).

Moreover, bubble diameter evolves with pressure according to the following equation (**Fayolle et al., 2010; Pöpel and Wagner, 1994**), derived from the ideal gas equation when the mass transfer can be ignored in the mass balance (Eq 3.19):

$$d_B = d_{B0} \sqrt[3]{\frac{P_0}{P}} \quad (3.19)$$

where d_{B0} is the bubble diameter at atmospheric pressure P_0 (m), and d_B the bubble diameter at pressure $P(z)$. The bubble diameter at atmospheric pressure is an input datum that must be measured or estimated since it depends on the gas sparger and water properties.

Gas superficial velocity j_{g0} at atmospheric pressure P_0 and superficial gas velocity j_g at pressure $P(z)$ are bound through the following equation, which is also derived from the ideal gas equation:

$$j_g(z) = j_{g0} \times \frac{P_0}{P(z)} \quad (3.20)$$

3.2.2.3 Mass transfer calculation

Even though the hydrodynamic phenomena can be considered to reach a steady state, mass transfer is fundamentally a transient phenomenon, using as input the hydrodynamic variables previously calculated (gas hold-up, gas velocity, pressure, and bubble diameter along the column height). To simulate oxygenation dynamics measured via reaeration tests (see 3.2), species transport equations are presented for oxygen in a two-phase flow as in **Talvy et al. (2007c)** and further modified in order to integrate the pressure effect for deep bubble columns.

When considering a perfectly mixed liquid without a liquid flow rate (batch bubble column), the oxygen concentration equation in the liquid is written as follows for a 1-D system:

$$\frac{\partial C_l(t)}{\partial t} = < \frac{k_L a(z)}{1 - \varepsilon_g(z)} (C_l^*(z, t) - C_l(t)) > \quad (3.21)$$

$$C_l^*(z, t) = He_{O_2}(T) M(O_2) x_g(z, t) P(z) \quad (3.22)$$

The oxygen concentration in the liquid (C_l) is expressed as a mass concentration and C_l^* is the saturation concentration at equilibrium. The variation of oxygen concentration in the liquid phase over time results from a transfer term from the gas to the liquid. The parameters $k_L a$ and ε_g are the mass transfer coefficient and gas hold-up, respectively, $He_{O_2}(T)$ the Henry law coefficient at temperature T for oxygen solubility in water (1.24×10^{-5} mol/m³/Pa at 25°C), $M(O_2)$ the oxygen molar mass (32 g/mol), $x_g(z)$ the local oxygen molar fraction in the gas phase at height z and $P(z)$ the local hydrostatic pressure.

Because of the perfectly mixed liquid assumption, only one equation for the whole liquid volume is considered, and the parameters $k_L a$, ε_g and C_l are taken as their average value in the column for the calculation. The oxygen concentration in the gas phase $C_g(z)$ can be calculated by the ideal gas equation from the oxygen molar fraction $x_g(z)$. As for the liquid, the oxygen concentration in the gas phase changes over time, although it is difficult to measure.

Thus, for low soluble gases, the 1-D transfer equation in the gas phase gives (Talvy et al., 2007b, 2007c) :

$$\frac{\partial \varepsilon_g(z) C_g(z, t)}{\partial t} + \nabla \varepsilon_g(z) C_g(z, t) U_g(z) = -k_L a(z) (C_l^*(z, t) - C_l(t)) \quad (3.23)$$

The first term on the left side corresponds to the evolution over time and the height of the oxygen concentration in the gas phase, the second to the transport term of oxygen by the gas velocity and the term on the right side is the oxygen transfer term from the gas to the liquid. In the gas phase, neither diffusion nor reaction is considered, since the model applies for homogeneously dispersed bubbly flow where no coalescence between bubbles occurs.

When solving the equation of the oxygen molar fraction in the gas phase, it gives an expression with a first order discretization for the gas phase convective transport:

$$\frac{\partial x_g(z, t)}{\partial t} = - \frac{k_L a(z)}{\varepsilon_g(z) \times \frac{M(O_2)}{RT} (P(z) - P_{vap})} (C_l^*(z, t) - C_l(t)) - \frac{U_g(z)}{\Delta z} \Delta x_g(z, t) \quad (3.24)$$

where $k_L a(z)$ is the local mass transfer coefficient, R the ideal gas constant (8.314 J/mol/K), and $U_g(z)$ the local bubble velocity. The gas concentration variation over time therefore results from a negative transfer term from the gas to the liquid, and from a transport term related to the gas phase velocity.

Equation 3.24 is solved for each z -position in the column following the z -axis: the oxygen molar fraction in the gas $x_g(z)$ is then calculated for each height over time with the local hydrodynamic parameters solved from the equations provided in section 3.2.2.2. In this model, the hydrodynamic parameters have a local impact on local mass transfer, but the reverse is not considered given that the oxygen depletion in the gas phase can be ignored for the gas flow rate (Baeten et al., 2020; Talvy et al., 2007c).

3.2.2.4 Models for mass transfer coefficients

The mass transfer coefficient $k_L a$ could be expressed in terms of the interfacial area a and the liquid-side mass transfer velocity k_L (m/s). To estimate the latter, there are several existing models and, as for the drag coefficient, they depend on whether or not the bubble interface is contaminated (Dani et al., 2007; Xu et al., 2018).

On one hand, the Higbie model is very commonly used and corresponds to the ideal case of perfectly clean (non-contaminated) bubbles, which have a renewable interface: the diffusional oxygen transfer in the liquid film surrounding gas bubbles occurs when the liquid elements reach the gas-liquid interface and during a short contact time (t_c) they attain the concentration equilibrium with the interface. Under these conditions, the mass transfer coefficient is written as (Higbie, 1935) :

$$k_L = 2 \sqrt{\frac{D}{\pi t_c}} = 2 \sqrt{\frac{D G}{\pi d_B}} \quad (3.25)$$

where k_L is the liquid side mass transfer coefficient (m/s), D the diffusion coefficient of oxygen in water (m^2/s), t_c the contact time (s), G the gas slip velocity (m/s) and d_B the bubble diameter (m).

On the other hand, the case of completely contaminated bubbles is described by the Frössling model, which assumes that bubbles have a rigid, non-renewable interface. The mass transfer coefficient is then expressed as (Frössling, 1938) :

$$k_L = \frac{D}{d_B} (2 + 0.6 \times Re^{0.5} \times Sc^{0.33}) \quad (3.26)$$

where the Reynolds and Schmidt dimensionless numbers are defined as:

$$Re = \frac{\rho_l d_B G}{\mu_l} \quad (3.27)$$

$$Sc = \frac{\mu_l}{\rho_l D} \quad (3.28)$$

where ρ_l and μ_l are respectively density (kg/m³) and the dynamic viscosity (Pa.s) of the liquid.

In practice, the k_L coefficients calculated with the Frössling correlation are much lower than with the Higbie model, i.e., that bubbles are contaminated and thus mass transfer is hindered due to the impurity molecules (e.g., surfactants) adsorbed at the bubble surface. The k_L coefficients measured are thus always between these two asymptotic and ideal cases (Xu et al., 2018).

3.2.2.5 Volumetric bubble interfacial area a

The interfacial area of spherical bubbles is given by (Eq 3.29):

$$a = \frac{6}{d_B} \varepsilon_g \quad (3.29)$$

where a is the bubble's interfacial area (m²/m³), d_B the bubble's diameter (m), and ε_g the gas hold-up (-).

If the bubbles are ellipsoidal, a correction factor that includes bubble eccentricity K (the ratio of major axis to minor axis) is taken into account (Cockx et al., 1997; Colombet et al., 2011) :

$$a = \frac{6}{d_B} \varepsilon_g f(K) \quad (3.30)$$

$$f(K) = \frac{1}{2 K^{1/3}} * (K + \frac{\ln (K + \sqrt{K^2 - 1})}{\sqrt{K^2 - 1}}) \quad (3.31)$$

Ellipsoidal bubbles have a higher interfacial area than spherical ones, thus $f(K)$ is always higher than 1.

3.2.2.6 Numerical method, boundary and initial conditions

First, the 1D steady state model runs using Matlab® for a fully developed bubbly flow (equations 3.5 to 3.20 with the algebraic solver function `fsolve`) in order to obtain axial profiles of the gas fraction, the gas velocity, the pressure and the bubble diameter along the column height (50 layers along z) as a function of the input parameters (inlet bubble diameter, gas flow rate, column height). Then, mass transfer between the gas and the liquid phase are calculated from hydrodynamics results with a transient solver (`ode23t` function for equations 3.21 to 3.24 with closure relations 3.25 to 3.31). This one-way coupling hydrodynamics and mass transfer is only valid with the assumptions that the mass transfer does not modify hydrodynamic parameters (i.e. similar molar flow rates in the gas phase).

For all the simulations presented hereafter, the initial molar fraction of oxygen in the gas was set to the inlet atmospheric condition at the bottom of the column ($x_g(z) = 0.21$) for all discretization layers along column height, physically corresponding to the fact that fresh air is continuously supplied in the column from the bottom, so that the oxygen molar concentration in the gas at the inlet does not vary. The initial dissolved concentration in the liquid phase was considered as an initial condition: depending on the simulated experiments, its value was set to the initial experimental dissolved oxygen concentration (mostly equal to zero). Finally, the simulated length of time is also adjustable, and it has to be long enough to allow the system to reach an equilibrium state, i.e. when the oxygen concentration in liquid is equal to the saturation value. The time to reach steady state conditions depends on the mass transfer from bubbles and on experimental conditions. For the bubble columns considered, the simulated time period lies between 500 and 20,000 s.

3.3 Results and discussion

3.3.1 Hydrodynamic characterization of the datasets studied

A pragmatic approach is applied to select the combinations of correlations and closure laws that make it possible to obtain a reliable description of the three experimental datasets with the 1-D model, in terms of global gas hold-up changes with the superficial gas velocity. The combinations of the closure laws considered are presented in Table 3-3.

Tableau 3-3 : Selected combinations of closure laws for appropriated modelling of each datasets.

Dataset	Pressure effects on bubble size and gas superficial velocity	Contamination effects regarding hydrodynamics (via the drag law considered)	Collective effects (via Eq. 3.16)
D1	Included	Contaminated (Tomiya drag law)	Included
D2	Included	Contaminated (Tomiya drag law)	Included
D3	Included	No contamination (Dijkhuizen drag law)	Included

The selected model structures include pressure and collective effects for all datasets. The drag law correlation of **Tomiya et al. (1998)** is used for the datasets obtained with unfiltered tap water (D1 and D2), whereas the correlation proposed by **Dijkhuizen et al. (2010)** is used to simulate the hydrodynamics for the dataset obtained with filtered tap water (D3). For each dataset, the model including the closure laws presented in Table 3-3 is called the “base model” in the following.

Figure 3-3 presents the simulated and experimental gas hold-up as a function of the superficial gas velocity.

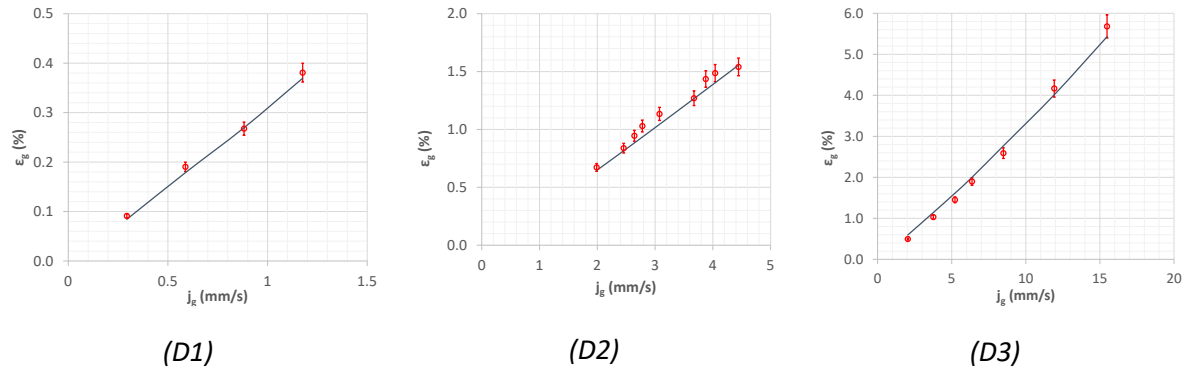


Figure 3-3 : Global gas hold-up for different superficial gas velocities and for each dataset – Base models (O: Experimental data / : — Base model / Error bars: $\pm 5\%$)

Good accuracy is obtained comparing simulated and experimental values (with an average difference between the experimental and simulated values of 4.6, 5.1 and 8.0 % for D1, D2 and D3 respectively). These results highlight that the 1-D model, considering appropriate closure laws, is relevant to model steady-state hydrodynamics of the bubble column along the vertical direction. The model is used in the following section in order to analyze the impact of selected closure laws and physics and to propose a deeper analysis of the different datasets on the basis of the effects considered (pressure, contamination effects and collective effects). The impact of the effects considered is analyzed per dataset by modifying the associated closure law in the model presented in Table 3-3.

3.3.1.1 Analysis of the pressure impact on hydrodynamics

The pressure effects on hydrodynamics is integrated into the model via bubble diameter (Eq. 3.19) and gas superficial velocity (Eq. 3.20), in order to take into account gas volume expansion (and associated bubble size) with variation in the local hydrostatic pressure. Since the mean bubble diameter varies with pressure following a cubic root law, the impact of pressure on this parameter is not as high as for gas superficial velocity.

Figure 3-4 presents the changes in the overall hold-up as a function of the superficial gas velocity for the modified model (i.e. without considering the pressure effect on bubble size and superficial gas velocity along z), the base model (Table 3-3) and the experimental data for each dataset.

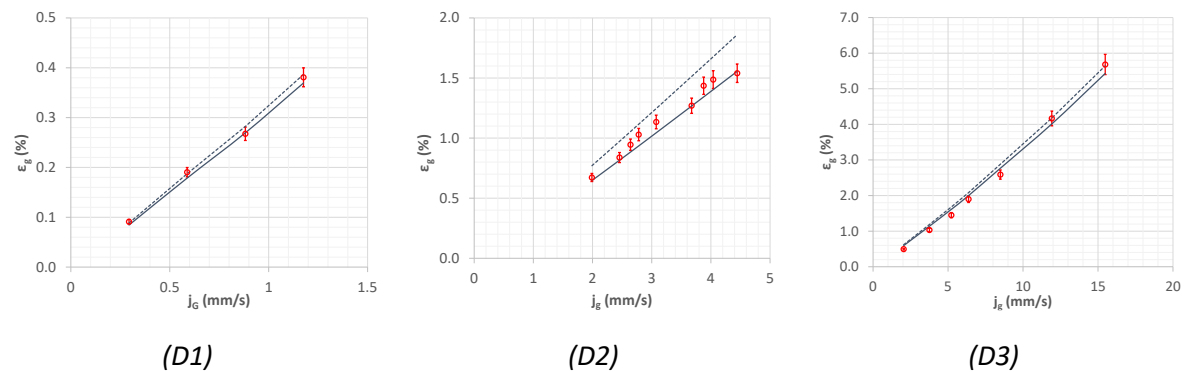


Figure 3-4 : Overall gas hold-up for different superficial gas velocities and for each dataset. Impact of the pressure effects (O: Experimental data / — : Base model (with pressure effects) / - - - : Modified model (without pressure effects) / Error bars: $\pm 5\%$)

As expected, the deviation due to the pressure effects is the most significant for dataset D2, because the water height is highest (4.5 m). The simulated gas hold-up is lower when the pressure effects are considered (28 % of the overall gas hold-up overestimation when the pressure impact is not accounted for), and experimental points are better described in that case. For datasets D1 and D3, since the water height is low (1.3 and 0.8 m, respectively), the simulation results are less affected.

For deep bubble columns, the impact of hydrostatic pressure on the gas-liquid hydrodynamics (i.e. ε_g) along the column height are significant mainly due to its influence on gas superficial velocity (and to a lesser extent due to its influence on bubble size) and must be taken into account to appropriately model gas hold-up. For low soluble gases and a bubble size between 3 and 5 mm, the slip velocity is almost constant and the effect of local pressure on gas hold-up can be estimated considering a linear correlation, deduced from the ideal gas law:

$$\frac{\varepsilon_g}{\varepsilon_{g0}} = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{P}{P_0} \right) \approx 1 - \frac{\rho_m g H}{2P_0} \approx 1 - \frac{H}{20} \quad (3.32)$$

Using Eq 3.32, the reduction of the overall gas hold-up over the column height can be roughly estimated at 5% per meter (1/20).

3.3.1.2 Analysis of contamination effects on hydrodynamics

The impact of contamination effects is then analyzed via the drag law considered included in the model.

Since the bubbles are ellipsoidal, drag laws applied to the three datasets are focused on correlations depending on the Eötvös number (see Table 3-3). Since different water qualities could be considered in regards to experimental conditions (clean water [filtered water] for D3 and contaminated water [tap water] for D1 and D2), consistent drag correlations were selected to analyze their impact on hydrodynamics. As indicated in section 3.2.2.4, Dijkhuizen's drag correlation was selected for clean bubble surfaces, whereas Tomiyama's was considered for contaminated bubbles. Please note that the base model for D3 included Dijkhuizen's drag law, whereas the base model for D1 and D2 included Tomiyama's drag law.

Figure 3-5 presents the overall hold-up as a function of the superficial gas velocity for models including Dijkhuizen's or Tomiyama's drag correlations and the experimental data for each dataset. The other closed laws considered in the respective models remain similar to Table 3-3.

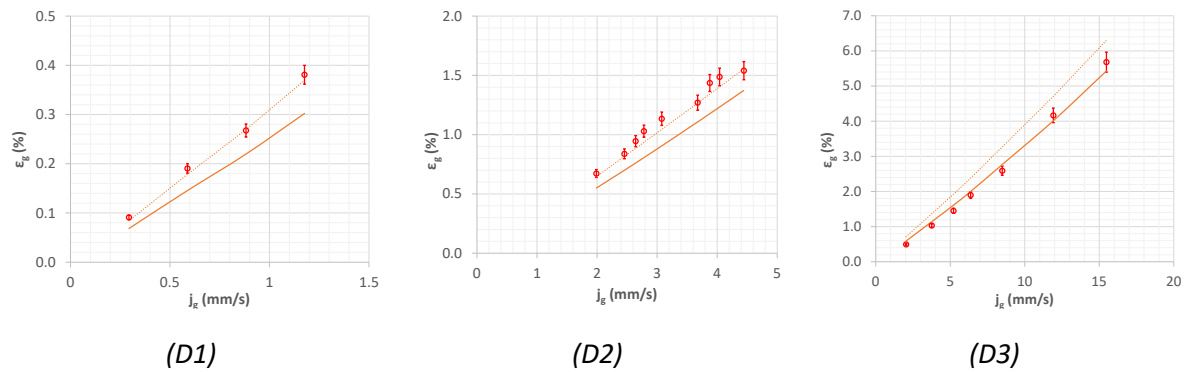


Figure 3-5 : Overall gas hold-up for different superficial gas velocities and for each dataset (O: Experimental data / — : Dijkhuizen's drag correlation / - - - : Tomiyama's drag correlation / Error bars: $\pm 5\%$)

The gas hold-up modeled was significantly impacted by the modification of the drag law considered, related to the contamination effects. The mean modeled values considering Tomiyama's drag correlation are from 15 to 22 % higher in comparison with modelled results obtained with Dijkhuizen's drag law, depending on the dataset considered and on the gas flow rate. The results obtained with the model that included Dijkhuizen's drag law fit the experimental points of dataset D3 better. This is a reasonable result related to the water quality of this dataset, which could be considered close to clear water (filtered water) and to the air diffuser (capillaries): the high air flow rate applied induces a lower contact time between nascent bubbles and liquid during bubble formation along the capillary (**Loubière et al., 2003**). In the case of datasets D1 and D2, the experimental data are better described by the model integrating Tomiyama's drag correlation. This is in accordance with the water quality during these experiments (tap water). Considering hydrodynamics, the bubble surface for datasets D1 and D2 must be considered as contaminated, whereas it must be considered as clean for dataset D3. These results highlight that drag laws must be selected in accordance with actual operating conditions in order to consider bubble interface contamination by real water.

Due to the narrow gas hold-up range in the datasets selected, the deviation in the simulation hydrodynamics results related to the collective effects are less significant than for the effects discussed above. The mean deviation is lower than 5%, with the highest values observed for dataset D3 due to the wider range studied in terms of gas hold-up. From the model (using Eq 3.16), we can estimate, by limited development of Eq 3.12, that the gas fraction increase is around 2% of relative deviation per percentage of gas hold-up. Therefore, the collective effect cannot be ignored for gas hold-up from 3% (deviation greater than 6%, the data are given in supplementary material – Figure S1).

3.3.2 Mass transfer results

The simulated time variation of the dissolved oxygen concentration in liquid $C_l(t)$ allows one to calculate an overall K_La coefficient for the entire bubble column (**Cockx et al., 2001**) through the following classical equation:

$$C_l(t) = C_l^* - (C_l^* - C_{l0}) e^{-K_La \cdot t} \quad (3.33)$$

where C_{l0} is the dissolved oxygen concentration at $t=0$ (mg/L) and K_La is the overall mass transfer coefficient (h^{-1}). For example, the experimental dissolved oxygen over time obtained by **Durán et al. (2016)** was compared with simulated dissolved oxygen (cf. supplementary materials – Figure S2).

K_La is also called the apparent mass transfer coefficient, since it assumes a constant equilibrium oxygen concentration C_l^* , although it actually varies with the oxygen concentration in gas during reoxygenation (see Eq. 3.22). Furthermore, the K_La coefficient is considered as a whole, with no distinction between K_L and a . This overall apparent K_La coefficient differs from the local k_La coefficient, which results from the multiplication of the local liquid-side mass transfer coefficient k_L (for example modeled with the Higbie penetration model) and the local interfacial area a . This local k_La coefficient varies locally essentially with z in a bubble column and can be averaged in the whole liquid volume. Moreover, it is quite difficult to determine experimentally k_L and a separately in a real bubble column (**Colombet et al., 2015, 2011**).

In the following section, global K_La values determined experimentally are compared with simulated global K_La coefficients with the Higbie and Frössling models for k_L , in order to see which transfer model fits the experimental points better when contamination of the bubbles is not fully controlled (real water).

3.3.2.1 Comparison of the Higbie and Frössling transfer models

Figure 3-6 presents the overall K_La versus the superficial gas velocity for the three experimental datasets and associated modelling results.

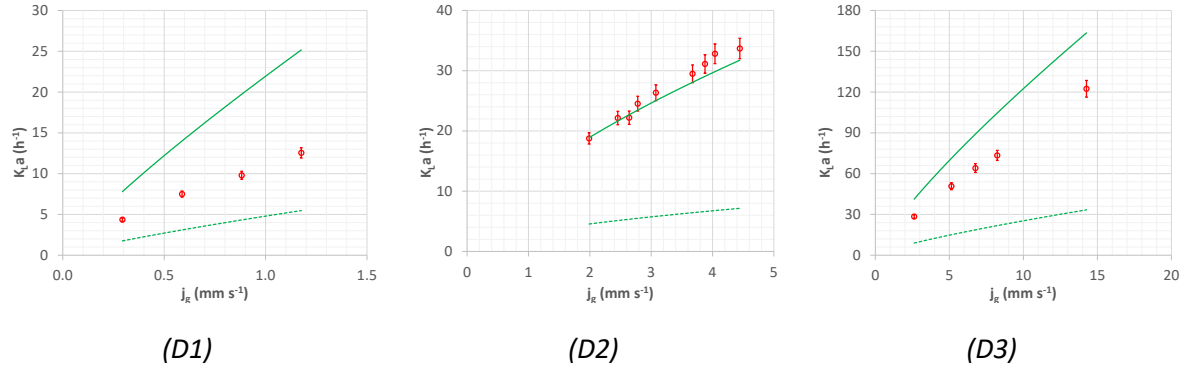


Figure 3-6 : Overall K_La transfer coefficients for different superficial gas velocities and for datasets D1–D3 (O: Experimental data / — : Modelled global K_La with Higbie model / - - : Modelled global K_La with the Frössling model / Error bars: $\pm 5\%$)

For dataset D3, the mass transfer is closer to the Higbie model (clean bubble surface) than to the Frössling model (contaminated bubble surface). From the 1-D transient simulation, it can be deduced that the transfer interface is slightly contaminated (bubble size between 2.3 and 3.4 mm) even if the hydrodynamic simulation results show that filtered water does not reduce the bubble velocity (apparent clean interface for the drag force).

For dataset D2, the water quality is lower (tap water) and consequently induces contamination of the bubble surface, affecting the drag coefficient, which is confirmed by the hydrodynamics results (see section 3.3.1.2). However, Figure 3-6 highlights that the overall mass transfer is not really impacted because the transfer simulation shows that the non-contaminated Higbie model (clean bubbles) works better than the Frössling model (fully contaminated bubbles). This apparent contradiction can be explained by the fact that for dataset D2, the bubbles are larger and ellipsoidal, between 3 and 4 mm. In this case, the contaminants at the bubble interface are transported to the rear of the bubble where local mass transfer is drastically lower than at the front where interface renewal is greater (**Dani et al., 2007; Figueroa-Espinoza and Legendre, 2010**). For this reason, the bubble slip velocity could be reduced for large bubbles in tap water as observed in Figure 3-5, but not the mass transfer velocity (Figure 3-6).

For dataset D1, experimental K_La values are much lower compared to D2 and D3 and seem slightly closer to the Frössling model. This can be related to the fact that bubbles in these experiments are significantly smaller and spherical (below 1.8 mm) and more likely to be contaminated, with a more rigid and less renewable bubble interface. In this case, the slip velocity behaves like a completely contaminated bubble and the mass transfer velocity is clearly lower than for larger bubbles also with tap water (as observed for dataset D2).

These results confirm that when tap water is used, the Higbie transfer model is the most accurate for large bubbles (dataset D2, bubble size, 3.0–4.0 mm) and less relevant for small ones (dataset D1, bubble size, 1.5–1.8 mm), with significant contamination effects. For filtered water, the Higbie model is also the most suitable, although the presence of small contaminants could have slightly reduced the mass transfer velocity for intermediate bubble size (2.3–3.4 mm) because the water could not be

considered as really pure (Colombet et al., 2015) except when rigorous experimental conditions are maintained with ultra-pure water. A complementary discussion on transfer contamination is detailed in section 3.3.2.3 after analysis of the depletion effect which can imply bias in transfer velocity estimation.

3.3.2.2 Comparison of mean local $k_L a$ and overall $K_L a$: the oxygen depletion effect

In the previous discussion, the apparent $K_L a$ is compared to the simulation results with two asymptotic models for clean bubble interfaces (Higbie model) and fully contaminated ones (Frössling model). During this comparison, the pressure effect on the gas fraction, the bubble diameter and the oxygen saturation was modeled to take into account all the relevant physical phenomena that modify hydrodynamic and mass transfer parameters. With the “base model” (Table 3-3), it is also possible to clarify the effect of pressure and height on the mass transfer. In Figure 3-7, experimental overall $K_L a$ values are compared to both simulated overall $K_L a$ coefficients and to mean local values (spatial average $\langle k_L a \rangle$) calculated using the Higbie transfer model for simplicity.

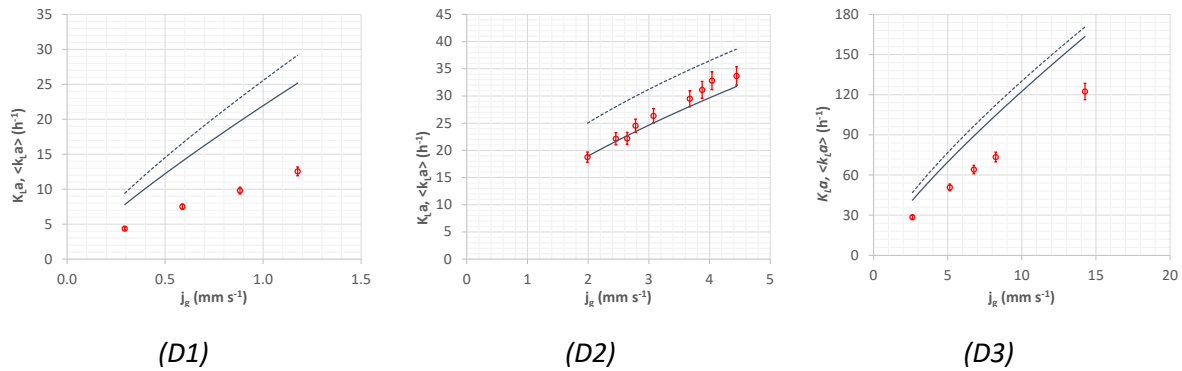


Figure 3-7 : Experimental and modeled overall $K_L a$ and mean local $\langle k_L a \rangle$ for different superficial gas velocities and for datasets D1–D3 (O : Experimental global $K_L a$ / — : Simulated global $K_L a$ with the Higbie model / - - - : Simulated spatial average $\langle k_L a \rangle$ with the Higbie model / Error bars: $\pm 5\%$)

The simulated global $K_L a$ coefficients are systematically lower than the simulated mean local $\langle k_L a \rangle$ coefficients, the difference stemming from the oxygen depletion in the gas (due to the column height) and thus a decrease of the equilibrium concentration C_i^* (Eq 3.24). Simulated global $K_L a$ coefficients describe the experimental points more accurately since this parameter is deduced from reoxygenation curves versus time as for the experimental data, especially for dataset D2. Indeed, oxygen depletion in the gas is significant due to the high column height (4.5 m of water). For the other datasets, given the high superficial gas velocity and the low column height in the case of D3 (0.76 m), the difference between mean local and global $K_L a$ is the least significant. Surprisingly for dataset D1, since the column height is relatively low (1.3 m) and the superficial gas velocity is very low, the difference between the two $K_L a$ coefficients modeled is also relatively substantial (mean difference, 55%)

To understand and model this depletion effect in the gas, a simplified analysis is proposed in the following section.

3.3.2.3 When mean local $\langle k_L a \rangle$ differs from overall $K_L a$: modeling the depletion effect

The following development aims at explaining more deeply the effect of superficial gas velocity, column height and other process parameters on oxygen depletion. Compared to the mass transfer time ($1/K_L a$), the bubble convection time or residence times (H/U_g) are smaller. The convection time

and mass transfer time values are provided in the supplementary materials for the three datasets (Table S1).

Moreover, oxygen depletion in the gas occurs essentially at the beginning of the reoxygenation process, during a transient period ($t \ll 1/K_L a$) when the oxygen concentration in the liquid $C_l(t)$ is close to 0 mg/L. During this transient period, Eq. 3.23 becomes:

$$\nabla \varepsilon_g C_g(z) U_g = -k_L a (C_l^*(z) - 0) \quad (3.34)$$

It appears that the depletion in the gas is given by the mass transferred. By estimating the oxygen saturation with the Henry' law (Eq. 3.22) and the interfacial area (Eq 3.29), with the exchange coefficient m (Talvy et al., 2007b, 2007c) , Eq 3.34 becomes:

$$\nabla \varepsilon_g C_g(z) U_g = -k_L \frac{6}{d_B} \cdot m \cdot C_g(z) \quad (3.35)$$

with $m = He_{O_2} \cdot RT$.

Assuming that the gas velocity is kept constant along the height of the bubble column, the integration gives the following variation in the concentration along z :

$$\varepsilon_g C_g(z) = \varepsilon_{g0} C_{g0} \cdot e^{-k_L \frac{6}{d_B} \cdot m \cdot \frac{z}{U_g}} \quad (3.36)$$

The depletion in the gas (C_g/C_{g0}) decreases exponentially with (i) the mass transfer velocity k_L , (ii) the solubility m (iii) the distance from the diffuser z , and (iv) the inverse of bubble size and the associated slip velocity.

In this equation, $\varepsilon_g C_g$ is the mass of soluble gas per unit of volume (m_g) by introducing a depletion factor (DF) for the whole column as:

$$DF = k_L \frac{6}{d_B} \cdot m \cdot \frac{H}{U_g} \quad (3.37)$$

It is possible to estimate the decreasing ratio of mass in the gas along the height the bubble column using Eq 3.38:

$$\frac{m_g}{m_{g0}} = \frac{\varepsilon_g C_g}{\varepsilon_{g0} C_{g0}} = e^{-DF \cdot \frac{z}{H}} \quad (3.38)$$

For example, the depletion factor for D1 and D2 are close to 0.3 and 0.4, respectively, which corresponds to depletion loss in the gas of 26% and 33 % using Eq 3.37 at the top of the bubble column. For dataset D3, the depletion factor is close to 0.05 and the decrease in the oxygen molar fraction in the gas is lower than 5%. In our study, as the solubility is constant and the mass transfer velocity k_L is quite constant for millimetric bubbles for oxygen, the substantial variation in the depletion factor is mainly related to the length ratio H/d_b , which is about 800, 1200 and 200 for datasets D1,D2 and D3, respectively. To illustrate the accuracy of the depletion model (Eq. 3.38), Figure 3-8 presents the oxygen molar fraction in the gas as a function of the distance from the diffusers at the initial time ($t=0$) and in the stationary state ($t \gg 1/K_L a$) for D1 and D2 when the depletion effect is significant (Figure 3-7).

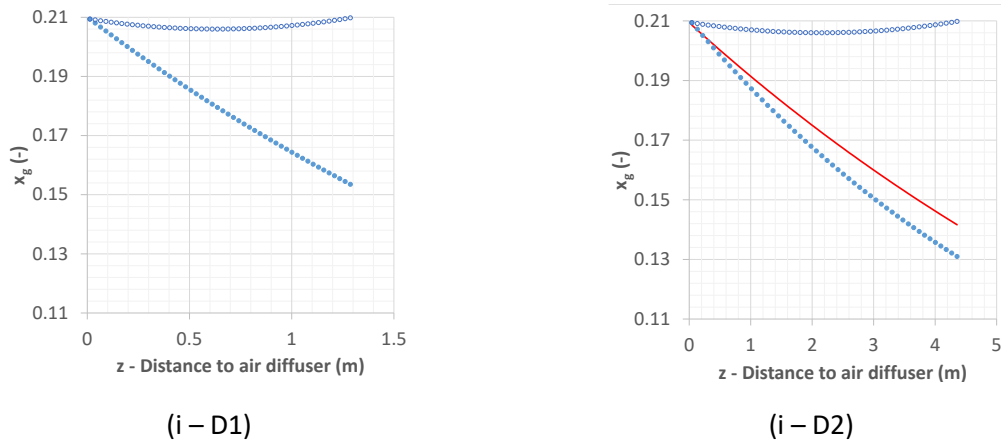


Figure 3-8 : x_g as a function of z (distance from the diffuser) – Modelled for $C_l = 0$ mg/L (●) / Depletion law for $C_l = 0$ mg/L (—) / Modelled (○) for $C_l = C_l^* - j_g = 1.2$ and 4.4 mm/s for D1 and D2 respectively

The oxygen depletion estimated with the relation (Eq. 3.38) is in good accordance with the comprehensive 1D model. The depletion factor (Eq. 3.37) can then be used to identify the experimental conditions inducing a significant impact of the gas depletion effects on the global mass transfer coefficient K_{La} .

This depletion effect is clearly increased by (i) a long bubble residence time ($H/U_g = 4.3$ s and 18.3 s for D1 and D2, respectively), (ii) the high solubility of the gas considered passing into the liquid phase (here $m = 0.0034$ is relatively low for oxygen in water) and (iii) the low transfer time at the bubble scale ($d_B/k_L = 2.8$ s and 9.4 s for D1 and D2, respectively).

In comparison with the relative simplicity of the estimation of the mean bubble residence time (H/U_g) in a bubble column, it is much more difficult to determine the bubble transfer time (d_B/k_L) precisely, which can vary along the column height due to substantial bubble size changes with increasing hydrostatic pressure. However, this bubble transfer time could be estimated through the inverse ratio of the global volumetric transfer coefficient to the global gas fraction (K_{La}/ϵ_g). This last parameter is also close to the transfer number N_T (Figure 3-2) but both approximations imply a certain bias because all the nonlinearity effects on average values are ignored.

3.3.2.4 Mass transfer and bubble contamination angle

In this section, the level of bubble contamination is studied through their contamination angle, according to the theory developed by **Sadhal and Johnson (1983)**. The level of bubble contamination is characterized through a contamination angle, corresponding to the contaminated interface occupied by the adsorbed contaminants at the bubble surface, expressed as the angle between the rear of the bubble and the limit of the contaminated surface. The contamination angle varies between 0° and 180° , depending on whether the bubble surface is completely clean or completely contaminated, respectively. For all experimental data, the experimental global K_{La} coefficients lie between the ideal K_{La} coefficients obtained with the Higbie and Frössling mass transfer models (Figure 3-6). The contamination angle is obtained from the dimensionless drag coefficient with the following correlation (**Dani, 2007; Sadhal and Johnson, 1983**) :

$$C_D^*(\theta_{cap}) = \frac{1}{2\pi} ((2\theta_{cap}) + \sin(\theta_{cap}) - \sin(2\theta_{cap}) - \frac{1}{3}\sin(3\theta_{cap})) \quad (3.39)$$

with θ_{cap} the drag contamination stagnant cap angle (in radian).

On the other hand, the dimensionless drag coefficient $C_D^*(\theta_{cap})$ is related to the Sherwood numbers of the bubble (experimental), of a completely clean bubble (Higbie correlation) and of a completely contaminated bubble (Frössling correlation) as follows (Dani, 2007; Takemura and Yabe, 1999; Xu et al., 2018) :

$$C_D^*(\theta_{cap}) = 1 - \left(1 - \frac{Sh - Sh_{Higbie}}{Sh_{Frössling} - Sh_{Higbie}} \right)^2 \quad (3.40)$$

with Sh the experimental Sherwood number, Sh_{Higbie} the Sherwood number of a completely clean bubble and $Sh_{Frössling}$ the Sherwood number of a completely contaminated bubble.

The Sherwood number is defined as follows:

$$Sh = \frac{k_L \times d_B}{D} \quad (3.41)$$

with k_L the experimental mass transfer velocity estimated from the experimental reoxygenation curves using the 1-D model (via iterative calculation).

Table 3-4 presents the Sherwood numbers of the real bubbles calculated from the comprehensive model of a completely clean and a completely contaminated equivalent bubble. The transfer contamination angle is then deduced from Eq. 3.39 for datasets D1 and D3.

Tableau 3-4 : Sherwood numbers and contamination angle for the experimental dataset D1 and D3

Dataset	j_g expressed at P_{atm} (mm/s)	d_b expressed at P_{atm} ($\times 10^{-3}$ m)	k_L ($\times 10^{-4}$ m/s)	Sh_{exp} (-)	Sh_{Higbie} (-)	$Sh_{Frössling}$ (-)	θ_{cap} (°)
D1	0.29	1.48	3.80	313	625	120	105
	0.59	1.69	3.47	286	568	109	105
	0.88	1.71	3.01	248	562	108	113
	1.18	1.83	3.00	247	536	103	110
D3	2.62	2.34	3.85	450	699	134	88
	5.14	2.58	3.65	471	716	138	86
	6.76	2.72	3.58	487	723	140	84
	8.23	2.84	3.42	486	729	141	85
	14.26	3.28	3.47	569	749	147	73

For each dataset, the contamination angles vary slightly with superficial gas velocity and the water quality appears to be specific for each dataset.

For dataset D1, the transfer contamination angle lies between 105 and 113°, which indicates a high level of bubble contamination that substantially reduces the mass transfer compared to an equivalent clean bubble (around 50%). This angle designation is consistent with the fact that the experimental hydrodynamics (i.e. ε_g) of dataset D1 was adequately reproduced using a drag coefficient set for contaminated bubbles (Figure 3-5).

For dataset D3, lower transfer contamination angle values were obtained in comparison with dataset D1. Even if the water is very clean (filtered tap water), the mass transfer is still hindered compared to a clean equivalent bubble (between 24 and 36%), but the decrease of the drag coefficient due to the water contamination remains negligible (Figure 3-5).

For dataset D2, since experimental global K_{La} values fit well with the Higbie model (see Figure 3-6), it can be deduced that bubbles have transfer contamination angles close to zero and are equivalent to completely clean bubbles. This means that the greater the bubble size, the less the drag contamination impact has an effect on mass transfer: 1.5-, 2.5- and 3.5-mm bubbles correspond to 105°, 88° and 0° contamination angles, respectively. This means that when the bubble size increases, it becomes ellipsoidal and the mass transfer occurs intensively at the front of the bubble where the transfer contamination tends to become negligible (**Dani et al., 2021**).

3.3.2.5 Discussion on mass transfer modeling

Hydrodynamic parameters calculated with the 1D model in steady state conditions (bubble diameters, gas hold-up and gas velocity) were validated and then used in order to calculate reoxygenation and global K_{La} mass transfer coefficients. A distinction was made between mean local $\langle k_{La} \rangle$ and apparent global K_{La} . The latter is calculated from simulated curves of dissolved oxygen concentration over time, and takes into account oxygen depletion in the gas phase and therefore the variation in the equilibrium concentration versus time. A comparison with the experimental data of global K_{La} therefore provides accurate results, especially for deep bubble columns and/or a low gas flowrate when oxygen depletion in the gas increases (Eq. 3.36). The depletion factor (Eq. 3.37) is adapted to characterize and interpret situations where the effects of oxygen depletion influence the gas–liquid transfer due to gradient in the gas phase composition.

Moreover, for the three experimental datasets, the Higbie and Frössling mass transfer models were used to interpret mass transfer results with no bias related to the quality of the liquid phase composition (**Baeten et al., 2020**). When tap water was used for experiments (D1 and D2), the smaller the bubbles, the more they were contaminated. Consequently, the global mass transfer coefficient could be drastically reduced (up to 50% by model comparison with clean bubbles with dataset D1). Surprisingly, even if contamination reduces the slip velocity in dataset D2, mass transfer is not affected by the contamination because the bubbles are big enough to be ellipsoidal: in this case the transfer occurs mainly at the front of the bubble interface (**Dani et al., 2006**). For dataset D3 obtained using filtered water, the mean slip velocity of bubbles corresponds to that obtained for pure water. However, for this relatively clean water, the bubble surface was still characterized as partially contaminated (contamination angle estimated at 100°).

In the context of oxygen transfer in aeration processes, it is then possible to ignore the effect of contamination with tap water for ellipsoidal bubbles greater than 3 mm (as for dataset D2). However,

for small bubble sizes (under 2 mm), the quality of the tap water can drastically reduce the mass transfer (more than 50% compared to clean bubbles). In both situations, depletion effects are substantial in deep bubble columns but must also be taken into account for relatively low column height and specific studies (low mean bubble size or high solubility of the component studied).

In addition, the impact of eccentricity on the modeled mass transfer coefficient is given in supplementary information (Figure S3). For datasets D2 and D3, the mean local $\langle k_{La} \rangle$ values modeled are slightly higher when eccentricity is taken into account. To remain physically consistent, eccentricity must be systematically considered to calculate the interfacial area of ellipsoidal bubbles.

3.4 Conclusions

The main conclusions of this study are:

- The proposed 1-D model is able to reproduce experimental hydrodynamic (global gas hold-up) for three different experimental datasets in bubble columns with an air/clean water system. The closure laws considered must be rigorously selected in order to integrate the impact of contamination, collective and pressure effects on hydrodynamics, and the mass transfer parameters. Depending on the experimental water height, hydrostatic pressure influences on the hydrodynamic parameters plays a major role and must be considered in the model (an approximately 5% decrease on gas hold-up per meter of depth). The importance of the drag law choice is also highlighted, depending on the water quality and its influence on bubble contamination.
- The gas oxygen concentration significantly depletes due to the transfer to liquid and thus the equilibrium concentration varies, which explains the difference between the mean local $\langle k_{La} \rangle$ and global K_{La} coefficients. This difference becomes substantial for high soluble gas with high transfer rate and/or a high bubble column and/or low mean bubble size d_b . A depletion factor is proposed in order to warn of situations in which the experimental determination of the overall mass transfer coefficient must be conducted rigorously by considering this depletion effect through an estimation from the reoxygenation curves. The substantial impact of the depletion in the gas phase composition is drastically increasing with the length ratio H/d_b .
- The suitability of the Higbie k_L model for clean water transfer modelling is demonstrated, especially for ellipsoidal bubbles over 3 mm in full-scale aeration processes. For smaller bubbles or millimetric bubbles, mass transfer is more sensitive to water contamination and water quality remains the most important factor.
- The impact of water quality on oxygen transfer can be estimated by the contamination angle using comprehensive 1D modeling as developed in this study. This will make it possible to provide a more in-depth understanding of the impact of water quality and the main operating parameters on mass transfer in industrial tanks where the liquid phase is a complex matrix.

3.5 Acknowledgments

INRAE and SUEZ Environment are gratefully acknowledged for funding this study, as are Damien Colombet and Andreia Amaral for sharing their experimental datasets.

3.6 References

- Amaral A., Bellandi G., Rehman U., Neves R., Amerlinck Y., Nopens I., 2018. Towards improved accuracy in modeling aeration efficiency through understanding bubble size distribution dynamics. *Water research*, 131, 346-355.
- Baeten J.A., van Loosdrecht M., Volcke E., 2020. When and why do gradients of the gas phase composition and pressure affect gas-liquid transfer? *Water Research*, 178,
- Besagni G., Brazzale P., Fiocca A., Inzoli F., 2016, Estimation of bubble size distributions and shapes in two-phase bubble column using image analysis and optical probes, *Flow. Meas. Instrum.*, 52, 190-207
- Capela, S., Héduit, A., Roustan, M. (2002) Influence of the water depth on fine bubble aeration efficiency in the presence of surfactants. In: *Proceedings of IWA 3rd World Water Congress*, Melbourne, AUS, 7–12 April 2002.
- CamachoRubio F., Garcia J.L., Molina E., Chisti Y., 2001. Axial inhomogeneities in steady-state dissolved oxygen in airlift bioreactors: predictive models. *Chemical Engineering Journal* 84(1), 43–55.
- Cockx, A., Liné, A., Roustan, M., Do-Quang, Z., Lazarova, V., 1997. Numerical simulation and physical modelling of the hydrodynamics in an airlift internal loop reactor. *Chemical Engineering Science* 52, 3787–3793.
- Cockx, A., Do-Quang, Z., Audic, J.M., Liné, A., Roustan, M. 2001. Global and local mass transfer coefficients in waste water treatment process by computational fluid dynamics. *Chemical Engineering and Processing*, 40 (2), pp. 187-194.
- Colombet D., Legendre D., Cockx A., Guiraud P., Risso F., Daniel C., Galinat S. 2011. Experimental study of mass transfer in a dense bubble swarm. *Chemical engineering science*, 66, 3432-3440
- D. Colombet, A. Cockx, P. Guiraud, D. Legendre, E. Cotton, D. Petitqueux, C. Daniel, 2013. Experiments and modeling of a draft tube airlift reactor operated at high gas throughputs. *Chemical Engineering Science*, 104, 32-43
- Colombet D., Legendre D., Risso F., Cockx A., Guiraud P., 2015. Dynamics and mass transfer of rising bubbles in a homogeneous swarm at large gas volume fraction, *Journal of Fluid Mechanics*, [Volume 763](#), pp 254 – 285.
- Dani A. 2007. Transfert de masse entre une bulle et un liquide: simulations numériques directes et fluorescence induite par nappe laser. Thèse de Doctorat de l'INSA de Toulouse.
- Dani, A., Cockx, A., Guiraud, P. 2006. Direct Numerical Simulation of Mass Transfer from Spherical Bubbles: The Effect of Interface Contamination at Low Reynolds Numbers. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 4, art. no. A2, pp. 1-23.
- Dani A., Guiraud P., Cockx A., 2007. Local Measurement of Oxygen Transfer around a Single Bubble by Planar Laser-Induced Fluorescence. *Chemical Engineering Science*, 62, 24, 7245-7252.
- Deckwer W.D., Burckhart R., Zoll G., 1974. Mixing and Mass transfer in tall bubble columns. *Chemical Engineering Science*, 29, 2177-2188.
- Dhaouadi H., Poncin S., Hornut J.M., Midoux N. 2008. Gas-liquid mass transfer in bubble column reactor: an analytical solution and experimental confirmation. *Chem. Eng. and Processing*, 47, 548-556.

Dijkhuizen W., Roghair I., Van Sint Annaland M., Kuiper J.A.M., 2010. DNS of gas bubble behaviour using an improved 3D front tracking model – Drag force on isolated bubbles and comparison with experiments. *Chemical Engineering Science*, 65, 1415-1426.

Duran Quintero C., 2015. Comportement rhéologique des boues activées : mesures, modélisation et impact sur le transfert d'oxygène dans les bioréacteurs aérés. PhD thesis, Université de Toulouse, 253 p. +appendix

Duran C., Fayolle Y., Pechaud Y., Cockx A., Gillot S., 2016. Impact of suspended solids on the activated sludge non-newtonian behavior and on oxygen transfer in a bubble column. *Chemical Engineering science*, 141, 154-165.

Fayolle, Y., Gillot, S., Cockx, A., Bensimhon, L., Roustan, M., Hédut, A. 2010. In situ characterization of local hydrodynamic parameters in closed-loop aeration tanks. *Chemical Engineering Journal*, 158 (2), pp. 207-212.

Fayolle Y., Cockx A., Legendre D., Gillot S. 2011. Analysis of bubble populations obtained in full-scale aeration tanks in clean water. *Gas liquid and gas liquid solid reactor engineering congress GLS10*, 26-29 June 2011, Braga, Portugal

Figuerola B., Legendre D., 2010. Mass or heat transfer from spheroidal gas bubbles rising through a stationary liquid. *Chemical Engineering Science*, 65,23, 6296-6309.

Frössling, N., 1938. Über die verdunstung fallenden tropfen. *Gerlans Beitäge Geophysik*, 52,1, 170-216.

Gillot, S., Capela-Marsal, S., Roustan, M., Hédut, A. 2005. Predicting oxygen transfer of fine bubble diffused aeration systems - Model issued from dimensional analysis. *Water Research*, 39 (7), pp. 1379-1387.

Gillot S., Hédut A., 2008. Prediction of alpha factor values for fine pore aeration systems. *Water Science Technology*, 57,8, 1265-1269.

Giovannettone J.P., Gulliver J.S., 2008. Gas Transfer and Liquid Dispersion inside a deep airlift reactor. *AIChE Journal*, 54,4, 850-861.

Giovannettone J.P., Tsai E., Gulliver J.S., 2009. Gas void ratio and bubble diameter inside a deep airlift reactor. *Chemical Engineering Journal*, 149, 301-310.

Higbie, R., 1935. The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure. *Transactions AIChE Journal*, 31, 365-389.

Jimenez, M., Dietrich, N., Grace, J.R., Hébrard, G. 2014. Oxygen mass transfer and hydrodynamic behaviour in wastewater: Determination of local impact of surfactants by visualization techniques. *Water Research*, 58, pp. 111-121.

Longo, S., d'Antoni, B.M., Bongards, M., Chaparro, A., Cronrath, A., Fatone, F., Lema, J.M., Mauricio-Iglesias, M., Soares, A., Hospido, A. 2016. Monitoring and diagnosis of energy consumption in wastewater treatment plants. A state of the art and proposals for improvement. *Applied Energy*, 179, pp. 1251-1268.

Loubière K., Hébrard G., Guiraud P., 2003. Dynamics of bubble growth and detachment from rigid and flexible orifices. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 81,3-4, 499-507.

Manjrekar O.N., 2016. Hydrodynamics and Mass Transfer in Bubble Columns. *Engineering and Applied Sciences Theses and Dissertations*, 160.

- Mudde R.F., Harteveld W.K., van den Akker H.E.A., 2009, Uniform flow in bubble columns, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 48, 148-156.
- Pöpel H.J., Wagner M., 1994. Modelling of Oxygen Transfer in Deep Diffused-Aeration Tanks and Comparison with Full-Scale Plant Data. *Wat. Sci. Tech.*, 30, 4, 71-80.
- Rosso D., Stenstrom M. K., 2005. Economic Implications of Fine Pore Diffuser Aging. *Proc. Water Environ. Fed.*, 78, 810-815.
- Rosso D., Huo D.L., Stenstrom M. K., 2006. Effects of interfacial surfactant contamination on bubble gas transfer. *Chemical Engineering Science*, 61, 5500-5514.
- Roustan, M. 1996. Quels sont les critères d'extrapolation pour les systèmes d'aération? *Tribune de l'Eau*, 1, pp. 53-58.
- Rubio F., Garcia J., Molina E., Chisti Y., 1999. Steady-state axial profiles of dissolved oxygen in tall bubble column bioreactors. *Chemical Engineering Science*, 54, 1711-1723.
- Sadhal S.S., Johnson R.E., 1983. Stokes Flow Past Bubbles and Drops Partially Coated with Thin Films. Part I. Stagnant Cap of Surfactant Film – Exact Solution. *J. Fluid Mech.*, 126, 237-250.
- Sardeing R., Painmanakul P., Hébrard G., 2006. Effect of surfactants on liquid-side mass transfer coefficients in gas-liquid systems : A first step to modeling. *Chemical Engineering Science*, 61, 6249-6260.
- Schiller L., Naumann Z., 1938. A drag coefficient correlation. *Z Ver Deutsch Ing.*, 77-318
- Shah Y.T., Kelkar B.G., Godbole S.P., 1982. Design Parameters Estimations for Bubble Column Reactors. *AIChE Journal*, 28,3, 353-379.
- Takemura F., Yabe A., 1999. Rising Speed and Dissolution Rate of a Carbon Dioxide Bubble in Slightly Contaminated Water. *J. Fluid Mech.*, 378, 319-334.
- Talvy S., Cockx A., Liné A., 2007a. Modeling of oxygen mass transfer in a gas-liquid airlift reactor. *AIChE Journal*, 53, 2, 316-326.
- Talvy S., Cockx A., Liné A., 2007b. Modeling hydrodynamics of gas-liquid airlift reactor. *AIChE Journal*, 53, 2, 335-353.
- Talvy, S., Cockx, A., Line, A. 2005. Global modelling of a gas-liquid-solid airlift reactor. *Chemical Engineering Science*, 60 (22), pp. 5991-6003.
- Tomiyama A., Kataoka I., Zun I., Sakaguchi T., 1998. Drag coefficients of single bubbles under normal and micro gravity conditions. *JSME International Journal*, 41, 2.
- Vitankar, V.S., Joshi, J.B., 2002. A comprehensive one-dimensional model for prediction of flow pattern in bubble columns. *Chemical Engineering Research and Design* 80 (5), 499–512.
- Wallis, G.B., 1961. Some hydrodynamic aspects of two-phase flow and boiling. *Int. Heat Transfer Conference*, Boulder, Colorado USA, 2, 319-325.
- Wallis, G.B., 1969. *One Dimensional Two-phase Flow*. Mcgraw Hill.
- Xu F., Cockx A., Hébrard G., Dietrich N., 2018. Mass transfer and diffusion of a single bubble rising in polymer solutions. *Ind. Eng. Chem. Re.*, 57, 15181-15194.

Zlokarnik, M. 1979. Sorption characteristics of slot injectors and their dependency on the coalescence behaviour of the system. *Chemical Engineering Science*, 34 (10), pp. 1265-1271.

Zlokarnik M., 2005. Sorption characteristics for gas-liquid contacting in mixing vessels. *Advances in Biochemical Engineering*, 8, 133-151.

Zuber N., Findlay J.A., 1965. Average volumetric concentration in two phase systems. *Trans. ASME. J. of Heat Transfer*, 87-453.

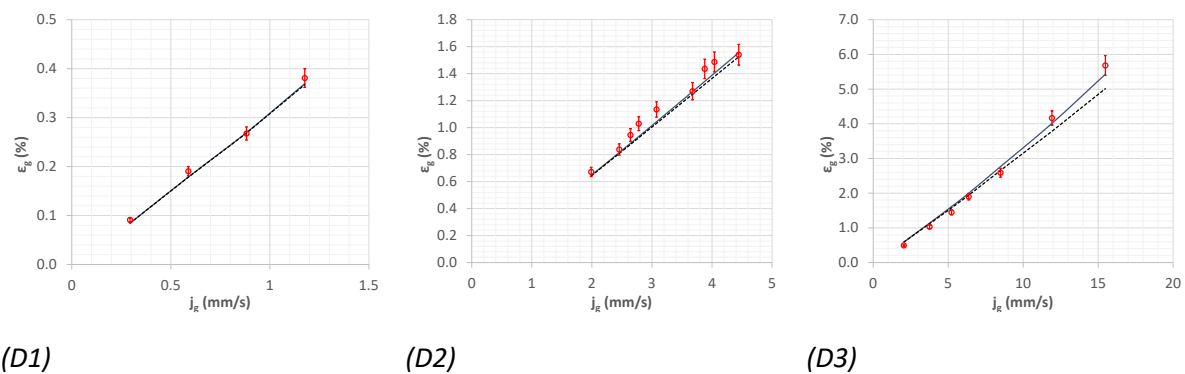
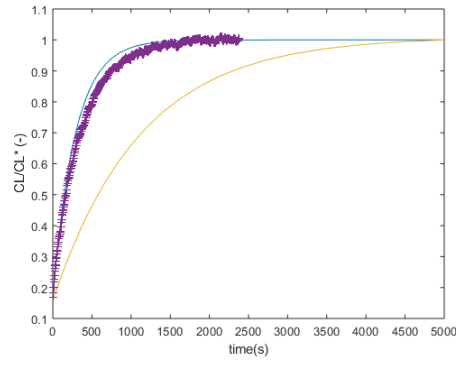
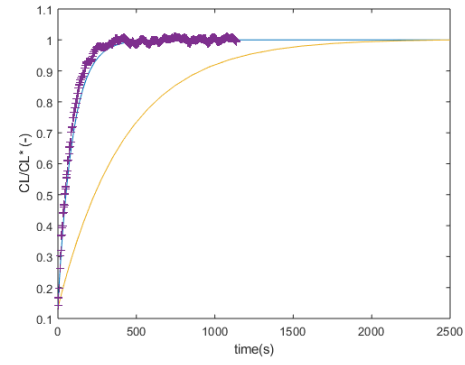


Figure S1. Global gas hold-up versus superficial gas velocity for each dataset - Impact of collective effects (O: Experimental data / — : Base model (with collective effects) / - - - : Modified model (without collective effects) / Error bars: $\pm 5\%$)

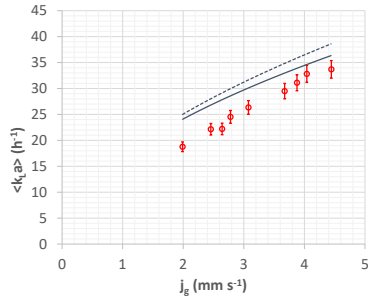


(i)

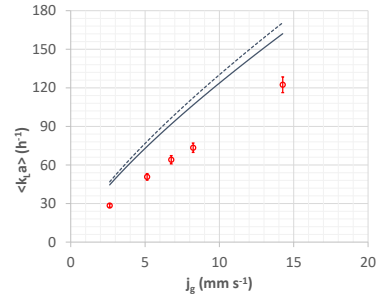


(ii)

Figure S2. Normalized dissolved oxygen concentration Cl/Cl^* versus time for (i) $j_g = 1.1$ mm/s and (ii) $j_g = 6.1$ mm/s (+: Experimental points – Duran et al., 2016 / — : Mass transfer model based on the Higbie correlation / — : Mass transfer model based on the Frössling correlation)



(D2)



(D3)

Figure S3. Experimental global K_La and simulated mean local $\langle kLa \rangle$ for different superficial gas velocities and for datasets D2 and D3 – Impact of bubble eccentricity on modeled results (O: Experimental data / — : Simulated mass transfer based on the Higbie model and the interfacial area without bubble eccentricity / - - -: Simulated mass transfer based on the Higbie model and the interfacial area with bubble eccentricity)

Table S1. Convection and mass transfer time for each operating conditions for the three datasets

Dataset	j_g (mm/s)	U_g (m/s)	K_{La} (s ⁻¹)	H/U_g (s)	$1/K_{La}$ (s)
D1	0.29	0.33	0.0012	4.0	826
	0.59	0.31	0.0021	4.2	480
	0.88	0.31	0.0027	4.2	367
	1.18	0.30	0.0035	4.3	287
D2	1.99	0.25	0.0052	17.7	192
	2.46	0.25	0.0062	17.1	163
	2.64	0.25	0.0062	17.8	162
	2.78	0.25	0.0068	17.5	147
	3.08	0.24	0.0073	17.9	137
	3.67	0.24	0.0082	18.2	122
	3.88	0.24	0.0086	18.3	116
	4.04	0.24	0.0091	18.2	110
	4.44	0.23	0.0094	18.4	107
D3	2.62	0.32	0.0079	2.3	127
	5.14	0.31	0.0141	2.4	71
	6.76	0.30	0.0178	2.5	56
	8.24	0.29	0.0204	2.5	49
	14.26	0.27	0.0340	2.7	29

Chapitre 4 : Hydrodynamique et transfert d'oxygène dans une colonne à bulles à faible rétention gazeuse : Impact des propriétés des fluides et des conditions opératoires

L'objectif de ce chapitre est de présenter et d'exploiter l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus sur la colonne à bulles présentée précédemment dans les différentes conditions opératoires considérées, décrites dans le Chapitre 2 et rappelées dans le Tableau 4-1. Après une rapide présentation des propriétés physico-chimiques des fluides étudiés, les données expérimentales relatives aux caractéristiques hydrodynamiques (rétention de gaz, taille des bulles et aire interfaciale) et au transfert de matière (coefficient de transfert d'oxygène) au sein de la colonne à bulles sont présentées et discutées.

4.1 Propriétés physico-chimiques des fluides utilisés

4.1.1 Comportement rhéologique

Le comportement rhéologique des différents fluides utilisés a été étudié à l'aide du rhéomètre capillaire décrit dans le paragraphe 2.3.2.1. Ces mesures se sont principalement concentrées dans la gamme de cisaillement comprise entre 20 et 1000 s^{-1} , celle-ci correspondant aux gammes généralement rencontrées dans les colonnes à bulles à faible rétention gazeuse (**Durán et al., 2016**). Les fluides considérés sont les suivants :

- Eau claire (eau du réseau – TW ou eau déminéralisée - DW) ;
- Solution de gomme xanthane à 0,02% massique (XG) ;
- Solution de gomme xanthane à 0,02% massique additionnée de composés tensioactifs non-ioniques à 1 mg/L (XG + TA) ;
- Solution de Breox (BR) à 2% massique.

Les Figure 4-1(a) et Figure 4-1(b) présentent respectivement la contrainte de cisaillement et la viscosité dynamique des fluides étudiés en fonction du taux de cisaillement appliqué.

Tableau 4-1 : Rappel des différentes conditions opératoires

N° Mesure	L _{col} (m)	W _{col} (m)	H _L (m)	V _L (m³)	Diffuseur	Type de fluide
1a	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	DW - Eau déminéralisée
1b	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	DW - Eau déminéralisée
1c	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	DW - Eau déminéralisée
2a	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	TW - Eau du réseau
2b	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	TW - Eau du réseau
2c	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	TW - Eau du réseau
3a	0,3	0,1	2,83	0,085	Membrane	TA - Tensioactif non ionique 1mg L ⁻¹
3b	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	TA - Tensioactif non ionique 1mg L ⁻¹
3c	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	TA - Tensioactif non ionique 1mg L ⁻¹
4a	0,3	0,1	2,89	0,087	Membrane	XG - Gomme xanthane 0,02% massique
4b	0,3	0,1	2,87	0,086	Membrane	XG - Gomme xanthane 0,02% massique
4c	0,3	0,1	2,87	0,086	Membrane	XG - Gomme xanthane 0,02% massique
5a	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	XG + TA - Gomme xanthane 0,02% massique + Tensioactif non ionique 1 mg L ⁻¹
5b	0,3	0,1	2,86	0,086	Membrane	XG + TA - Gomme xanthane 0,02% massique + Tensioactif non ionique 1 mg L ⁻¹
5c	0,3	0,1	2,90	0,087	Membrane	XG + TA - Gomme xanthane 0,02% massique + Tensioactif non ionique 1 mg L ⁻¹
6a	0,3	0,1	2,90	0,087	Capillaire	DW - Eau déminéralisée
6b	0,3	0,1	2,90	0,087	Capillaire	DW - Eau déminéralisée
6c	0,3	0,1	2,90	0,087	Capillaire	DW - Eau déminéralisée
7a	0,3	0,1	2,875	0,086	Capillaire	TA - Tensioactif non ionique
7b	0,3	0,1	2,90	0,086	Capillaire	TA - Tensioactif non ionique
7c	0,3	0,1	2,875	0,086	Capillaire	TA - Tensioactif non ionique
8a	0,3	0,1	2,90	0,087	Capillaire	XG - Gomme xanthane 0,02% massique
8b	0,3	0,1	2,90	0,087	Capillaire	XG - Gomme xanthane 0,02% massique
8c	0,3	0,1	2,90	0,087	Capillaire	XG - Gomme xanthane 0,02% massique
9a	0,3	0,1	2,81	0,084	Capillaire	XG + TA - Gomme xanthane 0,02% massique + Tensioactif non ionique 1 mg L ⁻¹
9b	0,3	0,1	2,81	0,084	Capillaire	XG + TA - Gomme xanthane 0,02% massique + Tensioactif non ionique 1 mg L ⁻¹
9c	0,3	0,1	2,835	0,085	Capillaire	XG + TA - Gomme xanthane 0,02% massique + Tensioactif non ionique 1 mg L ⁻¹
10a	0,3	0,1	2,90	0,087	Capillaire	BR - Breox 2% massique
10b	0,3	0,1	2,85	0,086	Capillaire	BR - Breox 2% massique
10c	0,3	0,1	2,82	0,085	Capillaire	BR - Breox 2% massique

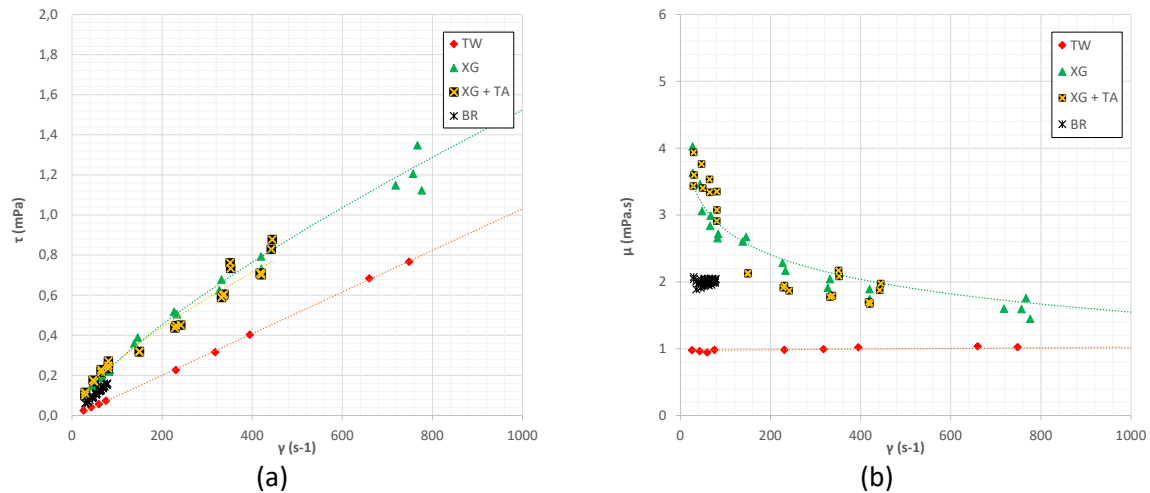


Figure 4-1 : Contrainte de cisaillement (a) et viscosité dynamique (b) en fonction du taux de cisaillement des différents fluides étudiés – Température de mesure de 20 ± 1 °C

L'analyse de ces courbes montre que :

- Comme attendu, l'eau claire et la solution de Breox présentent un caractère Newtonien, la viscosité étant constante quel que soit le taux de cisaillement appliqué. A une température de 20°C, la viscosité dynamique de l'eau et de la solution de Breox sont respectivement de 1,0 et 2,0 mPa.s. L'évolution de la viscosité de la solution de Breox en fonction de la température est présentée en Annexe 6.
- Le caractère rhéofluidifiant de la solution de gomme xanthane est mis en évidence : la viscosité du fluide diminue lorsque le taux de cisaillement appliqué augmente, avec une valeur maximale de 4,0 mPa.s pour un taux de cisaillement de 27 s^{-1} et une valeur de l'ordre de 1,45 mPa.s pour un taux de cisaillement de 776 s^{-1} . Le Tableau 4-2 présente les valeurs du modèle d'Ostwald ajusté aux données expérimentales pour la solution de gomme xanthane, ainsi que les valeurs théoriques de ces paramètres interpolées à une concentration de 0,02% massique à partir des données de la littérature (voir Tableau 1-2).

Tableau 4-2 : Valeurs des indices de consistance et d'écoulement en présence de gomme xanthane (seule ou en mélange avec le tensioactif non ionique) et comparaison avec les valeurs de la littérature

Fluide	Indice de consistance K (Pa s^n)	Indice d'écoulement n (-)
XG	$10,14 \times 10^{-3}$	0,72
XG (théorie)	$6,33 \times 10^{-3}$	0,84

La Figure 4-2 présente la viscosité de la solution de gomme xanthane en fonction du taux de cisaillement, en la comparant avec les données issues de **Durán (2015)** portant sur des mesures de viscosité effectuées avec le même rhéomètre sur des boues activées réelles de différentes concentrations de matières en suspension (MES).

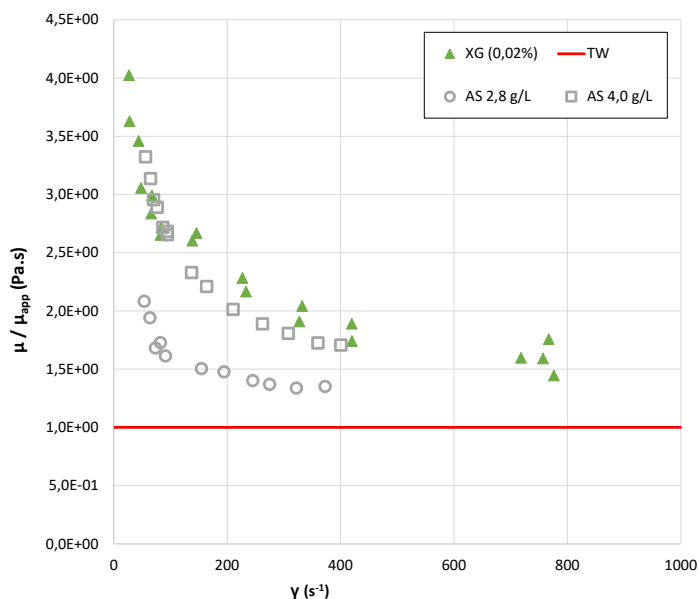


Figure 4-2 : Viscosité dynamique et viscosité dynamique apparente en fonction du taux de cisaillement appliqué pour la solution de gomme xanthane (XG) étudiée et pour des boues activées (AS) à deux concentrations (2,8 et 4,0 g L⁻¹ ; adapté de Duran, 2015).

La solution de gomme xanthane a été retenue dans le cadre de cette étude pour sa similarité de comportement rhéologique avec les boues activées. Le comportement rhéologique de la solution utilisée est similaire à celui d'une boue activée à une concentration en MES de 4,0 g L⁻¹.

- L'ajout de composés tensioactifs non ioniques à une concentration de 1 mg L⁻¹ n'entraîne pas de différence de comportement rhéologique pour le fluide XG + TA. Par conséquent, dans la suite de l'étude, il est considéré que l'ajout de tensioactif non-ionique à la concentration de 1 mg L⁻¹ n'affecte pas la viscosité du fluide dans lequel il est dilué.

4.1.2 Tension superficielle statique

Le Tableau 4-3 présente l'ensemble des données de tension superficielle statique mesurée à l'aide d'un tensiomètre à anneau de Nouÿ (cf. paragraphe 2.3.2.2) pour les fluides étudiés.

Tableau 4-3 : Tensions superficielles statiques des différents fluides étudiés

Fluide	σ (mN m ⁻¹)	Ecart type (mN m ⁻¹) (nombre de mesures)	T _{liquid} (°C)	Ecart type (°C)
DW	72,7	0,5 (13)	22,2	0,4
XG	71,9	0,3 (4)	23,5	0,1
BR	55,1	1,6 (10)	23,2	0,2
TA	69,7	1,1 (5)	23,4	0,2
XG + TA	67,9	1,5 (4)	23,5	0,2

La solution de gomme xanthane présente une tension superficielle statique équivalente à celle de l'eau distillée (respectivement de 71,9 et 72,7 mN m⁻¹). De plus, l'ajout de tensioactif semble n'influer que très faiblement la tension superficielle statique de l'eau ou de la gomme xanthane (diminution respective de 4 et 6 %). A noter cependant que ces mesures sont effectuées directement après ajout de la solution dans la cellule de mesure. Aussi, du fait de la faible concentration en tensioactifs, couplée au faible temps de la mesure, ces mesures sont principalement représentatives des propriétés de la phase continue. Celles-ci permettent pas de décrire la dynamique de modification des interfaces liées à la migration et à la fixation progressive des composés tensioactifs au niveau des interfaces. Une analyse complémentaire de la tension superficielle, via des mesures de tension superficielle dynamique, est proposée dans le paragraphe 4.1.3.

L'ajout de Breox à une concentration de 2% massique dans de l'eau déminéralisée réduit considérablement la tension superficielle du fluide (55,1 mN m⁻¹ pour une tension superficielle de 72,7 Nm m⁻¹ pour l'eau distillée, soit une diminution de 24%). A noter que la valeur mesurée est significativement inférieure à celle mesurée de 65 mN m⁻¹ pour une solution de Breox à 2% massique par Xu (2019).

4.1.3 Tension superficielle dynamique

La tension superficielle dynamique a été déterminée pour 3 types de fluides : (i) Eau déminéralisée [DW], (ii) Eau déminéralisée additionnée de tensioactif non ionique [TA] et (iii) Gomme xanthane à 0,02% massique [XG].

4.1.3.1 Eau déminéralisée et solution de gomme xanthane

Les Figure 4-3 et Figure 4-4 présentent l'enregistrement de la tension superficielle dynamique pour l'eau déminéralisée (DW) et pour la solution de gomme xanthane (XG) en fonction du temps.

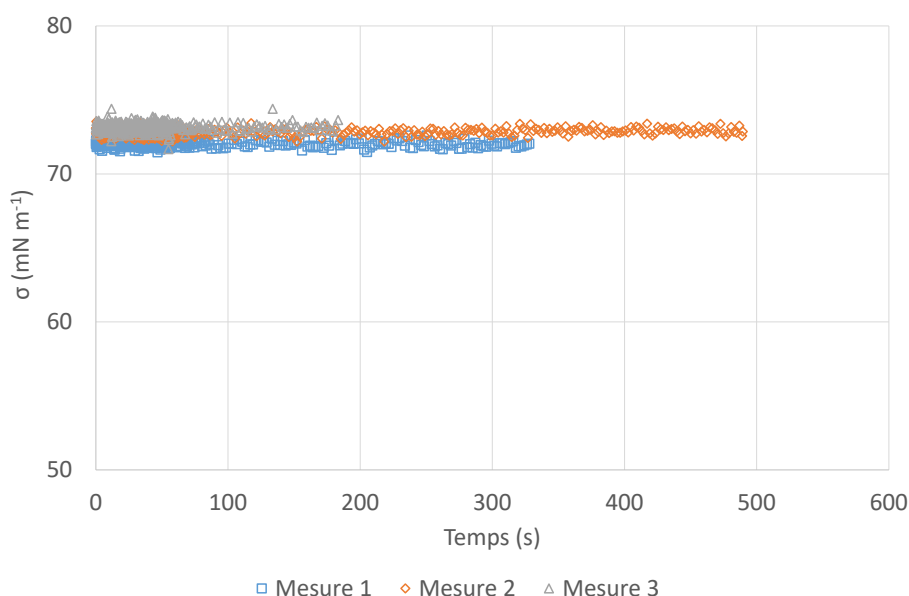


Figure 4-3 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps – Eau déminéralisée (DW)

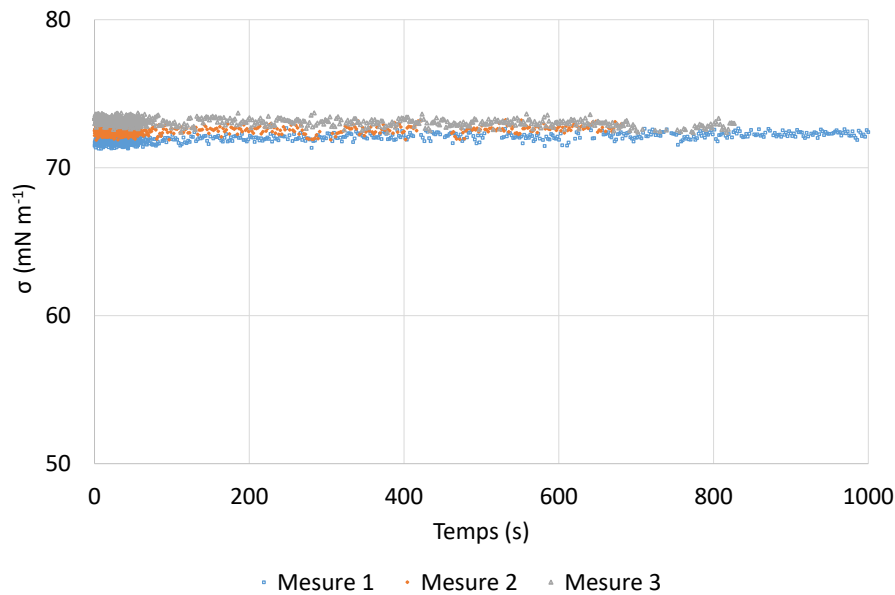


Figure 4-4 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps - Solution de gomme xanthane (XG)

La tension superficielle reste constante au cours du temps pour les deux fluides étudiés, pour les échelles de temps considérées (comprises entre 450 et 1000 s). L'absence d'évolution indique l'absence de modification des propriétés de tension de surface avec le temps pour ces deux fluides. Les valeurs de tension de surface mesurées sont similaires aux tensions superficielles statiques indiquées dans le Tableau 4-3. Les valeurs obtenues sont indiquées dans le Tableau 4-4 ci-dessous.

Tableau 4-4 : Valeurs moyennes de tension superficielle dynamique et de température
Eau déminéralisée (DW) et Gomme xanthane (XG)

Mesure	Eau déminéralisée (DW)		Gomme xanthane 0,02% massique	
	σ_{moy} (mN m ⁻¹)	T _{liquide} (°C)	σ_{moy} (mN m ⁻¹)	T _{liquide} (°C)
1	72,1	21,6	72,0	20,8
2	72,8	21,6	72,5	20,3
3	73,2	22,2	73,1	20,2
Moyenne	72,7	21,8	72,5	20,2

4.1.3.2 Tensioactif non ionique

La Figure 4-5 présente l'enregistrement de la tension superficielle dynamique pour l'eau déminéralisée additionnée de tensioactif non-ionique en fonction du temps.

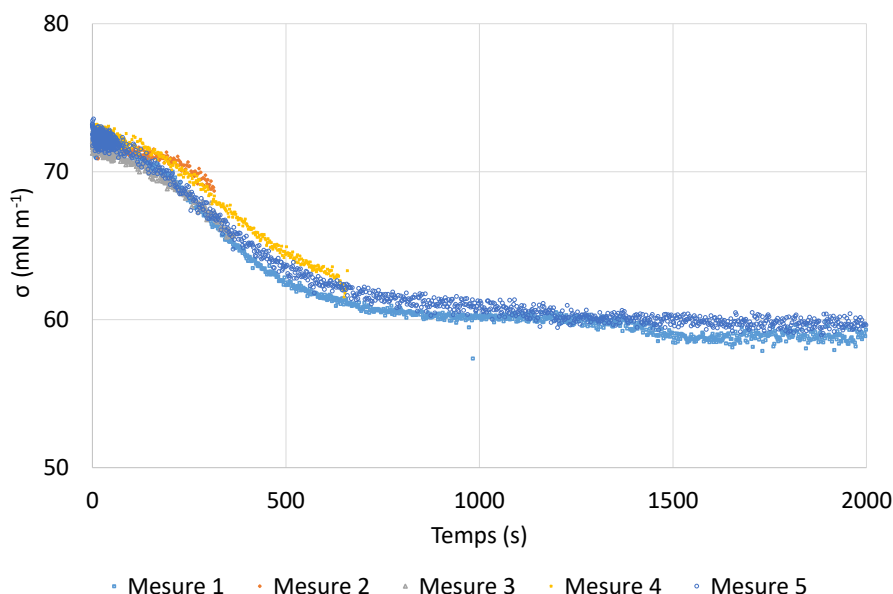


Figure 4-5 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps - Tensioactif non ionique (TA)

Au contraire des observations réalisées avec l'eau déminéralisée et pour la solution de gomme xanthane, la tension superficielle dynamique de la solution d'eau déminéralisée additionnée de tensioactif non ionique varie au cours du temps.

A l'état initial, celle-ci est du même ordre de grandeur que celle mesurée avec de l'eau déminéralisée (72,2 mN m⁻¹), puis elle diminue au cours du temps, jusqu'à atteindre une valeur constante d'environ 59 mN m⁻¹ après une durée de 1500 à 2000 secondes. Cette diminution de tension superficielle correspond à la dynamique d'adsorption des molécules du composé tensioactif à la surface de la bulle au cours du temps, entraînant une modification des propriétés de l'interface avec le temps. Le Tableau 4-5 présente l'évolution en fonction du temps des valeurs de tension superficielle déterminées.

Tableau 4-5 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps – Tensioactif non-ionique (TA)

Temps (s)	σ_{moy} (mN m ⁻¹)
0	72,2
10	72,1
30	71,8
50	71,5
100	71,1
500	63,5
1000	60,5
1500	59,3
2000	59,3

La variation de la tension superficielle n'est que 1,4% et 3,5% après un temps respectif de 100 et 200 secondes ; une diminution significative de cette valeur n'est observée que pour des temps relativement longs (12% à 500s). Ces mesures sont cependant réalisées en absence d'agitation, la migration des composés tensioactifs est alors régie uniquement par les effets de diffusion. Aussi, ces

dynamiques seront à mettre au regard des conditions de mélange et des temps de séjours des bulles au sein des colonnes à bulles.

4.2 Impact du système de diffusion de bulles et des propriétés des fluides sur les paramètres caractéristiques de l'hydrodynamique et du transfert gaz liquide

Cette partie est consacrée à la présentation et à l'analyse des évolutions des propriétés hydrodynamiques et du transfert gaz-liquide au sein de la colonne à bulle.

4.2.1 Rétention gazeuse

Le Tableau 4-6 présente l'ensemble des données de rétention gazeuse mesurées. Ces données comportent à la fois (i) des données considérées comme globales correspondant aux valeurs issues de l'analyse des signaux des capteurs de pression disposés le long de la colonne et (ii) les valeurs locales mesurées à l'aide d'une sonde optique (cf. 2.2.1.1 et 2.2.1.2).

Pour les mesures globales, la disposition de ces capteurs permet de différencier 3 valeurs : $\epsilon_{g, z1}$, $\epsilon_{g, z2}$ et $\epsilon_{g, global}$ correspondant aux valeurs de rétention sur la partie inférieure (de 10 à 150 cm), la partie supérieure (de 150 à 282 cm) et l'ensemble de la colonne (de 10 à 282 cm) respectivement.

En parallèle de ces mesures, des données de rétention locale ont été déterminées en 9 positions disposées à 3 hauteurs (80, 166 et 235 cm) et 3 distances à la paroi sur la longueur de la colonne (5, 15 et 25 cm) afin d'analyser d'éventuelles hétérogénéités et de disposer d'une information localisée. Une moyenne de l'ensemble des données locales est réalisée et comparée aux données « globales » issues des capteurs de pression.

Tableau 4-6 : Rétentions de gaz obtenues pour les différentes conditions opératoires
(Les données en **rouge** correspondent aux 10 valeurs les plus élevées des écarts moyens relatifs)

Diffuseur (M / C)	Fluide	j_g (mm/s)	$\epsilon_{g, global}$ (%)	$\epsilon_{g, Z1}$ (%)	$\epsilon_{g, Z2}$ (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W1,D1) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W2,D1) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W3,D1) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (moy D1) (%)	$E_{moy,rel}$ (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W1,D2) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W2,D2) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W3,D2) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (moy D2) (%)	$E_{moy,rel}$ (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W1,D3) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W2,D3) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (W3,D3) (%)	$\epsilon_{g, local}$ (moy D3) (%)	$E_{moy,rel}$ (%)	$\epsilon_{g, local}$ (moy) (%)
Membrane	DW	0,3	0,21	0,08	0,34	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		2,7	0,97	0,74	1,21	0,64	1,07	0,71	0,81	64%	0,75	0,91	0,93	0,86	26%	0,81	1,02	0,99	0,94	28%	0,87
		5,2	2,12	1,90	2,35	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	TW	0,6	0,21	0,14	0,28	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		2,6	0,95	0,75	1,17	0,62	1,02	0,81	0,82	50%	0,82	0,99	0,95	0,92	22%	0,96	1,03	0,99	1,00	8%	0,91
		5,1	1,95	1,70	2,20	1,47	1,91	1,59	1,66	31%	1,75	1,88	1,92	1,85	11%	2,02	2,01	2,25	2,10	15%	1,87
	TA	0,5	0,33	0,25	0,40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		2,5	1,15	1,03	1,29	0,78	0,94	0,84	0,85	21%	0,99	0,95	1,01	0,98	6%	1,07	1,17	1,18	1,14	13%	0,99
		3,6	1,42	1,20	1,64	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	XG	0,5	0,37	0,28	0,46	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		2,6	1,31	1,11	1,54	1,24	1,17	1,21	1,21	6%	1,04	1,04	1,23	1,10	23%	0,98	1,17	1,17	1,11	23%	1,14
		5,1	2,32	1,96	2,71	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	XG + TA	0,5	0,21	0,15	0,28	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		2,6	1,00	0,87	1,14	0,64	1,12	1,02	0,93	61%	0,80	1,12	1,05	0,99	38%	0,90	1,14	1,11	1,05	28%	0,99
		5,2	1,76	1,48	2,05	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Capillaire	DW	1,0	0,36	0,28	0,45	0,27	0,29	0,29	0,28	8%	0,29	0,41	0,43	0,37	45%	0,34	0,50	0,50	0,45	47%	0,37
		2,6	0,93	0,79	1,08	0,69	0,74	0,75	0,72	10%	0,80	0,96	0,92	0,89	21%	0,91	1,03	1,06	1,00	17%	0,87
		5,2	1,98	1,77	2,19	1,53	1,60	1,62	1,58	7%	1,77	1,99	1,85	1,87	13%	2,05	2,11	2,08	2,08	3%	1,84
	TA	1,0	0,41	0,35	0,48	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		2,6	1,21	1,10	1,33	0,89	0,87	0,98	0,91	15%	1,00	0,83	1,13	0,99	32%	1,04	1,07	1,27	1,13	26%	1,01
		3,7	1,62	1,48	1,76	1,34	1,35	1,29	1,33	5%	1,36	1,48	1,50	1,45	12%	1,64	1,42	1,73	1,60	22%	1,46
	XG	1,1	0,48	0,41	0,55	0,54	0,22	0,56	0,44	102%	0,52	0,40	0,67	0,53	53%	0,57	0,46	0,71	0,58	44%	0,52
		2,6	1,13	0,99	1,28	0,95	0,89	1,05	0,96	18%	0,92	0,89	1,16	0,99	34%	0,95	1,04	1,12	1,03	17%	0,99
		5,1	2,19	1,78	2,63	1,83	1,69	2,08	1,86	23%	1,74	1,81	2,31	1,95	36%	1,79	1,88	2,40	2,02	37%	1,95
	XG + TA	1,0	-	-	-	0,35	0,23	0,42	0,34	61%	0,47	0,44	0,53	0,48	20%	0,39	0,47	0,54	0,46	32%	0,43
		2,6	-	0,99	-	0,94	0,88	0,97	0,93	11%	0,88	1,15	1,13	1,06	32%	0,92	1,05	1,07	1,01	19%	1,00
		5,1	2,32	1,88	2,78	1,89	1,43	2,38	1,90	51%	1,66	1,96	2,30	1,97	33%	1,88	2,11	2,59	2,19	36%	2,02
	BR	1,0	0,52	0,48	0,57	0,36	0,39	0,39	0,38	11%	0,49	0,39	0,41	0,43	27%	0,53	0,37	0,48	0,46	41%	0,42
		2,6	1,25	1,12	1,38	0,98	1,01	0,96	0,98	5%	1,05	1,09	1,08	1,08	4%	0,92	1,07	1,28	1,09	35%	1,05
		5,1	-	2,43	-	1,81	2,19	2,36	2,12	29%	1,96	2,40	2,81	2,39	36%	2,08	2,35	2,91	2,45	38%	2,32

Avec : j_g vitesse superficielle de gaz, $\epsilon_{g, global}$ rétention gazeuse globale issue des mesures de pression en bas et en haut de colonne, $\epsilon_{g, Z1}$ rétention gazeuse issue des mesures de pression en bas et en milieu de colonne, $\epsilon_{g, Z2}$ rétention gazeuse issue des mesures de pression en milieu et en haut de colonne, $\epsilon_{g, local}$ (WX,DY) rétention gazeuse locale issue des mesures réalisées à l'aide de la sonde optique – avec W la position sur la largeur de la colonne (W1, W2 et W3 correspondent respectivement à une distance de la paroi latérale de la colonne de 0,05, 0,15 et 0,25 m) et D la hauteur de mesure (D1, D2 et D3 correspondent respectivement à une distance du diffuseur de 0,80, 1,66 et 2,35 m), $E_{moy,rel}$ la somme des écarts moyens relatifs à la valeur moyenne de la rétention, $\epsilon_{g, local}$ (moy) la moyenne des rétentions locales.

La Figure 4-6 présente la moyenne des rétentions gazeuses locales en fonction de la valeur globale de rétention issue des mesures de pression.

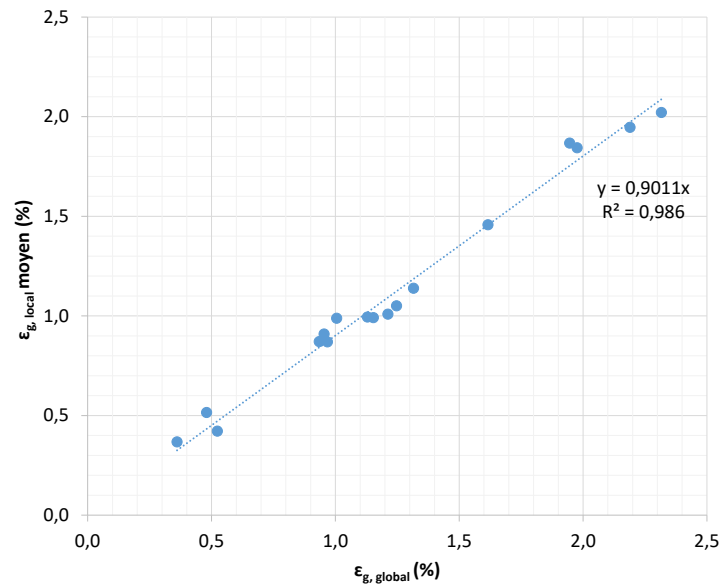


Figure 4-6 : Rétention gazeuse moyenne issue des mesures locales par sonde optique en fonction de la rétention gazeuse globale déterminée par mesures de pression

Une bonne correspondance entre les valeurs de rétention gazeuse déduites des valeurs locales et de la mesure globale est observée. La différence moyenne entre les deux méthodes est de l'ordre de 10%.

La valeur obtenue pour la rétention de gaz locale est systématiquement inférieure aux mesures globales. Ces différences peuvent être liées à la l'échantillonnage réalisé, la mesure globale correspondant à une mesure intégrative sur l'ensemble de la colonne, mais également potentiellement à la méthode de mesure appliquée. En effet, la technique de mesure à la sonde optique consiste en la détection de la modification de l'indice de réfraction lorsque l'embout de sonde pénètre au sein de la bulle. Cependant, cette technique peut amener à une légère sous-estimation de la rétention de gaz, des modifications des propriétés locales des écoulements (méthode intrusive) induisant des phénomènes d'évitement ou de rebond des bulles au niveau de la pointe de l'aiguille bien que celle-ci ait été positionnée dans le sens de l'écoulement (**Schweitzer et al., 2001**). La correspondance entre les deux mesures s'avère cependant très satisfaisante et permet de s'assurer de la robustesse de chacune des deux méthodes sur la gamme de mesure (0,4 à 2,0 %).

4.2.2 Rétention gazeuse locale

La Figure 4-7 présente les profils de rétention gazeuse aux différents points de mesure dans la colonne à bulles, pour les deux types de diffuseurs et les différents fluides étudiés. Les autres profils mesurés sont présentés en Annexe 7.

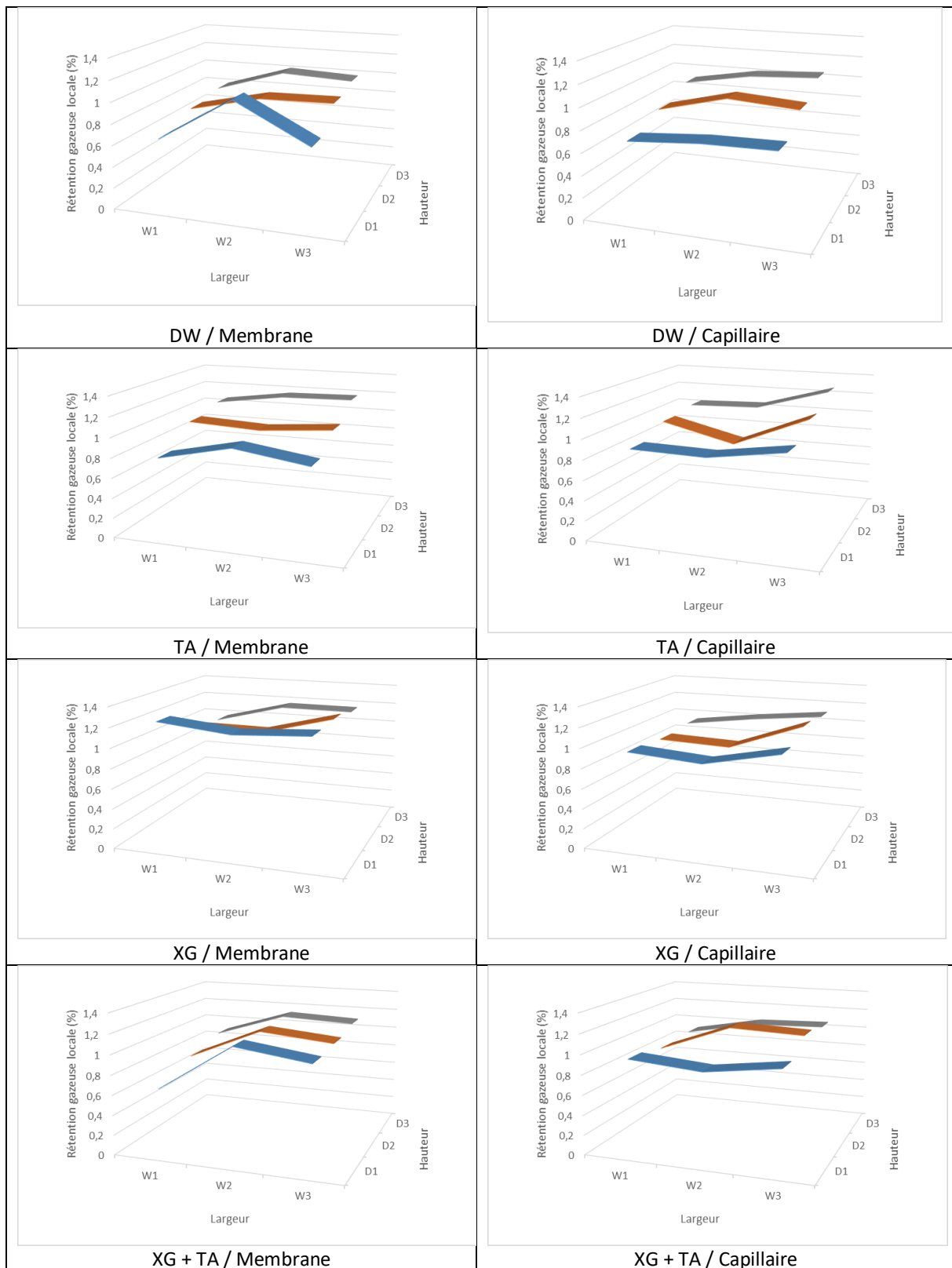


Figure 4-7 : Rétention gazeuse locale en fonction de la largeur et de la hauteur dans la colonne pour les différents fluides étudiés et les deux diffuseurs - $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ - W1, W2 et W3 = Distance à la paroi de 5, 15 et 25 cm respectivement - D1, D2 et D3 = Distance au diffuseur de 80, 166 et 235 cm respectivement]

L'ensemble de ces mesures (Figure 4-7 et Tableau 4-6) amène les commentaires suivants :

- Pour l'ensemble des conditions opératoires, la rétention gazeuse est relativement homogène sur la largeur de la colonne, quels que soient la hauteur de mesure et les types de fluides étudiés (écart relatif moyen de 9,1 % pour l'ensemble des données mesurées – avec une valeur maximale de l'écart à la moyenne de 51% [Diffuseur capillaire / fluide XG / $j_{g,N} = 1,1 \text{ Nmm s}^{-1}$ / position W2,D1]);
- Des hétérogénéités peuvent être observées localement, notamment dans la zone inférieure de la colonne, correspondant à une zone positionnée à 0,80 m des diffuseurs. Ces hétérogénéités sont principalement marquées pour le diffuseur membrane (écart relatif moyen de 32 %), en comparaison du diffuseur capillaire (écart relatif moyen de 8%), en lien avec les hétérogénéités de la distribution de l'air sur la surface de la colonne dans le cas du diffuseur membrane. Le diffuseur capillaire permet une répartition plus homogène de l'air sur l'ensemble de la surface de la colonne, confirmée par les observations visuelles réalisées ;
- L'homogénéité de la distribution de l'air sur la largeur de la colonne ne semble pas être affectée par les caractéristiques du fluide étudié, les écarts moyens relatifs étant équivalents quels que soient les caractéristiques du fluide présent dans la colonne.

La Figure 4-8 présente les rétentions gazeuses locales moyennées sur la largeur de la colonne en fonction de la distance au diffuseur, pour les différents fluides étudiés et pour une vitesse superficielle de gaz de $2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$.

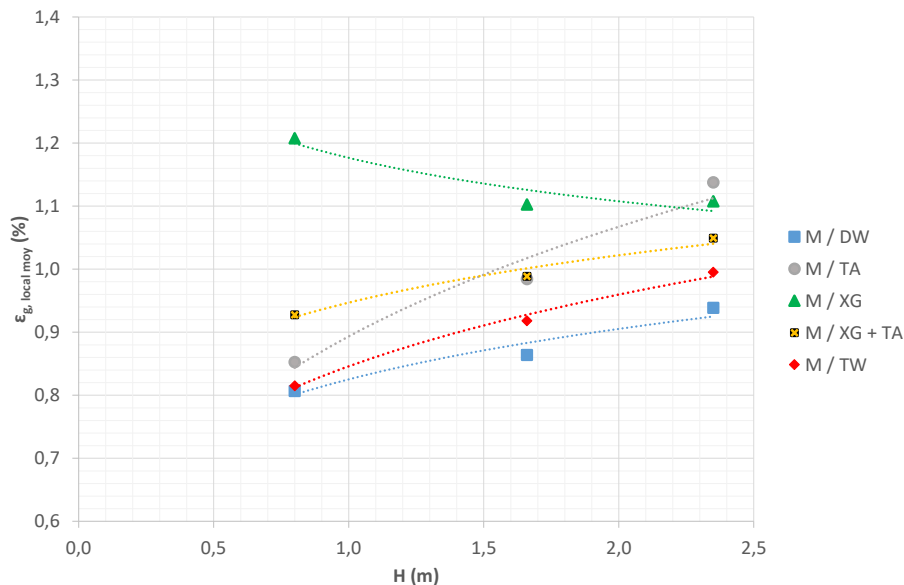


Figure 4-8 : Rétention gazeuse locale moyennée sur la largeur en fonction de la distance au diffuseur pour les différents fluides étudiés – Diffuseur membrane - $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

Dans le cas des fluides newtoniens (DW, TA et TW), une augmentation de la rétention gazeuse avec la distance aux diffuseurs est observée. Cette évolution est liée à l'augmentation du diamètre des bulles d'air le long de la colonne. Cette augmentation est respectivement de 16, 33 et 22% pour DW, TA et TW.

Dans le cas de la gomme xanthane (XG), la rétention gazeuse semble diminuer le long de la hauteur de la colonne. Ce comportement n'étant pas retrouvé avec le diffuseur capillaire, il pourrait s'agir d'une mesure erronée (erreur entre les points bas et haut de l'ordre de 10% relatif). Néanmoins, étant donné que la gomme xanthane est un fluide rhéofluidifiant et que le mode de diffusion des bulles est significativement différent entre les deux diffuseurs (pouvant ainsi entraîner un cisaillement lié aux bulles différent et donc une viscosité apparente différente), il est possible que les rétentions gazeuses locales vues par la sonde aient un comportement différent pour la gomme xanthane avec les deux diffuseurs.

Comme présenté sur la Figure 4-9, un comportement similaire est obtenu avec le diffuseur capillaire : la rétention gazeuse augmente avec la hauteur dans la colonne, avec une augmentation plus significative avec l'eau déminéralisée par rapport aux autres fluides (39% d'augmentation pour l'eau déminéralisée contre 24% pour TA, 7% pour XG, 11% pour BR).

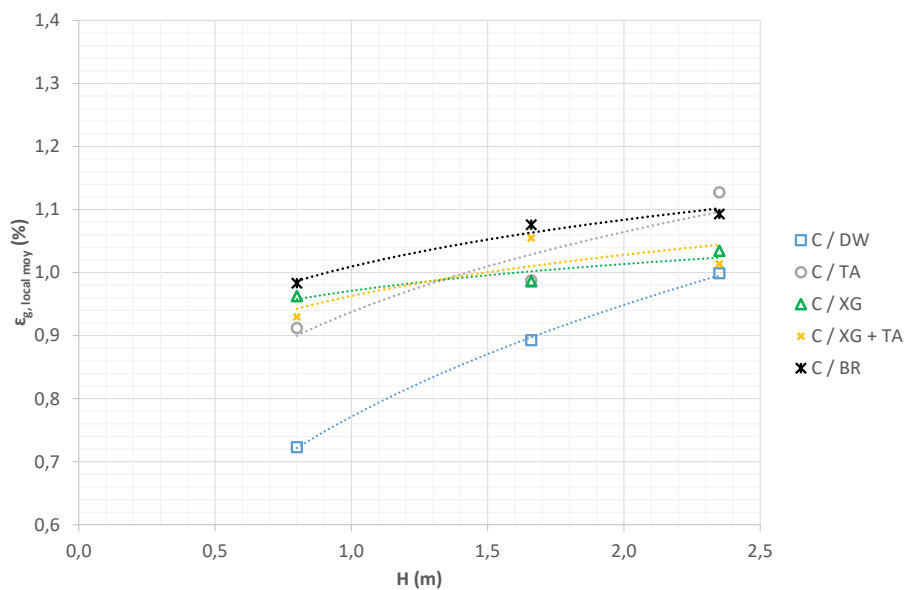


Figure 4-9 : Rétention gazeuse locale moyennée sur la largeur en fonction de la distance au diffuseur pour les différents fluides étudiés – Diffuseur capillaire - $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

4.2.3 Rétention gazeuse globale ϵ_g

4.2.3.1 Comparaison des différents fluides pour chaque diffuseur

La Figure 4-10 montre l'évolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour l'eau déminéralisée (DW), l'eau du réseau (TW), le tensioactif non ionique (TA), la gomme xanthane (XG) et le mélange de gomme xanthane et tensioactif non ionique (XG+TA), avec le diffuseur membrane (M).

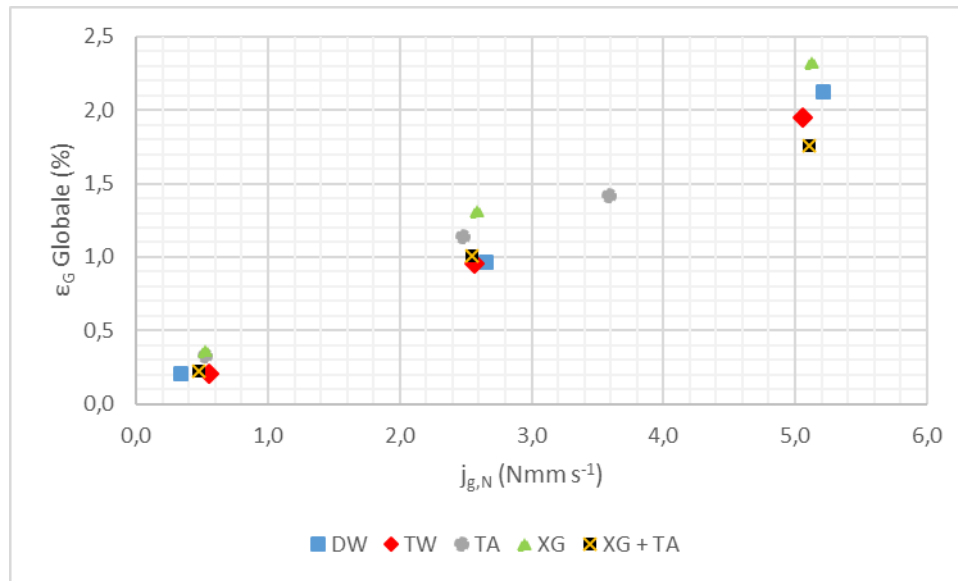


Figure 4-10 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz avec le diffuseur membrane

La rétention gazeuse globale augmente linéairement avec la vitesse superficielle de gaz. La rétention gazeuse globale en présence de gomme xanthane est supérieure de 15 à 40% à la rétention gazeuse globale en eau claire. L'ajout de tensioactif non-ionique (1 mg L^{-1}) induit également une augmentation de rétention gazeuse par rapport à l'eau claire mais de manière moins marquée, notamment pour la vitesse superficielle de gaz la plus élevée pour laquelle la rétention gazeuse globale tend vers la même valeur qu'en eau claire. Pour le mélange gomme xanthane et tensioactif, les valeurs de rétention gazeuse globale sont similaires à celles obtenues en eau claire. Il faut néanmoins noter que pour ces mesures, une formation importante de mousse a été observée avec la mise en aération de la colonne, et par conséquent la composition du fluide est susceptible d'évoluer au cours des mesures avec une possible extraction des composés par l'intermédiaire du moussage.

La Figure 4-11 montre l'évolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour l'eau déminéralisée, le tensioactif non ionique, la gomme xanthane, le mélange de gomme xanthane et tensioactif non ionique et le Breox, avec le diffuseur capillaire.

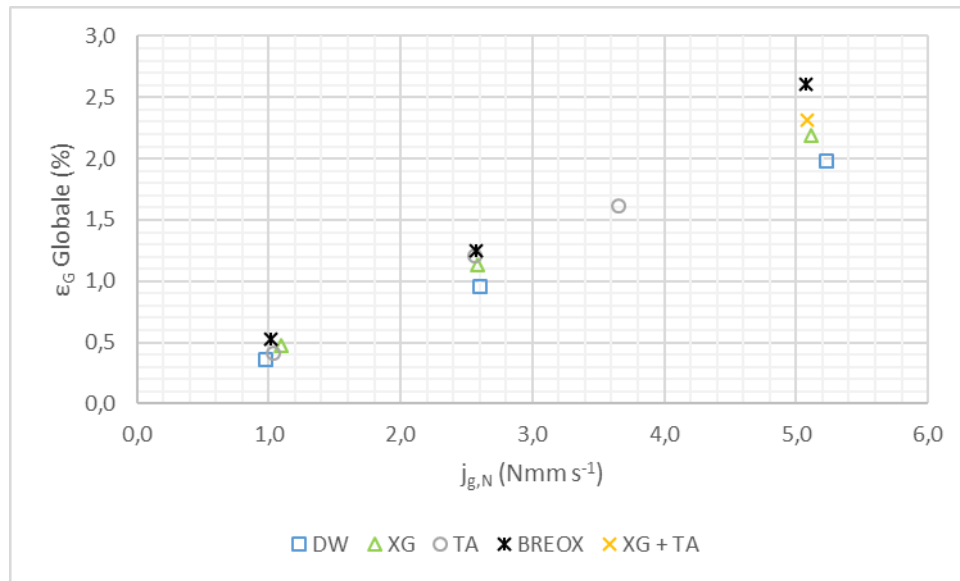


Figure 4-11 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz avec le diffuseur capillaire

Les différences de rétention gazeuse entre l'eau déminéralisée et la gomme xanthane avec le diffuseur capillaire sont moins significatives que pour le diffuseur membranaire (15 à 25% contre 15 à 40%). La rétention gazeuse en présence de Breox est également supérieure à celui pour les autres fluides. A noter que pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif (XG+TA) aux vitesses superficielles de gaz de 0,52 et 2,6 Nmm s⁻¹, la hauteur de liquide était inférieure à celle du capteur de pression P3 (situé à une hauteur de 2,82 m), par conséquent la rétention gazeuse globale n'a pas pu être déterminée pour ces mesures.

4.2.3.2 Estimation de la vitesse de gaz au sein de la colonne

Au regard des données de rétention locale au sein de la colonne indiquant une distribution relativement homogène du gaz sur la surface de la colonne, la vitesse moyenne de gaz au sein de la colonne peut être estimée à l'aide des données de rétention de gaz. La vitesse du gaz est estimée par l'équation (4.1) :

$$U_g = \frac{j_{g,N}}{\varepsilon_G} \quad (4.1)$$

Avec U_g la vitesse du gaz (m s⁻¹), $j_{g,N}$ la vitesse superficielle de gaz (Nm s⁻¹) et ε_G la rétention gazeuse globale (-).

Le Tableau 4-7 présente les valeurs de vitesse de gaz au sein de la colonne pour l'ensemble des conditions opératoires étudiées.

En eau déminéralisée, les valeurs de vitesse de bulle estimées sont respectivement de 0,27 m s⁻¹ pour le diffuseur capillaire (en excluant la valeur correspondant à la vitesse superficielle de gaz la plus faible pour le diffuseur membrane) et 0,26 m s⁻¹ pour le diffuseur membrane. Ainsi, la vitesse de bulle ne dépend pas du diffuseur utilisé en eau claire, et elle dépend peu de la vitesse superficielle de gaz compte tenu des faibles valeurs appliquées.

En présence de tensioactif, les valeurs de vitesse de la phase gaz sont, pour les trois vitesses superficielles de gaz par ordre croissant, de 0,16 , 0,21 et 0,25 m s⁻¹ pour le diffuseur membrane, et de 0,25 , 0,21 et 0,23 m s⁻¹ pour le diffuseur capillaire. Les valeurs de vitesse de bulle sont ainsi légèrement inférieures en tensioactif non-ionique par rapport à l'eau déminéralisée. Du fait de la contamination des bulles par les molécules de tensioactif, le diamètre de bulle est plus faible et le coefficient de traînée est plus élevé, ce qui entraîne une diminution de la vitesse de bulle associée. La même constatation est faite pour les fluides visqueux (Breox et gomme xanthane).

Tableau 4-7 : Vitesse de bulle déduite des mesures de rétention de gaz pour l'ensemble des conditions opératoires (type de diffuseur, fluide et vitesse de gaz)

Diffuseur (M / C)	Fluide	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	U_g (m s ⁻¹)	Diffuseur (M / C)	Fluide	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	U_g (m s ⁻¹)
Capillaire	DW	1,0	0,27	Membrane	DW	0,3	0,16
		2,6	0,28			2,7	0,27
		5,2	0,26			5,2	0,25
	TA	1,0	0,25		TW	0,6	0,26
		2,6	0,21			2,6	0,27
		3,7	0,23			5,1	0,26
	XG	1,1	0,23		TA	0,5	0,16
		2,6	0,23			2,5	0,21
		5,1	0,23			3,6	0,25
	XG + TA	1,0	-		XG	0,5	0,14
		2,6	-			2,6	0,20
		5,1	0,22			5,1	0,22
	BR	1,0	0,19		XG + TA	0,5	0,21
		2,6	0,21			2,6	0,26
		5,1	-			5,2	0,30

4.2.3.3 Comparaison des deux diffuseurs par fluide

La Figure 4-12 présente la comparaison des données de rétention gazeuse, par type de diffuseur et pour les différents types de fluides.

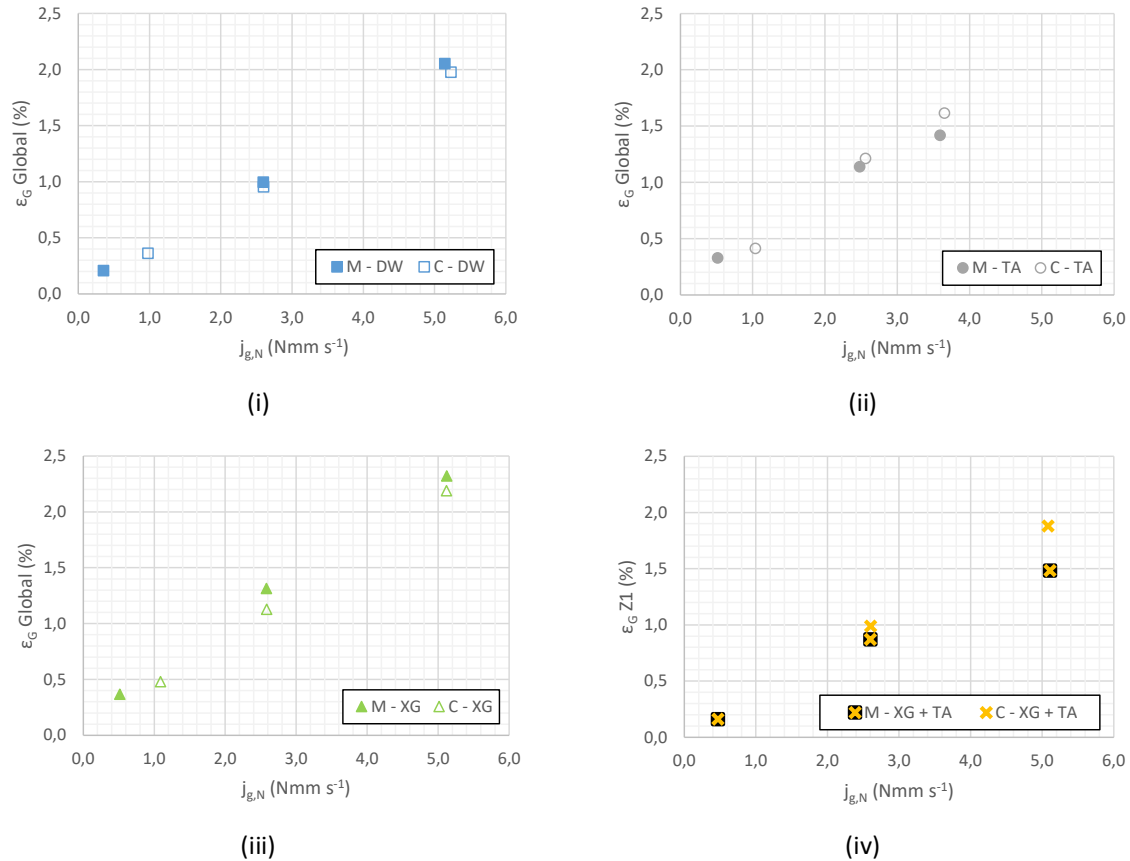


Figure 4-12 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz – Comparaison par fluide pour des deux types de diffuseurs [A noter que pour XG + TA, la rétention de gaz indiquée correspond à la rétention sur la Z1 = partie inférieure de la colonne]

Les mesures réalisées montrent que :

- La rétention gazeuse globale en eau déminéralisée est du même ordre de grandeur pour les diffuseurs capillaire et membranaire. Elle est néanmoins légèrement supérieure pour le diffuseur membranaire (5 à 15%), mais cette différence demeure dans l'incertitude de mesure. Dans les gammes de vitesses superficielles appliquées, la rétention gazeuse augmente linéairement avec la vitesse superficielle de gaz.
- La rétention gazeuse globale en présence de gomme xanthane est supérieure avec le diffuseur membranaire par rapport au diffuseur capillaire (de 5 à 20%). Les valeurs de vitesse de bulle sont de 0,14 , 0,20 et 0,22 m s⁻¹ pour le diffuseur membrane, et 0,23 m s⁻¹ pour le diffuseur capillaire. Les effets visqueux de la gomme xanthane entraînent une diminution du diamètre de bulle (voir 4.2.4) et par conséquent une diminution de la vitesse de bulle.
- Contrairement aux autres fluides, la rétention gazeuse pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif est supérieure avec le diffuseur capillaire par rapport au diffuseur membrane. Néanmoins, cette différence d'évolution peut être imputable à une éventuelle modification de composition du fluide entre les expériences (deux solutions différentes).

4.2.3.4 Conclusion sur la rétention gazeuse globale ϵ_G

Pour l'ensemble des conditions expérimentales, la rétention gazeuse globale augmente de manière linéaire avec la vitesse superficielle de gaz. Les évolutions de rétention gazeuse globale sont les mêmes pour les deux diffuseurs, avec néanmoins une rétention gazeuse légèrement supérieure pour le diffuseur membrane que pour le diffuseur capillaire, excepté pour le mélange en gomme xanthane et

tensioactif. L'ajout des différents composés (tensioactif non-ionique, gomme xanthane à 0,02 % et Breox à 2%), induit une légère augmentation de la rétention gazeuse par rapport à l'eau claire. Cette augmentation de rétention gazeuse est essentiellement due à une diminution de la vitesse de bulle, elle-même causée par une diminution du diamètre de bulle et une augmentation de la traînée. Ces impacts sur l'hydrodynamique sont causés par une contamination des bulles par rapport à l'eau déminéralisée, liée à l'adsorption de molécules de tensioactif à la surface des bulles dans le cas du tensioactif non ionique et aux effets visqueux dans le cas de la gomme xanthane et du Breox.

4.2.4 Diamètre des bulles d'air

Pour l'ensemble des conditions opératoires, le dispositif de mesure de taille des bulles installé permet d'obtenir les distributions de diamètre des bulles (cf. partie 2.2.2). Elles sont commentées dans les paragraphes suivants.

4.2.4.1 Variation de $d_{eq,v}$ et de l'excentricité selon la hauteur

Les figures suivantes (Figure 4-13 à

Figure 4-17) présentent les distributions des diamètres de bulles équivalents en volume et de l'excentricité pour les deux diffuseurs et les différents fluides étudiés. Ces distributions sont présentées pour une vitesse superficielle de gaz de l'ordre de $2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ (vitesse commune à l'ensemble des couples diffuseurs/fluides). L'ensemble des distributions pour les autres conditions opératoires est fourni en Annexe 8. A noter que pour une meilleure représentation des résultats, les échelles des ordonnées pour les différentes distributions ont été adaptées pour chacune des conditions opératoires. Les valeurs caractérisant les distributions (valeurs moyennes et écarts-type) pour chaque hauteur de mesure (respectivement moyennées sur la hauteur de la colonne) sont indiquées en Annexe 9 (respectivement en Annexe 10) pour l'ensemble des conditions de mesure.

Figure 4-13 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Membrane / DW et TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

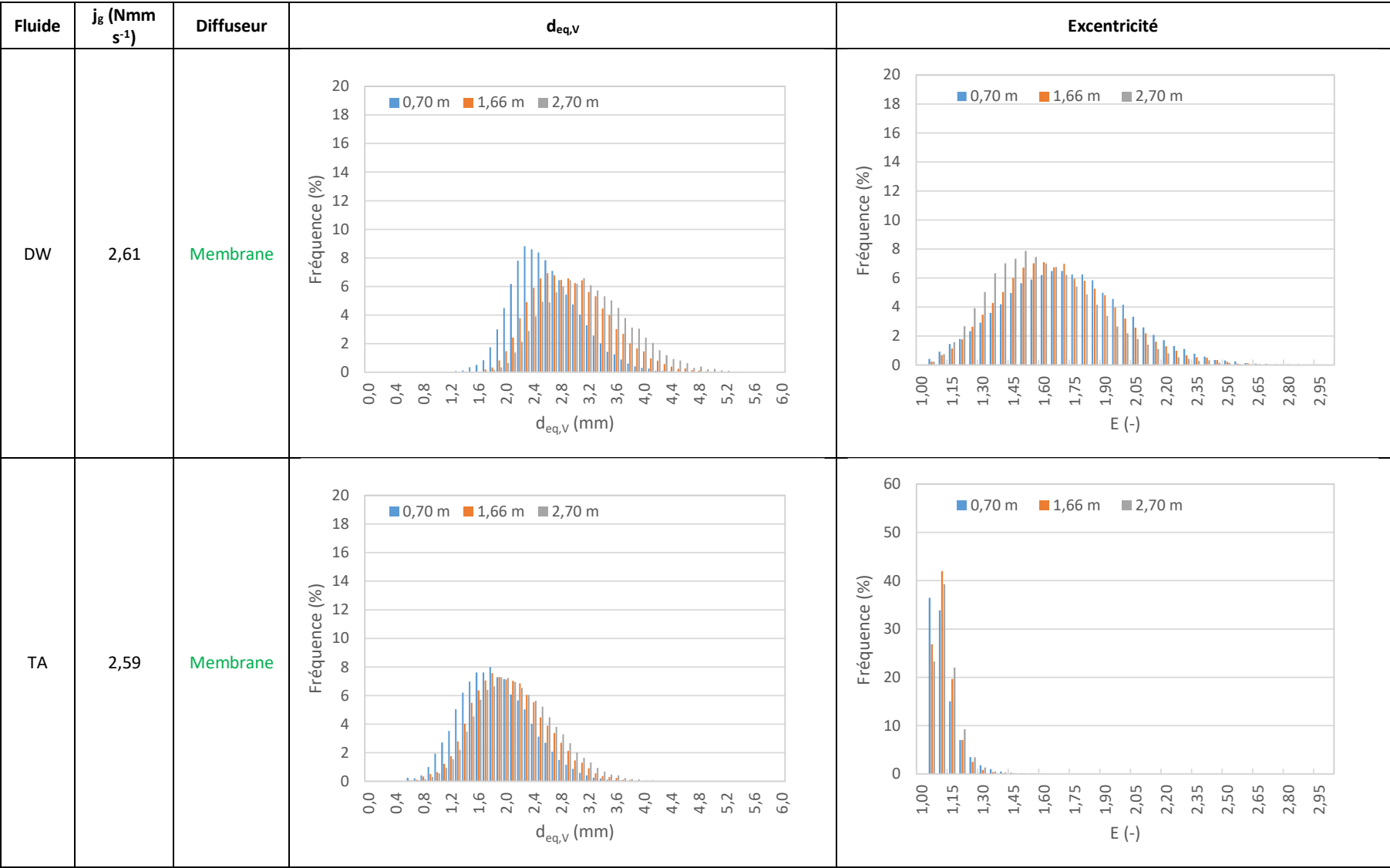


Figure 4-14 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Membrane / XG et XG +TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

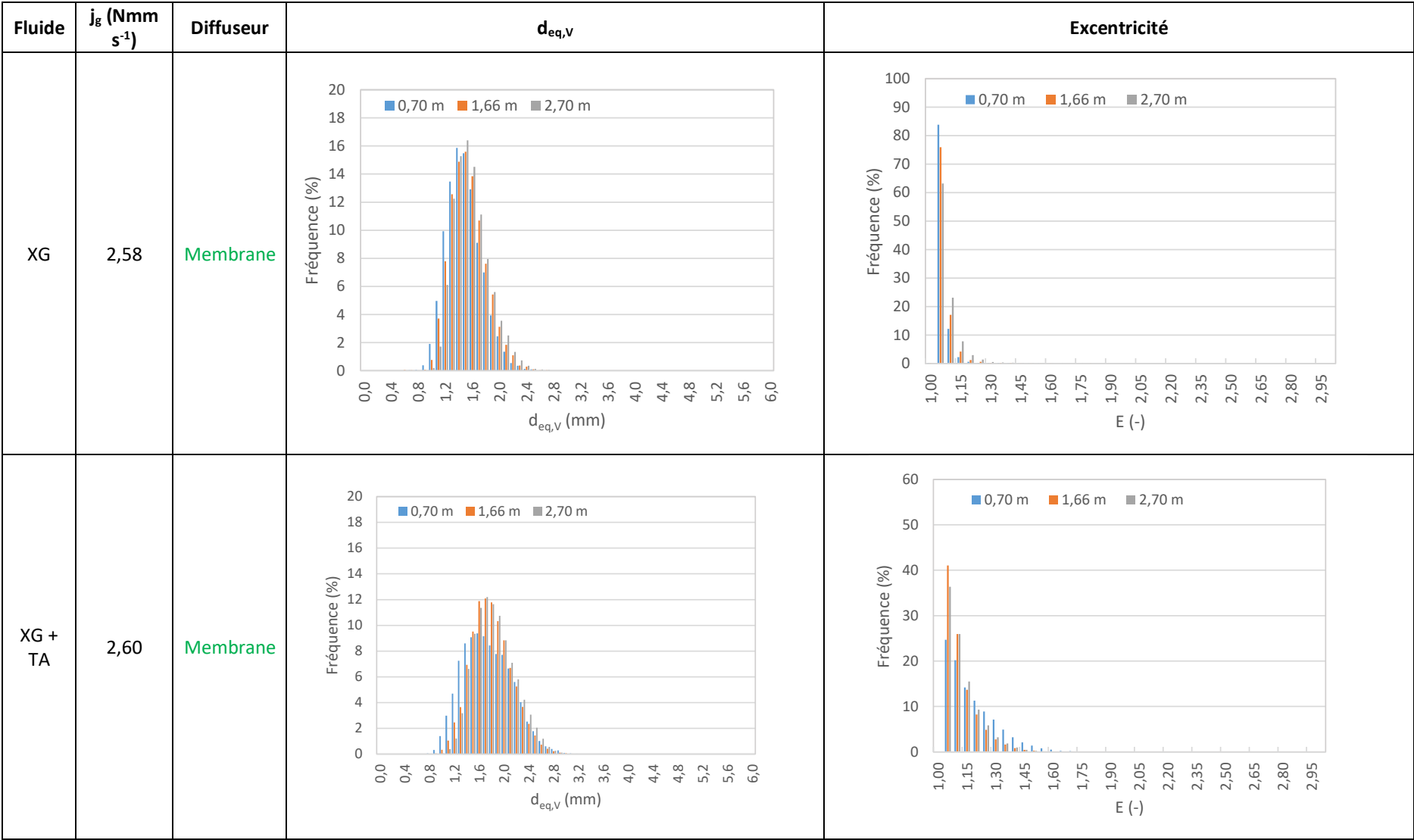


Figure 4-15 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Capillaire / DW et TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

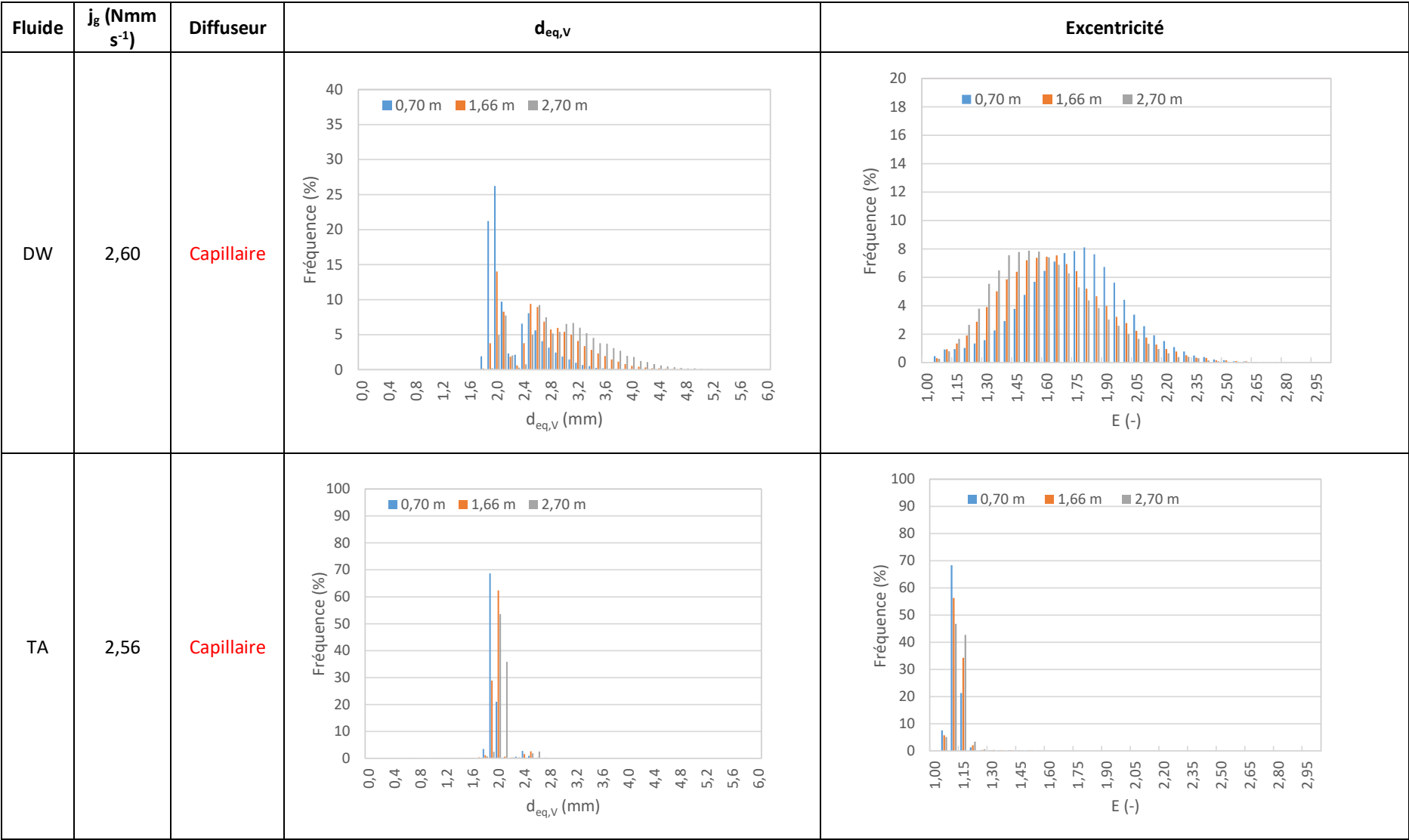


Figure 4-16 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l’excentricité – Diffuseur Capillaire / XG et XG +TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

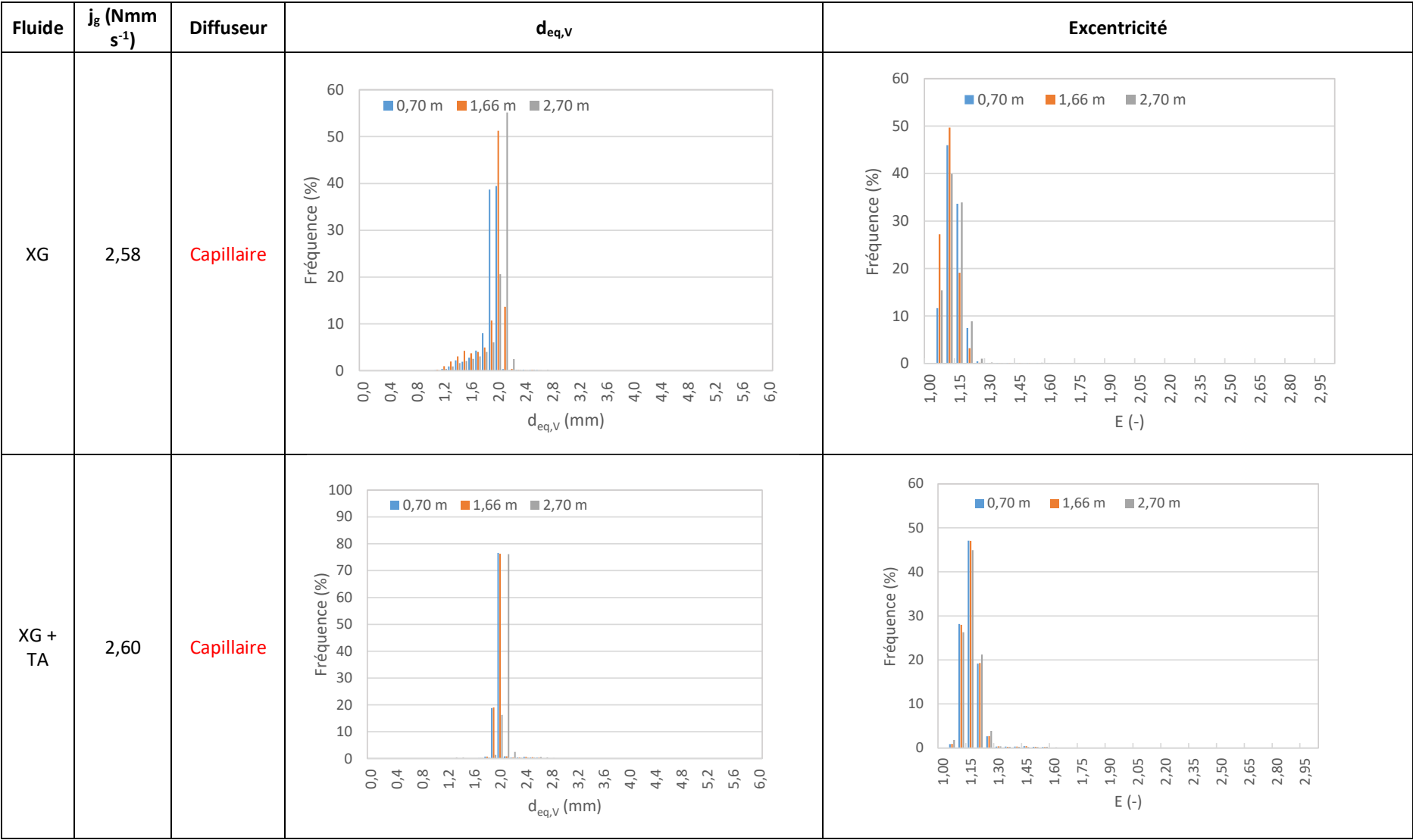
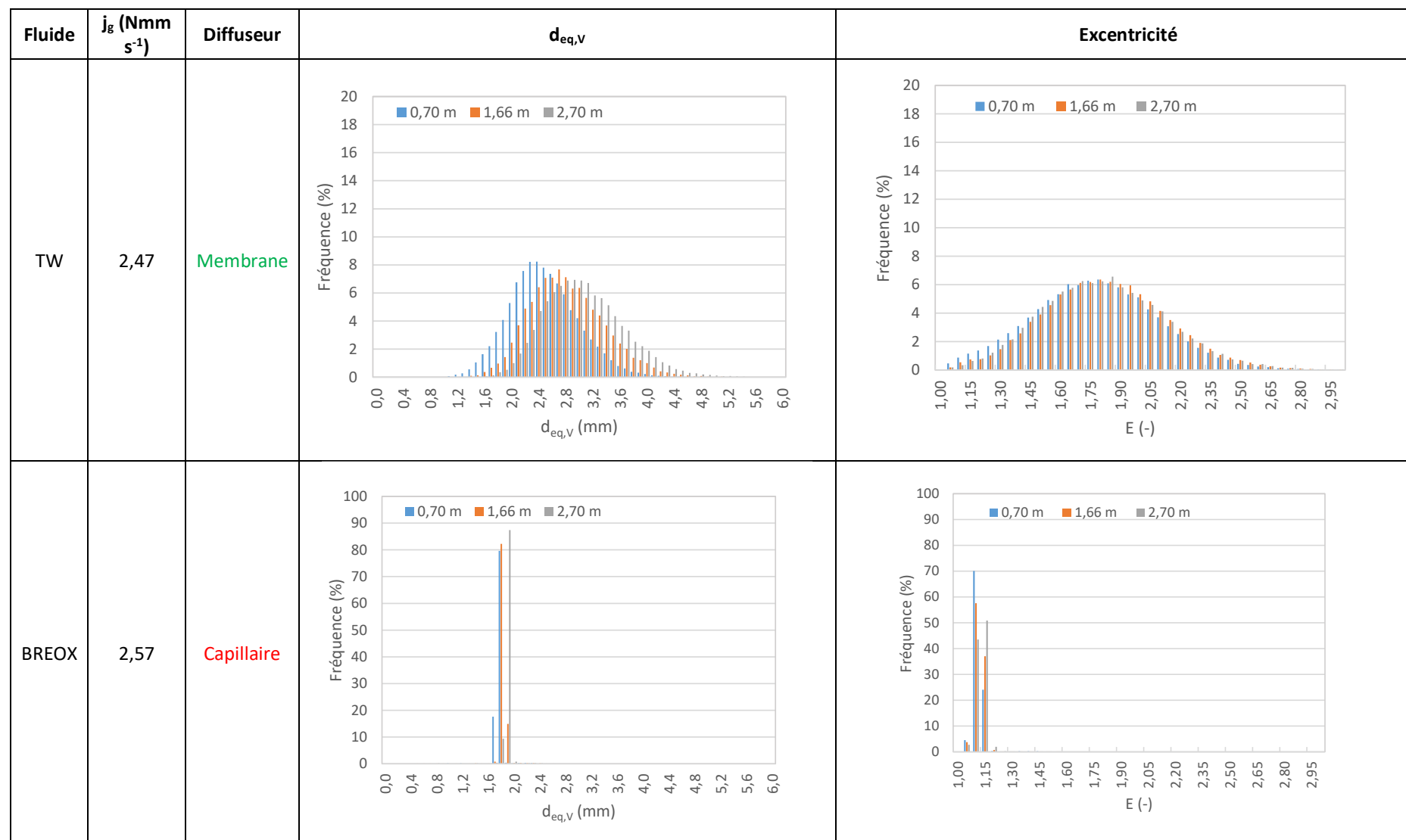


Figure 4-17 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Membrane / TW / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ - Diffuseur Capillaire / BR / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$



Diffuseur membrane

Pour le diffuseur membrane, les distributions de diamètre ont la forme classique d'une Gaussienne avec un étalement qui dépend du fluide utilisé et dont l'impact est analysé ci-dessous.

Les Figure 4-18 et Figure 4-19 présentent les distributions de diamètres équivalents en volume et de l'excentricité pour le diffuseur membrane et les différents types de fluides, à une hauteur de mesure de 1,66 m (respectivement Figure 4-18 et Figure 4-19). Ces figures permettent ainsi d'analyser directement l'impact des fluides sur les distributions de tailles obtenues.

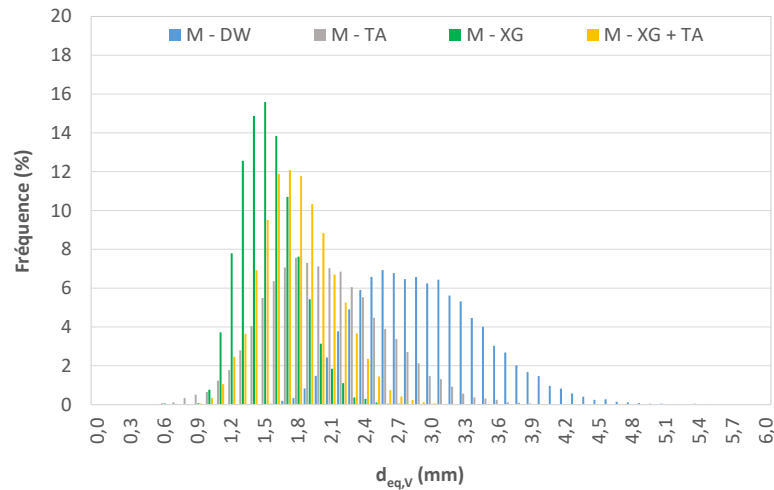


Figure 4-18 : Distribution de diamètre équivalent en volume de bulles pour les différents types de fluides
Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$

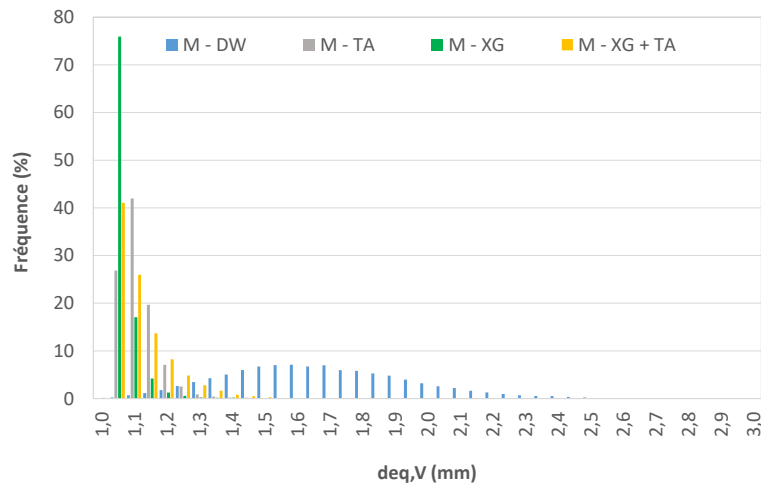


Figure 4-19 : Distribution d'excentricité pour les différents types de fluides
Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$

La distribution d'excentricité des bulles d'air en eau claire présente un étalement important, illustrant le fait que les bulles d'air sont principalement de forme ellipsoïdale (excentricité moyenne comprise entre 1,4 et 1,8, suivant les conditions opératoires). L'ajout de gomme xanthane a pour impact de modifier considérablement cette distribution, induisant des formes sphériques (voir Annexe 13). De

même, l'ajout de tensioactif induit la modification de l'excentricité des bulles d'air vers des formes sphériques.

L'ajout des différents composés utilisés induit une diminution du diamètre équivalent en volume moyen comprise entre 13 et 64% par rapport à l'eau claire pour le diffuseur membrane, avec également une diminution des écarts-type et des distributions plus resserrées, avec des valeurs de fréquence maximale plus importantes.

La Figure 4-20 présente l'évolution de la taille des bulles d'air sur la hauteur de la colonne pour le diffuseur membrane.

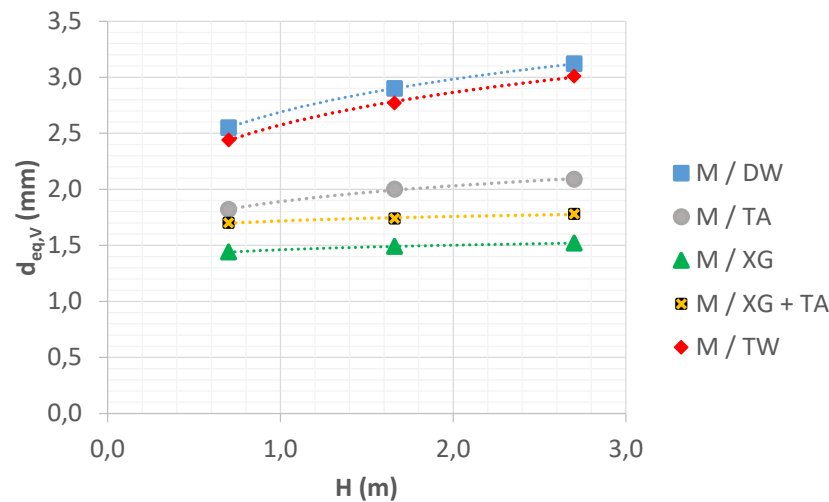


Figure 4-20 : Diamètre moyen équivalent en volume en fonction de la distance au diffuseur pour les différents types de fluides

Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

Pour l'ensemble des fluides, le diamètre moyen équivalent en volume augmente avec la distance au diffuseur. Cette évolution est plus importante pour les fluides DW et TW (en moyenne de 11%/m), en comparaison des fluides TA, XG et XG+TA (en moyenne de 4,1%/m), et ce pour l'ensemble des vitesses superficielles de gaz étudiées. De plus, les évolutions constatées sont équivalentes sur les parties inférieure et supérieure de la colonne.

L'augmentation théorique du diamètre des bulles d'air en fonction de la variation de pression hydrostatique est de 2,8%/m entre 0,70 et 1,66 m et de 3,1% entre 1,66 m et 2,70 m, soit une augmentation de 3,0%/m sur la hauteur de la colonne (soit 10%/m en volume). Pour le cas des fluides DW et TW, l'évolution est significativement supérieure à l'évolution théorique liée aux effets de variation de pression hydrostatique, mettant en évidence une coalescence potentielle des bulles d'air sur l'ensemble de la hauteur de la colonne, et pour l'ensemble de la gamme de vitesse superficielle de gaz appliquée. Les mesures en présence de tensioactifs (TA) et/ou de gomme xanthane (XG, XG+TA) semblent limiter ces phénomènes de coalescence, en modifiant les caractéristiques des interfaces des bulles d'air et leur tension superficielle.

Diffuseur capillaire

Les distributions de taille de bulles et d'excentricité obtenues à la hauteur de mesure de 1,66 m avec le diffuseur capillaire pour les différents fluides sont présentées sur les Figure 4-21 et Figure 4-22.

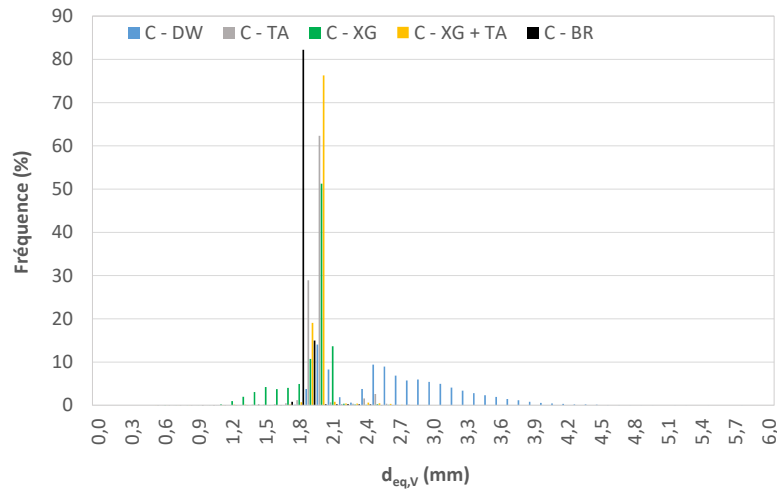


Figure 4-21 : Distribution de diamètre équivalent en volume de bulles pour les différents types de fluides – Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$

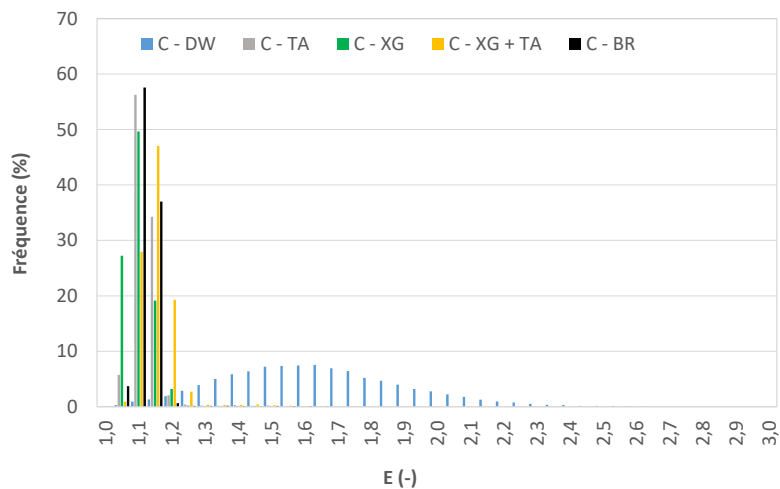


Figure 4-22 : Distribution d'excentricité pour les différents types de fluides – Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$

Avec le diffuseur capillaire, l'écart type du diamètre des bulles pour une condition et une hauteur données est réduit par rapport au diffuseur Membrane.

La distribution obtenue avec de l'eau déminéralisée diffère de celle obtenue avec le diffuseur membrane : la distribution de diamètres équivalents en volume suit une loi bimodale. Un premier pic centré sur 2 mm concerne la majorité des bulles (15 à 40%) ; sa fréquence maximale diminue avec la hauteur d'eau. Un second pic, plus étalé, est obtenu entre les valeurs 2,5 et 4,0 mm. La fréquence et l'étalement de ce pic augmentent avec la hauteur dans la colonne, et il existe très peu de bulles entre les deux pics, ce qui pourrait correspondre à une observation de la coalescence.

Le premier pic a été comparé au diamètre théorique des bulles donné par la loi de Tate permettant de déterminer le diamètre des bulles à la naissance (**Gaddis and Vogelpohl, 1986**). Cette loi exprime l'équilibre entre les forces de flottabilité et de tension superficielle s'exerçant sur les bulles :

$$d_B = \left(\frac{6 \times d_0 \times \sigma}{\rho_L \times g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.2)$$

Avec d_B le diamètre de bulle au détachement (m), d_0 le diamètre interne des capillaires (m), σ et ρ_L respectivement la tension superficielle (N m^{-1}) et la masse volumique (kg m^{-3}) du fluide, et g l'accélération de la pesanteur (N kg^{-1}).

Les résultats obtenus sont regroupés dans le Tableau 4-8. Pour un diamètre interne de capillaire de 0,2 mm et avec les propriétés physico-chimiques de l'eau, la valeur de diamètre de bulle au détachement est de 2,07 mm, ce qui est du même ordre de grandeur que le premier pic de la distribution à 70 cm (1,92 mm). Le second pic pourrait correspondre à une coalescence de bulles avec une taille théorique correspondant à l'agrégation de deux bulles de 2,07 mm pour engendrer une bulle de 2,61 mm (soit $\sqrt[3]{2}$ fois le diamètre initial).

Tableau 4-8 : Diamètre le plus fréquent – Diffuseur Capillaire - $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – Comparaison avec la loi de Tate [Eq. (4.2)]

[Pour C-DW, les valeurs correspondent à la valeur la plus fréquente du premier pic de chacune des distributions]

Fluide	H (m)			$d_{B,Tate}$ (mm)
	0,7	1,66	2,7	
C - DW	1,92	1,97	2,01	2,07
C - TA	1,89	1,94	2,00	2,04
C - XG	1,92	1,98	2,06	2,07
C - XG + TA	1,94	1,94	2,04	2,03
C - BR	1,73	1,79	1,84	1,89

De même qu'avec le diffuseur membrane, les bulles en eau claire sont ellipsoïdales avec une excentricité comprise entre 1,55 et 1,75. L'ajout de composés tensioactifs, de gomme xanthane ou de Breox réduit cette excentricité conduisant à l'obtention de bulles plus sphériques.

La Figure 4-23 présente l'évolution de la taille des bulles d'air sur la hauteur de la colonne pour le diffuseur capillaire.

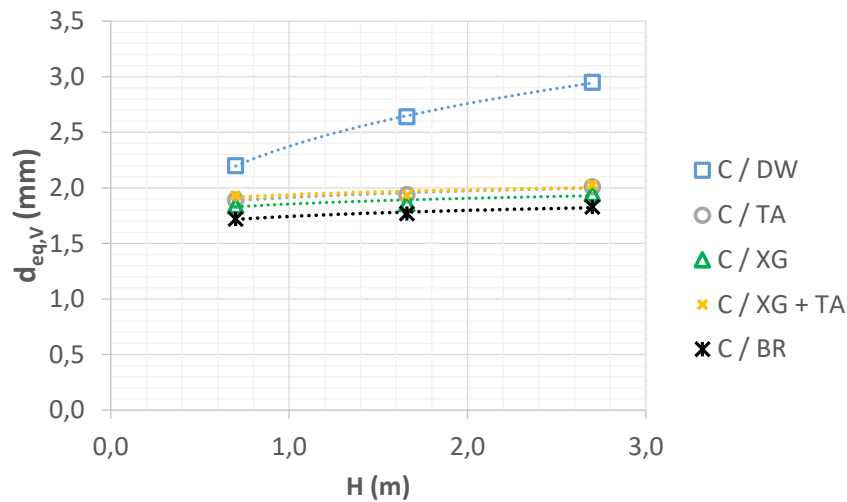


Figure 4-23 : Diamètre moyen équivalent en volume en fonction de la distance au diffuseur pour les différents types de fluides
Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

En eau claire, la valeur de diamètre équivalent en volume moyen augmente de 17 %/m. A la hauteur 70 cm, le diamètre équivalent en volume moyen correspond au mode du premier pic (1,96 mm), le second pic étant peu significatif, et l'impact de ce dernier sur la valeur moyenne augmente avec la hauteur dans la colonne, ce qui explique cette forte augmentation de diamètre moyen avec la hauteur : à 270 cm la valeur moyenne est de 2,64 mm et c'est le second pic qui prédomine. Cette valeur est très proche de la valeur théorique résultant de la coalescence de 2 bulles d'une taille correspondant à la loi de Tate (ratio de 1,26 après coalescence). Sur 2 m, ce ratio correspond à 13%/m d'augmentation lié à la coalescence, auquel il faut ajouter 3%/m de détente, soit un total de 16%/m très proche de la valeur observée. Cela confirme plus nettement, dans le cas de la membrane, une possible coalescence de bulles au cours de leur ascension dans la colonne qui est ici plus homogène dès la distribution.

Après ajout de gomme xanthane, tensioactif ou Breox, l'évolution de taille des bulles avec la hauteur est de l'ordre de 3%/m et correspond strictement à celle liée à la diminution de la pression hydrostatique. Dans ces fluides, il ne semble donc pas y avoir de coalescence.

4.2.4.2 Variation de $d_{eq,V}$ et de l'excentricité selon la vitesse superficielle de gaz

Diffuseur membrane

La Figure 4-24 représente les évolutions de diamètre équivalent en volume moyen sur la hauteur de la colonne en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur membrane et les différents fluides.

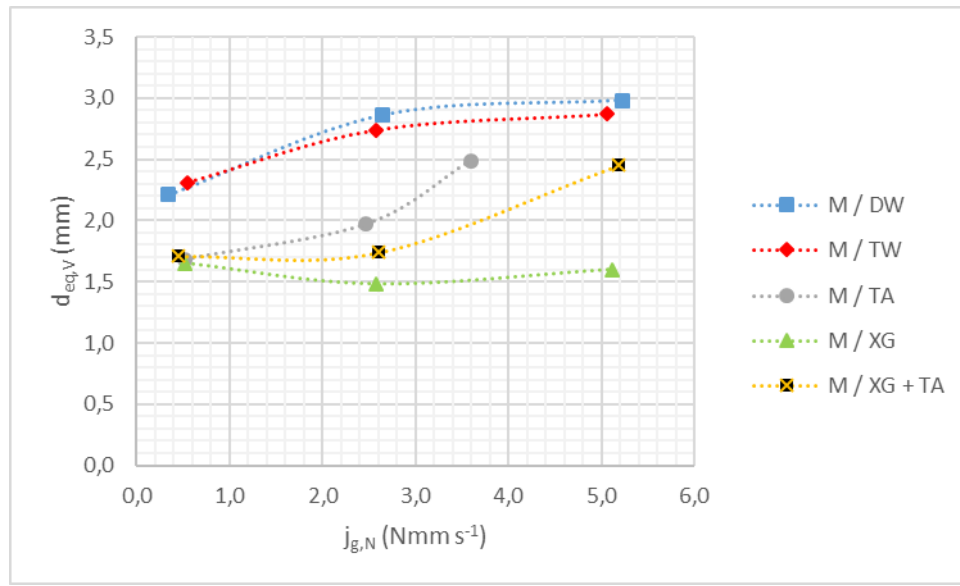


Figure 4-24 : Evolution du diamètre équivalent en volume moyen sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur membrane

En eau claire, le diamètre équivalent en volume moyen augmente avec la vitesse superficielle de gaz, rendant compte de la dilatation des pores de la membrane qui augmente avec l'augmentation de la pression de gaz et donc de la vitesse superficielle de gaz, comme indiqué par (Loubière et al., 2003). Le diamètre équivalent en volume tend néanmoins vers une limite pour les vitesses superficielles de gaz les plus élevées. En présence de gomme xanthane en revanche, le diamètre équivalent en volume ne dépend pas de la vitesse superficielle de gaz. En présence de tensioactif (seul et additionné à la gomme xanthane), une forte augmentation de diamètre pour la vitesse superficielle de gaz la plus importante est observée. Cette augmentation peut correspondre à un comportement différent du fluide à forte vitesse superficielle de gaz, engendrant des diamètres de bulle plus élevés, mais également à un éventuel changement de composition du fluide, les expériences ayant été menées sur des fluides différents pour chaque vitesse superficielle de gaz, et potentiellement du fait du moussage important notamment à forte vitesse superficielle de gaz.

La Figure 4-25 représente les évolutions d'excentricité moyenne sur la hauteur de la colonne en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur membrane et les différents fluides.

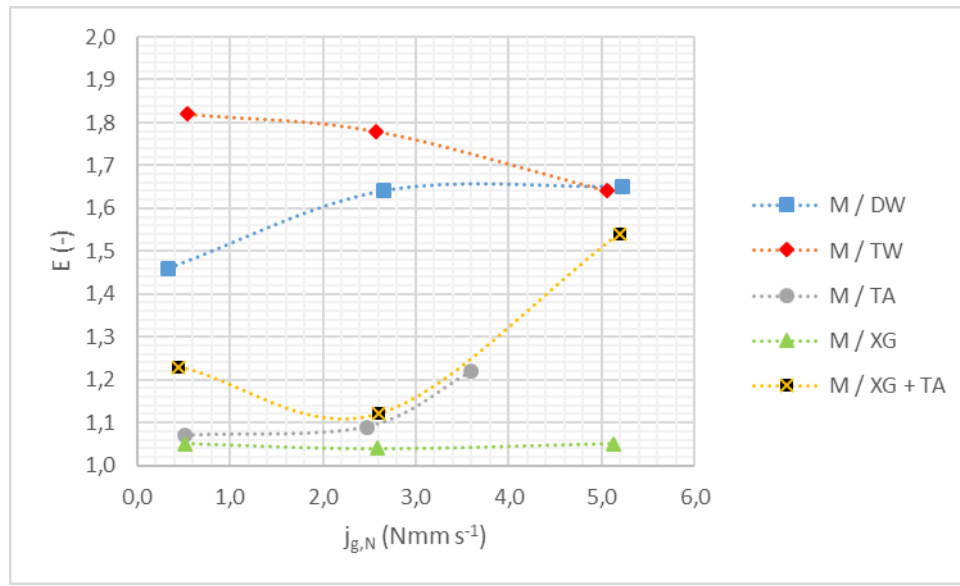


Figure 4-25 : Evolution de l'excentricité moyenne sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur membrane

En eau du réseau, l'excentricité moyenne tend à diminuer avec la vitesse superficielle de gaz, alors qu'en eau déminéralisée au contraire elle a tendance à augmenter. En présence de gomme xanthane, l'excentricité demeure très proche de 1,0 et ne varie pas avec la vitesse superficielle de gaz. De la même manière que pour le diamètre équivalent en volume, les excentricités moyennes en présence de tensioactif augmentent fortement pour la vitesse superficielle d'aération la plus élevée et se rapprochent des valeurs observées en eau claire. Cela semble corroborer l'hypothèse d'un changement de composition du fluide pour les vitesses superficielles de gaz les plus élevées, avec une possible diminution de la concentration en tensioactif.

Diffuseur capillaire

La Figure 4-26 représente les évolutions de diamètre équivalent en volume moyen sur la hauteur de la colonne en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur capillaire et les différents fluides.

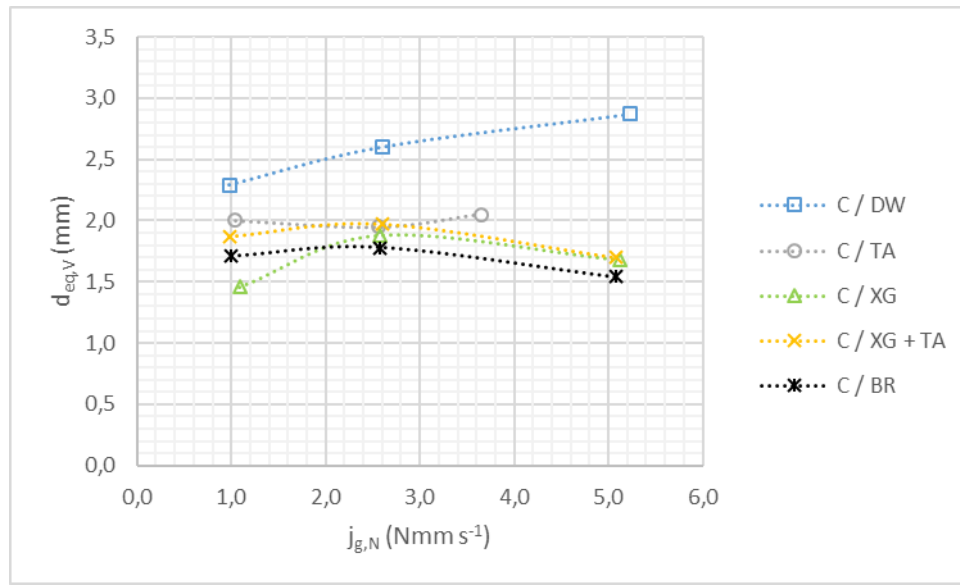


Figure 4-26 : Evolution du diamètre équivalent en volume moyen sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur capillaire

A l'exception de l'eau claire, pour laquelle le diamètre équivalent en volume moyen augmente avec la vitesse superficielle de gaz (probablement du fait de la coalescence de bulles plus importante à forte vitesse superficielle de gaz), les diamètres équivalents en volume moyens varient peu avec la vitesse superficielle de gaz et restent compris entre 1,5 et 2,0 mm. Ainsi, cela montre que le diamètre de bulle à la naissance est peu dépendant de la pression de gaz (et donc de la vitesse superficielle de gaz appliquée) dans le cas d'un diffuseur de type capillaire, contrairement à un diffuseur de type membrane. En outre, les diamètres de bulles sont globalement moins élevés avec le diffuseur capillaire qu'avec le diffuseur membrane.

La Figure 4-27 représente les évolutions d'excentricité moyenne sur la hauteur de la colonne en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur capillaire et les différents fluides.

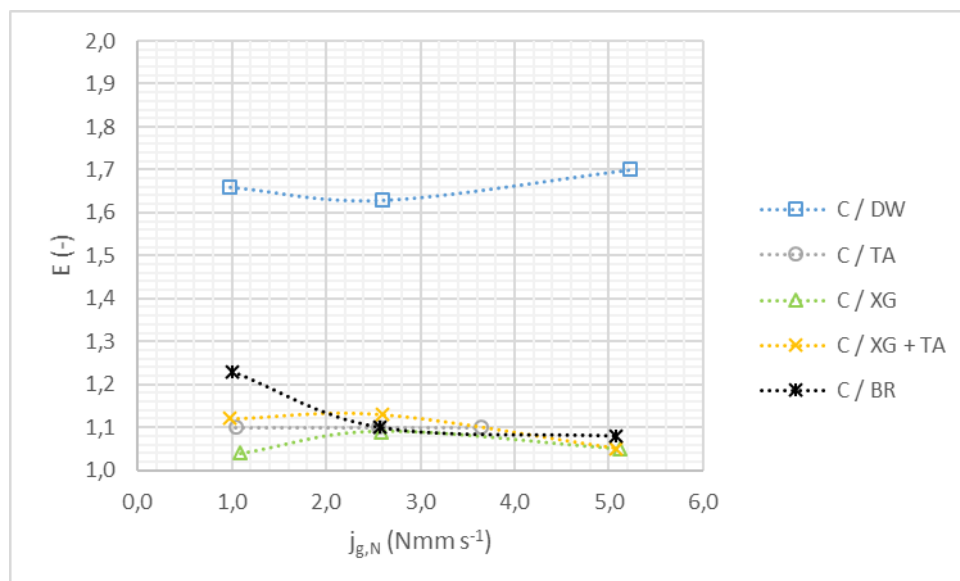


Figure 4-27 : Evolution de l'excentricité moyenne sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur capillaire

En eau claire, l'excentricité moyenne varie peu avec la vitesse superficielle de gaz et les valeurs sont comprises entre 1,6 et 1,7, elles sont ainsi sensiblement égales à celles obtenues avec le diffuseur membrane. Pour les autres fluides, les bulles sont quasi-sphériques et leur excentricité moyenne varie peu avec la vitesse superficielle de gaz (valeurs globalement comprises entre 1,0 et 1,2).

4.2.4.3 Conclusions sur les évolutions de $d_{eq,v}$ et d'excentricité

Pour l'ensemble des fluides, le diamètre de bulle équivalent en volume augmente avec la hauteur dans la colonne. Pour les fluides modèles visqueux ou tensioactifs, cette augmentation est d'environ 3 %/m, ce qui correspond à l'expansion des bulles du fait de la diminution de pression hydrostatique au cours de leur ascension, conformément à ce qui est généralement constaté dans les systèmes à faible taux de gaz (Amaral et al., 2018).

En eau claire avec les diffuseurs membrane et capillaire, cette augmentation est beaucoup plus marquée (jusqu'à 17%/m) et est probablement due à une coalescence des bulles. Cette coalescence est inhibée pour les autres fluides modèles du fait des effets de viscosité et/ou de tension superficielle. En outre, le diamètre moyen des bulles est significativement plus élevé en eau claire que pour les autres fluides modèles. Il est également possible que la possible coalescence de bulles soit favorisée en eau claire du fait de la trajectoire oscillatoire des bulles ellipsoïdales (contrairement à des bulles sphériques qui ont davantage tendance à monter de manière rectiligne), engendrant ainsi une plus grande probabilité de collision entre bulles.

L'excentricité moyenne des bulles est comprise entre 1,6 et 1,8 en eau claire pour les deux diffuseurs, où les bulles sont ellipsoïdales. Pour les autres fluides modèles, les bulles sont quasi-sphériques (excentricité moyenne comprise entre 1,0 et 1,1), du fait des effets de viscosité et/ou de tension superficielle des fluides.

Pour mieux comprendre et justifier la probabilité de l'existence de phénomènes de coalescence malgré le soin apporté à une distribution la plus uniforme possible du gaz au niveau de l'injection, une estimation du temps que deux bulles de tailles différentes mettent à se rattraper avant de sortir de la colonne d'eau peut être faite.

La distance moyenne entre deux bulles qui montent en moyenne de manière rectiligne correspond à d_b/ϵ_G . Par exemple, pour un champ de bulles de 2 mm avec une rétention gazeuse de 1%, la distance moyenne entre les bulles est de 0,2 m.

Ces deux bulles se rattraperont si le temps de rencontre est inférieur au temps de montée de la plus lente (vitesse de glissement G_2) qui doit forcément se situer au-dessus de la plus rapide (vitesse de glissement G_1).

Le temps de rencontre correspond à la distance moyenne entre les bulles rapportée à leur différence de vitesse ($G_1 - G_2$). Le temps maximum de montée de la bulle la plus lente correspond à $(H - d_b/\epsilon_G)$ divisé par G_1 .

On a donc un critère simple de coalescence quand on suppose que la rencontre des 2 bulles se fait spontanément (sans considération de problème de drainage ou de tension de surface) si :

$$\frac{G1 - G2}{G1} > \frac{d_B / \varepsilon_G}{H - d_B / \varepsilon_G} \quad (4.3)$$

Par exemple, si la différence de vitesse entre les bulles de 2 mm environ avec une rétention gazeuse de 1% est de 3 cm s⁻¹ pour une vitesse d'ascension à 0,25 m s⁻¹ sur 2 m de hauteur, on aura :

$\frac{0,03}{0,25} > \frac{0,2}{2-0,2}$ soit 0,12 > 0,11 donc il y aura de la coalescence alors qu'avec une différence de vitesse de seulement 2 cm s⁻¹, la probabilité de rencontre avant de sortir de la colonne est très faible.

Ce critère, quoique très simpliste, montre surtout que la probabilité de coalescence augmente quand :

- Les bulles sont petites (et montent lentement) ;
- La rétention gazeuse est grande ;
- La hauteur de colonne est grande ;
- La différence de vitesse entre les bulles est grande (distribution de la taille des bulles étalée).

Pour éviter toute coalescence dans une colonne de grande hauteur, il faut donc que la colonne soit très bien distribuée au moyen d'un diffuseur parfaitement calibré pour que les bulles soient les plus identiques possibles, ce qui est plus difficile à faire avec une membrane qu'avec des capillaires.

4.2.5 Aire interfaciale spécifique des bulles (a)

4.2.5.1 Aire interfaciale locale

Les Figure 4-28 et Figure 4-29 présentent les évolutions d'aires interfaciales locales (calculées à partir du diamètre de Sauter moyen à une hauteur donnée de la colonne et à la rétention gazeuse mesurée à cette hauteur) en fonction de la hauteur, pour les diffuseurs membrane et capillaire et l'ensemble des fluides. Comme pour les évolutions de diamètres présentées précédemment, les résultats à la vitesse de 2,6 Nmm s⁻¹ sont commentés, et les résultats obtenus avec les autres vitesses de gaz, similaires, sont présentés en Annexe 11.

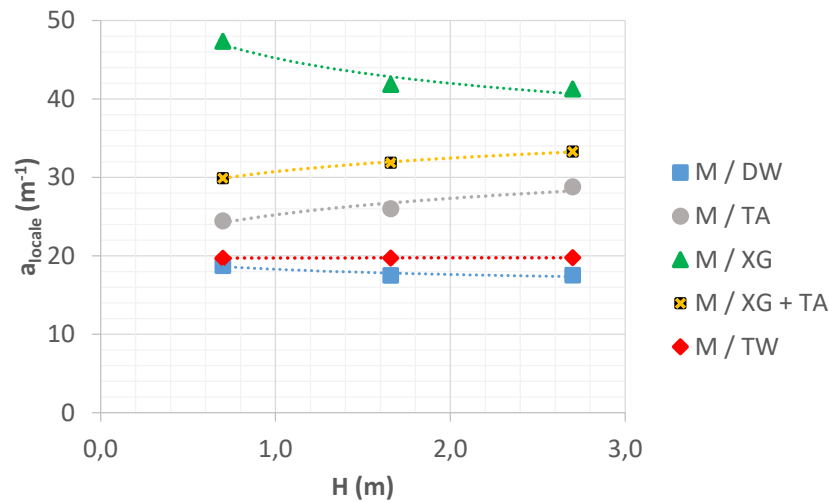


Figure 4-28 : Aire interfaciale locale en fonction de la distance au diffuseur – Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

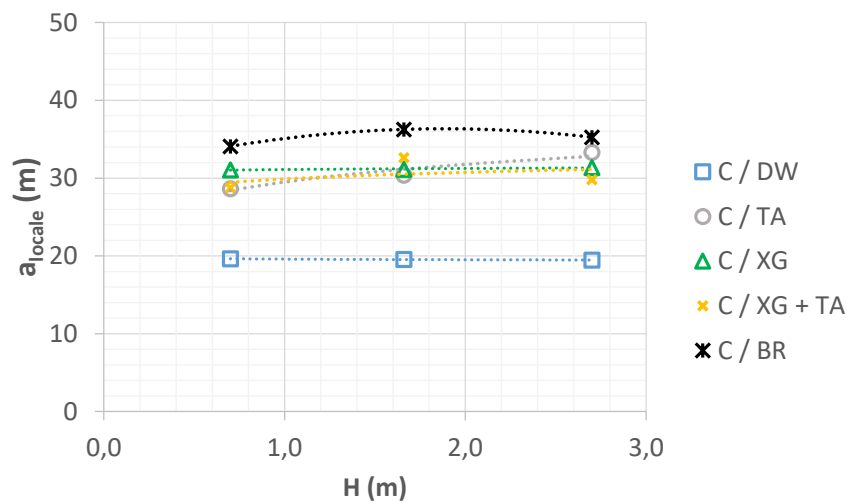


Figure 4-29 : Aire interfaciale en fonction de la distance au diffuseur – Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$

Résultant de l'évolution des diamètres de bulles et de rétention gazeuse avec la hauteur, l'aire interfaciale est relativement stable sur la hauteur de colonne (en excluant la première valeur obtenue avec le diffuseur membrane et la gomme xanthane, pour laquelle des doutes ont été émis sur la validité de la mesure de rétention de gaz). Seul l'ajout de composés tensioactifs conduit à une augmentation significative de l'aire interfaciale avec la hauteur d'eau (de 9 %/m et 8 %/m avec les diffuseurs membrane et capillaire, respectivement).

4.2.5.2 Comparaison des différents fluides pour chaque diffuseur

La Figure 4-30 présente les évolutions d'aires interfaciales (calculées à partir du diamètre de Sauter moyen sur la hauteur de la colonne et de la rétention gazeuse globale) en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur membrane et l'ensemble des fluides. Les vitesses de gaz n'étant pas exactement les mêmes en eau claire et en présence des différents composés, les comparaisons des valeurs par rapport à l'eau claire ont été obtenues en considérant une relation linéaire entre l'aire interfaciale et la vitesse de gaz. Ces relations sont indiquées sur la Figure 4-30.

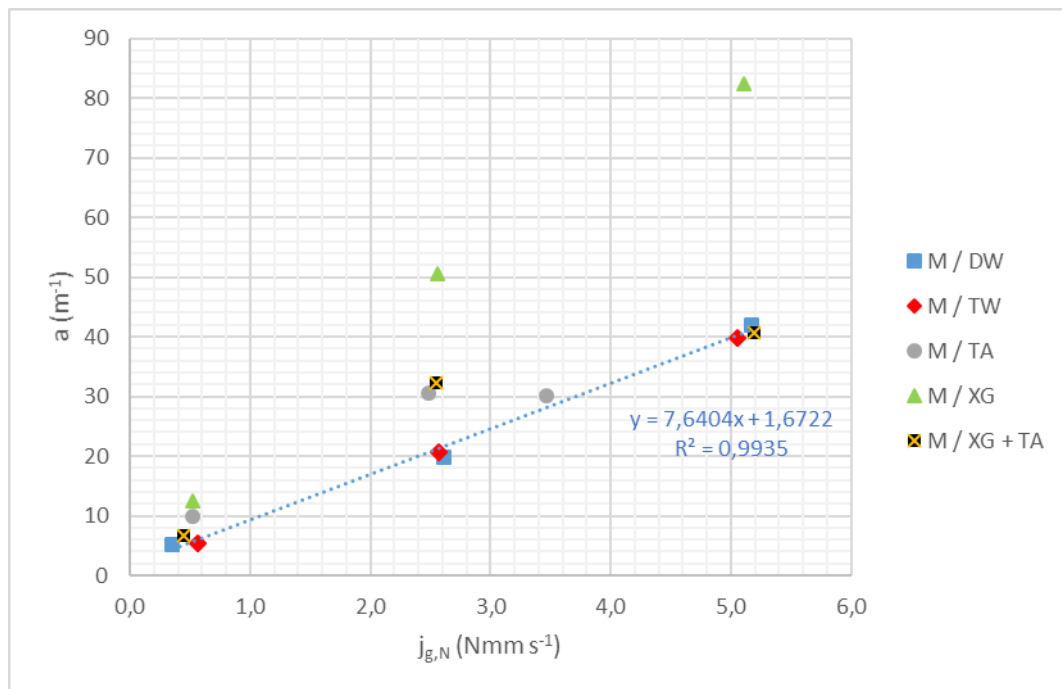


Figure 4-30 : Aire interfaciale des bulles en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane

Pour l'ensemble des fluides, l'aire interfaciale augmente de manière quasi linéaire avec la vitesse superficielle de gaz. L'aire interfaciale des bulles avec la gomme xanthane est très largement supérieure à celle en eau claire (de 102 à 140%). En présence de tensioactif, l'aire interfaciale est également plus élevée qu'en eau claire mais de manière moins marquée (de 7 à 76%), de même que pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif. Pour les vitesses superficielles de gaz les plus élevées en présence de tensioactif (TA) et gomme xanthane additionnée de tensioactif (XG+TA), l'augmentation d'aire interfaciale semble moindre et les valeurs obtenues sont équivalentes à celles de l'eau claire. En présence de tensioactif, cela peut s'expliquer par le fait que la rétention gazeuse est plus faible et le diamètre de bulle plus élevé que les valeurs attendues compte tenu de la tendance pour les deux autres vitesses superficielles de gaz, ce qui diminue l'aire interfaciale par rapport à l'évolution attendue au regard des deux autres points. Pour le mélange de gomme xanthane et de tensioactif, le diamètre de bulle est largement supérieur à la valeur attendue au regard des deux autres vitesses superficielles de gaz et pratiquement égal à celui de l'eau claire, par conséquent l'aire interfaciale est plus faible.

La Figure 4-31 présente les évolutions d'aires interfaciales en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur capillaire et l'ensemble des fluides.

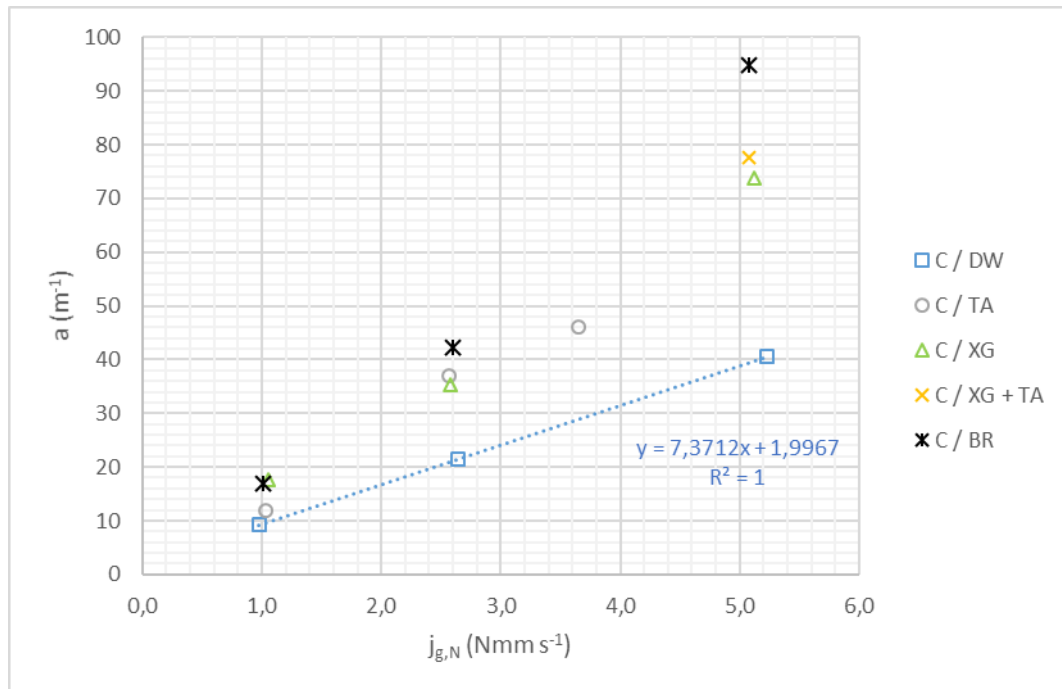


Figure 4-31 : Aire interfaciale des bulles en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire

Pour le diffuseur capillaire, l'aire interfaciale des bulles avec la gomme xanthane est supérieure de 68 à 86% par rapport à l'eau déminéralisée. Les aires interfaciales en présence de tensioactif non ionique sont également plus élevées qu'en eau claire (de 25 à 76 %), du fait du diamètre de bulle plus faible et de la rétention gazeuse plus élevée. L'augmentation la plus élevée est observée avec le Breox (de 79 à 140 %).

4.2.5.3 Comparaison des deux diffuseurs par fluide

La Figure 4-32 présente la comparaison des données d'aire interfaciale, par type de diffuseur et pour les différents types de fluides.

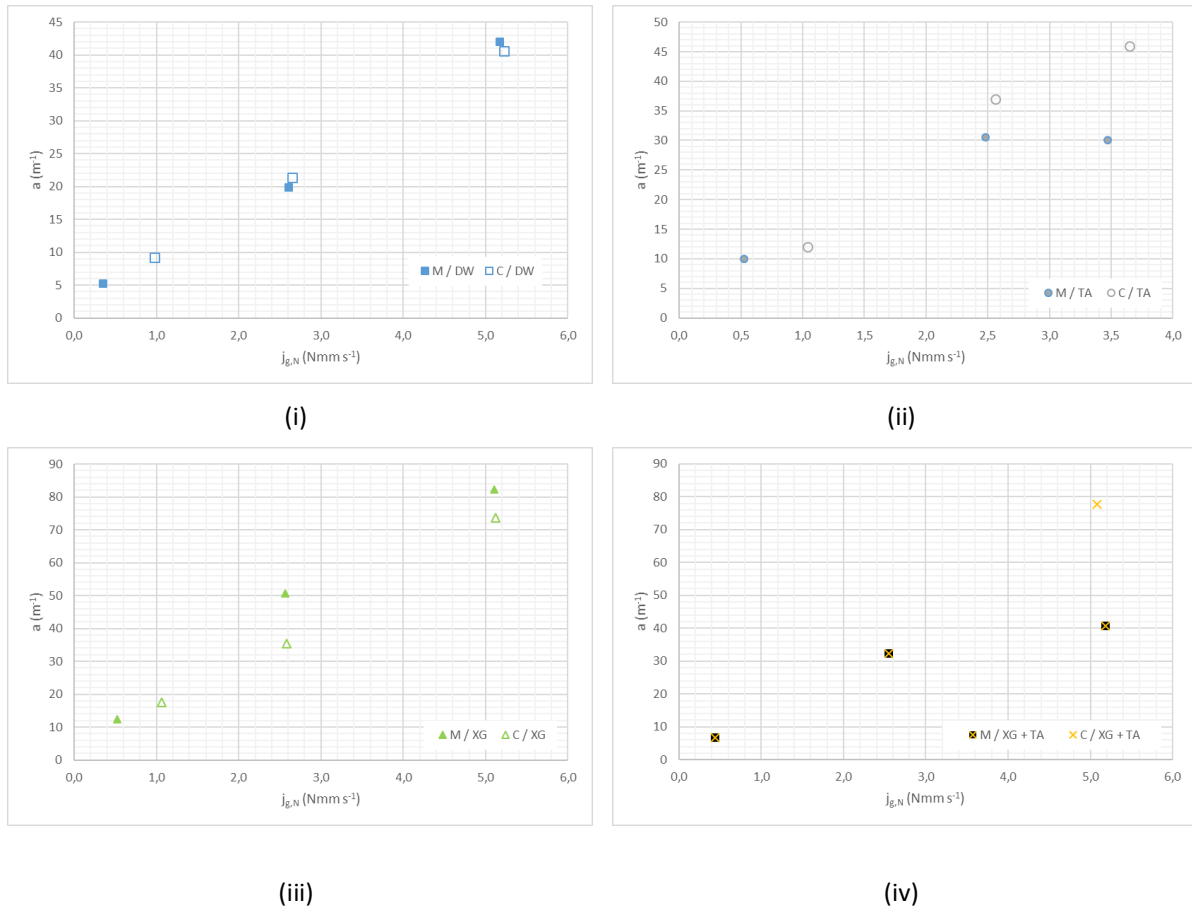


Figure 4-32 : Aire interfaciale spécifique en fonction de la vitesse superficielle de gaz – Comparaison par fluide pour chacun des deux types de diffuseurs

Les aires interfaciales mesurées et les évolutions observées indiquent que :

- Les valeurs sont du même ordre de grandeur pour les diffuseurs membranaire et capillaire en eau déminéralisée (différence maximale de 13%). La rétention gazeuse est légèrement supérieure avec le diffuseur membrane, ce qui entraîne une augmentation d'aire interfaciale, mais celle-ci est compensée par le diamètre de bulle plus élevé qu'avec le diffuseur capillaire.
- L'impact de tensioactif non ionique ne semble pas différent d'un diffuseur à l'autre.
- Après ajout de gomme xanthane, l'aire interfaciale obtenue avec le diffuseur membrane est supérieure de 10 à 30 % de celle obtenue avec le diffuseur capillaire.
- Les mesures en présence de tensioactif et de de gomme xanthane ne permettent pas de conclure sur l'impact du diffuseur.

4.2.5.4 Conclusion sur l'aire interfaciale des bulles

Pour une même vitesse superficielle de gaz, les aires interfaciales obtenues avec les deux diffuseurs sont similaires. L'ajout de gomme xanthane, de composé tensioactif anionique et/ou de Breox induit une augmentation significative de cette aire interfaciale, pouvant atteindre 140 %. Cette augmentation est due en partie à l'augmentation de rétention gazeuse, mais surtout à la diminution de diamètre de bulle.

4.2.6 Coefficient de transfert d'oxygène global K_La

4.2.6.1 Comparaison des différents fluides pour chaque diffuseur

La Figure 4-33 présente les évolutions des coefficients de transfert d'oxygène globaux en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur membrane et l'ensemble des fluides. De manière classique (**Durán, 2015; Fiat et al., 2019; Gillot et al., 2005**), les coefficients de transferts d'oxygène en eau claire sont corrélés à la vitesse de gaz à l'aide d'une loi puissance.

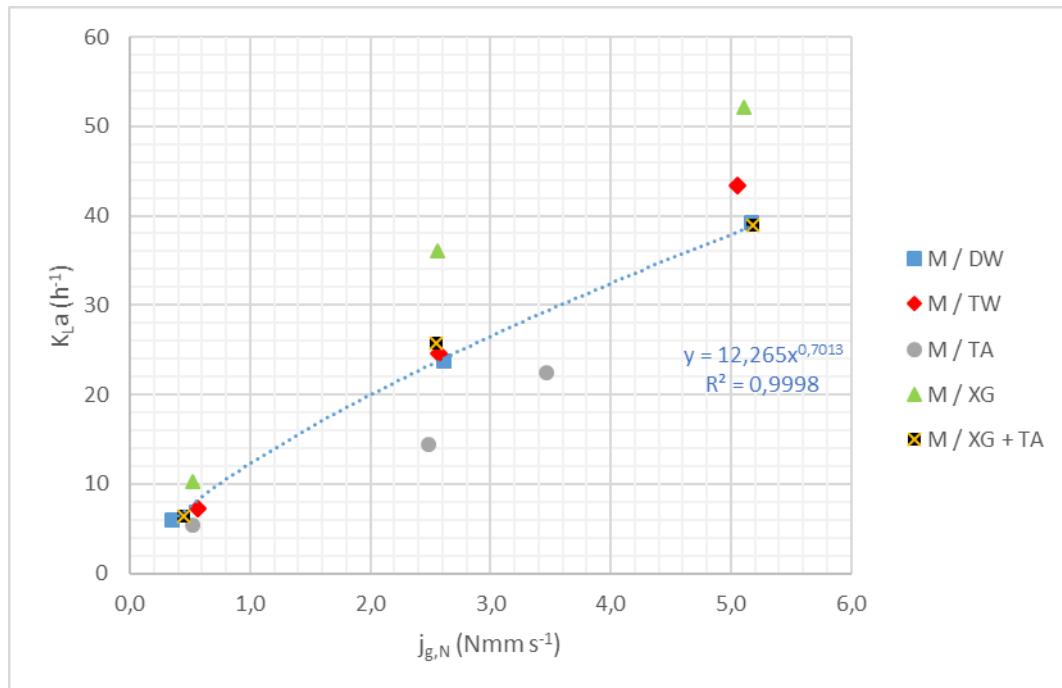


Figure 4-33 : Coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane

Pour l'ensemble des fluides, le coefficient de transfert de matière global augmente avec la vitesse superficielle de gaz. Les coefficients de transfert d'oxygène globaux sont comparables en eau déminéralisée et en eau du réseau. L'ajout de composés tensioactifs non ioniques induit une réduction du coefficient de transfert d'oxygène de 23 à 38 %, classiquement observée dans la littérature et attribuée à l'adsorption des molécules à la surface des bulles d'air ce qui engendre une résistance au transfert de matière (**Jimenez et al., 2014; Painmanakul et al., 2005; Rosso et al., 2006; Sardeing et al., 2006; Xu, 2019**). En présence de gomme xanthane, le coefficient de transfert de matière global est supérieur de 32 à 52 % à ceux en eau claire, la viscosité du milieu entraînant un impact sur la taille des bulles et donc sur le transfert de matière. Pour le mélange de gomme xanthane et de tensioactif, les K_La sont de même ordre de grandeur que ceux obtenus en eau claire, les effets liés aux tensioactifs et à la viscosité semblant se conjuguer globalement.

La Figure 4-34 présente les évolutions des coefficients de transfert de matière globaux en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur capillaire et l'ensemble des fluides.

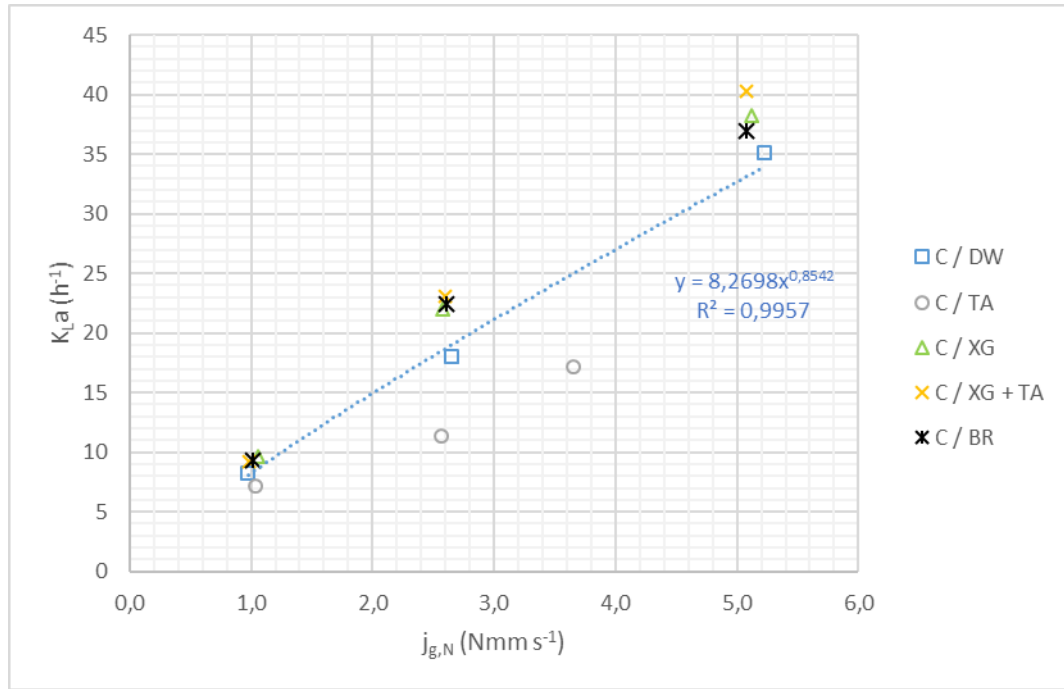


Figure 4-34 : Coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire

Comme avec le diffuseur membrane, les coefficients de transfert d'oxygène obtenus avec le diffuseur capillaire sont impactés par l'ajout de composés :

- Le tensioactif non ionique induit une diminution significative du K_{La} comprise entre 16 et 38% ;
- La gomme xanthane augmente le K_{La} de 11 à 23%, avec ou sans ajout de tensioactif ;
- Le Breox induit également une augmentation du K_{La} de 11 à 20%.

4.2.6.2 Comparaison des deux diffuseurs par fluide

La Figure 4-35 présente la comparaison des coefficients de transfert d'oxygène, par type de diffuseur et pour les différents types de fluides.

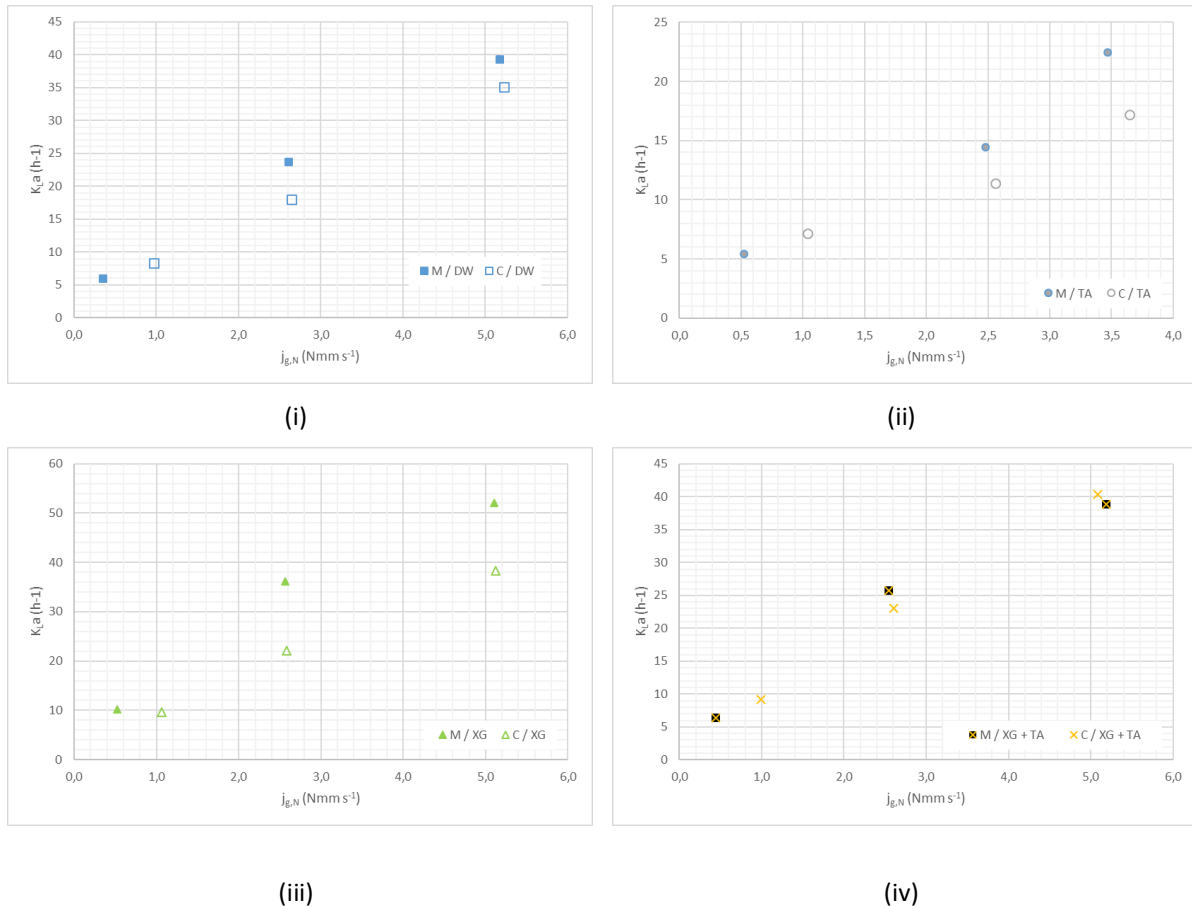


Figure 4-35 : Coefficients de transfert d'oxygène globaux en fonction de la vitesse superficielle de gaz – Comparaison par fluide pour les deux types de diffuseurs

Les mesures de transfert d'oxygène réalisées indiquent que :

- Les valeurs obtenues avec le diffuseur membrane sont quasi-systématiquement supérieures à celles obtenues avec le diffuseur capillaire, de 10 à 40%, alors que les différences d'aires interfaciales sont moins marquées pour les deux diffuseurs (voir 4.2.5.3) ;
- En présence de composé tensioactif et de gomme xanthane, cette différence n'est pas significative.

4.2.6.3 Conclusion sur le coefficient de transfert de matière global K_{La}

Pour l'ensemble des fluides, le coefficient de transfert de matière global K_{La} est une fonction puissance croissante de la vitesse superficielle du gaz. Quel que soit le diffuseur utilisé, l'ajout de composés tensioactifs non ioniques induit une réduction du coefficient de transfert d'oxygène de 16 à 38 %, alors que l'ajout de gomme xanthane l'augmente de 11 à 52%. Les coefficients de transfert d'oxygène obtenus sont systématiquement plus importants avec le diffuseur membrane que le diffuseur capillaire, sauf en présence du mélange tensioactif non ionique – gomme xanthane.

Afin de dissocier l'impact des composés ajoutés sur l'hydrodynamique (aire interfaciale (a)) et sur le coefficient global de transfert côté liquide K_L , ce dernier a été calculé à partir des mesures de (a) et de K_{La} global pour une première analyse globale de l'impact des différents fluides.

4.2.7 Coefficient de transfert de matière apparent côté liquide K_L

4.2.7.1 Comparaison des différents fluides pour chaque diffuseur

La Figure 4-36 présente les évolutions du coefficient de transfert global côté liquide en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur membrane et l'ensemble des fluides. Il est important de préciser que le coefficient de transfert côté liquide K_L calculé de cette manière est un coefficient « apparent » (ou global) étant donné qu'il est calculé à partir du coefficient de transfert de matière global K_{La} . Par conséquent, il s'agit d'une approximation du coefficient de transfert de matière côté liquide (bien qu'inférieure à la valeur réelle).

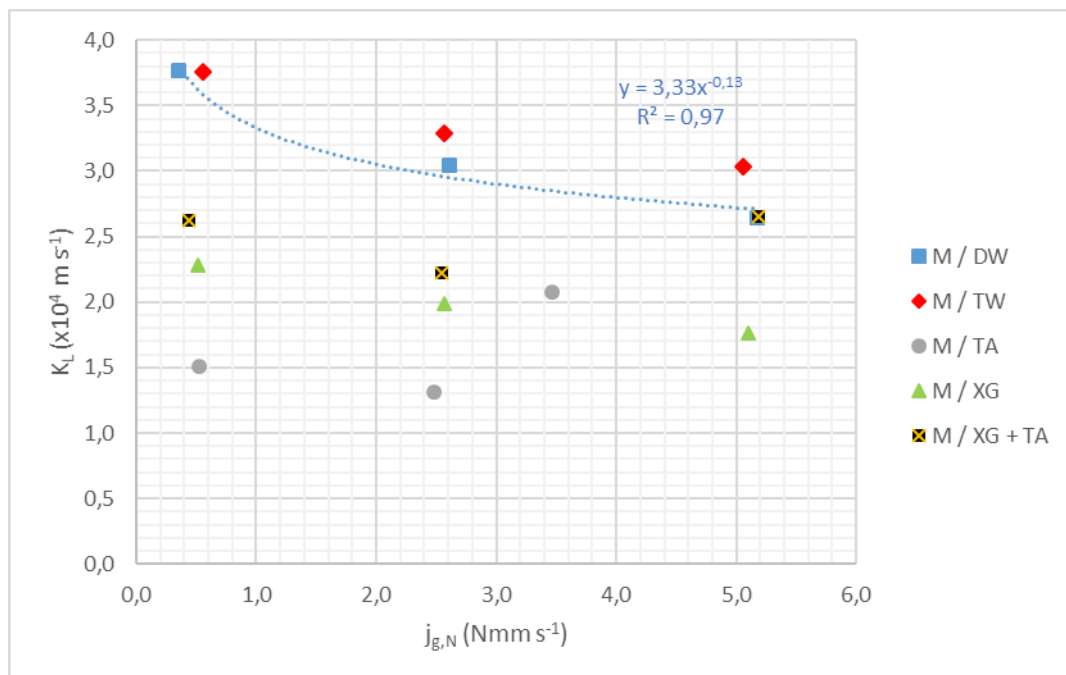


Figure 4-36 : Coefficient de transfert de matière global côté liquide en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane

Pour le diffuseur membrane, le coefficient de transfert de matière côté liquide K_L a tendance à diminuer avec la vitesse superficielle de gaz en eau claire, il en est de même avec la gomme xanthane et le tensioactif mais de manière moins significative. En outre, les valeurs de K_L en eau claire sont significativement supérieures à celles en présence de tensioactifs et de gomme xanthane. Cette diminution de K_L avec la vitesse superficielle de gaz en eau claire provient de l'augmentation de diamètre de bulle avec la vitesse superficielle de gaz.

La diminution du K_L en présence de composés tensioactifs non ioniques (de 27 à 58 %) s'explique par la contamination de l'interface gaz/liquide via l'adsorption de molécules de tensioactif à la surface des bulles. L'ajout de gomme xanthane quant à lui modifie la viscosité du milieu et donc les écoulements à l'interface gaz/liquide, conduisant à une diminution du K_L de 33 à 37 %.

La Figure 4-37 présente les évolutions du coefficient de transfert global côté liquide en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur capillaire et l'ensemble des fluides.

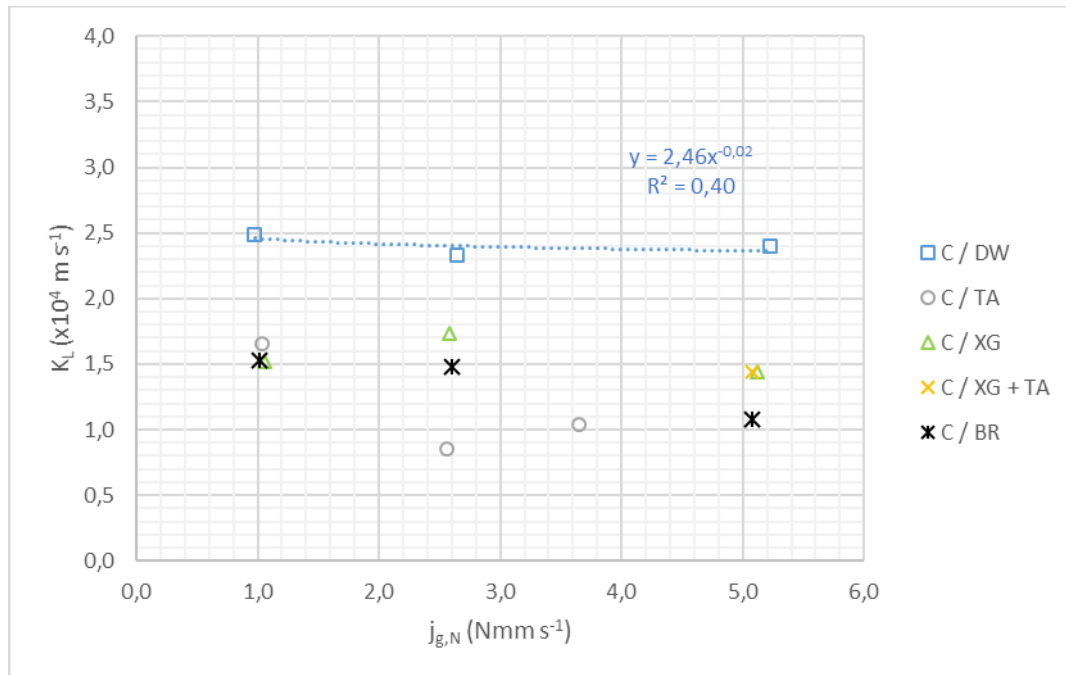


Figure 4-37 : Coefficient de transfert de matière global côté liquide en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire

Pour le diffuseur capillaire, contrairement au diffuseur membranaire, le coefficient de transfert côté liquide varie peu avec la vitesse superficielle de gaz en eau claire. Les valeurs de K_L en eau déminéralisée sont supérieures d'environ 27 à 67% par rapport à la gomme xanthane, mais les différences entre les deux fluides sont moins marquées que pour le diffuseur membranaire. En présence de tensioactif et de Breox, les valeurs de K_L sont respectivement inférieures de 33 à 65% et de 37 à 55% par rapport à l'eau claire.

Pour les deux diffuseurs, les coefficients de transfert globaux côté liquide sont comparés à ceux calculés par les modèles théoriques de Higbie et de Frössling dans les Figure 4-38 et Figure 4-39. Les vitesses de bulle sont calculées à partir de la vitesse superficielle de gaz et de la rétention gazeuse globale, et le coefficient de diffusion est supposé égal à celui de l'eau pour l'ensemble des fluides (à l'exception du Breox). Enfin le diamètre de bulle utilisé pour le calcul est le diamètre de Sauter moyen sur la hauteur de la colonne pour chaque condition.

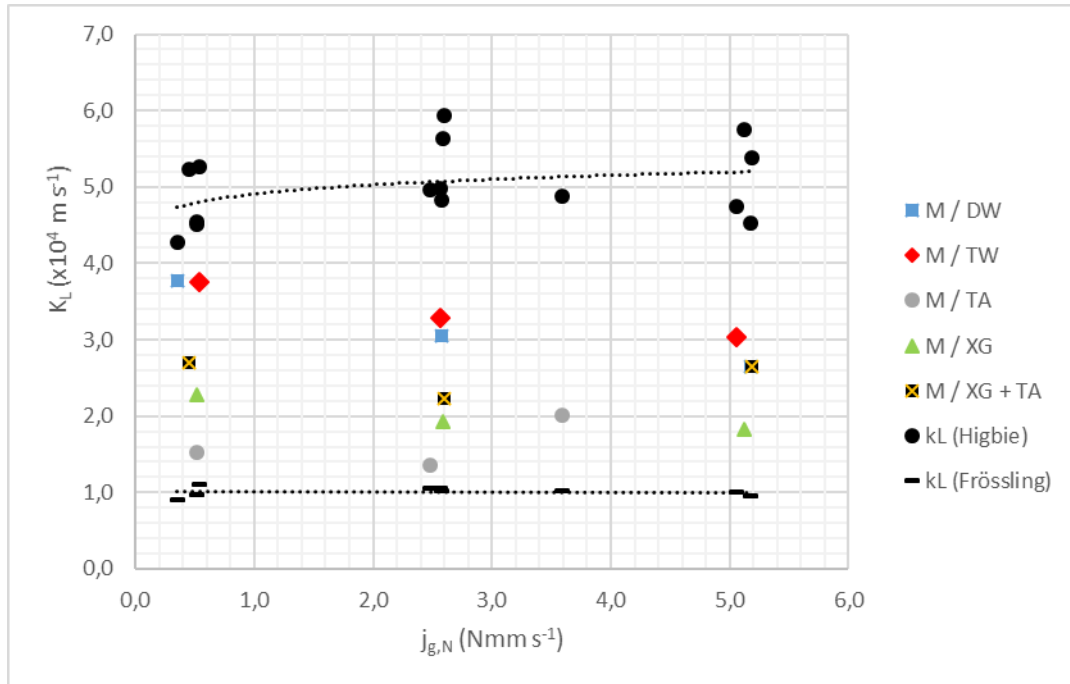


Figure 4-38 : Coefficient de transfert de matière côté liquide global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane et comparaison avec les modèles de Higbie et de Frössling

Dans le cas du diffuseur membrane, l'ensemble des coefficients de transfert côté liquide se situent entre les valeurs théoriques des modèles de Higbie et de Frössling. En dehors de l'eau claire (eau déminéralisée et eau du réseau), les fluides présentent des coefficients plus proches du modèle de Frössling que du modèle de Higbie, mettant en évidence l'effet important de la contamination des interfaces des bulles.

De la même manière que pour le diffuseur membrane, les coefficients de transfert de matière côté liquide pour le diffuseur capillaire sont comparés aux modèles théoriques de Higbie et de Frössling dans la Figure 4-39 :

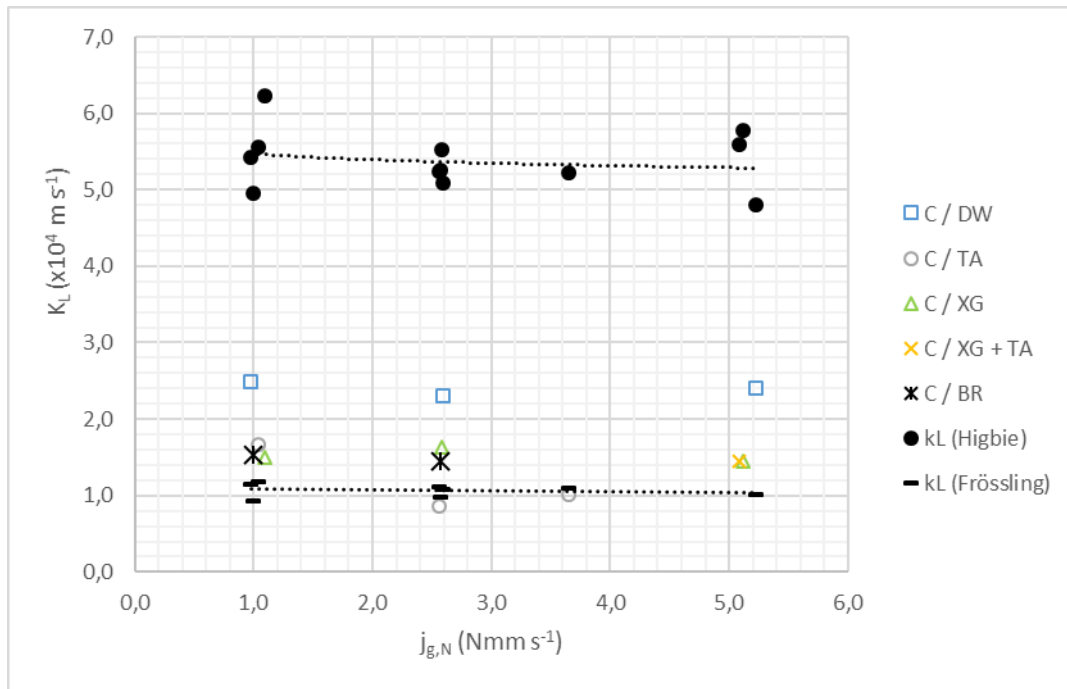


Figure 4-39 : Coefficient de transfert de matière côté liquide global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire et comparaison avec les modèles de Higbie et de Frössling

La contamination des bulles semble davantage marquée pour le diffuseur capillaire que pour le diffuseur membrane, avec des valeurs de coefficient de transfert côté liquide plus proches du modèle de Frössling. Cela est lié au diamètre de bulle plus faible avec le diffuseur capillaire. En présence de tensioactif et pour les deux vitesses superficielles de gaz les plus élevées notamment, les bulles apparaissent comme totalement contaminées, avec des valeurs de K_L de même ordre de grandeur que pour le modèle de Frössling.

4.2.7.2 Conclusion sur le coefficient de transfert de matière global côté liquide K_L

Le coefficient de transfert de matière global côté liquide est globalement plus élevé pour le diffuseur membrane que pour le diffuseur capillaire, probablement car les bulles sont de tailles et de niveaux de contamination différents, une analyse plus locale étant menée à l'aide du modèle 1D dans le Chapitre 5. En effet, l'aire interfaciale est de même ordre de grandeur pour les deux diffuseurs (en eau déminéralisée notamment, un diamètre de bulle plus faible est compensé par une rétention gazeuse plus faible également), et le coefficient de transfert global $K_L a$ est légèrement plus élevé avec le diffuseur membrane. La contamination des interfaces gaz-liquide en présence de tensioactif et la modification des propriétés hydrodynamiques au voisinage de l'interface dans le cas des fluides visqueux entraînent une diminution du coefficient K_L par rapport à l'eau claire, cette diminution étant davantage marquée en présence de tensioactif.

4.2.8 Nombre de transfert

Les évolutions de coefficients de transfert de matière globaux peuvent également être quantifiées à l'aide du nombre de transfert N_T , qui a le même sens physique que le rendement d'oxygénation spécifique standard (%) par mètre d'immersion du diffuseur pour les conditions standard en eau claire, et défini comme suit (Gillot et al., 2005) :

$$N_T = \frac{K_L a_{20}}{j_{g,N}} \times \left(\frac{\mu_L^2}{\rho_L^2 \times g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.4)$$

Avec N_T le nombre de transfert (-), $K_L a_{20}$ le coefficient de transfert de matière global (s^{-1}), $j_{g,N}$ la vitesse superficielle de gaz ($Nm s^{-1}$), μ_L et ρ_L respectivement la viscosité dynamique (Pa s) et la masse volumique ($kg m^{-3}$) du fluide, et g l'accélération de la pesanteur ($m s^{-2}$).

L'évolution du nombre de transfert peut être caractérisée en fonction du diamètre de Sauter ou encore du nombre de Reynolds de la colonne (-), défini comme :

$$Re_c = \frac{\rho_L \times j_{g,N} \times D_h}{\mu_L} \quad (4.5)$$

Avec D_h (m) le diamètre hydraulique de la colonne.

La Figure 4-40 représente l'évolution du nombre de transfert en fonction du nombre de Reynolds de colonne, pour chaque diffuseur en eau déminéralisée et en tensioactif non ionique, pour l'eau du réseau en diffuseur membrane et le Breox avec le diffuseur capillaire.

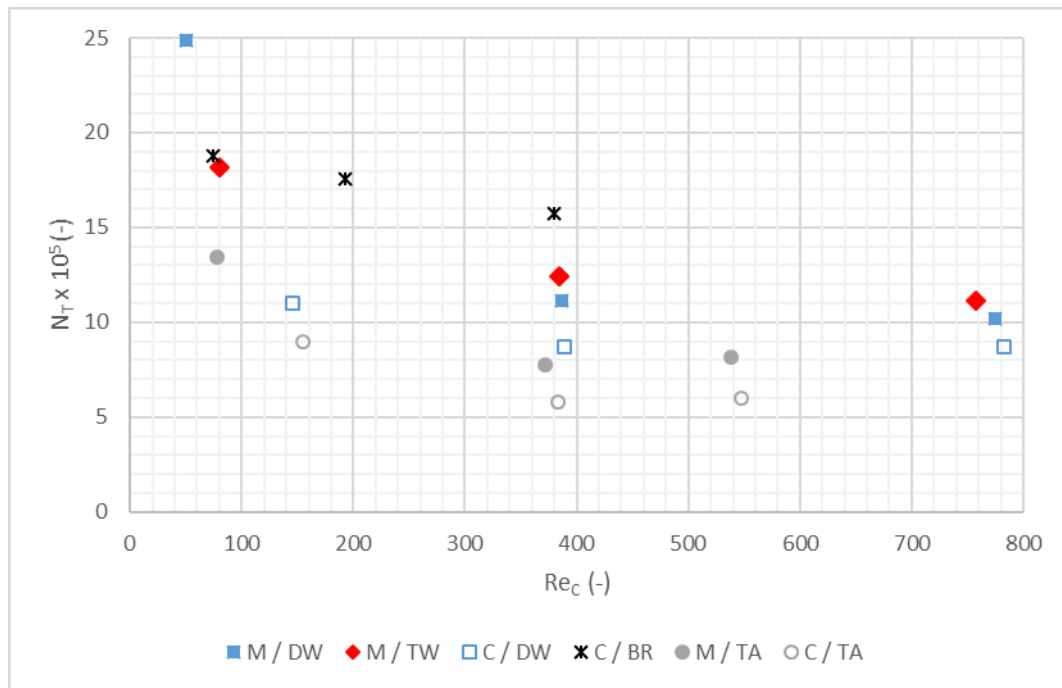


Figure 4-40 : Evolution du nombre de transfert en fonction du nombre de Reynolds de colonne

Pour l'ensemble des fluides, une diminution de nombre de transfert est constatée avec l'augmentation du nombre de Reynolds de la colonne.

La Figure 4-41 représente l'évolution du nombre de transfert en fonction du diamètre de Sauter, pour chaque diffuseur en eau déminéralisée et en tensioactif non ionique, pour l'eau du réseau en diffuseur membrane et le Breox avec le diffuseur capillaire.

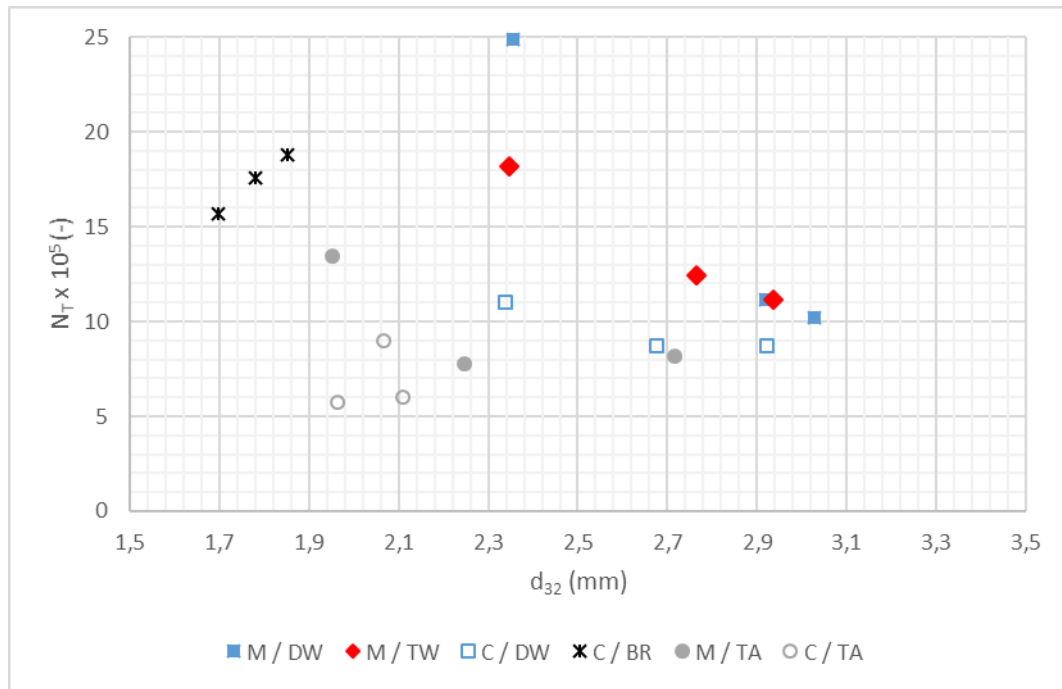


Figure 4-41 : Evolution du nombre de transfert en fonction du diamètre de Sauter

Il existe globalement une diminution de facteur alpha avec l'augmentation du diamètre de Sauter, comme observé dans d'autres études de la littérature en eau claire (Figure 3-2). Les valeurs de nombre de transfert obtenues au cours de ce travail se situent dans la même gamme que pour ces différentes études. Cela montre que le nombre de transfert est un facteur d'échelle adéquat pour représenter les systèmes d'aération équipés de fines bulles. En présence de tensioactif et dans le cas du Breox, les diamètres de bulle sont plus faibles qu'en eau claire, mais les valeurs de nombre de transfert sont de même ordre de grandeur. Cela montre la perturbation du transfert pour ces fluides, en effet les coefficients $K_L a$ et donc les nombres de transfert seraient plus élevés en eau claire pour des mêmes valeurs de diamètre de bulle.

4.2.9 Facteur alpha

La Figure 4-42 présente les évolutions des facteurs alpha en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le diffuseur membrane et l'ensemble des fluides, en prenant comme valeurs références de $K_L a$ celles en eau déminéralisée.

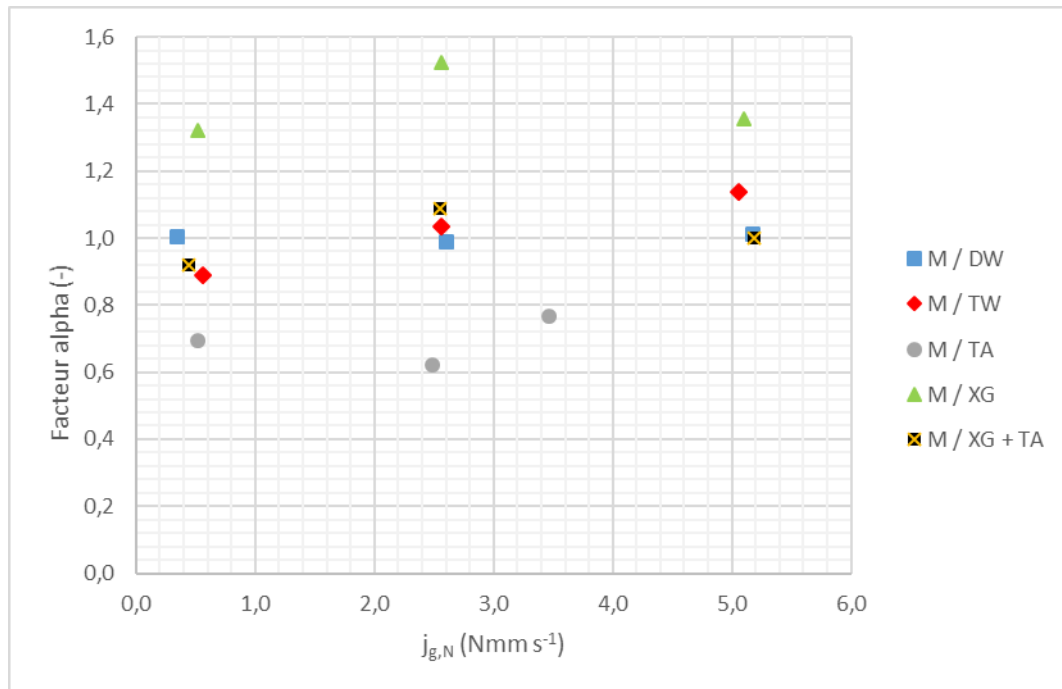


Figure 4-42 : Facteur alpha en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane

En eau du réseau et en mélange de gomme xanthane et tensioactif non ionique, les valeurs de facteur alpha restent proches de 1, avec des valeurs comprises entre 0,9 et 1,2. En présence de gomme xanthane, la différence de K_La avec l'eau claire se traduit par des valeurs de facteur alpha comprises entre 1,3 et 1,6. Enfin en tensioactif non ionique, la contamination des bulles se traduit par des valeurs de facteur alpha comprises entre 0,6 et 0,8.

De la même manière que pour le diffuseur membrane, les évolutions de K_La pour le diffuseur capillaire sont caractérisées en termes de facteur alpha dans la Figure 4-43, toujours en prenant comme valeurs de K_La de référence celles en eau déminéralisée.

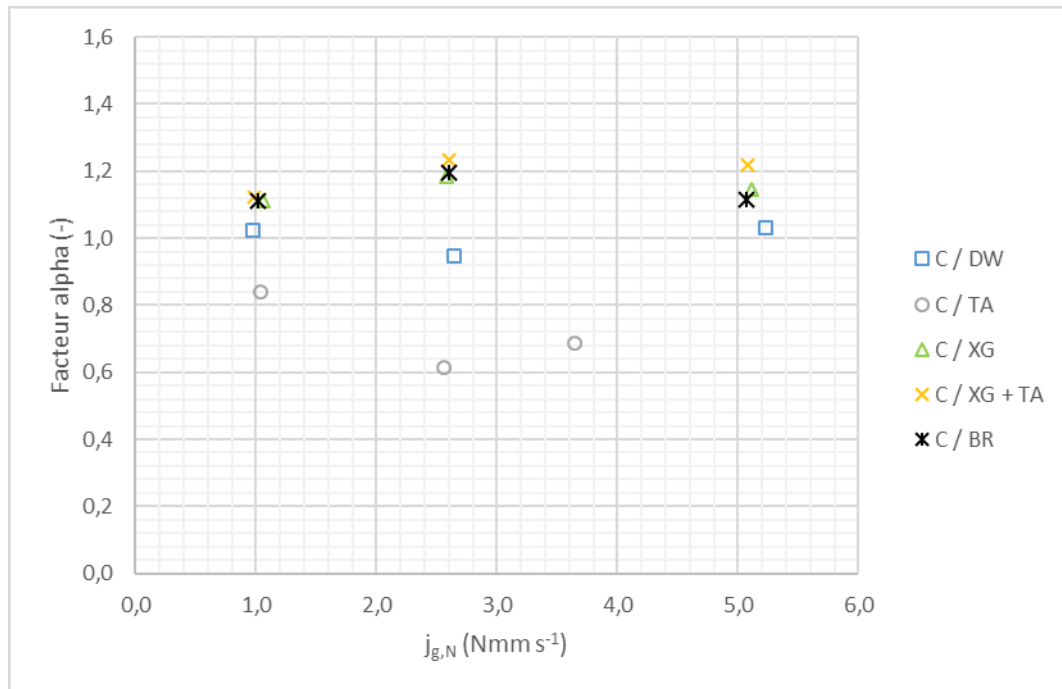


Figure 4-43 : Facteur alpha en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire

Les différences de facteur alpha entre les fluides sont moins significatives avec le diffuseur capillaire qu'avec le diffuseur membrane. Les valeurs maximales sont de 1,2 à 1,3 pour la gomme xanthane, le Breox et le mélange de gomme xanthane et tensioactif non ionique. En tensioactif non ionique, les valeurs sont inférieures à 1 comme pour le diffuseur membrane.

Pour les deux diffuseurs, les valeurs de facteur alpha sont supérieures à 1 pour les fluides visqueux (Breox et gomme xanthane) et inférieures à 1 en présence de tensioactif. Les fluides modèles étudiés dans le cadre de ce travail, bien que représentatifs de boues activées de faible charge en termes de comportement rhéologique (voir 4.1.1), manquent de pertinence concernant la reproduction de comportement de fluides réels du point de vue du transfert de matière (facteur alpha systématiquement inférieur à 1 dans le cas de boues activées). L'augmentation de facteur alpha pour les fluides modèles en comparaison avec l'eau claire étant essentiellement due à l'augmentation d'aire interfaciale liée à la diminution de taille des bulles dans le cadre de ce travail, il est possible que cette dernière ne soit pas représentative de celles existant en fluides réels. La visualisation des tailles de bulles en fluide réel demeure néanmoins problématique.

4.3 Conclusions

Des mesures hydrodynamiques (distributions de tailles de bulles, rétention de gaz locale et globale) et de transfert de matière (coefficient de transfert de matière global) ont été réalisées dans une colonne à bulles de 3 mètres de hauteur (hauteur d'eau 2,90 m), pour trois vitesses superficielles de gaz et deux différents diffuseurs de bulles. Ces mesures ont été effectuées en eau claire et en eau contaminée de différentes manières : fluide visqueux newtonien (Breox à 2% massique), fluide visqueux non newtonien (gomme xanthane à 0,02% massique), tensioactif non ionique (1 mg L⁻¹) et enfin mélange de tensioactif non ionique à 1 mg L⁻¹ et gomme xanthane à 0,02% massique. Ces différents

contaminants induisent des modifications de comportement hydrodynamique et de transfert de matière par rapport à l'eau claire.

Les fluides ont été caractérisés du point de vue de la rhéologie et de la tension superficielle (statique et dynamique). Un comportement rhéologique newtonien a été mis en évidence pour l'eau claire et le Breox (viscosités respectivement de 1,0 et 2,0 mPa s à 20°C), et la gomme xanthane a un comportement rhéo-fluidifiant. Par ailleurs, l'ajout de tensioactif à la gomme xanthane ne modifie pas significativement la rhéologie de la solution. La tension superficielle en présence de gomme xanthane est sensiblement égale à celle de l'eau claire (71,9 et 72,7 mN m⁻¹ respectivement) et celle en présence de tensioactif et en mélange de gomme xanthane et tensioactif sont légèrement inférieures (69,7 mN m⁻¹ et 67,9 mN m⁻¹). Les mesures de tension superficielle dynamique mettent en évidence une diminution de la tension superficielle en présence de tensioactif au cours du temps, correspondant à l'adsorption des molécules de tensioactif à la surface de la bulle, cet effet n'étant pas observé pour les autres fluides mesurés (eau déminéralisée et gomme xanthane). Enfin dans le cas du Breox, la tension superficielle est significativement plus faible que pour les autres fluides (55,1 mN m⁻¹).

Concernant la rétention gazeuse, elle est plus élevée en présence de contaminants que dans le cas de l'eau claire. Les contaminants entraînent une diminution du diamètre de bulle, et une augmentation de la traînée, par conséquent la vitesse de bulle est réduite et la rétention gazeuse augmente. Par ailleurs, une bonne correspondance a été mise en évidence entre les deux méthodes de mesure de rétention gazeuse (locale et globale). La rétention gazeuse est relativement homogène sur la largeur de la colonne et a tendance à augmenter avec la hauteur (à l'exception de la gomme xanthane pour le diffuseur membrane). Pour l'ensemble des fluides à l'exception du mélange gomme xanthane et tensioactif, la rétention gazeuse avec le diffuseur membrane est légèrement supérieure à celle avec le diffuseur capillaire.

En eau claire, les bulles sont ellipsoïdales (excentricité moyenne comprise entre 1,4 et 1,8), avec un diamètre équivalent en volume moyen compris entre 2,0 et 3,3 mm pour les deux diffuseurs. Les fluides visqueux et le tensioactif ont pour effet de diminuer significativement le diamètre de bulle par rapport à l'eau claire (entre 13 et 64% pour le diffuseur membrane), et les bulles sont alors quasi-sphériques (excentricité moyenne comprise entre 1,0 et 1,1). Le diamètre de bulle augmente significativement sur la hauteur dans la colonne en eau claire (jusqu'à 17% /m), cette augmentation étant possiblement due à de la coalescence de bulles. Pour les autres fluides en revanche, cette augmentation est moins marquée (environ 3% /m) et correspond à l'augmentation théorique liée à l'expansion des bulles due à la diminution de pression hydrostatique, la coalescence étant vraisemblablement inhibée par le tensioactif et/ou les effets visqueux. Concernant les distributions des tailles de bulles, elles suivent des lois normales avec le diffuseur membrane, et elles sont quasi-monomodales pour le diffuseur capillaire (à l'exception de l'eau déminéralisée), avec une valeur correspondant approximativement au diamètre de bulle théorique donné par la loi de Tate. Pour l'eau déminéralisée, la distribution est bimodale, avec un premier pic contenant la majorité des bulles et correspondant au diamètre théorique de la loi de Tate, et un second pic plus étalé et dont l'étalement augmente avec la hauteur dans la colonne, correspondant vraisemblablement là encore à de la coalescence de bulles.

Les aires interfaciales des bulles pour les différentes conditions opératoires sont déterminées à partir des rétentions gazeuses et des diamètres de bulle de Sauter. Comme vu précédemment, la rétention

gazeuse est plus élevée et le diamètre de bulle plus faible en tensioactif et en fluide visqueux par rapport en eau claire. Il en résulte des aires interfaciales significativement plus élevées : pour la gomme xanthane, de 102 à 140% avec le diffuseur membrane et 68 à 86% avec le diffuseur capillaire, 7 à 76% avec le tensioactif en diffuseur membrane et 25 à 76% avec le diffuseur capillaire, et 79 à 140% pour le Breox (diffuseur capillaire).

Les mesures de transfert de matière global mettent en évidence une augmentation du coefficient K_La avec la vitesse superficielle de gaz selon une loi puissance en eau claire, comme cela a été rapporté dans la littérature. En présence de tensioactif, le coefficient de transfert est réduit de 23 à 38% par rapport à l'eau claire pour le diffuseur membrane et de 16 à 38% pour le diffuseur capillaire. Cette réduction est imputable à la contamination de l'interface des bulles par l'adsorption de molécules de tensioactif. Pour les fluides visqueux en revanche, le coefficient de transfert de matière global est plus élevé qu'en eau claire : pour la gomme xanthane, augmentation respective de 32 à 52% pour le diffuseur membrane et de 11 à 23% pour le diffuseur capillaire et pour le Breox, augmentation de 11 à 20%. Dans le cas du mélange de gomme xanthane et tensioactif, les effets de contamination par le tensioactif et les effets visqueux semblent se compenser et les valeurs de K_La sont de même ordre de grandeur qu'en eau claire. Le facteur alpha, qui représente le rapport entre le coefficient de transfert pour un fluide donné par rapport à celui en eau claire (toutes autres conditions fixées par ailleurs), permet également de quantifier ces évolutions : les valeurs sont comprises entre 0,6 et 0,8 en tensioactif pour les deux diffuseurs, entre 1,3 et 1,5 et 1,1 et 1,2 pour la gomme xanthane et les diffuseurs membrane et capillaire respectivement, et enfin entre 1,1 et 1,2 pour le Breox. Etant donné que les aires interfaciales et les coefficients de transfert de matière globaux ne suivent pas la même évolution (en tensioactif notamment, l'aire interfaciale est supérieure à l'eau claire mais le coefficient de transfert global est inférieur), il apparaît clairement que les fluides modèles ont également un impact sur le coefficient de transfert côté liquide K_L , en sus de l'impact hydrodynamique sur l'aire interfaciale par la modification du diamètre de bulle et de la rétention gazeuse.

Le coefficient de transfert de matière côté liquide K_L est estimé en divisant le coefficient de transfert de matière côté liquide K_La par l'aire interfaciale des bulles, celle-ci résultant des mesures expérimentales de diamètre de bulle et de rétention gazeuse. **Il est important de préciser qu'il s'agit d'un coefficient apparent, dont la valeur est inférieure à la valeur réelle.** Pour le diffuseur membrane, il apparaît que le coefficient de transfert de matière côté liquide diminue avec la vitesse superficielle de gaz (notamment en eau claire), alors qu'il semble peu dépendre de la vitesse de gaz pour le diffuseur capillaire. Dans tous les cas, les valeurs en eau claire sont supérieures aux valeurs pour les autres fluides modèles et sont comprises entre $2,6$ et $3,7 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ pour le diffuseur membrane et entre $2,3$ et $2,5 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ pour le diffuseur capillaire. En tensioactif, les valeurs de K_L sont comprises entre $1,3$ et $2,0 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ pour le diffuseur membrane et $0,9$ et $1,6 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ pour le diffuseur capillaire, et en gomme xanthane elles sont de $1,7$ à $2,3 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ avec le diffuseur membrane et $1,4$ à $1,7 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ pour le diffuseur capillaire. Enfin pour le Breox, les valeurs de K_L sont comprises entre $1,1$ et $1,5 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$. En tensioactif, la diminution de K_L par rapport à l'eau claire est imputable à l'adsorption de molécules de tensioactif à la surface des bulles. En fluide visqueux en revanche, la viscosité impacte l'hydrodynamique au voisinage de l'interface gaz/liquide, ce qui perturbe le transfert de matière et entraîne une diminution de K_L . Les valeurs de K_L expérimentales estimées sont comprises entre les modèles théoriques de Higbie et de Frössling avec des niveaux de contamination divers, sauf dans le cas du tensioactif avec le diffuseur capillaire pour lequel les valeurs de K_L sont pratiquement égales au

modèle de Frössling (voire légèrement inférieures). La contamination des bulles apparaît notamment plus importante avec le diffuseur capillaire par rapport au diffuseur membrane.

Chapitre 5 : Modélisation des résultats expérimentaux – Réinterprétation des données expérimentales

Dans ce chapitre, les grandeurs obtenues expérimentalement pour les différentes conditions opératoires (fluide, diffuseur et vitesse superficielle de gaz) et décrites dans le Chapitre 4, à savoir les rétentions gazeuses globales et les coefficients de transfert de matière K_{La} globaux, sont confrontés aux valeurs obtenues par le modèle 1D couplant hydrodynamique et transfert de matière présenté dans le Chapitre 3. Cette confrontation permet, de manière originale, de faire une analyse approfondie des résultats expérimentaux en intégrant les effets d'appauvrissement du gaz en oxygène et de contamination de l'interface gaz/liquide mis en avant dans le cadre du Chapitre 3.

Dans un premier temps, la confrontation est faite d'un point de vue hydrodynamique par comparaison entre les rétentions gazeuses globales modélisées et expérimentales pour les différentes conditions, la loi de traînée du modèle étant celle de Tomiyama pour un système contaminé (Equation 1.15) ou partiellement contaminé (Equation 1.16) selon le fluide considéré, puis du point de vue du transfert d'oxygène, avec la comparaison des coefficients K_{La} globaux et modélisés avec les modèles de transfert de Higbie et de Frössling.

Pour aller plus loin dans la caractérisation du niveau de contamination des bulles, les angles de contamination sont calculés, du point de vue de l'hydrodynamique et du transfert de matière. Les différents cas modélisés sont :

- Eau claire (eau déminéralisée pour les deux diffuseurs [M/DW et C/DW] et eau du réseau pour le diffuseur membrane [M/TW]),
- Eau déminéralisée additionnée de tensioactif non ionique à 1 mg L^{-1} pour les deux diffuseurs (M/TA et C/TA),
- Eau déminéralisée additionnée de gomme xanthane à 0,02% massique pour les deux diffuseurs (M/XG et C/XG),
- Eau déminéralisée additionnée de gomme xanthane à 0,02% massique et de tensioactif non-ionique à 1 mg L^{-1} pour le diffuseur membrane (M/XG + TA)
- Eau déminéralisée additionnée de Breox à 2% massique pour le diffuseur capillaire (C/BR).

5.1 Données d'entrée du modèle et conditions aux limites

Les données d'entrée du modèle considérées sont :

- la hauteur de liquide dans les conditions de l'expérience H (m),
- la vitesse superficielle de gaz à pression atmosphérique $j_{g,N}$ (Nmm s^{-1}),
- le diamètre de bulle de Sauter à la hauteur 270 cm (considéré comme étant le diamètre à pression atmosphérique) $d_{32} H_{270}$ (mm),
- l'excentricité moyenne à la hauteur 270 cm $E H_{270}$ (-).

L'effet de la pression hydrostatique dans la colonne est pris en compte dans le calcul des vitesses superficielles et diamètres de bulles locaux sur la hauteur (à partir des valeurs à pression atmosphérique).

L'excentricité moyenne des bulles entre en compte pour le transfert dans le calcul de l'aire interfaciale, et est considérée comme ne variant pas selon la hauteur dans la colonne.

Les paramètres physico-chimiques du système font également partie des données d'entrée (masse volumique du liquide et de l'air, viscosité et tension superficielle du liquide, coefficient de diffusion). Les masses volumiques du liquide et de l'air ne varient pas pour les différentes conditions, en revanche la viscosité, la tension superficielle et le coefficient de diffusion peuvent être variables.

Les paramètres d'entrée du modèle pour les différentes conditions, de même que les valeurs expérimentales de rétention gazeuse globale et de coefficient de transfert de matière global, sont indiqués dans le tableau en Annexe 12.

5.2 Modélisation de l'hydrodynamique / Rétention gazeuse globale

5.2.1 Eau claire / Diffuseur membrane : Impact de l'évolution du diamètre moyen des bulles

La Figure 5-1 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur membrane (M/DW), et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama partiellement contaminée (Equation 1.16). Les valeurs de diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions sont également indiquées pour information complémentaire.

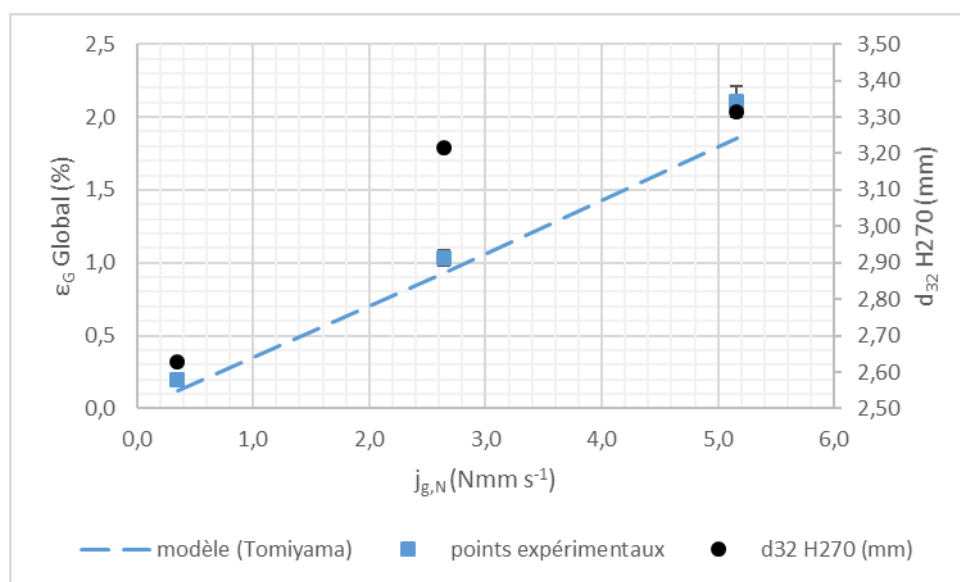


Figure 5-1 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/DW) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement contaminée

La Figure 5-2 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane (M/TW), et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama partiellement contaminée (Equation 1.16).

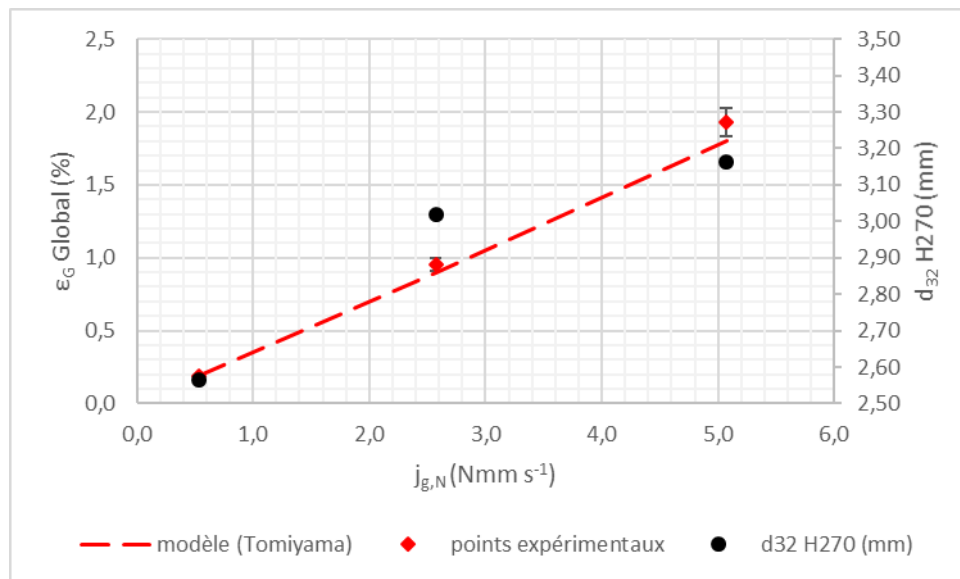


Figure 5-2: Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/TW) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement contaminée

En eau claire, la modélisation de la rétention gazeuse globale en utilisant la loi de traînée de Tomiyama partiellement contaminée est en accord avec les résultats expérimentaux (même si le modèle fournit des valeurs légèrement inférieures à l'expérience notamment à forte vitesse superficielle de gaz). Pour les résultats avec de l'eau du réseau, la loi de traînée de Tomiyama utilisée correspond bien à une eau faiblement contaminée. Les résultats sont également concordants avec de l'eau déminéralisée, ce qui laisse penser que la qualité de cette eau n'est pas aussi propre que souhaitée.

Evolution du diamètre des bulles :

En eau claire, la taille des bulles est peu sensible au type d'eau mais augmente avec la vitesse superficielle de gaz d'environ 2,6 mm à plus de 3,0 mm, ce qui correspond à une variation significative de plus de 10% pour le diffuseur de type membrane. Cette évolution de la taille des bulles avec la vitesse superficielle de gaz semble se stabiliser à partir d'une rétention gazeuse de 2% qui correspond à une vitesse superficielle de 2,5 Nmm s^{-1} pour le diffuseur membrane.

Pour les données correspondant à l'eau du réseau, une étude de sensibilité du modèle à l'évolution sur la hauteur considérée pour le diamètre de bulle a été effectuée. Pour ce faire, l'évolution expérimentale du diamètre de bulle sur la hauteur de la colonne a été intégrée au modèle (l'augmentation étant significative sur la hauteur et supérieure à l'augmentation théorique liée à la diminution de pression hydrostatique), et les résultats sont comparés avec ceux pour lesquels l'évolution de diamètre est liée uniquement à la pression hydrostatique.

La Figure 5-3 montre l'évolution de diamètre de bulle en fonction de la hauteur dans la colonne pour l'eau du réseau à 5,1 Nmm s^{-1} avec le diffuseur membrane (M), avec d'une part l'évolution de diamètre modélisée avec l'évolution de la pression hydrostatique, et d'autre part l'évolution sur la hauteur mesurée expérimentalement. Selon le modèle, la variation du diamètre devrait varier comme la racine cubique du rapport de pression (soit moins de 10% de variation), ce qui correspond exactement à la variation de 2,90 à 3,15 mm sur 2,90 m (soit 3% /m). Expérimentalement, la variation observée passe de 2,35 à 3,15 mm, ce qui représente 34% de variation, soit une évolution environ quatre fois

supérieure (12% /m). La comparaison des résultats expérimentaux obtenus en eau claire avec les deux diffuseurs semble privilégier l'hypothèse de la coalescence comme origine de cet écart (Chapitre 4).

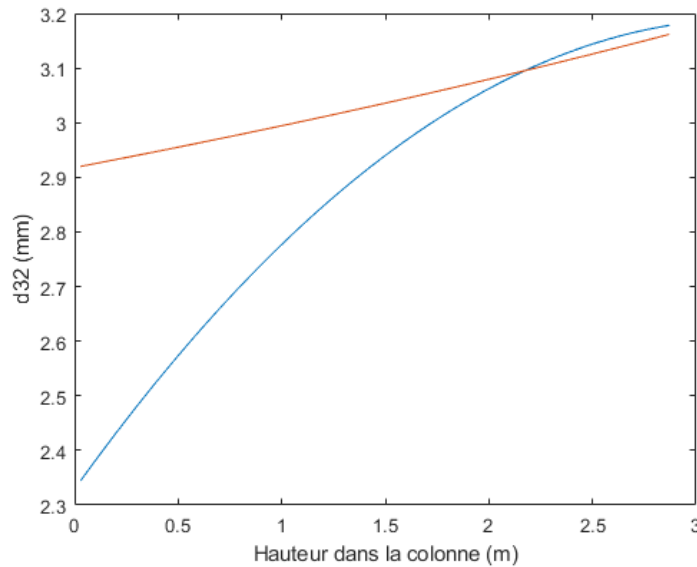


Figure 5-3 : Evolution du diamètre de bulle modélisé (courbe rouge) et corrélation expérimentale (courbe bleue) en fonction de la hauteur dans la colonne pour l'eau du réseau à $5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$ avec le diffuseur membrane

La Figure 5-4 montre, pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane, l'évolution de la rétention gazeuse globale modélisée en fonction de la vitesse superficielle de gaz et la comparaison avec les points expérimentaux, en prenant en entrée d'une part l'évolution de diamètre selon la pression hydrostatique, et d'autre part l'évolution de diamètre observée expérimentalement. A noter que la loi de traînée utilisée ici est la loi de Tomiyama entièrement contaminée (Equation 1.15), qui est équivalente à la loi de Tomiyama partiellement contaminée (Equation 1.16) en eau claire pour des diamètres de bulle supérieurs à 2,6 mm.

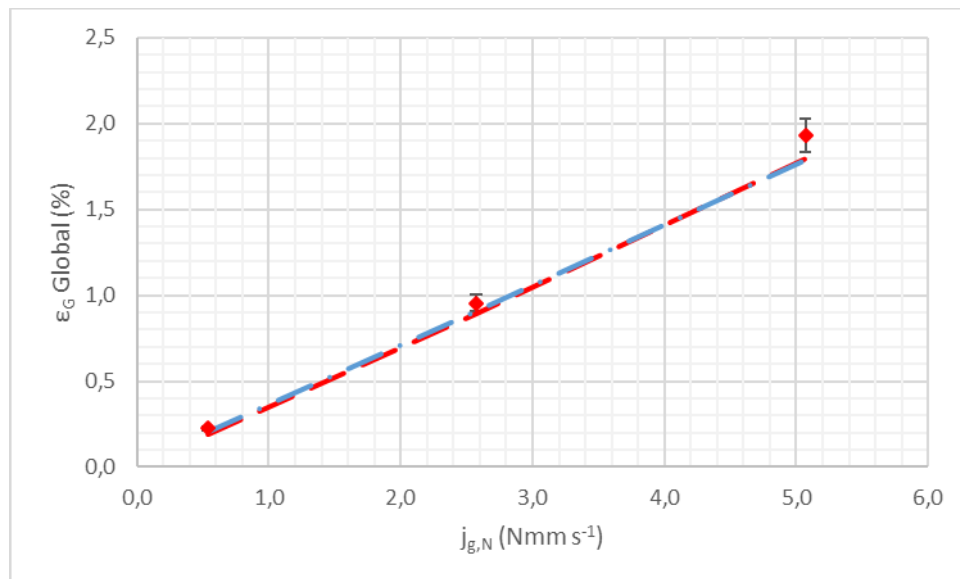


Figure 5-4 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle, en eau du réseau avec le diffuseur membrane (pointillés rouges : variation de taille de bulle selon la pression hydrostatique ; pointillés bleus : variation de taille de bulle mesurée expérimentalement)

Pour les diamètres de bulle les plus faibles en bas de colonne dans le cas de la corrélation expérimentale, le coefficient de traînée dépend du nombre de Reynolds et diminue avec le diamètre de bulle, par conséquent la rétention gazeuse diminue dans un premier temps avec l'augmentation de la hauteur, puis augmente (coefficient de traînée dépendant du nombre d'Eötvös), la transition entre les deux régimes se situant à un diamètre d'environ 2,6 mm (voir Figure 1-2). Il en résulte une stabilisation de la rétention gazeuse globale, qui compense l'augmentation de rétention gazeuse liée à la diminution de vitesse de bulle, elle-même liée à la diminution de diamètre de bulle. On peut en déduire que l'évolution de diamètre de bulle pour ces conditions n'a pas d'impact significatif sur la vitesse d'ascension des bulles et donc sur la rétention gazeuse car le glissement varie peu pour des bulles comprises entre 2,5 et 3,2 mm. **Par conséquent, l'évolution de taille de bulle sur la hauteur introduite dans le modèle est l'évolution théorique liée à la diminution de pression.**

5.2.2 Eau déminéralisée (DW) / Diffuseur capillaire (C) : Impact de la distribution de diamètre des bulles

La Figure 5-5 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur capillaire, et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama totalement contaminée (Equation 1.15), équivalente à la loi de traînée partiellement contaminée (Equation 1.16) en eau claire pour des diamètres de bulle supérieurs à 2,6 mm.

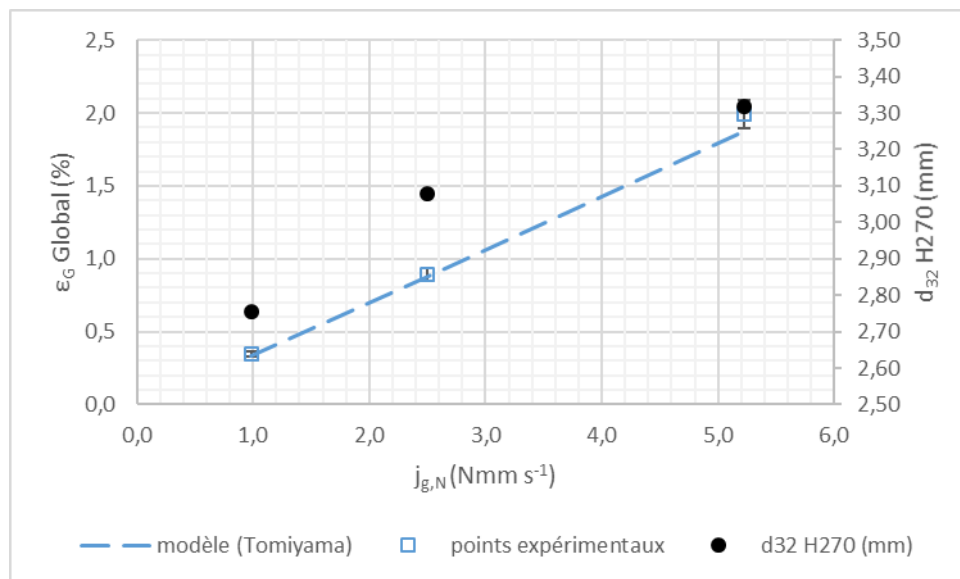


Figure 5-5 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C/DW) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama contaminée

De manière similaire au diffuseur membrane, la rétention gazeuse avec le diffuseur capillaire donnée par le modèle est proche de l'expérience. Il faut cependant noter que le diamètre de bulle en entrée du modèle est le diamètre de Sauter moyen sur l'ensemble des bulles, dont la valeur est similaire à celle pour le diffuseur membrane. Or il a été montré que la distribution en taille de bulle pour le diffuseur capillaire suit une loi bimodale (

Figure 4-15). Si le diamètre en entrée du modèle est celui correspondant à la valeur du premier pic de la distribution (valeur théorique par la loi de Tate), la vitesse de bulle est réduite (du fait de l'augmentation du coefficient de traînée donné par la loi de Tomiyama totalement contaminée et de la diminution du diamètre de bulle), et par conséquent la rétention gazeuse donnée par le modèle augmente et s'éloigne des points expérimentaux (voir Figure 5-6). Il faut cependant noter que si la loi utilisée était la loi de Tomiyama partiellement contaminée, le diamètre de bulle aurait ici un impact (étant inférieur à 2,6 mm), le coefficient de traînée et la rétention gazeuse du modèle seraient alors plus faibles, cette dernière serait alors probablement plus proche des points expérimentaux.

Le Tableau 5-1 montre les diamètres de bulle mesurés en haut de colonne et utilisés en entrée du modèle pour les différentes vitesses superficielles d'aération en eau déminéralisée et avec le diffuseur capillaire, pour l'ensemble des bulles et uniquement le premier pic de la distribution. On remarque qu'avec le diffuseur capillaire, l'évolution du d_{32} avec le débit est plus linéaire qu'avec une membrane et que les diamètres sont légèrement plus grands avec le diffuseur capillaire (de 0,1 à 0,2 mm).

Tableau 5-1 : Evolution du diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en eau déminéralisée et pour le diffuseur capillaire, en considérant l'ensemble des bulles et uniquement le premier pic de la distribution

$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} H270 (mm) Ensemble distribution	d_{32} H270 (mm) Premier pic
0,98	2,75	1,94
2,50	3,08	1,99
5,22	3,32	2,06

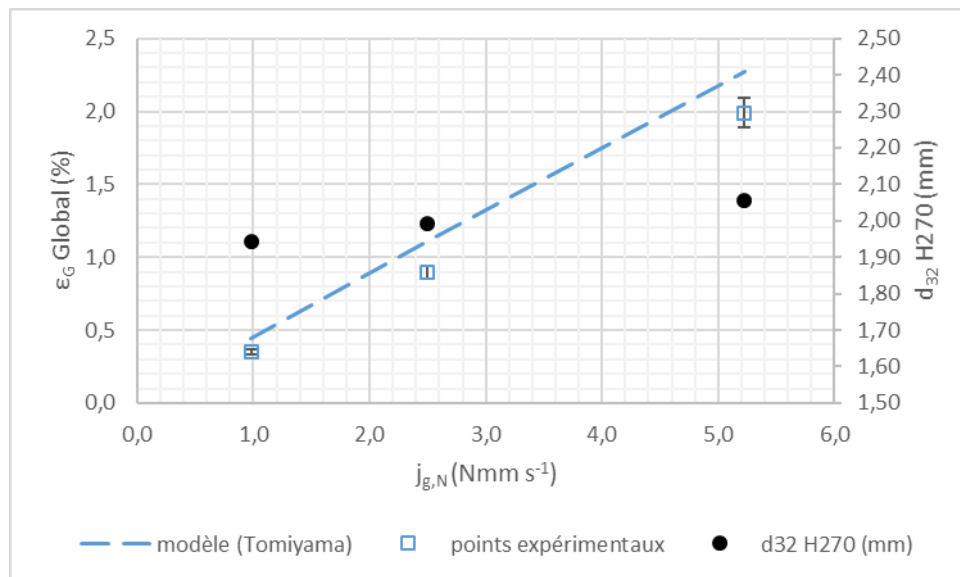


Figure 5-6 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle, en eau déminéralisée avec le diffuseur capillaire, en considérant uniquement le premier pic de la distribution de taille de bulles, avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm dans ces conditions

5.2.3 Eau déminéralisée additionnée de tensioactif non-ionique à 1 mg L⁻¹ (TA) / Diffuseurs membrane et capillaire (M & C) : Effets de contamination des bulles

En présence de tensioactif non ionique à 1 mg L⁻¹, les propriétés physico-chimiques du fluide introduites dans le modèle sont considérées identiques à celles de l'eau claire, la diminution de tension superficielle n'étant pas significative pour les temps de séjour des bulles dans la colonne (voir 4.1.3.2). Par conséquent, c'est la diminution induite de diamètre de bulle à la naissance qui rend compte des effets de contamination de l'interface par le tensioactif.

La Figure 5-7 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le tensioactif non ionique et le diffuseur membrane, et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama entièrement contaminée (Equation 1.15).

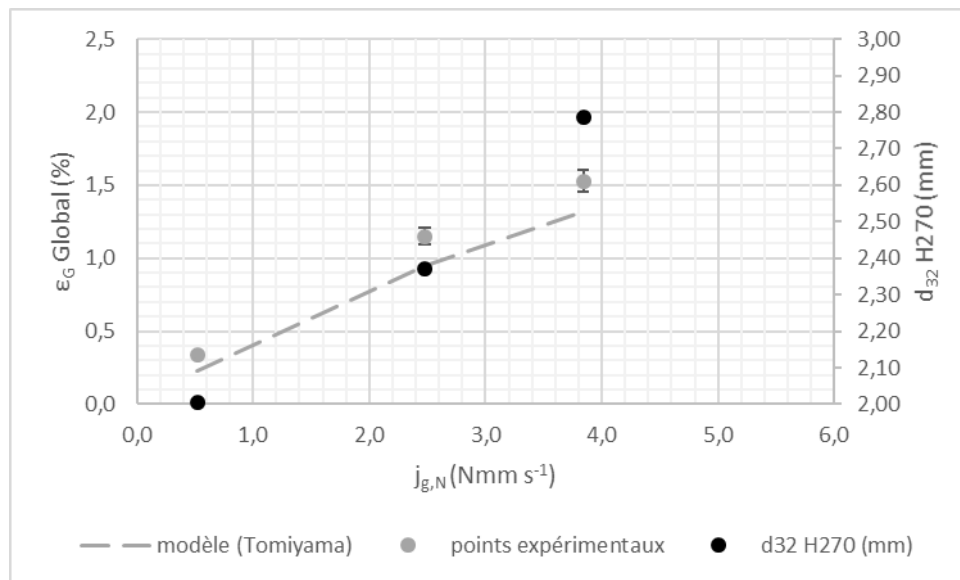


Figure 5-7 : : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/TA) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama entièrement contaminée

Du fait du diamètre de bulle plus faible qu'en eau claire, la vitesse de bulle est réduite et la rétention gazeuse modélisée est supérieure en présence de tensioactif. Néanmoins, la rétention gazeuse modélisée demeure inférieure à la rétention gazeuse expérimentale, de la même manière qu'en eau claire mais avec un écart plus prononcé (rétention gazeuse expérimentale supérieure de 15 à 50% par rapport à la rétention gazeuse modélisée).

La Figure 5-8 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le tensioactif non ionique et le diffuseur capillaire (C/TA), et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama entièrement contaminée (Equation 1.15).

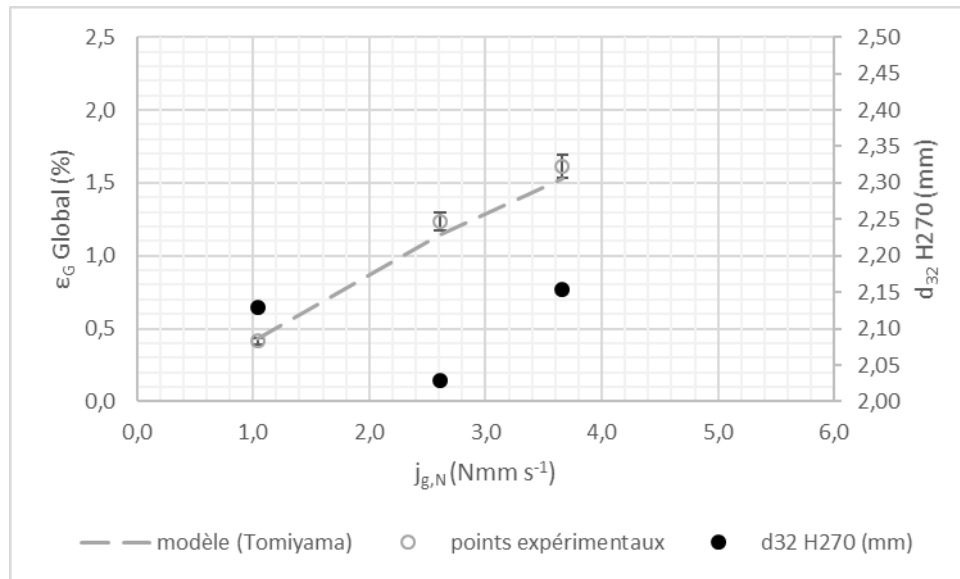


Figure 5-8 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C/TA) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama entièrement contaminée

Ici, le diamètre de bulle est plus faible avec le diffuseur capillaire qu'avec le diffuseur membrane, ce qui entraîne une rétention gazeuse globale plus élevée. La différence de rétention gazeuse entre les deux diffuseurs demeure cependant peu significative et globalement, la rétention gazeuse modélisée est bien prédite par la loi de Tomiyama entièrement contaminée, même si les rétentions gazeuses expérimentales demeurent supérieures à celles calculées par le modèle. Les bulles étant plus petites qu'en eau claire, leur niveau de contamination est plus élevé et le choix de la loi de traînée entièrement contaminée est pertinent.

5.2.4 Breox / Diffuseur capillaire (C/BR) et Gomme xanthane / Diffuseurs capillaire et membrane (C/XG et M/XG) : Impact de la viscosité

Comportement newtonien (Breox – BR)

La Figure 5-9 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour le Breox avec le diffuseur capillaire, et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama entièrement contaminée (Equation 1.15).

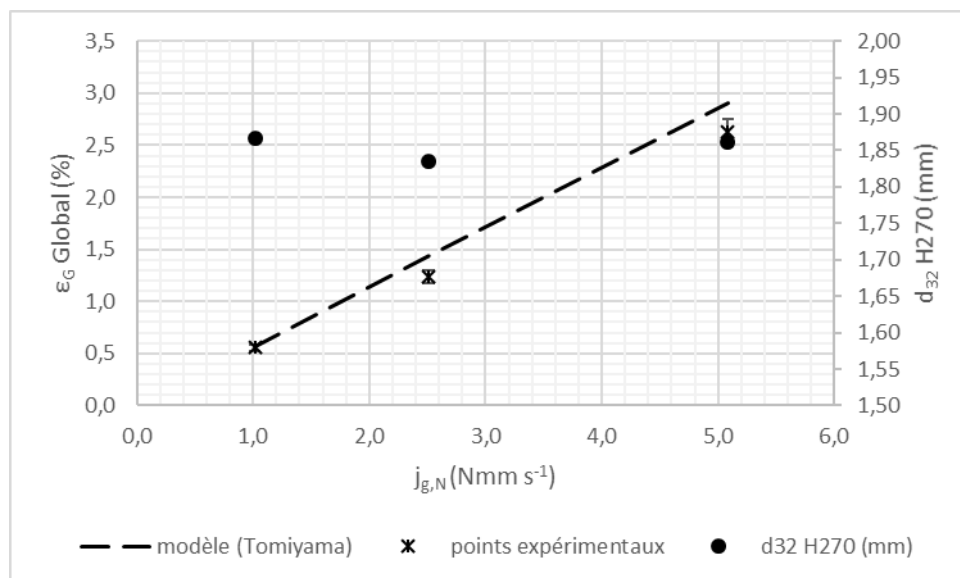


Figure 5-9 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C/BR) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama entièrement contaminée

Pour le Breox, au contraire des autres fluides, la rétention gazeuse expérimentale est légèrement inférieure à celle donnée par le modèle. Du fait de la viscosité du fluide et du diamètre de bulle beaucoup plus faible qu'en eau claire, le coefficient de traînée obtenu à l'aide de la loi de Tomiyama entièrement contaminée est plus important, par conséquent la vitesse de bulle est plus faible et la rétention gazeuse globale modélisée significativement plus élevée, la rétention gazeuse modélisée étant néanmoins proche de la valeur expérimentale (11 à 16% d'écart). De la même manière qu'en présence de tensioactif, le choix de la loi de traînée de Tomiyama entièrement contaminée est pertinent, du fait du diamètre de bulle plus faible (et de la viscosité plus élevée dans le cas du Breox), ce qui entraîne des coefficients de traînée et donc des rétentions gazeuses plus élevées qu'en eau claire, cette dernière étant un fluide avec un niveau de contamination moins important.

Comportement non-newtonien (Gomme xanthane – XG)

Etant donné le caractère rhéo-fluidifiant de la gomme xanthane, la viscosité apparente moyenne dans une colonne à bulles pour une vitesse superficielle de gaz donnée est estimée à l'aide de la corrélation de (Sánchez Pérez et al., 2006).

Ainsi, la viscosité apparente est donnée par :

$$\mu_{app} = K \times \left(\frac{\rho_l \times g \times j_{g,N}}{K} \right)^{\frac{n-1}{n+1}} \quad (5.1)$$

Avec μ_{app} la viscosité apparente (Pa s), K et n les indices de consistance (Pa sⁿ) et d'écoulement (-) du fluide, ρ_l sa masse volumique (kg m⁻³), g l'accélération de la pesanteur (m s⁻²) et $j_{g,N}$ la vitesse superficielle de gaz (Nm s⁻¹).

Les valeurs des paramètres K et n utilisées pour la gomme xanthane sont respectivement de 8,35 mPa sⁿ et 0,75, et celles pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif sont de 16,45 Pa sⁿ et 0,61. Elles

sont sensiblement différentes des valeurs présentées dans le Chapitre 4 mais l'incidence sur la viscosité apparente pour les vitesses superficielles de gaz considérées est peu importante (voir Annexe 15).

Le Tableau 5-2 donne les valeurs de viscosité apparente estimées en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour la gomme xanthane et le mélange de gomme xanthane et tensioactif avec les deux diffuseurs.

Tableau 5-2 : Estimation de la viscosité apparente moyenne dans la colonne à bulles en fonction de la vitesse superficielle de gaz

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	μ_{app} (mPa s)
XG	M	0,51	3,39
XG	M	2,62	2,69
XG	M	5,16	2,45
XG + TA	M	0,47	4,20
XG + TA	M	2,56	2,79
XG + TA	M	5,18	2,35
XG	C	0,98	3,09
XG	C	2,58	2,70
XG	C	5,12	2,45
XG + TA	C	5,07	2,36

La Figure 5-10 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de gomme xanthane et avec le diffuseur membrane, et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama complètement contaminée (Equation 1.15) et partiellement contaminée (Equation 1.16).

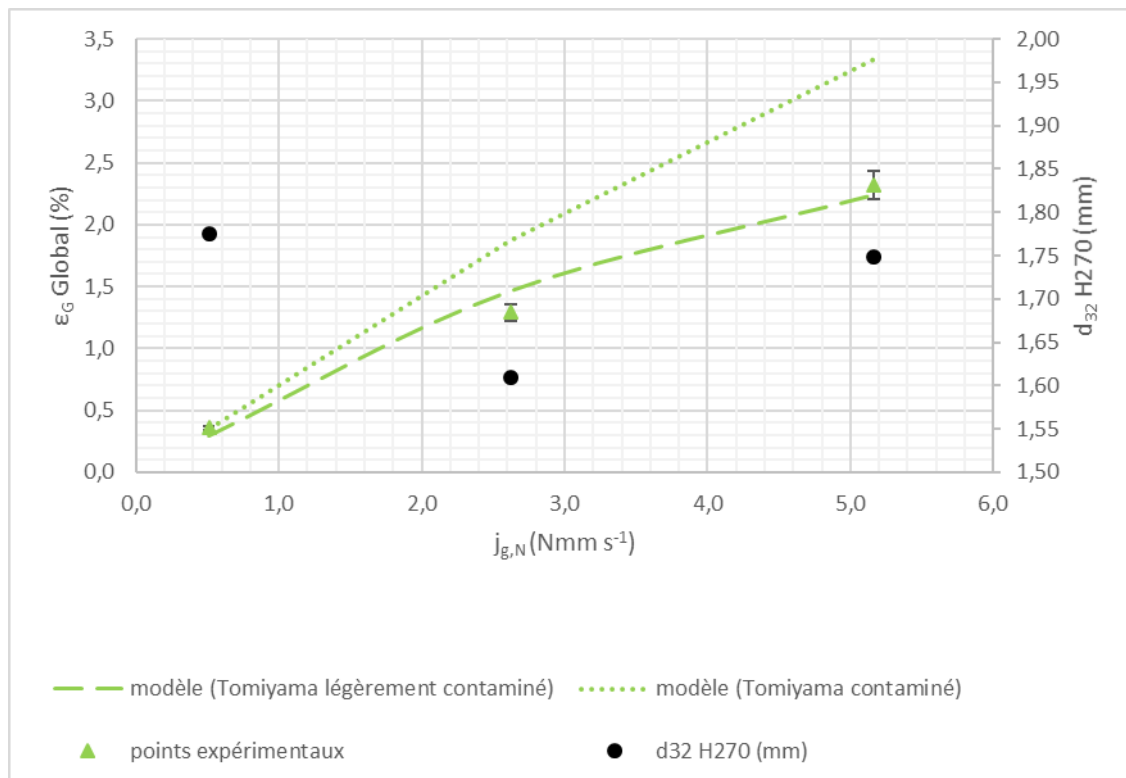


Figure 5-10 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/XG) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement et complètement contaminée

La Figure 5-11 représente les points expérimentaux de rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de gomme xanthane et avec le diffuseur capillaire, et la rétention gazeuse calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama complètement contaminée (Equation 1.15) et partiellement contaminée (Equation 1.16).

Quel que soit le type de diffuseur, la rétention gazeuse modélisée avec la loi de Tomiyama complètement contaminée surestime assez largement la valeur mesurée dans le cas de la gomme xanthane. Or, les diamètres de bulles étant mesurés de manière robuste et répétable pour l'ensemble des jeux de données considérés pour les modélisations, il est ici utile de rappeler que la viscosité apparente n'est pas estimée à l'échelle de la bulle mais à celle de la colonne selon l'équation (5.1), qui ne dépend pas du diamètre de bulle. Pourtant, c'est à l'échelle de la bulle qu'est calculé le nombre de Reynolds et donc le glissement de la bulle qui permet d'estimer correctement la rétention gazeuse.

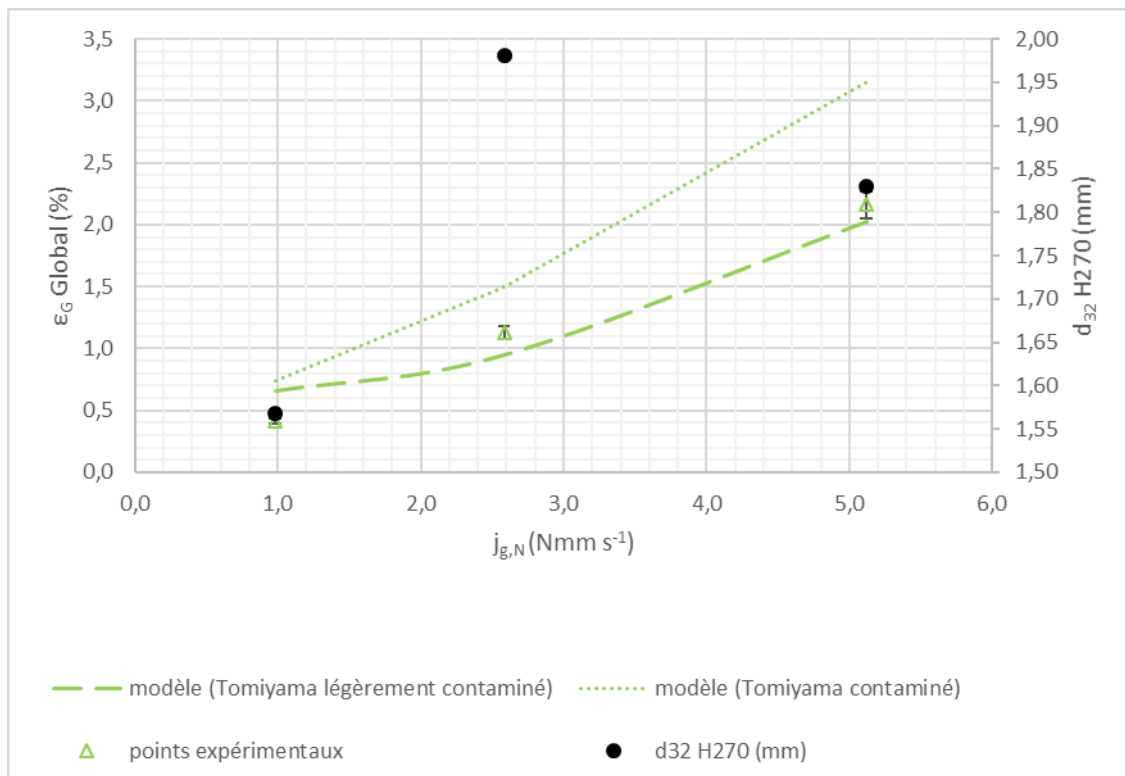


Figure 5-11 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C_j/XG) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement et complètement contaminée

De manière similaire que pour le Breox, les effets visqueux en présence de gomme xanthane se manifestent par une augmentation du coefficient de traînée (via une diminution du Re), associée à une diminution du diamètre de bulle à l'injection. Ces deux effets conjoints entraînent une diminution significative de la vitesse de bulle et donc une augmentation de la rétention gazeuse. En revanche, à la différence des autres fluides, il y a un écart très important entre la rétention gazeuse globale expérimentale et modélisée : la rétention gazeuse calculée par le modèle de Tomiyama entièrement contaminé est plus élevée que celle de l'expérience, particulièrement à forte vitesse superficielle de gaz (45% d'écart pour les deux vitesses superficielles de gaz les plus élevées). Ainsi, l'impact de viscosité associé à celui des faibles valeurs de diamètre de bulle entraîne une augmentation drastique du coefficient de traînée calculé par la loi de Tomiyama entièrement contaminée. Les mêmes phénomènes sont observés pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif avec le diffuseur membrane (voir Figure 5-12).

Les rétentions gazeuses mesurées sont plus faibles que celles du modèle de Tomiyama entièrement contaminé. Il est donc probable que l'estimation de la viscosité apparente par la loi de Sánchez Pérez et al. (2006) ne soit pas adéquate pour estimer le taux de cisaillement effectif au voisinage d'une bulle, et donc de la viscosité « vue » par les bulles. Cette relation est utile pour estimer la viscosité moyenne dans une colonne à bulles, par exemple pour caractériser le mélange. Cependant, le cisaillement est probablement plus fort près des bulles qu'en moyenne dans la colonne et donc, pour des fluides non-newtoniens, la viscosité apparente au voisinage des bulles serait plus faible. Cette hypothèse conduirait à un coefficient de traînée plus faible et donc à une rétention gazeuse modélisée plus faible que celle estimée en approximant la viscosité par l'équation (5.1). Compte tenu de ce biais potentiel, c'est la loi de Tomiyama entièrement contaminée qui est considérée par la suite. Ainsi, la loi de Tomiyama légèrement contaminée, bien que donnant des rétentions gazeuses proches des valeurs expérimentales, ne rend potentiellement pas compte des effets de contamination de manière pertinente.

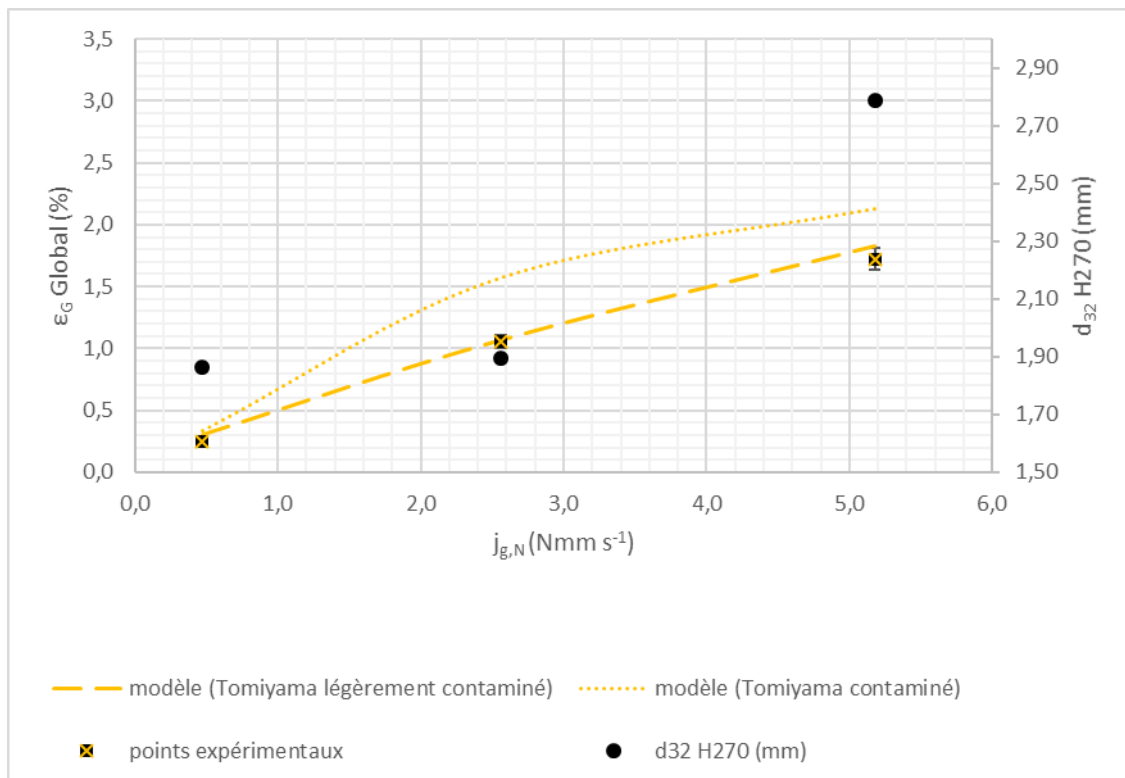


Figure 5-12: Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/XG+TA) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement et complètement contaminée

Il existe ici un point singulier où un plus fort diamètre de 2,8 mm est mesuré avec le mélange gomme xanthane et tensioactif et le diffuseur membrane, cette différence de diamètre étant probablement imputable à une composition du fluide différente des deux autres vitesses superficielles de gaz.

5.2.5 Synthèse de la comparaison entre la rétention gazeuse modélisée et expérimentale

La Figure 5-13 représente, pour l'ensemble des conditions opératoires avec les différents fluides et les deux diffuseurs, la rétention gazeuse globale mesurée expérimentalement en fonction de la rétention gazeuse globale modélisée avec la loi de traînée de Tomiyama (partiellement contaminée en eau claire et complètement contaminée pour les autres fluides).

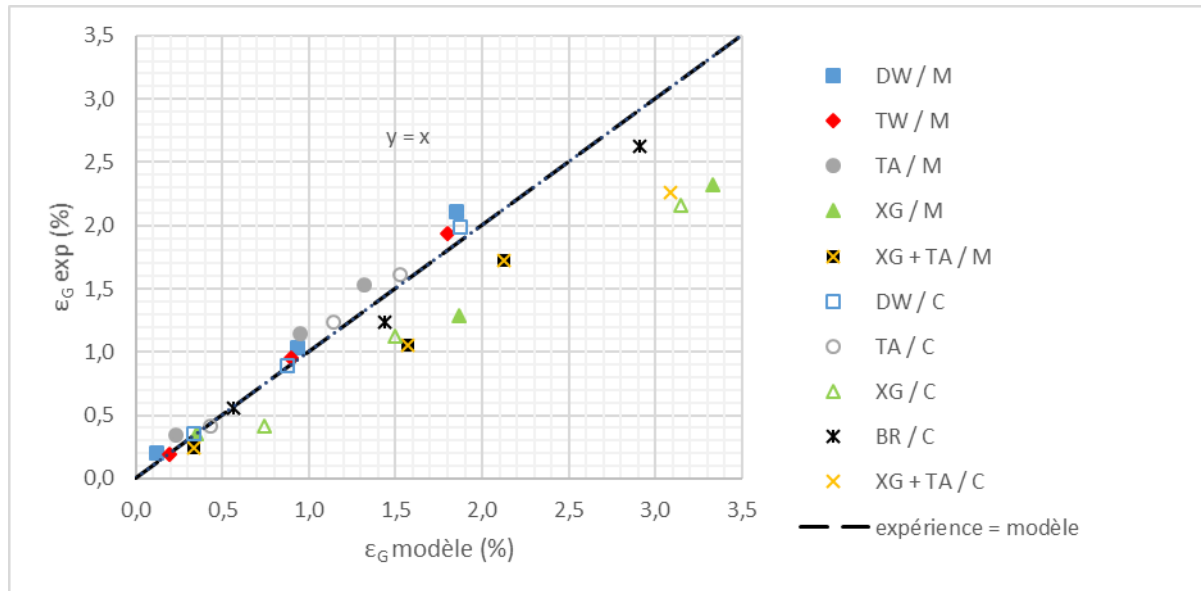


Figure 5-13 : rétention gazeuse expérimentale globale en fonction de la rétention gazeuse globale modélisée par la loi de Tomiyama, pour l'ensemble des conditions opératoires

En eau claire et en présence de tensioactif, comme vu précédemment, la rétention gazeuse expérimentale est légèrement supérieure à celle du modèle. Dans le cas des fluides visqueux non-newtoniens au contraire, la rétention gazeuse expérimentale est surestimée par le modèle. Il faut cependant garder à l'esprit que la viscosité apparente utilisée dans la modélisation est approximée via l'équation (5.1) car il n'est pas possible de mesurer localement la viscosité effective au voisinage de la bulle pour déterminer sa vitesse d'ascension qui contrôle sa rétention.

5.3 Comparaison des coefficients de transfert d'oxygène mesurés et simulés

Dans cette partie, le transfert de matière est modélisé en s'appuyant sur les résultats de rétention gazeuse simulés dans la partie précédente. Les coefficients $K_L a$ sont calculés à partir des courbes de remontées en oxygène modélisées, de manière analogue à la détermination des coefficients $K_L a$ expérimentaux.

5.3.1 Eau claire / Diffuseur membrane (M/DW et M/TW)

La Figure 5-14 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global $K_L a$ en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en eau déminéralisée avec le diffuseur membrane, et les modèles de Higbie et de Frössling.

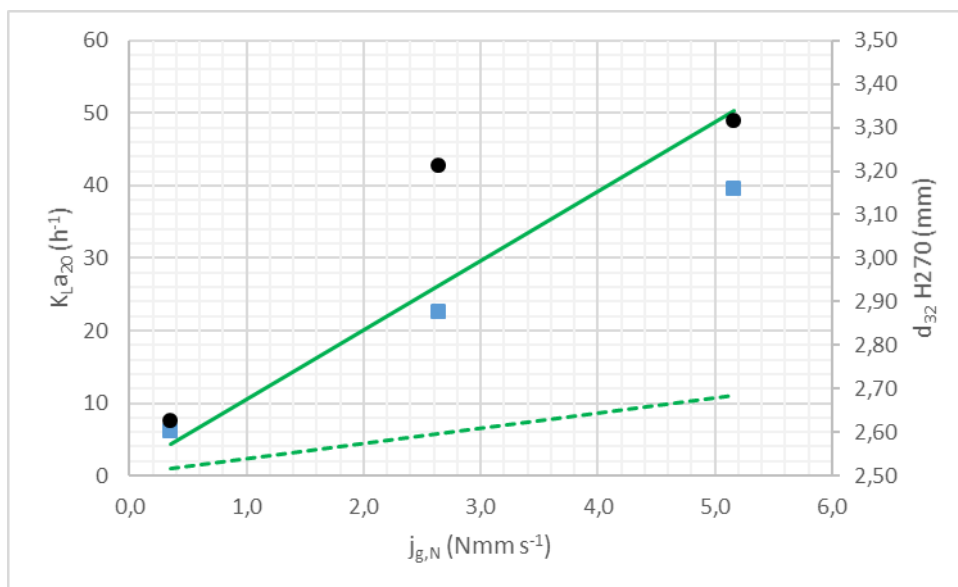


Figure 5-14 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions

La Figure 5-15 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global $K_L a$ en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en eau du réseau avec le diffuseur membrane, et les modèles de Higbie et de Frössling.

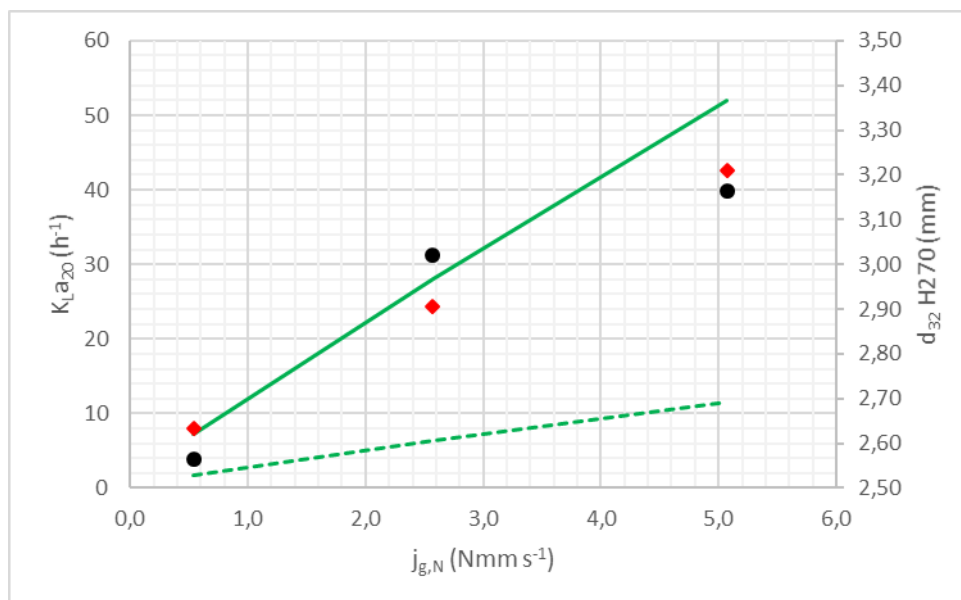


Figure 5-15 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions

En eau claire et avec le diffuseur membrane, les points expérimentaux se rapprochent du modèle de Higbie, rendant compte de bulles peu contaminées que l'eau soit déminéralisée ou du réseau (écart de 13 à 25% pour les deux vitesses superficielles de gaz les plus élevées).

De la même manière que pour la rétention gazeuse globale, l'impact de la variation du diamètre de bulle avec la hauteur (selon la pression hydrostatique ou mesurée expérimentalement) sur le transfert de matière est étudié pour l'eau du réseau (Figure 5-16).

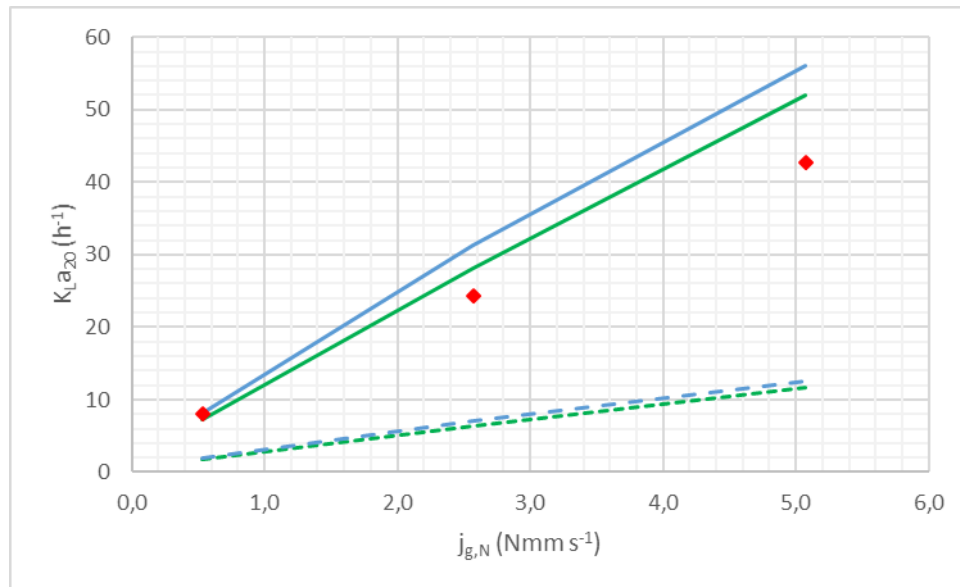


Figure 5-16 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein vert (respectivement bleu) : modèle de Higbie avec variation de taille de bulle selon pression hydrostatique (respectivement mesurée expérimentalement) ; trait pointillé vert (respectivement bleu) : modèle de Frössling avec variation de taille de bulle selon pression hydrostatique (respectivement mesurée expérimentalement))

Etant donné que le diamètre de bulle mesuré expérimentalement augmente significativement sur la hauteur (20 à 25%), le diamètre moyen sur la hauteur à vitesse superficielle de gaz fixée est plus faible que s'il variait uniquement avec la pression hydrostatique. Par conséquent, l'aire interfaciale et le coefficient de transfert de matière global $K_L a$ modélisé qui en résultent sont plus élevés (de 8 à 14% pour le modèle de Higbie), et les coefficients $K_L a$ expérimentaux apparaissent comme étant un peu plus éloignés de la loi de Higbie et donc légèrement impactés par la contamination de l'eau du réseau. Pour rappel, l'impact sur la rétention gazeuse de la variation de diamètre de bulle étant négligeable, c'est donc ici uniquement via l'aire interfaciale que la sensibilité au diamètre opère.

5.3.2 Eau déminéralisée / Diffuseur capillaire (C/DW)

La Figure 5-17 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global $K_L a$ en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en eau déminéralisée avec le diffuseur capillaire, et les modèles de Higbie et de Frössling.

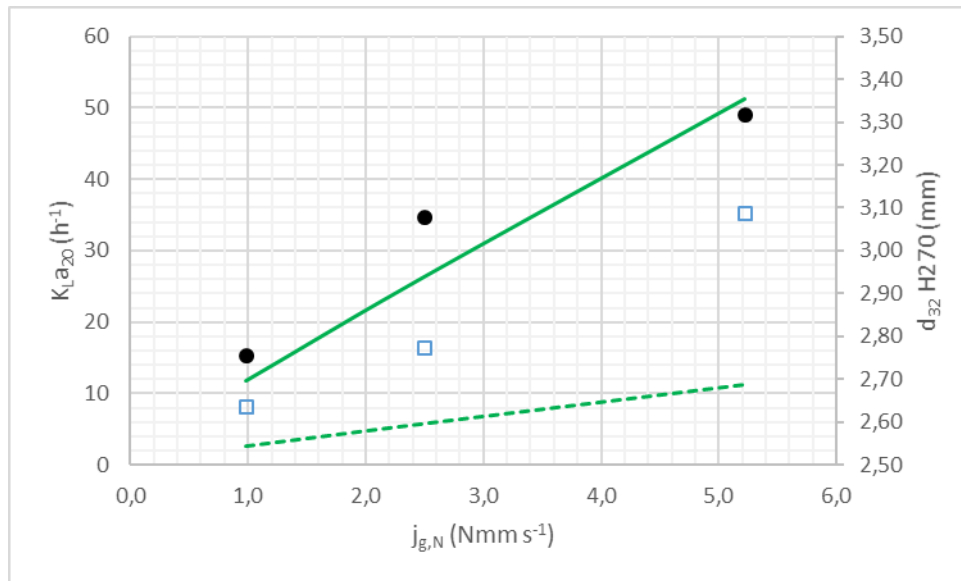


Figure 5-17 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions

La Figure 5-18 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global K_{La} en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en eau déminéralisée avec le diffuseur capillaire, et les modèles de Higbie et de Frössling, en considérant dans un cas le diamètre de Sauter de l'ensemble de la distribution et dans l'autre cas le diamètre de Sauter pour le premier pic uniquement.

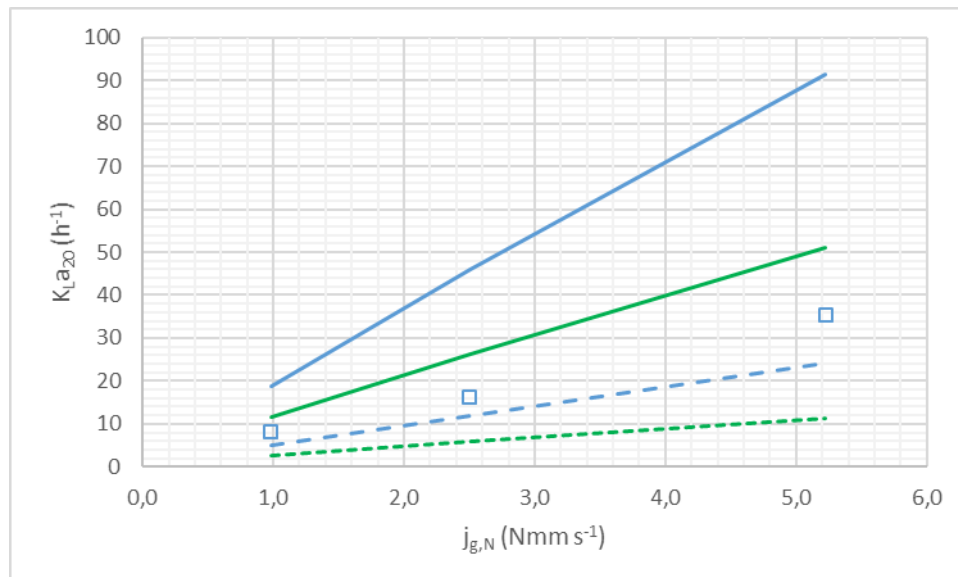


Figure 5-18 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein vert (respectivement bleu) : modèle de Higbie avec l'ensemble des bulles de la distribution (respectivement avec le premier pic uniquement) ; trait pointillé vert (respectivement bleu) : modèle de Frössling avec l'ensemble des bulles de la distribution (respectivement avec le premier pic uniquement)

Du fait de la diminution drastique de diamètre de bulle (et dans une moindre mesure de la légère augmentation de rétention gazeuse), l'aire interfaciale augmente significativement lorsqu'on considère uniquement les bulles du premier pic des distributions, et par conséquent les $K_L a$ modélisés augmentent également. Ainsi, cela montre l'importance de considérer l'ensemble des bulles de la distribution afin de décrire correctement le transfert.

5.3.3 Eau déminéralisée additionnée de tensioactif non-ionique à 1 mg L^{-1} / Diffuseurs membrane et capillaire (M/TA et C/TA) : Effets de contamination interfaciale des bulles

La Figure 5-19 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global $K_L a$ en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en présence de tensioactif non ionique avec le diffuseur membrane, et les modèles de Higbie et de Frössling.

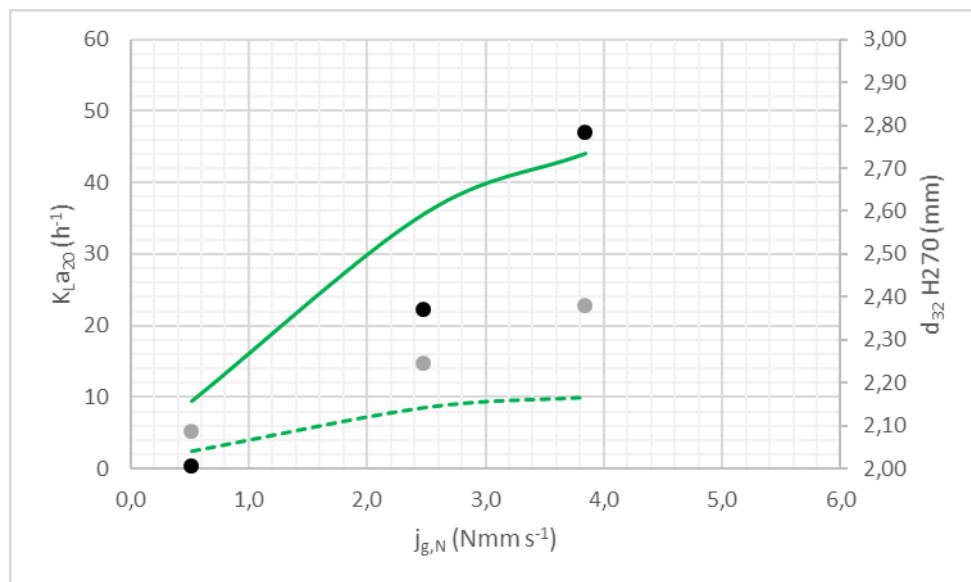


Figure 5-19 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de tensioactif non ionique et avec le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling, avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions

La Figure 5-20 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global $K_L a$ en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en présence de tensioactif non ionique avec le diffuseur capillaire, et les modèles de Higbie et de Frössling.

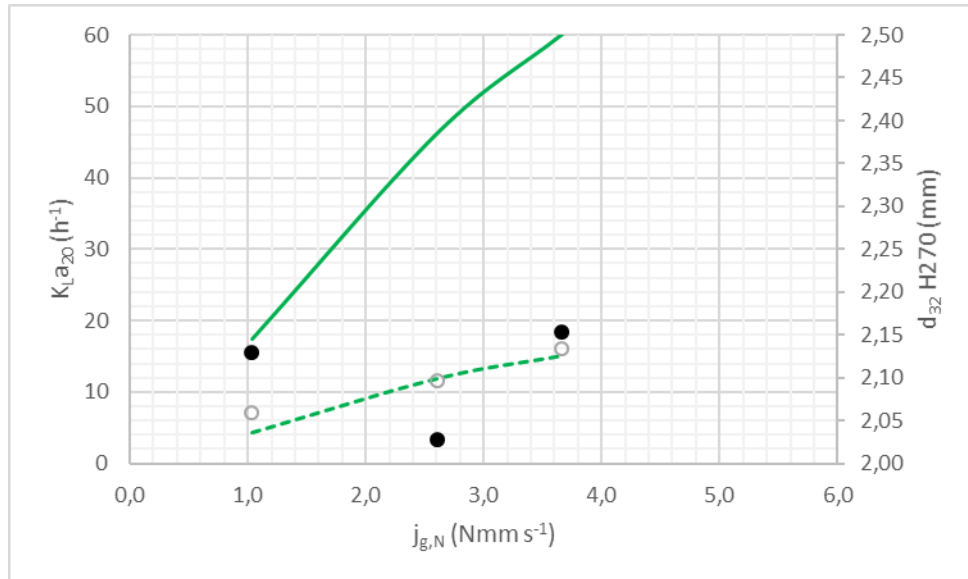


Figure 5-20 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de tensioactif non ionique et avec le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions

La contamination des bulles apparaît toujours importante et plus forte pour le diffuseur capillaire que pour le diffuseur membrane. En effet, le diamètre de bulle est plus faible avec le diffuseur capillaire, ce qui entraîne une aire interfaciale plus élevée pour une rétention gazeuse équivalente, et donc des coefficients K_{La} modélisés plus élevés. En parallèle, les K_{La} expérimentaux sont globalement plus faibles pour le diffuseur capillaire que pour le diffuseur membrane. Ainsi, les bulles peuvent être considérées comme totalement contaminées pour ces conditions, avec des coefficients K_{La} globaux pratiquement égaux à ceux calculés pour le modèle de k_L de Frössling.

5.3.4 Effets de viscosité – Fluide newtonien (Breox, diffuseur capillaire)

La Figure 5-21 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global K_{La} en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en présence de Breox avec le diffuseur capillaire, et les modèles de Higbie et de Frössling. A noter que la viscosité du Breox a un impact sur le coefficient de diffusion, la valeur considérée pour ces simulations est de $1,87 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$, conformément à la valeur déterminée expérimentalement par **Xu (2019)** pour une solution de concentration équivalente.

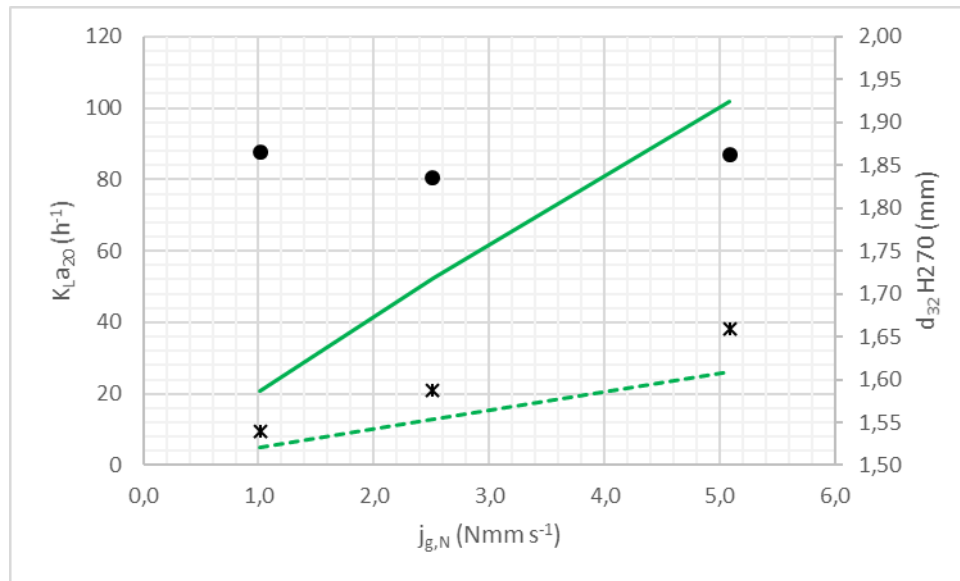


Figure 5-21 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de Breox et avec le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions

Le transfert est perturbé du fait des effets visqueux du Breox (viscosité de 2 mPa s à 20°C) qui augmente la rétention gazeuse et réduit la taille des bulles (< 2 mm), et les coefficients de transfert de matière expérimentaux se rapprochent alors du modèle de Frössling. Ainsi, la contamination des bulles est forte dans le cas du Breox.

5.3.5 Effets de viscosité – Fluide non newtonien rhéo-fluidifiant (gomme xanthane, diffuseur membrane)

La Figure 5-22 représente l'évolution de coefficient de transfert de matière global K_{La} en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour les points expérimentaux en présence de gomme xanthane avec le diffuseur capillaire, et les modèles de Higbie et de Frössling.

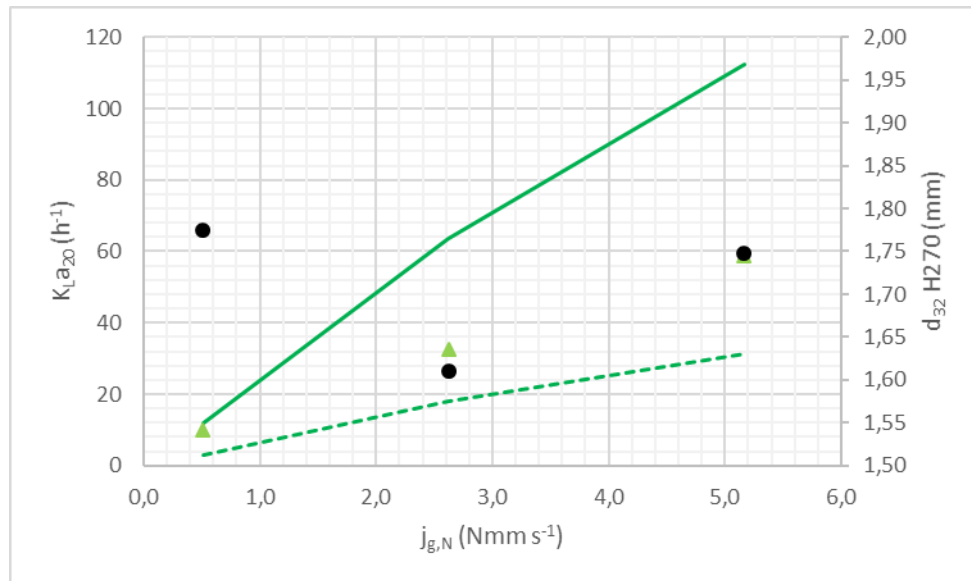


Figure 5-22 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de gomme xanthane et avec le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions

Etant donné que la rétention gazeuse globale calculée par le modèle était surestimée par rapport à l'expérience (hypothèse d'une viscosité apparente surestimée), il en résulte une aire interfaciale plus grande (également du fait du faible diamètre de bulle) et par conséquent un coefficient $K_L a$ global modélisé plus élevé. Pour la gomme xanthane et le diffuseur membrane, les bulles apparaissent ainsi comme étant partiellement contaminées.

5.3.6 Conclusion sur la comparaison des coefficients de transfert d'oxygène mesurés et simulés

Pour l'ensemble des fluides et conditions expérimentales, il a été montré que les coefficients de transfert globaux expérimentaux se situent entre les valeurs correspondant aux modèles de Higbie (bulle parfaitement propre) et de Frössling (bulle entièrement contaminée), avec différents niveaux de contamination. En eau claire, les valeurs expérimentales se rapprochent du modèle de Higbie, rendant compte d'un faible niveau de contamination. Dans le cas du tensioactif et des fluides visqueux en revanche, les niveaux de contamination sont plus marqués et les valeurs expérimentales se rapprochent du modèle de Frössling. Ces niveaux de contamination sont quantifiés et discutés plus en détail via les angles de contamination dans la partie 5.4.

5.4 Synthèse – Calcul de l'angle de contamination pour les différents fluides et conditions opératoires

Dans cette partie, le niveau de contamination des bulles est caractérisé plus finement via le calcul des angles de contamination (0° pour une bulle propre et 180° pour une interface complètement contaminée, voir 1.3.5 et 3.3.2.4).

5.4.1 Angle de contamination du point de vue du transfert de matière

Du point de vue du transfert de matière, l'angle de contamination est calculé à partir du nombre de Sherwood normalisé, faisant intervenir les nombres de Sherwood dans les conditions de l'expérience ainsi qu'avec les modèles de transfert théoriques de Higbie et de Frössling. Ces derniers sont calculés à l'aide du modèle 1D à partir des conditions expérimentales introduites en entrée (diamètre de bulle en haut de colonne, vitesse superficielle de gaz, hauteur de liquide, propriétés physico-chimiques) et des paramètres hydrodynamiques en résultant calculés par le modèle (diamètre de bulle calculé sur la hauteur, vitesse de bulle, rétention gazeuse et aire interfaciale), en considérant la moyenne des paramètres sur la hauteur de la colonne. Le coefficient de transfert côté liquide k_L expérimental intervenant dans le calcul du nombre de Sherwood expérimental est également déterminé à l'aide du modèle, sa valeur étant ajustée de sorte à ce que le coefficient K_La déterminé par le modèle corresponde à la valeur de K_La expérimental dans les conditions de l'expérience (voir 3.3.2.4).

Eau claire

Le Tableau 5-3 indique les valeurs de k_L expérimentales, des Sh correspondants et les angles de contamination déduits pour de l'eau claire (eau déminéralisée et eau du réseau) pour les deux diffuseurs membrane et capillaire, et pour chacune des trois vitesses superficielles de gaz. Sont également présentés les valeurs de diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm, les valeurs de k_L expérimental obtenues par ajustement du modèle pour retrouver les valeurs de K_La globaux expérimentales, ainsi que les valeurs de nombre de Sherwood qui en résultent, et les valeurs de nombre de Sherwood obtenues avec les modèles de k_L de Higbie et de Frössling.

Tableau 5-3 : Angles de contamination du point de vue du transfert en eau claire et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ ($Nmm\ s^{-1}$)	$d_{32}\ H270$ (mm)	$k_L\ exp$ ($10^{-4}\ m\ s^{-1}$)	Sh (-)	Sh_{Higbie} (-)	$Sh_{Frössling}$ (-)	$\theta_{cap,t}$ (°)
DW	M	0,35	2,63	8,20	1032	636	122	0
DW	M	2,64	3,21	3,75	578	696	134	63
DW	M	5,16	3,32	3,34	531	699	135	73
TW	M	0,54	2,56	5,80	713	622	119	0
TW	M	2,57	3,02	3,95	572	681	131	62
TW	M	5,07	3,16	3,58	543	688	133	69
DW	C	0,98	2,75	3,24	428	658	126	87
DW	C	2,50	3,08	2,67	394	685	132	96
DW	C	5,22	3,32	2,85	453	699	135	87

En eau claire et pour les deux diffuseurs, les valeurs d'angle de contamination se situent entre 60 et 90°, ce qui indique une faible contamination du point de vue du transfert. Cela est en accord avec le fait que les coefficients de transfert de matière globaux K_La expérimentaux sont significativement plus proches du K_La calculé avec le modèle de Higbie que celui de Frössling. Pour le diffuseur membrane, les angles de contamination sont plus faibles que pour le diffuseur capillaire, en effet les valeurs de K_La expérimentaux sont plus proches du modèle de Higbie pour le diffuseur membrane. Dans le cas de la vitesse superficielle de gaz la plus faible pour l'eau déminéralisée et l'eau du réseau avec le diffuseur membrane, les valeurs de k_L et de nombre de Sherwood expérimentaux sont supérieures aux valeurs pour le modèle de Higbie. Cela peut provenir d'une variabilité du K_La mesuré expérimentalement, et d'une possible surestimation du diamètre de bulle mesuré dans le cas de l'eau déminéralisée ; de même, les mesures de très faibles valeurs de rétention gazeuse sont sujettes à une incertitude importante. Pour ces deux cas, on peut considérer par défaut que les bulles sont parfaitement propres avec un angle de contamination de 0°.

Tensioactif non-ionique

Le Tableau 5-4 indique les valeurs des angles de contamination en présence de tensioactif non ionique pour les deux diffuseurs membrane et capillaire, et pour chacune des trois vitesses superficielles de gaz, ainsi que les paramètres associés.

Tableau 5-4 : Angles de contamination du point de vue du transfert en présence de tensioactif et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} H270 (mm)	k_L exp (10 ⁻⁴ m s ⁻¹)	Sh (-)	Sh _{Higbie} (-)	Sh _{Frössling} (-)	$\Theta_{cap,t}$ (°)
TA	M	0,52	2,01	2,35	226	496	96	111
TA	M	2,48	2,37	1,75	199	575	111	126
TA	M	3,84	2,78	2,29	306	658	127	110
TA	C	1,04	2,13	1,69	173	523	101	129
TA	C	2,61	2,03	0,96	93	497	96	180
TA	C	3,66	2,15	1,05	108	524	102	161

Le fort niveau de contamination en présence de tensioactif est confirmé par les valeurs d'angle de contamination obtenues, avec des valeurs de l'ordre de 110 à 130° pour le diffuseur membrane et de 130 à 160° pour le diffuseur capillaire. La contamination des bulles est donc plus forte pour le diffuseur capillaire que pour le diffuseur membrane. Pour la vitesse superficielle de gaz intermédiaire avec le diffuseur capillaire, la valeur du nombre de Sherwood expérimental est légèrement inférieure à celle du nombre de Sherwood de Frössling, par conséquent la contamination est considérée par défaut comme totale avec un angle de contamination de 180°.

Breox

Le Tableau 5-5 indique les valeurs des angles de contamination pour le fluide visqueux newtonien (Breox) avec le diffuseur capillaire, et pour chacune des trois vitesses superficielles de gaz, ainsi que les paramètres associés.

Tableau 5-5 : Angles de contamination du point de vue du transfert pour le Breox et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} H270 (mm)	k_L exp (10 ⁻⁴ m s ⁻¹)	Sh (-)	Sh _{Higbie} (-)	Sh _{Frössling} (-)	$\Theta_{cap,t}$ (°)
BR	C	1,01	1,87	1,56	149	437	75	124
BR	C	2,51	1,84	1,33	125	427	74	132
BR	C	5,09	1,86	1,17	112	428	74	138

Le niveau de contamination est élevé pour le Breox, avec des valeurs d'angle de contamination comprises entre 120 et 140° pour des bulles inférieures à 2 mm.

Les valeurs d'angle de contamination n'ont pas été calculées pour la gomme xanthane et pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif, étant donné que l'hydrodynamique n'a pas pu être validée pour ces conditions, avec une rétention gazeuse calculée par le modèle fortement éloignée des valeurs expérimentales.

5.4.2 Angle de contamination du point de vue hydrodynamique

Dans cette partie, le coefficient de traînée normalisé pris en compte dans le calcul de l'angle de contamination est calculé à partir du coefficient de traînée expérimental et des coefficients de traînée pour une bulle entièrement propre (loi de traînée de Dijkhuizen, équation 3.14) et contaminée : loi de traînée de Tomiyama légèrement contaminée dans le cas de l'eau claire (Equation 1.16) et loi de traînée de Tomiyama pour bulles contaminées (Equation 1.15) pour les autres fluides. La valeur de C_D considérée est la moyenne du coefficient de traînée modélisé sur la hauteur de la colonne.

Le coefficient de traînée expérimental $C_{D \text{ exp}}$ (-) est obtenu à partir du diamètre de bulle et de la vitesse de bulle selon :

$$C_{D \text{ exp}} = \frac{4}{3} \times g \times \frac{d_{32} H_{270}}{U_{g, \text{exp}}^2} \quad (5.2)$$

Avec g l'accélération de la pesanteur (m s^{-2}), $d_{32} H_{270}$ le diamètre de Sauter mesuré à la hauteur 270 cm (m), et $U_{g, \text{exp}}$ la vitesse de bulle moyenne expérimentale estimée (m s^{-1}). La variation de diamètre de bulle sur la hauteur est négligée.

La vitesse de bulle moyenne expérimentale $U_{g, \text{exp}}$ (m s^{-1}) est estimée selon :

$$U_{g, \text{exp}} = \frac{\langle j_g \rangle}{\varepsilon_G} \quad (5.3)$$

Avec $\langle j_g \rangle$ la vitesse superficielle de gaz moyennée sur la hauteur de la colonne (m s^{-1}), et ε_G la rétention gazeuse globale (-) mesurée expérimentalement sur l'ensemble de la colonne.

La vitesse superficielle de gaz moyenne sur la hauteur de la colonne est donnée par :

$$\langle j_g \rangle = j_{g, N} \times \frac{P_0}{P_0 + \rho_m \times g \times \frac{H}{2}} \quad (5.4)$$

Avec $j_{g, N}$ la vitesse superficielle de gaz à pression atmosphérique (Nm s^{-1}), P_0 la pression atmosphérique (Pa), ρ_m la masse volumique du mélange gaz-liquide (kg m^{-3}), g l'accélération de la pesanteur (m s^{-2}) et H la hauteur d'eau dans la colonne (m).

Pour que le coefficient de traînée normalisé $C_D^*(\theta_{\text{cap}})$ ait un sens, le coefficient de traînée expérimental doit être compris entre les valeurs pour une bulle propre et une bulle contaminée. Cela implique que la vitesse de bulle expérimentale estimée doit être supérieure (respectivement inférieure) à celle calculée par le modèle pour une bulle contaminée (respectivement pour une bulle propre), et donc que la **rétention gazeuse globale expérimentale doit être supérieure (respectivement inférieure)** à celle calculée par le modèle pour une **bulle propre (respectivement contaminée)**. Pour les cas où le coefficient de traînée expérimental est supérieur à celui calculé par la loi de Tomiyama, et donc $C_D^*(\theta_{\text{cap}}) > 1$, la bulle est considérée entièrement contaminée avec un angle de contamination de 180° .

Eau claire

Le Tableau 5-6 présente, pour les différentes mesures en eau claire, la vitesse superficielle de gaz, le diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm, et les coefficients de traînée expérimental, modélisé dans le cas d'une bulle contaminée (C_{D}^{im} , loi de Tomiyama partiellement contaminée) et d'une bulle entièrement propre (C_{D}^m , loi de Dijkhuizen) et normalisé, ainsi que l'angle de contamination correspondant.

Tableau 5-6 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en eau claire et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	$d_{32} \text{ H270}$ (mm)	$C_D \text{ exp}$ (-)	C_D^{im} (-)	C_D^m (-)	$C_D^*(\theta_{cap})$ (-)	θ_{cap} (°)
DW	M	0,35	2,63	1,47	0,52	0,33	6,04	180
DW	M	2,64	3,21	0,83	0,66	0,48	2,01	180
DW	M	5,16	3,32	0,94	0,70	0,52	2,30	180
TW	M	0,54	2,56	0,54	0,53	0,32	1,05	180
TW	M	2,57	3,02	0,71	0,60	0,43	1,67	180
TW	M	5,07	3,16	0,78	0,65	0,47	1,73	180
DW	C	0,98	2,75	0,59	0,52	0,36	1,47	180
DW	C	2,50	3,08	0,67	0,61	0,44	1,34	180
DW	C	5,22	3,32	0,82	0,70	0,52	1,64	180

Pour l'eau claire, le coefficient de traînée expérimental est sensiblement égal à celui calculé avec la loi de Tomiyama (à l'exception de la vitesse superficielle de gaz la plus faible en eau déminéralisée avec le diffuseur membrane, pour laquelle l'incertitude sur la mesure de rétention de gaz est élevée). Cela confirme que le choix de la loi de traînée de Tomiyama légèrement contaminée est pertinent pour la description de la rétention gazeuse expérimentale en eau claire. Néanmoins, pour toutes les conditions en eau claire, les valeurs de C_D expérimentales sont supérieures à celles du modèle.

Tensioactif non-ionique

Le Tableau 5-7 présente, pour les différentes mesures en présence de tensioactif, la vitesse superficielle de gaz, le diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm, et les coefficients de traînée expérimental, modélisé dans le cas d'une bulle entièrement contaminée (C_{D}^{im} , loi de Tomiyama totalement contaminée) et d'une bulle entièrement propre (C_{D}^m , loi de Dijkhuizen) et normalisé, ainsi que l'angle de contamination correspondant.

Tableau 5-7 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de tensioactif et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	$d_{32} \text{ H270}$ (mm)	$C_D \text{ exp}$ (-)	C_D^{im} (-)	C_D^m (-)	$C_D^*(\theta_{cap})$ (-)	θ_{cap} (°)
TA	M	0,52	2,01	1,46	0,62	0,20	2,98	180
TA	M	2,48	2,37	0,87	0,56	0,28	2,04	180
TA	M	3,84	2,78	0,75	0,53	0,37	2,37	180
TA	C	1,04	2,13	0,58	0,60	0,22	0,93	118
TA	C	2,61	2,03	0,77	0,63	0,21	1,33	180
TA	C	3,66	2,15	0,71	0,61	0,23	1,26	180

Etant donné que le diamètre de bulle en présence de tensioactif est compris entre 2 et 3 mm, il se situe dans la zone de transition entre les régimes de Reynolds et d'Eötvös pour la loi de traînée de

Tomiyama, et les valeurs de coefficient de traînée se situent entre 0,5 et 0,6. Pour la loi de Dijkhuizen, les diamètres de bulle se situent entièrement dans le régime d'Eötvös, et le coefficient de traînée augmente avec le diamètre de bulle, avec des valeurs comprises entre 0,2 et 0,4. Pour le diffuseur membrane, du fait de la rétention gazeuse relativement élevée, le coefficient de traînée expérimental est supérieur aux valeurs de Tomiyama et le calcul de l'angle de contamination n'est pas applicable, une valeur de 180° est alors considérée. Pour le diffuseur capillaire, les rétentions gazeuses sont légèrement plus faibles, par conséquent le coefficient de traînée expérimental est plus faible mais demeure néanmoins supérieur aux valeurs de traînée de Tomiyama, entraînant des valeurs d'angle de contamination de 180° à l'exception de la vitesse superficielle de gaz la plus faible pour laquelle l'angle de contamination est égal à 118° (le niveau de contamination reste cependant fort).

Breox

Le Tableau 5-8 présente, pour les différentes mesures en présence de Breox, la vitesse superficielle de gaz, le diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm, et les coefficients de traînée expérimental, modélisé dans le cas d'une bulle entièrement contaminée (C_D^{im} , loi de Tomiyama totalement contaminée) et d'une bulle entièrement propre (C_D^m , loi de Dijkhuizen) et normalisé, ainsi que l'angle de contamination correspondant. On peut remarquer une contamination de la bulle plus faible avec le Breox pour des bulles légèrement plus petites que 2 mm.

Tableau 5-8 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de Breox et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} H270 (mm)	C_D exp (-)	C_D^{im} (-)	C_D^m (-)	$C_D^*(\theta_{cap})$ (-)	θ_{cap} (°)
BR	C	1,01	1,87	0,95	0,95	0,19	1,00	180
BR	C	2,51	1,84	0,76	0,98	0,19	0,72	91
BR	C	5,09	1,86	0,84	1,00	0,20	0,80	98

Gomme xanthane / mélange de gomme xanthane et tensioactif

Le Tableau 5-9 présente, pour les différentes mesures en présence de gomme xanthane, la vitesse superficielle de gaz, le diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm, et les coefficients de traînée expérimental, modélisé dans le cas d'une bulle entièrement contaminée (C_D^{im} , loi de Tomiyama) et d'une bulle entièrement propre (C_D^m , loi de Dijkhuizen) et normalisé, ainsi que l'angle de contamination correspondant. Il faut préciser ici encore que la viscosité apparente utilisée dans le modèle est celle de la loi de Sánchez Pérez et al. (2006) qui conduit à surestimer la rétention gazeuse et donc les coefficients de traînée limites lorsqu'ils dépendent de la viscosité et donc du nombre de Reynolds.

Tableau 5-9 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de gomme xanthane et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} H270 (mm)	C_D exp (-)	C_D^{im} (-)	C_D^m (-)	$C_D^*(\theta_{cap})$ (-)	θ_{cap} (°)
XG	M	0,51	1,77	1,47	1,36	0,16	1,08	180
XG	M	2,62	1,61	0,66	1,34	0,13	0,44	68
XG	M	5,16	1,75	0,60	1,20	0,16	0,42	67
XG	C	0,98	1,57	0,47	1,47	0,12	0,26	54
XG	C	2,58	1,98	0,64	1,09	0,20	0,50	73
XG	C	5,12	1,83	0,55	1,15	0,17	0,39	65

La différence entre les lois de traînée de Tomiyama et de Dijkhuizen est particulièrement marquée pour la gomme xanthane. En effet, du fait du faible diamètre de bulle, le coefficient de traînée est calculé dans le régime de Reynolds pour la loi de traînée de Tomiyama alors qu'il est calculé dans le régime d'Eötvös pour la loi de Dijkhuizen (Equation 3.14). Cependant, contrairement à l'eau claire, la viscosité apparente est dans ce cas plus élevée (de 2,45 à 3,39 mPa s) et le diamètre de bulle plus faible (inférieur à 2 mm), par conséquent la partie dépendante du nombre de Reynolds dans la loi de Dijkhuizen n'est plus négligeable devant celle dépendant du nombre d'Eötvös et il faudrait en toute rigueur considérer dans le modèle les équations 1.18 à 1.20. Ainsi, le coefficient de traînée calculé pour la loi de Dijkhuizen est sous-estimé pour ces conditions, et cette sous-estimation est d'autant plus forte que le diamètre de bulle est faible et la viscosité apparente élevée. Les mêmes observations sont faites pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif avec le diffuseur membrane (Tableau 5-10).

D'autre part, il est probable que les C_D de Tomiyama soient surestimés via une surestimation de la viscosité apparente. Les angles de contamination réels seraient alors plus forts que ceux interprétés dans le cadre de ce travail.

Les mêmes effets sont observés pour le Breox, mais avec une magnitude moindre. En effet, le diamètre de bulle en présence de Breox est légèrement supérieur à celui en présence de gomme xanthane, et la viscosité est légèrement inférieure, ce qui entraîne une différence moins significative entre les deux lois de traînée. Ainsi, compte tenu de la viscosité (2 mPa s) et du diamètre de bulle (entre 1,8 et 1,9 mm), la partie dépendant du nombre de Reynolds dans la loi de Dijkhuizen peut être considérée comme négligeable (voir Figure 1-5). Par ailleurs, les rétentions gazeuses expérimentales en présence de Breox sont plus élevées qu'en présence de gomme xanthane, ce qui entraîne des coefficients de traînée expérimentaux plus élevés également, à l'exception de la vitesse superficielle de gaz la plus faible. Il est également important de souligner que dans le cas du Breox (fluide newtonien), il n'existe pas de biais sur l'estimation du taux de cisaillement et de la viscosité comme c'est le cas en présence de gomme xanthane.

Etant donné la forte différence de coefficient de traînée pour les lois de Tomiyama et de Dijkhuizen pour les fluides visqueux, et en particulier des coefficients de traînée de Tomiyama plus élevés qu'en eau claire, les coefficients de traînée expérimentaux se situent systématiquement entre les deux lois de traînée, donnant ainsi des valeurs d'angle de contamination entre 90 et 100° pour le Breox (excepté pour la vitesse superficielle de gaz la plus faible) et entre 54 et 73° pour la gomme xanthane, indiquant une contamination partielle d'un point de vue hydrodynamique, et inférieure au niveau de contamination du point de vue du transfert de matière dans le cas du Breox. Les mêmes observations sont faites pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif avec le diffuseur membrane (voir Tableau 5-10). Il semble donc que le tensioactif n'ait pas un rôle contaminant sur l'interface gaz-liquide comme il l'a en eau claire en présence de gomme xanthane. En présence de gomme xanthane, la viscosité apparente étant surestimée et conduisant à une surestimation de la rétention gazeuse, il faut pondérer les résultats par cet artefact de modélisation dans le cas d'un fluide non-newtonien.

Tableau 5-10 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de gomme xanthane et tensioactif et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} H270 (mm)	C_D exp (-)	C_D^{im} (-)	C_D^m (-)	$C_D^*(\theta_{cap})$ (-)	θ_{cap} (°)
XG + TA	M	0,47	1,87	0,84	1,50	0,19	0,50	73
XG + TA	M	2,56	1,89	0,55	1,16	0,19	0,37	63
XG + TA	M	5,18	2,79	0,53	0,78	0,40	0,33	59

5.4.3 Angle de contamination du point de vue du transfert de matière modifié

Afin de pallier à l'impact de la contamination mal simulé sur la traînée présenté dans la partie 5.4.2, des modifications sont introduites dans le modèle 1D afin de prendre en compte la rétention gazeuse globale mesurée expérimentalement pour le calcul du transfert de matière, dans le but de mieux décrire les points expérimentaux du point de vue du transfert, sans introduire de biais lié à la différence de rétention gazeuse calculée par le modèle et mesurée expérimentalement (cas de la gomme xanthane notamment). Un angle de contamination modifié est calculé à partir des coefficients de transfert côté liquide k_L en résultant, et cet angle de contamination est comparé à celui calculé en considérant uniquement la rétention gazeuse du modèle (partie 5.4.1).

Pour les cas où la rétention gazeuse globale mesurée expérimentalement est supérieure à celle calculée par le modèle avec la loi de traînée de Tomiyama, la rétention gazeuse utilisée pour le calcul du transfert de matière est celle du modèle, et la démarche de calcul est inchangée par rapport à la partie 5.4.1. On considère ainsi que la rétention gazeuse mesurée expérimentalement ne peut pas être supérieure à celle d'une bulle entièrement contaminée.

En revanche, dans les cas où la rétention gazeuse globale expérimentale est inférieure à celle calculée par la loi de Tomiyama, c'est la rétention gazeuse globale expérimentale qui est introduite dans le modèle et qui sert de donnée d'entrée pour le calcul du transfert de matière (ce sont essentiellement les situations de fluide visqueux newtonien et rhéo-fluidifiant).

L'évolution de la rétention gazeuse selon la hauteur est introduite dans le modèle selon la relation suivante (obtenue à partir de la loi des gaz parfaits) :

$$\varepsilon_G(z) = \frac{1 - \frac{(H-z)}{10}}{1 - \frac{H}{20}} \times \varepsilon_{G \text{ Global}} \quad (5.5)$$

Avec $\varepsilon_G(z)$ la rétention gazeuse locale à la hauteur z (m) dans la colonne, H la hauteur d'eau dans la colonne (m) et $\varepsilon_{G \text{ Global}}$ la rétention gazeuse globale mesurée expérimentalement sur l'ensemble de la colonne. L'évolution locale de rétention gazeuse est linéaire selon la hauteur, et la rétention gazeuse locale à mi-hauteur ($z=H/2$) est égale à la moyenne de la rétention gazeuse locale sur la hauteur ainsi qu'à la rétention gazeuse globale expérimentale.

A partir de cette loi d'évolution de rétention gazeuse, sont calculées localement la vitesse de glissement et la vitesse de bulle entrant en compte dans le calcul du transfert. Le calcul de la pression hydrostatique, de l'évolution du diamètre de bulle et de la vitesse superficielle de gaz en résultant demeure inchangé. En revanche, il n'y a plus de calcul de coefficient de traînée à partir d'une loi de traînée étant donné que la vitesse de bulle est directement calculée à partir de la rétention gazeuse qui est une donnée d'entrée du modèle.

La suite de la procédure de calcul de l'angle de contamination du point de vue du transfert de matière demeure inchangée : les nombres de Sherwood correspondant aux modèles de k_L de Higbie et Frössling sont calculés, ainsi que le nombre de Sherwood expérimental à partir du k_L expérimental ajusté par le modèle pour obtenir le K_{La} global expérimental, ce qui permet de calculer le nombre de Sherwood normalisé, le coefficient de traînée normalisé associé ainsi que l'angle de contamination correspondant.

Le Tableau 5-11 indique les valeurs des angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en eau claire, avec les nombres de Sherwood de Higbie, Frössling et expérimentaux associés, ainsi que les valeurs de rétentions gazeuses expérimentales et calculées par le modèle pour les différentes conditions.

Tableau 5-11 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en eau claire et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	ϵ_G (exp) (%)	ϵ_G (Tomiyaama) (%)	Sh (-)	Sh _{Higbie} (-)	Sh _{Frössling} (-)	$\Theta_{cap,t,corr}$ (°)
DW	M	0,35	0,20	0,12	1032	636	122	0
DW	M	2,64	1,03	0,94	578	696	134	63
DW	M	5,16	2,11	1,85	531	699	135	73
TW	M	0,54	0,19	0,19	713	627	120	0
TW	M	2,57	0,95	0,90	572	681	131	62
TW	M	5,07	1,93	1,80	543	688	133	69
DW	C	0,98	0,35	0,33	428	658	126	87
DW	C	2,50	0,89	0,88	394	685	132	96
DW	C	5,22	1,99	1,88	453	699	135	87

En eau claire, la rétention gazeuse expérimentale est supérieure à celle calculée à partir de la loi de traînée de Tomiyama, par conséquent le calcul de l'angle de contamination demeure inchangé par rapport à celui de la partie 5.4.1. Cela valide le fait que la loi de traînée de Tomiyama légèrement contaminée est pertinente pour décrire l'hydrodynamique de l'eau claire et les paramètres liés au transfert qui en résultent (erreur par rapport à la rétention gazeuse expérimentale inférieure à 10% excepté pour la vitesse superficielle de gaz la plus faible et la plus élevée en eau déminéralisée avec le diffuseur membrane).

Tensioactif non-ionique

Le Tableau 5-12 indique les valeurs des angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de tensioactif, avec les nombres de Sherwood de Higbie, Frössling et expérimentaux associés, ainsi que les valeurs de rétentions gazeuses expérimentales et calculées par le modèle pour les différentes conditions.

Tableau 5-12 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de tensioactif et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	ϵ_G (exp) (%)	ϵ_G (Tomiyaama) (%)	Sh (-)	Sh _{Higbie} (-)	Sh _{Frössling} (-)	$\Theta_{cap,t,corr}$ (°)
TA	M	0,52	0,34	0,23	226	496	96	111
TA	M	2,48	1,15	0,95	199	575	111	126
TA	M	3,84	1,53	1,32	306	658	127	110
TA	C	1,04	0,41	0,43	180	536	103	128
TA	C	2,61	1,23	1,14	93	497	96	180
TA	C	3,66	1,61	1,53	108	524	102	161

En présence de tensioactif, à l'exception de la vitesse superficielle de gaz la plus faible pour le diffuseur capillaire, la rétention gazeuse expérimentale est supérieure à celle calculée avec la loi de traînée de Tomiyama, et donc l'angle de contamination est le même que celui calculé dans la partie 5.4.1, de la

même manière que pour l'eau claire. Toutefois, dans le cas de la vitesse superficielle de gaz la plus faible pour le diffuseur capillaire, la différence de rétention gazeuse entre expérience et modèle est faible (0,41% contre 0,43%), l'incidence sur le calcul de l'angle de contamination est par conséquent totalement négligeable.

Breox

Le Tableau 5-13 indique les valeurs des angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de Breox, avec les nombres de Sherwood de Higbie, Frössling et expérimentaux associés, ainsi que les valeurs de rétentions gazeuses expérimentales et calculées par le modèle pour les différentes conditions.

Tableau 5-13 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de Breox et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	ϵ_g (exp) (%)	ϵ_g (Tomiyama) (%)	Sh (-)	Sh ^{Higbie} (-)	Sh ^{Frössling} (-)	$\Theta_{cap,t,corr}$ (°)
BR	C	1,01	0,56	0,57	153	442	76	123
BR	C	2,51	1,24	1,44	146	462	79	128
BR	C	5,09	2,62	2,91	124	452	78	135

Pour le Breox, la rétention gazeuse expérimentale est systématiquement légèrement inférieure à celle du modèle avec la loi de traînée de Tomiyama entièrement contaminée, par conséquent les nombres de Sherwood et l'angle de contamination sont recalculés en prenant en compte la rétention gazeuse expérimentale. Etant donné que la rétention gazeuse est plus faible pour un même diamètre de bulle, l'aire interfaciale est plus faible et le nombre de Sherwood expérimental est plus élevé que dans la partie 5.4.1. En effet, le k_L ajusté pour retrouver la valeur de K_{La} expérimental est plus élevé. De la même manière, du fait de la rétention gazeuse plus faible, la vitesse de bulle est plus élevée, et les coefficients k_L de Higbie et de Frössling sont plus élevés, il en est par conséquent de même pour les nombres de Sherwood correspondants. Finalement, l'augmentation du nombre de Sherwood expérimental est comprise entre 3 et 17 %, celle du nombre de Sherwood de Higbie entre 1 et 8 %, et celle du nombre de Sherwood de Frössling entre 1 et 7 %. L'augmentation du nombre de Sherwood expérimental étant plus marquée que pour ceux de Higbie et de Frössling, le niveau de contamination est légèrement plus faible, avec cependant des valeurs d'angle de contamination dans la même gamme que ceux calculés dans la partie 5.4.1, même si légèrement inférieurs.

Gomme xanthane / mélange de gomme xanthane et tensioactif

Le Tableau 5-14 indique les valeurs des angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de gomme xanthane, avec les nombres de Sherwood de Higbie, Frössling et expérimentaux associés, ainsi que les valeurs de rétentions gazeuses expérimentales et calculées par le modèle pour les différentes conditions. Dans ce cas-ci, l'erreur d'estimation de la viscosité apparente est court-circuitée en imposant une rétention gazeuse cohérente avec l'expérience. Comme attendu, les angles de contamination sont plus élevés si le biais lié à la viscosité apparente est éliminé et les résultats sont mieux interprétables.

Tableau 5-14 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de gomme xanthane et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{G,N}$ (Nmm s ⁻¹)	ϵ_G (exp) (%)	ϵ_G (Tomiya) (%)	Sh (-)	Sh _{Higbie} (-)	Sh _{Frössling} (-)	$\Theta_{cap,t,corr}$ (°)
XG	M	0,51	0,36	0,35	272	372	59	76
XG	M	2,62	1,29	1,87	170	418	69	115
XG	M	5,16	2,32	3,33	193	454	77	113
XG	C	0,98	0,41	0,74	141	449	72	127
XG	C	2,58	1,13	1,50	173	492	81	122
XG	C	5,12	2,16	3,15	139	479	81	132

Le Tableau 5-15 indique les valeurs des angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de gomme xanthane et tensioactif avec le diffuseur membrane, avec les nombres de Sherwood de Higbie, Frössling et expérimentaux associés, ainsi que les valeurs de rétentions gazeuses expérimentales et calculées par le modèle pour les différentes conditions. En présence de tensioactif, il ne semble pas qu'il y ait un effet de modification de la contamination de l'interface avec une solution aqueuse de gomme xanthane.

Tableau 5-15 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de gomme xanthane et de tensioactif avec le diffuseur membrane et paramètres associés

Fluide	Diffuseur	$j_{G,N}$ (Nmm s ⁻¹)	ϵ_G (exp) (%)	ϵ_G (Tomiya) (%)	Sh (-)	Sh _{Higbie} (-)	Sh _{Frössling} (-)	$\Theta_{cap,t,corr}$ (°)
XG + TA	M	0,47	0,24	0,33	286	442	68	85
XG + TA	M	2,56	1,06	1,57	225	495	81	108
XG + TA	M	5,18	1,72	2,13	401	667	112	92

En présence de gomme xanthane avec le diffuseur membrane, le premier point est calculé avec la rétention gazeuse donnée par la loi de Tomiyama, et les deux autres sont donnés par la rétention gazeuse expérimentale. Le niveau de contamination est intermédiaire, avec des valeurs d'angle de contamination comprises entre 76 et 115° pour le diffuseur membrane et de 122 et 132° pour le diffuseur capillaire, soit une contamination légèrement plus forte. Du fait des valeurs de K_{La} expérimentaux relativement élevées, les nombres de Sherwood expérimentaux sont élevés également. En effet, étant donné que l'aire interfaciale n'est pas surestimée contrairement à la partie 5.3.5 (prise en compte de la rétention gazeuse expérimentale largement inférieure à celle calculée par la loi de Tomiyama), elle est davantage représentative de la valeur expérimentale, et la valeur du k_L expérimental ajusté est élevée en conséquence.

La Figure 5-23 montre les évolutions de K_{La} globaux modélisés avec les modèles de Higbie et de Frössling présentées dans la partie 5.3.5 (calculées à partir de la rétention gazeuse modélisée par la loi de Tomiyama entièrement contaminée), ainsi que celles calculées à partir de la rétention gazeuse globale expérimentale, en comparaison avec les points de K_{La} expérimentaux, pour la gomme xanthane avec le diffuseur membrane.

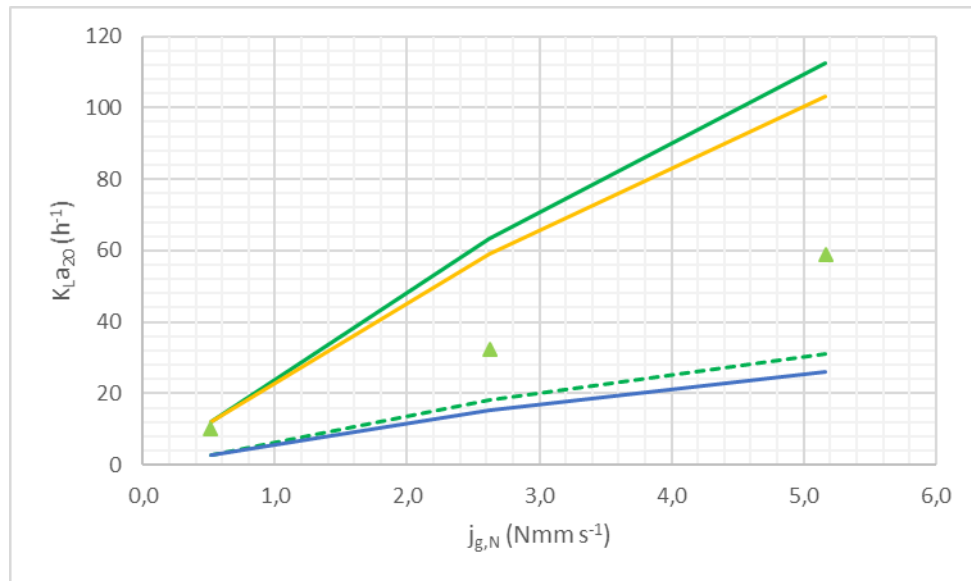


Figure 5-23 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de gomme xanthane et avec le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein vert (respectivement jaune) : modèle de Higbie à partir de la rétention gazeuse modélisée (respectivement expérimentale); trait pointillé vert (respectivement trait plein bleu) : modèle de Frössling à partir de la rétention gazeuse modélisée (respectivement expérimentale))

Du fait de la rétention gazeuse expérimentale plus faible, l'aire interfaciale modélisée est plus faible et il en est de même pour le $K_L a$ global modélisé. Ainsi, le niveau de contamination est mieux pris en compte en introduisant dans le modèle la rétention gazeuse globale mesurée expérimentalement au lieu de calculer la rétention gazeuse avec la loi de traînée de Tomiyama entièrement contaminée.

5.5 Etude du coefficient de transfert de matière côté liquide k_L

La Figure 5-24 présente, pour l'ensemble des conditions, les coefficients de transfert côté liquide correspondant aux conditions expérimentales et ajustés par le modèle (intervenant dans le calcul du nombre de Sherwood expérimental) en fonction du diamètre de Sauter mesuré à la hauteur 270 cm. Les valeurs des coefficients de transfert côté liquide avec les modèles de Higbie et de Frössling pour les mêmes conditions sont également représentées, ainsi que les points correspondant aux jeux de données D1 et D3 décrits dans le Chapitre 3.

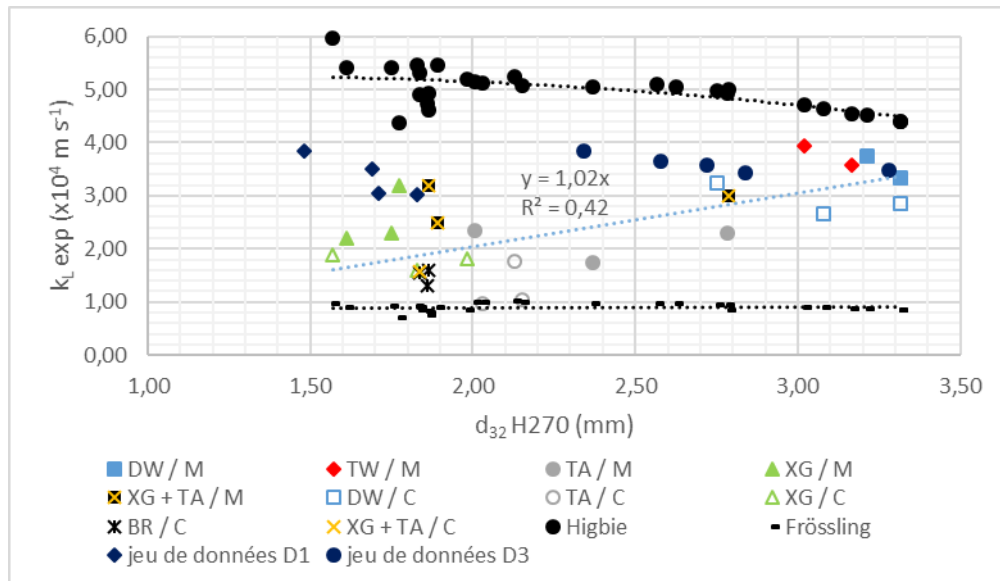


Figure 5-24 : Evolution du coefficient de transfert côté liquide en fonction du diamètre de Sauter pour les différents fluides et conditions opératoires, et comparaison avec les modèles de Higbie et de Frössling

Il semble que jusqu'à un diamètre de bulles de 2,5 mm, le coefficient de transfert de matière soit proche d'une forte contamination mais néanmoins environ 2 fois plus élevé que pour le modèle de Frössling alors que pour les bulles au-delà de 3 mm, les bulles sont quasi propres et modélisables par la loi de Higbie. En considérant l'ensemble des points expérimentaux et malgré une dispersion relativement importante, le coefficient de transfert de matière côté liquide augmente de façon linéaire avec le diamètre de bulle. La corrélation obtenue permet d'affirmer que le coefficient de transfert de matière côté liquide (en 10^{-4} m s^{-1}) est approximativement égal au diamètre de Sauter mesuré à la hauteur 270 cm (en mm), avec deux groupes de points correspondant aux niveaux de contamination forte et faible. Les diamètres de bulle les plus faibles correspondent aux conditions expérimentales les plus contaminées (impact de la viscosité et du tensioactif), avec par conséquent un coefficient de transfert côté liquide proche du modèle de Frössling. A l'inverse, les points en eau claire correspondent aux conditions les moins contaminées et donc aux diamètres de bulle et coefficient k_L les plus élevés (se rapprochant du modèle de Higbie).

La Figure 5-25 présente, pour l'ensemble des points expérimentaux, les angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en fonction du diamètre de Sauter mesuré à la hauteur 270 cm. Les points correspondant aux jeux de données D1 et D3 décrits dans le chapitre 3 sont également représentés.

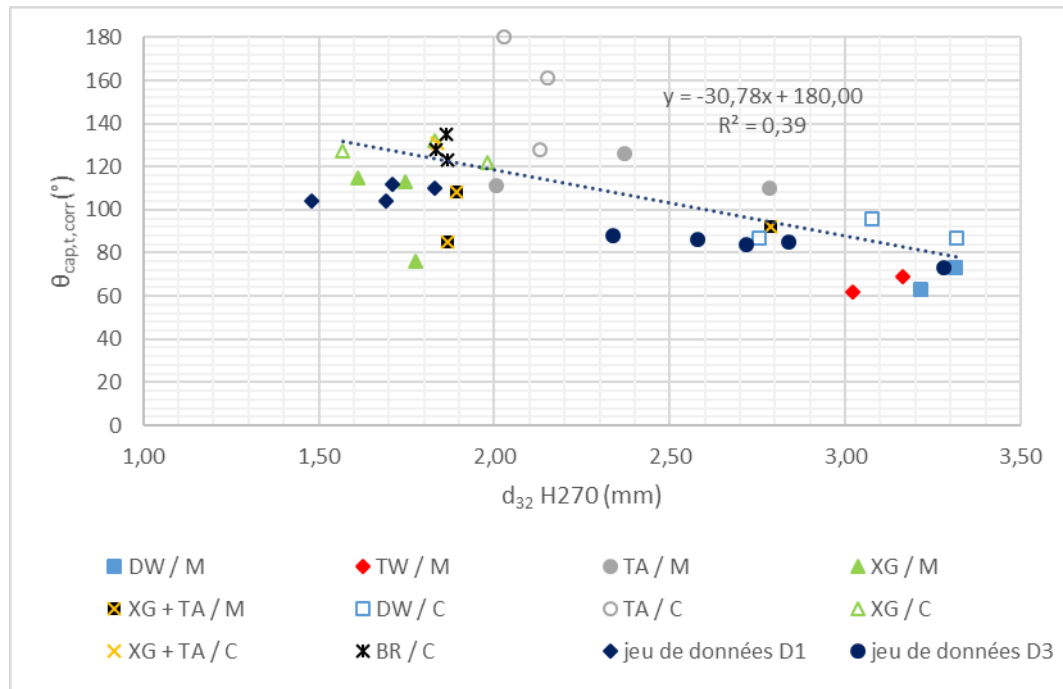


Figure 5-25 : Evolution de l'angle de contamination du point de vue du transfert modifié en fonction du diamètre de Sauter pour les différents fluides et conditions opératoires

De manière similaire que pour les évolutions de coefficient de transfert côté liquide, les valeurs d'angles de contamination suivent une loi linéaire par rapport au diamètre de bulle, malgré une dispersion relativement importante des points. Les conditions pour lesquelles les diamètres de bulle sont les plus faibles correspondent aux valeurs d'angles de contamination les plus élevées. A l'inverse, pour l'eau claire, les diamètres de bulle sont les plus élevés et le niveau de contamination le plus faible. En gomme xanthane, les diamètres de bulles sont les plus faibles mais le niveau de contamination demeure inférieur à celui de la corrélation regroupant l'ensemble des points expérimentaux. En revanche, les points en tensioactif rendent compte d'un niveau de contamination supérieur à celui attendu, les diamètres de bulles et angles de contamination étant plus élevés qu'en fluide visqueux. Pour le Breox et pour l'eau claire, les valeurs d'angles de contamination correspondent à la corrélation. Cela montre que le niveau de contamination en tensioactif est significativement plus important qu'en fluide visqueux non newtonien.

A la différence du coefficient de transfert côté liquide K_L calculé dans le Chapitre 4, l'appauvrissement des bulles n'est pas pris en compte et c'est le k_L « réel » qui est calculé. La Figure 5-26 représente pour l'ensemble des conditions les évolutions de coefficient de transfert côté liquide réel k_L en fonction du coefficient de transfert côté liquide apparent K_L .

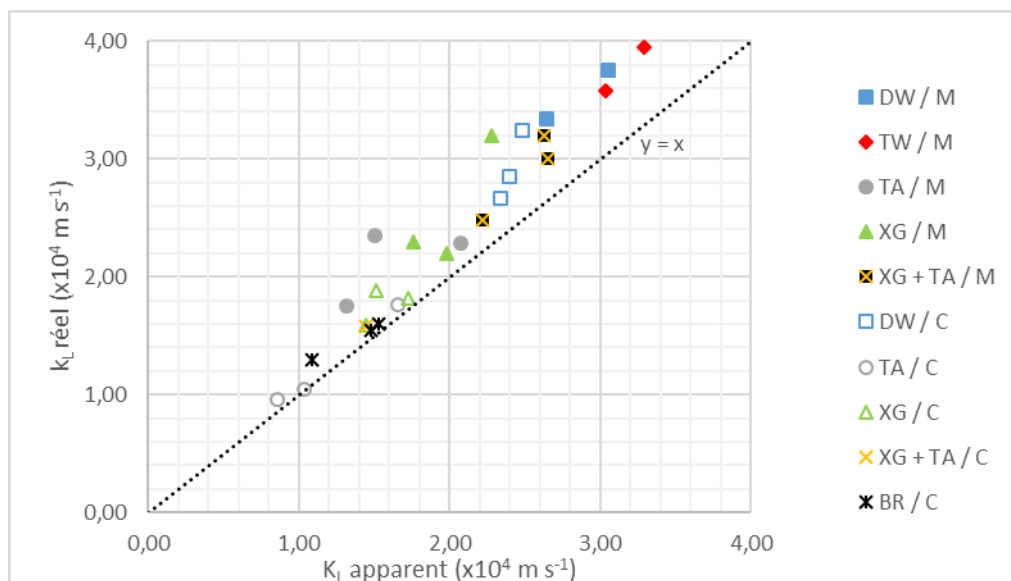


Figure 5-26 : Evolution du coefficient de transfert de matière côté liquide réel k_L en fonction du coefficient de transfert côté liquide apparent K_L pour l'ensemble des conditions

Pour l'ensemble des conditions, les valeurs apparentes sont inférieures aux valeurs réelles. En effet, le coefficient K_L apparent est calculé à partir du coefficient de transfert global K_{La} apparent, qui est inférieur à la valeur réelle du fait de l'appauvrissement des bulles. A l'inverse, le coefficient k_L « réel » est ajusté par le modèle afin d'obtenir la valeur expérimentale de K_{La} global à partir de la courbe de réoxygénation modélisée. Ainsi, le modèle 1D permet un calcul plus pertinent du coefficient k_L réel en comparaison à l'estimation globale faite dans le Chapitre 4. Il apparaît également que plus la valeur de coefficient de transfert côté liquide est élevée (cas de l'eau claire), plus la différence entre les valeurs réelles et apparentes est marquée, et donc plus l'effet de l'appauvrissement des bulles est important. A l'inverse, pour les faibles valeurs (cas du tensioactif avec le diffuseur capillaire et du Breox), la différence peut être considérée comme négligeable et l'appauvrissement est peu significatif.

5.6 Conclusions

Les résultats expérimentaux ont été confrontés au modèle 1D présenté dans le Chapitre 3. Appliqué initialement à des bases de données en eau claire, celui-ci a été confronté à l'ensemble des résultats obtenus avec les fluides modèles de ce travail : eau claire, contamination par un tensioactif, fluide visqueux (gomme xanthane et Breox) et mélange de fluide visqueux et de tensioactif.

Du point de vue hydrodynamique, la rétention gazeuse globale a été calculée en utilisant la loi de traînée de Tomiyama (légèrement contaminée pour l'eau claire et totalement contaminée dans le cas des autres fluides) et confrontée aux valeurs de rétentions gazeuses globales mesurées expérimentalement pour les différentes conditions, avec en entrée du modèle la vitesse superficielle de gaz, le diamètre de bulle de Sauter mesuré à la hauteur 270 cm, la hauteur de liquide et les propriétés physico-chimiques du fluide. En eau claire et en présence de tensioactif, la rétention gazeuse simulée est proche de la valeur expérimentale (écart inférieur à 15%), même si cette dernière est légèrement supérieure à la valeur calculée par le modèle. Pour les fluides visqueux (gomme xanthane et Breox), le coefficient de traînée calculé par la loi de Tomiyama est plus élevé (du fait du diamètre de bulle plus faible et de la viscosité plus élevée qu'en eau claire), par conséquent la rétention gazeuse modélisée est significativement plus élevée et s'écarte des valeurs expérimentales. Pour le

Breox, la rétention gazeuse expérimentale reste tout de même proche de celle modélisée avec la loi de Tomiyama entièrement contaminée (bien qu'inférieure). Dans le cas de la gomme xanthane et du mélange de gomme xanthane et tensioactif, la loi de Tomiyama complètement contaminée conduit à largement surestimer les valeurs expérimentales alors que la loi de Tomiyama légèrement contaminée semble décrire correctement les points expérimentaux, mais il apparaît que le cisaillement réel au voisinage des bulles pourrait être supérieur à la valeur globale estimée dans la colonne, entraînant une viscosité apparente introduite dans le modèle trop élevée et par conséquent un coefficient de traînée et une rétention gazeuse modélisés trop élevés. Ainsi, la loi de Tomiyama complètement contaminée pourrait être pertinente pour la modélisation de la rétention gazeuse dans le cas de la gomme xanthane et du mélange de gomme xanthane et tensioactif.

Du point de vue du transfert, les coefficients de transfert globaux K_{La} mesurés expérimentalement sont comparés avec les valeurs calculées par le modèle pour les modèles de transfert de Higbie et de Frössling : pour chacun de ces deux modèles, un coefficient de transfert global modélisé est calculé à partir de la remontée en oxygène dans le liquide modélisée au cours du temps, de manière analogue aux valeurs de K_{La} déterminées expérimentalement. Pour l'eau claire, les valeurs expérimentales se rapprochent du modèle de Higbie, traduisant un niveau de contamination faible. Pour les autres fluides, les valeurs expérimentales se situent entre les deux modèles théoriques de Higbie et de Frössling, avec des niveaux de contamination plus ou moins marqués ; en présence de tensioactif et dans le cas du Breox notamment, la contamination est forte et les valeurs se rapprochent de celles calculées par le modèle de Frössling.

Le niveau de contamination est caractérisé plus finement par le calcul des angles de contamination, du point de vue hydrodynamique et du point de vue du transfert.

Du point de vue hydrodynamique, l'angle de contamination est calculé à partir du coefficient de traînée expérimental (dépendant de la vitesse superficielle de gaz et de la rétention gazeuse globale expérimentale) et des coefficients de traînée calculés avec les modèles de traînée d'une bulle contaminée (Tomiyama) et entièrement propre (Dijkhuizen). En eau claire et en présence de tensioactif, les coefficients de traînée expérimentaux sont supérieurs aux valeurs calculées avec la loi de Tomiyama, et la contamination est considérée comme totale avec une valeur d'angle de contamination de 180° . Pour les fluides visqueux en revanche, la valeur de l'angle de contamination est globalement comprise entre 50 et 100° .

Du point de vue du transfert, l'angle de contamination est calculé à partir des nombres de Sherwood expérimentaux, de Higbie et de Frössling, eux-mêmes déterminés à partir des valeurs de coefficient de transfert côté liquide k_L correspondantes. Dans le cas de la valeur expérimentale, elle est ajustée de sorte à ce que le coefficient K_{La} déterminé par le modèle corresponde à la valeur de K_{La} expérimental. Les valeurs d'angle de contamination sont comprises entre 60 et 100° en eau claire, 110° et 180° en tensioactif, 120 et 140° en Breox, 75° et 135° en gomme xanthane et 85° et 130° en mélange de gomme xanthane et tensioactif. La rétention gazeuse considérée en entrée pour le calcul du transfert est soit la rétention gazeuse expérimentale dans le cas des fluides visqueux (gomme xanthane et Breox), soit celle calculée avec la loi de Tomiyama lorsque cette dernière est inférieure à la valeur expérimentale (cas de l'eau claire et du tensioactif).

Le tensioactif modifie donc significativement le transfert en eau claire mais pas ou peu le transfert en fluide visqueux newtonien qui génère également des plus petites bulles. Sans tensioactif, la contamination observée est assez forte avec le Breox et plus faible avec de la gomme xanthane mais cet effet est probablement lié à des bulles de plus petite taille qu'à un effet de sensibilité interfaciale. Les effets de contamination en tensioactif sont plus importants que ceux en fluide visqueux. Pour

l'ensemble des fluides et conditions opératoires, le coefficient de transfert côté liquide expérimental augmente globalement de manière linéaire avec l'augmentation du diamètre de bulle. De manière analogue, l'angle de contamination du point de vue du transfert de matière diminue quasi linéairement avec l'augmentation du diamètre de bulle. Les plus faibles diamètres de bulle correspondent ainsi aux conditions les plus contaminées.

L'effet du diffuseur joue également et les capillaires ont un effet de contamination plus marqué que la membrane, ce qui est une conclusion intéressante du point de vue de l'application industrielle

Conclusions et perspectives

L'aération peut représenter jusqu'à 70% de la consommation énergétique des StaRRE, et son optimisation passe par une meilleure compréhension des mécanismes régissant les phénomènes de transfert gaz liquide mis en œuvre et leur modélisation. Mieux représenter l'impact couplé de la rhéologie des milieux et des composés tensioactifs qu'ils contiennent constitue un des leviers d'optimisation des systèmes d'aération utilisés dans les procédés à boues activées - très utilisés pour le traitement des eaux résiduaires urbaines.

L'objectif de ces travaux de thèse était donc d'apporter des éléments de compréhension de l'impact des propriétés rhéologiques des milieux et des composés tensioactifs sur les paramètres qui régissent le transfert d'oxygène par analogie avec les boues activées : taille des bulles d'air, coefficients de transfert. Les mesures *in situ*, notamment de tailles de bulles, étant peu envisageables, il s'agissait de reproduire en colonne à bulles à l'aide de fluides modèles des conditions proches de celles des réacteurs biologiques, de mesurer de manière précise les paramètres explicatifs du transfert d'oxygène, et de modéliser les phénomènes observés pour mieux les comprendre.

Parallèlement aux mesures de paramètres hydrodynamiques (rétention gazeuse, taille des bulles) et de transfert de matière (coefficient de transfert de matière global), un travail de modélisation a été effectué, dans un but de validation et d'explication des données expérimentales. Le modèle 1D retenu, couplant hydrodynamique et transfert de matière a été confronté dans un premier temps à différents jeux de données expérimentaux de la littérature, obtenus en eau claire. Par la suite, le modèle a été confronté aux données expérimentales acquises dans le cadre de ces travaux de thèse.

Modélisation en eau claire

Un modèle à une dimension (1D), couplant hydrodynamique et transfert de matière, a été développé. A partir des données d'entrée (vitesse superficielle de gaz, diamètre de bulle, hauteur d'eau) et de la loi de traînée dont le choix dépend du niveau de contamination du système considéré, le modèle calcule les paramètres hydrodynamiques (vitesse superficielle de gaz, vitesse de glissement, vitesse de bulle, rétention gazeuse, diamètre de bulle) le long de la hauteur de la colonne à bulles. Les paramètres hydrodynamiques calculés en régime permanent servent de données d'entrée au calcul du transfert de matière (du fait de la faible solubilité de l'oxygène dans l'eau, l'hypothèse est faite que le transfert de matière a un impact négligeable sur l'hydrodynamique du système). A partir de modèles de transfert théorique (modèle de Higbie pour une bulle parfaitement propre et modèle de Frössling pour une bulle entièrement contaminée) et des paramètres hydrodynamiques, un coefficient de transfert d'oxygène local - k_{La} - est calculé. La simulation de courbes de réoxygénation permet également de déterminer un coefficient de transfert d'oxygène apparent (K_{La}), de manière similaire à ce qui est fait expérimentalement.

Ce modèle a été confronté à trois jeux de données de la littérature présentant une large gamme de diamètres de bulle (1,5 à 4,0 mm), de vitesses superficielles de gaz (0,3 à 15,5 Nmm s⁻¹) et de hauteurs d'eau (0,76 à 4,40 m). Les valeurs de rétention gazeuse globale expérimentales sont comparées à la moyenne sur la hauteur de la colonne des valeurs locales calculées par le modèle, et les valeurs de K_{La} global expérimentales sont comparées à celles calculées par le modèle pour les différents modèles de

transfert (parfaitement propre et entièrement contaminé). Concernant l'hydrodynamique, deux lois de traînée sont examinées : la loi de Tomiyama légèrement contaminée pour une bulle contaminée (eau du réseau) et la loi de Dijkhuizen pour une bulle propre (eau déminéralisée). En outre, l'impact de la pression hydrostatique sur la rétention gazeuse (via l'impact sur le diamètre de bulle et la vitesse superficielle de gaz) est étudié.

Les principaux résultats mis en évidence sont les suivants :

- Le modèle est capable de reproduire les rétentions gazeuses globales expérimentales pour les trois jeux de données étudiés. Le choix de la loi de traînée doit être adapté à la qualité d'eau selon le jeu de données considéré : loi de Tomiyama partiellement contaminée pour de l'eau du réseau et loi de Dijkhuizen pour de l'eau filtrée. De même, l'effet de la pression hydrostatique sur l'hydrodynamique n'est pas négligeable pour les systèmes à forte hauteur d'eau (diminution de rétention gazeuse d'environ 5% par mètre de hauteur d'eau) et doit être pris en compte pour décrire correctement les points expérimentaux ;
- Le transfert de matière entraîne un appauvrissement significatif en oxygène dans le gaz, par conséquent la concentration à l'équilibre et le potentiel d'échange varient, et le coefficient de transfert global $K_L a$ est inférieur au coefficient de transfert local moyen $\langle k_L a \rangle$. La différence est conséquente pour un gaz fortement soluble avec une vitesse de transfert élevée et/ou une colonne à bulles de grande taille et/ou une faible valeur moyenne de diamètre de bulle. Un facteur d'appauvrissement est introduit, dans le but d'identifier les cas pour lesquels la détermination expérimentale du coefficient de transfert global doit être effectuée rigoureusement en considérant cet effet d'appauvrissement par une estimation à partir des courbes de réoxygénation. L'impact de l'appauvrissement en oxygène dans la phase gaz augmente significativement avec le rapport de longueurs H/d_b .
- La pertinence du modèle de transfert de Higbie pour la modélisation du transfert d'oxygène en eau claire est mise en évidence, en particulier pour des bulles ellipsoïdales de plus de 3 mm. Pour des bulles plus petites ou millimétriques, le transfert de matière est plus sensible à la contamination de l'eau.
- L'impact de la qualité d'eau sur le transfert d'oxygène peut être estimé par la détermination de l'angle de contamination du point de vue du transfert de matière. Là encore, cette contamination qui induit une réduction du transfert est d'autant plus forte que la bulle est petite. Cela peut permettre d'amener des éléments de compréhension sur l'impact de la qualité d'eau et des principaux paramètres opératoires sur le transfert de matière dans les bassins industriels, dans lesquels la phase liquide est une matrice complexe.

Constitution d'une base de données originales en colonne à bulles avec des fluides modèles

Des mesures de paramètres hydrodynamiques (rétention gazeuse locale et globale, distributions de tailles de bulles) et de transfert de matière (coefficient de transfert de matière global) ont été réalisées dans une colonne à bulles parallélépipédique de 3 mètres de hauteur (hauteur de liquide de 2,90 m). Deux diffuseurs de bulles ont été utilisés : un diffuseur de bulles homogènes (réseau de capillaires) et un diffuseur de bulles hétérogènes (membrane élastomère utilisée habituellement dans les réacteurs à l'échelle industrielle), avec trois vitesses superficielles de gaz dans une gamme de 0,5 à 5,2 Nmm s⁻¹,

représentatives de la gamme de valeurs de vitesse retrouvées à l'échelle industrielle. Différents fluides modèles ont été utilisés : de l'eau claire (eau déminéralisée et eau du réseau), un fluide visqueux newtonien (solution de Breox à 2% massique), un fluide rhéo-fluidifiant (solution de gomme xanthane à 0,02% massique). Un composé tensioactif non-ionique a été ajouté à une faible concentration (polyoxyéthylène (23) lauryl éther à 1 mg L^{-1}) dans certaines expériences pour mimer l'impact de la qualité de l'eau interstitielle sur le transfert d'oxygène.

Des mesures de tension superficielle (statique et dynamique) et de rhéologie ont permis de caractériser les différents fluides du point de vue physico-chimique. L'eau claire à 20°C correspond aux conditions de référence, avec une viscosité de $1,0 \text{ mPa s}$ et une tension superficielle de $72,7 \text{ mN m}^{-1}$. En présence de tensioactif non-ionique, la tension superficielle est légèrement inférieure ($69,7 \text{ mN m}^{-1}$), mais les mesures de tension superficielle dynamique ont montré que pour un temps suffisamment long (supérieur à 1000 secondes), l'adsorption des molécules de tensioactif à la surface de la bulle entraîne une diminution de la tension superficielle à une valeur de $59,3 \text{ mN m}^{-1}$. Les mesures de rhéologie ont confirmé le caractère rhéo-fluidifiant de la gomme xanthane, décrit par la loi d'Ostwald avec des valeurs de paramètres K et n respectivement de $10,14 \text{ mPa s}^n$ et $0,72$ pour une concentration massique de 0,02%, et la tension superficielle demeure sensiblement égale à celle de l'eau claire ($71,9 \text{ mN m}^{-1}$). L'ajout de tensioactif à 1 mg L^{-1} diminue légèrement cette valeur ($67,9 \text{ mN m}^{-1}$) mais n'impacte pas significativement les propriétés rhéologiques du fluide. Enfin, la solution de Breox constitue un fluide visqueux newtonien dont la viscosité a été mesurée à $2,0 \text{ mPa s}$ pour une concentration massique de 2%, et sa tension superficielle est inférieure à celle de l'eau claire ($55,1 \text{ mN m}^{-1}$).

Les mesures ont confirmé l'évolution classique linéaire de la rétention gazeuse globale avec la vitesse superficielle de gaz, avec une rétention gazeuse plus élevée en fluide visqueux et en présence de tensioactif qu'en eau claire pour une même vitesse superficielle de gaz. La vitesse de bulle est ainsi moins élevée pour ces fluides qu'en eau claire, pour deux raisons :

- La traînée est plus élevée du fait de la contamination des bulles,
- Le diamètre de bulle est plus faible du fait des effets de viscosité et/ou de tension superficielle.

Ce dernier point est confirmé par les mesures de distribution de tailles de bulles par caméra rapide, qui montrent que le diamètre de bulle équivalent en volume pour les fluides visqueux et en présence de tensioactif est significativement plus faible qu'en eau claire (entre 1,5 et 2,0 mm comparé à 2,0 à 3,3 mm en eau claire), avec des bulles quasi-sphériques (excentricité moyenne comprise entre 1,0 et 1,1), alors qu'elles sont ellipsoïdales en eau claire (excentricité moyenne comprise entre 1,4 et 1,8).

Pour chaque condition de mesure, les mesures de distributions de tailles de bulles sont effectuées à trois hauteurs dans la colonne (70, 166 et 270 cm), afin de caractériser les évolutions axiales de tailles de bulle.

- En eau claire, le diamètre équivalent en volume augmente significativement avec la hauteur dans la colonne ($17\%/m$), rendant compte d'une possible coalescence de bulles, en sus de l'expansion volumique attendue par la diminution de pression avec la hauteur de colonne.
- Pour les autres fluides en revanche, l'augmentation avec la hauteur est classique en écoulement à bulles homogènes (environ $3\%/m$) et correspond à l'évolution théorique des bulles au cours de leur ascension. On peut ainsi supposer que pour ces fluides, la coalescence est inhibée par la présence de tensioactif et/ou les effets visqueux.

Concernant les distributions de tailles de bulles, elles suivent des lois normales avec le diffuseur membrane et quasi mono-modales avec le diffuseur capillaire (sauf pour l'eau déminéralisée), avec une valeur proche du diamètre de bulle théorique donné par la loi de Tate. Dans le cas de l'eau déminéralisée pour le diffuseur capillaire, la distribution est plutôt bimodale, avec un premier pic contenant la majorité des bulles et dont le mode correspond au diamètre donné par la loi de Tate, et un second pic plus étalé, dont l'étalement augmente avec la hauteur dans la colonne, correspondant ainsi vraisemblablement à de la coalescence de bulles.

L'aire interfaciale des bulles étant calculée à partir des rétentions gazeuses et des diamètres moyens de Sauter, la rétention gazeuse plus élevée et le diamètre de bulle plus faible entraînent une aire interfaciale significativement plus élevée pour les fluides visqueux et en présence de tensioactifs qu'en eau claire. Ainsi, comparativement à l'eau claire, l'augmentation d'aire interfaciale en présence de gomme xanthane est comprise entre 100 et 140% avec le diffuseur membrane (65 à 90% avec le diffuseur capillaire), elle est de 5 à 80% en présence de tensioactif avec le diffuseur membrane (25 à 75% avec le diffuseur capillaire), et de 80 à 140% en présence de Breox avec le diffuseur capillaire.

Le coefficient de transfert de matière global K_La a été mesuré expérimentalement à l'échelle de la colonne selon la méthode de réoxygénation pour les différentes conditions. Il augmente en eau claire selon une loi puissance avec la vitesse superficielle de gaz. Dans le cas des autres fluides, les effets hydrodynamiques (impact sur la taille des bulles, la rétention gazeuse et donc l'aire interfaciale et la vitesse de bulle) et de contamination des bulles entraînent des valeurs de K_La différentes de l'eau claire, quantifiées par le facteur alpha qui est défini comme le rapport entre le coefficient K_La d'un fluide et celui en eau claire dans les mêmes conditions.

- En présence de tensioactif, le coefficient K_La est réduit de 23 à 38% par rapport à l'eau claire pour le diffuseur membrane et de 16 à 38% pour le diffuseur capillaire (facteur alpha compris entre 0,6 et 0,8), du fait de la contamination des bulles par adsorption des molécules de tensioactif à leur surface.
- Dans le cas de la gomme xanthane au contraire, le coefficient K_La est supérieur à celui en eau claire, de 32 à 52% pour le diffuseur membrane (facteur alpha entre 1,3 et 1,5) et de 11 à 23% pour le diffuseur capillaire (facteur alpha entre 1,1 et 1,2), cette différence étant *a priori* essentiellement liée à l'augmentation d'aire interfaciale par rapport à l'eau claire.
- Dans le cas du mélange de gomme xanthane et tensioactif, les effets de contamination par le tensioactif et les effets visqueux favorables à l'augmentation d'aire interfaciale semblent se compenser et les valeurs de K_La sont de même ordre de grandeur qu'en eau claire.
- Dans le cas du Breox, le même type d'évolution que pour la gomme xanthane est observé, avec une augmentation de K_La de 11 à 20% par rapport à l'eau claire et un facteur alpha compris entre 1,1 et 1,2.

Les évolutions de coefficient K_La ne sont pas équivalentes à celles des aires interfaciales, et donc les fluides modèles ont un impact sur le coefficient de transfert côté liquide, en plus de leur impact sur l'aire interfaciale.

Le coefficient de transfert de matière côté liquide apparent K_L est estimé à partir des mesures de K_La global et des aires interfaciales calculées à partir des mesures de diamètre de Sauter et de rétention gazeuse. Cette estimation constitue une première évaluation de l'impact des contaminants sur la

vitesse de transfert, mais elle ne correspond pas à la valeur locale de coefficient de transfert côté liquide étant donné qu'elle provient d'une valeur globale (ou apparente) de coefficient de transfert d'oxygène global et intègre les effets d'appauvrissement en oxygène le long de la hauteur. En eau claire, les valeurs de K_L sont comprises entre $2,3$ et $3,7 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ et sont supérieures à celles des autres fluides : $0,9$ à $2,0 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ en présence de tensioactif, $1,4$ à $2,3 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ en présence de gomme xanthane et $1,1$ à $1,5 \times 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ en présence de Breox. Cette diminution de K_L par rapport à l'eau claire correspond à la contamination de l'interface gaz-liquide par adsorption de molécules de tensioactif à la surface de bulles, et dans le cas des fluides visqueux elle pourrait correspondre à une perturbation du transfert d'oxygène par un impact sur l'hydrodynamique au voisinage des bulles et potentiellement un effet de contamination de l'interface gaz-liquide.

Confrontation entre résultats expérimentaux et modélisation

Le modèle 1D développé dans le cadre de ce travail a été confronté à la base de données expérimentales en fluides modèles (eau claire, fluides visqueux et tensioactifs).

La rétention gazeuse globale expérimentale a été comparée à celle calculée par le modèle pour une loi de traînée correspondant à une bulle contaminée (Tomiya) ou entièrement propre (Dijkhuizen).

- En eau claire (respectivement en présence de tensioactif), la loi de traînée de Tomiya pour une bulle partiellement (respectivement complètement) contaminée reproduit avec précision les points expérimentaux, en revanche pour les fluides visqueux (solutions de gomme xanthane et de Breox), les valeurs expérimentales sont situées entre les valeurs des deux modèles de traînée.
- Dans le cas du Breox, les points expérimentaux, bien que légèrement inférieurs au modèle, sont proches du modèle de traînée de Tomiya pour une bulle entièrement contaminée.
- Dans le cas de la gomme xanthane et du mélange de gomme xanthane et tensioactif, la loi de Tomiya pour une bulle entièrement contaminée conduit à des rétentions modélisées significativement plus importantes que les valeurs expérimentales, et la loi de Tomiya pour une bulle partiellement contaminée permet de reproduire les valeurs expérimentales. Toutefois, la gomme xanthane étant un fluide non newtonien, sa viscosité apparente dépend du taux de cisaillement appliqué. Ce dernier, difficilement mesurable à l'échelle de la bulle, est estimé à l'échelle globale de la colonne à l'aide d'une relation empirique (**Sánchez Pérez et al., 2006**) à partir des propriétés rhéologiques du fluide et de la vitesse superficielle de gaz. Ainsi, il est possible que le cisaillement au voisinage des bulles soit en réalité plus élevé que l'estimation moyenne pour la colonne, et par conséquent que la viscosité apparente, le coefficient de traînée et la rétention gazeuse modélisée soient plus faibles. Compte tenu de ces considérations, la loi de traînée de Tomiya pour une bulle entièrement contaminée pourrait être plus pertinente dans la description des points expérimentaux en fluide non-newtonien que la loi pour une bulle partiellement contaminée.

A partir de la modélisation de l'hydrodynamique, des mesures de transfert d'oxygène par réoxygénation sont simulées. Les coefficients de transfert d'oxygène globaux K_{La} sont obtenus à partir des évolutions de concentration en oxygène dissous simulées en utilisant les modèles de transfert de Higbie (bulle parfaitement propre) et de Frössling (bulle entièrement contaminée) et sont comparés aux valeurs expérimentales de K_{La} .

Pour les rétentions gazeuses :

- Dans les cas où la rétention gazeuse expérimentale est supérieure à celle du modèle (en eau claire et en présence de tensioactif), c'est la valeur du modèle qui est introduite en entrée pour le calcul du transfert, l'incertitude de la mesure du taux de gaz étant considérée supérieure à celle du modèle.
- Lorsque la valeur modélisée est supérieure à la valeur expérimentale c'est la valeur expérimentale qui est considérée (gomme xanthane et Breox) pour prendre en compte la contamination partielle réelle qui est liée au fluide.

Pour l'ensemble des conditions, les valeurs expérimentales de $K_L a$ se situent entre les valeurs pour les modèles théoriques de Higbie et Frössling, avec différents niveaux de contamination. En eau claire, les valeurs expérimentales se rapprochent des valeurs pour le modèle de Higbie, rendant compte d'un niveau de contamination relativement faible. En présence de tensioactif et de Breox au contraire, le niveau de contamination est fort et les valeurs expérimentales sont plus proches de celles du modèle de Frössling. En présence de gomme xanthane, le niveau de contamination est intermédiaire.

Ces niveaux de contamination sont quantifiés par le calcul des angles de contamination du point de vue du transfert de matière. Ceux-ci dépendent des nombres de Sherwood dans les cas parfaitement propre (Higbie) et entièrement contaminé (Frössling) ainsi que du nombre de Sherwood expérimental, et par conséquent des coefficients de transfert côté liquide k_L . Les valeurs d'angles de contamination sont comprises entre 60 et 100° pour l'eau claire, 110 et 180° pour le tensioactif, 120 et 140° pour le Breox, 75 et 135° pour la gomme xanthane, et 85 et 130° pour le mélange de gomme xanthane et tensioactif. Le coefficient k_L expérimental est estimé par le modèle, en ajustant sa valeur de sorte à obtenir par le modèle la même valeur de coefficient $K_L a$ que pour l'expérience. Ainsi, les valeurs de k_L sont supérieures aux valeurs de K_L apparentes précédemment obtenues, et la différence est d'autant plus grande que l'appauvrissement est important (cas de l'eau claire notamment). A l'inverse, pour les plus faibles valeurs de k_L et les niveaux de contamination plus importants (cas du tensioactif), la différence entre la valeur de k_L et K_L est moins importante car l'appauvrissement est moins significatif avec un transfert plus faible.

Pour l'ensemble des fluides et conditions opératoires, une diminution de l'angle de contamination avec le diamètre de Sauter est mise en évidence (les diamètres les plus faibles correspondant aux conditions les plus contaminées), ainsi qu'une augmentation du coefficient k_L .

Perspectives

Les perspectives suivantes ont été identifiées :

- Estimation ou mesure de la viscosité apparente autour de bulles dans des fluides non-newtoniens

Dans le cas des fluides non-newtoniens de ce travail, la viscosité apparente a été estimée à l'échelle de la colonne à partir de la vitesse superficielle de gaz appliquée, mais le diamètre de bulle n'intervient pas dans le calcul et le cisaillement et la viscosité apparente effectifs au voisinage des bulles peuvent être différents. Une estimation plus précise du cisaillement au voisinage des bulles, notamment par

modélisation directe, pourrait permettre une meilleure détermination de la viscosité apparente et de la rétention gazeuse pour ces conditions.

- Prise en compte dans le modèle de l'impact du transfert de matière sur l'hydrodynamique (modification du diamètre des bulles induite par le transfert des espèces)

Le modèle 1D ne considère pas de variation temporelle de l'hydrodynamique, cette dernière servant de donnée d'entrée pour le transfert mais n'est pas impactée en retour par ce dernier. Cette hypothèse est valable étant donné que l'oxygène est un gaz peu soluble dans l'eau et la variation de taille de bulle liée au transfert peut être négligée, mais il pourrait cependant être intéressant de modifier le modèle de manière à créer un couplage fort entre l'hydrodynamique et le transfert de matière, et ainsi rendre le modèle applicable à d'autres gaz que l'oxygène (comme par exemple le dioxyde de carbone qui est beaucoup plus soluble dans l'eau).

- Introduction dans le modèle d'une modélisation par bilans de populations pour tenir compte de la coalescence de bulles observée en eau claire

Il a été montré que de la coalescence de bulles semble avoir lieu en eau claire, donnant notamment lieu à deux populations de bulles dans le cas des expériences avec le diffuseur capillaire. Il pourrait ainsi être pertinent d'introduire un modèle de bilans de population considérant deux (ou plus) populations de bulles différentes, chacune ayant un diamètre et une vitesse superficielle de gaz associée, afin de modéliser plus fidèlement l'hydrodynamique et le transfert d'oxygène observés expérimentalement. La base de données peut ainsi servir de validation à une modélisation 1D axiale par classe de bulles ou par la méthode de moments.

- Réalisation d'expériences avec d'autres fluides modèles afin de mieux représenter les boues activées du point de vue du transfert d'oxygène, en prenant en compte d'autres propriétés que la rhéologie et les tensioactifs, par exemple les aspects particuliers ou colloïdaux

Les fluides modèles de ce travail sont représentatifs de boues activées de faible charge du point de vue des propriétés rhéologiques apparentes et de la concentration en tensioactifs, mais pas du point de vue du transfert, les coefficients de transfert globaux mesurés pour ces fluides étant plus élevés qu'en fluides réels. Ainsi, d'autres fluides modèles pourraient être étudiés afin d'essayer de reproduire les coefficients de transfert observés en boues activées, en intégrant d'autres aspects de contamination (particules solides en suspension et/ou colloïdes), mais également en utilisant des concentrations en tensioactif et en fluide visqueux plus élevées afin de reproduire le comportement de boues de charges et de niveaux de contamination plus importants. Il faut cependant garder à l'esprit que la taille des bulles joue un rôle essentiel dans le transfert et est difficilement mesurable en conditions réelles. Même si les tailles de bulles mesurées pour les fluides modèles de ce travail peuvent ne pas être entièrement représentatives de celles existant en boues activées, les résultats en fluide modèle aident à mieux comprendre les phénomènes ayant lieu en fluide réel, et ces travaux de thèse apportent des éléments pour la modélisation de la complexité qui caractérise ces derniers.

Références

- Alves, S.S., Orvalho, S.P., Vasconcelos, J.M.T., 2005. Effect of bubble contamination on rise velocity and mass transfer. *Chemical Engineering Science* 60, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.07.053>
- Amaral, A., Bellandi, G., Rehman, U., Neves, R., Amerlinck, Y., Nopens, I., 2018. Towards improved accuracy in modeling aeration efficiency through understanding bubble size distribution dynamics. *Water Research* 131, 346–355. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.10.062>
- Amaral, A., Schraa, O., Rieger, L., Gillot, S., Fayolle, Y., Bellandi, G., Amerlinck, Y., Mortier, S.T.F.C., Gori, R., Neves, R., Nopens, I., 2017. Towards advanced aeration modelling: from blower to bubbles to bulk. *Water Science and Technology* 75, 507–517. <https://doi.org/10.2166/wst.2016.365>
- Baeten, J.E., van Loosdrecht, M.C.M., Volcke, E.I.P., 2020. When and why do gradients of the gas phase composition and pressure affect liquid-gas transfer? *Water Research* 178, 115844. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2020.115844>
- Battistella, A., van Schijndel, S.J.G., Baltussen, M.W., Roghair, I., van Sint Annaland, M., 2020. On the terminal velocity of single bubbles rising in non-Newtonian power-law liquids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 278, 104249. <https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2020.104249>
- Besagni, G., Brazzale, P., Fiocca, A., Inzoli, F., 2016. Estimation of bubble size distributions and shapes in two-phase bubble column using image analysis and optical probes. *Flow Measurement and Instrumentation* 52, 190–207. <https://doi.org/10.1016/j.flowmeasinst.2016.10.008>
- Besagni, G., Inzoli, F., De Guido, G., Pellegrini, L.A., 2017. The dual effect of viscosity on bubble column hydrodynamics. *Chemical Engineering Science* 158, 509–538. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2016.11.003>
- Bouaifi, M., Hebrard, G., Bastoul, D., Roustan, M., 2001. A comparative study of gas hold-up, bubble size, interfacial area and mass transfer coefficients in stirred gas–liquid reactors and bubble columns. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 40, 97–111. [https://doi.org/10.1016/S0255-2701\(00\)00129-X](https://doi.org/10.1016/S0255-2701(00)00129-X)
- Butler, C., Lalanne, B., Sandmann, K., Cid, E., Billet, A.-M., 2018. Mass transfer in Taylor flow: Transfer rate modelling from measurements at the slug and film scale. *International Journal of Multiphase Flow* 105, 185–201. <https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2018.04.005>
- Cao, X., Zhao, Z., Cheng, L., Yin, W., 2016. Evaluation of a Transparent Analog Fluid of Digested Sludge: Xanthan Gum Aqueous Solution. *Procedia Environmental Sciences* 31, 735–742. <https://doi.org/10.1016/j.proenv.2016.02.059>
- Capela, S., 1999. Influence des facteurs de conception et des conditions de fonctionnement des stations d'épuration en boues activées sur le transfert d'oxygène. Université Paris XII -Val de Marne.
- Capela, S., Gillot, S., Héduit, A., 2004. Comparison of Oxygen-Transfer Measurement Methods under Process Conditions. *Water Environment Research* 76, 183–188.
- Capela, S., Héduit, A., Roustan, M., 2002. Influence of the water depth on fine bubble aeration efficiency in the presence of surfactants, in: *Proceedings of IWA 3rd World Water Congress. Presented at the IWA 3rd World Water Congress, Melbourne, Australia.*

- Chhabra, R.P., 2006. Bubbles, Drops, and Particles in Non-Newtonian Fluids, Second Edition. ed, Chemical Industries. CRC Press.
- Cockx, A., Do-Quang, Z., Audic, J.M., Liné, A., Roustan, M., 2001. Global and local mass transfer coefficients in waste water treatment process by computational fluid dynamics. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 40, 187–194. [https://doi.org/10.1016/S0255-2701\(00\)00138-0](https://doi.org/10.1016/S0255-2701(00)00138-0)
- Cockx, A., Liné, A., Roustan, M., Do-Quang, Z., Lazarova, V., 1997. Numerical simulation and physical modeling of the hydrodynamics in an air-lift internal loop reactor. *Chemical Engineering Science* 52, 3787–3793. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(97\)00224-8](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(97)00224-8)
- Colombet, D., Cockx, A., Guiraud, P., Legendre, D., 2013. Experiments and modelling of a draft tube airlift reactor operated at high gas throughputs. *Chemical Engineering Science* 104, 32–43. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2013.08.044>
- Colombet, D., Legendre, D., Cockx, A., Guiraud, P., Risso, F., Daniel, C., Galinat, S., 2011. Experimental study of mass transfer in a dense bubble swarm. *Chemical Engineering Science* 66, 3432–3440. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2011.01.020>
- Colombet, D., Legendre, D., Risso, F., Cockx, A., Guiraud, P., 2015. Dynamics and mass transfer of rising bubbles in a homogenous swarm at large gas volume fraction. *Journal of Fluid Mechanics* 763, 254–285.
- Coussot, P., Tocquer, L., Lanos, C., Ovarlez, G., 2009. Macroscopic vs. local rheology of yield stress fluids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 158, 85–90. <https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2008.08.003>
- Craig, V.S.J., 2004. Bubble coalescence and specific-ion effects. *Current Opinion in Colloid & Interface Science* 9, 178–184. <https://doi.org/10.1016/j.cocis.2004.06.002>
- Curran, S.J., Hayes, R.E., Afacan, A., Williams, M.C., Tanguy, P.A., 2002. Properties of Carbopol Solutions as Models for Yield-Stress Fluids. *J Food Science* 67, 176–180. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2621.2002.tb11379.x>
- Dani, A., 2007. Transfert de masse entre une bulle et un liquide: simulations numériques directes et fluorescence induite par nappe laser. Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.
- Dani, A., Cockx, A., Guiraud, P., 2006. Direct Numerical Simulation of Mass Transfer from Spherical Bubbles: the Effect of Interface Contamination at Low Reynolds Numbers. *International Journal of Chemical Reactor Engineering* 4. <https://doi.org/10.2202/1542-6580.1304>
- Dani, A., Cockx, A., Guiraud, P., Legendre, D., 2021. Effect of bubble interface contamination on gas-liquid mass transfer at intermediate Reynolds number: from DNS to Sherwood numbers. *Chemical Engineering Science*.
- Dani, A., Guiraud, P., Cockx, A., 2007. Local measurement of oxygen transfer around a single bubble by planar laser-induced fluorescence. *Chemical Engineering Science* 62, 7245–7252. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.08.047>
- Deckwer, W.-D., Burckhart, R., Zoll, G., 1974. Mixing and mass transfer in tall bubble columns. *Chemical Engineering Science* 29, 2177–2188.

- Descoins, N., Deleris, S., Lestienne, R., Trouvé, E., Maréchal, F., 2012. Energy efficiency in waste water treatments plants: Optimization of activated sludge process coupled with anaerobic digestion. *Energy* 41, 153–164. <https://doi.org/10.1016/j.energy.2011.03.078>
- Dhaouadi, H., Poncin, S., Hornut, J.M., Midoux, N., 2008. Gas–liquid mass transfer in bubble column reactor: Analytical solution and experimental confirmation. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 47, 548–556. <https://doi.org/10.1016/j.cep.2006.11.009>
- Dijkhuizen, W., Roghair, I., Van Sint Annaland, M., Kuipers, J.A.M., 2010. DNS of gas bubbles behaviour using an improved 3D front tracking model—Drag force on isolated bubbles and comparison with experiments. *Chemical Engineering Science* 65, 1415–1426. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.10.021>
- Domínguez, L., Rodríguez, M., Prats, D., 2010. Effect of different extraction methods on bound EPS from MBR sludges. Part I: Influence of extraction methods over three-dimensional EEM fluorescence spectroscopy fingerprint. *Desalination* 261, 19–26. <https://doi.org/10.1016/j.desal.2010.05.054>
- Dupuis, D., 2008. Mesure de la viscosité - Viscosimètres et rhéomètres. *Techniques de l'ingénieur. Métrologie relative aux fluides - Vitesses et débits*.
- Durán, C., 2015. Comportement rhéologique des boues activées: Mesures, modélisation et impact sur le transfert d'oxygène dans les bioréacteurs aérés. Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.
- Durán, C., Fayolle, Y., Pechaud, Y., Cockx, A., Gillot, S., 2016. Impact of suspended solids on the activated sludge non-newtonian behaviour and on oxygen transfer in a bubble column. *Chemical Engineering Science* 141, 154–165. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.10.016>
- Eshtiaghi, N., Yap, S.D., Markis, F., Baudez, J.-C., Slatter, P., 2012. Clear model fluids to emulate the rheological properties of thickened digested sludge. *Water Research* 46, 3014–3022. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2012.03.003>
- Fayolle, Y., Cockx, A., Legendre, D., Gillot, S., 2011. Analysis of bubble populations obtained in full-scale aeration tanks in clean water. Presented at the Gas liquid and gas liquid solid reactor engineering congress GLS10, Braga, Portugal.
- Fayolle, Y., Gillot, S., Cockx, A., Bensimhon, L., Roustan, M., Heduit, A., 2010. In situ characterization of local hydrodynamic parameters in closed-loop aeration tanks. *Chemical Engineering Journal* 158, 207–212. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2009.12.043>
- Fiat, J., Filali, A., Fayolle, Y., Bernier, J., Rocher, V., Spérandio, M., Gillot, S., 2019. Considering the plug-flow behavior of the gas phase in nitrifying BAF models significantly improves the prediction of N2O emissions. *Water Research* 156, 337–346. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2019.03.047>
- Figuerola-Espinoza, B., Legendre, D., 2010. Mass or heat transfer from spheroidal gas bubbles rising through a stationary liquid. *Chemical Engineering Science* 65, 6296–6309. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2010.09.018>
- Forster, C.F., 2002. The rheological and physico-chemical characteristics of sewage sludges. *Enzyme and Microbial Technology* 30, 340–345. [https://doi.org/10.1016/S0141-0229\(01\)00487-2](https://doi.org/10.1016/S0141-0229(01)00487-2)
- Forster, C.F., 1982. Sludge surfaces and their relation to the rheology of sewage sludge suspensions. *J. Chem. Technol. Biotechnol.* 32, 799–807. <https://doi.org/10.1002/jctb.5030320716>

- Fransolet, E., Crine, M., Marchot, P., Toye, D., 2005. Analysis of gas holdup in bubble columns with non-Newtonian fluid using electrical resistance tomography and dynamic gas disengagement technique. *Chemical Engineering Science* 60, 6118–6123. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.03.046>
- Frössling, N., 1938. Über die Verdunstung fallender Tropfen. *Gerlands Beiträge zur Geophysik* 52, 170–216.
- Gabelle, J.-C., Morchain, J., Anne-Archard, D., Augier, F., Liné, A., 2013. Experimental determination of the shear rate in a stirred tank with a non-newtonian fluid: Carbopol. *AIChE J.* 59, 2251–2266. <https://doi.org/10.1002/aic.13973>
- Gaddis, E.S., Vogelpohl, A., 1986. Bubble formation in quiescent liquids under constant flow conditions. *Chemical Engineering Science* 41, 97–105.
- Garcia-Ochoa, F., Gomez, E., 2009. Bioreactor scale-up and oxygen transfer rate in microbial processes: An overview. *Biotechnology Advances* 27, 153–176. <https://doi.org/10.1016/j.biotechadv.2008.10.006>
- Gemello, L., Plais, C., Augier, F., Cloupet, A., Marchisio, D.L., 2018. Hydrodynamics and bubble size in bubble columns: Effects of contaminants and spargers. *Chemical Engineering Science* 184, 93–102. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2018.03.043>
- Germain, E., Nelles, F., Drews, A., Pearce, P., Kraume, M., Reid, E., Judd, S.J., Stephenson, T., 2007. Biomass effects on oxygen transfer in membrane bioreactors. *Water Research* 41, 1038–1044. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2006.10.020>
- Gillot, S., Capela, Hédut, 2000. Effect of horizontal flow on oxygen transfer in clean water and in clean water with surfactants. *Water Research* 34, 678–683. [https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(99\)00167-0](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(99)00167-0)
- Gillot, S., Capela-Marsal, S., Roustan, M., Hédut, A., 2005. Predicting oxygen transfer of fine bubble diffused aeration systems—model issued from dimensional analysis. *Water Research* 39, 1379–1387. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2005.01.008>
- Gillot, S., Hédut, A., 2008. Prediction of alpha factor values for fine pore aeration systems. *Water Science and Technology* 57, 1265–1269. <https://doi.org/10.2166/wst.2008.222>
- Giovannettone, J.P., Gulliver, J.S., 2008. Gas transfer and liquid dispersion inside a deep airlift reactor. *AIChE J.* 54, 850–861. <https://doi.org/10.1002/aic.11449>
- Giovannettone, J.P., Tsai, E., Gulliver, J.S., 2009. Gas void ratio and bubble diameter inside a deep airlift reactor. *Chemical Engineering Journal* 149, 301–310. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2008.11.024>
- Glover, G.C., Printemps, C., Essemiani, K., Meinhold, J., 2006. Modelling of wastewater treatment plants - How far shall we go with sophisticated modelling tools? *Water Science and Technology* 53, 79–89.
- Hebrard, G., Zeng, J., Loubiere, K., 2009. Effect of surfactants on liquid side mass transfer coefficients: A new insight. *Chemical Engineering Journal* 148, 132–138. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2008.08.027>
- Henkel, J., 2010. Oxygen Transfer Phenomena in Activated Sludge. Technische Universität Darmstadt.

- Henkel, J., Lemac, M., Wagner, M., Cornel, P., 2009. Oxygen transfer in membrane bioreactors treating synthetic greywater. *Water Research* 43, 1711–1719. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2009.01.011>
- Higbie, R., 1935. The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure. *Transactions AIChE* 31, 365–389.
- Ishii, M., Zuber, N., 1979. Drag coefficient and relative velocity in bubbly, droplet or particulate flows. *AIChE J.* 25, 843–855. <https://doi.org/10.1002/aic.690250513>
- Jamialahmadi, M., Zehtaban, M.R., Müller-Steinhagen, H., Sarrafi, A., Smith, J.M., 2001. Study of Bubble Formation Under Constant Flow Conditions. *Chemical Engineering Research and Design* 79, 523–532. <https://doi.org/10.1205/02638760152424299>
- Jamnongwong, M., Loubiere, K., Dietrich, N., Hébrard, G., 2010. Experimental study of oxygen diffusion coefficients in clean water containing salt, glucose or surfactant: Consequences on the liquid-side mass transfer coefficients. *Chemical Engineering Journal* 165, 758–768. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2010.09.040>
- Jiang, L.-M., Garrido-Baserba, M., Nolasco, D., Al-Omari, A., DeClippeleir, H., Murthy, S., Rosso, D., 2017. Modelling oxygen transfer using dynamic alpha factors. *Water Research* 124, 139–148. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.07.032>
- Jimenez, M., Dietrich, N., Grace, J.R., Hébrard, G., 2014. Oxygen mass transfer and hydrodynamic behaviour in wastewater: Determination of local impact of surfactants by visualization techniques. *Water Research* 58, 111–121. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2014.03.065>
- Jimenez, M., Dietrich, N., Hébrard, G., 2013. Mass transfer in the wake of non-spherical air bubbles quantified by quenching of fluorescence. *Chemical Engineering Science* 100, 160–171. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2013.01.036>
- Jin, B., Yin, P., Lant, P., 2006. Hydrodynamics and mass transfer coefficient in three-phase air-lift reactors containing activated sludge. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 45, 608–617. <https://doi.org/10.1016/j.cep.2005.08.007>
- Johansen, S.T., Boysan, F., 1988. Fluid dynamics in bubble stirred ladles: Part II. Mathematical modeling. *MTB* 19, 755–764. <https://doi.org/10.1007/BF02650195>
- Jung, J., Jang, J., Ahn, J., 2016. Characterization of a Polyacrylamide Solution Used for Remediation of Petroleum Contaminated Soils. *Materials* 9, 16. <https://doi.org/10.3390/ma9010016>
- Kajero, O.T., Azzopardi, B.J., Abdulkareem, L., 2012. Experimental investigation of the effect of liquid viscosity on slug flow in small diameter bubble column. *EPJ Web of Conferences* 25, 01037. <https://doi.org/10.1051/epjconf/20122501037>
- Karamanev, D.G., 1994. Rise of gas bubbles in quiescent liquids. *AIChE J.* 40, 1418–1421. <https://doi.org/10.1002/aic.690400814>
- Karamanev, D.G., Nikolov, L.N., 1992. Free rising spheres do not obey newton's law for free settling. *AIChE J.* 38, 1843–1846. <https://doi.org/10.1002/aic.690381116>
- Khongnakorn, W., Mori, M., Vachoud, L., Delalonde, M., Wisniewski, C., 2010. Rheological properties of sMBR sludge under unsteady state conditions. *Desalination* 250, 824–828. <https://doi.org/10.1016/j.desal.2008.11.050>

- Kováts, P., Thévenin, D., Zähringer, K., 2020. Influence of viscosity and surface tension on bubble dynamics and mass transfer in a model bubble column. *International Journal of Multiphase Flow* 123, 103174. <https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2019.103174>
- Krampe, J., Krauth, K., 2003. Oxygen transfer into activated sludge with high MLSS concentrations. *Water Science and Technology* 47, 297–303. <https://doi.org/10.2166/wst.2003.0618>
- Kulkarni, A.A., Joshi, J.B., 2005. Bubble Formation and Bubble Rise Velocity in Gas–Liquid Systems: A Review. *Ind. Eng. Chem. Res.* 44, 5873–5931. <https://doi.org/10.1021/ie049131p>
- Laupsien, D., Le Men, C., Cockx, A., Liné, A., 2019. Image processing for bubble morphology characteristics in diluted bubble swarms. *Physics of Fluids* 31, 053306. <https://doi.org/10.1063/1.5088945>
- Le Moullec, Y., Gentric, C., Potier, O., Leclerc, J.P., 2010. CFD simulation of the hydrodynamics and reactions in an activated sludge channel reactor of wastewater treatment. *Chemical Engineering Science* 65, 492–498. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.03.021>
- Li, S., Ma, Y., Jiang, S., Fu, T., Zhu, C., Li, H.Z., 2012. The Drag Coefficient and the Shape for a Single Bubble Rising in Non-Newtonian Fluids. *Journal of Fluids Engineering* 134, 084501. <https://doi.org/10.1115/1.4007073>
- Longo, S., d’Antoni, B.M., Bongards, M., Chaparro, A., Cronrath, A., Fatone, F., Lema, J.M., Mauricio-Iglesias, M., Soares, A., Hospido, A., 2016. Monitoring and diagnosis of energy consumption in wastewater treatment plants. A state of the art and proposals for improvement. *Applied Energy* 179, 1251–1268. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2016.07.043>
- Loubière, K., Hébrard, G., Guiraud, P., 2003. Dynamics of Bubble Growth and Detachment from Rigid and Flexible Orifices. *Can. J. Chem. Eng.* 81, 499–507. <https://doi.org/10.1002/cjce.5450810323>
- Manjrekar, O.N., 2016. Hydrodynamics and Mass Transfer in Bubble Columns. Washington University in St Louis.
- Margaritis, A., 1999. Bubble rise velocities and drag coefficients in non-Newtonian polysaccharide solutions. *BIOTECHNOLOGY AND BIOENGINEERING* 64, 10.
- Masutani, G.K., Stenstrom, M.K., 1991. Dynamic Surface Tension Effects on Oxygen Transfer. *Journal of Environmental Engineering* 117, 126–142. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)0733-9372\(1991\)117:1\(126\)](https://doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9372(1991)117:1(126))
- Mei, R., Klausner, J.F., Lawrence, C.J., 1994. A note on the history force on a spherical bubble at finite Reynolds number. *Physics of Fluids* 6, 418–420. <https://doi.org/10.1063/1.868039>
- Mena, P.C., Ruzicka, M.C., Rocha, F.A., Teixeira, J.A., Drahoš, J., 2005. Effect of solids on homogeneous–heterogeneous flow regime transition in bubble columns. *Chemical Engineering Science* 60, 6013–6026. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.04.020>
- Mineta, R., Salehi, Z., Yoshikawa, H., Kawase, Y., 2011. Oxygen transfer during aerobic biodegradation of pollutants in a dense activated sludge slurry bubble column: Actual volumetric oxygen transfer coefficient and oxygen uptake rate in p-nitrophenol degradation by acclimated waste activated sludge. *Biochemical Engineering Journal* 53, 266–274. <https://doi.org/10.1016/j.bej.2010.11.006>

- Mudde, R.F., Hartevel, W.K., van den Akker, H.E.A., 2009. Uniform flow in bubble columns. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 48, 148–156.
- Painmanakul, P., Hébrard, G., 2008. Effect of different contaminants on the α -factor: Local experimental method and modeling. *Chemical Engineering Research and Design* 86, 1207–1215. <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2008.06.009>
- Painmanakul, P., Loubière, K., Hébrard, G., Mietton-Peuchot, M., Roustan, M., 2005. Effect of surfactants on liquid-side mass transfer coefficients. *Chemical Engineering Science* 60, 6480–6491. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.04.053>
- Pöpel, H.J., Wagner, M., 1994. Modelling of Oxygen Transfer in deep diffused - aeration tanks and comparison with full-scale plant data. *Water Science and Technology* 30, 71–80.
- Raimundo, P.M., 2015. Analysis and modelization of local hydrodynamics in bubble columns 354.
- Ratkovich, N., Horn, W., Helmus, F.P., Rosenberger, S., Naessens, W., Nopens, I., Bentzen, T.R., 2013. Activated sludge rheology: A critical review on data collection and modelling. *Water Research* 47, 463–482. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2012.11.021>
- Rosenberger, S., Kubin, K., Kraume, M., 2002. Rheology of Activated Sludge in Membrane Bioreactors. *Eng. Life Sci.* 7.
- Rosso, D., Huo, D.L., Stenstrom, M.K., 2006. Effects of interfacial surfactant contamination on bubble gas transfer. *Chemical Engineering Science* 61, 5500–5514. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2006.04.018>
- Rosso, D., Iranpour, R., Stenstrom, M.K., 2005. Fifteen Years of Offgas Transfer Efficiency Measurements on Fine-Pore Aerators: Key Role of Sludge Age and Normalized Air Flux. *Water Environment Research* 77, 266–273. <https://doi.org/10.2175/106143005X41843>
- Rosso, D., Stenstrom, M.K., 2006. Surfactant effects on α -factors in aeration systems. *Water Research* 40, 1397–1404. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2006.01.044>
- Rosso, D., Stenstrom, M.K., 2005. ECONOMIC IMPLICATIONS OF FINE PORE DIFFUSER AGING. *proc water environ fed* 2005, 2465–2477. <https://doi.org/10.2175/193864705783867125>
- Roustan, M., 1996. Quels sont les critères d'extrapolation pour les systèmes d'aération? *Tribune de l'Eau* 1, 53–58.
- Rubio, F.C., Garcia, J.L., Molina, E., Chisti, Y., 2001. Axial inhomogeneities in steady-state dissolved oxygen in airlift bioreactors: predictive models. *Chemical Engineering Journal* 84, 43–55. [https://doi.org/10.1016/S1385-8947\(00\)00261-8](https://doi.org/10.1016/S1385-8947(00)00261-8)
- Rubio, F.C., Garcia, J.L., Molina, E., Chisti, Y., 1999. Steady-state axial profiles of dissolved oxygen in tall bubble column bioreactors. *Chemical Engineering Science* 54, 1711–1723. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(98\)00540-5](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(98)00540-5)
- Sadhal, S.S., Johnson, R.E., 1983. Stokes flow past bubbles and drops partially coated with thin films. Part 1. Stagnant cap of surfactant film – exact solution. *J. Fluid Mech.* 126, 237–250. <https://doi.org/10.1017/S0022112083000130>
- Sánchez Pérez, J.A., Rodríguez Porcel, E.M., Casas López, J.L., Fernández Sevilla, J.M., Chisti, Y., 2006. Shear rate in stirred tank and bubble column bioreactors. *Chemical Engineering Journal* 124, 1–5. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2006.07.002>

- Sardeing, R., Painmanakul, P., Hébrard, G., 2006. Effect of surfactants on liquid-side mass transfer coefficients in gas–liquid systems: A first step to modeling. *Chemical Engineering Science* 61, 6249–6260. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2006.05.051>
- Schiller, L., Naumann, Z., 1938. A drag coefficient correlation. *Z Ver Deutsch Ing.* 77–318.
- Schweitzer, J.-M., Bayle, J., Gauthier, T., 2001. Local gas hold-up measurements in fluidized bed and slurry bubble column. *Chemical Engineering Science* 56, 1103–1110. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(00\)00327-4](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(00)00327-4)
- Seyssiecq, I., Ferrasse, J.-H., Roche, N., 2003. State-of-the-art: rheological characterisation of wastewater treatment sludge. *Biochemical Engineering Journal* 16, 41–56. [https://doi.org/10.1016/S1369-703X\(03\)00021-4](https://doi.org/10.1016/S1369-703X(03)00021-4)
- Shah, Y.T., Kelkar, B.G., Godbole, S.P., Deckwer, W.-D., 1982. Design parameters estimations for bubble column reactors. *AIChE J.* 28, 353–379. <https://doi.org/10.1002/aic.690280302>
- Sheng, G.-P., Yu, H.-Q., Li, X.-Y., 2008. Stability of sludge flocs under shear conditions. *Biochemical Engineering Journal* 38, 302–308. <https://doi.org/10.1016/j.bej.2007.07.026>
- Stenstrom, M.K., Gilbert, R.G., 1981. Effects of alpha, beta and theta factor upon the design, specification and operation of aeration systems. *Water Research* 15, 643–654. [https://doi.org/10.1016/0043-1354\(81\)90156-1](https://doi.org/10.1016/0043-1354(81)90156-1)
- Sun, B., Guo, Y., Wang, Z., Yang, X., Gong, P., Wang, J., Wang, N., 2015. Experimental study on the drag coefficient of single bubbles rising in static non-Newtonian fluids in wellbore. *Journal of Natural Gas Science and Engineering* 26, 867–872. <https://doi.org/10.1016/j.jngse.2015.07.020>
- Takemura, F., Yabe, A., 1999. Rising speed and dissolution rate of a carbon dioxide bubble in slightly contaminated water. *J. Fluid Mech.* 378, 319–334. <https://doi.org/10.1017/S0022112098003358>
- Talvy, S., Cockx, A., Liné, A., 2007a. Modeling hydrodynamics of gas–liquid airlift reactor. *AIChE J.* 53, 335–353. <https://doi.org/10.1002/aic.11078>
- Talvy, S., Cockx, A., Liné, A., 2007b. Modeling hydrodynamics of gas–liquid airlift reactor. *AIChE J.* 53, 335–353. <https://doi.org/10.1002/aic.11078>
- Talvy, S., Cockx, A., Liné, A., 2007c. Modeling of oxygen mass transfer in a gas–liquid airlift reactor. *AIChE J.* 53, 316–326. <https://doi.org/10.1002/aic.11075>
- Talvy, S., Cockx, A., Line, A., 2005. Global modelling of a gas–liquid–solid airlift reactor. *Chemical Engineering Science* 60, 5991–6003. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.04.067>
- Tixier, N., Guibaud, G., Baudu, M., 2003. Determination of some rheological parameters for the characterization of activated sludge. *Bioresource Technology* 90, 215–220. [https://doi.org/10.1016/S0960-8524\(03\)00109-3](https://doi.org/10.1016/S0960-8524(03)00109-3)
- Tomiya, A., Kataoka, I., Zun, I., Sakaguchi, T., 1998. Drag Coefficients of Single Bubbles under Normal and Micro Gravity Conditions. *JSME international journal. Ser. B, Fluids and thermal engineering* 41, 472–479. <https://doi.org/10.1299/jsmeb.41.472>

- Tzounakos, A., Karamanev, D.G., Margaritis, A., Bergougnou, M.A., 2004. Effect of the Surfactant Concentration on the Rise of Gas Bubbles in Power-Law Non-Newtonian Liquids. *Ind. Eng. Chem. Res.* 43, 5790–5795. <https://doi.org/10.1021/ie049649t>
- Van Baten, J.M., Ellenberger, J., Krishna, R., 2008. Using CFD to Describe the Hydrodynamics of Internal Air-lift Reactors. *Can. J. Chem. Eng.* 81, 660–668. <https://doi.org/10.1002/cjce.5450810344>
- Vasconcelos, J.M.T., Rodrigues, J.M.L., Orvalho, S.C.P., Alves, S.S., Mendes, R.L., Reis, A., 2003. Effect of contaminants on mass transfer coefficients in bubble column and airlift contactors. *Chemical Engineering Science* 58, 1431–1440. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(02\)00675-9](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(02)00675-9)
- Vélez-Cordero, J.R., Zenit, R., 2011. Bubble cluster formation in shear-thinning inelastic bubbly columns. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 166, 32–41. <https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2010.10.003>
- Vitankar, V.S., Joshi, J.B., 2002. A Comprehensive One-Dimensional Model for Prediction of Flow Pattern in Bubble Columns. *Chemical Engineering Research and Design* 80, 499–512. <https://doi.org/10.1205/026387602320224076>
- Wagner, M., Pöpel, H.J., 1996. Surface active agents and their influence on oxygen transfer 8.
- Wallis, G.B., 1969. *One dimensional Two-Phase Flow*, Mc Graw Hill. ed.
- Wallis, G.B., 1961. Some hydrodynamic aspects of two-phase flow and boiling. Presented at the Int. Heat Transfer Conference, Boulder, Colorado USA, pp. 319–325.
- Wilén, B.-M., Lumley, D., Mattsson, A., Mino, T., 2008. Relationship between floc composition and flocculation and settling properties studied at a full scale activated sludge plant. *Water Research* 42, 4404–4418. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2008.07.033>
- Xia, M., Wang, Z., Wu, Z., Wang, X., Zhou, Z., Lu, J., 2009. Simulation and assessment of sludge concentration and rheology in the process of waste activated sludge treatment. *Journal of Environmental Sciences* 21, 1639–1645. [https://doi.org/10.1016/S1001-0742\(08\)62467-5](https://doi.org/10.1016/S1001-0742(08)62467-5)
- Xie, H., Yang, J., Hu, Y., Zhang, H., Yang, Y., Zhang, K., Zhu, X., Li, Y., Yang, C., 2014. Simulation of flow field and sludge settling in a full-scale oxidation ditch by using a two-phase flow CFD model. *Chemical Engineering Science* 109, 296–305. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2014.02.002>
- Xu, F., 2019. BUBBLE HYDRODYNAMICS AND MASS TRANSFER IN COMPLEX MEDIA. Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.
- Xu, F., Cockx, A., Hébrard, G., Dietrich, N., 2018. Mass Transfer and Diffusion of a Single Bubble Rising in Polymer Solutions. *Ind. Eng. Chem. Res.* 57, 15181–15194. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.8b03617>
- Xu, Z., Xin, L., Dexiang, G., Wei, Z., Tong, X., Yonghong, M., 1996. Rheological models for xanthan gum. *Journal of Food Engineering* 27, 203–209. [https://doi.org/10.1016/0260-8774\(94\)00092-1](https://doi.org/10.1016/0260-8774(94)00092-1)
- Yang, F., Bick, A., Shandalov, S., Brenner, A., Oron, G., 2009. Yield stress and rheological characteristics of activated sludge in an airlift membrane bioreactor. *Journal of Membrane Science* 334, 83–90. <https://doi.org/10.1016/j.memsci.2009.02.022>

- Yazhgur, P., 2015. Flows in foams : The role of particles, interfaces and slowing down in microgravity. Université Paris-Sud.
- Zahedi, P., Saleh, R., Moreno-Atanasio, R., Yousefi, K., 2014. Influence of fluid properties on bubble formation, detachment, rising and collapse; Investigation using volume of fluid method. Korean J. Chem. Eng. 31, 1349–1361. <https://doi.org/10.1007/s11814-014-0063-x>
- Zahradník, J., Fialová, M., Ružička, M., Drahoš, J., Kasťánek, F., Thomas, N.H., 1997. Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors. Chemical Engineering Science 52, 3811–3826. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(97\)00226-1](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(97)00226-1)
- Zlokarnik, M., 2005. Sorption characteristics for gas-liquid contacting in mixing vessels. Advances in Biochemical Engineering 8, 133–151.
- Zlokarnik, M., 1979. Sorption characteristics of slot injectors and their dependency on the coalescence behaviour of the system. Chemical Engineering Science 34, 1265–1271.
- Zuber, N., Findlay, J.A., 1965. Average volumetric concentration in two-phase flow systems. Journal of Heat Transfer 453–468.

Liste des Figures

<i>Figure 1-1 : Schéma représentatif du procédé de traitement par boues activées conventionnel (Source : Cemagref).....</i>	<i>17</i>
<i>Figure 1-2 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire, pour la loi de Tomiyama dans le cas d'un système entièrement contaminé, avec la dépendance au nombre de Reynolds et au nombre d'Eötvös.....</i>	<i>22</i>
<i>Figure 1-3 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire, pour la loi de Dijkhuizen avec la dépendance au nombre de Reynolds et au nombre d'Eötvös.....</i>	<i>23</i>
<i>Figure 1-4 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire (1 mPa s) et avec une viscosité de 2 mPa s, pour la loi de Tomiyama entièrement contaminée, avec la dépendance au nombre de Reynolds et au nombre d'Eötvös</i>	<i>24</i>
<i>Figure 1-5 : Evolution du coefficient de traînée en fonction du diamètre de bulle en eau claire (1 mPa s) et avec une viscosité de 2 mPa s, pour la loi de Dijkhuizen</i>	<i>24</i>
<i>Figure 1-6 : Illustration des régimes de bulles homogène et hétérogène (gauche), schéma indiquant l'évolution du rétention gazeuse en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents régimes d'écoulement (Mena et al., 2005; Zahradník et al., 1997)</i>	<i>26</i>
<i>Figure 1-7 : Schéma représentant le modèle du double film (Roustan, 2003)</i>	<i>32</i>
<i>Figure 1-8 : Evolution du facteur alpha en fonction de la concentration en MES en boues activées pour différentes études (Henkel, 2010; Henkel et al., 2009)</i>	<i>39</i>
<i>Figure 1-9 : Evolution du facteur alpha en fonction de l'âge de la boue pour différentes études (Henkel, 2010; Henkel et al., 2009)</i>	<i>40</i>
<i>Figure 1-10 : Illustration de l'accumulation des contaminants à l'arrière d'une bulle et de l'angle de contamination (Xu et al., 2018)</i>	<i>43</i>
<i>Figure 1-11 : Schéma montrant le cisaillement entre deux couches de fluide dans le cas d'un écoulement laminaire (Durán, 2015)</i>	<i>45</i>
<i>Figure 2-1 : Schéma de la colonne à bulles et des équipements associés</i>	<i>55</i>
<i>Figure 2-2 : Photo de la colonne et du dispositif expérimental</i>	<i>55</i>
<i>Figure 2-3 : Photo du diffuseur capillaire mis en place dans la colonne</i>	<i>56</i>
<i>Figure 2-4 : Photo du diffuseur membrane utilisé</i>	<i>57</i>
<i>Figure 2-5 : Signal de tension détecté par la sonde optique en fonction du temps au passage d'une bulle (ligne bleue : niveau de gaz ; ligne jaune : niveau de liquide)</i>	<i>59</i>
<i>Figure 2-6 : Profil de rétention gazeuse locale pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane, à une vitesse superficielle de gaz de 5,2 Nmm s⁻¹</i>	<i>60</i>

Figure 2-7 : Exemple de profil de ΔP mesuré en gomme xanthane à 0,02% massique avec le diffuseur membrane, à une vitesse superficielle de gaz de $5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$	61
Figure 2-8 : Photo de bulles en Breox, à la vitesse superficielle d'aération de $5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$ et à la hauteur 270 cm pour le diffuseur capillaire	63
Figure 2-9 : Exemple de photo brute (a) et de photo après traitement (b)	65
Figure 2-10 : Exemple de profil d'excentricité en fonction du diamètre équivalent en volume, en eau du réseau, avec le diffuseur membrane, à la hauteur 166 cm et à la vitesse superficielle de gaz de $0,52 \text{ Nmm s}^{-1}$	66
Figure 2-11 : Histogrammes de distribution de diamètre équivalent en volume et d'excentricité pour l'eau du réseau avec le diffuseur membrane, à une vitesse superficielle d'aération de $2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ et à la hauteur de 166 cm	68
Figure 2-12 : Colonne à bulle en aération avec le diffuseur membrane, mettant en évidence un mouvement d'hétérogénéité de diffusion des bulles	70
Figure 2-13 : Distribution de $d_{eq,v}$ en fonction de la largeur dans la colonne à 70 cm, en eau du réseau à $2,60 \text{ Nmm s}^{-1}$ pour le diffuseur membrane.....	71
Figure 2-14 : Distribution d'excentricité en fonction de la largeur dans la colonne à 70 cm, en eau du réseau à $2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ pour le diffuseur membrane.....	71
Figure 2-15 : Schéma du rhéomètre utilisé (Durán, 2015)	78
Figure 2-16 : Dispositif expérimental de mesure de tension superficielle dynamique par bulle montante (Yazhgur, 2015)	78
Figure 2-17 : Photo de bulle en équilibre lors d'une mesure de tension superficielle dynamique (Yazhgur, 2015)	79
Figure 2-18 : Exemple de mesure de tension superficielle dynamique en fonction du temps en tensioactif non ionique	79
Figure 2-19 : Structure du modèle 1D	80
Figure 3-1 : (i) Mean bubble Sauter diameter and mean bubble eccentricity measured at 1 m in height from the diffuser, (ii) overall gas hold-up (ϵ_g) and mean bubble rise velocity (U_b) at 20°C , (iii) overall oxygen transfer coefficient K_La expressed at 20°C and gas-liquid interfacial area (a) as a function of the superficial gas velocity – dataset D2.....	87
Figure 3-2 : Transfer number (NT) versus bubble Sauter diameter for selected databases (lab-scale (Capela et al., 2002) and full-scale (Fayolle et al., 2011, 2010)) and datasets 1–3.	88
Figure 3-3 : Global gas hold-up for different superficial gas velocities and for each dataset – Base models (O: Experimental data / : — Base model / Error bars: $\pm 5\%$).....	97

Figure 3-4 : Overall gas hold-up for different superficial gas velocities and for each dataset. Impact of the pressure effects (O: Experimental data / — : Base model (with pressure effects) / : Modified model (without pressure effects) / Error bars: $\pm 5\%$)	97
Figure 3-5 : Overall gas hold-up for different superficial gas velocities and for each dataset (O: Experimental data / — : Dijkhuizen's drag correlation / : Tomiyama's drag correlation / Error bars: $\pm 5\%$)	98
Figure 3-6 : Overall K_La transfer coefficients for different superficial gas velocities and for datasets D1–D3 (O: Experimental data / — : Modelled global K_La with Higbie model / — : Modelled global K_La with the Frössling model / Error bars: $\pm 5\%$)	100
Figure 3-7 : Experimental and modeled overall K_La and mean local $\langle k_La \rangle$ for different superficial gas velocities and for datasets D1–D3 (O : Experimental global K_La / — : Simulated global K_La with the Higbie model / : Simulated spatial average $\langle k_La \rangle$ with the Higbie model / Error bars: $\pm 5\%$)	101
Figure 3-8 : x_g as a function of z (distance from the diffuser) – Modelled for $C_l = 0$ mg/L (●) / Depletion law for $C_l = 0$ mg/L (—) / Modelled (○) for $C_l = C_l^* - j_g = 1.2$ and 4.4 mm/s for D1 and D2 respectively	103
Figure 4-1 : Contrainte de cisaillement (a) et viscosité dynamique (b) en fonction du taux de cisaillement des différents fluides étudiés – Température de mesure de 20 ± 1 °C	118
Figure 4-2 : Viscosité dynamique et viscosité dynamique apparente en fonction du taux de cisaillement appliqué pour la solution de gomme xanthane (XG) étudiée et pour des boues activées (AS) à deux concentrations ($2,8$ et $4,0$ g L ⁻¹ ; adapté de Duran, 2015).	119
Figure 4-3 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps – Eau déminéralisée (DW)	120
Figure 4-4 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps - Solution de gomme xanthane (XG)	121
Figure 4-5 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps - Tensioactif non ionique (TA)....	122
Figure 4-6 : Rétention gazeuse moyenne issue des mesures locales par sonde optique en fonction de la rétention gazeuse globale déterminée par mesures de pression	125
Figure 4-7 : Rétention gazeuse locale en fonction de la largeur et de la hauteur dans la colonne pour les différents fluides étudiés et les deux diffuseurs - $j_{g,N} = 2,6$ Nmm s ⁻¹ - W1, W2 et W3 = Distance à la paroi de 5, 15 et 25 cm respectivement - D1, D2 et D3 = Distance au diffuseur de 80, 166 et 235 cm respectivement]	126
Figure 4-8 : Rétention gazeuse locale moyennée sur la largeur en fonction de la distance au diffuseur pour les différents fluides étudiés – Diffuseur membrane - $j_{g,N} = 2,6$ Nmm s ⁻¹	127
Figure 4-9 : Rétention gazeuse locale moyennée sur la largeur en fonction de la distance au diffuseur pour les différents fluides étudiés – Diffuseur capillaire - $j_{g,N} = 2,6$ Nmm s ⁻¹	128
Figure 4-10 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz avec le diffuseur membrane	129

Figure 4-11 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz avec le diffuseur capillaire.....	130
Figure 4-12 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz – Comparaison par fluide pour des deux types de diffuseurs [A noter que pour XG + TA, la rétention de gaz indiquée correspond à la rétention sur la Z1 = partie inférieure de la colonne]	132
Figure 4-13 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Membrane / DW et TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	134
Figure 4-14 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Membrane / XG et XG +TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	135
Figure 4-15 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Capillaire / DW et TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	136
Figure 4-16 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Capillaire / XG et XG +TA / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	137
Figure 4-17 : Distribution des diamètres équivalents en volume et de l'excentricité – Diffuseur Membrane / TW / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ - Diffuseur Capillaire / BR / $j_{g,N} \approx 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	138
Figure 4-18 : Distribution de diamètre équivalent en volume de bulles pour les différents types de fluides Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$	139
Figure 4-19 : Distribution d'excentricité pour les différents types de fluides Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$	139
Figure 4-20 : Diamètre moyen équivalent en volume en fonction de la distance au diffuseur pour les différents types de fluides Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	140
Figure 4-21 : Distribution de diamètre équivalent en volume de bulles pour les différents types de fluides – Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$	141
Figure 4-22 : Distribution d'excentricité pour les différents types de fluides – Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – $H = 1,66 \text{ m}$	141
Figure 4-23 : Diamètre moyen équivalent en volume en fonction de la distance au diffuseur pour les différents types de fluides Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	143
Figure 4-24 : Evolution du diamètre équivalent en volume moyen sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur membrane	144
Figure 4-25 : Evolution de l'excentricité moyenne sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur membrane	145
Figure 4-26 : Evolution du diamètre équivalent en volume moyen sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur capillaire	146
Figure 4-27 : Evolution de l'excentricité moyenne sur la hauteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les différents fluides avec le diffuseur capillaire	146

Figure 4-28 : Aire interfaciale locale en fonction de la distance au diffuseur – Diffuseur Membrane – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	149
Figure 4-29 : Aire interfaciale en fonction de la distance au diffuseur – Diffuseur Capillaire – $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$	149
Figure 4-30 : Aire interfaciale des bulles en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane	150
Figure 4-31 : Aire interfaciale des bulles en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire	151
Figure 4-32 : Aire interfaciale spécifique en fonction de la vitesse superficielle de gaz – Comparaison par fluide pour chacun des deux types de diffuseurs	152
Figure 4-33 : Coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane	153
Figure 4-34 : Coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire	154
Figure 4-35 : Coefficients de transfert d'oxygène globaux en fonction de la vitesse superficielle de gaz – Comparaison par fluide pour les deux types de diffuseurs	155
Figure 4-36 : Coefficient de transfert de matière global côté liquide en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane	156
Figure 4-37 : Coefficient de transfert de matière global côté liquide en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire	157
Figure 4-38 : Coefficient de transfert de matière côté liquide global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane et comparaison avec les modèles de Higbie et de Frössling	158
Figure 4-39 : Coefficient de transfert de matière côté liquide global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire et comparaison avec les modèles de Higbie et de Frössling	159
Figure 4-40 : Evolution du nombre de transfert en fonction du nombre de Reynolds de colonne	160
Figure 4-41 : Evolution du nombre de transfert en fonction du diamètre de Sauter	161
Figure 4-42 : Facteur alpha en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur membrane	162
Figure 4-43 : Facteur alpha en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour le diffuseur capillaire	163
Figure 5-1 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/DW) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement contaminée	169

Figure 5-2: Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/TW) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement contaminée	170
Figure 5-3 : Evolution du diamètre de bulle modélisé (courbe rouge) et corrélation expérimentale (courbe bleue) en fonction de la hauteur dans la colonne pour l'eau du réseau à $5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$ avec le diffuseur membrane	171
Figure 5-4 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle, en eau du réseau avec le diffuseur membrane (pointillés rouges : variation de taille de bulle selon la pression hydrostatique ; pointillés bleus : variation de taille de bulle mesurée expérimentalement)	171
Figure 5-5 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C/DW) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama contaminée.....	172
Figure 5-6 : Evolution de la rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle, en eau déminéralisée avec le diffuseur capillaire, en considérant uniquement le premier pic de la distribution de taille de bulles, avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm dans ces conditions.....	173
Figure 5-7 : : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/TA) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama entièrement contaminée.....	174
Figure 5-8 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C/TA) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama entièrement contaminée.....	175
Figure 5-9 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C/BR) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama entièrement contaminée.....	176
Figure 5-10 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/XG) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement et complètement contaminée.....	177
Figure 5-11 : Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : C/XG) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement et complètement contaminée.....	178
Figure 5-12: Rétention gazeuse globale en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les points expérimentaux et le modèle (condition : M/XG+TA) et d_{32} à la hauteur 270 cm – loi de traînée : Tomiyama partiellement et complètement contaminée	179
Figure 5-13 : rétention gazeuse expérimentale globale en fonction de la rétention gazeuse globale modélisée par la loi de Tomiyama, pour l'ensemble des conditions opératoires	180

Figure 5-14 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions	181
Figure 5-15 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions	181
Figure 5-16 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau du réseau et le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein vert (respectivement bleu) : modèle de Higbie avec variation de taille de bulle selon pression hydrostatique (respectivement mesurée expérimentalement) ; trait pointillé vert (respectivement bleu) : modèle de Frössling avec variation de taille de bulle selon pression hydrostatique (respectivement mesurée expérimentalement))	182
Figure 5-17 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions	183
Figure 5-18 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, pour l'eau déminéralisée et le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein vert (respectivement bleu) : modèle de Higbie avec l'ensemble des bulles de la distribution (respectivement avec le premier pic uniquement) ; trait pointillé vert (respectivement bleu) : modèle de Frössling avec l'ensemble des bulles de la distribution (respectivement avec le premier pic uniquement)	183
Figure 5-19 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de tensioactif non ionique et avec le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling, avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions	184
Figure 5-20 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de tensioactif non ionique et avec le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions	185
Figure 5-21 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de Breox et avec le diffuseur capillaire (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions	186
Figure 5-22 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de gomme xanthane et avec le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein : modèle de Higbie ; trait pointillé : modèle de Frössling), avec les valeurs de d_{32} à la hauteur 270 cm mesurées dans ces conditions	187

Figure 5-23 : Evolution du coefficient de transfert de matière global en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en présence de gomme xanthane et avec le diffuseur membrane (points expérimentaux ; trait plein vert (respectivement jaune) : modèle de Higbie à partir de la rétention gazeuse modélisée (respectivement expérimentale); trait pointillé vert (respectivement trait plein bleu) : modèle de Frössling à partir de la rétention gazeuse modélisée (respectivement expérimentale)) .198

Figure 5-24 : Evolution du coefficient de transfert côté liquide en fonction du diamètre de Sauter pour les différents fluides et conditions opératoires, et comparaison avec les modèles de Higbie et de Frössling199

Figure 5-25 : Evolution de l'angle de contamination du point de vue du transfert modifié en fonction du diamètre de Sauter pour les différents fluides et conditions opératoires200

Figure 5-26 : Evolution du coefficient de transfert de matière côté liquide réel k_L en fonction du coefficient de transfert côté liquide apparent K_L pour l'ensemble des conditions.....201

Liste des Tableaux

<i>Tableau 1-1 : Evolution des indices de consistance et d'écoulement et de la gamme de viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement pour des boues activées de différentes concentrations en MES (Durán, 2015)</i>	<i>48</i>
<i>Tableau 1-2 : Evolution des indices de consistance et d'écoulement de la gomme xanthane en fonction de la concentration massique pour différentes données de la littérature</i>	<i>50</i>
<i>Tableau 2-1 : Instruments de mesure équipant la colonne à bulles</i>	<i>57</i>
<i>Tableau 2-2 : erreurs relatives sur les rétentions gazeuses $\varepsilon_G Z1$, $\varepsilon_G Z2$ et ε_G global pour l'eau du réseau</i>	<i>61</i>
<i>Tableau 2-3 : Caractéristiques techniques du matériel de prise d'image</i>	<i>63</i>
<i>Tableau 2-4 : Valeurs moyennes et écarts-types des distributions présentées sur la Figure 2-11 et nombre de bulles détectées.....</i>	<i>69</i>
<i>Tableau 2-5 : Valeurs moyennes et écarts-type des diamètres équivalents en volume et excentricités et nombre de bulles détectées aux trois positions pour chaque vitesse superficielle de gaz</i>	<i>70</i>
<i>Tableau 2-6 :Caractéristiques des composés utilisés comme fluides modèles.....</i>	<i>74</i>
<i>Tableau 2-7 : Récapitulatif des conditions opératoires par type de fluide et de diffuseur.....</i>	<i>75</i>
<i>Tableau 3-1 : Experimental conditions for the bubble column datasets.....</i>	<i>86</i>
<i>Tableau 3-2 : Physico-chemical properties of the system ($T = 20^\circ\text{C}$ and $P_{ref} = 1 \text{ atm}$)</i>	<i>89</i>
<i>Tableau 3-3 : Selected combinations of closure laws for appropriated modelling of each datasets. ...</i>	<i>96</i>
<i>Tableau 3-4 : Sherwood numbers and contamination angle for the experimental dataset D1 and D3</i>	<i>104</i>
<i>Tableau 4-1 : Rappel des différentes conditions opératoires</i>	<i>117</i>
<i>Tableau 4-2 : Valeurs des indices de consistance et d'écoulement en présence de gomme xanthane (seule ou en mélange avec le tensioactif non ionique) et comparaison avec les valeurs de la littérature</i>	<i>118</i>
<i>Tableau 4-3 : Tensions superficielles statiques des différents fluides étudiés.....</i>	<i>119</i>
<i>Tableau 4-4 : Valeurs moyennes de tension superficielle dynamique et de température Eau déminéralisée (DW) et Gomme xanthane (XG)</i>	<i>121</i>
<i>Tableau 4-5 : Tension superficielle dynamique en fonction du temps – Tensioactif non-ionique (TA)</i>	<i>122</i>
<i>Tableau 4-6 : Rétentions de gaz obtenues pour les différentes conditions opératoires (Les données en rouge correspondent aux 10 valeurs les plus élevées des écarts moyens relatifs).....</i>	<i>124</i>

Tableau 4-7 : Vitesse de bulle déduite des mesures de rétention de gaz pour l'ensemble des conditions opératoires (type de diffuseur, fluide et vitesse de gaz)	131
Tableau 4-8 : Diamètre le plus fréquent – Diffuseur Capillaire - $j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$ – Comparaison avec la loi de Tate [Eq. (4.2)] [Pour C-DW, les valeurs correspondent à la valeur la plus fréquente du premier pic de chacune des distributions].....	142
Tableau 5-1 : Evolution du diamètre de Sauter à la hauteur 270 cm en fonction de la vitesse superficielle de gaz, en eau déminéralisée et pour le diffuseur capillaire, en considérant l'ensemble des bulles et uniquement le premier pic de la distribution	173
Tableau 5-2 : Estimation de la viscosité apparente moyenne dans la colonne à bulles en fonction de la vitesse superficielle de gaz	177
Tableau 5-3 : Angles de contamination du point de vue du transfert en eau claire et paramètres associés	188
Tableau 5-4 : Angles de contamination du point de vue du transfert en présence de tensioactif et paramètres associés	189
Tableau 5-5 : Angles de contamination du point de vue du transfert pour le Breox et paramètres associés	189
Tableau 5-6 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en eau claire et paramètres associés	191
Tableau 5-7 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de tensioactif et paramètres associés.....	191
Tableau 5-8 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de Breox et paramètres associés	192
Tableau 5-9 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de gomme xanthane et paramètres associés	192
Tableau 5-10 : Angles de contamination du point de vue de l'hydrodynamique en présence de gomme xanthane et tensioactif et paramètres associés	193
Tableau 5-11 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en eau claire et paramètres associés	195
Tableau 5-12 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de tensioactif et paramètres associés.....	195
Tableau 5-13 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de Breox et paramètres associés	196
Tableau 5-14 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de gomme xanthane et paramètres associés	197

Tableau 5-15 : Angles de contamination du point de vue du transfert modifiés en présence de gomme xanthane et de tensioactif avec le diffuseur membrane et paramètres associés.....	197
-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	-----

Annexe 1 : Tableau de synthèse des expériences réalisées

Fluide	Diffuseur	$j_{B,N}$ (Nmm s ⁻¹)	H(OXY1) (m)	H(OXY2) (m)	H(OXY3) (m)	ϵ_G Z1	ϵ_G Z2	ϵ_G Global	ϵ_G local	$K_L a$	DTB
DW	M	0,34	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	Mesure découplée
DW	M	2,65	2,80	1,90	1,10	X	X	X	X	X	Mesure découplée
DW	M	5,22	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	Mesure découplée
TW	M	0,55	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	Mesure découplée
TW	M	2,57	2,80	1,90	1,10	X	X	X	X	X	Mesure découplée
TW	M	5,06	2,80	1,90	1,10	X	X	X	X	X	Mesure découplée
TA	M	0,52	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	X
TA	M	2,47	2,80	1,90	1,10	X	X	X	X	X	X
TA	M	3,59	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	X
XG	M	0,52	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	X
XG	M	2,58	2,80	1,90	1,10	X	X	X	X	X	X
XG	M	5,12	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	X
XG + TA	M	0,45	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	X
XG + TA	M	2,60	2,80 / 2,40	1,90 / 1,66	1,10 / 0,70	X	X	X	X	X	Mesures faites à des temps différents
XG + TA	M	5,19	2,80	1,90	1,10	X	X	X		X	X
DW	C	0,98	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
DW	C	2,60	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
DW	C	5,23	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
TA	C	1,04	2,40	1,66	0,70	X	X	X		X	X

TA	C	2,56	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
TA	C	3,65	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
XG	C	1,09	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
XG	C	2,58	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
XG	C	5,12	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
XG + TA	C	0,98	2,40	1,66	0,70				X	X	X
XG + TA	C	2,60	2,40	1,66	0,70	X			X	X	X
XG + TA	C	5,08	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
BREOX	C	1,00	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
BREOX	C	2,57	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X
BREOX	C	5,08	2,40	1,66	0,70	X	X	X	X	X	X

Annexe 2 : Calcul d'incertitude sur la rétention gazeuse globale

La rétention gazeuse globale s'exprime en fonction des différences de pression mesurées avec et sans aération entre les capteurs de pression :

$$\varepsilon_G = 1 - \frac{\Delta P(\text{aération})}{\Delta P(\text{sans aération})} = 1 - \frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = \frac{\Delta P_1 - \Delta P_2}{\Delta P_1}$$

La différentielle de la rétention gazeuse globale s'écrit

$$d\varepsilon_G = \frac{\partial}{\partial P_1} \left(\frac{\Delta P_1 - \Delta P_2}{\Delta P_1} \right) d(\Delta P_1) + \frac{\partial}{\partial P_2} \left(\frac{\Delta P_1 - \Delta P_2}{\Delta P_1} \right) d(\Delta P_2)$$

Soit

$$d\varepsilon_G = \left(\frac{\Delta P_2}{(\Delta P_1)^2} \right) d(\Delta P_1) + \left(-\frac{1}{\Delta P_1} \right) d(\Delta P_2)$$

Ce qui donne une incertitude absolue égale à :

$$\Delta \varepsilon_G = \frac{\Delta P_2}{(\Delta P_1)^2} \Delta(\Delta P_1) + \frac{1}{\Delta P_1} \Delta(\Delta P_2)$$

Et une incertitude relative valant :

$$\frac{\Delta \varepsilon_G}{\varepsilon_G} = \left(\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1 - \Delta P_2} \right) \times \left(\frac{\Delta(\Delta P_1)}{\Delta P_1} + \frac{\Delta(\Delta P_2)}{\Delta P_2} \right)$$

La différence de pression entre deux points A et B s'écrit :

$$\Delta P = P_A - P_B$$

Soit en écriture différentielle :

$$d(\Delta P) = dP_A - dP_B$$

Soit une incertitude absolue

$$\Delta(\Delta P) = \Delta P_A + \Delta P_B$$

$$\Delta(\Delta P) = \frac{\Delta P_A}{P_A} \times P_A + \frac{\Delta P_B}{P_B} \times P_B = \frac{\Delta P}{P} \times (P_A + P_B)$$

Et une incertitude relative

$$\frac{\Delta(\Delta P)}{\Delta P} = \frac{\Delta P}{P} \times \frac{P_A + P_B}{P_A - P_B}$$

En posant

$$\Delta P_1 = P_{A1} - P_{B1}$$

$$\Delta P_2 = P_{A2} - P_{B2}$$

On obtient finalement après simplification

$$\frac{\Delta \varepsilon_G}{\varepsilon_G} = \frac{P_{A2} - P_{B2}}{P_{A1} - P_{B1} - P_{A2} + P_{B2}} \times \left(\frac{P_{A1} + P_{B1}}{P_{A1} - P_{B1}} + \frac{P_{A2} + P_{B2}}{P_{A2} - P_{B2}} \right) \times \frac{\Delta P}{P}$$

Avec P_{A1} (respectivement B, 2) la pression hydrostatique mesurée au point A (respectivement B) sans aération (respectivement avec aération), et $\Delta P/P$ l'incertitude relative de mesure de pression liée au capteur.

Annexe 3 : Calcul de la rétention gazeuse projetée

On considère un volume V de colonne dans lequel se trouvent n bulles de diamètre d_B . Dans ces conditions, la rétention gazeuse s'écrit :

$$\varepsilon_G = \frac{n \times \frac{\pi d_B^3}{6}}{V}$$

Et le nombre de bulles s'exprime donc comme

$$n = \frac{\varepsilon_G \times V}{\frac{\pi d_B^3}{6}}$$

Pour le calcul de la rétention gazeuse projetée, les bulles sont considérées comme des cylindres de diamètre d_B , et de hauteur p égale à la profondeur de la colonne, avec $V = S \times p$. S est la surface projetée verticale dans laquelle les bulles sont vues comme des disques de diamètre d_B .

Dans ces conditions, le volume d'une bulle s'écrit comme :

$$V_{b,2D} = p \times \frac{\pi d_B^2}{4}$$

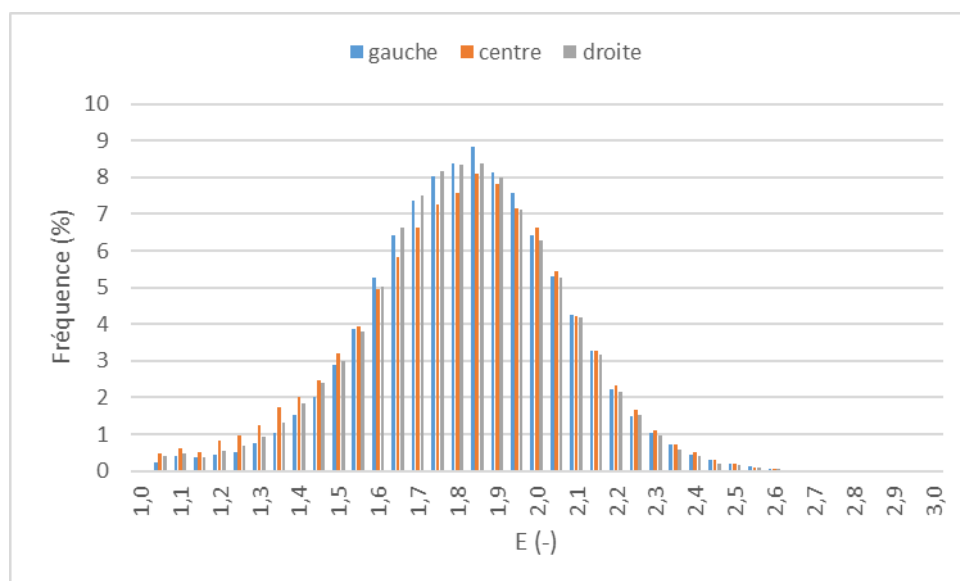
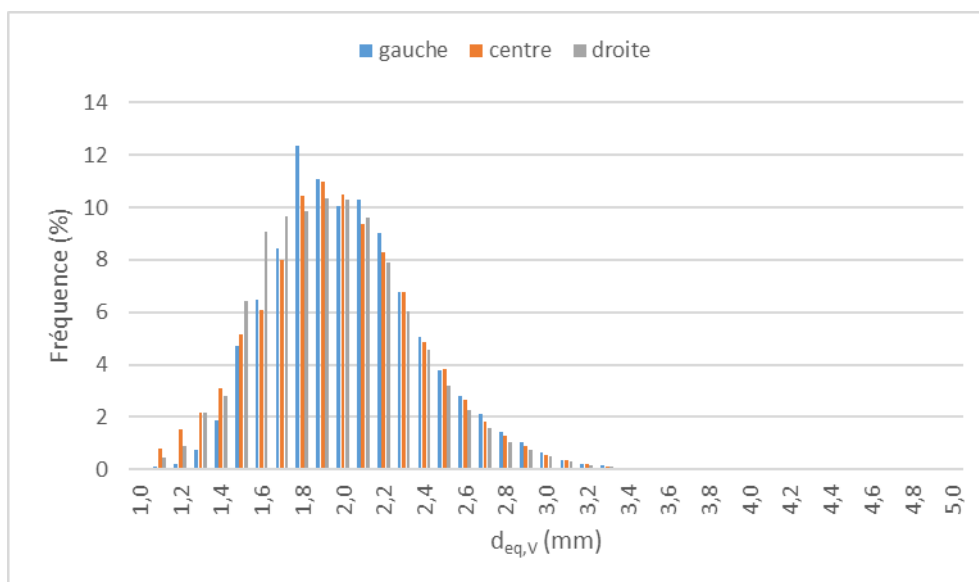
Et la rétention gazeuse projetée s'écrit :

$$\varepsilon_{G,p} = \frac{n \times V_{b,2D}}{V} = \frac{\varepsilon_G \times V \times p \times \frac{\pi d_B^2}{4}}{\frac{\pi d_B^3}{6} \times V}$$

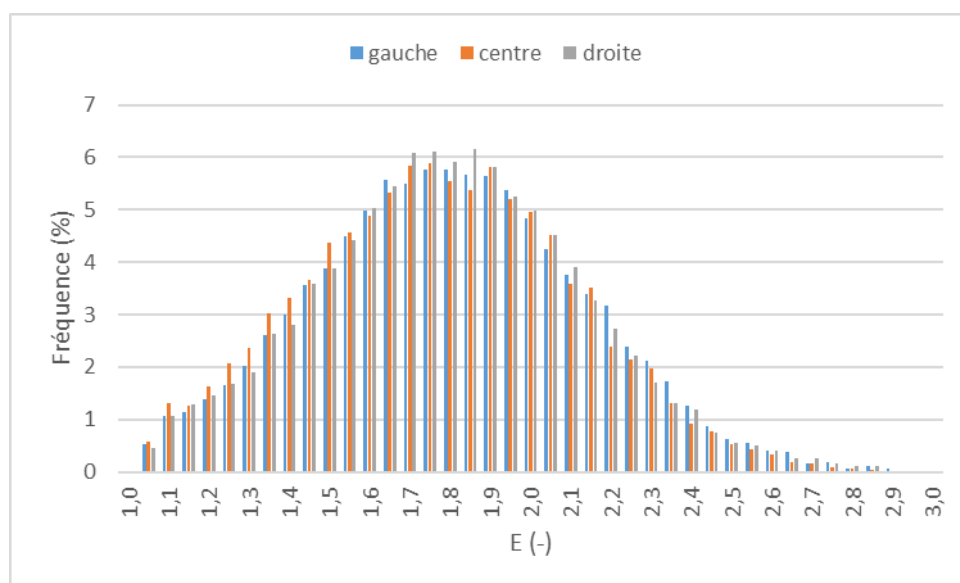
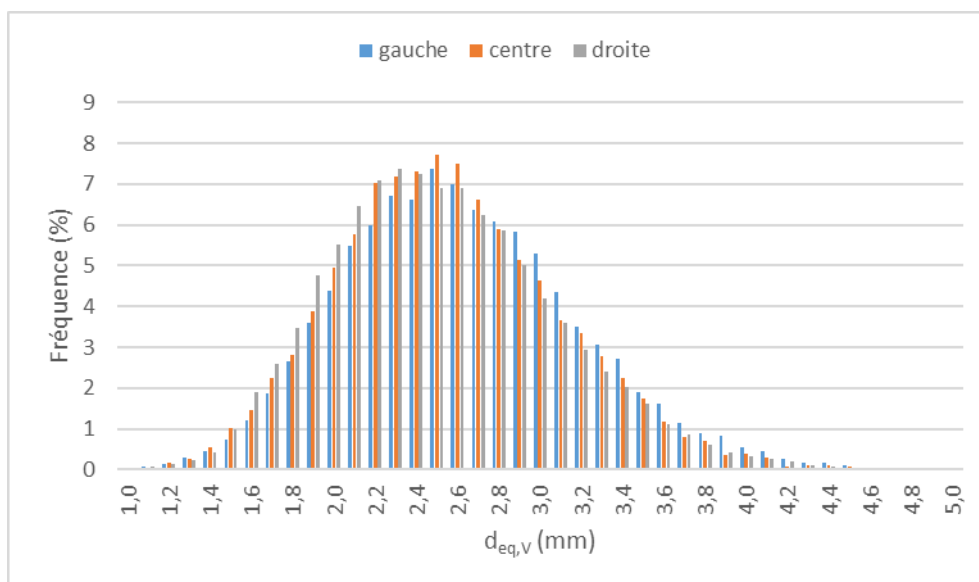
Soit finalement :

$$\varepsilon_{G,p} = \frac{3}{4} \times \frac{p}{\frac{d_B}{2}} \times \varepsilon_G$$

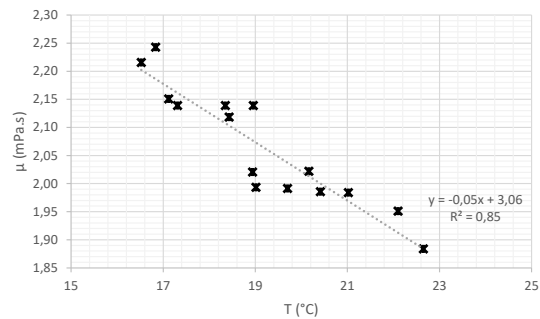
Annexe 4 : Distributions de $d_{eq,V}$ et d'excentricité en fonction de la largeur dans la colonne, en eau du réseau à 0,52 Nmm s⁻¹ pour le diffuseur membrane



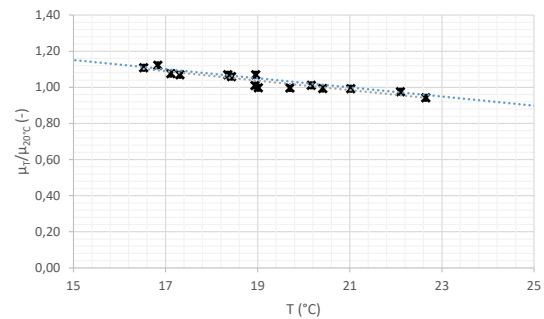
Annexe 5 : Distributions de $d_{eq,V}$ et d'excentricité en fonction de la largeur dans la colonne, en eau du réseau à 5,20 Nmm s⁻¹ pour le diffuseur membrane



Annexe 6 : Evolution de la viscosité du Breox en fonction de la température



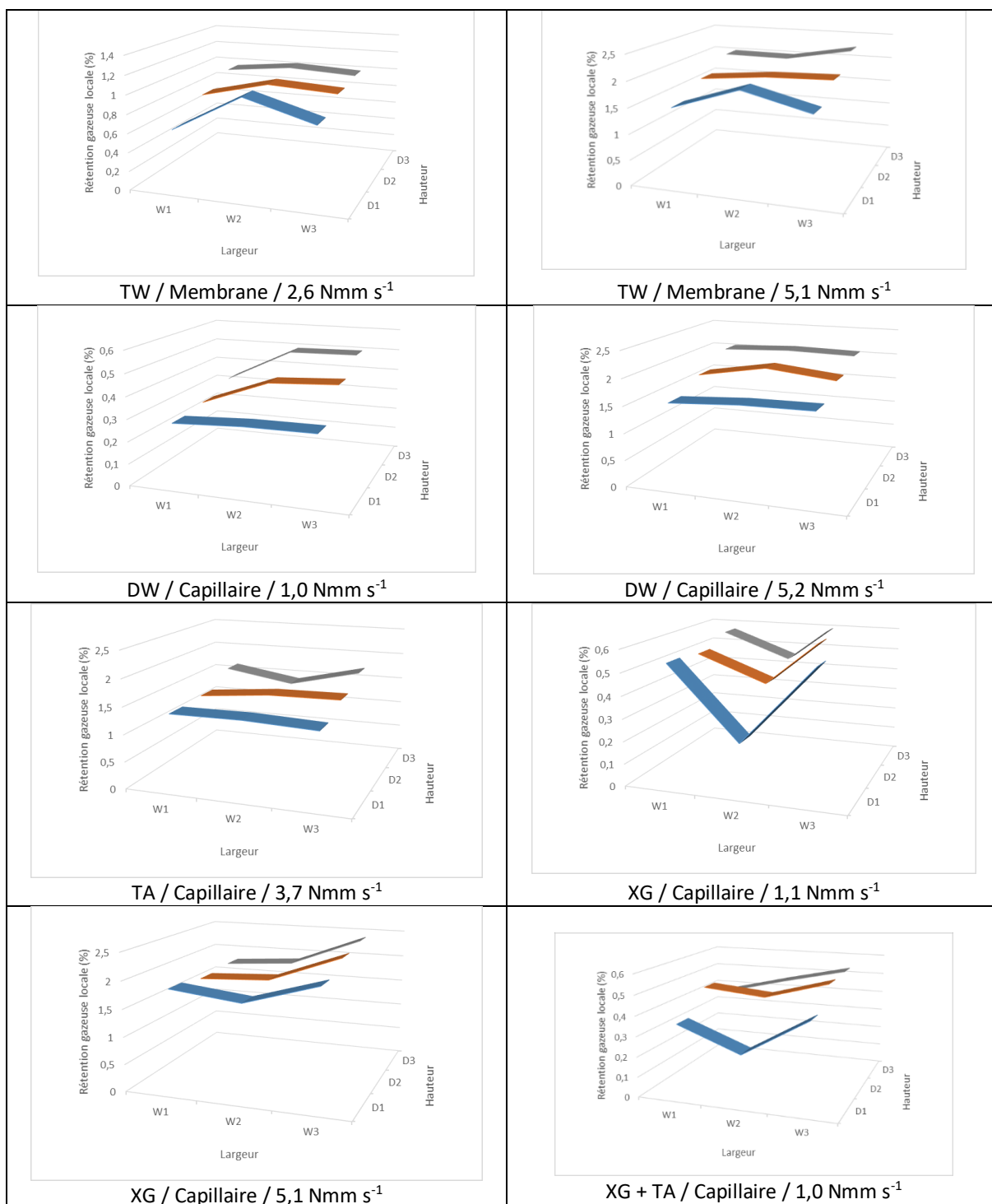
(a)

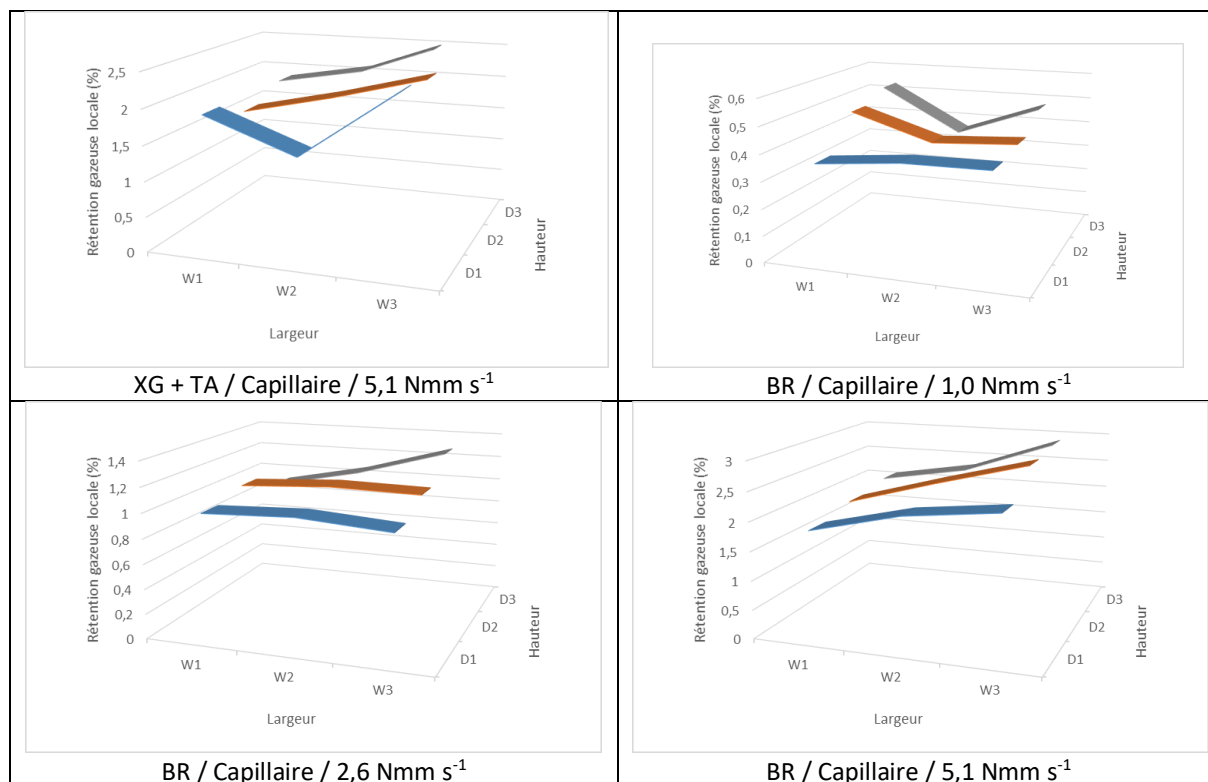


(b)

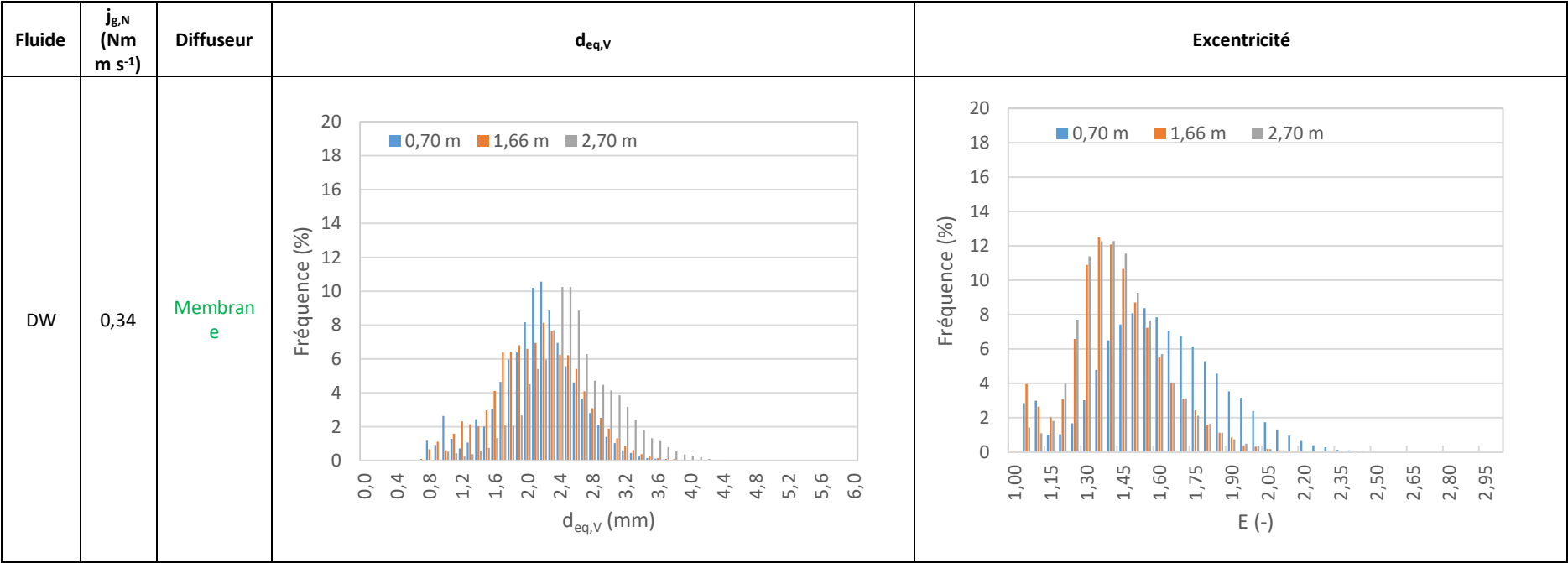
Viscosité dynamique de la solution de Breox en fonction de la température, (b) Ratio entre la viscosité à la température T et celle à 20°C en fonction de la température – Solution de Breox (*) et eau (—) adapté de Kestin et al. (1978)

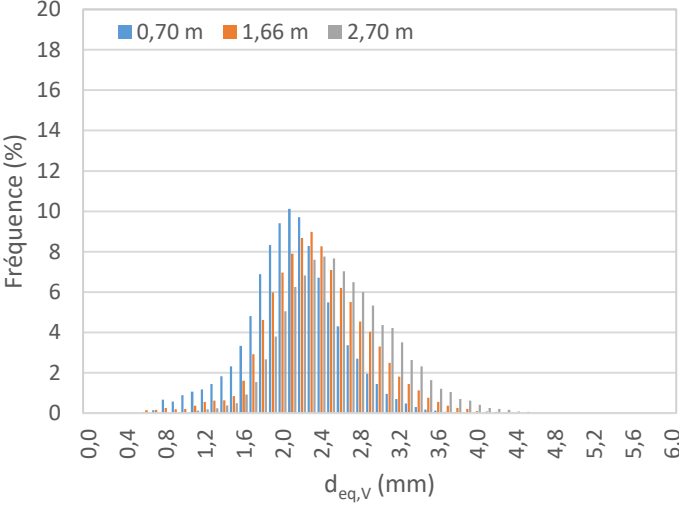
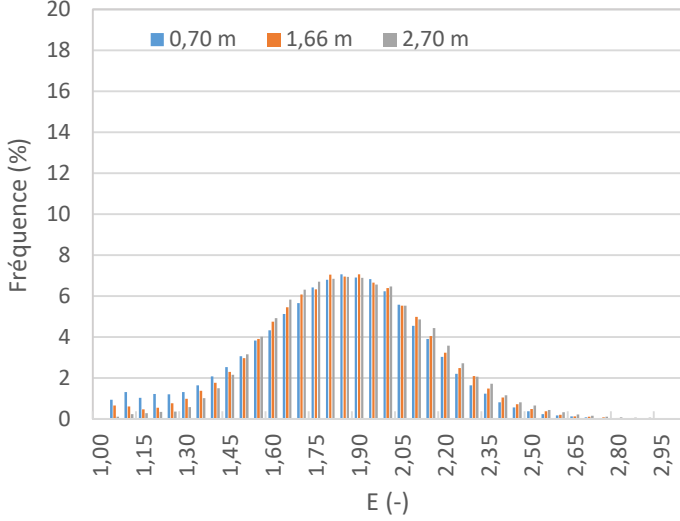
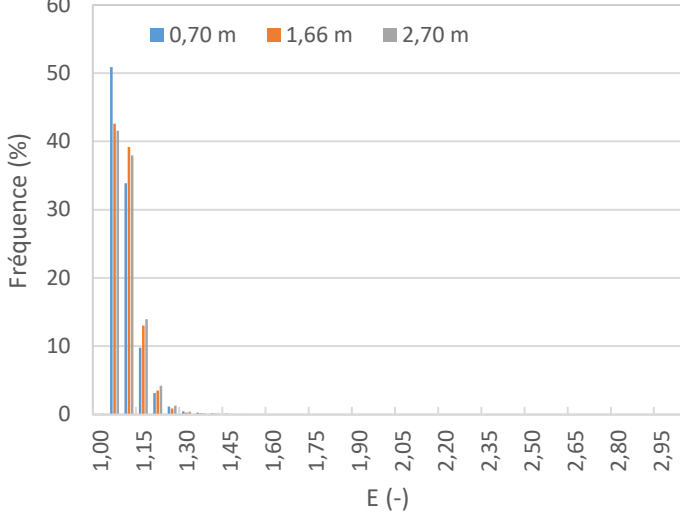
Annexe 7 : Profils de rétentions gazeuses locales mesurées

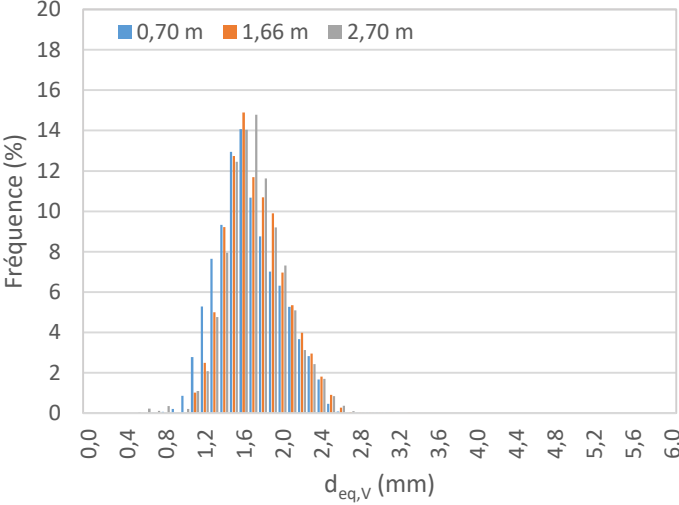
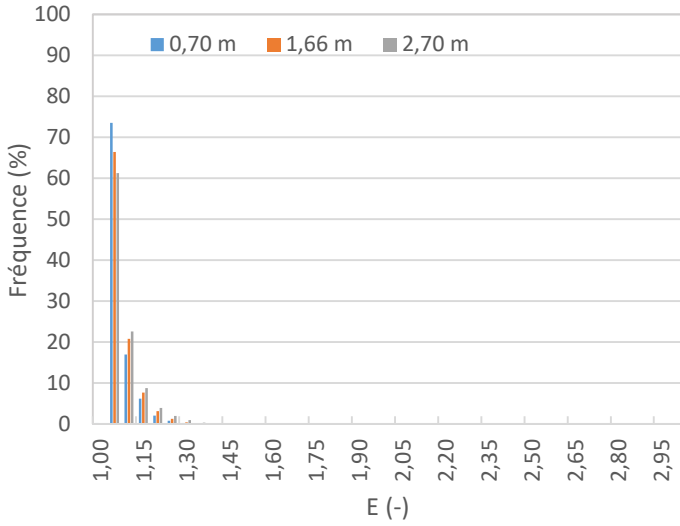
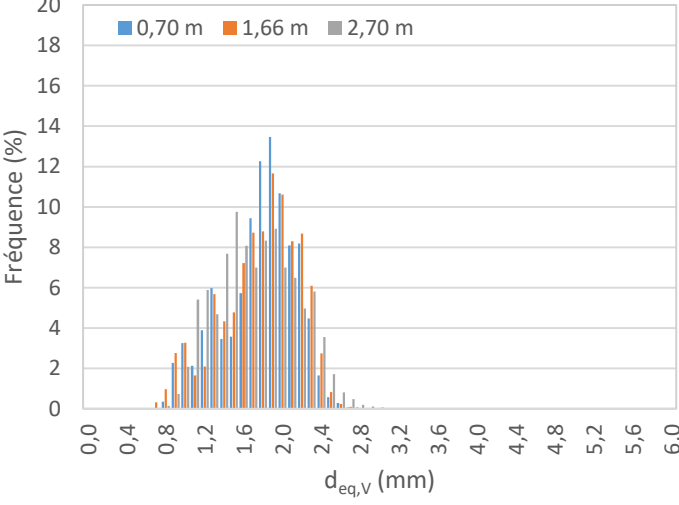
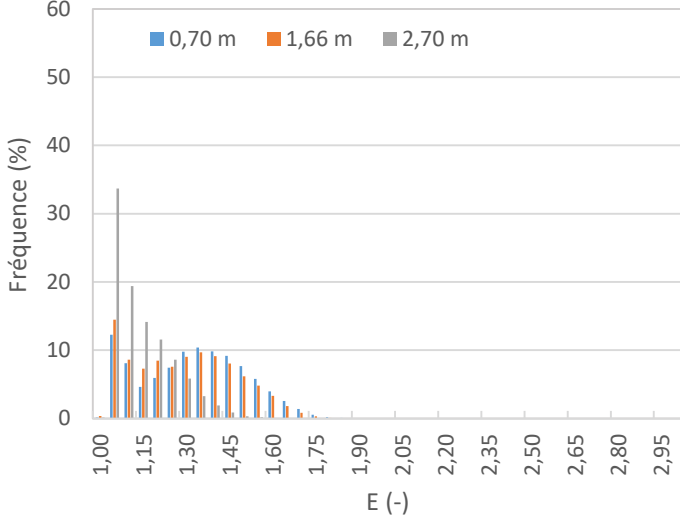


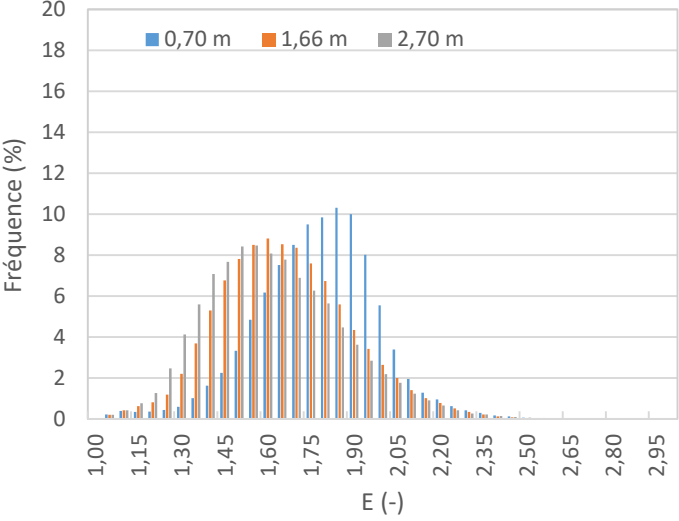
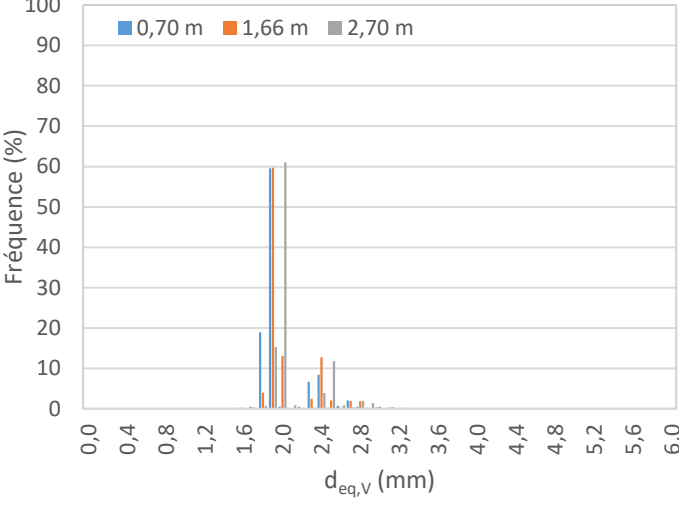
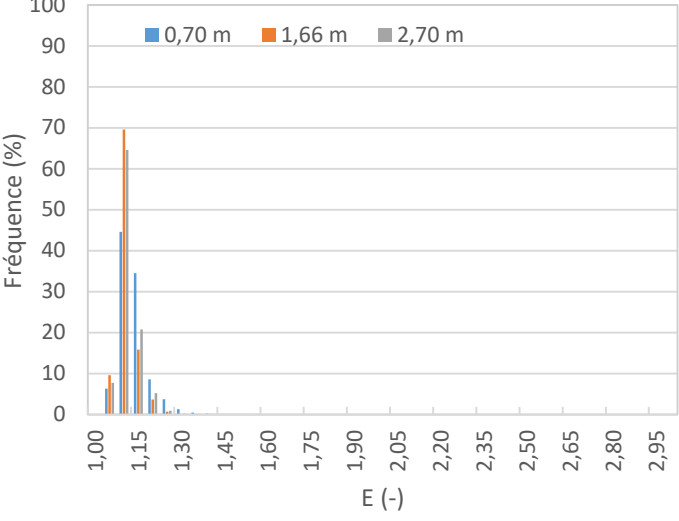


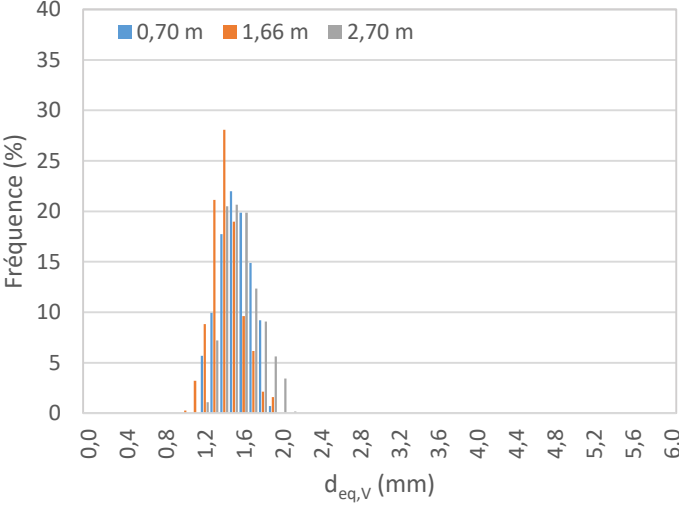
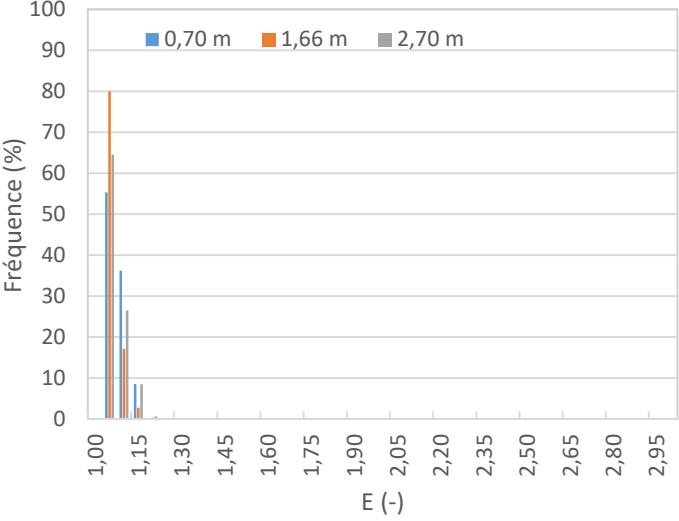
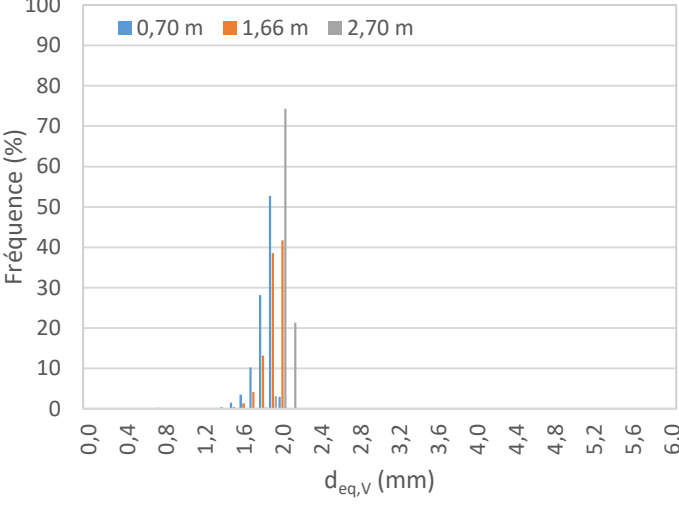
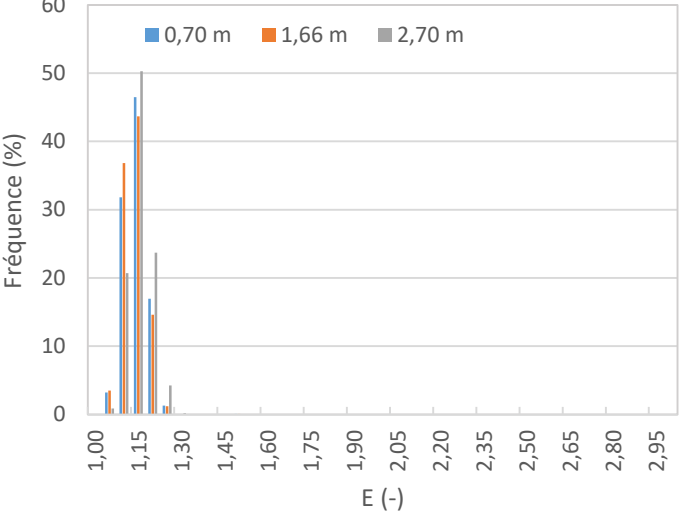
Annexe 8 : Distributions des diamètres équivalents en volume et des excentricités pour les différentes conditions opératoires

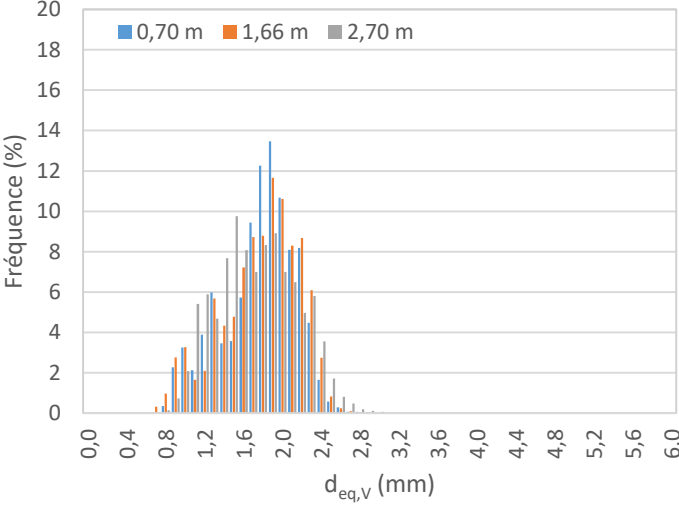
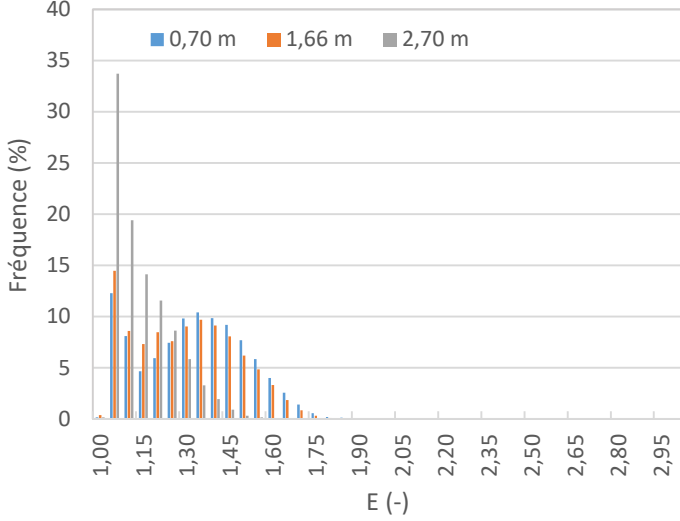
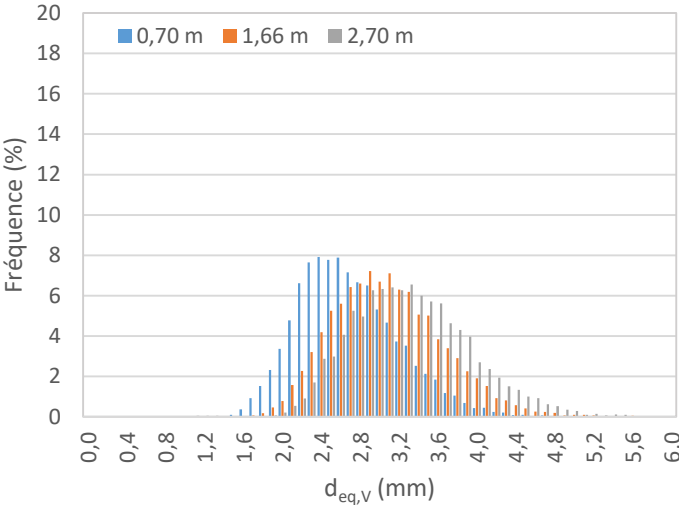
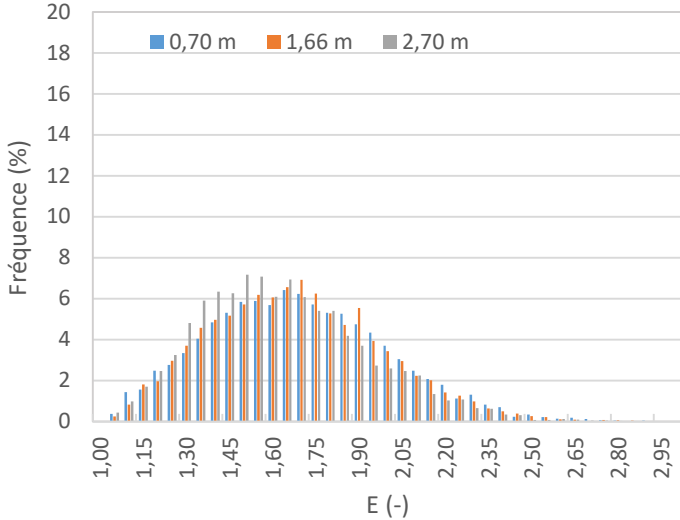


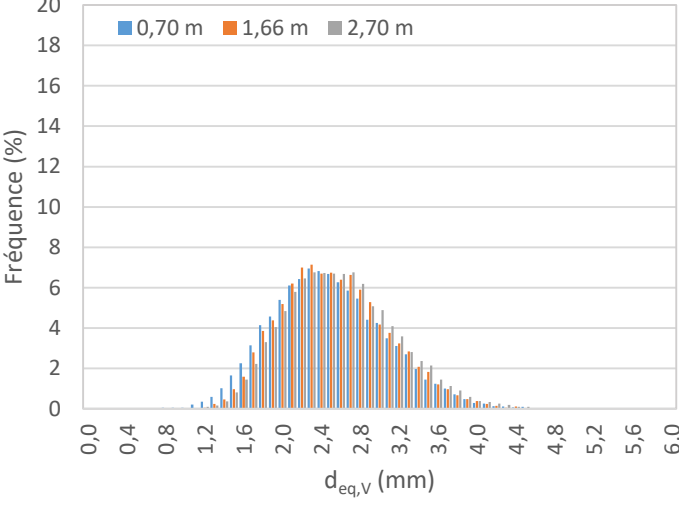
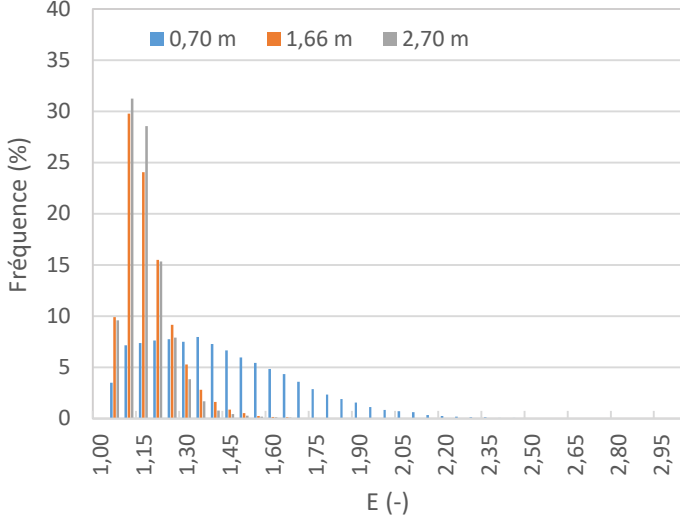
TW	0,55	Membrane		
TA	0,52	Membrane		

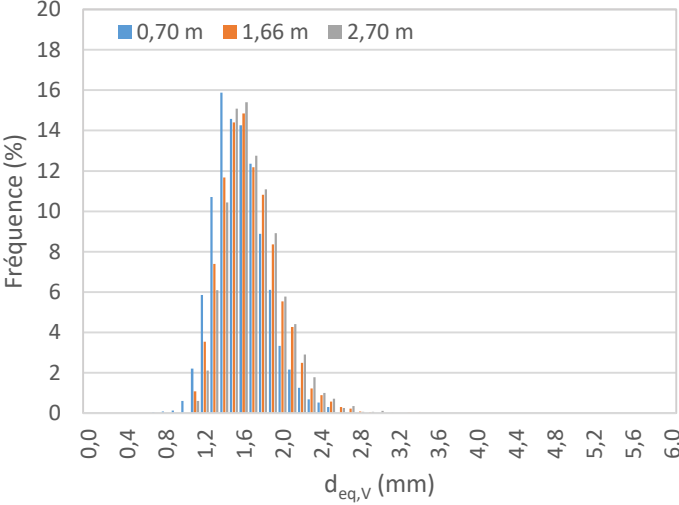
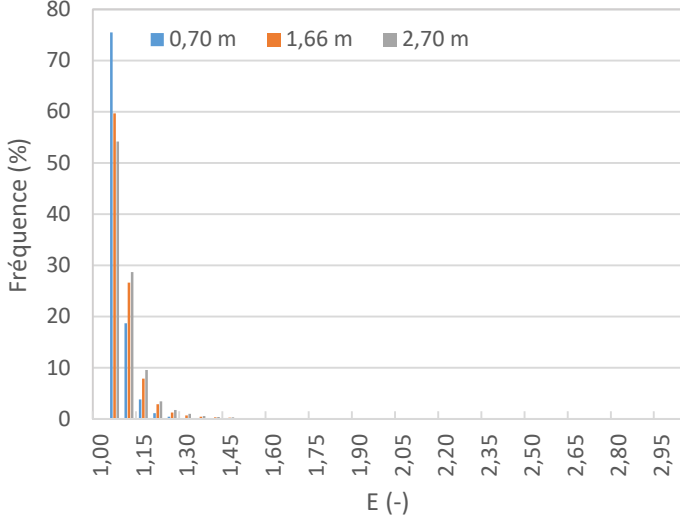
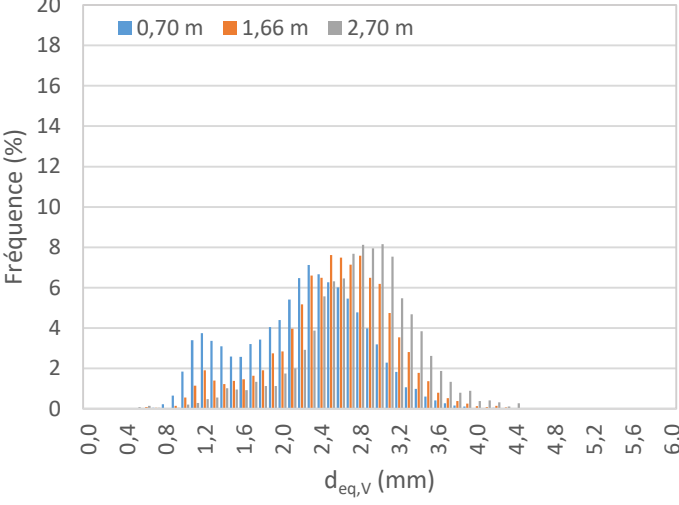
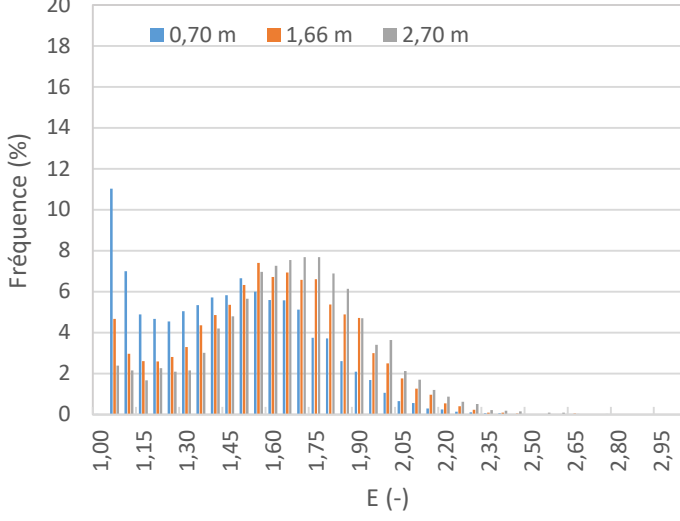
XG	0,52	Membrane		
XG+T A	0,45	Membrane		

DW	0,98	Capillaire		
TA	1,04	Capillaire		

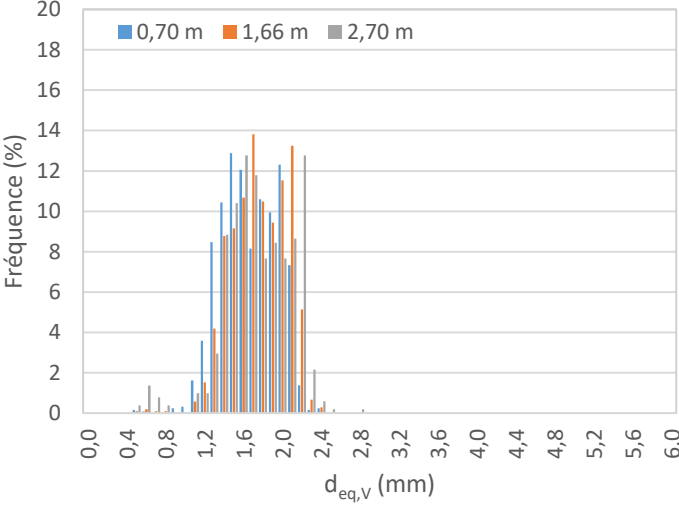
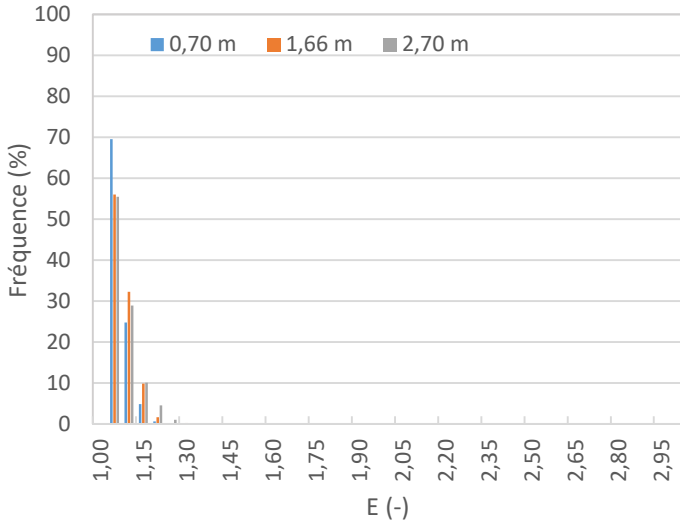
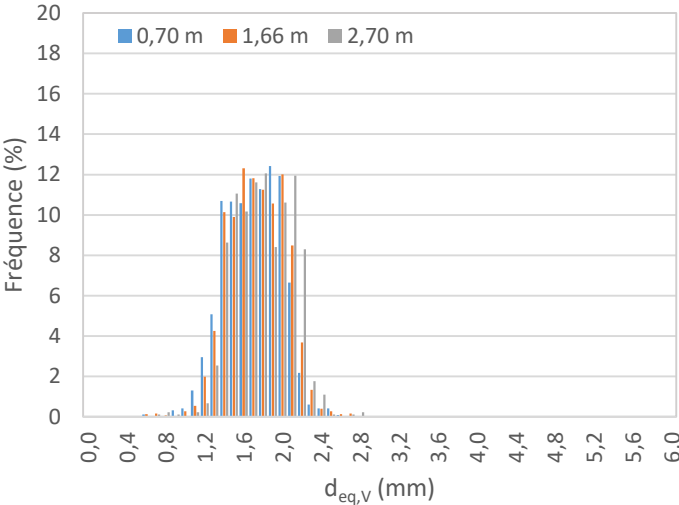
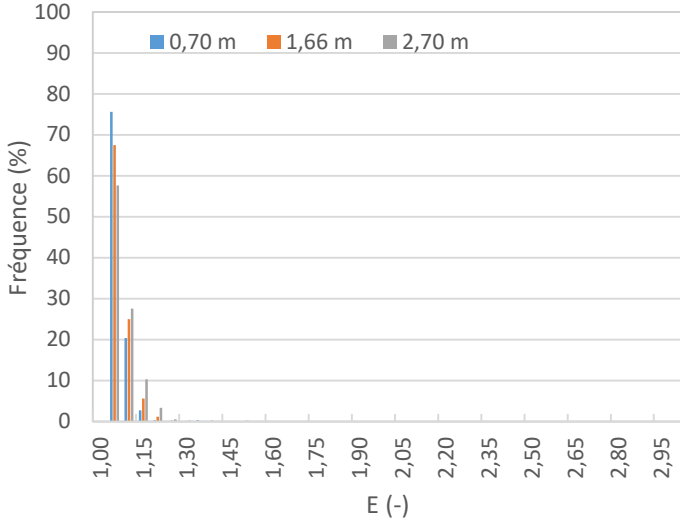
XG	1,09	Capillaire		
XG+T A	0,98	Capillaire		

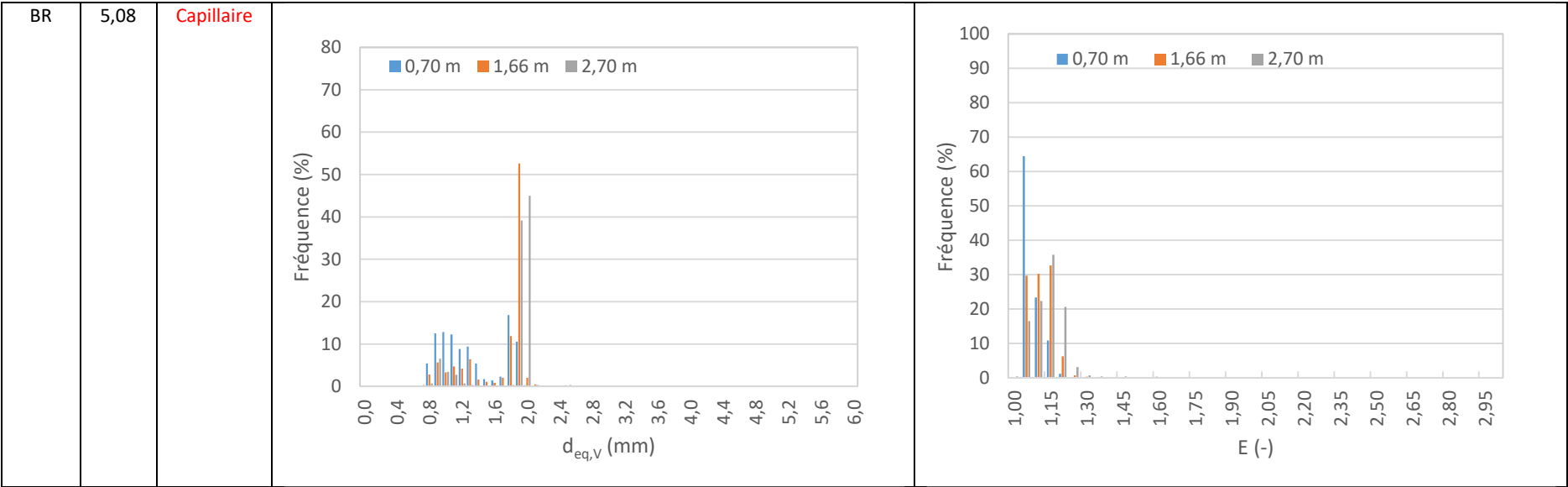
BR	1,00	Capillaire		
DW	5,22	Membrane		

TW	5,06	Membrane		
TA	3,59	Membrane		

XG	5,12	Membrane		
XG+T A	5,19	Membrane		

DW	5,23	Capillaire		
TA	3,65	Capillaire		

XG	5,12	Capillaire		
XG+T A	5,08	Capillaire		



Annexe 9 : Valeurs caractéristiques des distributions de tailles de bulles

Diffuseur membrane

Diffuseur	Fluide	j_g (Nmm/s)	Distance diffuseur (m)	N_{bulles} (-)	$d_{eq,V}$ (mm)	Ecart-type $d_{eq,V}$ (mm)	Excentricité (-)	Ecart-type E (-)	d_{32} (mm)	d_{30} (mm)
Membrane	DW	0,4	0,70	41630	2,06	0,50	1,58	0,26	2,18	2,18
Membrane	DW	2,5	0,70	27892	2,55	0,49	1,69	0,30	2,58	2,64
Membrane	DW	5,1	0,70	8604	2,64	0,52	1,67	0,31	2,69	2,75
Membrane	DW	0,4	1,66	19834	2,07	0,53	1,40	0,19	2,26	2,20
Membrane	DW	2,7	1,66	20105	2,90	0,57	1,65	0,28	2,96	3,01
Membrane	DW	5,2	1,66	5775	3,03	0,57	1,66	0,30	3,08	3,14
Membrane	DW	0,5	2,70	23204	2,48	0,53	1,41	0,18	2,63	2,59
Membrane	DW	2,6	2,70	17266	3,12	0,62	1,58	0,27	3,21	3,24
Membrane	DW	5,1	2,70	4184	3,26	0,61	1,61	0,29	3,32	3,37
Membrane	TA	0,5	0,70	108360	1,63	0,46	1,06	0,05	1,89	1,76
Membrane	TA	2,5	0,70	32870	1,82	0,51	1,09	0,07	2,09	1,96
Membrane	TA	3,5	0,70	15605	2,44	0,59	1,40	0,26	2,64	2,58
Membrane	TA	0,5	1,66	93537	1,68	0,50	1,07	0,05	1,97	1,82
Membrane	TA	2,5	1,66	32900	2,00	0,53	1,09	0,06	2,27	2,14
Membrane	TA	3,4	1,66	18430	2,49	0,56	1,14	0,09	2,72	2,61
Membrane	TA	0,5	2,70	91654	1,71	0,51	1,07	0,05	2,01	1,86
Membrane	TA	2,5	2,70	30898	2,09	0,55	1,10	0,06	2,37	2,23
Membrane	TA	3,8	2,70	14022	2,54	0,57	1,13	0,08	2,78	2,67
Membrane	XG	0,5	0,70	38528	1,61	0,32	1,04	0,05	1,74	1,68
Membrane	XG	2,5	0,70	11833	1,44	0,26	1,03	0,04	1,53	1,49
Membrane	XG	5,2	0,70	2306	1,52	0,26	1,04	0,04	1,61	1,57
Membrane	XG	0,5	1,66	38420	1,68	0,30	1,05	0,05	1,78	1,73
Membrane	XG	2,6	1,66	12607	1,49	0,26	1,04	0,05	1,58	1,53
Membrane	XG	5,1	1,66	5601	1,62	0,29	1,06	0,06	1,72	1,67
Membrane	XG	0,5	2,70	21455	1,67	0,30	1,06	0,06	1,77	1,72
Membrane	XG	2,6	2,70	8968	1,52	0,26	1,05	0,06	1,61	1,57
Membrane	XG	5,1	2,70	4169	1,65	0,29	1,07	0,06	1,75	1,70
Membrane	XG+TA	0,4	0,70	12818	1,72	0,38	1,30	0,18	1,83	1,79
Membrane	XG+TA	2,5	0,70	30730	1,70	0,39	1,15	0,13	1,86	1,79
Membrane	XG+TA	5,2	0,70	9988	2,16	0,64	1,42	0,28	2,40	2,33
Membrane	XG+TA	0,5	1,66	10089	1,73	0,40	1,27	0,18	1,86	1,81
Membrane	XG+TA	2,6	1,66	20328	1,74	0,33	1,09	0,09	1,86	1,80
Membrane	XG+TA	5,2	1,66	5562	2,47	0,59	1,56	0,28	2,59	2,60
Membrane	XG+TA	0,5	2,70	17406	1,68	0,41	1,12	0,10	1,87	1,78
Membrane	XG+TA	2,7	2,70	17394	1,78	0,33	1,10	0,09	1,89	1,84
Membrane	XG+TA	5,2	2,70	3358	2,72	0,58	1,63	0,28	2,79	2,83
Membrane	TW	0,5	0,70	67817	2,10	0,48	1,81	0,30	2,12	2,19
Membrane	TW	2,6	0,70	32876	2,44	0,51	1,75	0,31	2,48	2,55
Membrane	TW	5,1	0,70	10944	2,58	0,55	1,65	0,31	2,66	2,70
Membrane	TW	0,5	1,66	42661	2,33	0,51	1,83	0,29	2,36	2,43
Membrane	TW	2,6	1,66	24637	2,77	0,56	1,80	0,31	2,79	2,88
Membrane	TW	5,1	1,66	8329	2,94	0,57	1,67	0,30	2,99	3,05
Membrane	TW	0,5	2,70	27722	2,53	0,54	1,85	0,28	2,56	2,65
Membrane	TW	2,6	2,70	20815	3,01	0,58	1,79	0,31	3,02	3,12
Membrane	TW	5,1	2,70	5875	3,09	0,59	1,59	0,27	3,16	3,21

Diffuseur capillaire

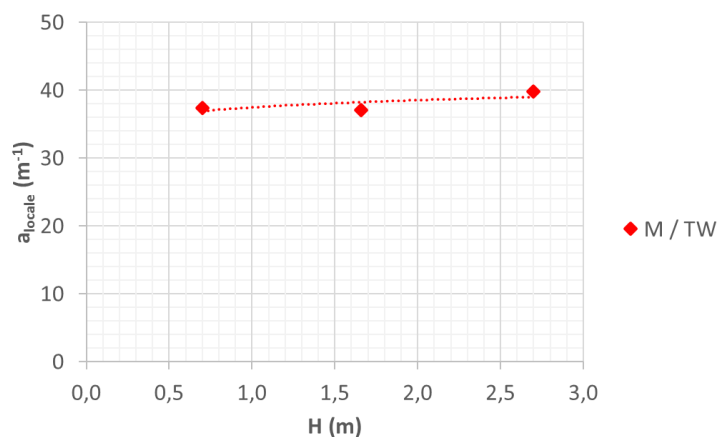
Diffuseur	Fluide	j_g (Nmm/s)	Distance diffuseur (m)	N_{bulles} (-)	$d_{eq,V}$ (mm)	Ecart-type $d_{eq,V}$ (mm)	Excentricité (-)	Ecart-type E (-)	d_{32} (mm)	d_{30} (mm)
Capillaire	DW	1,0	0,70	86793	1,96	0,28	1,75	0,21	1,92	2,00
Capillaire	DW	2,5	0,70	38688	2,20	0,39	1,71	0,26	2,21	2,27
Capillaire	DW	5,2	0,70	16489	2,43	0,48	1,72	0,30	2,47	2,53
Capillaire	DW	1,0	1,66	57361	2,28	0,45	1,64	0,23	2,34	2,37
Capillaire	DW	2,6	1,66	22109	2,64	0,56	1,62	0,27	2,74	2,76
Capillaire	DW	5,2	1,66	9862	2,92	0,59	1,70	0,30	2,98	3,04
Capillaire	DW	1,0	2,70	39824	2,64	0,57	1,59	0,24	2,75	2,76
Capillaire	DW	2,6	2,70	16158	2,95	0,62	1,56	0,26	3,08	3,08
Capillaire	DW	5,2	2,70	6877	3,27	0,63	1,66	0,30	3,32	3,38
Capillaire	TA	1,0	0,70	80299	1,94	0,24	1,11	0,05	2,00	1,97
Capillaire	TA	2,6	0,70	27935	1,89	0,14	1,09	0,05	1,91	1,90
Capillaire	TA	3,7	0,70	15412	2,00	0,23	1,09	0,05	2,05	2,03
Capillaire	TA	1,0	1,66	73619	1,99	0,26	1,09	0,04	2,07	2,03
Capillaire	TA	2,5	1,66	25385	1,94	0,14	1,10	0,05	1,95	1,95
Capillaire	TA	3,6	1,66	15277	2,06	0,25	1,10	0,05	2,12	2,09
Capillaire	TA	1,0	2,70	71171	2,06	0,27	1,09	0,04	2,13	2,09
Capillaire	TA	2,6	2,70	18135	2,01	0,15	1,10	0,05	2,03	2,02
Capillaire	TA	3,7	2,70	10811	2,10	0,24	1,10	0,05	2,15	2,13
Capillaire	XG	1,0	0,70	141	1,47	0,16	1,05	0,03	1,51	1,49
Capillaire	XG	2,5	0,70	6998	1,84	0,16	1,10	0,05	1,86	1,85
Capillaire	XG	5,1	0,70	1227	1,62	0,29	1,04	0,03	1,71	1,67
Capillaire	XG	1,2	1,66	374	1,38	0,16	1,04	0,02	1,41	1,39
Capillaire	XG	2,6	1,66	7188	1,86	0,22	1,08	0,05	1,90	1,88
Capillaire	XG	5,1	1,66	1049	1,71	0,28	1,05	0,04	1,80	1,76
Capillaire	XG	1,1	2,70	639	1,53	0,18	1,05	0,03	1,57	1,55
Capillaire	XG	2,6	2,70	5302	1,95	0,20	1,10	0,05	1,98	1,97
Capillaire	XG	5,1	2,70	509	1,70	0,35	1,06	0,05	1,83	1,77
Capillaire	XG+TA	1,0	0,70	9347	1,79	0,10	1,12	0,04	1,79	1,79
Capillaire	XG+TA	2,6	0,70	18071	1,93	0,10	1,13	0,06	1,94	1,94
Capillaire	XG+TA	5,1	0,70	2439	1,65	0,29	1,04	0,04	1,75	1,70
Capillaire	XG+TA	1,0	1,66	6969	1,86	0,09	1,11	0,04	1,86	1,86
Capillaire	XG+TA	2,6	1,66	18106	1,93	0,10	1,13	0,06	1,94	1,94
Capillaire	XG+TA	5,1	1,66	2980	1,69	0,29	1,05	0,04	1,78	1,74
Capillaire	XG+TA	1,0	2,70	5957	1,97	0,11	1,13	0,04	1,97	1,97
Capillaire	XG+TA	2,6	2,70	13854	2,03	0,12	1,13	0,06	2,04	2,04
Capillaire	XG+TA	5,1	2,70	904	1,74	0,29	1,06	0,05	1,84	1,79
Capillaire	BR	1,0	0,70	12818	1,72	0,38	1,30	0,18	1,83	1,79
Capillaire	BR	2,5	0,70	15586	1,72	0,09	1,09	0,04	1,73	1,73
Capillaire	BR	5,1	0,70	351	1,28	0,38	1,05	0,05	1,49	1,38
Capillaire	BR	1,0	1,66	10089	1,73	0,40	1,27	0,18	1,86	1,81
Capillaire	BR	2,6	1,66	14523	1,77	0,08	1,10	0,04	1,78	1,78
Capillaire	BR	5,1	1,66	1063	1,60	0,37	1,08	0,05	1,74	1,67
Capillaire	BR	1,0	2,70	17406	1,68	0,41	1,12	0,10	1,87	1,78
Capillaire	BR	2,6	2,70	8253	1,83	0,10	1,10	0,04	1,84	1,84
Capillaire	BR	5,1	2,70	291	1,76	0,36	1,11	0,06	1,86	1,82

Annexe 10 : Valeurs caractéristiques des distributions de tailles de bulles (valeurs moyennes sur la hauteur de la colonne)

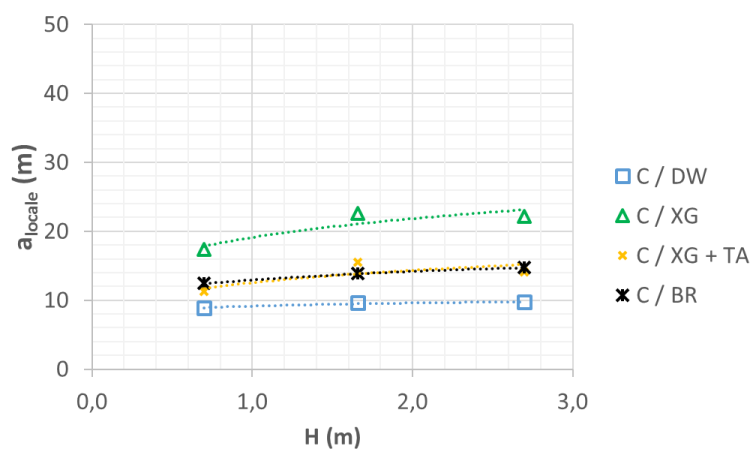
Fluide	Diffuseur	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} (mm)	d_{30} (mm)	$d_{eq,v}$ moyen (mm)	$d_{eq,v}$ écart-type (mm)	E moyenne (-)	E écart-type (-)
DW	M	0,34	2,36	2,32	2,21	0,52	1,46	0,21
DW	M	2,65	2,92	2,97	2,86	0,56	1,64	0,28
DW	M	5,22	3,03	3,09	2,98	0,57	1,65	0,30
TW	M	0,55	2,35	2,42	2,31	0,51	1,82	0,29
TW	M	2,57	2,76	2,85	2,74	0,55	1,78	0,31
TW	M	5,06	2,94	2,98	2,87	0,57	1,64	0,29
TA	M	0,52	1,95	1,81	1,68	0,49	1,07	0,05
TA	M	2,47	2,25	2,11	1,97	0,53	1,09	0,07
TA	M	3,59	2,72	2,62	2,49	0,57	1,22	0,14
XG	M	0,52	1,77	1,71	1,65	0,31	1,05	0,05
XG	M	2,58	1,57	1,53	1,48	0,26	1,04	0,05
XG	M	5,12	1,69	1,64	1,60	0,28	1,05	0,05
XG + TA	M	0,45	1,85	1,80	1,71	0,40	1,23	0,15
XG + TA	M	2,60	1,87	1,81	1,74	0,35	1,12	0,10
XG + TA	M	5,19	2,59	2,59	2,45	0,60	1,54	0,28
DW	C	0,98	2,34	2,38	2,29	0,43	1,66	0,23
DW	C	2,60	2,68	2,70	2,60	0,52	1,63	0,26
DW	C	5,23	2,92	2,99	2,87	0,57	1,70	0,30
TA	C	1,04	2,07	2,03	2,00	0,26	1,10	0,05
TA	C	2,56	1,96	1,96	1,95	0,15	1,10	0,05
TA	C	3,65	2,11	2,08	2,05	0,24	1,10	0,05
XG	C	1,09	1,50	1,48	1,46	0,17	1,04	0,03
XG	C	2,58	1,91	1,90	1,88	0,19	1,09	0,05
XG	C	5,12	1,78	1,73	1,68	0,31	1,05	0,04
XG + TA	C	0,98	1,88	1,88	1,87	0,10	1,12	0,04

XG + TA	C	2,60	1,97	1,97	1,97	0,11	1,13	0,06
XG + TA	C	5,08	1,79	1,74	1,70	0,29	1,05	0,04
BREOX	C	1,00	1,85	1,80	1,71	0,40	1,23	0,15
BREOX	C	2,57	1,78	1,78	1,78	0,09	1,10	0,04
BREOX	C	5,08	1,70	1,62	1,54	0,37	1,08	0,05

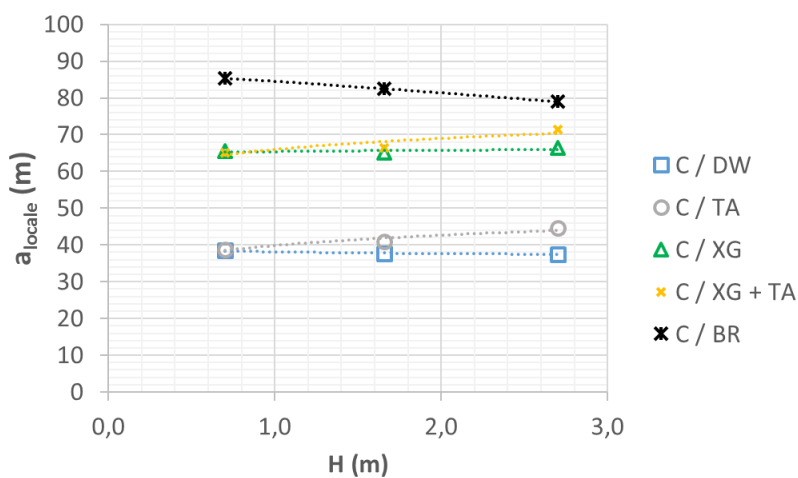
Annexe 11 : Aires interfaciales locales



Aire interfaciale locale en fonction de la distance au diffuseur – Diffuseur membrane – $j_{g,N} = 5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$



Aire interfaciale locale en fonction de la distance au diffuseur – Diffuseur capillaire – $j_{g,N} = 1,0 \text{ Nmm s}^{-1}$



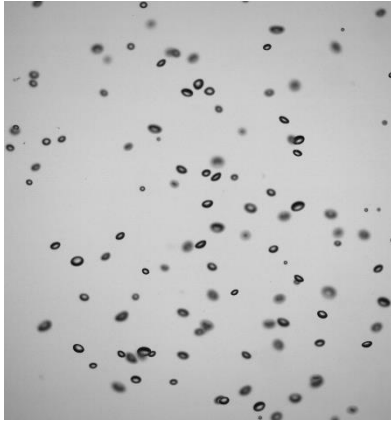
Aire interfaciale locale en fonction de la distance au diffuseur – Diffuseur capillaire – $j_{g,N} = 5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$ (3,7 Nmm s^{-1} pour TA)

Annexe 12 : Données d'entrée du modèles et grandeurs expérimentales associées

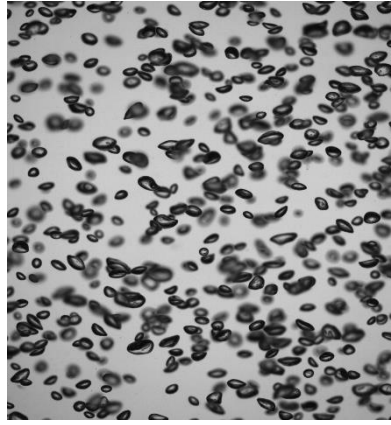
Fluide	Diffuseur	H (m)	$j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	d_{32} H270 (mm)	E H270 (-)	μ (mPa s)	σ (mN m ⁻¹)	D (10 ⁻⁹ m ² s ⁻¹)	ε_G global exp (%)	K_{La20} global exp (h ⁻¹)
DW	M	2,90	0,35	2,63	1,41	1,00	73,00	2,00	0,20	6,3
DW	M	2,90	2,64	3,21	1,58	1,00	73,00	2,00	1,03	22,6
DW	M	2,90	5,16	3,32	1,61	1,00	73,00	2,00	2,11	39,7
TW	M	2,90	0,54	2,56	1,85	1,00	73,00	2,00	0,19	8,0
TW	M	2,90	2,57	3,02	1,79	1,00	73,00	2,00	0,95	24,4
TW	M	2,90	5,07	3,16	1,59	1,00	73,00	2,00	1,93	42,6
TA	M	2,83	0,52	2,01	1,07	1,00	73,00	2,00	0,34	5,2
TA	M	2,90	2,48	2,37	1,10	1,00	73,00	2,00	1,15	14,7
TA	M	2,90	3,84	2,78	1,13	1,00	73,00	2,00	1,53	22,7
XG	M	2,89	0,51	1,77	1,06	3,39	73,00	2,00	0,36	9,9
XG	M	2,87	2,62	1,61	1,05	2,69	73,00	2,00	1,29	32,4
XG	M	2,87	5,16	1,75	1,07	2,45	73,00	2,00	2,32	58,7
XG + TA	M	2,90	0,47	1,87	1,12	4,20	67,89	2,00	0,24	7,2
XG + TA	M	2,86	2,56	1,89	1,10	2,79	67,89	2,00	1,06	26,7
XG + TA	M	2,90	5,18	2,79	1,63	2,35	67,89	2,00	1,72	39,7
DW	C	2,90	0,98	2,75	1,59	1,00	73,00	2,00	0,35	8,2
DW	C	2,90	2,50	3,08	1,56	1,00	73,00	2,00	0,89	16,3
DW	C	2,90	5,22	3,32	1,66	1,00	73,00	2,00	1,99	35,2
TA	C	2,875	1,04	2,13	1,09	1,00	73,00	2,00	0,41	7,0
TA	C	2,90	2,61	2,03	1,10	1,00	73,00	2,00	1,23	11,6
TA	C	2,875	3,66	2,15	1,10	1,00	73,00	2,00	1,61	16,0
XG	C	2,90	0,98	1,57	1,05	3,09	73,00	2,00	0,41	9,6
XG	C	2,90	2,58	1,98	1,10	2,70	73,00	2,00	1,13	20,9
XG	C	2,90	5,12	1,83	1,06	2,45	73,00	2,00	2,16	38,5
XG + TA	C	2,835	5,07	1,84	1,06	2,36	67,89	2,00	2,26	39,8
BREOX	C	2,90	1,01	1,87	1,12	2,00	65,00	1,87	0,56	9,4
BREOX	C	2,85	2,51	1,84	1,10	2,00	65,00	1,87	1,24	21,0
BREOX	C	2,82	5,09	1,86	1,11	2,00	65,00	1,87	2,62	38,1

Annexe 13 : Exemples de photos de bulles pour les différentes conditions opératoires (Hauteur 166 cm)

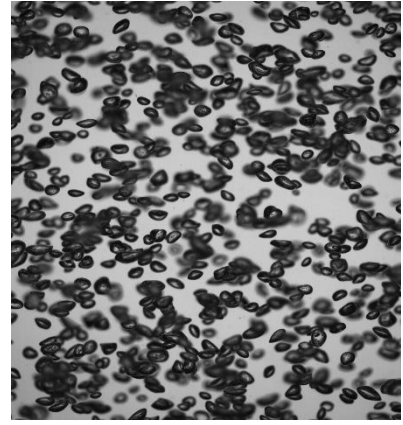
DW / M



$$j_{g,N} = 0,4 \text{ Nmm s}^{-1}$$

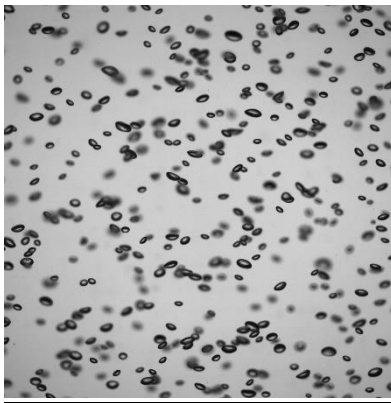


$$j_{g,N} = 2,7 \text{ Nmm s}^{-1}$$

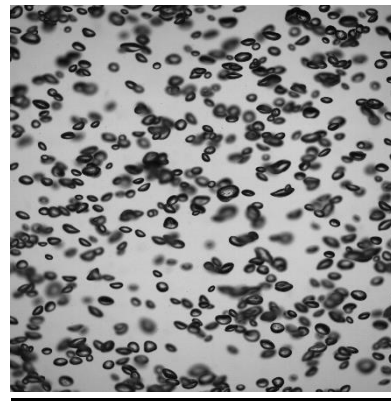


$$j_{g,N} = 5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$$

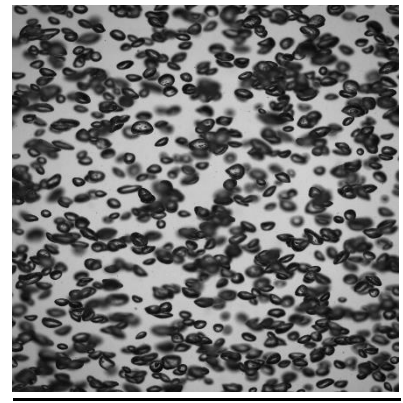
DW / C



$$j_{g,N} = 1,0 \text{ Nmm s}^{-1}$$

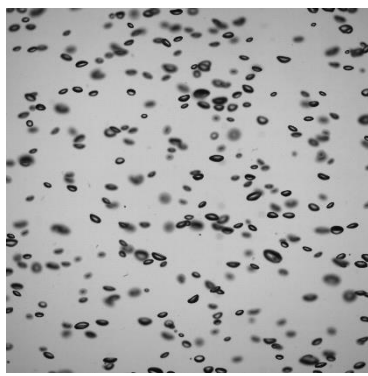


$$j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$

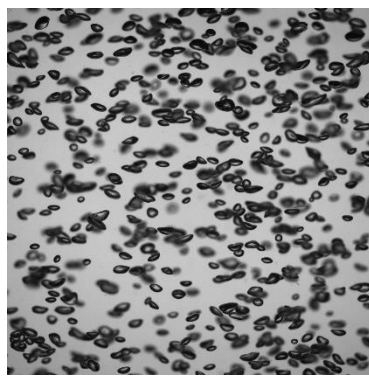


$$j_{g,N} = 5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$$

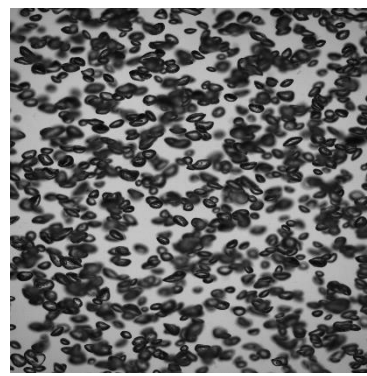
TW / M



$$j_{g,N} = 0,5 \text{ Nmm s}^{-1}$$

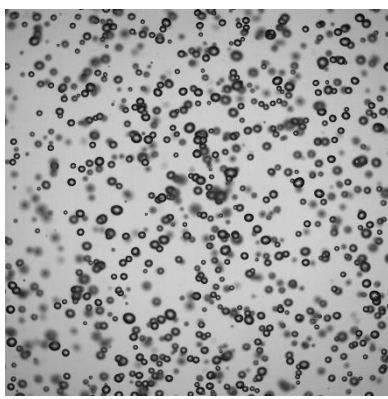


$$j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$

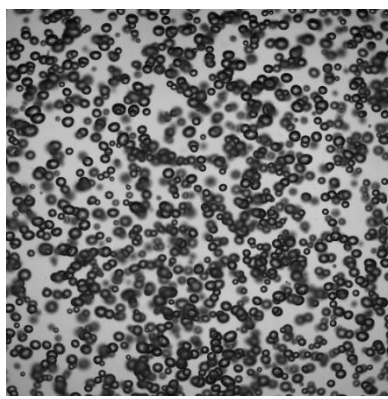


$$j_{g,N} = 5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$$

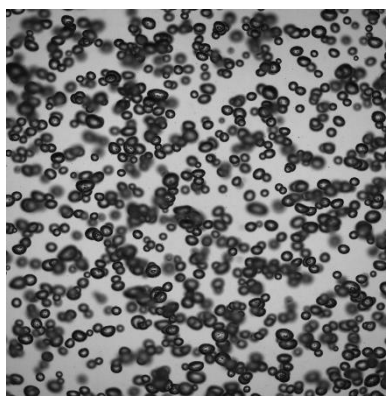
TA / M



$$j_{g,N} = 0,5 \text{ Nmm s}^{-1}$$

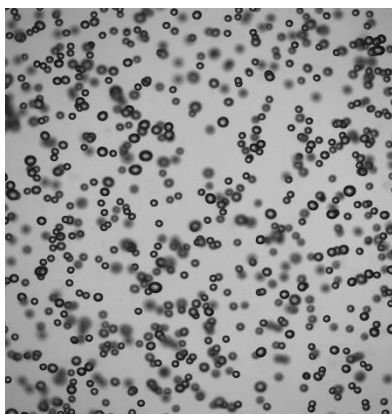


$$j_{g,N} = 2,5 \text{ Nmm s}^{-1}$$

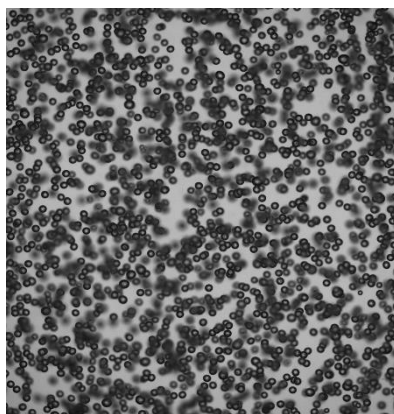


$$j_{g,N} = 3,4 \text{ Nmm s}^{-1}$$

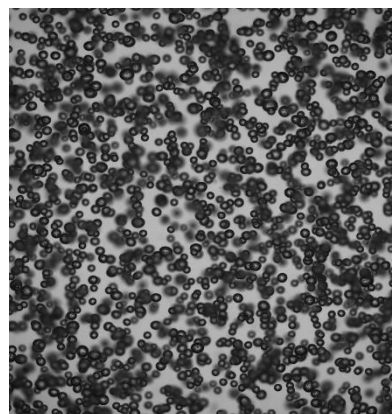
TA / C



$$j_{g,N} = 1,0 \text{ Nmm s}^{-1}$$

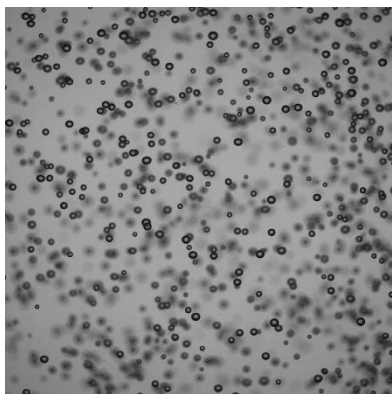


$$j_{g,N} = 2,5 \text{ Nmm s}^{-1}$$

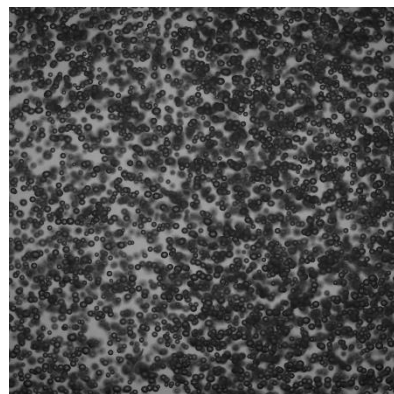


$$j_{g,N} = 3,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$

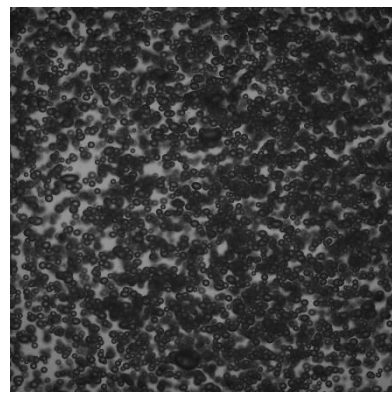
XG / M



$$j_{g,N} = 0,5 \text{ Nmm s}^{-1}$$

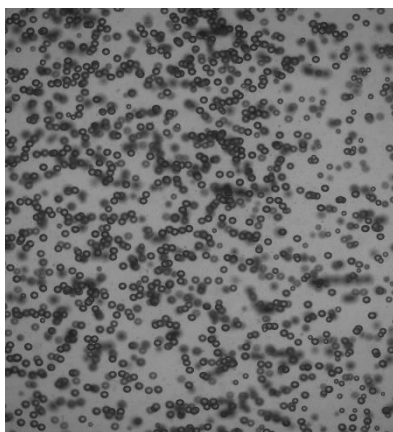


$$j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$

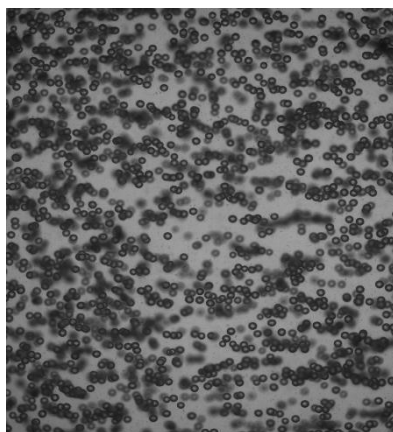


$$j_{g,N} = 5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$$

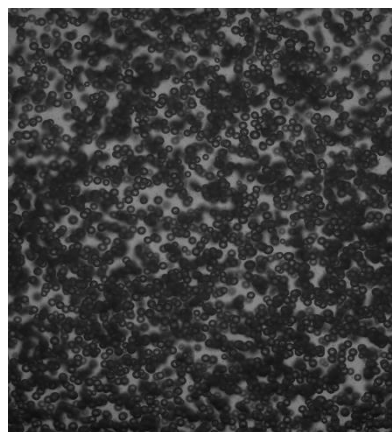
XG / C



$$j_{g,N} = 1,2 \text{ Nmm s}^{-1}$$

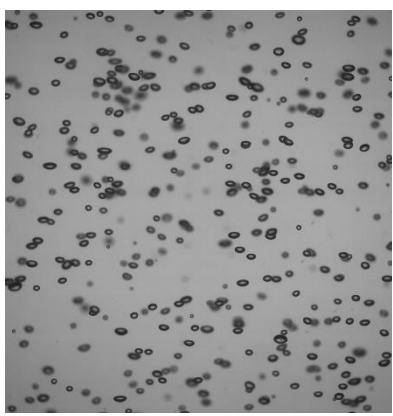


$$j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$

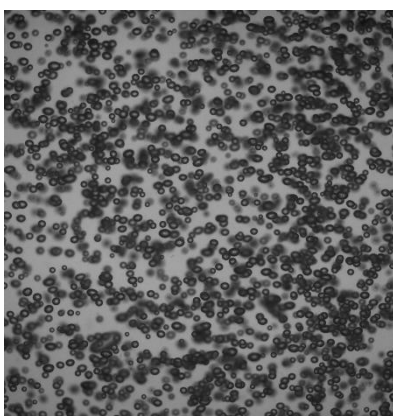


$$j_{g,N} = 5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$$

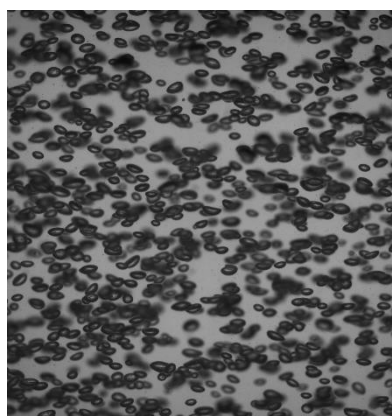
XG + TA / M



$$j_{g,N} = 0,5 \text{ Nmm s}^{-1}$$

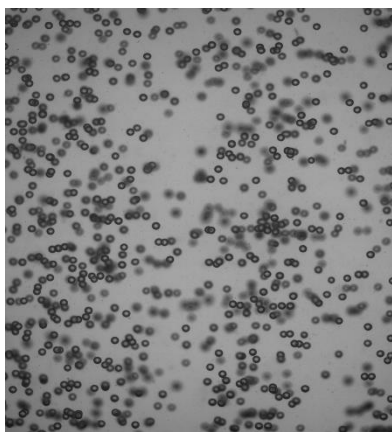


$$j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$

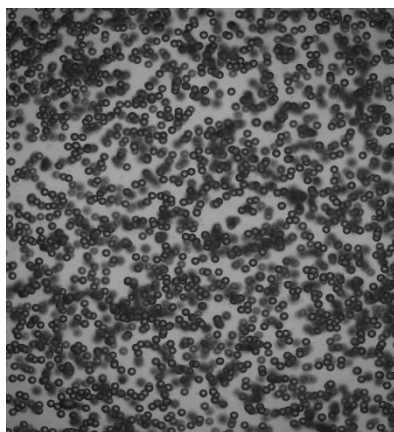


$$j_{g,N} = 5,2 \text{ Nmm s}^{-1}$$

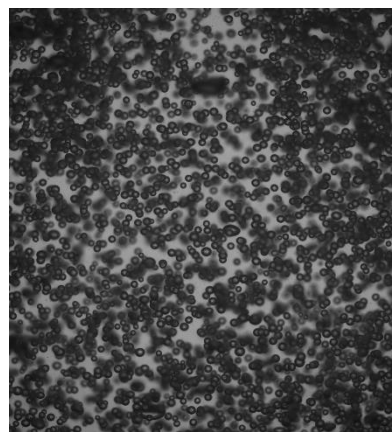
XG + TA / C



$$j_{g,N} = 1,0 \text{ Nmm s}^{-1}$$

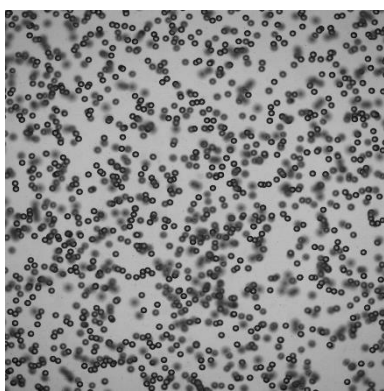


$$j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$

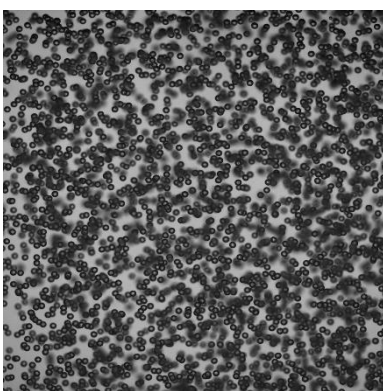


$$j_{g,N} = 5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$$

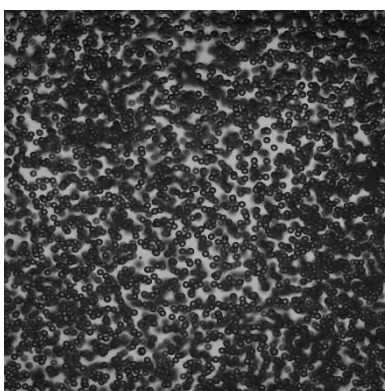
BR / C



$$j_{g,N} = 1,0 \text{ Nmm s}^{-1}$$



$$j_{g,N} = 2,6 \text{ Nmm s}^{-1}$$



$$j_{g,N} = 5,1 \text{ Nmm s}^{-1}$$

Annexe 14 : Temps de convergence des mesures de rétention gazeuse locale à la hauteur 166 cm en milieu de colonne

Fluide / diffuseur / $j_{g,N}$ (Nmm s ⁻¹)	Temps (s)
DW / M / 2,6	83,7
TW / M / 2,6	96,5
TA / M / 2,5	197,8
XG / M / 2,6	85,4
XG + TA / M / 2,6	138,4
DW / C / 1,0	249,3
DW / C / 2,6	138,3
DW / C / 5,2	62,1
TA / C / 2,6	253,2
TA / C / 3,7	132,4
XG / C / 1,1	258,2
XG + TA / C / 1,0	184,9
XG + TA / C / 2,6	169,7
XG + TA / C / 5,1	45,9
BR / C / 1,0	236,6
BR / C / 2,6	88,9
BR / C / 5,1	77,0

Annexe 15 : Viscosité apparente estimée des solutions de gomme xanthane et gomme xanthane et tensioactif en fonction de la vitesse superficielle de gaz

