# Experimental Study of Gas-Liquid Mass Transfer Enhanced by Oscillating Grid Turbulence

### T. LACASSAGNE<sup>a</sup>, M. EL HAJEM<sup>a</sup>, S. SIMOENS<sup>a</sup>, J-Y. CHAMPAGNE<sup>a</sup>

a. Laboratoire de Mécanique des Fluides et d'Acoustique, UMR CNRS 5509, Université de Lyon, Ecole centrale de Lyon, UCB Lyon 1, INSA de Lyon, <u>tom.lacassagne@insa-lyon.fr</u>

## Résumé :

Le transfert de masse au niveau d'une interface gaz-liquide est un phénomène d'importance dans de nombreux procédés industriels et environnementaux. Sa vitesse dépend fortement des caractéristiques de l'écoulement dans une très fine région située directement sous l'interface. Dans cette étude, une turbulence contrôlée est générée au moyen d'un dispositif de grille oscillante et caractérisée par PIV (Particle Image Velocimetry). Des techniques de PLIFB (Planar Laser Induced Fluorescence « Bloquée ») et de PIV Stéréoscopique (SPIV) sont appliquées dans la région proche interface pour y décrire la turbulence et les phénomènes de transfert de masse. Un écoulement fortement tridimensionnel et une influence marquée de la turbulence sur les profils de concentration et le coefficient de transfert de masse sont observés.

## **Abstract :**

Mass transfer at gas-liquid interfaces is of great importance in many environmental and industrial processes. The mass transfer velocity strongly depends on the flow characteristics in rally thin sublayers underneath the interface. In the present study, a controlled turbulence is generated by an oscillating grid appartus and characterized by Particle Image Velocimetry measurements (PIV). Quenched Planar Laser Induced Fluorescence (Q-PLIF) and Stereoscopic Particle Image Velocimetry (SPIV) techniques are applied in the sub-surface region to describe the turbulence and the mass transfer phenomena close to the interface. The strongly three-dimensional feature of the flow is identified, and its influence on scalar concentration profiles and structures is observed.

### Keywords: Mass Transfer, Oscillating Grid Turbulence, PIV, PLIF

## 1 Introduction

Le transfert de masse au niveau des interfaces atmosphère-océans influence le climat, puisqu'il contrôle l'abondance dans l'atmosphère de gaz qui ont une grande importance météorologique, comme le dioxyde de carbone. Dans l'industrie, les écoulements diphasiques se rencontrent dans de nombreuses applications industrielles telles que l'industrie chimique, la production d'énergie et la dépollution (épuration de l'eau, capture du CO2). A titre d'exemple dans un photo-bioréacteur pour la culture

d'algues, avant que le CO2 ne puisse être consommé au cours de la photosynthèse, celui-ci doit être dissous dans le milieu de culture, principalement sous forme d'hydrogénocarbonates et de CO2 dissout. Cette étape de transfert de la phase gazeuse vers la phase liquide doit être optimisée pour accélérer les transferts [1]. Les performances de ces systèmes dépendent donc en partie du transfert de masse entre les deux phases et des mécanismes fins qui ont lieu au niveau de leur interface. La prédiction et la modélisation locale de ce transfert par les codes de calcul est nécessaire pour optimiser ces installations. La création de modèles reflétant la réalité nécessite alors une meilleure compréhension des mécanismes qui le régissent comme l'influence de la forme de l'interface et du régime de l'écoulement.

Le but de ce travail est de mettre en place un banc d'essais permettant d'étudier simultanément le champ de concentration du CO2 au moyen de la PLIF et le champ de vitesse par PIV dans le cas d'une interface gaz-liquide en présence d'une turbulence dans une cuve agitée par une grille oscillante.

#### 2 Théorie du transfert de masse gaz - liquide

Le transfert de masse entre une phase gazeuse et une phase liquide est à terme régi par la diffusion moléculaire à l'interface. Néanmoins, le transport par l'écoulement moyen et par la turbulence dans le gaz ou dans le liquide peut avoir une influence non négligeable même lorsque les transferts sont majoritairement dans la direction gaz vers liquide. Ce transfert de masse est contrôlé par les caractéristiques de la turbulence dans le liquide [2] et aussi par les caractéristiques des déformations de l'interface sous l'action du gaz en mouvement [3]**Erreur ! Source du renvoi introuvable.** L'établissement de modèles de transfert de masse nécessite alors une bonne compréhension fondamentale de la physique de ces processus. Les sources de turbulence peuvent être regroupées en trois grandes familles. La turbulence dans la phase gazeuse comme celle du vent au-dessus des océans ou des lacs qui peut modifier la forme de l'interface (et donc influer sur la surface de transfert). La turbulence dans le liquide, créée par cisaillement d'un écoulement en fond de canal, comme c'est le cas pour les rivières ou les cuves agitées. Enfin il existe la turbulence d'origine convective, créée par exemple, par la différence de température entre la surface libre et le fond. Ces turbulences ont une action de « rafraîchissement » à l'interface côté liquide.



Figure 1 : Transfert de masse à l'interface gaz-liquide, (a) Transfert lié à la turbulence, (b) Transfert à l'interface et couche limite du côté liquide [2]

*Figure 2 : Couche limite à l'interface gaz–liquide [2]* 

On considère souvent que lorsque la vitesse du gaz est comprise entre 3 et 8 m/s c'est la turbulence dans cette phase qui est responsable du transfert de masse gaz-liquide. En revanche, pour des vitesses inférieures, la turbulence dans la phase liquide est prédominante [4]. C'est l'action de ce type de turbulence qui est examinée dans l'étude actuelle.

#### Nomenclature

on de saturation $mol.m^{-3}$
e CO2 en fond de $mol. m^{-3}$
transfert dans le $m.s^{-1}$
nry propre au gaz $mol. Pa^{-1}. m^{-3}$

La diffusion moléculaire est l'acteur principal du transfert de masse à l'interface gaz-liquide, elle est donnée par la loi de Fick, reliant le flux de masse d'un soluté au gradient de concentration du soluté.

$$j = -D \,\underline{\nabla}C \tag{1}$$

Néanmoins, si l'on considère l'équation de transport total de masse et que l'on suppose la turbulence non négligeable, le flux de masse unidirectionnel (eq. 2) se décompose en un terme de diffusion moléculaire et un terme de transport lié à la turbulence. Ce dernier correspond à la corrélation entre les fluctuations de concentration en  $CO_2$  et de vitesse des fluctuations de vitesse.

$$j = -D\frac{\partial \bar{C}}{\partial z} + \overline{c'w'}$$
<sup>(2)</sup>

Par ailleurs, la caractérisation du transfert de masse est souvent faite à l'aide du coefficient de transfert de masse  $K_L$  (eq. 3) [2]. Ce coefficient dépend à la fois du degré de contamination de l'interface et de la présence ou non de processus d'échange turbulent près de l'interface.

$$K_L = j/\nabla C = j/(C_{sat} - C_b) \tag{3}$$

Dans le cas d'une interface non contaminée, Lewis et Whitman [5] considèrent qu'il est possible de décomposer ce coefficient en deux termes :

$$1/K_L = 1/k_L + 1/(H_c k_G) \tag{4}$$

Le premier,  $k_L$ , caractérise le transfert dans la phase liquide, le deuxième,  $k_G$ , caractérise le transfert dans la phase gazeuse. Les gaz comme l'O<sub>2</sub>, le N<sub>2</sub>, ou le CO<sub>2</sub> ont une faible solubilité dans l'eau et par conséquent une constante de Henry élevée. Cela implique que le terme  $1/(H_ck_G)$  est négligeable, la résistance au transfert du côté gaz est faible. De plus, le coefficient de diffusion D du CO<sub>2</sub> est de l'ordre de  $0.142 \times 10^{-4}$  m<sup>2</sup>/s dans l'air et  $2.0 \times 10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s dans l'eau. La résistance dans la phase liquide contrôle donc le transfert à travers l'interface, transfert qui est aussi fortement influencé par les conditions hydrodynamiques du côté du liquide. Pour mieux comprendre les mécanismes de transfert, il est classique dans ce cas de se concentrer sur la turbulence dans le liquide sous l'interface.

Le transfert de masse évolue selon la distance à l'interface. Lorsque la tension superficielle et la gravité sont assez grandes pour empêcher une déformation significative de l'interface, la tension superficielle

joue le rôle d'une paroi qui empêche les structures tourbillonnaires de se rapprocher de l'interface à moins d'une distance égale à leur échelle de longueur. Cela entraîne une diminution de la vitesse fluctuante verticale au niveau de l'interface. Ainsi, si les structures tourbillonnaires ne pénètrent théoriquement pas l'interface gaz-liquide [6], tout transport par turbulence devrait alors disparaitre, au voisinage immédiat de l'interface, et la diffusion moléculaire devrait être le seul mécanisme de transport. Admettant alors qu'à l'interface, la fluctuation de la vitesse verticale est nulle ( $w_0 = 0$ ), le coefficient de transfert de masse s'écrit :

$$K_L = -D(\partial \bar{C}/\partial z)_{z=0}/(C_{sat} - C_b)$$
<sup>(5)</sup>

Où  $(\partial \bar{C}/\partial z)_{z=0}$  est le gradient de concentration en dessous de l'interface, le long de la direction verticale z. C'est aussi la tangente au profil de concentration côté liquide au plus près de l'interface (cf. Figure 2). En introduisant  $\delta_D$  l'épaisseur de la couche de diffusion définie par :

$$\delta_D = (C_{sat} - C_b) / (\partial \bar{C} / \partial z)_{z=0}$$
(6)

Le coefficient de transfert peut s'écrire [5] :

$$K_L = D/\delta_D \tag{7}$$

L'objectif de cette étude est de mieux comprendre la physique des mécanismes qui contrôlent le processus d'absorption de  $CO_2$  dans un environnement dominé par une turbulence générée par cisaillement dans la phase liquide. Ainsi nous pourrons être amené à revoir la forme de l'équation (7) pour prendre en compte la turbulence. L'expérience retenue consiste à étudier le transfert de masse à l'interface gaz-liquide dans une cuve agitée par une grille oscillante. Les champs de vitesse et de concentration sont explorés simultanément à l'aide de la PIV et la PLIFB [7] afin de déterminer les liens qui existent entre l'hydrodynamique dans la phase liquide et le coefficient  $K_L$ .

#### **3** Dispositif expérimental

#### 3.1 Turbulence

Le banc d'essai est celui utilisé par Lacassagne et. al [8]. Il est constitué d'une cuve de dimension interne 277x277x550 mm<sup>3</sup>. Les parois latérales et le couvercle de la cuve sont réalisés en plexiglas pour permettre la visualisation de l'écoulement. La génération de turbulence dans la phase liquide est assurée par une grille oscillante de maille M=35 mm et d'une épaisseur de barreau d=7 mm ce qui donne une solidité  $\sigma$ =36% remplissant les critères de Hopfinger & Toly [9]. L'avantage de ce dispositif est la possibilité d'étudier le transfert et le transport en présence d'une turbulence contrôlée, à grande et à petite échelle, dans un écoulement facilement explorable et un temps d'observation illimité.

#### **3.2** Techniques de mesure optiques

Pour les mesures PLIFB, la concentration en CO<sub>2</sub> est déterminée à partir de l'intensité lumineuse émise par la fluorescéine sodium (Valliorgue *et al.* [10]). Ce fluophore a été choisi pour sa sensibilité au pH. Sa fluorescence est en effet inhibée lorsque le pH diminue, ce qui arrive lorsque le CO<sub>2</sub> est dissout dans l'eau. La cuve est remplie d'eau déminéralisée contenant d la fluorescéine sodium à une concentration de  $5 \times 10-7 \pm 0,1\%$  mol/. Le dispositif expérimental utilise une source laser Argon de puissance 4 W, un générateur de nappe constitué d'un filtre passe-bande (488 nm) correspondant à la longueur d'onde d'excitation de la fluorescéine sodium, de lentilles sphériques et cylindriques.

Un système de stéréo PIV a pu être mis en place pour obtenir des visualisations de champs de vitesse en 2 dimensions et 3 composantes (2D-3C) dans une zone proche interface gaz-liquide (Cf. Figure 3). Il se compose de deux caméras CCD pco Sensicam placées du même côté de la nappe laser et équipées d'objectifs de 60mm. L'axe optique des objectifs effectue un angle de  $\alpha$ =20° avec la normale au plan laser. Sur les caméras sont installés des dispositifs de Scheimpflung permettant, en imposant un désalignement de 4° entre l'axe optique du capteur et de l'objectif de chacune des caméras, de déformer la profondeur de champ du système pour l'adapter à la zone d'observation. Il est ainsi possible d'avoir des images de particules entièrement nettes malgré l'angle important d'inclinaison. Un prisme fluide est installé entre les caméras et la cuve pour compenser les déformations optiques liées à la réfraction au passage de la paroi [11].

Dans la configuration Stéréo PIV, la mesure PLIFB simultanée peut éventuellement être réalisée grâce à une caméra sCmos LaVision placée de l'autre côté de la nappe laser. La synchronisation des deux mesures est alors assurée par un Programmable Trigger Unit Davis. En plus des chaînes de mesure de vitesse par PIV et de concentration par la fluorescence induite par plan laser (PLIF), le banc d'essais est équipé de sondes de mesure de température, de pH et de concentration de CO<sub>2</sub>.



Figure 3 : Montage Expérimental

## 4 Résultats et discussions

## 4.1 Caractéristiques de la turbulence de grille

A partir des champs de vitesse, il a été montré que, pour une fréquence d'oscillation donnée de la grille, les différentes caractéristiques relevées de la turbulence sont comparables avec celles décrites par Hopfinger and Toly [9] et Nokes [12]. Deux types de structures sont observés : les jets et les sillages. Les jets sont créés par la poussée des barreaux de la grille sur le fluide. Les sillages apparaissent en dessous et au-dessus de la grille. L'importance des jets et des sillages dépend de la géométrie de la grille. Si la solidité de la grille est importante, les jets ont un rôle important dans la création de la turbulence loin de la grille. Si la solidité de la grille est faible et proche de 36% [13] comme c'est le cas pour l'étude actuelle, la turbulence est créée principalement par les interactions entre les sillages. C'est pour cela que

l'intensité de la turbulence au niveau des barres est supérieure à celle au niveau des ouvertures. Par la suite, les jets et les sillages rentrent en interaction et la turbulence se diffuse dans la cuve. Une turbulence sans cisaillement avec une très faible variation horizontale apparaît à une distance suffisante de la grille, entre 2 et 4 fois la taille de maille suivant les références. La distribution verticale de la turbulence peut être liée aux caractéristiques de la grille, principalement à la fréquence d'oscillation, l'amplitude d'oscillation S, la taille de la maille ou la distance entre le centre de 2 barres consécutives M et la distance à l'interface gaz-eau (Cf. Figure 4). On peut ainsi établir les relations suivantes pour les fluctuations de vitesse horizontale et verticale respectivement:

$$u'_{HT} = C1_{HT}. f. S^{1.5}. M^{0.5}. z_a^{-1}$$
(8)

$$w'_{HT} = C2_{HT} \cdot u'_{HT} \tag{9}$$

Au centre de la cuve, les valeurs de  $C1_{HT} = 0.25$  et  $C2_{HT} = 1.25$ , obtenues d'après les profils des RMS des fluctuations de vitesses moyennées (cf. Figure 4), sont comparables à celles énoncées par Hopfinger and Toly [9].

Notons que ce type de turbulence est forcée et potentiellement cyclique puisque la grille est activée tout au long de l'expérience. Il a été vérifié dans un premier temps que les champs de vitesse mesurés dans la zone d'étude de transfert de masse située sous l'interface ne présentaient pas de composante cyclique corrélée au mouvement de la grille, selon la méthode utilisée habituellement dans les cuves agitées [14].



Figure 4 : Décroissance des fluctuations de vitesses au-dessus des barreaux (a), des maille (b)

#### 4.2 Turbulence proche interface

Les mesures PIV Stéréoscopiques (SPIV) ont été réalisées dans une zone de quelques centimètres de profondeur sous interface gaz-liquide, correspondant a priori à la profondeur d'influence de cette interface [2], [6], [15]. Contrairement à ce qui est observé dans le bulk (Cf. Figure 4), les composantes horizontales des fluctuations de vitesse y sont dominantes par rapport à la composante verticale. Leur décroissance est moins rapide que pour la composante horizontale (Cf. Figure 5) et ne correspond plus

au modèle théorique de Hunt & Graham [6] (établi pour des interfaces liquide-solide) comme Janzen *et. al* [16] l'ont également montré.



Figure 5 : Profils adimensionnels des fluctuations de vitesse sous l'interface en fonction de la profondeur adimensionnée par la sous-couche visqueuse théorique

Les champs de vitesse instantanés permettent de confirmer l'existence de phénomènes fortement tridimensionnels (Cf. Figure 6), et laissent présumer d'un comportement plus complexe qu'un simple renouvellement de surface par remontée turbulente de fluide frais (phénomènes d'injection, tourbillons horizontaux...).



Figure 6 : Champ instantané stéréo PIV

## 4.3 Dissolution

L'observation de champs de concentration instantanés et moyennés dans le temps permettent de mettre en évidence plusieurs phénomènes.

Tout d'abord, une sous couche fortement concentrée est observable sous l'interface. En traçant la tangente à l'interface du profil de concentration de vitesse, il est possible d'estimer la taille de cette sous couche, comme illustré en figure 7.



Figure 7 : Profil de concentration

Pour cette valeur de  $\delta_c$ , il est possible de calculer le coefficient de transfert de masse selon l'équation 7. Il vient alors  $K_L = 1.68 \cdot 10^{-6} m. s^{-1}$ , ce qui correspond en première approche aux valeurs obtenues par Janzen *et. al* [16].

En accord avec la littérature [2], [15], deux types d'évènements de transfert de masse sont observables à partir des champs de concentration instantanés (Cf. Figure 8) :

- Des évènements de renouvellement (« renewal »), correspondant à une remontée de fluide « frais », c'est-à-dire sous-concentré en gaz, vers la surface pour y remplacer le fluide saturé.
- Des évènements d'injection, correspondant à une descente de fluide sur-concentré vers le fond pour y être mélangé par turbulence.



Figure 7 : Champ instantané de concentration et évènements d'injection et de renouvellement (« renewal »)

#### 4.4 Mesures couplées

Les mesures couplées PLIFB-SPIV permettent de visualiser simultanément, entre autres, les champs de vitesse et de concentration instantanés. Sur la figure 9 (a) on retrouve bien la correspondance entre le champ de vitesse descendant et l'évènement d'injection qui peut être observé sur le champ de concentration simultané. En revanche, la figure 9 (b) suggère que la structure responsable de cet évènement d'injection est fortement tridimensionnelle.



Figure 7 : Champs de vitesse et de concentration instantanés (a) 2D-2C, (b) 2D-3C

#### **Conclusion et perspectives**

Grâce à la mise en œuvre de mesures simultanées par PIV et PLIFB, il a été possible de déterminer les champs de vitesse et de concentration à l'interface gaz-liquide sous l'influence d'une turbulence engendrée par une grille oscillante. L'influence des paramètres tels que la fréquence et l'amplitude d'oscillation sur la décroissance de la turbulence sont conformes à la littérature. Des mesures en stéréo PIV ont permis d'identifier certaines caractéristiques de la turbulence dans la zone de proche interface. Le champ de concentration permet de distinguer deux zones, une première localisée proche de l'interface correspond à la couche diffusionnelle où la concentration en  $CO_2$  est maximale. Dans une deuxième zone s'étendant jusqu'au fond de la cuve, les structures turbulentes sont à l'origine de l'entraînement du  $CO_2$  loin de l'interface. En complément, d'autres analyses permettent de remonter à l'épaisseur de la couche de la couche diffusionnelle et au coefficient de transfert de masse  $K_L$  comme décrit classiquement. Une analyse plus fine devrait permettre par la suite de remonter aux termes du flux turbulent c'w' ainsi qu'aux flux turbulents horizontaux c'u' et c'v' et de voir jusqu'où ils influencent le transfert de masse, au moyen d'une décomposition en quadrants ou en octants [15], [17].

Dans un second temps, une étude de dissolution du dioxyde de carbone dans un liquide présentant un caractère non newtonien, comme une solution diluée de polymère, est envisagée. La variation de viscosité inhérente à la viscoélasticité des solutions de polymère est supposée modifier de manière non négligeable à la fois la diffusion du gaz dissout (par modification du nombre de Schmidt) et l'hydrodynamique proche interface, ce qui pourrait conduire à des comportements tout à fait différents pour le transfert de masse.

## References

- [1] P. Valiorgue, "Mass transfer in intermittent horizontal gas-liquid flow and application to photobioreactors," Lyon 1, 2012.
- [2] H. Herlina, "Gas transfer at the air-water interface in a turbulent flow environment," Universitätsverlag Karlsruhe, Karlsruhe, 2005.
- [3] D. E. Turney and S. Banerjee, "Air–water gas transfer and near-surface motions," *J. Fluid Mech.*, vol. 733, pp. 588–624, Oct. 2013.
- [4] T. G. Theofanous, "Conceptual Models of Gas Exchange," in *Gas Transfer at Water Surfaces*, W. Brutsaert and G. H. Jirka, Eds. Springer Netherlands, 1984, pp. 271–281.
- [5] W. K. Lewis and W. G. Whitman, "Principles of Gas Absorption.," *Ind. Eng. Chem.*, vol. 16, no. 12, pp. 1215–1220, Dec. 1924.
- [6] J. C. R. Hunt, "Turbulence Structure and Turbulent Diffusion Near Gas-Liquid Interfaces," in Gas Transfer at Water Surfaces, W. Brutsaert and G. H. Jirka, Eds. Springer Netherlands, 1984, pp. 67–82.
- [7] S. Simoens and M. Ayrault, "Concentration flux measurements of a scalar quantity in turbulent flows," *Exp. Fluids*, vol. 16, no. 3–4, pp. 273–281, Feb. 1994.
- [8] T. Lacassagne, M. El-Hajem, F. Morge, S. Simoens, and J.-Y. Champagne, "Study of Gas Liquid Mass Transfer in a Grid Stirred Tank," *Oil Gas Sci. Technol. – Rev. D'IFP Energ. Nouv.*, vol. 72, no. 1, p. 7, Jan. 2017.
- [9] E. J. Hopfinger and J.-A. Toly, "Spatially decaying turbulence and its relation to mixing across density interfaces," *J. Fluid Mech.*, vol. 78, no. 1, pp. 155–175, Nov. 1976.
- [10] P. Valiorgue, N. Souzy, M. E. Hajem, H. B. Hadid, and S. Simoëns, "Concentration measurement in the wake of a free rising bubble using planar laser-induced fluorescence (PLIF) with a calibration taking into account fluorescence extinction variations," *Exp. Fluids*, vol. 54, no. 4, pp. 1–10, Apr. 2013.
- [11] A. K. Prasad and K. Jensen, "Scheimpflug stereocamera for particle image velocimetry in liquid flows," *Appl. Opt.*, vol. 34, no. 30, p. 7092, Oct. 1995.
- [12] R. I. Nokes, "On the entrainment rate across a density interface," *J. Fluid Mech.*, vol. 188, pp. 185–204, Mar. 1988.
- [13] S. M. Thompson and J. S. Turner, "Mixing across an interface due to turbulence generated by an oscillating grid," *J. Fluid Mech.*, vol. 67, no. 2, pp. 349–368, Jan. 1975.
- [14] R. Escudié and A. Liné, "Experimental analysis of hydrodynamics in a radially agitated tank," *AIChE J.*, vol. 49, no. 3, pp. 585–603, Mar. 2003.
- [15]E. A. Variano and E. A. Cowen, "Turbulent transport of a high-Schmidt-number scalar near an air-water interface," *J. Fluid Mech.*, vol. 731, pp. 259–287, Sep. 2013.
- [16] J. G. Janzen, H. Herlina, G. H. Jirka, H. E. Schulz, and J. S. Gulliver, "Estimation of mass transfer velocity based on measured turbulence parameters," *AIChE J.*, vol. 56, no. 8, pp. 2005–2017, Aug. 2010.
- [17] J.-Y. Vinçont, S. Simoëns, M. Ayrault, and J. M. Wallace, "Passive scalar dispersion in a turbulent boundary layer from a line source at the wall and downstream of an obstacle," J. Fluid Mech., vol. 424, pp. 127–167, Dec. 2000.