

Transfert à une interface liquide/liquide au fond d'une cuve cylindrique à couvercle tournant

Mahmoud Al Radi^a, Gérard Cognet^b

^a LEGI/ENSHMG, BP 53, 38041 Grenoble, France

^b LEGI/ENSGI-INPG, BP 53, 38041 Grenoble, France

Reçu le 10 janvier 2002 ; accepté après révision le 26 février 2002

Note présentée par René Moreau.

Résumé

On étudie le transfert de masse à l'interface liquide/solide et liquide/liquide dans les mêmes conditions géométriques et hydrodynamiques. Nous avons utilisé une méthode électrodiffusionnelle, avec une électrode de travail en Gallium dont le point de fusion est proche de la température ambiante (29,8 °C).

Nous avons constaté des lois de transfert très voisines dans les cas liquide/solide et liquide/liquide en régime laminaire ; par contre il existe une différence notable en régime turbulent pouvant être interprétée par l'apparition de vagues à l'interface liquide/liquide, qui accroît très fortement le transfert. *Pour citer cet article : M. Al Radi, G. Cognet, C. R. Mécanique 330 (2002) 327–332.* © 2002 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

mécanique des fluides / transfert de masse / interface / instabilité

Transfer at a liquid/liquid interface at the bottom of a cylindrical vessel

Abstract

The mass transfer at liquid/solid and liquid/liquid interface in the same geometrical and hydrodynamical conditions is the aim of this study. We used an electrodiffusion method with a working electrode in Gallium the melting point of which is near to the room temperature (29.8 °C).

We observed similar transfer laws in the liquid/solid and liquid/liquid cases for laminar flow; on the contrary a great difference appears in turbulent flow. This feature can be interpreted by the occurrence of waves at the liquid/liquid interface which strongly increases the transfer. *To cite this article: M. Al Radi, G. Cognet, C. R. Mécanique 330 (2002) 327–332.* © 2002 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

fluid mechanics / mass transfer / interface / instability

Abridged English version

In this study we compare the mass transfer which occurs at solid/liquid or liquid/liquid interface under the same geometrical and hydrodynamical conditions.

The mass transfer is obtained by the electrodiffusional method using a metal electrode made of Gallium which changes from solid to liquid state near from the room temperature (29.8 °C).

Adresses e-mail : mahmoud.alradi@hmg.inpg.fr (M. Al Radi); gerard.cognet@inpg.fr (G. Cognet).

The flow is realized in a cylindrical vessel with a rotating lid and a fixed bottom. The liquid is an aqueous solution of active ions (potassium ferri-ferro cyanide) with excess of neutral ions (sodium hydroxyde).

The mass transfer is determined by the electrochemical reaction at the cathode which is an annular ring of Gallium inserted in the bottom. In this region the flow is centripetal as a consequence of the rotation of the liquid bulk in the central part of the vessel.

In that way, the flow field may be considered as fairly well known near the solid/liquid or liquid/liquid interface.

The experimental results of the mass transfer presented under a non-dimensional form: Sherwood number/(Schmidt number)^{1/3} versus Reynolds number, allow us to distinguish three main domains.

The first one concerns the low Reynolds numbers ($Re < 7100$): there is no significant difference according to the solid or liquid state of the interface. The power law which corresponds to the theoretical value in laminar flow is confirmed ($\cong Re^{0.5}$).

When $Re > 7100$, the mass transfer increases much more rapidly at the liquid electrode compared to the solid one. The power law is $(Re)^{1.31}$ in that case. The flow is probably still laminar but the liquid/liquid interface is become unstable and waves appear increasing the exchange surface and producing local flow fluctuations such as turbulent promoters.

When $Re > 21000$, the turbulence which is developped in the vessel is detected by the solid electrode then the mass transfer law is proportional to $(Re)^{1.19}$.

The important feature of these results is the great difference which occurs when the instabilities appear at the liquid/liquid interface.

Direct visualization of the waves confirms this interpretation, even if a deep understanding of the mecanism is not yet obtained.

1. Introduction de l'étude

La technique électrodiffusionnelle, dite polarographique, a été souvent utilisée pour mesurer le transfert de matière entre un liquide et une paroi munie d'une électrode affleurante. Selon les dimensions de celle-ci on peut mesurer le transfert local et en déduire le cisaillement pariétal [1]. Dans l'étude rapportée ici l'électrode est constituée d'un métal qui peut, selon la température, se trouver à l'état solide ou liquide. Dès lors, on se trouve dans une situation de transfert liquide–solide ou liquide–liquide avec des conditions géométriques et hydrodynamiques très voisines qui facilitent une approche comparative des deux types d'interface et de leurs propriétés respectives de transfert.

Le choix s'est porté sur un dispositif d'écoulement présentant une symétrie axiale, constituée par une cuve cylindrique à fond fixe et couvercle tournant.

Le transfert de matière s'effectue entre le liquide remplissant la cuve, entraîné en rotation par le couvercle, et l'électrode annulaire située au fond de la cuve.

On décrit tout d'abord les conditions expérimentales concernant la mise en mouvement du liquide dans la cuve et la mise en œuvre de la technique de mesure électrochimique.

On rapporte l'analyse de l'écoulement dans la cuve que l'on compare à des résultats obtenus par observation directe. On produit ensuite les données de mesures de transfert dont on discute l'interprétation.

2. Dispositif d'écoulement et métrologie

- Le montage expérimental est constitué d'une cuve cylindrique en plexiglas de diamètre $\Phi = 2R = 160$ mm limitée par un couvercle réalisé par un disque tournant situé à la distance $H = 30$ mm du fond (Fig. 1).
- Le fond dispose d'une rigole annulaire de diamètre intérieur 110 mm et de largeur 7 mm pouvant être remplie d'un métal introduit par coulée ; le Gallium a été retenu pour sa basse température de fusion (29,8 °C).

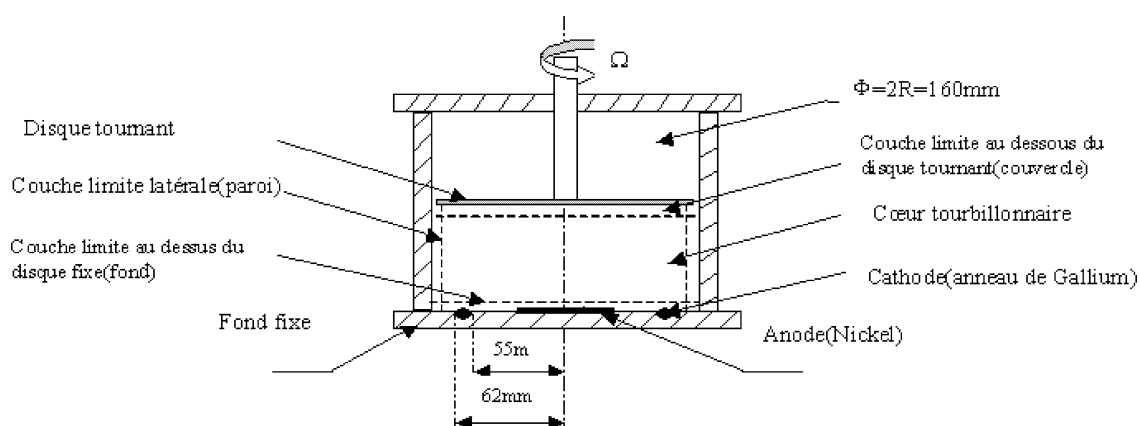


Figure 1. Schéma de l'installation.

Figure 1. Experimental set-up.

- Le liquide dans la cuve est une solution aqueuse de soude (5 mole/m^3) avec un mélange équimolaire Red-Ox de Ferri-Ferrocyanure de Potassium ($0,5 \text{ mole/m}^3$) permettant la mise en œuvre de la technique polarographique.
- L'entraînement du disque est assuré par un moteur à vitesse Ω variable entre 0,63 et 63 rad/s et contrôlée à mieux que 1 % près. Le nombre de Reynolds défini par $Re = R^2\Omega/\nu$ (ν viscosité cinématique) varie ainsi entre $4 \cdot 10^3$ et $4 \cdot 10^5$; un thermostat permet de maintenir la température de la cuve entre 15 et 40 °C à 0,1 °C près.

Un système potentiostatique permet de faire varier le potentiel de l'électrode active jusqu'aux conditions de courant limite. Dans ce cas, seul le gradient de concentration des ions actifs est à considérer au voisinage de l'électrode.

3. Analyse du champ hydrodynamique

L'écoulement du fluide dans la cavité cylindrique sous l'effet de la rotation du couvercle peut se décomposer en trois régions principales combinées :

- A proximité du couvercle, l'écoulement est sensiblement celui qui existe au voisinage d'un disque tournant perturbé par la présence d'une paroi latérale. Il se traduit par un écoulement ascendant uniforme dans une large zone autour de l'axe de rotation, le mouvement centrifuge se développe dans la couche limite lorsqu'on se rapproche du couvercle (Fig. 2).
- Dans la région intermédiaire l'écoulement peut être représenté comme un fluide tournant pratiquement en bloc ; la mesure par vélocimétrie laser (VLD) montre que la vitesse angulaire est proche du tiers de la vitesse de rotation du couvercle (Fig. 2) [2].
- L'écoulement en bloc est freiné par la présence du fond fixe qui génère en son voisinage une couche limite avec mouvement centripète et un courant fluide ascendant qui se conjugue avec celui créé par le disque tournant (Fig. 3).

Les parois latérales renforcent cet effet en créant les conditions de recirculation de haut en bas de la cavité dans la zone externe et de bas en haut dans la région autour de l'axe.

4. Transfert aux interfaces liquide/solide et liquide/liquide

Dans des conditions géométriques et hydrodynamiques similaires, on a mesuré le transfert de matière entre le liquide en écoulement et l'électrode annulaire placée au fond de la cuve.

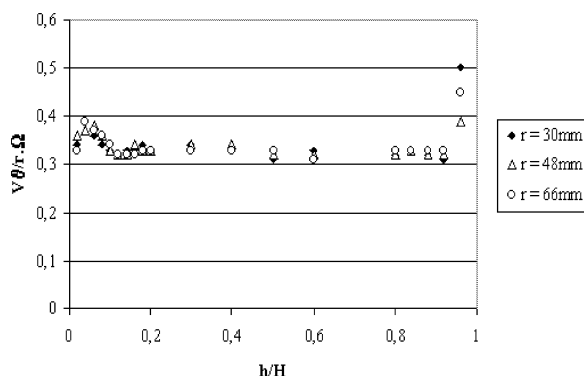


Figure 2. Vitesse azimutale du cœur d'écoulement « en bloc » (VLD).

Figure 2. Azimuthal velocity of the bulk flow (LDV).

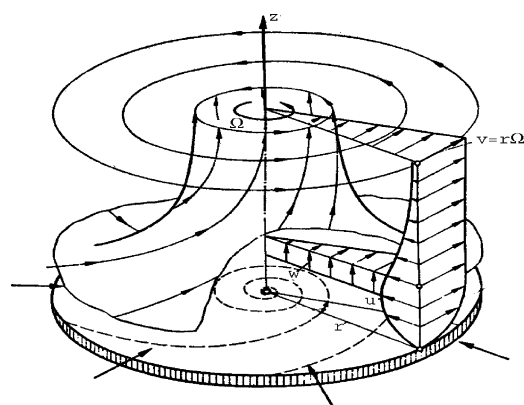


Figure 3. Écoulement tournant au dessus d'un disque fixe [3].

Figure 3. Rotating flow above a fixed disk.

L'électrode en Gallium est solide ou liquide suivant que la température est inférieure ou supérieure à la température de fusion ($T_f = 29,8^\circ\text{C}$). Selon l'état de l'électrode, les interactions avec le liquide en mouvement seront différentes.

4.1. Electrode solide

La Fig. 4 montre la densité de courant limite mesurée en fonction de la vitesse de rotation du disque. On distingue 3 zones d'évolution dans la courbe présentée en coordonnées log-log. Une variation de pente $\cong 0,51$ aux faibles vitesses suivie d'une zone de transition de variation plus lente enfin une évolution de pente nettement plus élevée $\cong 1,19$ au-delà de $\Omega = 44$ rad/s.

Cette évolution globale traduit la situation d'un écoulement en rotation en bloc au-dessus du fond ; les couches limites dynamique et massique qui se développent donnent lieu à une loi de transfert en $\Omega^{0,51}$ en régime laminaire. L'accroissement de la vitesse de rotation du disque crée un changement de régime avec transition vers la turbulence qui modifie la loi. La rugosité de la surface de l'électrode et sa forme légèrement convexe résultant de la solidification du Gallium remplissant la rigole expliquent probablement une loi de puissance supérieure à $\Omega^{0,9}$ à laquelle conduirait une surface lisse continue avec le fond [4].

4.2. Electrode liquide

Les mesures de transfert ont été effectuées à la température de $33,5^\circ\text{C}$ Fig. 5.

Aux faibles vitesses la loi est sensiblement la même que pour l'électrode solide ($\sim \Omega^{0,56}$) par contre on constate une variation brusque de la pente à une valeur critique beaucoup plus faible que celle correspondant à l'apparition de la turbulence avec une pente nettement supérieure ($\sim \Omega^{1,31}$) sans transition intermédiaire.

4.3. Éléments de comparaison et d'interprétation

La représentation des résultats sous forme adimensionnelle permet une comparaison directe des comportements de l'électrode respectivement à l'état solide et à l'état liquide Fig. 6.

On a choisi d'exprimer ici le nombre de Sherwood : $Sh = KL/D$, rapporté à la puissance 1/3 du nombre de Schmidt, en fonction du Reynolds : $Re = \Omega RL/\nu$ définis l'un et l'autre par référence à la largeur L de l'électrode annulaire, K étant le coefficient de transfert moyen de matière à l'électrode. On peut écrire : $Sh/Sc^{0,33} = a Re^b$; sous cette présentation les résultats sont très voisins en régime laminaire, que l'électrode soit solide ou liquide, avec $0,51 < b < 0,56$, proche de la valeur 0,5 (solide) [5] et de 0,56 (liquide) [6]. Par contre aux grandes valeurs de Reynolds les comportements sont très distincts ; lorsque

Figure 4. Courant limite (I_l) en fonction de la vitesse angulaire Ω à $T = 25^\circ\text{C}$ (Gallium solide).

Figure 4. Limiting current (I_l) versus Ω at $T = 25^\circ\text{C}$ (solid Gallium).

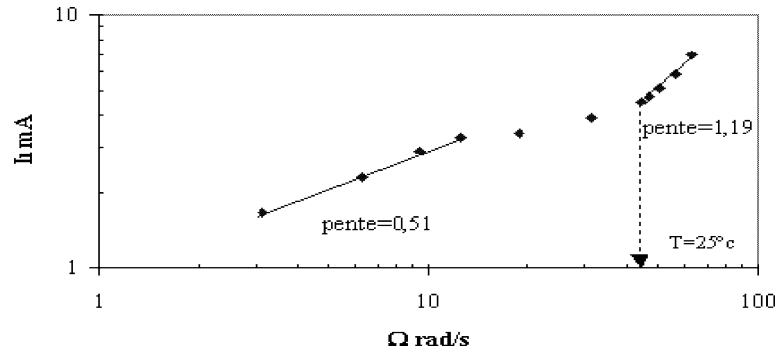


Figure 5. Courant limite (I_l) en fonction de Ω à $T = 33,5^\circ\text{C}$ (Gallium liquide).

Figure 5. Limiting current (I_l) versus Ω at $T = 33,5^\circ\text{C}$ (liquid Gallium).

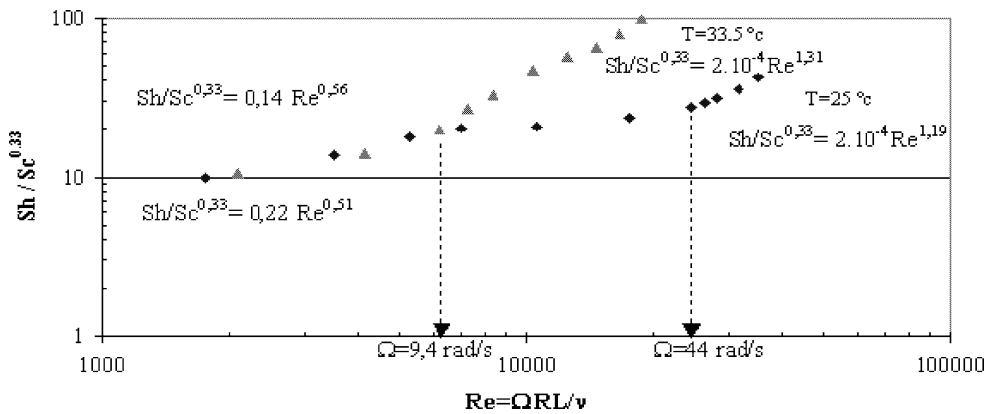
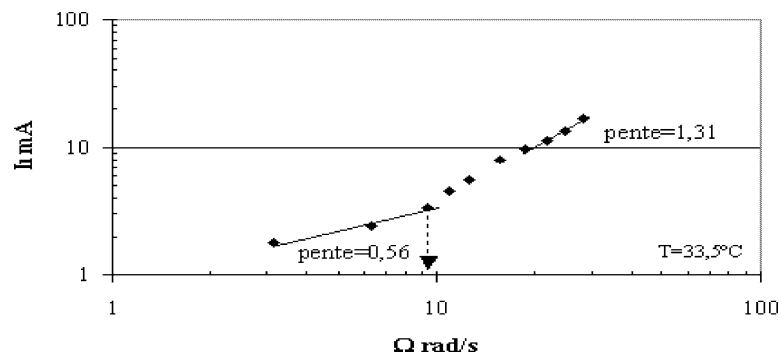


Figure 6. Sh en fonction de Re pour les cas d'interface (♦) solide/liquide et (▲) liquide/liquide.

Figure 6. Sherwood number versus Re for the (♦) liquid/solid and (▲) liquid/liquid interface.

l'électrode est liquide on observe à partir de $Re = 7100$ une croissance très rapide du transfert de matière avec $b = 1,31$; quand l'électrode est solide il faut atteindre $Re = 24600$ et l'apparition probable du régime turbulent pour constater une valeur de l'exposant $b = 1,19$, supérieure à la valeur théorique $0,9$ [5].

Ainsi l'électrode à l'état liquide est le siège d'un transfert beaucoup plus important que l'électrode à l'état solide dans l'intervalle $7100 < Re < 24600$; le rapport atteint environ 4 pour $Re = 20000$. Cet écart traduit donc un comportement de l'interface très différent suivant l'état solide ou liquide de l'électrode.

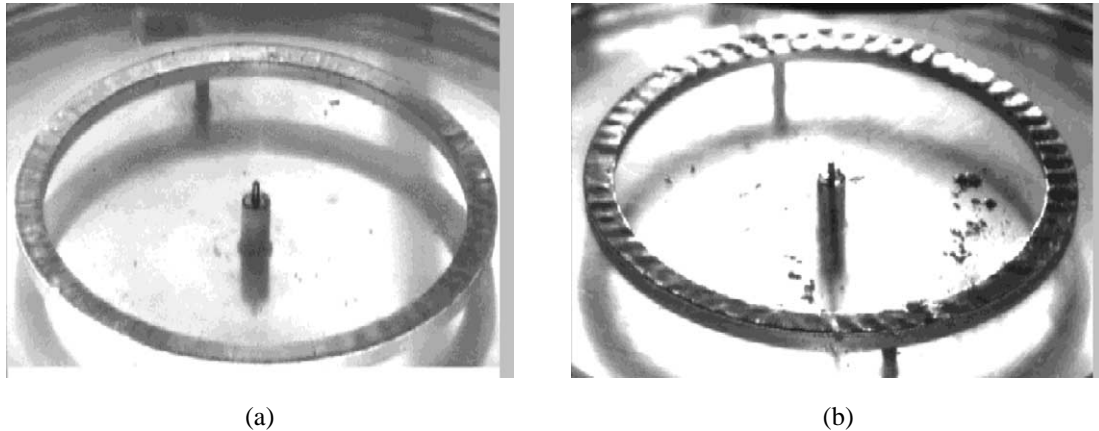


Figure 7. Anneau de Gallium liquide. (a) $\Omega = 6,28$ rad/s, $T = 33,6^\circ\text{C}$. (b) $\Omega = 9,4$ rad/s, $T = 33,6^\circ\text{C}$.

Figure 7. Liquid Gallium ring. (a) $\Omega = 6.28$ rad/s, $T = 33.6^\circ\text{C}$. (b) $\Omega = 9.4$ rad/s, $T = 33.6^\circ\text{C}$.

Une observation attentive de la forme de l'interface liquide/liquide montre l'apparition et le développement d'ondes régulières sur l'anneau liquide qui correspond manifestement avec l'accroissement rapide du transfert Figs. 7a–b.

5. Discussion et conclusion

Les informations apportées par l'observation d'un accroissement très sensible du transfert de matière conjointement à l'apparition des ondes interfaciales traduisent un mécanisme d'échanges très largement amplifiés par rapport à une surface lisse. On peut considérer que plusieurs éléments y contribuent.

- en premier lieu il y a une augmentation importante de la surface d'échange due à la présence des ondes ;
- par ailleurs le mouvement du liquide est soumis à des fluctuations qui favorisent l'échange par le renouvellement plus intense des couches de fluides en contact ;
- enfin la « rugosité » introduite par le développement des instabilités de surface perturbe l'écoulement du liquide tournant dans des zones plus rapides et, par-là même, provoque des transferts plus importants.

La mise en évidence de tels phénomènes peut préfigurer des études plus complètes sur les échanges aux interfaces liquide/liquide.

Références bibliographiques

- [1] M. Souhar, G. Cognet, Measuring techniques in gas–liquid two phase flows, in: IUTAM Symposium, Nancy, Springer-Verlag, 1983, pp. 723–744.
- [2] A. Spohn, Écoulement et éclatement tourbillonnaires engendrés par un disque tournant dans une enceinte cylindrique, Thèse de doctorat INPG, 1991.
- [3] H. Schlichting, Boundary Layer Theory, 7th ed., McGraw-Hill, 1982.
- [4] V.G. Levich, Physicochemical Hydrodynamics, Prentice-Hall, 1968.
- [5] M. Daguene, F. Aouanouk, G. Cognet, Calcul du flux limite de diffusion sur la surface d'une sonde circulaire située dans le plan d'un disque tournant, C. R. Acad. Sci. Paris 271 (1970) 328–331.
- [6] G. Cognet, S. Martemianov, G. Pascal, V. Sobolik, Etude d'une interface liquide–liquide par la méthode électrodiffusionnelle, C. R. Acad. Sci. Paris, Série IIB 320 (1995) 505–508.