



الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية  
République Algérienne Démocratique et  
Populaire

وزارة التعليم العالي والبحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de  
Recherche Scientifique

UNIVERSITE M'HAMED BOUGARABOUMERDES

Faculté des Sciences de l'Ingénieur

Département de Génie des Procédés

Laboratoire de Recherche Technologique Alimentaire(LRTA)

**Mémoire de Fin d'Etudes**

En vue de L'obtention du titre de Master 2 en Génie des Procédés

Option : Génie Chimique

**Thème**

**CARACTERISATION DU MICRO-MELANGE DANS UN  
REACTEUR A GEOMETRIE TORIQUE**

**Rédigé par :**

- M<sup>me</sup> FERHAT Linda.
- M<sup>elle</sup> AMRANE Hizia.

**Soutenu le : 23/07/ 2019, Devant les jurys :**

Mm. ASSELAH Amel	MCA	U.M.B.B	Présidente
Mr. AKSAS Hammouche	Professeur	U.M.B.B	Examineur
Mr. NOURI L'hadi	Professeur	U.M.B.B	Promoteur
Mr. SAYAH Houcem	Doctorant	U.M.B.B	Co-Promoteur

Promotion 2018/2019

## ملخص:

يلعب الخليط على المستوى الجزيئي دورا هاما خلال العملية الصناعية في الانتقائية, المردود ونوعية المنتج النهائي. ان الهدف من هذه المذكرة هو دراسة تحديد مواصفات الخليط على المستوى الجزيئي باستعمال مفاعل طوقي. ولقد تمت دراسة هذا الخليط الجزيئي بالاعتماد على الطريقة الكيميائية المتمثلة في تفاعل كيميائي من نوع متوازي – تنافسي إيودي-إيودات من اجل تحديد خصائص الخليط الجزيئي المتمثلة في فعالية وزمن هذا الأخير

**الكلمات الدالة:** الخليط الجزيئي-المفاعل الطوقي- مستوى الجزيئات – التميز – فعالية المزج.

## Résumé:

Dans les procédés industriels, Le mélange à l'échelle moléculaire (micromélange) joue un rôle important dans la sélectivité, le rendement et la qualité des produits finaux.

L'objectif de ce travail est l'étude de la caractérisation du micro-mélange, dans un réacteur à géométrie torique fermé du volume 2,1 l. en se basant sur un système réactionnel test chimique du type parallèle concurrente, il s'agit du couple iodure-iodate dans le but de déterminer les paramètres caractéristiques du micromélange, à savoir l'efficacité ( $\alpha$ ) et le temps de ce dernier ( $t_m$ ).

**Les mots clés :** Réacteur torique - Micro-mélange - L'indice de ségrégation - l'efficacité du micro-mélange.

## Abstract:

In the industrial processes, the mixing on a molecular scale plays a very important role in the selectivity, the yield and quality of the final products.

The objective of this work is the study and the characterization of the mixing on a molecular scale “micro-mixing” in a torus reactor.

It's study was realized by means of the chemical method test based on a system of parallel competing reactions, it is about the system iodide-iodate with the aim of determining the characteristic parameters of micro-mixing, namely it's efficiency ( $\alpha$ ) and the it's time ( $t_m$ ).

**Keywords:** Torus reactor- Micro-mixing - the segregation-Efficiency of the micro-mixing.

## **Remerciement**

*Nous remercions en premier lieu mon Dieu qui nous a donné la puissance et la santé durant nos années d'études.*

*Ce travail a été effectué au sein du Laboratoire de Recherche Technologie Alimentaire de l'université M'Hamed Boguera de Boumerdès (UMBB). Il s'inscrit dans une dynamique de recherches dans le domaine de l'ingénierie de la réaction chimique et aborde particulièrement des thèmes issus du génie procédés.*

*Ce travail a été effectué sous la direction de monsieur NOURI L'hadî professeur à l'université de Boumerdès qui n'a cessé de nous témoigner sa confiance et de nous encourager dès le début de ce travail. Nous tenons à lui adresser ici nos sincères remerciements. Sa contribution hautement distinguée dans la réalisation de ce travail nous restera à l'esprit. Son sens d'appréciation scientifique, sa rigueur pour le travail bien fait, ses suggestions pertinentes dans la recherche et surtout sa disponibilité à nous recevoir sans hésitation malgré son agenda chargé, ont permis à maintes reprises, de clarifier nos pensées.*

*Nous tenons également à remercier monsieur SAYAH Houcem futur docteur, pour son encouragement, son soutien, son écoute, sa patience et ses conseils fructueux.*

*Madame ASSELAH AMEL, MCA à l'UMBB, nous avons l'honneur d'accepter la présidence du jury de notre travail qu'elle trouve ici l'expression de notre reconnaissance.*

*Nous tenons à remercier monsieur AKSAS HAMMOUCHE, professeur à L'UMBB, d'avoir accepté d'être parmi les membres du jury.*

*Nous remercions toute personne qui nous a aidés de loin ou de près pour réaliser ce travail.*

*Dédicaces*

*A ma chère maman*

*A mon cher Papa*

*A mes frères et*

*mes beaux frères*

*A mes sœurs et*

*mes belles sœurs*

*A mes chères neveux et nièces*

*A mon amie Linda.*

*A mon amie Hdjira*

*A tous ceux qui me sont chères.*

*Hizia*



*Dédicaces*

*A la mémoire de mon cher papa.*

*A ma chère maman.*

*A ma chère sœur.*

*A mon cher mari.*

*A mon cher beau père*

*A ma chère belle mère*

*A ma chère grande mère*

*Linda.*



## Sommaire

Résumé.....	3
Remercîment.....	
Dédicaces.....	
Liste des Figures.....	
Liste des Tableaux .....	
Abréviations.....	
INTRODUCTION GENERALE .....	1
La première partie : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE	
Chapitre I : Les réacteurs toriques.....	
I.1. Introduction .....	3
I.2. Travaux antérieurs .....	3
I.3. Présentation des réacteurs à boucle torique .....	6
I.4. Définition des paramètres hydrodynamiques .....	8
I.4.1. Régime d'écoulement.....	8
I.4.2. Temps de circulation ( $t_c$ ) .....	10
I.4.3. Temps de mélange ( $t_m$ ).....	11
I.4.4. Nombre de circulation ( $N_0$ ) .....	12
I.4.5. Distribution du temps de séjour (DTS) .....	13
I.4.6. La puissance moyenne dissipée ( $\epsilon$ ).....	15
Chapitre II : Le micro-mélange.....	
II.1. Introduction.....	16
II.2. Travaux antérieurs sur les micro-mélanges .....	17
II.3. Etapes d'un processus du mélange des liquides réactionnels .....	20
II.3.1. Le macro-mélange .....	20
II.3.2. le méso-mélange .....	20
II.3.3. Le micro-mélange.....	21



II.4. Phénomène de micro-mélange et état de ségrégation.....	21
II.4.1. La notion de ségrégation .....	21
II.4.2. Les caractéristiques de la ségrégation.....	22
II.4.3. L'influence de la ségrégation sur une réaction chimique .....	25
II.5. Caractérisation chimique du micro-mélange .....	26
II.5.1. les réactions chimiques tests simples .....	26
II.5.2. Les réactions chimiques tests consécutives- concurrentes.....	27
II.5.3. Les réactions chimiques tests compétitives parallèles .....	29
II.5.4. La réaction chimique teste iodure-iodate .....	31
II. 6. L'efficacité du micro-mélange ( $\alpha$ ) .....	32

## **Deuxième partie : ETUDE EXPERIMENTALE**

### **Présentation du Laboratoire de Recherche Technologie Alimentaire.....33**

#### Chapitre III : L'étude du micro-mélange.....

III.1. Introduction .....	35
III.2. Description du matériel utilisé .....	35
III.2.1. Description du réacteur torique .....	36
III.3. choix de la méthode.....	37
III.4. Présentation du système iodure-iodate .....	37
III.4.1. Principe .....	37
III.4.2. Cinétique de réaction de Dushman.....	38
III.4.3. Indice de ségrégation .....	39
III.4.4. Détermination de la concentration de l'iode $[I_2]$ .....	40
III.4.5. Détermination de la concentration de tri-iodure $[I_3^-]$ .....	40
III.4.6. Détermination de l'efficacité du micro-mélange .....	41
III.4.7. Détermination du temps d'injection .....	41
III.4.8. Procédure expérimentale de mise en œuvre du système iodure-iodate.....	43

---

<b>CHAPITRE IV : RESULTATS ET DISCUSSION</b> .....	
IV.1.Introduction .....	47
IV.2. Etude Préliminaire .....	47
IV.2.1. Etude de la stabilité de la solution.....	47
IV.3. Détermination des paramètres de la méthode de test chimique.....	51
IV. 3.1. Influence du temps d'injection d'acide .....	51
IV.2.2. La validité de la méthode d'injections successives.....	52
IV.4. Influence de la position d'injection et la vitesse d'agitation sur ( $X_s$ ) et sur l'efficacité ( $\alpha$ ) .....	54
IV.4.1. Influence de la Position d'injection et la vitesse d'agitation sur ( $X_s$ ) .....	54
IV.4.2.Influence de la Position d'injection et la vitesse d'agitation sur l'efficacité ( $\alpha$ ) .....	55
IV.5. Le temps du micromélange ( $t_m$ ).....	57
IV.6. Comparaison de l'efficacité du micromélange dans le réacteur torique à d'autres configurations .....	61
IV. 7. Conclusion.....	63
<b>CONCLUSION GENERALE</b> .....	65
<b>BIBLIOGRAPHIE</b> .....	



## Liste des Figures

### Première partie : Etude bibliographique

#### Chapitre I : Réacteur Torique.

<b>Figure I.1</b> : Schéma du réacteur à géométrie torique. ....	7
<b>Figure I.2</b> : Schéma du réacteur à géométrie carrée.....	7
<b>Figure I.3</b> : Evolution temporelle de la conductivité de la solution dans un réacteur torique fermé.....	10
<b>Figure I.4</b> : Distribution de temps de séjour dans un réacteur torique.....	14

#### Chapitre II : Le Micro-mélange.

<b>Figure II.1</b> : Schéma descriptif du macro et micro-mélange.....	16
<b>Figure II.2</b> : Schéma de deux états extrêmes de micro-mélange.....	22
<b>Figure II.3</b> : Caractérisation de la ségrégation : l'échelle et intensité de ségrégation.....	24

### Deuxième partie : Etude expérimentale

#### Chapitre III : Etude du micro-mélange.

<b>Figure III.1</b> : Schéma du réacteur torique fermé.....	36
<b>Figure III.2</b> : Influence du temps d'injection sur l'indice de ségrégation.....	42

#### Chapitre IV : Résultats et discussions.

<b>Figure IV.1</b> : la variation des concentrations de tri-iodure ( $I_3^-$ ) en fonction du temps.....	48
<b>Figure IV.2</b> : la variation de l'indice de ségrégation en fonction du temps.....	49
<b>Figure IV.3</b> : la variation du pourcentage de l'indice de ségrégation en fonction du temps.....	50
<b>Figure IV.4</b> : influence du temps d'injection d'acide.....	51

**Figure IV.5** : L'indice de ségrégation en fonction du nombre d'injection à la position P2.....53

**Figure. IV.6** : l'influence de la vitesse d'agitation et de la position d'injection sur l'indice de ségrégation ( $X_s$ ).....54

**Figure IV.7:** l'influence de la vitesse d'agitation et de la position d'injection sur l'efficacité ( $\alpha$ ).....56

**Figure IV.8:** variation du coefficient de proportionnalité ( $\Phi$ ) en fonction de la position par rapport au mobile d'agitation.....59

**Figure IV.9** : Variation du temps du micro-mélange en fonction de la vitesse d'agitation et de la position d'injection.....60

**Figure. IV.10:** variation de l'efficacité du micromélange en fonction du taux de dissipation de l'énergie spécifique locale.....62

**Liste des tableaux**

**Première partie : Etude bibliographique**

**Chapitre I : Réacteur Torique.**

**Tableau I-1 :** Travaux Antérieurs.....6

**Tableau I-2 :** Les principales corrélations.....9

**Tableau I-3 :** Méthodes de mesure du temps de mélange.....12

**Tableau I-4 :** Les différentes valeurs de  $N_0$ .....13

**Tableau I-5 :** Différentes corrélations proposées donnant le temps de mélange en fonction du temps de circulation.....13

**Chapitre II : Micro-mélange.**

**Tableau II-1 :** Exemples de réactions chimiques tests simples sensibles aux effets du micro-mélange.....27

**Tableau II-2 :** Exemples de réactions consécutives concurrentes.....29

**Tableau II-3 :** Exemples de réactions compétitives parallèles.....30

**Deuxième partie : Etude expérimentale**

**Chapitre III : Etude du micro-mélange.**

**Tableau III-1:**Caractéristiques géométriques du réacteur torique utilisé.....36

**Tableau III-2:** Coordonnée des positions d'injection par rapport au mobile d'agitation.....37

**Tableau III-3:**les différentes lois cinétiques proposées par différents auteurs.....39

**Tableau III-4:** Les différentes valeurs du coefficient d'extinction de  $[I_3]$ .....41

**Tableau III-5:** Concentrations initiales des réactifs utilisés.....43

**Tableau III-6 :** Quantité des réactifs utilisés pour préparer les 5litres de la solution.....43

**Chapitre IV : Résultats et discussions.**

**Tableau IV-1 :** valeurs du  $\Phi$  déterminés aux différents points d'injection.....59

---

**Abréviations**

$c_1, c_2, c_3$ : coefficients

$d_1$ : Diamètre extérieur du mobile d'agitation (mm)

$d$ : Diamètre intérieur du mobile d'agitation (mm)

DO : Densité optique.

$D_t$ : Diamètre intérieur de la section du réacteur torique (mm).

$E(ts)$ : Fonction de distribution des temps de séjour.

$F_g$ : Facteur géométrique.

$N$ : Vitesse de rotation du mobile d'agitation (tr/s).

$N_0$ : nombre de circulation

$Re$ : Nombre de Reynolds de l'écoulement.

$Rem$ : Nombre de Reynolds de mélange.

$R_t$ : Rayon de courbe de courbure du réacteur torique (mm).

$t_c$ : temps de circulation (s)

$t_m$ : Temps de mélange (s).

$t_m$ : Temps de micro-mélange (s).

$U$ : Vitesse instantanée (m/s)

$V_R$ : Volume du réacteur (litre).

$X_s$ : Indice de ségrégation.

$Z_t$ : position d'injection par rapport au mobile d'agitation.

Lettres grecques :

$\rho$ : Masse volumique ( $\text{kg/m}^3$ ).

$\mu$  : Viscosité dynamique (Pa.s)

$\nu$  : viscosité cinématique ( $\text{m}^2/\text{s}$ )

$\lambda$  : longueur d'onde (nm).

$\varepsilon_0$  : Coefficient d'extinction moléculaire ( $\text{m}^2/\text{mole}$ )

$\varepsilon$  : puissance spécifique dissipée localement (W/kg).

$\bar{\varepsilon}$  : puissance moyenne fournie par le mobile d'agitation (W/kg).

$\Phi$  : Coefficient de proportionnalité.

$\alpha$  : Efficacité du micro-mélange.

## ***INTRODUCTION GENERALE***

## **Introduction générale**

La réalisation d'un procédé industriel, chimique ou biochimique, nécessite l'utilisation des réacteurs pour la mise en œuvre d'une transformation donnée. Le critère du choix d'un réacteur est un facteur déterminant et important pour le rendement et la qualité des produits finis.

Dans le cadre du développement durable, les différents secteurs des procédés industriels fournissent des efforts dans le but d'optimiser ces procédés afin d'augmenter le rendement, diminuer la puissance dissipée, améliorer la sélectivité des produits désirés et réduire les déchets en aval d'un procédé...etc., donc contribue au développement économique, tout en préservant l'environnement. Parmi ces efforts, la recherche de nouvelles configurations de réacteurs plus performants et qui répondent aux exigences imposées.

Vu certains inconvénients présentés par les réacteurs classiques, il a été indispensable de rechercher d'autres configurations, telles que les réacteurs à boucle (réacteur torique) qui présentent une alternative prometteuse aux réacteurs classiques. Dans cette perspective, plusieurs travaux de recherche ont fait l'objet d'étude et de caractérisation de ces nouvelles configurations du réacteur (Nouri, 1994 ; Benkhelifa, 2000 ; Nasrallah, 2008). L'une des études qui a été menée ces derniers temps, est la caractérisation et la comparaison du micro-mélange dans le réacteur torique à ceux des autres configurations du réacteur (Nouri et al, 2008).

Dans ce mémoire, nous avons réalisé une étude complémentaire aux travaux antérieurs qui ont fait l'objet de caractérisation expérimentale du micro-mélange en fonction des conditions d'agitation et des positions d'injection dans le réacteur. Notre contribution a porté sur l'exploitation des résultats expérimentaux des travaux antérieurs (Nouri et al. 2008) afin de déterminer certaines caractéristiques du micro-mélange.

En effet, nous avons introduit dans la première partie (la partie bibliographique) au niveau du chapitre (I) la particularité des réacteurs toriques tout en rédigeant les différents travaux antérieurs réalisés par les chercheurs dans le domaine de génie des procédés avec ce type de réacteur. Aussi nous avons mentionné leurs différents paramètres hydrodynamiques et leurs principales corrélations. Dans le chapitre (II) nous avons introduit le phénomène du micro-mélange en phase liquide, la notion de ségrégation et la caractérisation chimique du micro-mélange.



En outre, dans le chapitre (III) de la deuxième partie (partie expérimentale), nous avons fait une étude détaillée du micro-mélange nous avons adopté la méthode test chimique basée sur un système de réaction du type parallèle concurrente, ou la première est une réaction de neutralisation, la deuxième est une réaction d'oxydo-réduction (réaction de Dushman) entre les ions iodure et iodate.

Différents paramètres ont été étudiés à savoir :

L'influence du temps d'injection.

L'efficacité de la méthode en utilisant la technique à plusieurs injections.

L'influence de la vitesse d'agitation et la position d'injection sur (Xs).

L'efficacité du micro-mélange ( $\alpha$ ).

Temps du micro-mélange ( $t_m$ ).

Dans le chapitre (IV), nous avons présenté les résultats de la validation de la méthode choisie ainsi que ceux de l'étude considérée dans ce travail accompagnés des interprétations nécessaires.

A la fin, on a une conclusion qui rassemble les différents résultats obtenus dans cette étude ainsi que les perspectives qui pourront être envisagées dans le futur.

*La première partie :*

***ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE***

## *Chapitre I : Les réacteurs toriques*

## I.1. Introduction

Depuis plusieurs années, les chercheurs dans le domaine de génie des procédés, ont montré que les réacteurs agités présentent des limites de performances dans certains procédés de polymérisation ou biologique (dépôt de polymères ou microorganismes l'existence du volume mort et une faible capacité du transfert d'oxygène, ect...). Tous ces inconvénients ont incité les chercheurs à envisager de nouveaux types de réacteurs qui assurent une circulation homogène et nécessitent une faible puissance d'entraînement.

C'est dans ce contexte que les réacteurs toriques ont fait leur apparition car ils présentent une alternative prometteuse aux réacteurs à cuve agitée. En effet, le réacteur torique possède de nombreux avantages :

- Sa conception est simple et les conditions d'écoulement sont presque identique en tout points ; (Boesinger et al, 2003).
- Il induit de faible taux de cisaillement ainsi qu'une faible perte de charge ; (Khalid et al, 1992).
- Absence de Volume mort.
- Mélange radial efficace permettant une répartition uniforme et homogène, (Belleville et al, 1992).
- Puissance consommée relativement faible.
- L'extrapolation de ces performances est à priori relativement aisée.

## I.2. Travaux antérieurs

En 1979, Sato et al ont étudié l'hydrodynamique dans un réacteur à boucle ouvert de forme rectangulaire, ils ont constaté que la présence des chicanes ainsi que le type d'agitateur utilisé influent considérablement sur la distribution des vitesses. Ils ont évalué et comparé les pertes de charge au niveau des parties coudées et les parties droites du réacteur.

**Murakami et al, (1982)**, ont étudié l'influence de certains paramètres géométriques tels que, le diamètre, l'angle d'inclinaison des pales du mobile d'agitation, la présence des chicane et le mode de fonctionnement du réacteur sur la puissance dissipée. Ils ont constaté que la présence des chicanes n'a pas d'influence et que la puissance dissipée est légèrement supérieure dans les systèmes ouverts que celle dissipée dans les systèmes fermés.

L'étude effectuée par **Leaderach et Widmer, (1984)**, a montré que la production de la biomasse par fermentation dans un réacteur torique en fonctionnement discontinu était 40% plus élevée que celle obtenue dans un réacteur agité. Cette différence est due à l'absence de dépôt au niveau des parois du réacteur torique, ce qui permet à toute la biomasse présente de prendre ainsi une part active à l'échange de matière.

**Kersbert et al, (1988)**, ont montré l'intérêt du réacteur torique par rapport au réacteur parfaitement agité pour la production de Xanthosomas campes tris sur la base du taux de transfert d'O<sub>2</sub> et sur la production de Xanthane. Ils ont constaté que la quantité de glucose transformée en Xanthane est plus importante dans le réacteur torique que dans le réacteur parfaitement agité.

La caractérisation de l'écoulement dans le réacteur torique à fait l'objet d'étude effectuée par **Tanaka et al (1989)**, en se basant sur la détermination de la vitesse moyenne de circulation, la distribution de la vitesse et des pertes de charge. Ils ont établi des relations empiriques entre les conditions d'agitation et les caractéristiques d'écoulement du fluide dans ce type de réacteur.

**Hosogai et Tanaka (1992)**, ont étudié l'influence du diamètre et de la vitesse d'agitation sur la distribution de la taille finale des particules en suspension dans un réacteur torique. Ils ont établi une expression corrélant le diamètre final des particules en fonction de la puissance dissipée.

**Belleville et al (1992)**, ont caractérisé l'écoulement dans un réacteur torique de 2,1 litres.

Ils ont proposé l'utilisation d'un facteur géométrique afin de corréliser la variation de la vitesse de circulation du fluide en fonction de la vitesse de rotation de l'agitateur.

**Nouri, (1994)**, a caractérisé l'écoulement et le mélange dans trois réacteurs toriques des volumes différents, en fonction des conditions d'agitation et des caractéristiques géométriques des réacteurs. Par ailleurs il a étudié la mise en œuvre de l'hydrolyse enzymatique des protéines du blé afin de comparer les performances du réacteur torique au réacteur agité.

**Benkhelifa, (2000)**, a étudié l'hydrodynamique des réacteurs toriques en fonctionnement fermé et ouvert en utilisant la distribution des temps de séjour (DTS) par une méthode Conductimétrique. Elle a constatée que le réacteur torique se comporte lors de chaque circulation comme un réacteur du type piston, caractérisé par une faible dispersion axiale aussi bien en fonctionnement fermé que ouvert et cela quel que soit le régime d'écoulement, ce qui le rend industriellement intéressant.

Pour tester les potentialités du réacteur torique, elle a étudiée la mise en œuvre de la transformation des protéines du blé et du lait par des enzymes immobilisées sur des billes.

Le tableau suivant rassemble d'autres travaux portant sur la caractérisation des réacteurs toriques.

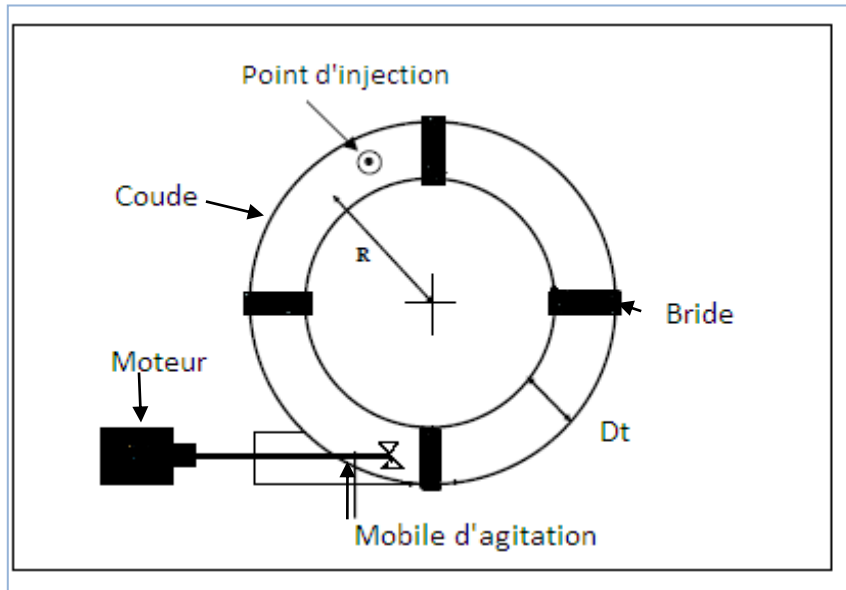
**Tableau I-1** : travaux antérieurs.

Référence	Type de réacteur	Mobil d'agitation	Etude effectuée
Hamani (1999)	Réacteur torique Fermé	Hélice marine Turbine à pale inclinée	Etude hydrodynamique
Kaoua (2000)	Réacteur torique Fermé	Hélice marine Turbine à pale incliné	Caractérisation de l'écoulement et du mélange
Rihani (2001)	Réacteur torique Fermé	Hélice marine Turbine à pale incliné	Saponification de l'acétate d'éthyle par la soude
Atmani (2002)	Réacteur torique ouvert Réacteur parfaitement agité	Hélice marine Turbine à pale incliné Turbine à pale droite	Modélisation du réacteur torique et comparaison avec le réacteur agité
Khalid et al (1995)	Réacteur torique à longueur droite (RTL D)	Hélice marine	Etude de la distribution de pression dans le réacteur torique

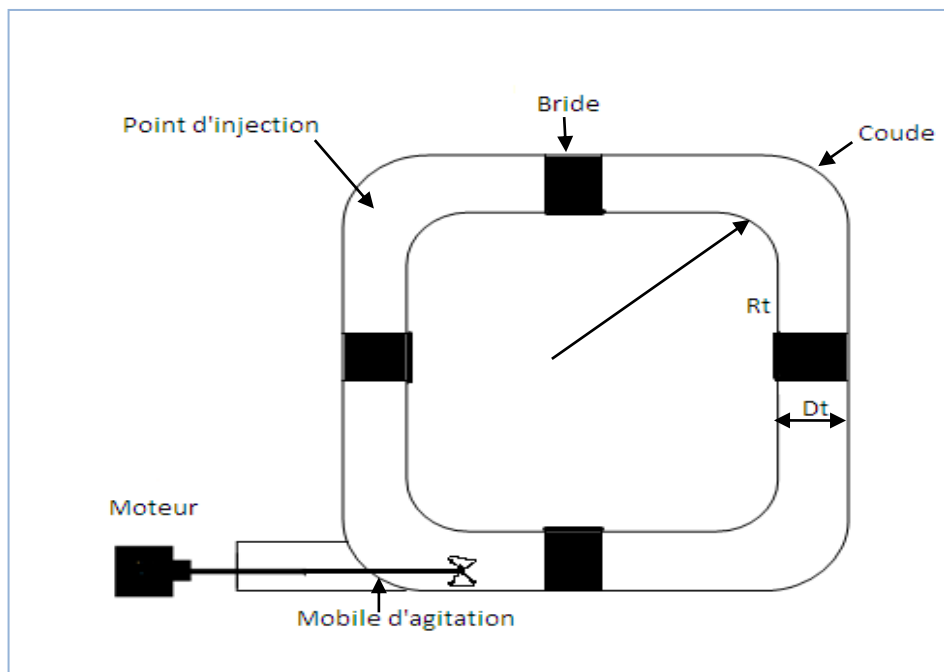
### I.3. Présentation des réacteurs à boucle torique

Un réacteur à boucle torique est constitué à partir de coudes à 90° reliés ou non par des brides de même diamètre que les coudes. Le mélange et la recirculation des réactifs, dans ce réacteur, sont assurés par un mobile d'agitation qui est entraîné par un moteur électrique à vitesse variable. Par sa structure, le réacteur à boucle torique est caractérisé par une géométrie qui varie d'une forme parfaitement torique (figure I.1) ou carrée (figure I.2) ou à une forme rectangulaire.





**Figure I.1** : Schéma du réacteur à géométrie torique (Nourri, 1994).



**Figure I.2** : Schéma du réacteur à géométrie carré (Nouri, 1994).

## I.4. Définition des paramètres hydrodynamiques

### I.4.1. Régime d'écoulement

Le régime d'écoulement dans un réacteur torique peut être défini en fonction des caractéristiques géométriques et des propriétés du fluide, grâce au nombre de Reynolds d'écoulement  $Re$  et au nombre de Reynolds du mélange  $Rem$  donnés par les équations suivantes :

$$Re = \rho \bar{u}_c D_t / \mu \quad (1)$$

$$Rem = \rho N d_1^2 / \mu \quad (2)$$

Tel que:

$d_1$  : Diamètre extérieur du mobile d'agitation (mm).

$D_t$  : Diamètre intérieur de la section du réacteur torique (mm).

$N$  : Vitesse de rotation du mobile d'agitation (tr/s).

$\bar{u}_c$  : Vitesse moyenne de circulation (m/s).

$\rho$  : Masse volumique (kg /m<sup>3</sup>).

$\mu$  : Viscosité dynamique (Pa.s)

Plusieurs corrélations ont été proposées afin d'établir une relation entre nombre de Reynolds d'écoulement  $Re$  et nombre de Reynolds de mélange  $Rem$ . (Tableau I-2).

**Tableau I-2** : Les principales corrélations

Auteur	Géométrie du réacteur	Mobile utilisé	Principale corrélation
Murakami et al (1982)	Réacteur de forme rectangulaire $V_r=2,21$	Turbine à pale inclinée.	Pour $Re=10^4-10^5$ $N_p=f(\sin\Phi)^2$
Tanaka et al (1989)	Réacteur torique $V_r=2,31$	Hélice marine, turbine à pale inclinée	$\frac{Re}{Rem} = \left[ \frac{c_1}{Rem^{c_1}} + c_3 \right]^{-1}$ $\frac{Re}{Rem} = c^{st}$ Pour $Rem > 1,5 \cdot 10^5$
Hosogai et al (1992)	Réacteur torique $V_r = 2,31$	Turbine à pale inclinée.	$\frac{Re}{Rem} = \left[ \frac{c_1}{Rem} + c_3 \right]^{-1}$ $\frac{Re}{Rem} = 1$ pour $2 \cdot 10^4 < Rem < 1,5 \cdot 10^5$
Nouri (1994)	Réacteur torique $V_r=2,11$ $V_r = 2,251$ Réacteur de forme Rectangulaire $V_r = 9,11$	Hélice marine	$Re=1,3.Fg.Rem$ Pour $Rem > 4000-6000$ $Re=4 \cdot 10^3.Fg.Rem^{1,67}$ Pour $Rem < 4000-6000$ $Fg = \left[ \frac{d_1^2 - d_2^2}{d_2^2} \right]^{0,025} \sin\Phi$

$C_1, C_2, C_3$  : coefficients qui dépendent du type du mobile d'agitation utilisé.

Le rapport  $Re/Rem$  tend vers une constante qui dépend des caractéristiques géométriques du mobile d'agitation. Il est égal à 1 pour  $2 \cdot 10^4 < Rem < 1,5 \cdot 10^5$  ou le mobile d'agitation est une turbine à pale inclinée. (Hosogai et al. (1992) et Tanaka et al. (1989)).

Selon les travaux de Nouri. (1994), Benkhelifa. (2000), Herel. (1968), l'écoulement au sein du réacteur torique est proche à un écoulement piston en se basant sur la détermination des coefficients de dissipation axial, et cela dans un intervalle compris entre 0,001 et 0,1  $m^2/s$  correspond à un nombre de Reynolds de mélange compris entre  $10^4$  et  $10^5$ .

### I.4.2. Temps de circulation ( $t_c$ )

C'est le temps nécessaire à un élément fluide pour parcourir une circulation complète dans le réacteur.

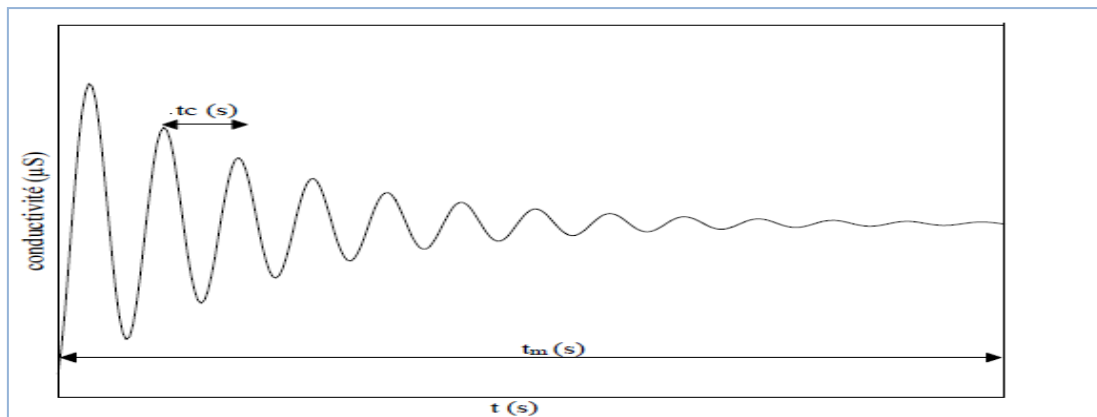
Il est en fonction de :

Vitesse de rotation de mobile d'agitation.

Les caractéristiques du fluide.

La géométrie du réacteur et du mobile d'agitation.

Le temps de circulation  $t_c$  est obtenu dans un réacteur torique à partir de la courbe donnant l'évolution temporelle de la conductivité de la solution, en réponse à une injection du type impulsion. Cette courbe a une forme périodique en raison du passage répété dans le réacteur d'un même élément fluide. Le temps moyen de circulation correspond alors à l'intervalle du temps séparant deux pics successifs. (**Figure I-3**).



**Figure I.3 :** Evolution temporelle de la conductivité de la solution dans un réacteur torique fermé (Roustan 2000).

D'après **Kaoua. (2000)**,  $t_c$  diminue avec l'augmentation de vitesse d'agitation, quel que soit le type d'agitateur et avec l'augmentation du diamètre et l'angle d'inclinaison des pales.

La valeur moyenne des temps de circulation  $\overline{t_c}$  dans le réacteur permet d'accéder, pour une vitesse d'agitation donnée, à la vitesse moyenne de circulation  $U_c$ , d'après la relation :

$$U_c = L_t / \overline{t_c} \quad (3)$$

Où le  $L_t$  est la longueur moyenne du réacteur.

-Elle varie linéairement avec la vitesse d'agitation quel que soit le type et les caractéristiques géométriques du mobile d'agitation. (Nouri (1994) ; Kaoua (2000) ; Hamani, (1999)).

-Elle décroît lorsque la viscosité de la solution augmente et cela pour une vitesse d'agitation donnée. (Nouri, 1994).

-Nouri. (1994) a constaté que pour un nombre Rem donné la vitesse moyenne de circulation est indépendante du diamètre du mobile d'agitation.

### **I.4.3. Temps de mélange ( $t_m$ )**

Il est défini comme étant le temps nécessaire pour obtenir un mélange d'un degré d'homogénéisation donné dans des conditions d'agitation bien déterminée, c'est -à-dire, c'est l'intervalle du temps entre le début de l'injection du traceur et le moment où une composition uniforme est obtenue dans la masse fluide. (Figure I-1). (Roustan 2000).

En général, on considère pour la mesure du temps de mélange ( $t_m$ ) dans les réacteurs un degré d'homogénéisation de 99%, telle que les variations des concentrations ne constituent que 1% de la valeur moyenne de la concentration.

Il existe plusieurs méthodes permettant de mesurer le temps du mélange. Ces principales méthodes ainsi leurs avantages et inconvénients sont illustrés dans le Tableau I-3.

**Tableau I-3 : Méthodes de mesure du temps de mélange**

Méthodes	Avantage	Inconvénient
Colorimétrique avec réaction chimique	-Pas de mesure. -La décoloration d'un fluide est facile à déterminer.	-Demandent une observation visuelle. -Ne s'appliquent pas pour fluides opaques. -Consommations de fluides.
Thermique	-Pas de modification de la nature des fluides. -Ne consomme pas de produits.	-La cuve doit être isolée thermiquement -Appareillage important et coûteux.
Des traceurs radioactifs	-Valable quelque soit le système agité.	-Utilisation de la radioactivité (implication pratique et financière).
Conductimétrique	-Utilisent des capteurs très simples et de produits bon marché. -Mise en œuvre rapide. -Résultats corrects.	-Nécessité de renouveler les fluides au bout d'un certain nombre d'essai.

#### I.4.4. Nombre de circulation ( $N_0$ )

Le nombre de circulation  $N_0$  est défini comme étant le rapport entre le temps du mélange et le temps de circulation :

$$N_0 = t_m / t_c \quad (4)$$

Le  $N_0$  est le nombre nécessaire pour atteindre un degré d'homogénéisation donné. IL permet de caractériser le mélange dans les réacteurs.

D'après Nouri, Le nombre de circulation  $N_0$  est constant quelque soit le nombre de Reynolds du mélange et les dimensions des mobiles d'agitation. D'autre part, il a constaté que  $N_0$  est faible dans le réacteur parfaitement torique que dans un réacteur torique sous forme carrée, comme le montre le Tableau I-4, en raison de l'influence des longueurs droites et la taille du réacteur.

**Tableau I-4 :** Les différentes valeurs de  $N_0$  (Nouri, 1994)

Type de réacteur	Réacteur parfaitement torique (2,1 litres)	Réacteur parfaitement torique (5,25 litres)	Réacteur torique de forme carrée (9,1 litres)
Nombre de circulation $N_0$	14	15	40

**Tableau I-5 :** Différentes corrélations proposées donnant le temps du mélange en fonction du temps de circulation.

Auteurs	Corrélations	Type de réacteur
-Villiermaux(1988)	$t_m = 4 t_c$	Réacteur à cuve agitée
-Komori et al. (1988)	$t_m = 1,2 t_c$	Réacteur à cuve agitée
-Atmani (2002)	$t_m = 24 t_c$	Réacteur à cuve agitée

L'écart observé entre ces différentes corrélations est dû probablement aux caractéristiques géométriques des réacteurs utilisés et aux degrés d'homogénéisation choisi par les auteurs.

#### I.4.5. Distribution du temps de séjour (DTS)

Les réacteurs réels ont un comportement qui s'écarte plus ou moins des modèles idéaux (écoulement de type piston et parfaitement agité). Il serait intéressant de pouvoir chiffrer cet écart par rapport à l'idéalité. C'est dans ce contexte que la notion de distribution des temps de séjour, proposée par DanckWerts en 1953 présente un intérêt tout particulier.

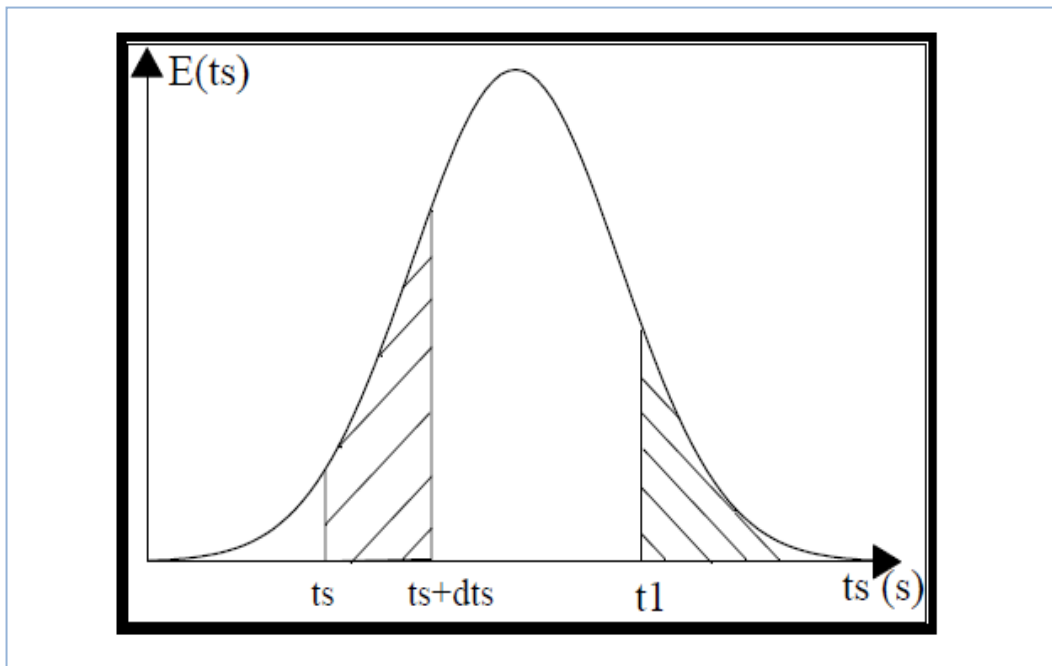
Lors d'un écoulement (d'un fluide à travers un réacteur du volume  $V$ , les diverses molécules de fluides séjournent à l'intérieur du réacteur pendant des temps qui dépendent directement du type d'écoulement et de la géométrie du réacteur. Ces temps de séjour  $t_s$  peuvent s'écarter notablement du temps de séjour moyen  $\tau = V/Q$ . Il existe donc, une distribution des temps de séjour  $E(t_s)$  qui dépend du type d'écoulement (Trambouze, 2002).



Elle est définie,  $E(t_s)dt_s$  est la fraction du débit de sortie contenant des molécules d'âges compris entre  $t_s$  et  $t_s+dt_s$ . (Figure I-4).

$E(t_s)$  est donc de probabilité du temps de séjour  $t_s$  dans le débit de sortie et par conséquent :

$$\int_0^{\infty} E(t_s) dt_s = 1$$



**Figure I.4:**Distribution des temps de séjour dans un réacteur torique (Trambouze, 2002).

**NB :** la notion de distribution des temps de séjour conservée pour les réacteurs toriques ouvert.

Dans le cas d'un réacteur fermé le fluide restant confiné dans le réacteur. Pour cette raison on parlera de l'évolution temporelle de concentration.

### Détermination expérimentale DTS :

La détermination des traceurs est très souvent utilisée, elle consiste à marquer les molécules entrant dans un réacteur et à suivre leur déplacement au sein du réacteur. Pour cela, on utilise une substance radioactive, colorée ou chimique, ayant les mêmes propriétés hydrodynamique que le fluide, mais décelable par une propriété physique caractéristique telles que, la conductivité électrique, thermique...etc.

On applique un certain signal à l'entrée du réacteur, telle qu'une injection sous forme impulsion ou échelon, de façon à ne pas perturber l'écoulement, et on mesure à la sortie l'évolution temporelle de la concentration de ce traceur. On en déduit ainsi des renseignements sur le comportement interne du fluide (Villiermaux.1993).

### **Méthode Conductimétrique :**

C'est une méthode de traçage permettant la détermination de la DTS. Elle a été choisie pour sa facilité d'utilisation car elle nécessite des captures simples et des produits accessibles commercialement.

Cette technique consiste à enregistrer l'évolution temporelle de la conductivité électrique d'une solution concentrée d'un électrolyte fort (acide, base) injecté en faible quantité.

La conductivité électrique mesurée est proportionnelle à la concentration, cette mesure permet l'obtention de l'évolution temporelle de concentration du traceur, représentative de la distribution des temps de séjour au sein du réacteur.

### **I.4.6. La puissance moyenne dissipée ( $\epsilon$ )**

La puissance moyenne dissipée par un mobile d'agitation, dans un réacteur à boucle est donnée par la relation suivante :

$$\overline{\epsilon} = \frac{N_p N^3 D^5}{V} \quad (5)$$

Où

$N_p$  : le nombre de puissance.

$N$  : vitesse de rotation du mobile d'agitation (tr/min).

$D$  : diamètre extérieur du mobile d'agitation (mm).

$V$  : le volume de la solution (L).

## **Chapitre II : Le micro-mélange**

## II.1. Introduction

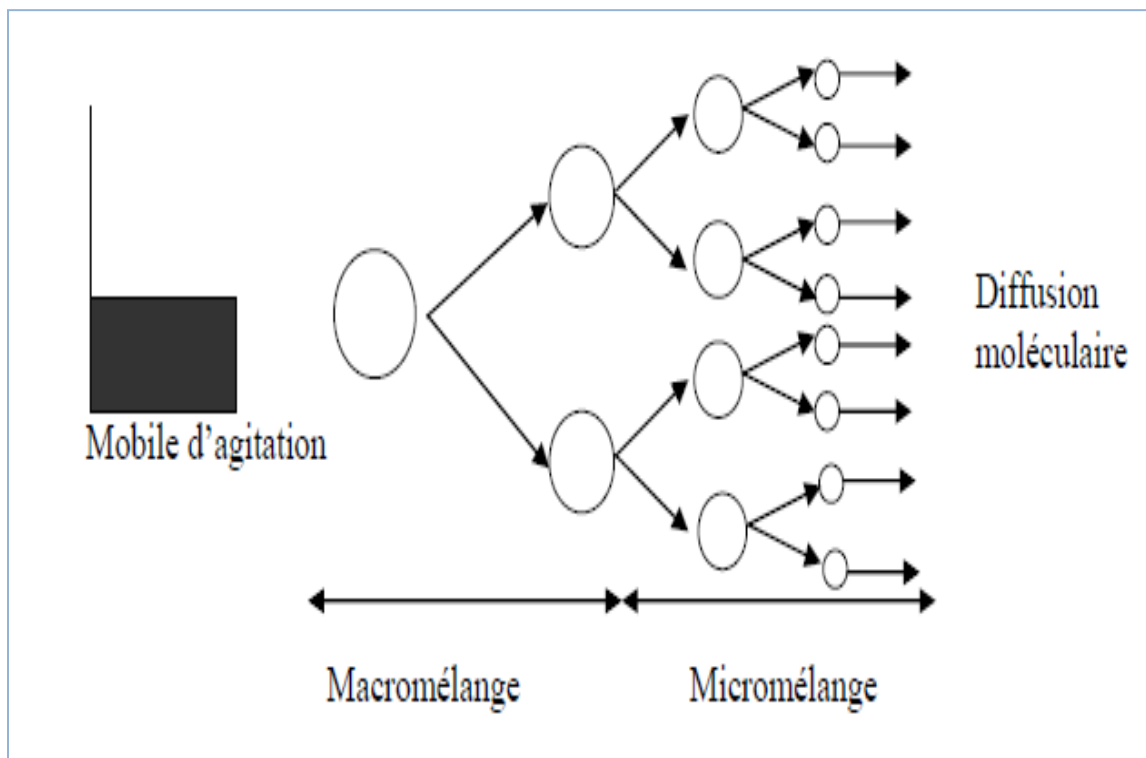
Le mélangeage est une opération universellement répandue dans les procédés industriels de transformation de la matière. Déjà il a été une préoccupation au 16<sup>ème</sup> siècle pour la mise en contact des réactifs.

L'agitation, considérée comme une opération unitaire, se trouve en effet étroitement liée à un grand nombre d'applications de nature très différente, telles que les réactions chimiques et biologiques, le transfert thermique, extraction liquide- liquide, la cristallisation...etc. Dans chacune de ces applications, l'agitation intervient comme un moyen mais elle ne constitue en aucune manière le but recherché (Fournier, 1994).

Parmi les rôles les plus importants du mélange est de favoriser le contact entre des espèces réactives en vue de l'optimisation d'un processus qu'il soit physique ou chimique. Ce mélange pouvant être achevé à l'échelle du réacteur (concentration homogène) sans pour autant être réalisé à l'échelle moléculaire. Cette distinction a amené à définir deux concepts :

Macro-mélange : mélange à l'échelle du réacteur.

Micro-mélange : mélange à l'échelle moléculaire (Guichardon, 1996).



**Figure II.1** : Schéma descriptif du macro et micromélange (Guichardon, 1996)

Une bonne connaissance et une bonne maîtrise du mélange et du micromélange contribuent à une qualité des produits mieux contrôlée ; une utilisation plus rationnelle de l'énergie ; une meilleure sécurité des procédés (Guicherdon, 1996).

## II.2. Travaux antérieurs sur le micro-mélange

L'importance et l'impact du micro-mélange sur la sélectivité, le rendement et la qualité des produits de synthèse chimique ou biochimique, attirent un très grand nombre de travaux afin de mieux comprendre ce concept du micromélange.

*Fournier et al. (1996)* ont proposé la méthode iodure-iodate pour déterminer l'efficacité du micromélange dans un réacteur agité de volume 1 et 20 L. Ils ont étudié l'influence du temps d'injection d'acide sulfurique et la position d'injection des réactifs sur l'indice de ségrégation. Ils ont constaté que cette réaction test est efficace pour déterminer l'état de micromélange dans les réacteurs agités.

*Guicherdon et al. (1997)* ont étendu l'utilisation de la réaction test iodure-iodate pour l'étude du micromélange, dans un réacteur standard agité de 1 litre du volume, pour les milieux visqueux. Ils ont déterminé l'efficacité du micromélange en fonction de différentes viscosités d'eau glycéric. Ils ont constaté que l'efficacité du micromélange dépend de la vitesse d'agitation. Dans une autre étude, Guicherdon et al. (2001) ont caractérisé le micromélange par deux méthodes : la réaction iodure-iodate et la réaction de formation du colorant diazoïque, dans un réacteur standard agité par une turbine Rushton et du volume 1 l. Ils ont constaté que la réaction iodure-iodate est moins onéreuse et facilement manipulée, par contre, la réaction de formation de colorants diazoïques présente une bonne sensibilité aux effets du micromélange.

*Assirelli et al. (2002)* ont caractérisé le micromélange, dans un réacteur agité de 24,9 l, muni d'une turbine Rushton, en se basant sur la réaction test iodure-iodate. Ils ont confirmé que la méthode à injection successive d'acide sulfurique est efficace pour caractériser le micromélange.

*Akiti et al. (2005)* ont caractérisé le micromélange dans un réacteur du laboratoire en verre de 2 et 4 L du volume, en se basant sur la réaction test d'hydrolyse du chloracétate d'éthyle. Ils ont étudié l'influence de certains paramètres (vitesse d'agitation, type du mobile, nombres de pales de l'agitateur, position d'injection) sur l'indice de ségrégation. Ils ont constaté que

L'indice de ségrégation est affecté par ces paramètres et que l'efficacité du micromélange diminue lorsque le volume du réacteur augmente.

*Jia et al. (2006)* ont étudié l'efficacité du micromélange dans un réacteur à membrane, en utilisant la réaction test iodure-iodate. Ils ont constaté que l'augmentation du nombre de Reynolds favorise l'amélioration de l'efficacité du micromélange.

*Yang et al. (2006)* ont caractérisé l'efficacité du micromélange, dans un réacteur à lit fixe avec recirculation (RFB), par deux méthodes chimiques test : la précipitation du sulfate de baryum et la réaction iodure-iodate. Ils ont utilisé différentes conditions opératoires (vitesse d'agitation, la concentration des réactifs injectés). Ils ont constaté que l'indice de ségrégation diminue avec l'augmentation de la vitesse de rotation, mais avec l'augmentation de la concentration des solutions injectées, il augmente pour la réaction iodure-iodate et diminue pour la réaction du couplage diazoïque.

*Kockmann et al. (2006)* ont caractérisé le micromélange dans un réacteur de forme-T en se basant sur la méthode iodure-iodate. Ils ont constaté que l'indice de ségrégation diminue avec l'augmentation du nombre de Reynolds et donc une meilleure qualité du micromélange.

*Durandal et al. (2007)* ont caractérisé le micromélange, dans un bac muni de deux grilles, comme promoteur de turbulence, en se basant sur la réaction test iodure-iodate. Ils ont constaté que l'indice de ségrégation diminue avec l'augmentation du nombre de Reynolds.

*Chu et al. (2007)* ont caractérisé le micromélange, dans un réacteur du type rotor-stator, par la méthode iodure-iodate. Ils ont étudié l'influence de la vitesse de rotation et les concentrations des réactifs et la combinaison rotor-stator sur l'indice de ségrégation ( $X_s$ ). D'autre part, la combinaison rotor-stator présente une meilleure efficacité du micromélange.

*Bertand et al. (2007)* ont caractérisé et comparé le micromélange dans trois géométries : tube-T, tube-Y et appareil de Hartridge-Roughton, en se basant sur la méthode iodure-iodate et sur un test de neutralisation. Ils ont constaté que l'efficacité du micromélange dans l'appareil Hartridge-Roughton est meilleure que celle dans les deux tubes de forme-T et de forme Y.

*Li et al. (2000)* ont étudié l'influence du mésomélange. Par l'ajustement de différentes conditions, sur le micromélange dans trois mini-réacteurs en se basant sur la méthode iodure-iodate. Ils ont constaté que l'indice de ségrégation diminue avec la diminution de l'échelle du mésomélange.

*Benmalek (2007)* a caractérisé le micromélange, dans un réacteur standard agité de 1,87 litre du volume par une turbine Rushton et, par la réaction test iodure-iodate. Elle a constatée que cette méthode est facilement applicable et flexible pour être applicable dans les réacteurs à grande capacité. D'un autre côté, elle a constaté que la technique à injection successive est économique, mais elle est délicate et très sensible et que l'indice de ségrégation est très affecté par la vitesse d'agitation et la position d'injection.

*Nouri et al. (2008)* ont caractérisé et comparé l'efficacité du micromélange entre un réacteur torique de volume 2,1L et un réacteur standard agité fermé de volume 1,87L, en utilisant la réaction test iodure-iodate. Ils ont utilisé différentes conditions opératoires (vitesse d'agitation, position d'injection). Aussi, ils ont comparé la variation de l'efficacité du micromélange des deux réacteurs sur la base du taux d'énergie spécifique dissipée localement ( $\epsilon$ ) dans les deux réacteurs. Ils ont constaté, d'un côté, que l'efficacité du micromélange dépend de la position d'injection des réactifs et la vitesse d'agitation, et de l'autre côté, que l'efficacité du micromélange dans le réacteur torique est meilleure que dans le réacteur agité.

*Jean-Marc Commenge et al (2011)* : Ils ont étudié le protocole de caractérisation expérimentale des micro-mélangeurs (micro-réacteurs) par l'utilisation de la méthodologie Villermaux – Dushman, dont le but est de déterminer le temps du mélange dans les micro-mélangeurs. En effet, grâce aux micro-mélangeurs, ils ont montré que ce protocole permet de choisir des conditions de mesure plus fiables du temps du mélange ainsi que le débit d'injection.

*Nourri et al (2014)* Ils ont étudié l'estimation du temps du micromélange dans le réacteur torique par l'application du modèle d'incorporation en se basant sur la méthode iodure-iodate. Dans cette étude, l'estimation du temps de micromélange a été réalisée sur la base du taux de micromélange expérimentale et l'application du modèle d'incorporation. Ils ont caractérisé les préférences de cette nouvelle configuration du réacteur par rapport au réacteur à cuve agitée. Ils ont constaté que les temps sont en bon accord avec la théorie de la turbulence de Kolmogorov.

*Jeroen Jordens et al (2016)* ont étudié l'effet des ultrasons sur le micromélange. Ils ont montré que les ultrasons peuvent interférer avec la réaction test iodure-iodate par sonolyse de l'iodure du potassium trop disponible dans la solution de Villermaux- Dushman en ions tri-iodure. Ils ont utilisé différents paramètres (l'effet de la vitesse d'agitation, de la fréquence de l'intensité des ultrasons et le rapport de dissipation de puissance) sur l'indice de ségrégation. Ils ont constaté que l'indice de ségrégation montre une forte corrélation avec le rapport de dissipation d'énergie et la fréquence.

*Arturo Manzano et al (2017)* ont caractérisé le micromélange dans un réacteur à disque tournant du rotor stator par la méthode iodure-iodate. Ils ont étudié l'influence de la vitesse de rotation et la concentration d'acide injecté sur l'indice de ségrégation ( $X_s$ ). Ils ont constaté que  $X_s$  décroît avec une vitesse du disque croissante et avec la diminution de la concentration de l'acide sulfurique injecté. Dans cette étude, ils ont montré un meilleur mélange peut être obtenu lorsque l'alimentation en acide est située plus près du bord du disque.

### **II.3. Etapes d'un processus du mélange des liquides réactionnels**

Dans un procédé chimique ou biochimique, ou la transformation des réactifs s'opèrent à l'échelle moléculaire, le processus du mélange des fluides réactionnels en écoulement turbulent est très complexe et on peut distinguer diverses étapes, intervenant à des échelles décroissantes, et généralement désignée par macromélange, mésomélange et micromélange (Trambouze, 2002).

#### **II.3.1. Le macro-mélange**

Le macromélange concerne le mélange à l'échelle du récipient tout entier. C'est l'ensemble des phénomènes qui assurent une uniformisation de composition du mélange réactionnel à l'échelle macroscopique (Villermaux, 1994).

#### **II.3.2. le méso-mélange**

Le mésomélange concerne l'échange turbulent, réalisé entre la charge fraîche et son environnement, près du point d'injection. Pour une réaction rapide, une grande partie de la transformation du réactif se déroule dans cette zone, et dont la taille est largement supérieure aux échelles concernées par le micromélange. Le mésomélange se réalise par diffusion



turbulente et fragmentation des éléments de charge fraîche entrant dans le réacteur (Baldyga, 1992).

### **II.3.3. Le micro-mélange**

Le micromélange intervient, après le mésomélange, par réduction progressive des dimensions des éléments du fluide, par déformation et fragmentation, jusqu'à atteindre l'homogénéité au niveau moléculaire (Trambouze, 2002).

Parmi les problèmes qui peuvent être rencontrés au cours du mélange des liquides réactionnels miscibles, c'est la précocité du mélange et l'état de ségrégation. La précocité du mélange, concerne le mélange au sein du récipient (Macromélange) entre les portions du fluide d'âges différents : c'est l'aspect temporel (Villermaux, 1994). Le Micromélange se caractérise par des méthodes physiques, à savoir, l'étude de la distribution des temps de séjours (DTS) (DanckWerts, 1953). La ségrégation du fluide, concerne le processus intime du mélange au sein du récipient : c'est son aspect spatial (Villermaux, 1994).

## **II.4. Phénomène du micro-mélange et état de ségrégation**

La notion du micro-mélange à vue le jour suite aux travaux novateurs de DanckWerts (1958) et Zwietering (1959). Depuis cette époque plusieurs travaux ont été réalisés sur le micro-mélange.

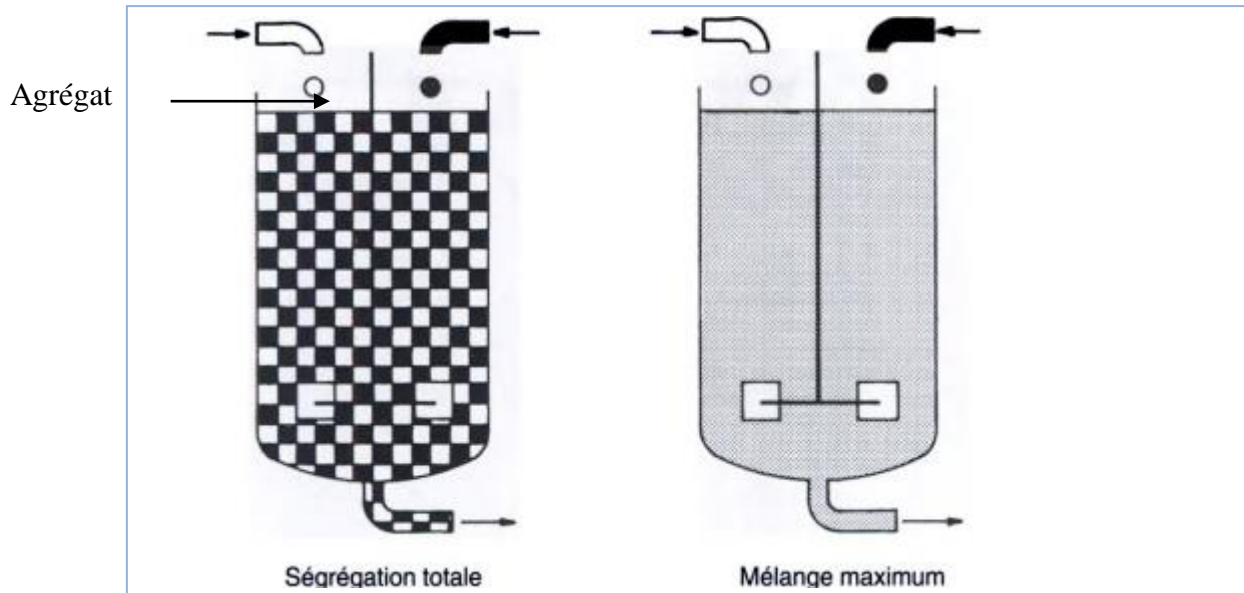
### **II.4.1. La notion de ségrégation**

En effet, au sein d'un mélange il peut rester des agrégats non mélangés (agrégats microscopiques composés de quelques  $10^{15}$  à  $10^{18}$  molécules n'échangeant pas de matière entre eux) créant des hétérogénéités locales qui conduisent à ce qu'on dénomme une ségrégation (Trambouze, 2002 ; Fournier, 1994).

Un mélange macroscopiquement homogène peut présenter une structure microscopique variable, comprise entre deux états limites.

Soit en ségrégation total ou les molécules restent groupées par paquets sous forme d'agrégats de forme quelconque, globules sphériques, filamenteuses, tourbillons. Un tel fluide est appelé *macro-fluide*.

Soit en mélange parfait ou le fluide est intimement brassé et les molécules peuvent se mettre en contact les unes aux autres. Un tel fluide est appelé *micro-fluide*.



**Figure II.2:** Schéma de deux états extrêmes de micromélange (Trambouze, 2002).

#### II.4.2. Les caractéristiques de la ségrégation

L'état de ségrégation d'un mélange, de deux liquides miscibles l'un dans l'autre, se caractérise par trois paramètres tels que l'échelle de ségrégation, l'intensité de ségrégation et le temps de décroissance de ségrégation.

##### II.4.2.1. L'échelle de ségrégation

L'échelle de ségrégation mesure la taille des domaines de ségrégation, dans un milieu très visqueux, c'est l'épaisseur des stries correspondant aux filets du fluide mal mélangé, dans un milieu turbulent ; c'est par exemple la dimension des petits tourbillons ou la matière ne pénètre plus que par diffusion (Villermaux, 1994). Cette échelle de ségrégation est donnée par (Kolmogorov, 1941) selon la relation suivante :

$$\lambda_K = (\nu^3/\varepsilon)^{1/4} \quad (6)$$

Avec:

$\lambda_K$ : l'échelle de Kolmogorov(m).

$\nu$  : la viscosité cinématique du fluide (Pa.s).

$\varepsilon$  : la puissance dissipée localement par unité de masse (w/kg).

Dans des conditions courantes,  $\lambda_K$  vaut quelques  $10^{-5}$  m (ou dizaines de micromètres) (Villermaux, 1994).

#### II.4.2.2. L'intensité de ségrégation

L'intensité de ségrégation ( $I_s$ ) est une mesure de la différence de concentration entre deux agrégats voisins du fluide (Geissler, 1991), Elle est donnée par DanckWerts (1952) selon la relation suivante :

$$I_s(t) = \overline{c^2}(t) / \overline{c_0^2} \quad (7)$$

Avec :

$\overline{c^2}(t)$  : la variance des fluctuations de concentration à un instant t.

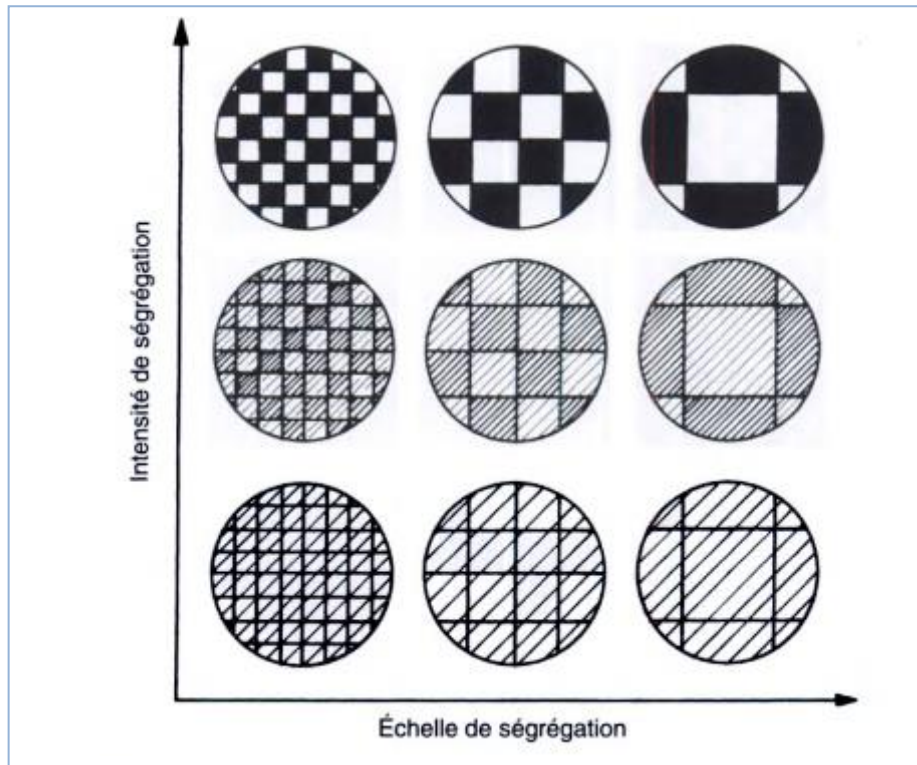
$\overline{c_0^2}$  : la variance des fluctuations de concentration initiale (début de mélange).

Suivant la valeur de l'intensité de ségrégation on peut avoir trois cas :

Si la valeur de l'intensité de ségrégation égale à un ( $I_s=1$ ), donc la ségrégation du mélange est totale.

Si la valeur de l'intensité de ségrégation est nul ( $I_s=0$ ), le mélange est maximum.

Si la valeur de  $I_s$  est limité entre les deux extrêmes ( $0 < I_s < 1$ ), le mélange est intermédiaire (ou une ségrégation partielle) (Geissler, 1991).



**Figure II.3 :** Caractérisation de la ségrégation : l'échelle et intensité de ségrégation  
(Trambouze, 2002)

#### II.4.2.3. Le temps de décroissance de ségrégation :

Une autre grandeur importante, est le temps caractéristique décroissance de la ségrégation (ou le temps du micromélange  $t_m$ ) sous l'influence de l'agitation mécanique suivi d'une diffusion turbulente (Villiermaux, 1994). 'Dans la plupart des cas, ce temps du micromélange est donné par la relation suivante (Baladyga, 1984).

$$t_m = K (v/\varepsilon)^{1/2} \quad (8)$$

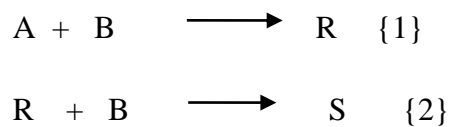
Tel que K est une constante (qui vaut environ 17 dans les cuves agitées en milieux turbulents). Typiquement,  $t_m$  vaut de quelques millisecondes à une seconde (Villiermaux, 1994).

### II.4.3. L'influence de la ségrégation sur une réaction chimique

La réaction chimique est limitée par le phénomène de ségrégation, qui empêche les échanges entre les paquets de molécules, lorsque le temps caractéristique de réaction  $t_r$  est plus court que le temps du micro-mélange ( $t_m$ ) (Villiermaux, 1994 ; Fournier, 1994).

Pour des schémas réactionnels complexes, la distribution finale des produits est sensible aux conditions de mise en contact des réactifs. Donc la conversion d'un réactif et par conséquent la sélectivité d'une réaction peut être affectées (Fournier, 1994).

Si par exemple, on veut obtenir par injection d'un réactif  $B$  dans un réactif  $A$ , un produit  $R$  par une réaction {1}, cette réaction est couplée par une réaction parasite {2}.



La formation du produit parasite  $S$  va à l'encontre de l'objectif initial en diminuant la formation du produit désiré  $R$ , et oblige à ajouter, dans le procédé, une étape supplémentaire de séparation des produits  $S$  et  $R$ .

Dans le cas où la cinétique de la réaction {1} est beaucoup plus rapide que celle de la réaction {2}, les conditions du micro-mélange ( $t_m$ ) influent sur sélectivité du système réactionnel c'est-à-dire sur la quantité du produit  $S$  formé comme suivant :

- Si le micro-mélange est beaucoup plus rapide que la réaction {2}, les molécules du produit  $R$  formées s'échappent facilement de la zone réactionnelle et n'ont pas le temps de réagir avec le réactif  $B$ . on forme alors majoritairement le produit  $R$ .
- Si le micro-mélange est plus lent que la réaction {2}, le produit  $R$  tarde à quitter la zone d'injection, riche en espèce  $B$  et la formation de  $S$  est favorisée.

Donc pour optimiser un procédé chimique, Il faut porter les efforts sur la qualité du micro-mélange à fin que celui-ci soit plus rapide que la réaction 2 et que la formation du produit  $S$  soit minimale (Guichardon,...).

Expérimentalement, plusieurs techniques ont été utilisées pour caractériser le micromélange, basées sur des méthodes physiques telles que la conductimètre (Prausnitz et wilhelm, 1957 ;

Torrest et Ranz, 1969 ; Brodberger, 1981), l'optique (Rosensweig et al. ,1961 ; André, 1991 ; .Vacus, 1991), et des méthodes chimiques (Plasari et al. 1978 ; Fournier ,1994) . Or, les processus du micromélange ont lieu à des échelles microscopiques (comprises entre celles de Kolmogorov et Batchelor), les méthodes physiques ne sont pas efficaces. Donc leur caractérisation nécessite l'utilisation des méthodes plus fines telles que : les méthodes chimiques.

## II.5. Caractérisation chimique du micro-mélange

Il y a des systèmes réactionnels chimiques qui sont sensibles au mode de mise en contact des réactifs, et par conséquent peuvent être utilisés comme indicateurs de la qualité du micromélange. Leur principe est basé sur l'influence des conditions du mélange (vitesse d'agitation, position d'injection, concentration des réactifs) sur la distribution des produits réactionnels.

Les différentes qualités requises par un système réactionnel chimique apte à mesurer le micromélange sont principalement :

Une des étapes cinétiques très rapide (réaction instantanée).

Une mise en œuvre simple des réactions : utilisation des réactifs courants, non toxiques et de cout raisonnable, réaction reproductible.

Une analyse aisée des produits réactionnels (Guicherdon, 1996).

Il existe trois types des réactions chimiques tests tels que :

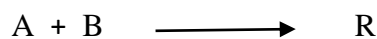
Les réactions simples ;

Les réactions consécutives-concurrentes ;

Les réactions parallèles- concurrentes ;

### II.5.1. les réactions chimiques tests simples

Le schéma réactionnel de ce type de réactions s'écrit :



Ce sont des réactions simples très rapides ou rapides de cinétique connue. Caractérisées par un temps de réaction  $t_r$ . plus le rapport  $t_r / t_m$  est petit, plus la réaction chimique est rapide devant le mélange (Fournier, 1994).

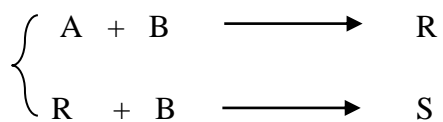
Le tableau II-1 donne quelques exemples de ce type des réactions

**Tableau II- 1 :** Exemples de réactions chimiques tests simples sensibles aux effets du micromélange.

Référence	Réactif A	Réactif B
Worrell et al, 1964 Keairns et al, 1969	Thiosulfate de sodium ( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ )	Peroxyde D'hydrogène
Keeler et al, 1965 Torrest et al, 1970	Hydroxyde d'ammonium ( $\text{NH}_4\text{OH}$ )	Acide acétique ( $\text{CH}_3\text{CO}_2\text{H}$ )
Mao et coll ; 1971	Acide chlorhydrique (HCl) Acide maléique Acide nitrilotri- acétique Dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ )	Hydroxyde de sodium Hydroxyde de sodium Hydroxyde de sodium Hydroxyde de sodium
Larosa et coll ; 1964 Zoulalian et coll ; 1970	Acétate d'éthyle ( $\text{CH}_3\text{COOC}_2\text{H}_5$ )	Hydroxyde de sodium

### II.5.2. Les réactions chimiques tests consécutives- concurrentes

Le mécanisme réactionnel de ce type de réactions s'écrit comme suivant :



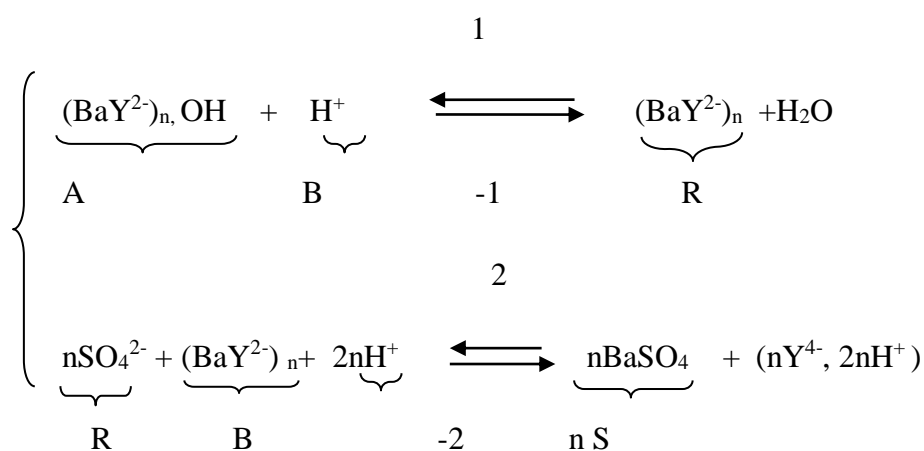
Généralement le réactif B est injecté dans le réacteur contenant au préalable le réactif A en excès stœchiométrique. L'indice de ségrégation  $X_S$  présente le rapport de la quantité de B transformée en S à la quantité de B consommée, qui se confond avec la quantité initiale de B puisque A est en excès.

$$X_S = 2C_S / (2C_S + C_R) \quad (9)$$

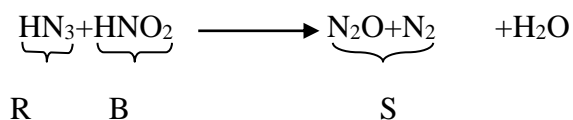
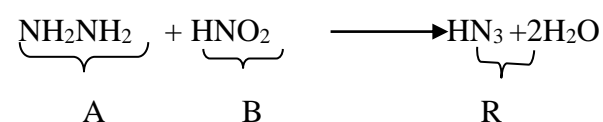
En présence du micro-mélange parfait, le réactif B est instantanément répartie dans l'ensemble du réacteur et complètement consommé par A, et par conséquent il n'ya pas formation de S. Au contraire, si le mélange est totalement ségrégé, il existe localement une surconcentration de B qui après consommation de A, réagit avec R pour former S.

Donc la deuxième réaction joue un rôle du capteur permettant de mesurer la qualité de la mise en contact de A et B.

**Exemple : 1 :-** La précipitation de sulfate de Barym (Barthole, 1984) :



**Exemple : 2 :-** le système hydrazine – acide nitreux – acide azohydrique



Le tableau II-2 rassemble les différentes réactions utilisées selon différents auteurs.

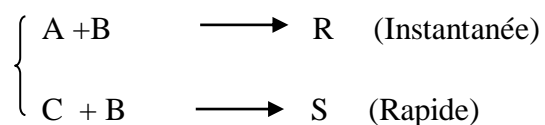


**Le tableau II-2 :** Exemples de réactions consécutives concurrentes. (De F. Imerzoukene, 2008).

Référence	Réactif A	Réactif B	R	Produit S
Paul et al (1971)	L-tyroïne	Iode	3-iodo-L-tyrosine	3,5-di-iodo-L-tyrosine
Zoulalain et al (1974)	P-Crésol	Iode	Dérivé monoiodé	Dérivé diiodé
Bourne et al (1977)	1,3,5 Triméthoxybenzène	Brome	Dérivé onobromé	Dérivé dibromé

### II.5.3. Les réactions chimiques tests compétitives parallèles

Ce type de réactions est sensible à l'état local du micromélange. (*Baldyga et coll, 1990*). Elle répond au mécanisme réactionnel suivant :



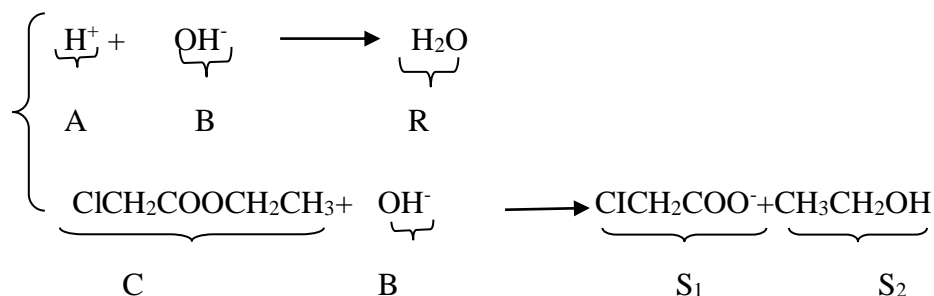
On injecte le réactif B dans le milieu réactionnel contenant les réactifs A et C. Si le micro-mélange est parfait il y a formation de R, puisque la première réaction est beaucoup plus rapide que la deuxième. Inversement, si le micromélange est lent devant les réactions, le fluide est ségrégué. Les réactifs sont alors consommés dans le rapport des concentrations de A et C présentes dans le milieu. On voit donc, que la quantité de S formée en fin de la réaction, est une mesure de la ségrégation. (Guicherdon, 1996). L'indice de ségrégation s'écrit sous la forme :

$$X_S = \frac{n_S}{n_{B0}} \left( 1 + \frac{n_{A0}}{n_{C0}} \right) \quad (10)$$

Avec :  $n_i$  : nombre de moles de l'espèce i.

$n_{i0}$  : nombre de moles initiaux de l'espèce i.

**Exemple :** l'hydrolyse alcaline du chloracétate d'éthyle (Yu 1992).



Le Tableau II-3 rassemble d'autres exemples de réaction compétitive parallèle.

**Tableau II-3:** Exemples de réactions compétitives parallèles.

Référence	Réactif A	Réactif B	Réactif C
Treleaven et al(1973)	Acide 1-Naphtol-6-sulfonique	4-Sulfonyl diazote chloride	4-Toluène diazoniumchloride
Miyawaki et al(1975)	Ammoniac	Dioxyde du carbone	Hydroxyde de sodium
Phelan et al (1992)	Acide chlorhydrique	Hydroxyde du sodium	Solvant organique

Les différents types de réactions tests utilisés présentent certains inconvénients :

- Lors de la réaction de précipitation de sulfate de Baryum, Bathrol et al, (1984) ont constaté que cette réaction n'est pas assez rapide pour déterminer l'efficacité du micromélange et elle ne peut être utilisée que pour un temps du micro-mélange supérieur à 10s.

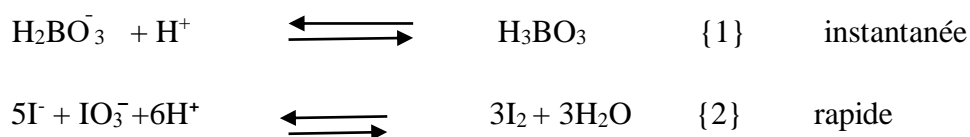
- La réaction de l'hydrolyse alcaline du chloracétate d'éthyle et du chloracétate de méthyle présente une difficulté d'analyse de faite qu'elle nécessite une analyse rapide car le méthanol est volatile ainsi les produits de réaction sont toxiques.

- Lors de la réaction du couplage diazoïque (couplage azo entre l'ion 1-naphtolate et l'ion 4-sulfophényle diazonium) les réactifs et les produits sont polluants ainsi le diazonium est assez instable, donc il nécessite l'emploi des solutions fraîchement préparées. D'après les travaux de (Bourne et al, 1985, 1990,1989 ; Dunlop et al, 1990). Les réactions qui ont réellement lieu, ont un schéma réactionnel plus complexe que celui présenté dans la théorie.

C'est pourquoi et face à ces problèmes Fournier (1994) a développée une nouvelle réaction test du type compétitive parallèle rapide et simple.

#### II.5.4. La réaction chimique teste iodure-iodate

La méthode chimique iodure-iodate a été proposée par Fournier (1994) et confirmée par Guicherdon (1996). Elle repose sur l'utilisation d'un système réactionnel constitué de deux réactions parallèles :



La cinétique de la réaction (2), réaction redox, est rapide mais toutefois beaucoup plus lente que celle de la réaction (1), réaction acide-base.

L'iode formé ( $\text{I}_2$ ) réagit, suivant la réaction (3) quasi-instantanée, avec les ions iodure ( $\text{I}^-$ ) pour former les ions tri-iodure ( $\text{I}_3^-$ )



Le test consiste à injecter, en défaut stœchiométrique, une quantité d'acide sulfurique dans un mélange contenant des ions iodures-iodates et borates en milieu basique.

Dans le cas où le mélange est parfait, l'acide injecté est instantanément disséminé au sein du mélange réactif et est entièrement consommé par la réaction de neutralisation(1) « qui infiniment plus rapide que la réaction (2) ». Donc la quantité d'iode produite est nulle. Si par contre, les conditions du mélange sont telles que le temps caractéristique de dissipation des agrégats d'acide sulfurique ( $t_m$ ), est du même ordre de grandeur (ou supérieur) que le temps caractéristique de la réaction (2), ces agrégats représentent localement une surconsommation d'acide qui réagit, après consommation totale des ions borate ( $\text{H}_2\text{BO}_3^-$ ) environnant, avec les ions iodures et iodates ( $\text{IO}_3^-$ ) pour former de l'iode. Donc, la sélectivité en iode est une mesure de l'état de ségrégation du fluide (Guicherdon, 1996).

La sélectivité ( $Y$ ) de la réaction (2) représente le rapport entre la quantité de l'iode et le tri-iodure formée et la quantité initiale d'acide sulfurique injecté. Elle est donnée par la relation suivante (Fournier, 1996) :

$$Y = \frac{2(nI_2 + nI_3^-)}{nH^+_{,o}} = \frac{2([I_2] + I_3^-)v}{v_{inj} [H^+]_{,o}} \quad (11)$$

Si le micromélange est rapide (parfait), l'acide injecté est consommé majoritairement par la réaction (1) et donc la quantité de l'iode et tri-iodure formée est nulle ce qui donne une sélectivité nulle de la réaction (2). Mais, si le micromélange est très lent (totalement ségrégé), l'acide injecté est consommé majoritairement par la réaction (2), et donc la sélectivité peut contrôlée par le rapport entre les concentrations initiales des ions borates, ions iodure ou iodate. Elle est donnée par la relation suivante (Fournier, 1996).

$$Y_{ST} = \frac{6nIO_{3,0}^-}{6nIO_{3,0}^- + nH_2BO_{3,0}^-} = \frac{6[IO_3^-]_{,0}}{6[IO_3^-]_{,0} + [H_2BO_3^-]_{,o}} \quad (12)$$

- L'indice de ségrégation ( $X_s$ ) est donné par la relation suivante (Fournier, 1996) :

$$X_s = \frac{Y}{Y_{st}} \quad (13)$$

## II. 6. L'efficacité du micro-mélange ( $\alpha$ )

L'efficacité du micro-mélange est donnée par la relation suivante :

$$\alpha = \frac{1 - X_s}{X_s} \quad (14)$$

La réaction test iodure-iodate présente plusieurs avantages :

Une réaction simple.

Réactifs peu couteux

Cinétique connue.

La mesure expérimentale des ions tri-iodure est facile par spectrophotomètre.

Réaction suffisamment rapide ce qui permet la mesure de l'efficacité du micromélange.

Par ailleurs, cette réaction test présente quelques inconvénients :

Les produits de la réaction doivent être rapidement analysés afin d'éviter la perte en iode.

Le milieu est entièrement oxydé (Fournier, 1996).

*Deuxième partie :*  
***ETUDE EXPERIMENTALE***

*Présentation Laboratoire de Recherche Technologie Alimentaire*



Le laboratoire de recherche Technologie Alimentaire (LRTA) a été créé en février 2001. Il est sous tutelle du ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique.

Les domaines de compétence du laboratoire sont :

- Ressources en eau et environnement industriel.
- Engineering agro-alimentaire.
- Qualité et caractérisation des aliments.
- Formulation et évaluation des nouveaux produits alimentaires.
- Développement de la biotechnologie appliquée dans le domaine agro-alimentaire.
- Préservation de l'environnement par le biais de récupération des déchets alimentaires.
- Accompagnement, expertise et formation.

Equipes de recherche

Le laboratoire de recherche LRTA possède un potentiel humain et matériel.

Il est constitué de 06 équipes structurées comme suit :

Equipe 01 : Traitement des eaux.

Equipe 02 : Caractérisation de nouveaux produits et appareillage.

Equipe 03 : Technique de conservation des denrées alimentaires.

Equipe 04 : Biotechnologie et environnement.

Equipe 05 : Contrôle et la qualité alimentaire.

Equipe 06 : Environnement et développement durable.

Le travail dans l'équipe 2 se base sur la formulation des nouveaux produits et appareillage. Cette équipe est constituée du chef du groupe (monsieur Nouri L'hadi) et d'autres membres. Notre travail est inclus dans la partie de conception et appareillage et il a été sous le contrôle et la surveillance du monsieur SAYAH Houcem.

### *Chapitre III : L'étude du micro-mélange*



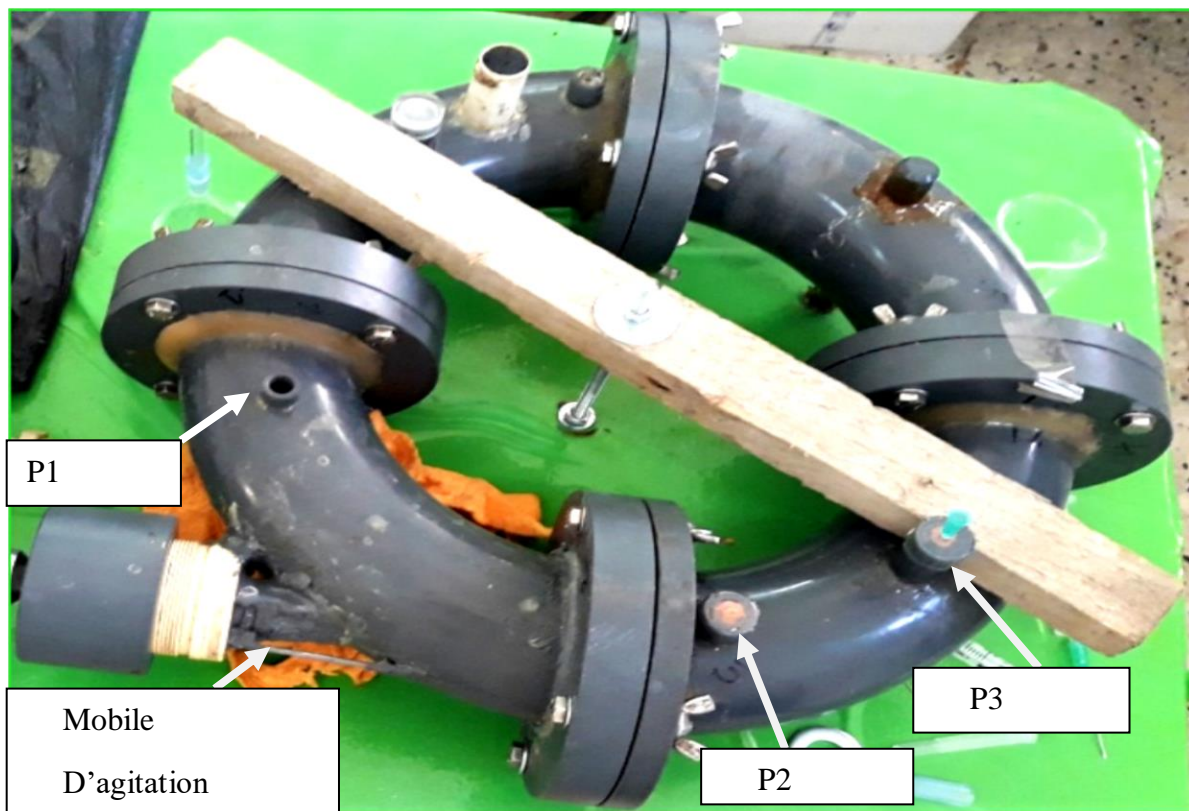
### III.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons le matériel et les conditions opératoires ayant permis de caractériser expérimentalement le micro-mélange dans le réacteur à géométrie torique de 2,1 L.

Le micro-mélange peut influencer la sélectivité et la qualité du produit fini dans la plus part des processus industriels.

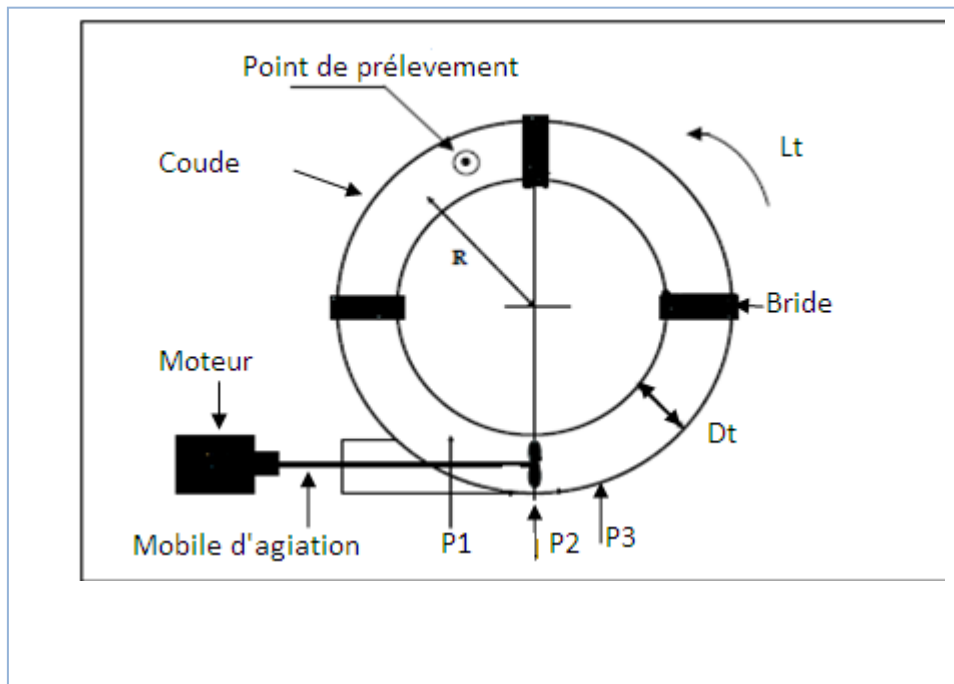
L'objectif de cette étude est de caractériser le micro-mélange dans un réacteur torique de 2,1 L, en utilisant une méthode chimique test, basée sur un système de réactions parallèles concurrentes « iodure/iodate » développé par Fournier (1994) et Guicherdon (1996) et confirmé par Assirelli (2004).

### III.2. Description du matériel utilisé



### III.2.1. Description du réacteur torique

Le réacteur qui a été utilisé est un réacteur à boucle parfaitement torique (section circulaire). Il possède trois positions d'injection (P1, P2, P3) différentes par rapport au mobile d'agitation (Figure III-1).



**Figure III.1** : Schéma du réacteur torique fermé

- Les différentes caractéristiques géométriques, du réacteur torique utilisé, sont indiquées dans le tableau suivant :

**Tableau III-1:** Caractéristiques géométriques du réacteur torique utilisé.

$V_R(l)$	R (mm)	$D_t$ (mm)	$L_t$ (mm)
2,1	135	55	884

Avec :

$V_R$  : le volume du réacteur torique.

$R$  : le rayon de courbure des coudes.

$D_t$  : le diamètre intérieur du réacteur torique.

$L_t$  : la longueur moyenne totale du réacteur torique.

- Les coordonnées des différentes positions sont rassemblées dans le tableau suivant :

**Tableau III-2** : Coordonnées des positions d'injection par rapport au mobile d'agitation

Position	P1	P2	P3
Coordonnée (mm)	-200	0	+80

### III.3. choix de la méthode

Dans cette étude, nous avons adopté la méthode chimique iodure-iodate. Elle a été choisie grâce à sa facilité d'utilisation du faite qu'elle nécessite un appareil de mesure très simple (spectrophotomètre), et des produits chimiques disponibles et peu couteux. D'autre part, cette méthode offre une bonne précision de mesure et elle est adaptable à tous types des réacteurs en système fermé ou ouvert.

### III.4. Présentation du système iodure-iodate

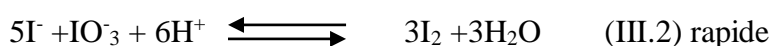
#### III.4.1. Principe

Le principe est basé sur le système réactionnel suivant :

Une réaction acido-basique entre les ions borate ( $H_2BO_3^-$ ) et le proton ( $H^+$ ) de l'acide sulfurique injecté :



Une réaction d'oxydo-réduction entre les ions iodures ( $I^-$ ) et iodates ( $IO_3^-$ ) et le proton de l'acide sulfurique injecté :



Une réaction d'équilibre entre les ions iodures et l'iode formé ( $I_2$ ) :



Le test consiste à ajouter en défaut stœchiométrique, une quantité d'acide sulfurique à un mélange contenant les ions iodure, iodate et borate.

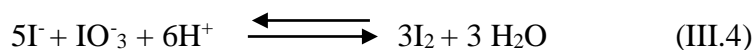
L'iode formé réagit avec les ions iodures pour former les ions tri-iodures selon la réaction (III.3), la concentration des ions  $I_3^-$  est mesurée par spectrophotomètre à  $\lambda = 353\text{nm}$ .

Dans les conditions du mélange parfait, l'acide injecté est instantanément disséminé et consommé par la réaction de neutralisation (III.1) qui est infiniment rapide que la réaction (III.2). La quantité d'iode formée est alors nulle.

Dans le cas inverse ou le temps du micro-mélange est de même ordre de grandeur ou supérieur que le temps caractéristique de la réaction (III.2), les agrégats d'acide représentent localement une surconcentration qui réagit ; après consommation totale des  $H_2BO_3^-$  environnant, avec les ions iodure et iodate pour former de l'iode. La sélectivité en iode est donc une mesure de l'état de ségrégation du fluide (Guicherdon et coll, 2000).

#### III.4.2. Cinétique de réaction de Dushman

La réaction d'oxydation des ions iodure par les iodates en milieu acide, est appelée réaction de Dushman qui est décrite par l'équation stœchiométrique globale :



La cinétique de cette réaction a fait l'objet de nombreuses études, le tableau suivant regroupe les différentes lois cinétiques proposées par plusieurs auteurs.

Généralement, la loi de la cinétique est écrite sous la forme suivante :

$$r = K [IO_3^-]^m [I^-]^n [H^+]^p \quad (15)$$

**Tableau III-3** : les différentes lois cinétiques proposées par différents auteurs.

Loi cinétique (M/s.l)	Auteurs	Année
$1,3. 10^9 [IO_3^-] [I^-]^2 [H^+]^2$	Abel	1926
$1,3. 10^9 [IO_3^-] [I^-]^2 [H^+]^2 + 9.10^8 [IO_3^-] [I^-]^2 [H^+]^2 [I_3^-]$	Dushman	1904
$4,27.10^8 [IO_3^-] [I^-]^2 [H^+]^2$ pour I=1M $2,62. 10^8 [IO_3^-] [I^-]^2 [H^+]^2$ pour I=0,1M	Palmer	1988

### III.4.3. Indice de ségrégation

L'indice de ségrégation de cette réaction s'écrit sous la forme :

$$X_s = Y / Y_{st}$$

Si  $X_s=0$ , le mélange est parfait.

Si  $X_s=1$ , La ségrégation est totale.

Avec :

Y est le rapport du nombre de moles d'acide consommé par la réaction (2) au nombre de mole totale d'acide injecté, il représente la sélectivité du système réactionnel

$$Y = \frac{2}{n_{H_0^+}} n_{H_0^+} + n_{I_3^-} = \left[ \frac{2 \cdot V_{\text{réacteur}} \cdot ([I_2] + [I_3^-])}{V_{\text{inj}} \cdot [H_0^+]} \right] \quad (16)$$

$n_H$  représente la quantité d'acide consommée par la réaction.

$Y_{st}$  : est la valeur de Y dans le cas d'une ségrégation totale quand le processus de mélange est infiniment lent.

$$Y_{ST} = \frac{6 \cdot [IO_3^-]}{6 \cdot [IO_3^-] + [H_2BO_3^-]} \quad (17)$$

#### III.4.4. Détermination de la concentration de l'iode $[I_2]$

Le bilan de matière sur les ions iodures est :

$$[I^-] = [I_0^-] - 5/3 ([I_2] + [I_3^-]) - [I_3^-] \quad (18)$$

La constante d'équilibre de la réaction (III.3) est :

$$K_B = [I_3^-] / [I_2] [I^-] \quad (19)$$

Par combinaison des équations (17) et (18), on obtient une équation du deuxième ordre où la concentration en iode est la solution :

$$-5/3 (I_2)^2 + ([I^-]_0 - 8/3[I_3^-]) [I_2] - [I_3^-]/K_B = 0 \quad (20)$$

La constante d'équilibre  $K_B$  est donnée en fonction de la température  $T$  (°K) par (Palmer, 1984) :

$$\text{Log}_{10} K_B = 555/T + 7,355 - 2.575 \log_{10} T \quad (21)$$

#### III.4.5. Détermination de la concentration de tri-iodure $[I_3^-]$

La concentration de tri-iodure formée est déterminée par la loi de Beer-Lambert à partir de la densité optique (DO), mesuré à 353nm :

$$[I_3^-] = \frac{DO}{\epsilon_0 l} \quad (22)$$

Tel que:

L: Le trajet optique de la cellule égale 10mm.

$\epsilon_0$  : Coefficient d'extinction de  $I_3^-$  à 353 nm.

Le tableau II-3 rassemble les différentes valeurs de  $\epsilon$  déterminées par différents auteurs.

**Tableau III-4:** Les différentes valeurs du coefficient d'extinction de  $I_3$ 

Auteurs	Longueur d'onde $\lambda$ (nm)	Coefficient d'extinction $\epsilon$ (m <sup>2</sup> /mol)
Custer et Natelson(1949)	352	2590
Audrey et Connick(1951)	353	2640
Herbo et Sigallia (1957)	350	2510
Palmer et coll (1984)	350	2575
Guichardon (1996) SSF	353	2395,9
Guichardon (1996) SDF	353	2606

SSF : Spectrophotomètre simple faisceau, SDF : Spectrophotomètre double faisceau

#### III.4.6. Détermination de l'efficacité du micro-mélange

Elle est définie comme étant le rapport entre le volume parfaitement micro-mélange ( $V_{PM}$ ) et le volume totalement ségrégué ( $V_{ST}$ ). (Guichardon, 1996)

$$(V_{PM} + V_{ST}) = V_{PM}(X_S)_{\text{micromélange parfait}} + V_{ST}(X_S)_{\text{ségrégation totale}}$$

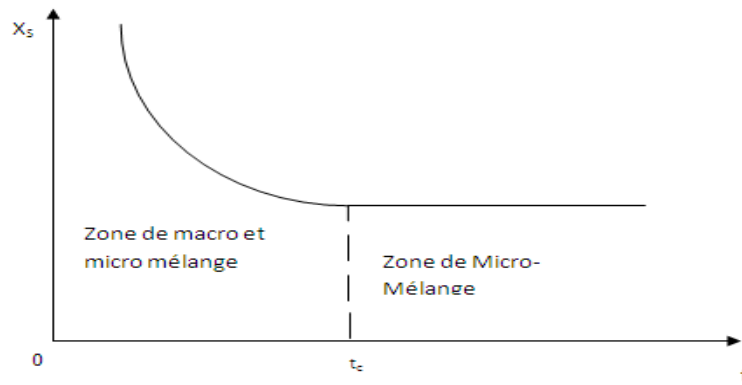
$$\text{Avec } (X_S)_{\text{micromélange parfait}} = 0 \text{ et } (X_S)_{\text{ségrégation totale}} = 1$$

Alors

$$\alpha = V_{PM}/V_{ST} = \frac{1-X_S}{X_S}$$

#### III.4.7. Détermination du temps d'injection

L'étude de l'influence du temps d'injection de l'acide sulfurique montre que l'indice de ségrégation varie en fonction du temps d'injection, selon l'évolution suivante (figure III-2)



**Figure III.2 :** Influence du temps d'injection sur l'indice de ségrégation (Fournier, 1994)

Cette figure montre que :

Pour un temps d'injection inférieur à un temps appelé « temps d'injection critique » ( $t_c$ ) l'indice de ségrégation  $X_s$  augmente. Cette croissance indique qu'il existe de forts gradients de concentration et une formation importante d'îlots et la solution est sous le contrôle du macro-mélange et du micro-mélange.

Pour des temps d'injection supérieur à  $t_c$ ,  $X_s$  ne dépend plus du temps d'injection et le micro-mélange est le seul processus qui contrôle la distribution des produits. Pour l'étude de l'état local du micro-mélange il faut travailler dans cette zone.

Selon les travaux de plusieurs auteurs :

Le temps critique d'injection est réduit par l'augmentation des vitesses d'agitation par suite d'une amélioration des conditions du micro-mélange. (Baldyga, 1992, Thoma, 1991, Fournier, 1994).

L'augmentation de la vitesse d'agitation de la solution conduit à des temps critiques plus élevés. (Fournier, 1994).

Le temps critique d'injection augmente avec la taille du réacteur et du diamètre du mobile d'agitation. (Fournier 1994, Bourne 1991).



### III.4.8. Procédure expérimentale de mise en œuvre du système iodure- iodate

#### A. Procédure à une seule injection

Elle consiste à injecter un débit constant de 4,2ml d'acide sulfurique «  $H_2SO_4$  » (1M) par 2,1litre de solution, contenant des ions iodure, iodate et borate en milieu alcalin, (pH=9,14) dont les concentrations sont résumées dans le tableau suivant:

**Tableau III-5 :** Concentrations initiales des réactifs utilisés.

Réactifs	$[I_2]$	$[H_3BO_3]_0$	$[NaOH]_0$	$[H_2BO_3^-]=[H_3BO_3]$
Concentration(M)	$7 \cdot 10^{-3}$	0,1818	0,0909	0,0909

- La soude, base forte réagit entièrement avec l'acide ortho-borique pour former un mélange équimolaire  $[H_2BO_3^-] = [H_3BO_3]$ , Dans ces conditions, le pH de la solution tamponné est égal à 9,14.

- Les quantités des réactifs pour préparer 5 litres de la solution sont données dans le tableau suivant :

**Tableau III-6:** Quantité des réactifs utilisés pour préparer les 5litres de la solution.

Réactifs	Quantités (g)	Volume ( $10^{-3}$ litres)
KI	9,683	50
KIO <sub>3</sub>	2,4967	500
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	56,2034	1500
NaOH	18,1818	500
H <sub>2</sub> O	-	2450

#### Mode Opératoire

La méthode consiste à remplir le réacteur torique de 2,1 L du volume réactionnel, et on allume l'agitateur à faible vitesse (200 tr/min).

Après la fin d'injection d'acide sulfurique ( $H_2SO_4$ ) ( $V_{\text{injecté}} = 2,1$  ml) dans la position P1 du réacteur en variant le temps d'injection, on prélève à un endroit quelconque du réacteur un échantillon de la solution finale et on mesure sa concentration en tri-iodure ( $I_3^-$ ) par

spectrophotomètre afin de déterminer l'indice de ségrégation qui caractérise l'état du micro-mélange.

### B. Procédure à injections successives

Elle consiste à injecter successivement à débit constant un volume de 4,2 ml d'acide sulfurique (1M) à la même solution d'iodure, iodate, borate en milieu alcalin. Une première injection d'acide dans la solution permet de mesurer  $X_s$ . A cette solution de couleur jaune due à la présence d'iode en solution on injecte une deuxième dose d'acide pour déterminer une nouvelle valeur de  $X_s$ . Le nombre d'injection est limité entre 3 et 4 injections, dues à la limite de mesure du spectrophotomètre.

Le dépouillement des résultats se fait par différence d'une injection à l'autre. Soit  $i$  l'indice de l'ième injection, correspondant à l'indice de ségrégation  $X_{si}$  donné par la formule suivante :

$$X_{si} = \frac{Y_i}{Y_{sti}} \quad (23)$$

Tel que :

$$Y_i = \frac{2(n_{I_{2,(i)}} + n_{I_{3,(i)}}^-)}{n_{H_0^+}} = \frac{2 V_{réacteur,(i)} ([I_2]_{(i)} + [I_3^-] - ([I_2] + [I_3^-]))}{V_{inj} [H_0^+]} \quad (24)$$

$$Y_{st,i} = \frac{6[IO_3^-]_{0,i}}{6[IO_3^-]_{0,i} + [H_2BO_3^-]_{0,i}} \quad (25)$$

Le volume total du réacteur change à cause des injections et des prélèvements successifs, respectivement de l'acide et de la solution, pour l'ième injection. Le volume du réacteur est corrigé après chaque injection, tel que :

$$V_{réacteur,(i)} = V_{réacteur,(0)} + (i-1) V_{inj} - (i-1) V_{(échantillon)} \quad (26)$$

$(n_{I_{2,i}} + n_{I_{3,i}}^-)$  : représente la quantité des ions  $I_2$  et  $I_3^-$  formés lors de la  $i^{ème}$  injection et calculé par la relation suivante :

$$(n_{I_{2,i}} + n_{I_{3,i}}^-) = V_{réacteur,i} ( [I_2]_i + [I_3^-]_i + ([I_2]_{i-1} + [I_3^-]_{i-1}) ) \quad (27)$$

$[I_2]_i + [I_3]_i$  et  $([I_2]_{i-1} + [I_3]_{i-1})$  sont respectivement, les concentrations des espèces dans le réacteur après et avant la  $i^{\text{ème}}$  injection.

La concentration des ions tri-iodures ( $I_3^-$ ) est déterminée à partir de la densité optique  $DO_i$  de l' $i^{\text{ème}}$  injection notée ( $DO_i$ ) selon la loi de Beer-Lambert :

$$[I_3] = \frac{DO_i}{\varepsilon_0 l} \quad (28)$$

Avec  $\varepsilon_0$  Coefficient d'extinction ( $m^2/mol$ ) et  $l$  le trajet optique (m)

La concentration de l'iode  $I_2$  correspondant à la  $i^{\text{ème}}$  injection est déterminée à partir de l'équation du 2<sup>ème</sup> ordre suivante :

$$-5/3 [I_2]_i^2 + ([I^-]_{0,i} - 8/3 [I_3]_i) [I_2]_i - \frac{[I_3]_i}{KB} = 0 \quad (29)$$

Les concentrations initiales des réactifs avant chaque injection doivent être actualisées selon les relations suivantes:

$$[I^-]_{0,i} = \frac{(v_{\text{réacteur},i-1} [I^-]_{0,i-1}) - \frac{5}{3} \left( (n_{I_2,(i-1)} + n_{I_3,(i-1)}) \right) - n_{I_3,(i-1)}}{v_{\text{réacteur},i-1}} \quad (30)$$

$$[IO_3^-]_{0,i} = \frac{[(v_{\text{réacteur},i-1} [IO_3^-]_{0,i-1}) - (n_{I_2,(i-1)} + n_{I_3,(i-1)})]}{v_{\text{réacteur},i-1}} \quad (31)$$

$$[H_2BO_3^-]_{0,i} = \frac{(v_{\text{réacteur},i-1} [H_2BO_3^-]_{0,i-1}) - \frac{1}{3} (n_{H_0^+} - (n_{I_2,(i-1)} + n_{I_3,(i-1)}))}{v_{\text{réacteur},i-1}} \quad (32)$$

**Mode Opérateur**

Le mode opératoire utilisé est inspiré du protocole opératoire proposé par Guicherdon et Falk (2000).

On a choisi la méthode à injections successives « injection / mesure » car elle est économique de point de vue réactifs et temps.

La méthode consiste à injecter un volume de 4,2ml d'acide sulfurique 1M dans un réacteur contenant 2,1L litres d'un mélange d'acide borique, d'iodure de potassium, d'iodate de potassium et de l'eau distillée. Après 3min d'agitation on prélève un volume de 1ml (solution jaune) pour l'analyser au spectrophotomètre à  $\lambda = 353\text{nm}$ .

***CHAPITRE IV : RESULTATS ET***

***DISCUSSIONS***

## IV.1.Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats de la caractérisation du micromélange dans le réacteur à géométrie torique de 2,1Litres.

Dans un premier temps, nous avons étudié l'influence de certains paramètres sur l'indice de ségrégation et donc sur la qualité du micromélange.

Ces paramètres sont :

Le temps d'injection d'acide sulfurique.

La position d'injection et la vitesse d'agitation.

Nous avons aussi étudié la validité de la méthode d'injections successives dans l'étude de l'efficacité du micro-mélange.

## IV.2. Etude Préliminaire

### IV.2.1. Etude de la stabilité de la solution

Le but de l'étude de stabilité est la détermination de la durée du temps qu'une solution iodure/iodate peut supporter sans que le test donne des résultats erronés. Autrement dit c'est l'évaluation de la durée de vie d'une solution à partir de la première injection d'acide.

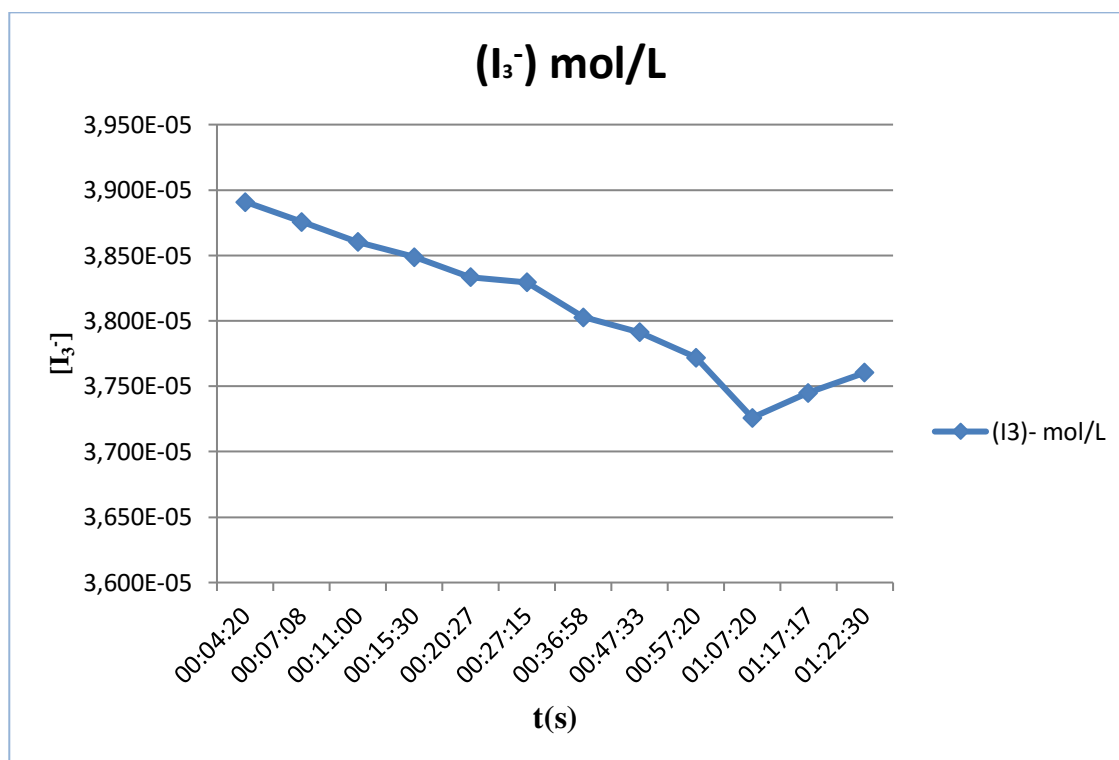
La mesure de la concentration de la solution en  $[I_3^-]$  à différents laps de temps à partir de l'injection de l'acide détermine l'évolution de la concentration en fonction du temps.

La mesure du pourcentage de variation par rapport à la concentration initiale détermine l'instabilité de la solution. En effet, une solution stable est une solution qui nous donne des résultats avec un minimum d'erreur.

On détermine la variation de l'indice de ségrégation ( $X_S$ ) au cours du temps. Ensuite on détermine la variation de ce paramètre en fonction de la valeur initiale (c'est la variation d'erreur).

La figure (IV.1) présente la variation des concentrations du tri-iodure ( $I_3^-$ ) en fonction du temps.

En effet on suit ces concentrations car le tri-iodure ( $I_3^-$ ) est le réactif à doser puisque l'iode ( $I_2$ ) réagit très rapidement avec l'iodure pour donner le tri-iodure.



**Figure IV.1 :** Variation des concentrations de tri-iodure ( $I_3^-$ ) en fonction du temps.

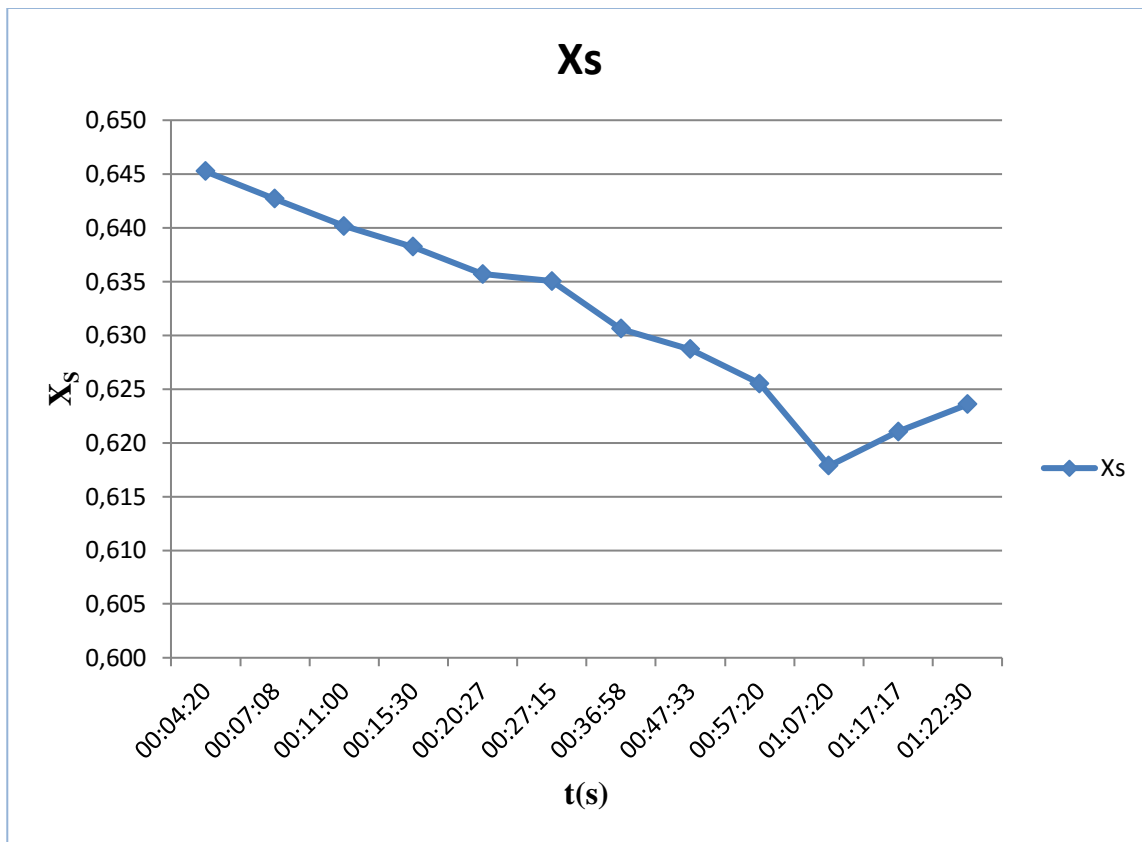
D'après cette la figure on remarque que :

De [4min 20s – 57min2s] la quantité du tri-iodure diminue avec le temps.

De [1heure 17 min 17s -1heure22min.30s] la quantité du tri-iodure augmente avec le temps.

Alors la quantité du tri-iodure est instable au cours du temps.

La figure (IV.2) présente la variation de l'indice de ségrégation en fonction du temps.



**Figure IV.2 :** la variation de l'indice de ségrégation en fonction du temps.

L'indice de ségrégation donne une idée directe sur l'état du micro-mélange et alors sur la stabilité de la solution.

D'après la figure ci dessus:

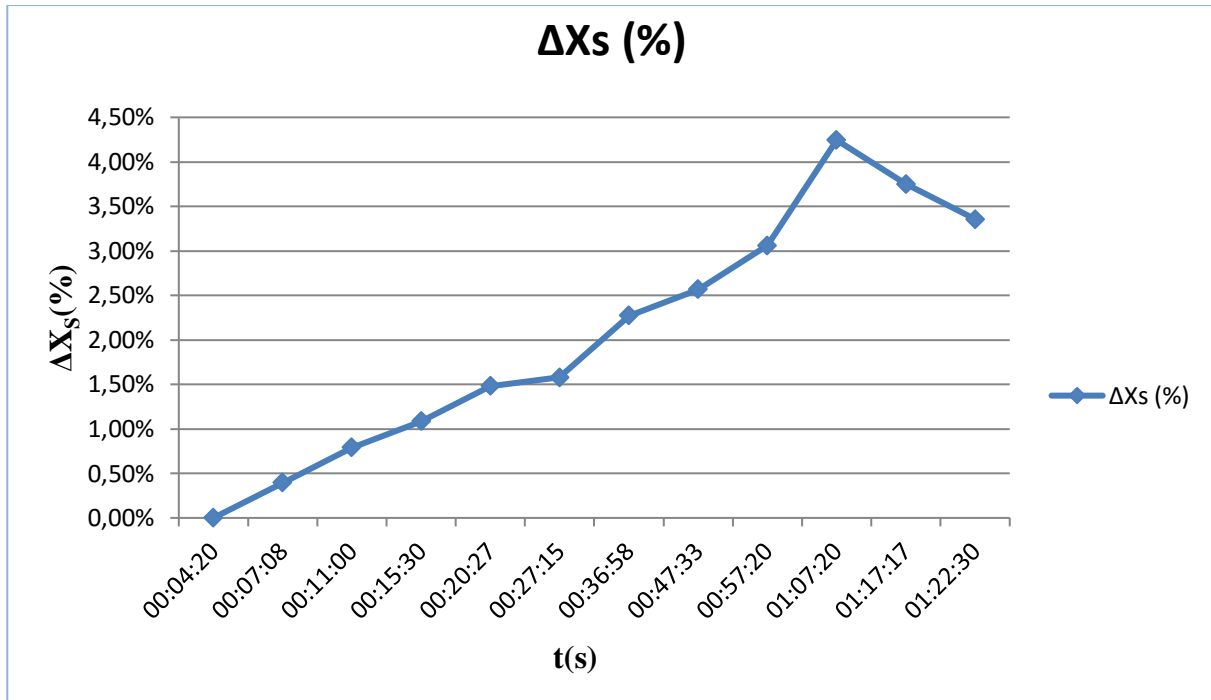
De [4min 20s – 57min2s] l'indice de ségrégation diminue avec le temps.

De [1heure 17 min 17s -1heure22min.30s] l'indice de ségrégation augmente avec le temps.

Alors la ségrégation des molécules dans le micromélange est instable.



La figure (IV.3) donne la variation du pourcentage de l'indice de ségrégation en fonction du temps.



**Figure IV.3 :** Pourcentage de variation de l'indice de ségrégation par rapport à la valeur initiale en fonction du temps.

D'après le graphe de la figure IV.3 on remarque qu'on a une erreur maximale de 3% après une heure de temps.

#### **En conclusion :**

En effet d'après les graphes précédents on peut conclure que la concentration du tri-iodure est plus au moins stable.

On peut donc travailler à l'aise et en toute sécurité une heure avec la solution.

### IV.3. Détermination des paramètres de la méthode de test chimique

#### IV. 3.1. Influence du temps d'injection d'acide

Le principe de cette expérience est d'injecter un volume d'acide sulfurique de 2,1 ml de concentration 1M dans un réacteur torique contenant la solution initiale ; qui deviendra à son tour jaune après l'injection de l'acide ; puis on fait la lecture à l'aide du spectrophotomètre à une longueur d'onde  $\lambda = 353\text{nm}$ , ensuite on vide le réacteur et on répète l'expérience tout en variant les temps d'injection dans des conditions défavorables du micro-mélange (une faible vitesse d'agitation 200 tr/min, et à la position d'injection la plus éloignée du mobile d'agitation P1). La figure IV.1 présente les résultats obtenus.

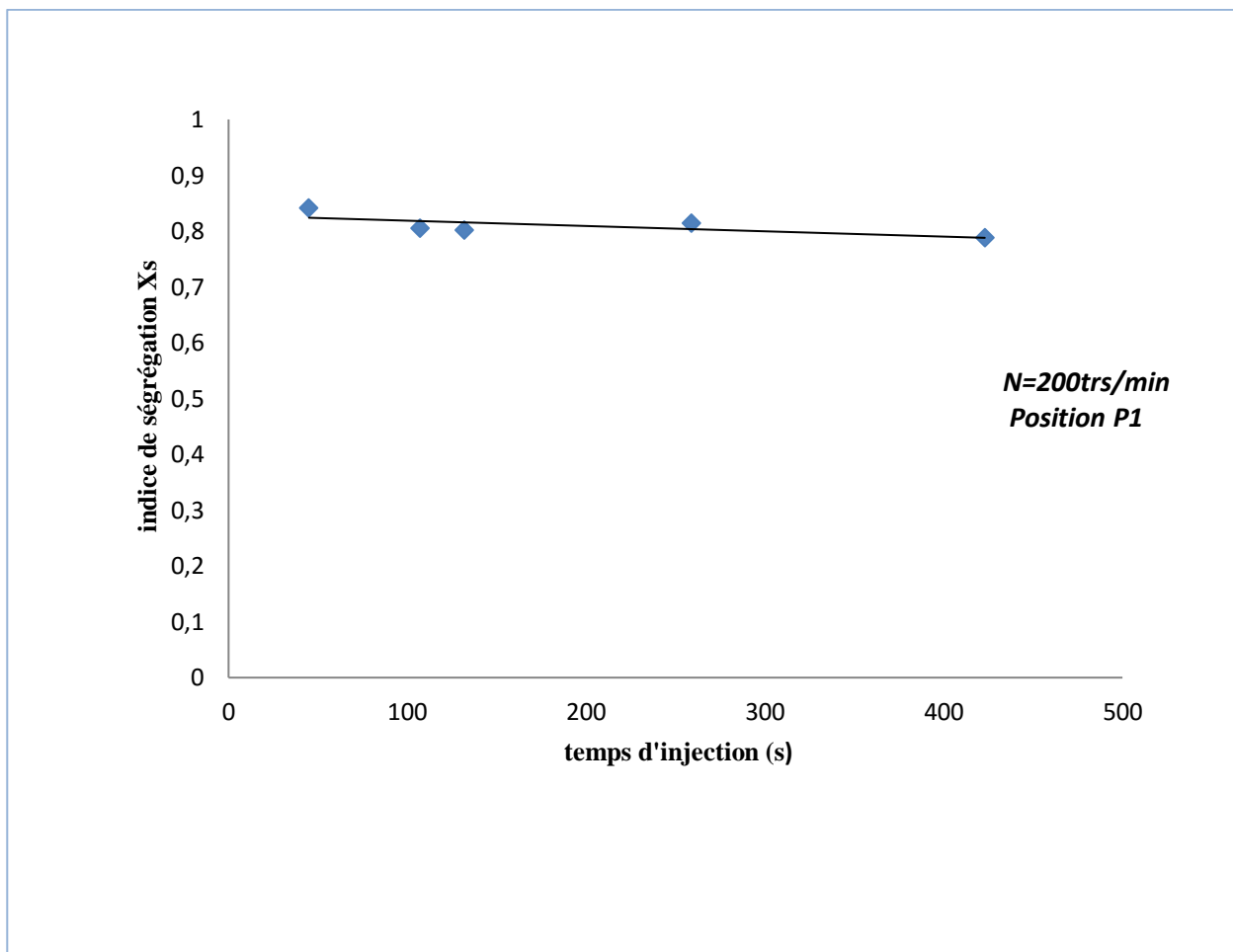
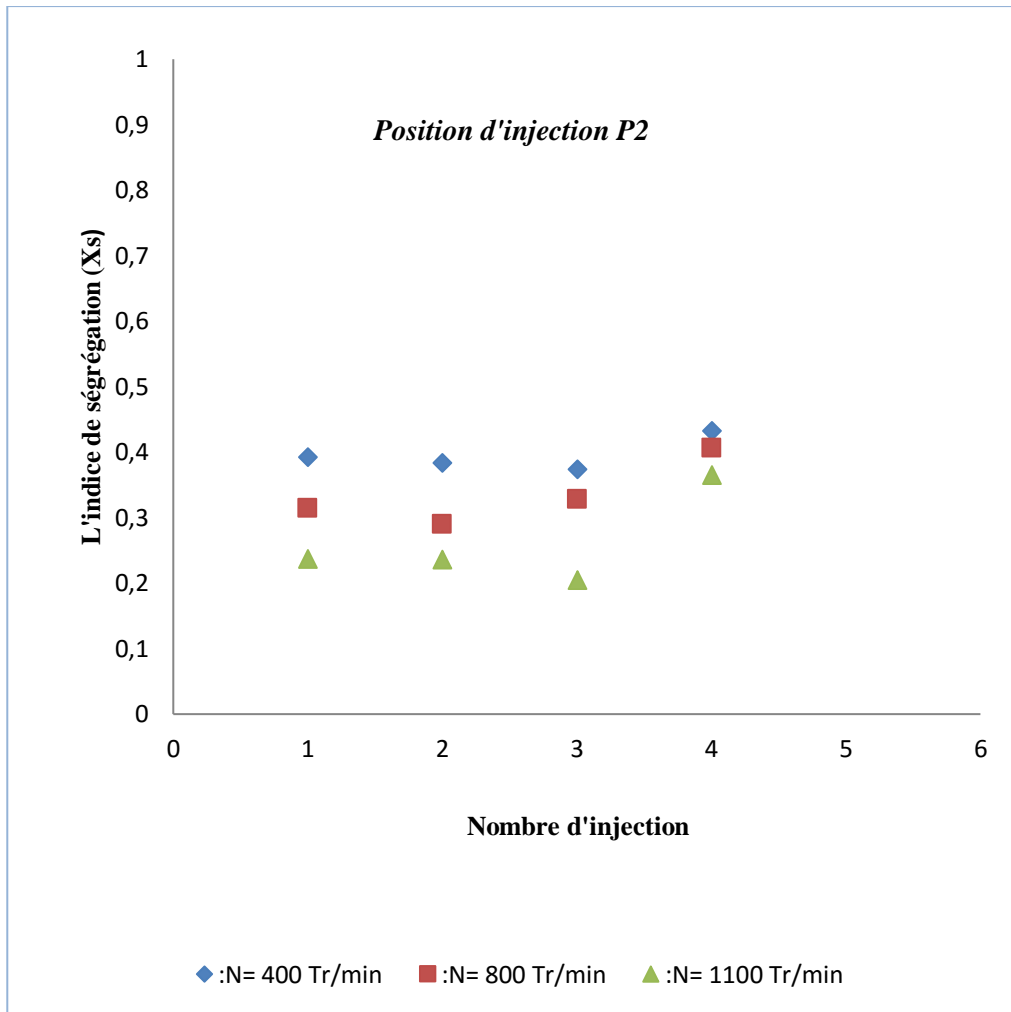


Figure IV.4: Influence du temps d'injection d'acide.

D'après cette figure, on remarque qu'à partir d'un certain temps, l'indice de ségrégation ( $X_s$ ) est quasiment constant avec l'augmentation du temps d'injection. A partir de  $t > 100s$  on obtient un palier. Le palier obtenu montre que la série des temps d'injection réalisée est supérieur au temps critique d'injection, donc on est sûr qu'on est présent dans la zone des débits correspond au micromélange. Sur la base de ces données, nous avons calculé le débit d'injection nécessaire pour être dans le domaine du micromélange. Ce débit est égale à 1,26 ml/min. nous avons donc fixée un débit d'injection d'acide à 1,0 ml/min. Ces résultats sont en bon accord à ceux obtenus par Fournier (1994), Guichardon(1996) et Assirelli (2004) dans les réacteurs agités.

#### **IV.2.2. La validité de la méthode d'injections successives**

L'expérience consiste à injecter successivement (une injection par mesure) un volume de 4,2 ml d'acide sulfurique 1M dans un réacteur torique contenant 2,1 litres de la solution initiale au niveau de la position P2, pour différentes vitesse d'agitation (400, 800, 1100 Tr/min). Le nombre d'injection est limité entre 3 et 4 injections dans un volume de 2,1 litres de la solution initiale. La figure IV.2 présente les résultats obtenus.



**Figure IV.5** :L'indice de ségrégation en fonction du nombre d'injection à la position P2

D'après cette figure, nous constatons que, pour trois injections successives d'acide sulfurique dans un volume de 2,1 litres de la solution initiale, l'indice de ségrégation (Xs) reste pratiquement constant pour la même vitesse d'agitation. Ces résultats confirment l'efficacité de cette méthode d'injection. En se basant sur ces résultats, le nombre d'injections successives a été limité à trois (03) injections.

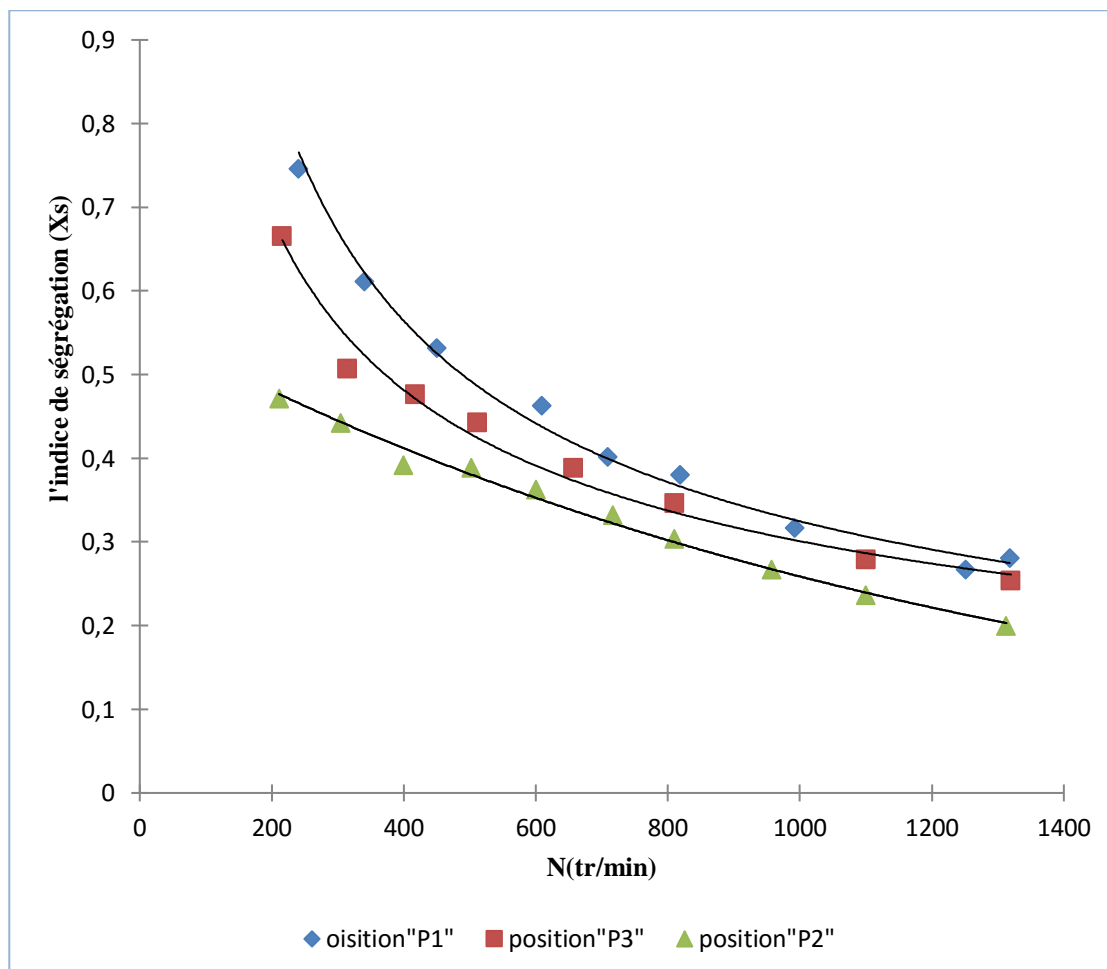
#### IV.4. Influence de la position d'injection et la vitesse d'agitation sur ( $X_s$ ) et sur l'efficacité ( $\alpha$ )

L'étude de l'influence de la vitesse d'agitation du mobile s'est effectuée dans un domaine d'agitation allant de 211 à 1320 tr/min, ce qui correspond à un domaine en régime d'écoulement turbulent. (F. Imerzoukene 2008)

Pour cette étude nous avons utilisé 3 positions d'injection d'acide : P1, P2 et P3 (Voir figure IV.6).

Pour chaque vitesse d'agitation et une position d'injection donnée, nous avons déterminé l'indice de ségrégation ( $X_s$ ) et l'efficacité du micro-mélange ( $\alpha$ ).

##### IV.4.1. Influence de la Position d'injection et la vitesse d'agitation sur ( $X_s$ )



**Figure IV.6 :** Influence de la vitesse d'agitation et de la position d'injection sur l'indice de ségrégation ( $X_s$ ).

**A- Influence de la vitesse d'agitation sur ( $X_s$ )**

La figure (IV.6) montre que pour n'importe quelle position ( $P_1$ ,  $P_2$  ou  $P_3$ ) l'augmentation de la vitesse d'agitation entraîne une diminution de la valeur de l'indice de ségrégation ( $X_s$ ) qui est élevé dans les zones de faible vitesse.

Ceci peut être expliqué par le fait que l'augmentation de la vitesse d'agitation induit un accroissement des forces de cisaillement des agrégats d'acide ce qui favorise leur contact avec les réactifs du milieu réactionnel et par conséquent le micro-mélange est meilleur.

**B- Influence de la position d'injection sur ( $X_s$ )**

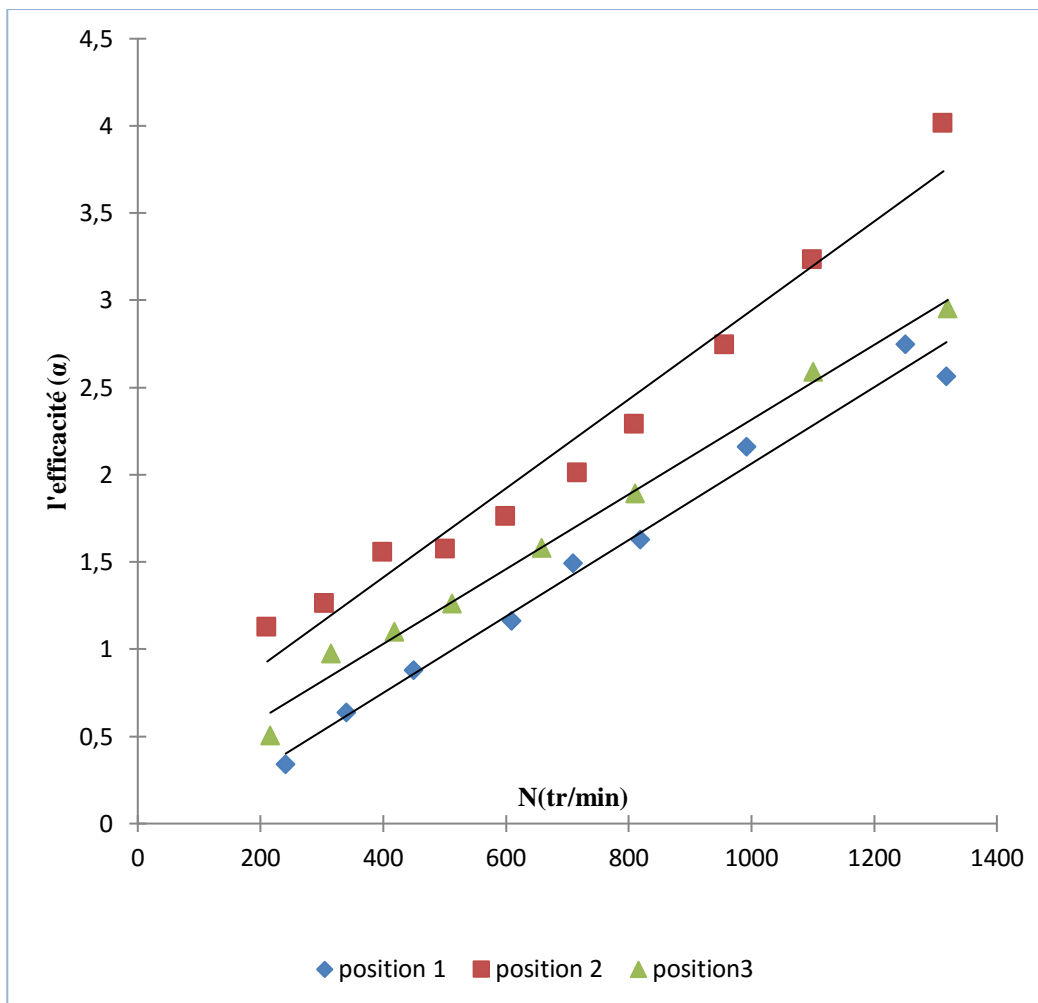
La figure (IV.6) montre que si on lit, pour une vitesse d'agitation donnée (fixe), la valeur de ( $X_s$ ) dans les différentes courbes des 3 positions ( $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$ ) on va trouver des valeurs de ( $X_s$ ) qui diffèrent d'une position à l'autre. En effet on remarque que la valeur de ( $X_s$ ) est plus faible dans les zones les plus proches du mobile d'agitation ( $P_2$ ) et elle augmente quand on s'y éloigne.

On peut tirer de ceci que ( $X_s$ ) dépend de la position d'injection d'acide.

**IV.4.2. Influence de la Position d'injection et la vitesse d'agitation sur l'efficacité ( $\alpha$ )**

L'un des paramètres qui caractérise le réacteur torique est son efficacité, elle est donnée par la relation suivante :

$$\alpha = \frac{1-X_s}{X_s} \quad (32)$$



**Figure IV.7:**Influence de la vitesse d'agitation et de la position d'injection sur l'efficacité ( $\alpha$ ).

#### A- Influence de la vitesse d'agitation sur( $\alpha$ )

La figure (IV.7) montre que pour n'importe quelle position (P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub> ou P<sub>3</sub>) l'augmentation de la vitesse d'agitation entraîne une augmentation de la valeur de l'efficacité( $\alpha$ ) du micro-mélange qui est faible dans les zones de faible vitesse.

D'après ce qu'on observe, on peut constater que l'agitation a un effet positif et direct sur l'efficacité du micro-mélange autrement dit sur sa qualité.

### B- Influence de la position d'injection sur ( $\alpha$ )

La figure (IV.7) montre que pour une vitesse d'agitation donnée on trouve des différentes valeurs de ( $\alpha$ ) pour chacune des positions ( $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$ ). En effet on remarque que la valeur de ( $\alpha$ ) de ( $P_2$ ) est la plus importante puis celle de  $P_3$  et en fin celle de La position la plus lointaine du mobile d'agitation ( $P_3$ ).

Alors on peut tirer que l'efficacité du micro-mélange est plus importante lorsqu'on s'approche du mobile d'agitation.

### IV.5. Le temps du micromélange ( $t_m$ )

Le processus du micromélange se caractérise par une constante du temps appelée « Temps du micromélange », qui est défini par la relation suivante (*Baldyga, 1984*) :

$$t_m = K \left( \frac{\nu}{\varepsilon} \right)^{1/2} \quad (33)$$

Avec :

$K$  : une constante.

$\nu$  : viscosité cinématique ( $m^2/s$ ).

$\varepsilon$  : Taux d'énergie spécifique dissipée localement ( $w/kg$ ).

En utilisant la loi d'incorporation linéaire (Nouri et al, 2014), l'équation (33) devient :

$$t_m = 4 \left( \frac{\nu}{\varepsilon} \right)^{1/2} \quad (34)$$

La puissance dissipée localement  $\varepsilon$ , en régime turbulent, est proportionnelle à la puissance moyenne dissipée par mobile d'agitation selon la relation suivante (*Baldyga, 1984*):

$$\varepsilon = \bar{\varepsilon} \Phi \quad (36)$$



Avec :

- $\Phi$  : le coefficient de proportionnalité.

-  $\varepsilon$  : la puissance moyenne dissipée par le mobile d'agitation.

La puissance moyenne dissipée ( $\bar{\varepsilon}$ ) qui est égale à :

$$\bar{\varepsilon} = \frac{N_p N^3 D^5}{V} \quad (37)$$

$N_p$  : le nombre de puissance.

$N$  : vitesse de rotation du mobile d'agitation (tr/min).

$D$  : diamètre extérieur du mobile d'agitation.

$V$  : le volume de la solution (L).

Rappelons que la puissance dissipée localement est déterminée à partir de la relation suivante :

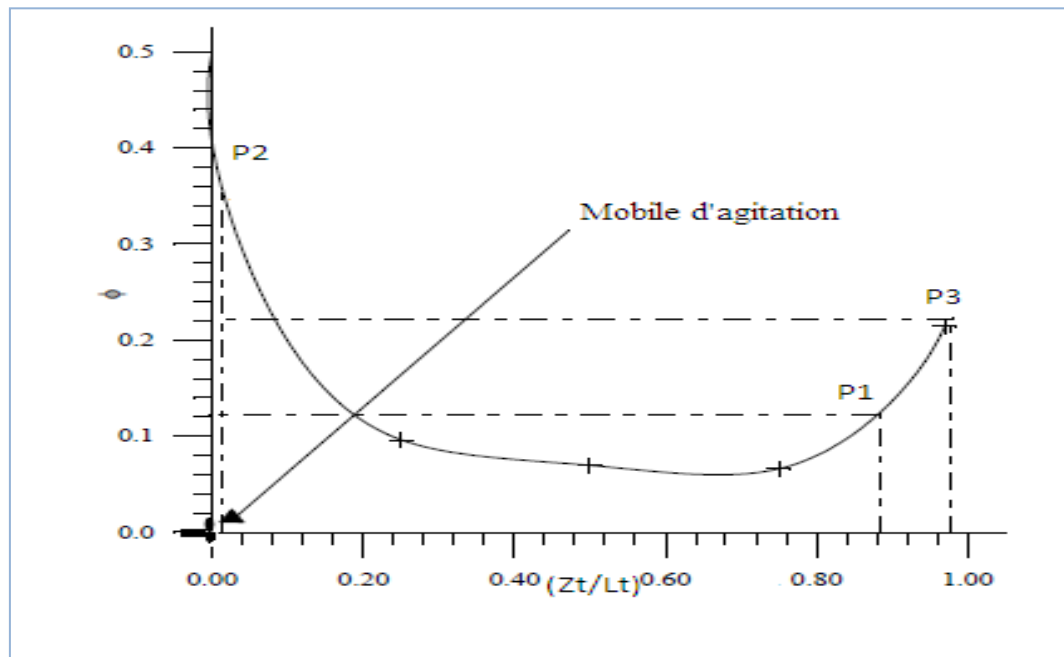
$$\varepsilon = \bar{\varepsilon} \Phi = \Phi \frac{N_p N^3 D^5}{V} \quad (38)$$

En régime turbulent, le nombre de puissance  $N_p$  d'un mobile d'agitation de type hélice marine est égale à 0,37 (Roustan et coll, 1991).

Le coefficient de proportionnalité  $\Phi$  est propre à chaque type du réacteur et il varie selon la distance par rapport au mobile d'agitation.

La simulation numérique a été consacrée à la caractérisation de la distribution des valeurs de  $\Phi$ . Dans la figure IV.8, nous avons déterminé les valeurs moyennes de  $\Phi$  correspondant à divers emplacements d'alimentation P1, P2 et P3 utilisés dans le réacteur à torique. (Nouri et al, 2008).

La figure IV.8 donne, la variation du coefficient de proportionnalité ( $\Phi$ ) en fonction de la position par rapport au mobile d'agitation ( $Zt/Lt$ ).



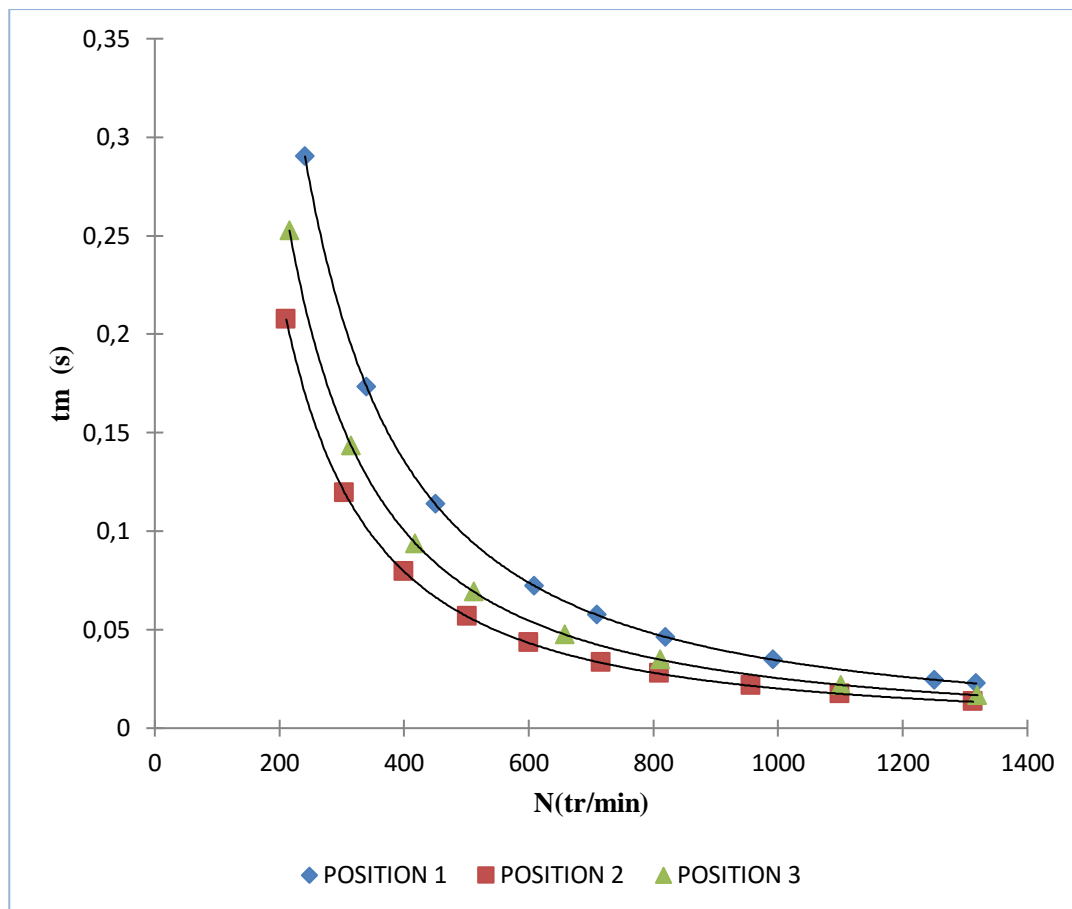
**Figure IV.8 :** variation du coefficient de proportionnalité ( $\Phi$ ) en fonction de la position par rapport au mobile d'agitation (Pruvot et al, 2004).

D'après cette figure on tire les valeurs des coefficients de proportionnalité, utilisés pour cette étude sont présentés dans le tableau suivant :

**Tableau IV.1:** valeurs du  $\Phi$  déterminés aux différents points d'injection.

La position d'injection	P1	P2	P3
Le coefficient de proportionnalité ( $\Phi$ )	0,12	0,35	0,22

Nous constatons que la valeur de ( $\Phi$ ) diminue au fur et à mesure qu'on s'éloigne du mobile d'agitation (P1), et elle est maximale au niveau du mobile d'agitation (P2).



**Figure IV.9:** Variation du temps du micro-mélange en fonction de la vitesse d'agitation et de la position d'injection.

Pour cette détermination nous avons procédé à déterminer les valeurs de  $t_m$  à partir de l'équation caractéristique (Baldyga, 1984)

Dans la figure IV.9 nous avons présenté la variation du temps du micromélange en fonction des conditions d'agitation.

On constate dans un premier temps que le micro-mélange est très sensible aux conditions d'agitation pour une position d'agitation donnée (exemple position 2) le temps du micromélange passe d'une valeur de 0.2074(s) à 0.0133(s) respectivement pour des vitesses d'agitation de 211 (tr/min) à 1313 (tr/min).

On constate un deuxième temps que la position d'injection a aussi une influence sur le temps du micromélange. Il ressort de cette même figure que plus le point d'injection est proche du

mobile d'agitation et plus le temps du micromélange correspond à une condition hydrodynamique donnée diminue.

#### IV.6. Comparaison de l'efficacité du micromélange dans le réacteur torique à d'autres configurations

En générale, la comparaison des performances des systèmes d'agitation à configuration standard, tels que les réacteurs agités, se fait sur la base du rendement du procédé en fonction des conditions d'agitation. Dans le cas où la configuration est différentes, la comparaison des performances se fait sur le choix d'un autre critère représentatif, telle que, la puissance consommée par le système d'agitation.

Dans cette partie d'étude, nous avons adopté un critère de comparaison permettant de comparer l'efficacité du micromélange ( $\alpha$ ) sur la base du taux de dissipation de l'énergie spécifique ( $\varepsilon$ ) au niveau de point d'injection d'acide sulfurique.

D'après la représentation graphique donnée par la figure IV- 16, on constate que l'efficacité du micromélange est liée à la puissance dissipée localement par une loi de puissance de la forme suivante :

$$\alpha = 5,1\varepsilon^{0,236} \quad (39)$$

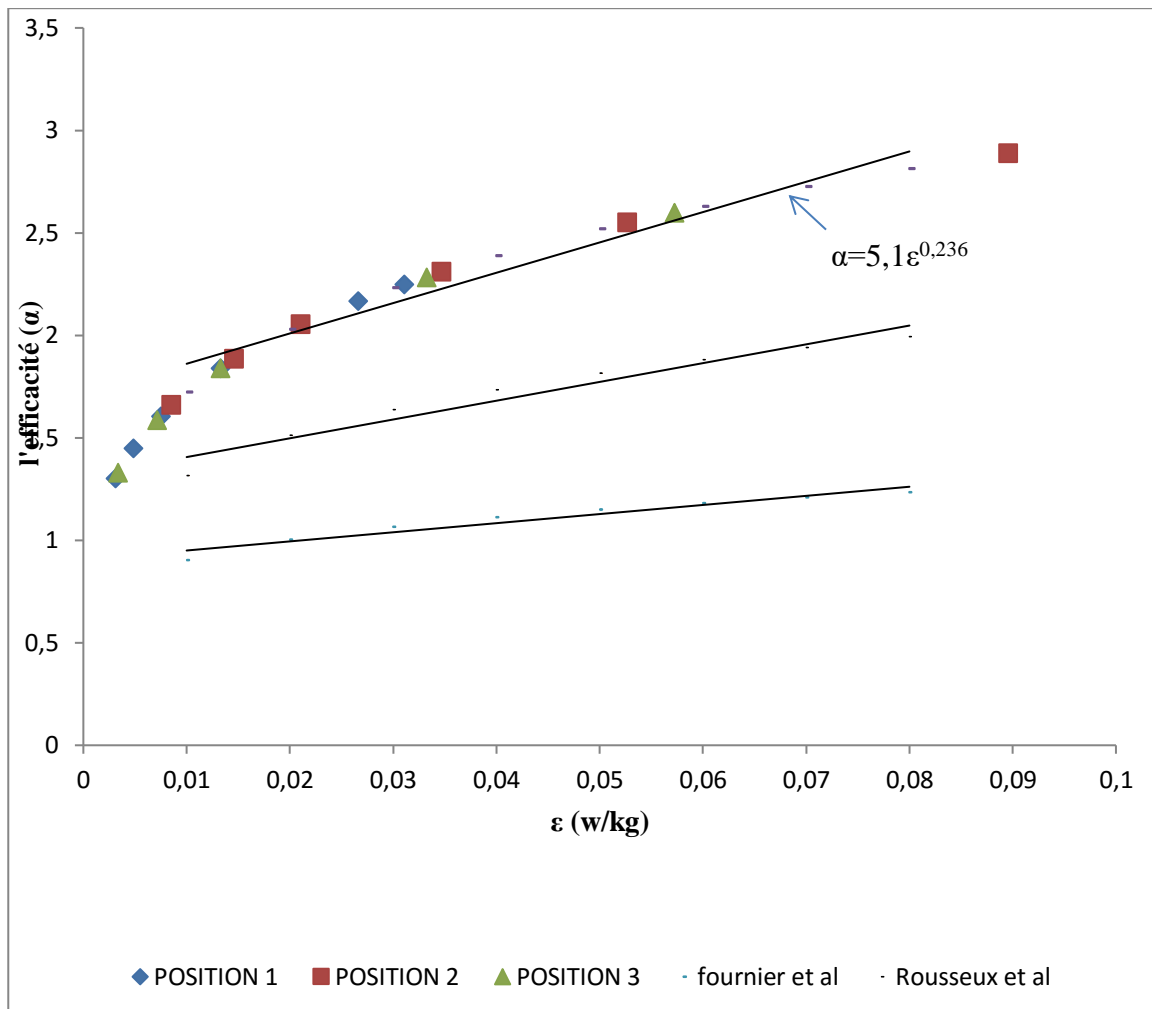
Dans d'autre configuration géométrique, *Fournier et al (1996)*, ont caractérisé l'efficacité du micromélange dans trois réacteurs agités de 1, 20 et 100litres. Ils ont trouvé que l'efficacité du micromélange est liée au taux de dissipation de l'énergie spécifique ( $\varepsilon$ ) par une relation de la forme :

$$\alpha = 1,8\varepsilon^{0,15} \quad (40)$$

*Rousseau et al, (1999)*, ont caractérisé l'efficacité du micromélange dans une nouvelle configuration de réacteur agité équipé d'un mobile de type disque (Sliding – surface mixing device). Ils ont trouvé que l'efficacité du micromélange est liée au taux de dissipation de l'énergie spécifique ( $\varepsilon$ ) par une relation de la forme :

$$\alpha = 3,3 \varepsilon^{0,2} \quad (41)$$

La figure suivante représente les corrélations obtenues dans les différentes configurations géométriques :



**Figure IV.10 :** variation de l'efficacité du micromélange en fonction du taux de dissipation de l'énergie spécifique locale.

Comparativement à d'autres travaux antérieurs, on constate que notre corrélation est similaire à celle trouvée par F. Imerzoukene (2008) dans le réacteur à géométrie torique.

On peut conclure que pour une valeur donnée de l'énergie spécifique ( $\epsilon$ ), l'efficacité ( $\alpha$ ) du micromélange dans le réacteur torique est relativement supérieure à celle observée dans les différentes configurations suscitées.

## IV. 7. Conclusion

Dans cette partie du travail nous avons paramétré les différentes conditions de la validation de la méthode choisie (iodure-iodate) puis on a déterminé tous les résultats obtenus lors des études appliquées et on a constaté que :

-Lors de l'étude de l'influence du temps d'injection, nous avons constaté que l'indice de ségrégation ( $X_s$ ) est quasiment constant et par conséquent cet indice ne dépend pas du temps d'injection.

-L'efficacité de la méthode d'injection multiple, pour trois injections successives d'acide sulfurique dans un volume de 2,1 litres de la solution initiale, l'indice de ségrégation ( $X_s$ ) reste constant pour la même vitesse d'agitation.

-Les différentes localisations des points d'injections ne conduit pas au même état de ségrégation. C'est à dire que l'indice de ségrégation prend des valeurs faibles dans les zones proches du mobile d'agitation puis augmente au fur et à mesure qu'on s'éloigne de l'hélice marine. Ainsi que l'indice de ségrégation diminue avec l'augmentation de la vitesse d'agitation.

- l'étude de l'influence de la position d'injection et la vitesse d'agitation sur le temps du micro-mélange nous a conduits à conclure que le temps du micro-mélange diminue avec l'augmentation de la vitesse d'agitation et au fur et à mesure qu'on s'approche du mobile d'agitation.

A la fin, nous avons jugé nécessaire de faire une comparaison entre l'efficacité du micro-mélange dans le réacteur torique et celle obtenus dans d'autres réacteurs de différentes configurations géométrique, sur la base d'une équation empirique déterminé à partir de la représentation graphique du l'efficacité du micro-mélange en fonction de la puissance dissipé localement ( $\epsilon$ ).

Pour une valeur donnée de ( $\epsilon$ ) les résultats montrent que l'efficacité du micro-mélange est relativement supérieure dans le réacteur torique que dans les autres types du réacteur.

## ***CONCLUSION GENERALE***

## Conclusion générale

Dans cette étude nous avons appliqué la méthode test chimique, iodure-iodate pour caractériser le micromélange dans un réacteur à géométrie torique. Cette méthode nous a paru facile à appliquer d'autant plus, quelle est flexible pour être appliquée dans les réacteurs à grandes capacité. D'autre part, l'application de la technique à injections successives présente l'avantage économique et facile à mettre en œuvre, mais elle présente l'inconvénient d'être délicate et très sensible.

Les résultats obtenus, montrent que l'indice de ségrégation et l'efficacité du micromélange sont très affectés par l'effet de l'agitation et de la position d'injection. Ces résultats sont en bon accord à ceux observés par certains auteurs dans des réacteurs à configuration torique.

D'autre part, le choix des valeurs de  $\Phi$  pour les différentes positions d'injections nous ont permis d'estimer les temps de micromélange correspondants. Les résultats trouvés montrent que le temps du micromélange est lié directement à l'énergie dissipée localement selon une relation  $\alpha=f(\epsilon)$ .

Par ailleurs, nous avons établi une corrélation permettant de lier directement l'efficacité du micromélange à l'énergie dissipée localement par le mobile d'agitation ( $\alpha=a\epsilon^n$ ). Cette corrélation semble être en bon accord à celle établie par Imerzoukane et coll, 2008,  $\alpha=5.1\epsilon^{0.236}$ .

En perspective, il serait intéressant :

-De caractériser le micromélange tout en mettant en œuvre l'application des réactions sélectives dans les réacteurs toriques.

-D'étudier l'influence de ce type de réaction sur l'énergie dissipée localement et de faire une comparaison de l'efficacité entre les différentes configurations des réacteurs.



## ***BIOBLOGRAPHIE***

**Les Références :**

- [1]- **Abel E., and Stadler F.:** " Revision der Kinetik der  $\text{HJO}_3 - \text{HJ}$  reaction ". Z. Phys. Chem. A. 136, 186-194. (1926).
- [2]- **Abouda L.:** " Caractérisation du micro-mélange dans un bioréacteur à géométrie torique par un modèle représentatif basé sur la mise en œuvre d'un système réactionnel test du type iodure-iodate". (2010).
- [3]- **André C. :** " Développement d'une méthode de mesure de fluctuation de concentration par spectroscopie de fluorescence à hautes résolutions spatiale et temporelle". Thèse de doctorat INPL, Nancy. (1991).
- [4]- **Akiti A, Yeboah A, Bai G, Armenante P. M.:** "Hydrodynamic effects on mixing and competitive reactions in laboratory reactors", Chem. Eng. Sci., 60, 2341-2354. (2005).
- [5]- **Assirelli M, Bujalski W, Eaglesham A, Nienow A.w.:** "Study of micro-mixing in a stirred tank using a Rushton turbine – Comparison of feed positions and other mixing devices", Trans. IChemE., 80, Part a, November. (2002).
- [6]- **Assirelli M, Bujalski ., Eaglesham A , Nienow A.w.:** "Intensifying micro-mixing in a semi batch reactor using a Rushton-turbine ", Chem. Eng. Sci. 60, 9, 2333-2339. (2004).
- [7]- **Arturo N. Manzano Martínez, Kevin M.P. van Eeten, Jaap C. Schouten, and John van der Schaaf.:** " Micro-mixing in a Rotor – Stator Spinning Disc Reactor. Article in Industrial Engineering Chemistry Research. (2017).
- [8]- **Atmani F.:** " Etude d'un réacteur torique ouvert : comparaison avec un réacteur agité continu" mémoire de magister, USTHB, (2002).
- [9]- **Audrey A.D, and Connick R.E.:** "The absorption spectra of  $\text{I}_2$ ,  $\text{I}_3^-$ ,  $\text{I}^-$ ,  $\text{IO}_3^-$ ,  $\text{S}_4\text{O}_6^-$  and  $\text{S}_2\text{O}_3^-$  heat of the reaction  $\text{I}_2 + \text{I}^- = \text{I}_3^-$  ", J. Am. Chem. Soc. 73, 1842, (1951).
- [10]- **Baldyga J, Bourne J.R.:** "A fluid approach to turbulent mixing and chemical reaction. Part I: Inadequacies of available methods. Part II: Micro-mixing in the light of turbulence theory. Part III: Computational and experimental results for the new micro-mixing model ", Chem. Eng. Commun., 28, 231-281. (1984).

- [11]- **Baldyga J, Bourne J.R.:** "Interaction between mixing on various scales in stirred tank reactors", Chem. Eng. Sci., 47 (8), 1839-1648. (1992).
- [12]- **Baldyga J, Bourne J.R.:** "A effect of micro-mixing in parallel reactions", Chem. Eng. Sci. 45, 907-916, (1990).
- [13]- **Barthole J.P., David R, Villermaux J.:** "Eine neue chemische method zur untersuchung des mikrovermischugs grades in ruhrbehaltern", Chem. Ing. Tech., 56 (1), 63, (1984) (cité dans Fournier, 1994).
- [14]- **Belleville P, Nouri L, Legrand J.:** "Mixing characteristic in the torus reactor", Chem. Eng. Tec. 15, 282-289. (1992).
- [15]- **Benkhelifa H. :**"Etude du réacteur torique : modélisation et application à la transformation de protéines végétale", thé se de doctorat, université de Nantes. (2000).
- [16]- **Benmalek N. :**"Caractérisation du micromélange dans un bioréacteur agité – Application à l'acétylation des protéines d'isolats de petit pois ", mémoire de magister, université de Boumerdes, (2007)
- [17]-**Bertand –Andrieu M, Plasari E, Baron P.:** "Methods for the characterization and comparison of mixing efficiency of different confined opposing jet mixing devices ", 12<sup>th</sup> European Conference on Mixing, Bologna. (2007).
- [18]- **Boeisinger C, Le Guer Y, and Legentilhomme P.:** "Etude expérimentale du mélange réactif au sein d'un réacteur torique ondulé ", Chem. Eng. Journal. 81, 1-11. (2003).
- [19]- **Bourne J.R, Crevilli C, and Rys P.:**"Chemical selectivity's disguised by masse diffusion ", Helv. Chem. Acta. 60 (8), 2944-2957. (1977).
- [20]- **Bourne J.R, K Ozicki F, Rys P.:** "mixing and fast chemical reaction-I: test reaction to determine segregation ", Chem. Eng. Sci. 36 (10), 1643-1648. (1981).
- [21]- **Bourne J.R, Thomas S.A.:** "Some factors determining the critical feed time of semi-batch reactor ", Trans I. Chem. Eng. 69(A), 321-323. (1991).
- [22]- **Brodberger, J. F.:**"Etude expérimentale des phénomènes du mélange en phase liquide : cas du mélangeage turbulent du fluide non réactifs ", thèse de docteur ingénieur, INPL, Nancy, (1981).

- [23]- **Chu Guang -Wen , Song Yun -Hua ,Yang Hai –Jian ,Chen Jian –Ming ,Chen Han , Chen Jian –Feng .:** "Micro-mixing efficiency of a novel rotor – stator reactor ", Chem. Eng . J. 128,191-196, (2007).
- [24]- **Custer J. J, and Natelson S.:**"Spectrophotometric determination of micro -quantities of iodine ", Anal. Chem. 21, (8), 1005. (1949).
- [25]- **DanckWerts P. V.:**"the definition and the measurement of some characteristics of mixtures ", Appl .Sci. Res. Section A, 3, 279 -296, (1952).
- [26]- **DanckWerts P.V.:**"continuous flow systems-Distribution of residence times ", Chem. Eng. Sci., 2, 1-13, (1953).
- [27]- **DanckWerts P .V.:**"The effect of incomplete mixing on homogeneous reaction ", Chem.Eng. Sci .8, 93-102, (1958).
- [28]- **Dushman S.:**" The rate of reaction between iodic and hydriodic acids", J. Phys. Chem. 8,453-482. (1904).
- [29]- **Durandal C, Lemenand T, Della Valle .,Peerhossaini H . :** " Mesure du micromélange dans une turbulence quasi – homogène et isotrope ",18 Congrès Français de mécanique, Grenoble ,1-6, (2007).
- [30]- **Fournier M.C. :**"Caractérisation de l'efficacité de micromélange par une nouvelle réaction test "thèse de doctorat, INPL, (1994).
- [31]- **Fournier M. C .;Falk L. , Villermaux J.:**" A new parallel competing reaction system for assessing micro-mixing efficiency- Experimental approach " , Chem .Eng. Sci ., 51(22), 5053-5064,(1996 a).
- [32]- **Fournier M. C, Falk L, Villermaux J.:**" A new parallel competing reaction system for assessing micro-mixing efficiency-Determination of micro-mixing time by a simple mixing model ", Chem .Eng . Sci. 51 (22), 5053 -5064, (1996 b ).
- [33]- **Geissler R, Mersmann A, Voit H.:**"Macro – and micro-mixing in stirred tanks ". INT. Chem. Eng., 31(4), 642-653. (1991).

- [34]- **Guichardon P.**: "Caractérisation chimique du micromélange par la réaction iodure/iodate .Application aux milieux visqueux suspensions liquide -solide", de doctorat, INPL, (1996).
- [35]- **Guichardon P, Falk L, Villermaux J.**: "Extension of a chemical method for the study of micro-mixing process in viscous media ", Chem. Eng. Sci. 52(24), 4649-4658, (1997).
- [36]- **Guichardon P, Falk L.**: "Cauterization of micro-mixing efficiency by the iodite-iodate reaction system Part I: experimental procedure ", Chem. Eng. Sci. 55, 4233-4243. (2000).
- [37]- **Hamani S.**: "Caractérisation de l'écoulement et du mélange dans un réacteur torique ", mémoire de magister, EMP, (1999).
- [38]- **Herbo C, Sagallia J.**: "Principe de l'iodométrie absorptiométrique", Analitica. Chimica. Acta. 17,199, (1957).
- [39]- **Hosagai K, Tanaka M.**: "Study of suspension polymerization of styrene with a circular loop reactor ", Polym. Eng. Sci; 32, 431-437. (1992).
- [40]- **Imerzoukane F.**: "caractérisation du micromélange dans un réacteur à géométrie torique ", mémoire de magister, université de Boumerdes. (2008).
- [41]- **Jean-Marc C, Laurent F.**: "Villermaux–Dushman protocol for experimental characterization of micro-mixers", Chemical Engineering and Processing: Process Intensification journal homepage: ([www.elsevier.com/locate/cep](http://www.elsevier.com/locate/cep)). (2011).
- [42]- **Jeroen Jordens, Bram Bamps, Bjorn Gielen, Leen Braeken, and Tom Van Gerven.**: "The effects of ultrasound on micro-mixing", Ultrasonic's Sonochemistry, journal homepage: ([www.elsevier.com/locate/ultson](http://www.elsevier.com/locate/ultson)). (2016).
- [43]- **Jia Z, zhao , Liu L, He F ,Liu Z.**: "A membrane reactor intensifying micro-mixing : Effects of parameters on segregation index ", J. Mem . Sci. 276, 295-300, (2006).
- [44]- **Kaoua G.** : "caractérisation et modélisation d'un réacteur torique ", mémoire de magister USTHB. (2000).
- [45]- **Keairns D. L and Manning F.S.**: "model simulation of adiabatic continuous flow stirred tank reactors. A.I.C.H.E.J, 15,(5), 660-665. (1969).

- [46]- Keeler R. N, Petersen E.E, and Prausnitz J.M.: "mixing and chemical reaction in turbulent flow reactors ", A.I.CH.J. 11, (2), 221-227. (1965).
- [47]- Kochemann N, Kiefer T, Engler M, Woias P.: "convective mixing and chemical reactions in micro-channels with high flow rates", Sensors and Actuators B 117, 495-508, (2006).
- [48]- Kolmogorov A.N.: "The local structure of hit turbulence in incompressible viscous fluid for very large Reynolds number s ", Dokl .Akad .Nauk .SSSR30,299-304,(1941).
- [49]- Komori S and Murakmi Y.: "Turbulent mixing in baffled stirred tanks with vertical-blade impellers ", A.I.CH.E. Journal. 34, 6, 932-937. (1988).
- [50]- Khalid A, Nouri L, Legrand J.: "Etude de la distribution de pression dans un réacteur torique ", 2<sup>ème</sup> congrès à de mécanique Casablanca (Maroc).Vol 1, 205-2100. (1995).
- [51]- Kersbert U, Meyer H-R, and Fichter A.: "A comparison between the performance of continuously stirred tanks bioreactors and torus bioreactors with respect highly viscous culture broths ", Chem. Tech. Biotech. 43, 107-116. (1988).
- [52]- Laederach H, Widmer F.: " Le bioréacteur torique", Inf. hem. 249, 157-160, (1984).
- [53]- Larosa P, and Manning F.S.: "Intensity of segregation as a measure of incomplete mixing ", Can. J. Chem. Eng. Sci. 42, 65-68. (1964).
- [54]- Li S, Xu J, Wang Y, Luo G.: "meso-mixing scale controlling and its effect on micro-mixing performance", Chem. Eng. Sci. 62, 3620-3626, (2007).
- [55]- Mao K. W, and Toor H.L.: "Second order chemical reactions with turbulent mixing ", Ind. Eng. Chem. Fundam. 10, (2), 192-197. (1971).
- [56]- Miyawaki O, Tsujikawa H, and Uraguchi Y.: "chemical reactions under incomplete mixing ", J. Chem. Eng. Japan, 8, (1), 63-68. (1975).
- [57]- Murakami Y, Hiros T, Ono S, Eitoku H, and Nishijima T.: "Power consumption and pumping characteristic in a loop reactor", Ind. Eng. Chem. Process, Des. Dev, Japan. 21. 273-276. (1982).
- [58]- Nasrallah N. : " Etude de L'acétylation des protéines de pois dans un réacteur torique ", Thèse de doctorat, USTHB, (2008).
- [59]- Nouri L.: "Etude des performances du réacteur torique-Application à l'hydrolyse enzymatique des protéines végétales ", thèse de doctorat, université de Nantes. (1994).

- [60]- **Nouri L., Legrand J., Popineau Y., and Belleville P.:** "Enzymatic hydrolysis of wheat proteins. Part II: Comparison of performance of batch-stirred and torus reactors", *Chem.Eng. J.*, 65, 195-199. (1997).
- [61]- **Nouri L., Legrand J., Benmalek N., Imerzoukane F., Yeddou A. R., Halet F.:** "Characterisation and comparaison of the micro-mixing efficiency in torus and batch stirred reactors ", *Chem. Eng. J.*, 142, 78-86. (2008).
- [62]- **Nouri L, Abouda L, Legrand J.:**"Estimation of the micro-mixing time in the torus reactor by the application of the incorporation". *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification journal*  
homepage: ([www.elsevier.com/locate/cep](http://www.elsevier.com/locate/cep)). (2014).
- [63]-**Palmer A.D, Lyons L.J.:**"Kinetics of iodine hydrolysis in buffered solutions", *At. Energy. Can. Ltd. AECL. 9923*, 7-18. (1988).
- [64]- **Palmer A.D, Ramette R.M, and Mesmer R.E.:** "Triiodide ion formation equilibrium and activity coefficients in aqueous solution ", *J. Solution. Chem.* 13, (9), 673. (1984).
- [65]- **Paul E.L and Treybal R.E.:**"Mixing and product distribution for liquid –phase, second order, competitive –consecutive reaction", *A. I. CH. E. J.* 17, (3), 718-724. (1971).
- [66]- **Phalan K. G, and Tedman G.:**"Nitrogen tracer evidence for a cyclic azide species ", *J. Chem. Sci. Commun.* 6, 299-300. (1992).
- [67]- **Plasari E, David R, Villermaux J.:** "Micro-mixing phenomena in continuous stirred reactors using a Michaelis-Menten reaction in the liquid phase", *A.C.S. Symposium Series, Chem. React. Eng. Sci.* 35, 1377-1391, (1978).
- [68]- **Prausnitz J. M, Wilhelm R. H.:** "Turbulent concentration fluctuations in a packed bed", *Ind. Eng. Chem.*, 30, 978-984, (1957).
- [69]- **Pruvot J, Legrand J, Legentilhomme P, and Rosant J.M.:** "Numerical investigation of band and torus flows- Part II: low simulation in torus reactor", *Chem. Eng. Sci.* 59, 3359-3370, (2004).
- [70]- **Rihani R. and Bensmaili A.:** " Etude cinétique de la réaction de saponification dans un réacteur torique", *ACPE3*, 221-231. (2001).

- [71]- **Rosensweig R.E, Hottel H.C, Williams G.C.:** "Smoke- scattered light measurement of turbulent concentration fluctuations ", Chem. Eng. Sci., 15, 111-129, **(1961)**.
- [72]- **Rousseau J M, Falk L, Muher H, Plasiri E.:** Micro-mixing efficiency of a novel sliding –surface mixing device. AICHE journal. 45, 10, 2203-2213, (1999).
- [73]- **Roustan M, Pharmond J. C. :** " Agitation –mélange". Technique de l'ingénieur, Traité de génie mécanique, A-5900.1-A-5900.20. France. **(1991)**.
- [74]- **Sato Y, Murakami Y, Hirose T, Hashiguchi Y, Ono S, Ichikawa M.:** "Flow pattern, circulation velocity and pressure loss in loop reactor". Chem. Eng. J. Japan, 12, 448-453, **(1979)**.
- [75]- **Tanaka M, Sendai T, Hosogai K.:** "Flowing characteristics in a circular loop reactor", Chem. Eng. Res. Des, 67,423-427, **(1989)**.
- [76]- **Thoma S.A, Ranade V.V, and Bourne J.R.:** "Interaction between micro and macro mixing during reaction in agitated tanks ", Chem. Eng. 69, 1135-1141. **(1991)**.
- [77]- **Torrest R.S, Ranz W.E.:** "Improved conductivity system for measurement of turbulent concentration Fluctuations ", Ind .Eng. Chem. Fundam. 8(4), 810-816. **(1969)**.
- [78]- **Trambouze P, Euzen J.P. :** "Les réacteurs chimiques de la conception à la mise en œuvre ", Ed : Technip, Paris. **(2002)**.
- [79]- **Treleaven C.R and Tobgy A.H.:**"Residence times, micro-mixing and conversion in an unpremixed feed reactors- II: Chemical reaction measurement ", Chem. Eng. Sci. 28, 413-425. **(1973)**.
- [80]- **Vacus P. :**"Mise en point d'une nouvelle méthode optique pour la mesure de concentrations locales en phase liquide. Application au mélange dans une cuve agitée ", Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy. **(1991)**.
- [81]- **Villiermaux J.:**"the role of energy dissipation contacting and mixing devices", Chem. Eng. Tech. 11, 276-287. **(1988)**.
- [82]- **Villiermaux J.:**" Génie de la réaction chimique, conception et fonctionnement des réacteurs", Ed : Tec-Doc, Lavoisier, Paris. **(1993)**.
- [83]- **Villiermaux J. :** " Réacteurs chimiques. Principes ", Doc. J 4010, Techniques de l'ingénieur, traité Génie des procédés. **(1994)**.



[84]- **Worrell G.R, and Eagleton L.C.:**"An experimental study of mixing and segregation in stirred tanks reactor", Can. J. Chem. Eng.42, 254-258. **(1964).**

[85]- **Yu S.:** "Micro-mixing and parallel reaction", These au Swiss Federal Institute of technology, Zurich. **(1992).**

[86]- **Zoulalain A.:** "Etude par voie chimique du micromélange dans un réacteur agitée continu en phase liquide". Ph. D, thesis, University de Nancy I. Nancy. **(1973).**

[87]- **Zoulalain A and Villermaux J.:**"Influence of chemical parameter on micro-mixing in a continuous stirred tanks reactors ", Adv. Chem. 133,348-361. **(1974).**

[88]- **Zwietering T.N.:** "The degree of mixing in continuous flow systems" Chem. Eng. Sci.11, 1-15. **(1959).**