Université de Lille I

HABILITATION à DIRIGER des RECHERCHES

Sciences Physiques

"Agitation et Méthodes de Traçage"

Contribution à la maîtrise des transferts dans les procédés agroalimentaires

Christophe ANDRE

Enseignant-Chercheur HEI

Soutenue le 06/12/2013 devant le jury suivant:

Garant de l'habilitation : DELAPLACE Guillaume

Président du jury : HEDOUX Alain

<u>Rapporteurs</u> : LALOT Sylvain JEANTET Romain FILLAUDEAU Luc

Avant-propos

Je souhaite tout d'abord **remercier** l'ensemble des personnes qui ont rendu possible l'écriture de ce manuscrit.

Ce rapport est articulé en 4 parties principales:

- La première partie rappelle les principaux éléments de mon C.V.
- La seconde partie présente mes activités d'enseignements au sein de l'école HEI.
- La troisième partie est dédiée à la présentation des activités de recherche.
- La quatrième partie présente les conclusions et perspectives de ce mémoire.
- La cinquième partie propose les références bibliographiques de ce mémoire.

• Les publications réalisées et travaux encadrés sont référencés dans les sixième et septième parties. Ces différentes publications sont repérées par un **numéro** qui permettra au lecteur de faire le lien avec le texte du rapport.

Enfin, le lecteur trouvera les versions finales de 5 articles donnant une vue d'ensemble représentative de mon parcours scientifique.

SOMMAIRE

1.	Curriculum Vitae	1		
	1.1 Etat civil et situation professionnelle	1		
	1.2 Formation et diplômes	1		
	1.3 Cursus professionnel	2		
	1.4 Responsabilités administratives	3		
	1.5 Fonctionnement du collectif	3		
	1.6 Les étapes clefs de mon parcours	4		
2.	Activités d'enseignement	10		
	2.1 Contexte général : le cycle ingénieur à HEI	10		
	2.2 Formation initiale en Génie des Procédés HEI	11		
	2.3 Génie des Procédés Formation Environnementaliste	14		
3.	Synthèse des activités de recherche	15		
3.1 Mise en œuvre d'expérience de traçage dans les procédés continus				
	3.1.1 Etude du micromélange dans une cuve agitée en régime turbulent	16		
	3.1.2 Etude du comportement hydrodynamique d'échangeurs	20		
	de chaleur par Distribution des Temps de Séjour			
	3.1.3 Etude de l'hydrodynamique d'un bio-réacteur bi-étagé			
	à recirculation cellulaire (BBRC) par Distributions des Temps			
	de Séjour et des Ages Internes			
	3.2 Etude de l'hydrodynamique des cuves agitées	36		
	3.2.1 Simulation numérique de systèmes d'agitation	36		
	3.2.2 Etude de mélangeurs planétaires	40		
	3.2.3 Etude du transfert de matière solide-liquide en cuve agitée	53		
4.	Conclusion générale et perspectives	64		
5.	Références bibliographiques			
6.	Liste des publications 79			
7.	Travaux encadrés 88			
8.	Reproduction de 5 articles résumant le parcours scientifique 97			

Curriculum Vitae
 1.1 Etat civil et situation professionnelle

ANDRE Christophe

93, rue Meurein 59800 Lille tél.: 03.20.74.80.10 Né le 3 aout 1964 à Soilly (51) Célibataire



HEI 13, rue de Toul 59046 Lille tél.: 03.28.38.48.58 fax.: 03.28.38.48.04 Courriel: <u>christophe.andre@hei.fr</u>

Enseignant-Chercheur en Génie des Procédés

Docteur I.N.P.L. - Ingénieur E.N.S.C.Lille

Thématique de recherche : Maitrise des transferts dans les procédés agro-alimentaires.

Enseignement : Agitation Mélange, Thermodynamique des Solutions, Génie des Séparations (Distillation, Absorption Gaz-Liquide), Calculs de Réacteurs, Simulation de Procédés.

1.2 Formation et diplômes

1991	Doctorat en Génie des Procédés (mention très honorable) – Institut National		
	Polytechnique de Lorraine (LSGC-Nancy)		
1987	Ingénieur Chimiste E.N.S.C.Lille - DEA Génie des Procédés INPL		
1987	Zertifikat Deutsch als Fremdsprache délivré par le Goethe-Institut		
1983/84	Classes Préparatoires: Lycée Clémenceau - 51100 Reims		
1982	Baccalauréat série C (mention assez bien): Lycée Léon Bourgeois - 51200 Epernay		

1.3 Cursus professionnel

• Depuis le 03/09/1991

HEI

Poste : Enseignant-Chercheur au sein du département Chimie Fonction : Responsable du laboratoire de Génie des Procédés. Rattaché pour les activités de recherches au PIHM (Processus aux Interfaces et Hygiène des Matériaux, INRA UR638) - 59651 Villeneuve d'Ascq.

• 1988-1991 (3 ans)

LSGC (Laboratoire des Sciences du génie Chimique) - 54000 Nancy

Poste : Doctorant au sein du groupe "Génie de la Réaction chimique".

Sujet : Développement d'une méthode spectroscopique de mesure de fluctuations de concentration dans un réacteur agité continu.

• 1987 (6 mois)

LSGC (Laboratoire des Sciences du Génie Chimique) - 54000 Nancy

Poste : Stage de fin d'études d'ingénieur et de D.E.A. Modélisation de la micellisation d'un tensio-actif anionique sodique en présence de calcium. Intégration de ce modèle dans un programme d'écoulement régissant le transit d'un bouchon de tensio-actif dans un sol argilo-calcaire.

• 1986 (1 mois)

THOMSON CSF - Centre Electronique - 78500 Sartrouville

Poste : Etude de la gestion informatisée des stocks au sein du service achats

• 1985 (1 mois)

SNCF - Atelier du Matériel - 51200 Epernay

Poste : Mise au point d'un diapo-son expliquant le fonctionnement d'une locomotive BB 16000

1.4 Responsabilités administratives

- Responsable du laboratoire de Génie des procédés d'HEI (depuis 2001)
- Responsable de l'approfondissement "Génie des Procédés" au sein d'HEI (de 1998 à 2005)

1.5 Fonctionnement du collectif

- Membre :
 - De la Société Française de Génie des Procédés (SFGP)
 - Du conseil d'administration de l'Union du Génie des Procédés et de l'Energétique en Nord Pas-de-Calais (UgéPE)
 - 0
- Organisation du congrès SFGP 2011
 - o Membre du comité scientifique et du comité d'organisation local
 - Référent local de la thématique en collaboration avec Ludovic Koehl (ENSAIT)

"Contrôle, Sécurité et Fiabilité des Procédés, Modélisation des systèmes, informatique et procédés, contrôle et commande, simulation et contrôles avancés, gestion des risques, procédés propres et sûrs".

- Reviewer pour les revues internationales à comité de lecture Chemical Engineering and Technology et Journal of Food Engineering

1.6 Les étapes clefs de mon parcours

Pendant ma formation d'ingénieur chimiste (ENSC Lille), j'ai pu découvrir le Génie des Procédés et effectuer mon stage de fin d'études (support de DEA) au Laboratoire des Sciences du Génie Chimique (LSGC) de Nancy. Ce stage s'est déroulé dans l'équipe de Michel Sardin au sein du groupe de recherche "Génie de la Réaction Chimique" (GRC) dirigé par Jacques Villermaux. Mes travaux ont porté sur la modélisation de la micellisation d'un tensio-actif. Ce modèle a permis l'intégration de ce phénomène dans un programme simulant le transport du tensio-actif dans un milieu poreux. Cette première étape d'initiation m'avait vraiment beaucoup intéressé. Après une pause forcée due au service national, j'ai poursuivi dans cette voie, par la préparation d'une thèse au sein du même laboratoire. Ma thèse s'est effectuée dans le cadre d'une Action de Recherche Coordonnée (ARC) portant sur la compréhension des phénomènes de mélange en régime turbulent "processus fondamentaux de mélange dans les fluides" (PROMEF).

Cette ARC a impliqué les laboratoires suivants:

- Institut national polytechnique de Lorraine, Laboratoire des sciences du génie chimique, Nancy, France
- CNRS, Laboratoire d'énergétique et de mécanique théorique et appliquée, Nancy, France
- Institut national polytechnique de Lorraine, Laboratoire d'énergétique et de mécanique théorique et appliquée, Nancy, France
- Institut national polytechnique de Lorraine, Département de chimie physique des réactions, Nancy, France
- Ecole centrale de Lyon, Laboratoire de mécanique des fluides et d'acoustique, Ecully, France
- CNRS, Laboratoire de génie chimique, Toulouse, France
- CNRS, Institut de mécanique des fluides de Toulouse, Toulouse, France
- Institut national polytechnique de Toulouse, Institut de mecanique des fluides de Toulouse, Toulouse, France

Les recherches menées dans le cadre de cette ARC ont essentiellement porté sur le mélange de fluides miscibles dans des cuves agitées et des veines fluides. Cette thèse s'est déroulée sous la direction de René David en collaboration avec le laboratoire de photochimie dirigé par Jean-Claude André. Pendant cette période, j'ai

pu étudier les fluctuations de concentration d'un traceur fluorescent dans un réacteur agité continu. Pour cela, j'ai fait appel à des outils de traitement du signal (densité spectrale de puissance) et de mécanique des fluides (micro-échelles des champs de vitesse et de concentration). Parallèlement à ces travaux de recherche, j'ai pu effectuer des missions d'enseignement à l'IUT du Montet de Villers-Les-Nancy (travaux pratiques à l'échelle pilote) et de formation continue au Centre De Recherche Innovation Formation Ingénieurs Cadres (CRIFIC) de Nancy (Mathématiques, Génie de la Réaction Chimique). En résumé, mon parcours nancéen m'a permis d'acquérir des compétences dans les domaines suivants:

- Mise en œuvre d'expériences de traçage dans les procédés.
- Etude de l'hydrodynamique des cuves agitées.

A l'issue de cette thèse, j'ai intégré le département Chimie-Génie Chimique de l'école HEI à Lille. Ce poste d'enseignant-chercheur comprend une mission d'enseignement (génie des séparations, agitation, simulation de procédés, travaux pratiques). En collaboration avec Claude Torrez, j'ai développé un laboratoire pédagogique de Génie des Procédés. Ce laboratoire permet le déroulement de séances de travaux pratiques et de projets expérimentaux pour les élèves-ingénieurs suivant l'option Chimie lors de leur cursus à HEI. Cette étape de développement du Génie des procédés au sein de la structure généraliste HEI a permis d'initier une activité de **recherche** grâce à une collaboration très étroite avec le Laboratoire de Génie des Procédés et Technologies Agroalimentaires (LGPTA devenu PIHM) par le biais du suivi de stages d'élèves-ingénieurs.

Cette collaboration m'a permis d'élargir mon champ de compétence en découvrant les problématiques posées par les **fluides complexes** dans les procédés agroalimentaires. En 1995, notre laboratoire s'est équipé du code de calcul Fluent. Cet investissement nous a permis de développer des compétences en **simulation numérique** complémentaires par rapport à l'équipe INRA. Nous avons logiquement abordé la simulation de cuves agitées. Nous avons tout d'abord étudié des mobiles d'agitation très simples. Nous avons, en particulier, étudié l'écoulement généré par une turbine Rushton dans une cuve de 21 litres pour des fluides visqueux. Cette géométrie correspondait à celle de notre dispositif expérimental pédagogique et permettait une validation des simulations par comparaison des puissances expérimentales et numériques. L'accès à des grandeurs locales constitue un enjeu

5

majeur dans l'étude de l'hydrodynamique des cuves agitées. Ces compétences ont été valorisées par 2 articles **[3]**, **[4]**. Cela nous a, par la suite, permis de contribuer pour la partie "simulation numérique" à la thèse de Guillaume Delaplace (HEI 94 C) en abordant le cas des mélangeurs de proximité. Cette collaboration s'est poursuivie autour de cette thématique. En 2001, nous avons abordé l'étude des méthodes de traçage numérique dans des cuves agitées. La possibilité de suivre numériquement la concentration d'un traceur passif injecté à l'instant initial nous a permis de déterminer la valeur du temps de mélange pour de degrés d'homogénéisation fixés pour une cuve agitée par un ruban hélicoïdal.

De façon plus générale, cette collaboration s'est poursuivie au grès des différents projets étudiés. En 2003, nous avons abordé avec Luc Fillaudeau (HEI 94 C) l'étude de l'hydrodynamique d'échangeurs de chaleur (tubes à passage de courant: TPC) par le biais de la distribution des temps de séjour (DTS). Cette étude m'a permis de mettre à profit les compétences acquises sur le traçage passif lors de la préparation de mon DEA afin de quantifier l'apport des tubes modifiés au niveau de l'amélioration de l'efficacité des échangeurs étudiés. Suite à la mutation de Luc Fillaudeau au sein du LISBP (CNRS UMR5504, INRA UMR792, INSA) une collaboration scientifique entre cette structure et notre laboratoire a été mise en place. Nous avons ainsi pu poursuivre notre collaboration dans le cadre du projet : "Quantification et modélisation hydrodynamique d'un Bio-réacteur Bi-étagé avec Recirculation Cellulaire (BBRC) à travers la Distribution des Temps de Séjour (DTS) des phases liquides, biomasse et gaz". Cette collaboration a été liée à l'exploitation d'expériences de traçage et la modélisation de la DTS du bioréacteur BBRC. Ces travaux ont été placés sous la direction scientifique de Luc Fillaudeau et soutenus par l'ANR-05-NT05-3_42450. Les expériences de traçage ont été réalisées dans le cadre du séjour post-doctoral de MIIe Lamia BENGAIDA.

En 2004, nous avons entamé l'étude de mélangeurs planétaires innovants. La simulation numérique du champ de vitesse généré par le Triaxe a été réalisée dans notre laboratoire. L'étude expérimentale des mélangeurs planétaires a également été abordée en généralisant **l'expression des nombres adimensionnels** grâce à l'utilisation d'une vitesse caractéristique prenant en compte la composition du mouvement. Une collaboration avec l'Ecole des Mines d'Albi nous a récemment

6

permis d'aborder la problématique du **mélange de solide** par ce système planétaire en faisant appel à cette approche.

Une convention d'accueil établie entre le laboratoire INRA et l'école HEI a officialisé les liens avec le LGPTA en 2007. Cette convention m'a permis de franchir un cap et de participer à l'encadrement de la thèse de Sami Ghnimi pour la partie de son étude faisant appel à la DTS.

En 2008, dans le cadre d'un programme collectif de recherche financé par le Centre National Interprofessionnel de l'Economie Laitière (CNIEL) impliquant l'équipe de Guillaume Delaplace et celle de Romain Jeantet (UMR1253 et AGROCAMPUS OUEST), nous avons abordé une thématique nouvelle: **la compréhension des cinétiques de réhydratation des poudres laitières**.

Une étude bibliographique sur l'impact des conditions d'agitation sur les cinétiques de transfert liquide-solide a été réalisée en parallèle avec une série d'expériences pour proposer une méthode de suivi du processus de réhydratation au cours du temps. Compte tenu de résultats encourageants, cette étude préalable a été prolongée par un programme de recherche plus conséquent sur 3 ans de 2009 à 2012. La figure 1 résume le programme de recherche réalisé.



Figure 1 : Programme de recherche sur la réhydratation des poudres laitière

Les différents postes ont été pourvus:

- Post-doctorant 1 (Lille): Jean-François Le Page
- Post-doctorant 2 (Rennes): Ousmane Syll
- Thèse CIFRE: Bruno Richard

Ma contribution à ce programme collectif de recherche a été le co-encadrement de la thèse CIFRE de Bruno Richard financée par le CNIEL et soutenue en octobre 2012. Parallèlement aux travaux expérimentaux sur les produits laitiers, des expériences complémentaires ont été réalisés sur la dissolution des produits minéraux en cuve agitée afin de comparer les différentes approches possibles (approche phénoménologique type loi de Weilbull, coefficient de transfert de matière (k_L) et nombre de Sherwood (Sh), temps (t_d) et nombre de dissolution (N.t_d). Ces travaux ont également permis d'associer les élèves-ingénieurs au projet.

Le Laboratoire de Génie des procédés d'HEI a également pu contribuer à un programme collectif de recherche visant à structurer les actions au niveau régional dans le domaine de l'agro-alimentaire en apportant ses compétences en simulation numérique. L'intitulé de ce programme était le suivant:

« Influence des conditions d'écoulement, physico-chimie et Propriétés d'interfaces sur l'adhésion/cohésion de dépôts alimentaire en paroi d'équipements ».

Ce programme de recherche a impliqué 7 laboratoires de la région Nord-Pas-De-Calais :

Partenaire 1: Laboratoire PIHM - INRA - Villeneuve d'Ascq

Partenaire 2: Laboratoire de Dynamique et Structure des Matériaux Moléculaires UMR CNRS 8024

Partenaire 3: Laboratoire PERF-LSPES - ENSCL, BP 90108 - 59 652 Villeneuve d'Ascq

Partenaire 4: Laboratoire « Oxydation et Formulation » - ENSCL, BP 108 - 59 652 Villeneuve d'Ascq

Partenaire 5 : UCCS - Cité scientifique, USTL, 59650, Villeneuve d'Ascq

Partenaire 6: IEMN DOAE, UMR CNRS 8520, Le Mont Houy, 59313 Valenciennes cedex 9

Partenaire 7: HEI - Laboratoire de Génie des Procédés – 13, rue Toul - 59046 Lille L'utilisation du code de calcul Fluent a permis la simulation de l'hydrodynamique d'un échangeur à plaques en associant nos élèves-ingénieurs sous forme des stages de fin d'études. L'étude de cette thématique se poursuit dans le cadre de la thèse de Marwa Khaldi dans les cas particuliers des produits laitiers.

Mon objectif est de continuer à contribuer à la structuration de recherche au sein d'HEI dans le cadre d'un rattachement au laboratoire PIHM-INRA en apportant mon expertise en Génie des Procédés. Cela passe nécessairement par le suivi de travaux s'inscrivant dans la durée. Le passage de l'habilitation à diriger les recherches permettrait de franchir ce cap.

2. Activités d'enseignement

Dans un souci de clarté et de concision, j'ai fais le choix de présenter la maquette pédagogique actuelle (depuis 2011). Rappelons simplement qu'il y a 20 ans, HEI proposait 5 orientations à partir de la quatrième année (Génie Chimique, Génie Mécanique, Génie Electrique, Informatique Industrielle et Bâtiment Travaux Public) pour une capacité d'accueil globale de 250 élèves. Cette capacité d'accueil a désormais été portée à 350 élèves pour un choix parmi 11 orientations (désormais appelées domaines d'activités).

2.1 Contexte général : le cycle ingénieur à HEI

Sur le campus de Lille, en cycle ingénieur, les étudiants combinent des cours et des projets à conduire en équipe, des stages, des expériences associatives et internationales. Cours, options et expériences jalonnent les études à HEI, pour consolider le projet personnel et professionnel de l'élève. Ce cycle ingénieur se réalise dans la majorité des cas dans le prolongement des classes préparatoires intégrées à HEI (dans le cadre du cursus en 5 ans).

Le tronc commun est organisé par **pôles**. Il se déroule pendant toute la troisième année (800 h) et la moitié des quatrième (400 h) et cinquième années (200 h); il couvre une très large palette de disciplines : mathématiques, physique, chimie, sciences de l'ingénieur, informatique, automatique, électricité, électronique, mécanique, fluide et énergétique, formation humaine, littérature, langues, organisation et management des entreprises, sport, sur l'ensemble du cursus.

Cette formation généraliste est enrichie, à partir de la quatrième année, par les connaissances et les compétences spécifiques apportées par le **domaine de professionnalisation**. Cela représente 600 heures (400h en 4e année et 200h en 5e année). Ces enseignements de domaines complètent les cours du tronc commun avec un souci d'employabilité des futurs ingénieurs. Ces programmes, conçus en étroite collaboration avec le monde de l'entreprise, intègrent des approfondissements en dernière année pour compléter le bagage professionnel des élèves. De nombreux acteurs de l'entreprise et de la recherche interviennent dans cette phase du cursus.

En résumé, le cycle ingénieur combine des enseignements de tronc commun (70% des enseignements du cycle ingénieur) à des cours de domaines de professionnalisation (30% des cours) au choix (11 domaines, dont 8 accessibles en

10

4e année + 3 domaines vers lesquels il est possible de bifurquer en 5e année). Les 11 domaines d'activités sont les suivants:

- Bâtiment, Aménagement et Architecture.
- Bâtiment Travaux Public
- Banque Finances Assurances
- Chimie
- Conception Mécanique
- Energie, Systèmes Electriques et Automatisés
- Informatique et Techniques de l'Information
- Ingénierie Médicale et Santé
- Organisation et Management des Entreprises
- Technologies, Innovation, Management International Textiles
- Energies, habitat, environnement

2.2 Formation initiale en génie des procédés

La figure 1 résume le positionnement des Génie des Procédés au sein de la maquette pédagogique d'HEI. L'enseignement de la discipline débute dès la première année du cycle ingénieur en même temps que la mécanique des fluides et l'énergétique. La suite de la formation en Génie des Procédés est réalisée pour les élèves-ingénieurs ayant opté pour le domaine d'activité "Chimie". La description de cet enseignement est réalisée dans ce chapitre.



Figure 2 : Position du Génie des Procédés dans le cursus HEI

Le tableau 1 précise les volumes horaires de chaque activité de type "face à face".

Promotion	Туре	Matière	volume horaire enseignant	volume horaire élève
HEI 3	Cours	Introduction G.P.	18	3
HEI 3	TD	Introduction G.P.	18	3
HEI 4C	Cours	Transfert de matière	21	21
HEI 4C	Cours	Calcul de réacteurs	13.5	13.5
HEI 4C	TP	Génie Chimique	18	18
HEI 5C	Cours	Simulation de Procédés	16	16
L3 env	Cours	Introduction G.P.	17	17

Tableau 1 : Volumes horaires des activités de type "face à face"

Introduction au génie des procédés HEI 3 (3 h de cours et 3 h de TD)

Cet enseignement est dispensé en Tronc Commun au sein du pole Chimie. Il concerne donc tous les élèves-ingénieurs HEI (environ 450 élèves en HEI 3). L'objectif principal de ce module est de montrer aux élèves que la chimie ne se limite pas à l'échelle du laboratoire. L'accent est mis sur le fait que les processus de transport et de transfert sont cruciaux à l'échelle industrielle. La notion de bilan matière sur un procédé simple est introduite. A titre d'exemple, les opérations de décantation et d'agitation sont traitées. Compte tenu de l'effectif concerné, chaque cours est fait 6 fois par an et chaque TD 12 fois (50% avec Claude Torrez pour les TD).

Transfert de matière HEI 4 C (21 h)

Cet enseignement est dispensé au sein du domaine de professionnalisation Chimie en quatrième année. Il concerne un effectif d'environ 20 élèves. Les cours et les exercices d'application sont enchainés en fonction des besoins pédagogiques (**pas de séances spécifiques de cours ou de TD**). Ce cours s'appuie sur les bases fournies par le cycle préparatoire et le Tronc Commun. Après un chapitre introductif aux phénomènes de transfert de matière, nous abordons les opérations unitaires suivantes:

- Absorption gaz-liquide
- Distillation Flash
- Distillation continue
- Evaporation

Calculs de réacteurs (13.5 h)

Le plan du cours est le suivant:

- Introduction
- Description de l'évolution du milieu réactionnel
- Bilan de matière dans les réacteurs idéaux
- Comparaison et optimisation des réacteurs
- Réglage optimal de la température
- Bilans thermiques

Travaux pratiques de génie chimique HEI 4 C (3 séances de 6 h par élèves)

Cette activité se déroule dans le laboratoire pédagogique d'HEI.

Notre objectif est :

- d'illustrer le cours
- d'étudier une nouvelle opération unitaire par le biais de l'expérience

Les postes de travail disponibles sont :

- Distillation discontinue d'un mélange eau-éthanol
- Agitation Mélange
- Transfert thermique
- Fluidisation
- Distribution des temps de séjour

- Simulation de procédés (Prophyplus, Prosim)

Projet (100 h)

Cette activité peut prendre différentes formes (expérimentale ou bibliographique). L'objectif de ce projet est de sensibiliser les élèves-ingénieurs à la recherche. Les sujets sont proposés au grès des activités de recherche en cours, ils permettent d'effectuer le lien entre les activités de recherche et celles d'enseignement. La souspartie 3.2.3 du rapport présente une illustration de cette démarche. En effet, une problématique liée aux activités de recherche sur la réhydratation des poudres laitières nous a incités à aborder la dissolution de produits minéraux sous formes de projets ou des travaux pratiques.

Simulation de Procédés HEI 5C (16 h)

Ce module fait partie de l'approfondissement "Procédés Propres et sûrs "proposé aux élèves ayant choisi le domaine d'activité "Chimie" lors de leur quatrième année. L'objectif de ce module est d'initier les élèves-ingénieurs à l'utilisation de codes commerciaux. Un effort particulier est fait pour bien sensibiliser les élèves à propos de l'influence du choix du modèle thermodynamique utilisé sur les résultats de la simulation. Les codes de calcul proposeront toujours des résultats même en cas d'un modèle non pertinent. Le plan du cours est le suivant:

- Rappels de thermodynamique
- Utilisation du calculateur de propriétés physiques **ProphyPlus**
- Utilisation du simulateur de propriétés ProsimPlus
- Etudes de cas réels

2.3 Génie des procédés Formation Environnementaliste

Faculté Libre des Sciences et Technologies de Lille en convention avec l'Université du Littoral et de la Côte d'Opale (niveau Licence: 17 h)

Ce module d'enseignement a pour vocation de sensibiliser ce public aux apports du génie des procédés dans un contexte axé sur l'environnement (agitation, distillation, lavage de gaz).

3.Synthèse des activités de recherche

Ces activités se sont appuyées sur 2 axes de compétence majeurs:

- La mise œuvre **d'expériences de traçage** pour évaluer la qualité du mélange.

- L'étude de l'hydrodynamique des cuves agitées.

Cette partie est donc subdivisée en 2:

La première sous-partie (3.1) illustre les apports du traçage passif pour modéliser l'écoulement dans différents systèmes. L'intérêt majeur de cette technique est de s'affranchir de la connaissance du champ de vitesse.

Le chapitre 3.1.1 présente les travaux sur l'évaluation de la qualité du micromélange dans une cuve agitée alimentée en continu.

Le chapitre 3.1.2 est consacré à la caractérisation de l'hydrodynamique d'échangeurs de chaleur (tubes à passage de courant puis cellule à jet) par des expériences de Distribution des Temps de Séjour afin de proposer des modèles sous forme d'associations de réacteurs idéaux.

Le chapitre 3.1.3 présente les résultats de la modélisation d'un bio-réacteur (BBRC).

La seconde sous-partie (3.2) présente les activités liées à l'étude de l'hydrodynamique des cuves agitées.

Le chapitre 3.2.1 présente les résultats obtenus par simulation numérique de l'écoulement généré par un mobile d'agitation en régime laminaire.

Le chapitre 3.2.2 illustre les apports de l'innovation technologique dans les procédés d'agitation. Nous avons abordé l'étude des mélangeurs planétaires dans des milieux visqueux ou granulaire. L'introduction d'une vitesse caractéristique u_{ch} nous a permis d'exploiter les résultats obtenus en faisant appel à des nombres adimensionnels spécifiques.

Le chapitre 3.2.3 termine cette sous-partie. Il est consacré à l'étude du transfert de matière liquide-solide en cuve agitée. Ce chapitre met en évidence les interactions entre activités de recherche et d'enseignement. Les résultats obtenus sur les cinétiques de réhydratation des poudres laitières ont été complétés par des résultats obtenus lors d'activités pédagogiques étudiant la dissolution des produits minéraux.

15

3.1 Mise en œuvre d'expérience de traçage dans les procédés continus 3.1.1 Etude du micromélange dans une cuve agitée en régime turbulent

L'objectif de cette étude était la caractérisation de l'état du micromélange dans un réacteur agité continu. Nous avons mesuré les fluctuations de concentration d'un traceur fluorescent dans un réacteur agité continu. Ces mesures locales ont été effectuées dans l'eau en **régime turbulent (Re_A<10000)**. On qualifie de **macromélange** l'ensemble des processus qui contribuent à uniformiser la concentration moyenne dans l'espace, alors que le terme **micromélange** est réservé aux processus qui contribuent à réduire les fluctuations de concentration autour de cette valeur moyenne. L'enjeu industriel est la mise en œuvre de processus chimiques à cinétiques complexes dans des réacteurs agités continus. En effet, ces dispositifs ne présentant pas de défaut au niveau du macromélange (court-circuit, volume mort) compte tenu de l'agitation mécanique peuvent faire l'objet de problèmes de rendement ou de sélectivité à cause d'un micromélange imparfait.

Nous avons étudié le champ de concentration dans une cuve agitée de géométrie standard (**Holland et Chapman, 1966**) d'un volume de 1,125 l. Le mobile utilisé était une turbine Rushton à 6 pales droites de diamètre D = 0,05 m. Le schéma de principe du dispositif est représenté par la figure 3. Ce dispositif de mesure est caractérisé par de résolutions spatiale et temporelle optimales. La taille caractéristique du volume de mesure était égale à 30 μ m. De plus, contrairement aux sondes conductimétriques, la chaine de mesure temporelle n'induisait pas une fréquence de coupure limitante.



Figure 3: Dispositif de mesure utilisé (extrait de [21])

Un filtrage à basse fréquence du signal de fluctuations de concentration permet de visualiser l'impact de la vitesse d'agitation sur la qualité du micromélange dans la partie inférieure de la cuve pour un temps de passage égal à 20 s (cf. figures 4, 5 et 6).



Figure 4 : Signal de fluctuations de concentration pour $N = 5 \text{ s}^{-1}$ (Re_A = 12500) (extrait de [21])



Figure 5 : Signal de fluctuations de concentration pour $N = 9 \text{ s}^{-1}$ (Re_A = 22500) *(extrait de [21])*



Figure 6 : Signal de fluctuations de concentration pour $N = 13 \text{ s}^{-1}(\text{Re}_{A} = 32500)$ (extrait de [21])

L'analyse spectrale du signal sans filtrage préalable conduit au spectre de ségrégation $S_c(f)$ (cf. figure 7).



Figure 7: Influence de la vitesse d'agitation N sur S_c(f) (extrait de [21])

Le spectre de ségrégation permet de vérifier la théorie de la turbulence (pente -1 dans le domaine des basses fréquences : domaine visco-convectif) et de déterminer par intégration la variance réduite β^2 du signal fluctuant de concentration caractérisant **l'intensité de ségrégation** au point de mesure. Concrètement, β^2 traduit la qualité du micromélange au point de mesure. La Figure 8 montre l'évolution de β^2 en fonction de la puissance massique apportée au fluide. Le calcul de la puissance massique P_t prend en compte:

- La contribution de l'agitateur.
- La contribution des courants d'alimentation.



Figure 8 : Evolution de β^2 en fonction de la puissance massique (extrait de [21])

La rupture de pente observée pour un temps de passage égal à 20 s est due à la contribution de l'énergie cinétique des courants d'alimentation. Pour des temps de passage plus élevés, cette contribution est beaucoup moins significative comparativement à celle de la puissance mécanique.

3.1.2 Etude du comportement hydrodynamique d'échangeurs de chaleur par Distribution des Temps de Séjour

a) Situation du contexte

Sous la double poussée de la demande sociale et industrielle, et du progrès scientifique et technique, les IAA sont confrontées à deux niveaux d'innovation : une offre technologique diversifiée et des matrices alimentaires de plus en plus complexes. La stabilisation et la conservation par traitement thermique en procédé continu sont des opérations unitaires du génie industriel alimentaire (GIA) parmi les plus anciennes et les plus fréquemment appliquées (chauffage, pasteurisation, stérilisation, cuisson, chambrage, refroidissement). Les échangeurs de chaleur sont donc des équipements vitaux dans toutes les industries agroalimentaires (IAA) mais le traitement thermique reste une opération délicate (diminution des coefficients de transfert, impact et cinétique d'encrassement, homogénéité de traitement, structure écoulements). Malgré des avancées importantes des technologies des conventionnelles au cours des dernières décennies, le traitement thermique des produits agroalimentaires (produit encrassant, fluide rhéologiquement complexe, fluide chargé en particules) reste une opération complexe.

L'encrassement progressif des échangeurs réduit leurs performances ainsi que la durée des cycles de production. Les contraintes industrielles et législatives en terme de barème de stérilisation nécessitent d'accroître les températures de traitement. Dans ce contexte, le développement de nouvelles technologies de pasteurisation et stérilisation continues par voie thermique (tube à passage de courant, échangeur à géométrie modifiée, chauffage ohmique) présente un intérêt scientifique et économique indéniable.

Le **procédé d'aseptisation en continu** est une technologie de stérilisation et d'emballage des aliments connaissant un regain croissant d'intérêt. Contrairement aux procédés conventionnels discontinus (batch) pour lesquelles l'aliment est mis en boite puis stérilisé par chauffage, le procédé continu d'aseptisation implique une stérilisation séparée du produit et de l'emballage, suivi d'un remplissage en zone stérile. Récemment, un grand intérêt s'est porté sur ce type de procédé en vue d'une application sur des aliments hétérogènes (fluide + particules). Cependant ces derniers éléments altèrent fortement l'écoulement du produit ainsi que le transfert de chaleur. Le traitement thermique en continu se présente comme un moyen efficace et économique de détruire des microorganismes dans une grande variété d'aliments

(macédoine de légumes, petits pois, fruits au sirop, etc.). Les avantages de ce procédé sont:

- une moindre détérioration des particules
- une durée de procédé diminuée et une capacité de production accrue
- une meilleure homogénéité du traitement thermique (surtout en ce qui concerne les particules)
- une réduction de la consommation énergétique
- une meilleure adaptabilité du procédé à l'automatisation et à la régulation
- un encombrement surfacique plus faible.

Bien que ces technologies soient appliquées avec succès sur des fluides homogènes monophasiques, leur application aux produits alimentaires polyphasiques (fluide + particules de dimensions comprises entre quelques millimètres et quelques centimètres) est sévèrement limitée par le manque de connaissances (compréhension et modélisation) des principes physiques qui régissent le comportement de tels produits dans les équipements industriels. Même en l'absence de transfert thermique, la conception et le dimensionnement de tels équipements restent empiriques. Les technologies électriques telles que le chauffage par effet Joule Indirect (tube à passage de courant) et par effet Joule Direct (chauffage ohmique) présentent des avantages indéniables pour des applications agroalimentaires.

Dans le cadre de ma collaboration avec le laboratoire INRA de Villeneuve d'Ascq, 2 types de dispositifs thermiques ont été étudiés:

- Procédé de chauffage par effet Joule indirect : le tube à passage de courant (TPC) en collaboration avec Luc Fillaudeau.
- Procédé de chauffage par effet Joule direct : la cellule ohmique en collaboration avec Guillaume Delaplace (thèse de Sami Ghnimi).

b) Etude d'échangeurs de chaleur de type TPC

La technique de chauffage concernée est basée sur un procédé de chauffage par effet joule indirect : le tube à passage de courant (TPC). Il est possible de chauffer, dans des TPC, des fluides fortement visqueux, très sensibles aux chocs thermiques

ou contenant des particules. Le procédé doit alors assurer un traitement thermique homogène garantissant la **sécurité et la qualité** du produit final.

Pour empêcher l'hétérogénéité de traitement induite par un écoulement laminaire (profil de vitesse) et la convection mixte (stratification du profil de température sur une même section), la modification géométrique des TPC constitue un moyen d'améliorer le transfert de chaleur dans les fluides complexes avec un minimum d'inconvénient. Cependant, aucune étude académique n'avait été réalisée afin de quantifier le gain relatif à l'homogénéisation du produit et aux performances hydrodynamiques de l'installation. En partenariat avec un équipementier (le groupe Actini), nous avons pu aborder cette thématique.

Notre objectif était de quantifier l'apport des tubes modifiés en terme d'homogénéité de temps de séjour et donc de traitement. Compte tenu de la complexité de la géométrie (coudes horizontaux et verticaux), la simulation numérique n'était pas envisageable. Pour cette raison, une série d'expériences de traçage passif (DTS) a été menée (cf. figure 9). L'intérêt majeur de cette technique est d'obtenir une caractérisation du comportement hydrodynamique d'un système sans faire appel à la connaissance du champ des vitesses (Leclerc et al. 1995).



Figure 9 : Principe d'une expérience de distribution des temps de séjour Extrait de DTS pro 4.2 (notice d'utilisation)

Cette méthodologie a été appliquée à un échangeur industriel (Actini, 6 tubes et jonctions, $Ø_{int/ex}$ =18/20 et 23/25 mm, L=1400mm) avec et sans modifications géométriques en condition isotherme dans le cadre du DEA de Benjamin Boissier (2003). La figure 10 montre une photo des tubes étudiés.



Figure 10 : Photos des tubes lisses et modifiés étudiés Extrait de [6]

La figure 11 montre le schéma du dispositif expérimental mis en place.



Figure 11 : Schéma de principe du dispositif étudié Extrait de [6]

Au préalable, les courbes de frottement expérimentales ont permis la détermination des nombres de Reynolds critiques Re_{c1} et Re_{c2} délimitant les régimes d'écoulement. Les valeurs pour un tube droit sont rappelées à titre d'élément de comparaison à la première ligne du tableau **2**.

	Laminaire	Turbulent
	Re _{c1}	Re _{c2}
Tube droit	2100	4000
ST18/20	200	1500
MT18/20	100	500
ST23/25	300	1300
MT23/25	150	450

 Tableau 2: Valeurs des nombres de Reynolds critiques Extrait de [6]

La mise en œuvre d'expériences de distribution des temps de séjour (D.T.S.) nous a permis d'obtenir les signaux d'entrée x(t) et de sortie y(t). Ces signaux ont été normées de telle sorte que:

$$\int_{0}^{\infty} x(t).dt = \int_{0}^{\infty} y(t).dt = 1$$
 (1)

La réponse impulsionnelle E(t) du procédé est donnée par la relation:

$$y(t) = \int_0^t E(u).x(t-u).du$$
 (2)

Ce produit de convolution peut être remplacé par un simple produit dans le domaine de Laplace. X(s), Y(s) et G(s) sont les transformés de Laplace des signaux x(t), y(t) et E(t). G(s) est la fonction de transfert du procédé.

$$Y(s) = G(s) \cdot X(s)$$
 (3)

La fonction E(t) est caractérisée par ses moments d'ordre 1 et 2 notés respectivement Γ^1 et Γ^2 . Les valeurs de ces moments sont données par les relations suivantes.

$$\Gamma^{1} = \int_{0}^{\infty} t \cdot E(t) \cdot dt$$
 (4) et $\Gamma^{2} = \int_{0}^{\infty} t^{2} \cdot E(t) \cdot dt$ (5)

Le moment d'ordre 1 de E(t) représente le temps de séjour moyen; il est note ts. La comparaison entre ts et le temps de passage τ est importante, elle permet de déterminer la validité de l'essai. En effet, un écart significatif entre les 2 valeurs traduit une erreur expérimentale au niveau de la détection des signaux. A partir des valeurs de ces moments, La variance réduite β^2 a été évaluée. La valeur de ce paramètre

$$\sigma^{2} = \int_{0}^{\infty} (t - t_{s})^{2} . E(t) . dt = \int_{0}^{\infty} t^{2} . E(t) . dt - t_{s}^{2}$$
 (6)

$$\beta^2 = \frac{\sigma^2}{t_s^2} \quad (7)$$

L'étude des signaux obtenus nous a permis de discuter de l'impact du régime d'écoulement, du diamètre de la conduite et des modifications géométriques sur l'homogénéité de traitement en mode isotherme.

La modélisation de ces expériences grâce au logiciel « DTS progepi » nous a permis de proposer un type d'association de réacteurs idéaux conduisant à un accord satisfaisant entre les résultats expérimentaux et théoriques. Le modèle retenu a été l'association en série d'un réacteur piston (P.F.) avec 2 réacteurs parfaitement agités (C.S.T.R.). **[6], [33], [40].** La figure 12 montre la structure du modèle proposé.



Figure 12 : Structure du modèle proposé Extrait de [6]

Les expressions de la fonction de transfert G(s) et de la fonction E(t) sont les suivantes pour le modèle envisagé:

$$G(s) = \frac{\exp(-s.\tau_{PF})}{\left(1 + \left(\frac{s.\tau_{CSTR}}{2}\right)\right)^2}$$
(8)
$$E(t) = H(t - \tau_{PF}) \left(\frac{2}{\tau_{CSTR}}\right)^2 \cdot (t - \tau_{PF}) \cdot \exp\left(\frac{-2.(t - \tau_{PF})}{\tau_{CSTR}}\right)$$
(9)

Nous avons pu, en particulier, comparer ce modèle avec celui du réacteur piston à dispersion axiale (D.P.F.). La figure 13 met en évidence le meilleur accord obtenu avec le modèle proposé par rapport au modèle DPF.



Figure 13 : Comparaison entre le modèle proposé et le modèle D.P.F. Extrait de [6]

Ce modèle est caractérisé par le paramètre α défini par la relation 10:

$$\alpha = \frac{\tau_{_{PF}}}{\tau_{_{PF}} + \tau_{_{CSTR}}} \quad (10)$$

Ce paramètre est relié à la variance réduite β^2 par l'équation suivante :

$$\beta^2 = \frac{(1-\alpha)^2}{2}$$
 (11)

L'intérêt de cette structure de modèle est que la valeur de α est directement lié à l'homogénéité des temps de séjour et donc de l'uniformité du traitement thermique dans l'échangeur. Une valeur de α proche de 1 (donc une valeur de β^2 proche de 0) est la signature d'une homogénéité proche de l'objectif visé. La figure 14 illustre le caractère bénéfique des tubes modifiés à travers l'évolution de β^2 en fonction de Re.



Figure 14 : Evolution de la variance réduite en fonction du nombre de Reynolds Extrait de [6]

L'apport des modifications géométriques apparait plus notable pour les tubes 18/20 car les expériences ont été réalisées à débit volumique constant. Cet apport plus visible est donc du à une vitesse moyenne de passage supérieure pour les tubes 18/20 par rapport aux tubes 23/25.

Dans un second temps, nous avons réalisé ce type d'expériences en mode non isotherme à débit volumique constant (avec une puissance de chauffe non nulle) dans le cadre du stage de fin d'études d'Alexis Detavernier (2004). Un travail de

modélisation identique au cas précédent nous a permis de quantifier l'influence de la valeur de la puissance imposée. La contribution de Kathy Le Nguen nous a permis de terminer l'exploitation de cette série d'expériences pour les tubes 18/20 **[10].** La figure 15 montre l'influence de la puissance massique sur la variance réduite du signal de concentration dans différentes conditions expérimentales (tubes modifiés ou non, régime d'écoulement turbulent ou laminaire). A l'instar du cas isotherme, des valeurs inférieures de β^2 sont observées pour les tubes modifiés. L'apport d'une puissance de chauffe induit une diminution de la viscosité du fluide entre l'entrée et la sortie du système. Ce phénomène supplémentaire par rapport aux expériences isothermes entraine une diminution de la variance réduite β^2 .



Figure 15: Evolution de la variance réduite en fonction de la puissance massique. *Extrait de [10]*

c) Etude d'une cellule à jet

Le chauffage par Effet Joule Direct (EJD), également dénommé chauffage ohmique, se définit comme un chauffage purement volumique et à résistance directe par opposition au chauffage classique par conduction-convection. Il consiste à **appliquer un courant électrique directement dans le produit s'écoulant entre une paire d'électrodes**. La chaleur générée est une fonction directe de la géométrie des cellules, la conductivité électrique du produit et la tension appliquée. L'absence théorique de paroi chaude devrait constituer un avantage majeur pour les applications alimentaires, en autorisant des cinétiques de montée en température rapides et homogènes et en limitant la dégradation de composés thermosensibles

par surchauffe (changement de goût, réaction indésirable, brûlage) et l'encrassement des surfaces des électrodes (performances thermiques constantes). L'effet Joule direct constitue une technologie alternative intéressante pour stabiliser rapidement des fluides agroalimentaires homogènes ou hétérogènes.

Dans le cadre de la thèse de Sami Ghnimi (2008), nous avons modélisé l'écoulement au sein d'une cellule à jet. Le principe de fonctionnement de la cellule ohmique à jet de fluide consiste donc à faire passer un courant électrique dans un jet tombant entre deux électrodes. Ce jet de fluide agit comme une résistance électrique et le fluide traversé par le courant électrique est chauffé par effet Joule. Nous avons caractérisé le comportement hydrodynamique de la cellule par des expériences de distribution des temps de séjour. La figure 16 montre un schéma de l'hydrodynamique dans le réceptacle alimenté par le jet de fluide.



Figure 16: Schéma de l'hydrodynamique dans le réceptacle alimenté par le jet de fluide. Extrait de [36]

La Figure 17 montre, à titre d'exemple, une succession de photographies prises au cours des essais de visualisation de l'écoulement dans la cellule à jet de fluide. Ces photographies ont été obtenues pour 2 fluides Newtoniens de viscosités différentes (eau et une solution de saccharose à 65% (p/p)) mais avec des débits massiques identiques à l'entrée de la buse d'injection. Ces conditions d'alimentation ont permis la définition d'un nombre de Reynolds *Re* (diamètre *d* et vitesse u_0).



Figure 17: Visualisation de l'écoulement à l'aide d'un traceur coloré dans la cellule ohmique à jet, (a) solution d'eau, Re = 2720 ; (b) d'une solution de Saccharose à 65% (p/p) ; Re = 46 ; h=80 mm **Extrait de [36]**

Au vu de ces photographies, il est clair que l'eau dans la cellule ohmique à jet est parfaitement mélangée. Ainsi, la concentration en traceur coloré atteint instantanément, en tout point du réceptacle, sa concentration maximale. En revanche, avec la solution aqueuse de saccharose plus visqueuse, nous constatons la présence d'un écoulement secondaire sous forme d'un courant de court-circuit principal. La conclusion de cette première série d'expériences de visualisation de l'écoulement est qu'en dessous d'un nombre de Reynolds critique (évalué à 46) des recirculations sont observées.

Pour confirmer cette analyse qualitative, des expériences de DTS ont été menées. La figure 18 montre le schéma de principe du dispositif expérimental.



Figure 18: Dispositif expérimental de visualisation de l'écoulement dans le réceptacle de la cellule ohmique à jet de fluide. Extrait de [36]

Les expériences réalisées avec de l'eau ont confirmé le comportement correspondant à celui d'un réacteur parfaitement agité (cf. figure 19).



Figure 19: Courbes de DTS théoriques et expérimentales d'une solution d'eau dans le réceptacle de la cellule à jet ($h = 80 \text{ mm}; m = 200 \text{ kg}.h^{-1}$) **Extrait de [36]**

Dans le cas d'un fluide plus visqueux (Re<46), les recirculations observées ont été modélisées grâce au logiciel DTS. Afin de les décrire, un modèle simple (détaillé par **D. Schweich, Génie de la réaction chimique p. 168**) a été utilisé, il consiste à considérer le réceptacle de la cellule à jet comme un réacteur piston traduisant le retard (τ_p) en série avec une cascade de J₁ réacteurs parfaitement agités en série représentant le courant principal. A cette cascade, on ajoute une cascade de J₂ réacteurs parfaitement agités en série représentant la boucle de recirculation se produisant au sein du domaine d'écoulement (cf. figure 20).



Figure 20 : Structure du modèle proposé pour simuler les recirculations internes

Les paramètres de cette association de réacteurs (temps de séjour moyen dans chaque cascade et nombre de réacteurs de chaque zone du modèle) peuvent facilement être obtenus par ajustement avec les courbes expérimentales (cf. figure 21).



Figure 21 : Comparaison des signaux expérimental et théorique Extrait de [36]

Dans le cas traité, les paramètres du modèle de prédiction de la DTS dans le réceptacle de la cellule à jet sont les suivants :

 $\tau_p = 2 \text{ s}$: le temps de retard

 $\tau_1 = 1 \text{ s}$: le temps de séjour moyen dans la première cascade $\tau_2 = 2,4 \text{ s}$: le temps de séjour moyen dans la deuxième cascade $J_1 = 3$: le nombre de réacteurs agités continus dans la première zone $J_2 = 300$: le nombre de réacteurs agités continus dans la deuxième zone $R_{rec} = 0,75$: le taux de recyclage.

Ces résultats montrent que la modélisation d'expérience de distribution de temps de séjour permet de rendre compte de l'hydrodynamique du système « Jet de fluide + Réceptacle » aussi bien en régime turbulent qu'en régime de transition. Le changement de comportement en dessous d'un nombre de Reynolds critique a d'abord été mis en évidence par des expériences de visualisation. Des expériences de DTS ont permis de modéliser les recirculations observées par un modèle simple.

3.1.3 Etude de l'hydrodynamique d'un bio-réacteur bi-étagé à recirculation cellulaire (BBRC) par Distributions des Temps de Séjour et des Ages Internes

Au sein du LISBP, un bioréacteur biétagé avec recirculation cellulaire (BBRC) innovant a été développé afin d'étudier le comportement de Saccharomyces cerevisiae en conditions de hautes concentrations cellulaires. Ce bioprocédé a permis d'atteindre des productivités intéressantes en éthanol (41kg.m⁻³.h⁻¹) en combinant titre, rendement, viabilité et activité des microorganismes. La figure 22 montre le schéma de principe du dispositif expérimental étudié.



Figure 22 : Schéma de principe du BBRC Extrait de [13]

La caractéristique principale de ce dispositif est la complexité de son architecture hydrodynamique. En effet, plusieurs modes de fonctionnement sont possibles:

- fermé si $Q_{Feed} = 0$
- continu sans recirculation si Q₂₁ = 0
- continu avec recirculation si Q₂₁ différent de 0

L'architecture du procédé est résumée par la figure 23.


Figure 23 : Architecture du BBRC Extrait de [13]

Une identification hydrodynamique globale du BBRC (en conditions abiotiques) a été menée à travers l'étude de la distribution des temps de séjour (DTS) et des âges internes (DAI) suivant une méthodologie appropriée. En premier lieu, les expérimentations ont conduit à l'identification et la formulation analytique des fonctions de DTS et DAI en mode continu avec et sans recirculation. En second lieu, une approche systémique a permis d'identifier les paramètres des modèles supposés, d'en caractériser l'évolution dans les limites des conditions opératoires investiguées puis d'en valider la robustesse avec les expériences avec recirculation.

Pour la phase gaz, l'étude a démontré que les deux compartiments (R1 et R2) présentaient des comportements indépendants, et pouvaient être modélisés par une association en série d'un réacteur piston avec *j* CSTR et des paramètres constants (α , *j*) quelques soient les conditions opératoires étudiées.

Pour la phase liquide, le comportement hydrodynamique des 2 réacteurs peut être assimilé à celui d'un réacteur ouvert parfaitement agité. Ce résultat est du au niveau de turbulence très élevé imposé dans ces 2 réacteurs. Le comportement de type réacteur piston est observé pour le compartiment "perméat". L'identification paramétrique a été réalisée dans un premier temps en l'absence de recirculation. La robustesse du modèle obtenu a été validée en présence de recirculation.

Nous avons fait l'hypothèse que la phase solide était transportée par le liquide et totalement retenue par le procédé d'ultrafiltration. Les structures de modèle obtenues sont résumées par la figure 24.



Figure 24 : Réacteur modèle pour les phases gaz, liquide et solide dans le BBRC Extrait de [13]

Les valeurs obtenues sont récapitulées dans le tableau 2. Les conditions de turbulence pour les phases gaz et liquide sont également indiquées (le terme VVM est le taux d'aération).

		α[/]	j [/]	Re [/]	VVM [min ⁻¹]
Phase gaz	R1	0,09	1,51	36400 <re<sub>A-R1<46800</re<sub>	0,03 <vvm<sub>R1<0,58</vvm<sub>
	R2	0,15	1,45	20700 <re<sub>Boucle-R2<50100</re<sub>	0,05 <vvm<sub>R2<0,33</vvm<sub>
		<i>V</i> [L]	j [/]	Re [/]	<i>VVM</i> [min ⁻¹]
Phase	R1	4,22	1,009	36400 <re<sub>A-R1<46800</re<sub>	0,03 <vvm<sub>R1<0,58</vvm<sub>
liquide	R2	11,82	1,002	20700 <re<sub>Boucle-R2<50100</re<sub>	0,05 <vvm<sub>R2<0,33</vvm<sub>
	Perméat	0,74	piston	590 <re<sub>Perméat<980</re<sub>	-
		V[L]	J [/]	Re [/]	VVM [min ⁻¹]
Phase solide	R1	4,22	1,009	36400 <re<sub>A-R1<46800</re<sub>	0,03 <vvm<sub>R1<0,58</vvm<sub>
	R2	11,82	1,002	20700 <re<sub>Boucle-R2<50100</re<sub>	0,05 <vvm<sub>R2<0,33</vvm<sub>

Tableau 2: Paramètres identifiés pour chaque compartiment du BBRC et pour chaque phase et dans la gamme des conditions opératoires investiguées.

En résumé, la structure du modèle d'écoulement pour la phase liquide est directement liée à la géométrie du BBRC: R1 et R2 peuvent être considérés comme des réacteurs parfaitement agités.

3.2 Etude de l'hydrodynamique des cuves agitées

3.2.1 Simulation numérique de systèmes d'agitation

Dans un premier temps, des simulations avec un fluide visqueux newtonien (sirop de glucose: fluide n[°]1) et un fluide d'Otswald (gomme de guar: fluide n[°]2) ont été réalisées. Ces simulations numériques ont été réalisées dans le cas d'une cuve de géométrie standard de volume 21 litres équipée d'une turbine Rusthon (cf. figure 25**).**



Figure 25: Dispositif étudié pour la simulation numérique (extrait de [3])

La simulation numérique nous a permis d'obtenir les profils des viscosités locales pour le fluide rhéofluidifiant (fluide n²). Il app araît clairement que la viscosité apparente locale diminue fortement au voisinage de la turbine (z = 0, 1 m) dans le cas du fluide n² (cf. figure 26).



Figure 26: Influence du comportement rhéologique sur le profil de viscosité apparente (extrait de [3])

L'exploitation de ces mesures expérimentales et des simulations numériques associées a permis la détermination des facteurs de forme K_p et K_s de la turbine. Les valeurs obtenues étaient en accord avec la littérature (Nagata, 1975) Cette étude initiale sur une géométrie de base nous a permis de valider notre approche numérique **[3]**. L'étude a été poursuivie par le cas de fluides plus complexes tels que les fluides à seuils dans cette cuve de 21 litres **[4]**.

Puis, dans le cadre de notre contribution à la thèse de Guillaume Delaplace, la simulation d'écoulements générés par des mobiles de proximité (ancre puis ruban hélicoïdal) a été réalisée. La figure 27 montre le ruban étudié.



Figure 27: Photo du ruban étudié (extrait de [26])

Le système d'agitation étudié était caractérisé par les paramètres suivants:

- volume de la cuve : 35 litres.
- diamètre de cuve : 0,346 m
- diamètre du mobile : 0,32 m

Les simulations ont été réalisées pour un fluide Newtonien de viscosité égale à 1,76 Pa.s, $\rho = 1396 \text{ kg/m}^3$; D_m= 2,52 10⁻⁹ m²/s. La vitesse de rotation N a été fixée à 0,583 s⁻¹(sens de rotation anti-horaire). Le maillage (non structuré) réalisé était composé de 353573 cellules de forme tétraédrique. La version du code de calcul était FLUENT 5.0. Le volume de traceur a été fixé à 83 ml (0.24% du volume de fluide total). Les résultats numériques ont été validés par des mesures expérimentales de puissance mécanique consommée. Une fois le champ de vitesse validé, le suivi numérique du processus de mélange au cours du temps nous a permis de déterminer les valeurs du temps de mélange pour de degrés d'homogénéisation fixés.



Figure 28: Suivi numérique du processus de mélange (extrait de [26])

La figure 29 montre l'influence du taux d'homogénéisation sur la valeur du temps du mélange.



Figure 29: Influence du degré d'homogénéisation sur la valeur du temps de mélange (extrait de [26])

Ces travaux portant sur la simulation numérique ont fait l'objet de nombreux stages de fin d'étude d'élèves-ingénieurs (HEI ou autres formations). Ces élèves ont constamment eu un rôle d'interface au cours de cette collaboration. Ce mode de fonctionnement a permis la réalisation de travaux communs ([22], [23], [24], [26], [27], [28], [29]). Suite à ces travaux en mode isotherme, les problématiques de transfert thermique ont également été abordées par la suite dans ces systèmes d'agitation ([5], [25].

3.2.2 Etude de mélangeurs planétaires

Nous venons de voir que le fait d'accéder à des grandeurs locales est un axe de progrès très important. L'innovation technologique constitue un autre moyen permettant d'améliorer les procédés d'homogénéisation de produits visqueux. Dans ce contexte, l'équipe de Guillaume Delaplace été sollicitée pour évaluer l'homogénéité de traitement mécanique et l'efficacité d'un nouveau système d'agitation planétaire TRIAXE[®].

• Etude du champ de vitesses du Triaxe®

Ce mélangeur (plusieurs brevets déposés de la part de ses concepteurs) était particulièrement innovant d'un point de vue académique puisqu'il combinait 2 mouvements autour de 2 axes de rotation. L'axe de giration est vertical et celui de rotation incliné de 15 degrés par rapport à l'horizontale. De ce fait, les écoulements proposaient réellement d'autres voies que les agitateurs classiques pour parvenir à l'homogénéiser le milieu traité.





Un programme expérimental a été conduit afin d'obtenir la consommation de puissance de ce mélangeur planétaire particulier (généralement les planétaires ont des axes de révolutions parallèles entre eux). La simulation numérique de l'écoulement généré par ce mélangeur innovant a été réalisée dans le cadre du stage de fin d'études de Céline Fouquemberg (HEI 2004C) réalisé dans notre laboratoire (cf. figure 31).



Figure 31 : champ de vitesse généré par le TRIAXE® (extrait de [29])

Le mode de fonctionnement de ce type de mélangeur peut s'apparenter à une **zone parfaitement mélangée** (voisinage du mobile d'agitation) de volume $V_{mixed \ zone}$ se déplaçant à la vitesse de giration N_G au sein du volume à homogénéiser. Le volume V de la cuve a donc été décomposé en 2 zones.

$$V = V_{mixed \text{ zone}} + V_{adj}$$
 (13)

Le reste du volume V_{adj} est supposé de concentration constante égale à la valeur acquise à l'instant précédent. Ce principe de fonctionnement est résumé par la figure 32.



Figure 32 : Schéma de principe de la modélisation du mécanisme de mélange (extrait de [12])

Ce principe de fonctionnement se traduit par l'équation de procédé suivante:

$$C_{mixed \text{ zone}}(t + \Delta t) = \frac{(n_{mix} - 1)C_{mixed \text{ zone}}(t) + C_{adj}(t)}{n_{mix}}$$
(14)

Le volume de cette zone agitée mobile (n_{mix} volumes élémentaires) constitue le paramètre du modèle. Nous l'avons fait varier de façon à obtenir des profils théoriques en accord avec l'expérience. La figure 33 montre que ce modèle permet la simulation des profils expérimentaux de concentration.



Figure 33 : Comparaison des profils de concentration expérimentaux et simulés (extrait de [12])

Ce volume parfaitement agité ($V_{mixed zone}$) a été corrélé à la vitesse de rotation N_R. Une relation linéaire a été obtenue (cf. figure 34).



Figure 34 : Evolution du volume de la zone parfaitement agitée en fonction de la vitesse de rotation N_R (extrait de [12])

Cette relation, en accord avec le sens physique, permet de prédire le profil de concentration d'un traceur passif injecté à l'instant initial dans la cuve. On peut noter que pour $N_R = 0$, une valeur non nulle du volume de zone parfaitement agitée est obtenue, cette valeur traduit la contribution du mouvement de giration au processus d'homogénéisation en l'absence de rotation.

Courbe de puissance généralisée en phase liquide

D'un point de vue théorique, une réflexion a été menée sur la construction des invariants à bâtir pour être à même d'obtenir la **courbe de puissance** d'un mélangeur de ce type. A partir d'une analyse dimensionnelle avec des fluides Newtoniens, il a été établi que l'espace des nombres-pi de ce mélangeur planétaire se devait d'être élargi de 2 invariants supplémentaires par rapport à un système d'agitation conventionnel (c'est-à-dire constitué d'un mobile verticalement centré dans la cuve, réalisant un mouvement de révolution unique autour d'un axe de rotation vertical).



Figure 35: Paramètres géométriques et opératoires utilisés pour définir le mélangeur planétaire TRIAXE[®]. *Extrait de [7]*

$$F_1(P, D, d_s, \rho, \mu, N_R, N_G, T, H_L, C_b) = 0 \quad (15)$$

$$\Rightarrow \quad F_2\left(N_{p_G}, \operatorname{Re}_G, \frac{N_R}{N_G}, \frac{D}{d_s}, \frac{T}{d_s}, \frac{H_L}{d_s}, \frac{C_b}{d_s}\right) = 0 \quad (16)$$

avec

$$N_{p_{G}} = P / \rho \cdot N_{G}^{3} \cdot d_{s}^{5}$$
 (17)

$$\operatorname{Re}_{G} = \rho \cdot \operatorname{N}_{G} \cdot \operatorname{d}_{s}^{2} / \mu \quad (18)$$

et

Le premier de ces deux invariants est un ratio de dimensions caractéristiques: $\frac{D}{d_s}$

Le second est un ratio de vitesses (ici vitesse de rotation sur vitesse de giration): $\frac{N_R}{N_G}$

Ainsi, dans le cas d'une géométrie de mélangeur planétaire fixée, le ratio D/d_s est fixé. L'espace des nombre-pi traduisant la puissance consommée du système est donc composé de trois invariants. Les validations expérimentales ont confirmé l'analyse comme le montre la figure 36.



Figure 35: Courbe de puissance expérimentale dans l'espace $\left(N_{p_{G}}, \operatorname{Re}_{G}, \frac{N_{R}}{N_{G}}\right)$ obtenue pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®]. **Extrait de Delaplace et al. [2005]**

Par ailleurs, il a également été démontré que l'espace des nombres-pi caractérisant la consommation de puissance de ce mélangeur planétaire pouvait être réduit à (N_{p_m}, Re_m) si on introduisait une vitesse caractéristique u_{ch} en lieu et place des deux vitesses de révolution de l'agitateur dans la liste des paramètres physiques.

$$F_{3}(P, D, d_{s}, \rho, \mu, u_{\mu}, T, H_{\mu}, C_{b}) = 0$$
 (19)

$$\Rightarrow F_4\left(N_{p_m}, \operatorname{Re}_{m}, \frac{D}{d_s}, \frac{T}{d_s}, \frac{H_L}{d_s}, \frac{C_b}{d_s}\right) = 0 \quad (20)$$

avec

$$N_{p_{m}} = P/\rho \cdot u_{ch}^{3} \cdot d_{s}^{2} \quad (21)$$
et

$$Re_{m} = \rho \cdot u_{ch} \cdot d_{s}/\mu \quad (22)$$

Cette vitesse caractéristique u_{ch} introduite s'obtient à partir de la valeur maximale atteinte par la vitesse linéaire en bout de pale (*cf. figure 36*). Le calcul a été effectué en supposant les 2 axes perpendiculaires. Cette valeur maximale est facilement calculable à partir de l'expression de la vitesse instantanée d'un point situé en bout de pâle.

$$\|\vec{v}a\| = u_{impeller} \quad tip(t) = \sqrt{\frac{((D/2) \cdot 2\pi N_R)^2 + (2\pi N_G \cdot (d_s/2))^2 - 2 \cdot (D/2) \cdot 2\pi N_R \cdot 2\pi N_G \cdot (d_s/2) \cdot \sin(2\pi N_R t)}{+ (2\pi N_G (D/2))^2 \cdot \cos^2(2\pi N_R t)}}$$
(23)



Figure 36: Exemple d'évolution de la vitesse linéaire bout de pale engendrée par le TRIAXE[®] selon différents ratios $N_R \cdot d_s / (N_G \cdot D)$. **Extrait de [7]**

De ce fait, la vitesse caractéristique retenue u_{ch} est donnée par :

$$u_{ch} = \frac{u_{impeller \ tip}(t)}{\pi}$$
(24)

Remarque: On divise par π , pour préserver la cohérence avec le cas d'un mélangeur conventionnel de diamètre *d*. En effet, dans ce cas simple, la vitesse en bout de pale est constante égale π .*N*.*d* alors que l'expression de la vitesse caractéristique retenue a été *N*.*d* pour définir les nombres adimensionnels utilisés pour décrire cette opération unitaire.

On a donc, pour le Triaxe[®], les expressions suivantes:

$$u_{ch} = \sqrt{\left[N_R^2 + N_G^2\right]} \left[d_s^2 + D^2\right] \text{ si } N_R \cdot d_s / (N_G \cdot D) < 1 \quad (25)$$
$$u_{ch} = \left(N_R \cdot D + N_G \cdot d_s\right) \text{ si } N_R \cdot d_s / (N_G \cdot D) \ge 1 \quad (26)$$

Ainsi, dans le cas d'un mélangeur planétaire fixé, l'espace des nombre-pi traduisant la puissance consommée du système ne dépend que de deux invariants (N_{p_m}, Re_m) . La figure 37 représentant l'évolution de N_{pm} en fonction de Re_m confirme cette analyse.



Figure 37: Courbe de puissance expérimentale dans l'espace (N_{p_m}, Re_m) obtenue pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®]. **Extrait de Delaplace et al. [2005]**

• Courbe de mélange généralisée en phase liquide

Une démarche analogue pour obtenir la caractéristique de mélange de ce système planétaire a été réalisée **[7]**. En bâtissant un raisonnement analogue à ce qui avait été fait pour généraliser aux systèmes planétaires les caractéristiques de puissance nous avons établi :

i) que l'espace des nombres-pi traduisant les performances de mélange d'un planétaire donné se devait d'être élargi par rapport à un système d'agitation conventionnel pour tenir compte des 2 vitesses de révolutions N_R et N_G (cf. figure 38).



Figure 38: Courbe de mélange expérimentale dans l'espace $\left(N_G \cdot t_{m90\%}, \operatorname{Re}_G = \rho \cdot N_G \cdot d_s^2 / \mu, \frac{N_R}{N_G}\right)$ obtenue pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®] **Extrait de [7]**

ii) qu'il était cependant possible d'obtenir, pour un planétaire donné, un espace-pi contenant uniquement 2 invariants ($\Theta_{90\%m}$, Re_m) si on introduisait dans la liste des paramètres physiques une vitesse caractéristique unique u_{ch} à la place des 2 vitesses opératoires N_R et N_G . Dans ce cas le nombre de mélange vaut:

$$\Theta_{90\% m} = t_{m90\%} \cdot u_{ch} / d_s$$
 (27)

 u_{ch} et Re_m sont définis comme précédemment par les relations (24), (22). La figure 39 montre que l'on tend vers une "courbe unique" même si la tendance est moins nette que dans le cas des mesures de puissance.



Figure 39: Courbe de mélange expérimentale dans l'espace $(\Theta_{90\% m}, \operatorname{Re}_m)$ obtenue pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®] **Extrait de [7]**

Au final, ces études nous ont permis de définir des nombres de puissance, de Reynolds et de mélange adaptés à ce mélangeur. Ces nombres modifiés se réduisent au nombre "classique" (ie d'une cuve mécaniquement agité par un agitateur centré en rotation autour d'un axe vertical) quand l'un des deux mouvements (la rotation) est condamné ce qui prouve qu'ils sont une réelle extension de N_p , Re et $N.t_m$ à ce type d'équipement de mélange **[7]**. L'approche développée est suffisamment générique pour être **généralisable** à la caractérisation du fonctionnement (consommation de puissance, temps de mélange) de l'ensemble des mélangeurs combinant plusieurs mouvements. Notons cependant, que le terme θ_m ne correspond pas directement à un nombre de tours réalisés mais plus généralement à un **chemin effectué** par l'extrémité de la pale de l'agitateur.

• Extension de la démarche à la phase solide

La collaboration avec l'équipe d'Henri Berthiaux de l'Ecole des Mines d'Albi-Carmaux (EMAC) nous a permis de tester cette approche en présences d'un milieu granulaire (poudres à écoulement libre). Le dispositif d'agitation étudié était toujours le TRIAXE[®]. La base expérimentale de ce travail a été la thèse de Jean-François Demeyre (soutenue en 2007). Nous avons utilisé les résultats expérimentaux de la thèse (mesure de puissance et de temps de mélange). La principale difficulté de ce nouveau cas de figure est l'absence de définition du paramètre "viscosité" pour un milieu granulaire. Le nombre de Reynolds a donc été remplacé par le nombre de Froude *Fr*_G.

$$Fr_G = N_G^2 \cdot d_s / g \quad (28)$$

Les Figures 40 et 41 montrent respectivement les courbes de puissance ($N_{pG}=f(Fr_G, P_G)$

 N_R/N_G) et les courbes de mélange ($N_G.t_m = f(Fr_G, N_R/N_G)$ obtenues:





obtenue pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®]. Extrait de [15]



Figure 41: Courbe de mélange expérimentale dans l'espace $\left(\theta_{G} = N_{G} \cdot t_{m}, Fr_{G}, \frac{N_{R}}{N_{G}}\right)$ obtenue pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®] dans un milieu granulaire à écoulement libre. **Extrait de [15]**

L'introduction de la vitesse caractéristique u_{ch} permet la réduction du nombre de variables. L'expression de cette vitesse est identique à celle utilisée pour les travaux

précédents en phase liquide car il s'agit du même mélangeur. Comme dans le cas du mélange d'un milieu liquide visqueux, des courbes uniques sont obtenues (figures 42 et 43).



Figure 42: Courbe de puissance expérimentale dans l'espace (N_{p_m}, Fr_m) obtenue pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®] pour un milieu granulaire. **Extrait de [15]**



Figure 43: Courbe de mélange expérimentale dans l'espace $\left(\theta_m, Fr_m, \frac{N_R}{N_G}\right)$ obtenue

pour le mélangeur planétaire TRIAXE[®]. *Extrait de [15]*

Ces derniers résultats montrent bien qu'il est possible de représenter des résultats expérimentaux en milieu granulaire par ce type d'analyse dimensionnelle.

• Etude d'un système planétaire différent du Triaxe[®].

Plus récemment, nous avons étudié un autre mélangeur planétaire possédant 2 axes de rotations parallèles avec des sens de rotation opposés (figure 44).



Figure 44: Schéma de principe du mélangeur planétaire à axes parallèles étudié Extrait de [18]

L'analyse du mouvement d'un point situé à l'extrémité du mobile nous a permis de définir la vitesse caractéristique u_{ch} à introduire dans la définition des nombres adimensionnels. L'expression suivante a été obtenue:

$$u_{ch} = N_G d_G + |N_R - N_G| d_R$$
 (29)

Nous avons ainsi pu en déduire la courbe de puissance du mélangeur étudié en

représentant $N_{\mu m} = \frac{P}{\rho . u_{ch}^{3} . d_{G}^{2}}$ en fonction de $\operatorname{Re}_{m} = \frac{\rho . u_{ch} . d_{G}}{\mu}$ (figure 45).



Figure 45: Courbe de puissance dans l'espace $(\operatorname{Re}_m, N_{pM})$ du mélangeur planétaire à axes parallèles étudié **Extrait de [18]**

Il apparait que cette méthode est applicable quels que soient:

- La variable cible (puissance ou temps de mélange)
- La phase étudiée (liquide ou solide)
- Le type de composition de mouvement (axes de rotation perpendiculaires ou parallèles)

La conclusion importante de ces études du fonctionnement de mélangeurs planétaires est que le point clé est la connaissance de l'expression de la **vitesse instantanée en bout de pale**; il "suffit" d'étudier les variations de cette vitesse périphérique en fonction de temps, de déterminer la valeur maximale atteinte puis de diviser par π pour obtenir la vitesse caractéristique u_{ch} . La connaissance de u_{ch} et le choix d'une taille caractéristique permettent de définir les nombres adimensionnels régissant le procédé. En résumé, cette vitesse caractéristique u_{ch} gouverne le procédé.

3.2.3 Etude du transfert de matière solide-liquide en cuve agitée

a) Situation du contexte

Une condition importante pour atteindre une efficacité optimale au niveau de transfert de matière liquide-solide est la mise en suspension totale des particules solides dans le liquide. Cet état de suspension complète est obtenu, lorsque aucune particule ne reste plus, de manière stable, au fond de la cuve ou à la surface du liquide. Historiquement, la première corrélation pour la vitesse minimale de mise en suspension complète N_{is} est celle de Zwietering (1958) :

$$N_{js} = \left(\frac{S_Z}{D^{0.85}}\right) d_p^{0.2} \cdot \left(\frac{\mu}{\rho_L}\right)^{0.1} \cdot \left(\frac{g \cdot (\rho_S - \rho_L)}{\rho_L}\right)^{0.45} \cdot B^{0.13}$$
(30)

 s_Z est facteur de forme lié au type de mobile utilisé. Harnby et al. (1997) et Armenante et al. (1998) ont proposé des valeurs pour ce paramètre pour un grand nombre de géométries et d'agitateurs. B est la fraction massique du solide dans le liquide.

Selon un grand nombre d'auteurs Nienow (1975), Nienow et Miles (1978), Chaudhari (1980), Conti et Sicardi (1982)), l'impact de l'agitation a été quantifié à travers la valeur du coefficient de transfert k_L . De nombreuses corrélations ont été proposées afin de prédire k_L . D'un point de vue hydrodynamique, les variables importantes sont la vitesse relative entre le fluide et les particules solides et le taux de renouvellement du liquide à l'interface. Cette vitesse relative est variable en fonction de la position de la particule dans la cuve et donc difficile à estimer. Trois approches différentes existent. Ces approches se différencient par la façon de calculer cette vitesse relative caractéristique :

• Premièrement, Les relations de type « Froessling » ($Sh = 2 + B.Re_p^n.Sc^m$) développées par Nienow et Miles (1978), basées sur la théorie qu'une vitesse de chute libre d'une particule dans le fluide peut être utilisée comme vitesse relative caractéristique. L'hypothèse principale de cette théorie est que pour $N = N_{js}$, cette vitesse relative est de l'ordre de la vitesse de chute libre u_t

$$Sh = \frac{k_L . d}{D_{AB}} = 2 + 0.44. \operatorname{Re}_p^{0.5} . Sc^{0.38}$$
 (31)

Ce type de relation fait intervenir un nombre de Reynolds de particule Re_p.

$$\operatorname{Re}_{p} = \frac{\rho . u_{t} . d_{p}}{\mu} \quad (32)$$

• Deuxièmement, les relations qui s'appuient sur la théorie de turbulence de Kolmogoroff. Dans ce cas les fluctuations quadratique moyennes des vitesses sont reliées à la puissance massique moyenne. C'est pourquoi dans cette approche le nombre de Reynolds, fait intervenir ε la puissance massique dissipée par l'agitateur. Levins et Glastonbury (1972) ont développé ce type de relation :

$$Sh = \frac{k_L \cdot d}{D_{AB}} = 2 + 0.47 \cdot \text{Re'}_p^{0.62} \cdot Sc^{0.36} \cdot \left(\frac{D}{T}\right)^{0.17}$$
 (33)

avec

$$\operatorname{Re'}_{p} = \frac{\rho \cdot \left(\varepsilon\right)^{\frac{1}{3}} \left(d_{p}\right)^{\frac{4}{3}}}{\mu} \quad (34)$$

Cette relation repose sur l'isotropie de la turbulence. Cependant, cette hypothèse d'isotropie au niveau de la dissipation de la puissance dans la cuve est loin d'être vérifiée.

• Troisièmement, D'autres corrélations font intervenir le nombre de Reynolds d'agitation, considéré comme un bon indice des mouvements moyens. Barker et Treybal (1960) ont retenu cette option au niveau de l'analyse dimensionnelle.

$$Sh = \frac{k_L T}{D_{AB}} = 0,052. \operatorname{Re}_A^{0.83} . Sc^{0.5}$$
 (35)

b) Modélisation du profil de concentration

La valeur du coefficient de transfert k_L permet la modélisation du processus de transfert de matière liquide-solide. On considère la dissolution d'une masse m_0 de solide de solubilité C_{A_i} dans un volume V_L de solvant. Le débit massique de dissolution est donné par l'équation (36).

$$N_A \cdot A = -\frac{dm_A}{dt} = V_L \cdot \frac{dC_A}{dt}$$
(36)

Avec

$$N_A = k_L (C_{Ai} - C_A)$$
 (37)

D'où l'équation gouvernante suivante :

$$k_L \cdot A \cdot (C_{Ai} - C_A) = V_L \cdot \frac{dC_A}{dt}$$
(38)

La prise en compte de la réduction de la surface d'échange en fonction du temps est un point clé de la démarche de modélisation. Le mécanisme le plus simple est a été proposé par **Hixon et al. (1941).** Ce mécanisme repose de l'hypothèse d'une réduction de taille à forme constante.

$$A = A_0 \left(\frac{m_A}{m_0}\right)^{2/3} a vec \ m_A = m_0 - V_L \cdot C_A$$
(39)

La surface d'échange initiale A_0 s'exprime est fonction de la taille et de la forme des particules. Dans le cas de particules supposées sphériques.

$$A_{0} = \frac{6.m_{0}}{d_{p}.\rho_{s}}$$
 (40)

Ce modèle fait intervenir un coefficient de transfert k_L fonction des conditions hydrodynamiques (vitesse d'agitation *N*) et une solubilité de l'espèce C_{Ai} correspondant à la concentration maximale en phase liquide. Cette solubilité est fonction de l'espèce étudiée et de la température. L'intérêt de ce type de modèle est de clairement attribuer:

- l'impact des conditions hydrodynamiques (*N*, présence de chicanes) à
 l'évolution de la valeur du coefficient de transfert *k*_L
- l'impact des conditions thermodynamiques (température, pression) et la nature du solide à l'évolution de la solubilité C_{Ai}

Cependant, la difficulté majeure de ce type de modèle, est la prise de compte de l'évolution de la surface d'échange au cours du processus. L'hypothèse la plus simple est celle d'une réduction de taille à forme constante.

L'efficacité des processus d'homogénéisation d'une phase liquide monophasique est souvent caractérisée par un temps de mélange t_m pour un taux d'homogénéisation fixé. Une démarche analogue nous a permis de déterminer simplement un temps de

dissolution t_d à partir d'un profil de concentration expérimental pour un taux de dissolution X fixé **[14]** (cf. figure 46). Le taux de dissolution X est défini par le rapport entre la concentration C_A en phase liquide à l'instant t et la concentration finale correspondant à la dissolution totale du solide.



Figure 46 : Détermination de t_d pour X fixé (extrait de [14])

c) Approche expérimentale

Cette phase expérimentale a été scindée en 2 phases. Dans un premier temps, nous avons abordé l'étude de dissolution de produits minéraux. Dans un second temps, nous avons abordé le cœur de l'étude: le cas des poudres laitières.

• Dissolution de produits minéraux

Le modèle présenté a été testé dans le laboratoire pédagogique d'HEI. Ces travaux ont porté sur la dissolution de pastilles de soude (NaOH) de diamètre 2 mm dans des conditions diluées (concentration finale égale à 0,2 g/l) à température fixée à 20 °C. Ce choix d'un cas de figure à cinétique rapide (C_{Ai} = 1100 g/l) a été retenu pour insérer ces travaux dans le cadre d'une activité pédagogique. Nous avons utilisé une cuve agitée de volume 21 litres (30 cm de diamètre) équipée de 4 chicanes pour éviter la formation du vortex. Le mobile d'agitation utilisé était une turbine Ruston de diamètre égal à 10 cm. La vitesse d'agitation a été fixée entre 60 et 300 tours/min. La température du milieu agité était contrôlée (20°C). Le profil de concentration a été obtenu par conductivité électrique, il a été modélisé par les équations proposées par

Hixon et al. (1941). La figure 47 montre un exemple d'ajustement du profil théorique uniquement fonction de k_L pour $N = 2 \text{ s}^{-1}$.





La validité du modèle permet de quantifier l'impact des conditions hydrodynamiques sur le procédé de dissolution. Nous avons pu corréler l'évolution de la valeur de k_L en fonction des conditions hydrodynamiques **[14]** (vitesse d'agitation *N*, puissance volumique moyenne $\overline{\varepsilon}$). A titre d'exemple, La figure 48 montre l'évolution de k_L en fonction de *N* avec et sans chicanes.



Figure 48: Evolution de k_L en fonction de N (extrait de [14])
●: avec chicanes; ○: sans chicanes

Les résultats obtenus ont été comparés avec ceux de la littérature. Le principal élément de comparaison est l'exposant de la loi puissance $k_L = f(N)$. Selon Nienow (1997), la valeur de cet exposant n'est pas universelle mais variable entre 0 et 1,4. Elle est fonction de la position de la valeur de la vitesse d'agitation N par rapport à celle de mise en suspension N_{js} des particules. En effet, une valeur élevée de l'exposant (>0,7) est observée lorsque $N < N_{js}$. A l'opposé, un exposent plus faible est obtenu dans le cas de valeurs plus élevées de N ($N >> N_{js}$). La valeur de N_{js} dans nos conditions expérimentales est 5,3 s⁻¹. La valeur de l'exposant (0,82>0,7) est donc cohérente selon l'analyse de Nienow.

En appliquant la méthode de détermination de t_d expliquée par la figure 47, on obtient l'évolution de t_d en fonction de *N* (figure 49).



Figure 49: Evolution de t_d en fonction de N (extrait de [14])

Ces résultats peuvent être mis sous forme adimensionnelle en étudiant l'évolution du nombre de dissolution $N.t_d$ en fonction du nombre de Reynolds d'agitation Re_A . La signification physique du nombre de dissolution correspond à un nombre de tours effectués par le mobile d'agitation pour atteindre l'objectif.



Figure 50: Evolution de N.t_d en fonction de Re_A (extrait de [14])

Cette série d'expérience met en évidence une dépendance du nombre de dissolution vis-à-vis du nombre de Reynolds d'agitation Re_A . Ce résultat est à comparer avec un résultat bien connu pour des expériences de mesure de temps de mélange en phase liquide. Pour ce type d'expériences, il est classiquement observé, en régime turbulent (cf. Figure 51):



Figure 51: Allure de l'évolution de N.t_m en fonction de Re_A

En effet, l'exposant de la loi puissance est de l'ordre de 0,37 (cf. figure 50). Cette dépendance peut s'expliquer par la rapidité de la cinétique de dissolution étudiée. En

effet, pour des cinétiques aussi rapides, la durée initiale d'homogénéisation de la phase liquide n'est pas toujours négligeable par rapport au temps de dissolution. Cette hypothèse semble être confirmée par les résultats d'une étude réalisée une cinétique beaucoup plus lente (dissolution de l'acide benzoïque dans l'eau: $C_{Ai} = 3$ g/l et $d_p = 0,5$ mm). Au cours de cette étude, une dépendance beaucoup plus limitée traduite par un exposant beaucoup plus faible égal à 0,17 a été observée (cf. figure 52).



Figure 52: Evolution de $N.t_d$ en fonction de Re_A pour l'acide benzoïque (extrait de [14])

En résumé, cette phase expérimentale initiale nous a permis de vérifier que l'impact des conditions hydrodynamiques sur une loi cinétique de dissolution pouvait être caractérisé par 2 paramètres:

- Coefficient de transfert: $k_L = f(N)$
- Temps de dissolution t_d pour X fixé

Dissolution de poudres laitières

L'objectif de cette étude était de déterminer l'influence de la vitesse d'agitation sur le temps de réhydratation d'une poudre de caséine micellaire ($d_p = 60 \ \mu m$). Nous avons utilisé une cuve agitée de volume 3,5 litres (16 cm de diamètre) équipée d'une chicane pour éviter la formation du vortex. Le mobile d'agitation utilisé avait un diamètre égal à 8 cm (voir figure 53).



Figure 53: Dispositif expérimental de réhydratation. A: cuve en verre de 3,5 litres; B: mobile à 6 pales inclinées Extrait de [11]

La vitesse d'agitation a été fixée entre 400 et 1000 tours/min. La température du milieu agité était contrôlée (26 ou 30°C). L'influence de la concentration en solide (rapport massique) a également été étudiée (4,8;8 et 12 %). A l'instant initial, le solide est introduit dans le milieu liquide agité. La cinétique de dissolution a été suivie par **prélèvements puis analyses granulométriques [11]**.

Le modèle proposé par **Hixon et al. (1941)** n'a pu être appliqué avec succès aux poudres laitières. L'explication de cette difficulté est une plus grande complexité des mécanismes intervenant dans le processus de réhydratation des poudres laitières. Ce processus de réhydratation n'obéit pas à une logique de réduction de taille à forme constante.

En revanche, ce plan d'expériences a montré qu'il était possible de:

i) de suivre la dissolution des poudres en cuve agitée par prélèvements d'échantillons et analyses granulométriques.

ii) d'extraire à partir des courbes de suivi granulométrique, un temps de réhydratation t_r caractéristique pour un degré de réhydratation fixée.

Nous avons par la suite établi que ce temps de réhydratation est étroitement lié aux vitesses d'agitation utilisées. Notamment que le temps de réhydratation est

inversement proportionnel à la vitesse d'agitation. Ce qui se traduit par une relation de procédé (*cf. Figure 54*):

$N.t_r = constante$ (42)

Physiquement ceci signifie que lorsque, pour un système d'agitation et une température de milieu agité donnés, l'agitateur a effectué un nombre de tours fixé, on obtient toujours le même degré de réhydratation et ce quelle que soit la vitesse d'agitation utilisée [11]. Pour 4,8 et 8 %, un nombre de réhydratation égal à 255000 a été obtenu. Pour 12%, une valeur plus élevée égale à 373000 a été observée. Ce résultat confirme la tendance observée dans le cas de la dissolution des produits minéraux. En effet, plus la cinétique de dissolution est lente, moins la phase initiale d'homogénéisation de la phase liquide influe sur les résultats expérimentaux. Par conséquent, on retrouve bien un nombre de tours constant (en terme d'ordre de grandeur) ce qui constitue un résultat comparable à l'évolution de *N*.*t*_m en fonction de *Re*_A



Figure 54: Evolution de N.t_r en fonction de Re_A pour X=0,7

 $\bigstar: \phi = 4,8\%; \diamondsuit: \phi = 8\%; \blacktriangle: \phi = 12\%.$

L'intérêt majeur de ce paramètre est de permettre de quantifier simplement l'efficacité du système.

Pour cette raison, la notion de temps de réhydratation (t_r) et de nombre de réhydratation ($N.t_r$) constitue une alternative très intéressante même si la valeur de t_r ne dépend **pas que des conditions hydrodynamiques** mais également de la nature de la poudre laitière étudiée et de la température (**[11], [16]**)). Cette approche

nous a permis d'aborder des procédés de dissolution très différents en termes de cinétique de dissolution ou de réhydratation. Les 2 premiers (produits minéraux) présentaient un nombre de dissolution de l'ordre de 100 pour la soude et de 1000 pour l'acide benzoïque. Pour le dernier, on a observé un nombre de réhydratation de l'ordre de 100000.

4 Conclusions – Perspectives

La rédaction de ce manuscrit avait pour objectif de présenter ma contribution à la maîtrise des transferts dans les procédés agroalimentaires. J'ai pu progressivement étendre le champ d'application de mes recherches.

La mise en œuvre d'expériences de traçage nous a permis:

- De caractériser l'état du micromélange dans un réacteur agité continu par une méthode de mesure à hautes résolutions spatiale et temporelle.
- De quantifier l'homogénéité de traitement dans un échangeur de chaleur à tube à passage de courant par des expériences de Distributions des Temps de Séjour en la reliant directement à un paramètre (*a*) issu de la modélisation.
- De modéliser les recirculations internes observées dans une cellule à jet à partir d'un nombre de Reynolds critique.
- De modéliser le comportement l'hydrodynamique d'un bioprocédé bi-étagé à recyclage cellulaire par un modèle simple en accord avec la structure du procédé.

L'étude de l'hydrodynamique des cuves agitées nous a permis:

- D'obtenir le champ de vitesse généré par l'agitateur grâce à la simulation numérique et de valider les résultats via la comparaison des puissances numériques et expérimentales, de déterminer numériquement le temps de mélange pour un fluide visqueux newtonien agité par un ruban hélicoïdal.
- De proposer des définitions de nombres adimensionnels généralisés faisant appel à une vitesse caractéristique afin de rendre compte du fonctionnement de mélangeurs planétaires dans le cas de milieux visqueux ou granulaires.
- D'étudier l'influence des conditions hydrodynamiques sur les cinétiques de transfert de matière solide-liquide à travers l'évolution d'un coefficient de transfert (*k*_L) ou d'un nombre de dissolution (*N*.*t*_d).

L'objectif à court terme est de pérenniser l'activité partenariale avec:

- L'école des Mines d'Albi Carmaux sur la thématique "Mélange de poudres". Notre but est d'intégrer l'effet des propriétés des poudres cohésives dans notre analyse des résultats d'expériences de mélange de poudres par un mélangeur planétaire.

- Le LISBP [CNRS UMR5504, INRA UMR792, INSA] sur les travaux de modélisation de l'hydrodynamique de nouveaux systèmes faisant appel à des méthodes de traçage.

A plus long terme, mon objectif majeur est d'inscrire mes activités dans le projet de l'unité PIHM - UMET (Transferts et dynamique des interactions aux interfaces). Mes travaux seront recentrés sur le génie de l'hygiène et plus précisément sur la modélisation des mécanismes qui régissent les changements de structure, la formation et l'élimination des dépôts. La première étape de cette évolution est la participation à l'encadrement de la thèse de Marwa Khaldi. La thématique de cette thèse est d'aborder spécifiquement l'encrassement des produits laitiers. Elle vient poursuivre les travaux de Jérémie Petit effectués au Laboratoire PHIM. Le libellé du sujet est le suivant:

"Etude du lien entre la physico-chimie de dérivés laitiers et leur aptitude à l'encrassement lors du traitement thermomécanique en échangeur à plaques"

La stratégie sera de relayer les compétences liées au Génie Chimique présentes dans l'école HEI (cinétique réactionnelle) au sein de la structure PIHM-UMET. Cette stratégie permettra d'amener les étudiants HEI sur le projet sous formes de stages ou de thèses.

5. Références bibliographiques

Articles

K.J. Abe, M. Iguchi, Mixing time in cylindrical bath agitated by plunging jet, ISIJ International 42 (2002) 581-587.

A.S. Aldiguier, Activité bio-catalytique en haute densité cellulaire de Saccharomyces cerevisiae pour l'intensification de la production de bio-éthanol. PhD thesis n°820, INSA Toulouse, France (2006).

P. Aimar, G. Daufin, Séparations par membrane dans l'industrie alimentaire, F3250, In: Techniques de l'ingénieur (Eds), Traité agroalimentaire, (2004) 1-23.

P.M. Armenante, E.U. Nagamine; Effect of low off-bottom impeller clearance on minimum agitation speed for complete suspension of solids in stirred tanks; Chemical Engineering Science,44 (1989) 2781-2796.

M. Asraf-Snir, V.Gitis, Tracer studies with fluorescent-dyed microorganisms—A new method for determination of residence time in chlorination reactors. Chem. Eng. J. 166 (2011) 579–585.

J. J. Barker, R. E. Treybal, Mass transfer coefficients for solids suspended in agitated liquids, Aiche J., 6 (1960) 289

M.F. Ben Chaabane, A.S. Aldiguier, S. Alfenore, X. Cameleyre, P. Blanc, C. Bideaux, S.E. Guillouet, G. Roux, C. Molina-Jouve, Very high ethanol productivity in an innovative continuous two-stage bioreactor with cell recycle, Bioprocess and Biosystems Eng. J. 29 (2006) 49-57.

H. Benkhelifa, J. Legrand, P. Legentilhomme, A. Montillet, Study of the hydrodynamic behaviour of the batch and continuous torus reactor in laminar and turbulent flow regimes by means of tracer methods, Chem. Eng. Sci. 55 (2000) 1871-1882.

H. Berthiaux, Mélange et homogénéisation des solides divisés, Techniques de l'ingénieur (Lavoisier), (2002) J 3 397 (in french).

G. Boehm, Report on the industry blend uniformity practices survey. Pharmaceutical Technology, August (2001) 20-26

P. Bonvillani, M.P. Ferrari, E.M. Ducros, J.A. Orejas, Theoretical and experimental study of the effects of scale-up on mixing time for a stirred-tank bioreactor, Brazilian J. Chem. Eng. 23 (2006) 1-7.

C. Brazel, N. Peppas, European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics, 49 (2000) 47-58.

J. Bridgwater, Mixing of particles and powders: Where next? Particuology, 8 (2010) 563–567

F. Cabaret, L. Fradette, P.A. Tanguy, Characterization of macro-mixing kinetics using advanced image analysis. Proceeding of 12th European Conference on Mixing Bologna Italy. (2006) 391-398.

R. L. Carr, Evaluating flow properties of solids, Chem. Eng., 18 (1965) 163–168.

I. Capela, M.J. Bilé, F. Silva, H. Nadais, A. Prates, L. Arroja, Hydrodynamic behaviour of a full-scale anaerobic contact reactor using residence time distribution technique, J. Chem. Technol. Biotechnol. 84 (2009) 716-724.

C. Castelain, A. Mokrani, P. Legentilhomme, H. Peerhossaini, Residence time distribution in twisted pipe flows: helically coiled system and chaotic system, Exp. Fluids, 22 (1997) 359-368.

C. Castelain, P. Legentilhomme, Residence time distribution of a purely viscous non-Newtonian fluid in helically coiled or spatially chaotic flows, Chem. Eng. J., 120 (2006) 181-191.

C. Chagny, C. Castelain, H. Peerhossaini, Chaotic heat transfer for heat exchanger design and comparison with a regular regime for a large range of Reynolds numbers, Applied Thermal Engineering, 20 (2000) 1615-1648.

R.V. Chaudhari ; Three phase slurry reactors ; AIChE J., 26 (1980) 179.

Conti, Sicardi ; Mass transfer from freely suspended particles in stirred tanks ; Chem. Eng. Commun., 14 (1982) 91.

P. Costa, J.M. Sousa Lobo., Modeling and comparison of dissolution profiles, European Journal of Pharmaceutical Sciences, 13 (2001) 123–133

P.V. Danckwerts, Continuous flow systems. distribution of residence times. Chem. Eng. Sci. 2 (1953) 1-13.

B. Daumann, H. Nirschl, Assessment of the mixing efficiency of solid mixtures by means of image analysis, Powder Technol. 182 (2008) 415–423.

B. Daumann, A. Fath, H. Anlauf, H. Nirschl, Determination of the mixing time in a discontinuous powder mixer by using image analysis, Chem. Eng. Sci. 64 (2009) 2320-2331

G. Delaplace, L. Bouvier, A. Moreau, R. Guérin, J.C. Leuliet, Determination of mixing time by colourimetric diagnosis-application to a new mixing system, Exp. in Fluids, 36 (2004) 437-443.

G. Delaplace, R. Guérin, J.C. Leuliet, Dimensionnal analysis for planetary mixer: modified power and Reynolds numbers, AIChE J., 51 (2005) 3094-3100.

G. Delaplace, P. Coppenolle, J. Cheio, F. Ducept, Influence of whip speed ratios on the inclusion of air into a bakery foam produced with a planetary mixer device, J. of Food Eng. 108 (2012) 532–540

J-Y. Dieulot, N. Petit, P. Rouchon, G. Delaplace, An arrangement of ideal zones with shifting boundaries as away to model mixing processes in unsteady stirring

conditions in agitated vessels, Chemical Engineering Science, ; 60 (2005) 5544 – 5554.

Y. L. Ding, R.N. Forster, J.P.K. Seville, D.J. Parker, Scaling relationships for rotating drums, Chem. Eng. Sci., 56 (2001) 3737-3750.

A. Dokoumetzidis, P. Macheras, A century of dissolution research: from Noyes and Whitney to the biopharmaceutics classification system, Int. J. Pharmaceutics, 321 (2006) 1–11

S. Dutta, R. Chowdhury, P. Bhattacharya, Stability and response of bioreactor: an analysis with reference to microbial reduction of SO₂, Chem. Eng. J. 133 (2007) 343-354.

W. Entrop, Proc. European Conference on mixing in the Chemical and Allied Industries, Mons, Belgium, D1 (1978) 1–14.

L.T. Fang, R.H. Wang, On mixing indices, Powder Technol. 11 (1975) 27–32.L. T. Fan, Y. M. Chen, F. S. Lai, Recent developments in solids mixing, Powder Technol., 61(3) (1990) 255–287.

L. Fillaudeau, G. Delaplace, S. Lefebvre, J.C. Leuliet, F. Quenard F., in Proc. Of the 5th Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics (Eds. G.P. Celata, P.Di Marco, A. Goulas and A. Mariani), ISBN: 88-467-0459-2 (2001) II, 883-888.

J.H. Ham, B. Platzer, Semi-Empirical Equations for the Residence Time Distributions in Disperse Systems - Part 1: Continuous Phase, Chem. Eng. Technol. 27 (2004) 1172-1178.

M.T. Hardin, T. Howes, D.A. Mitchell, Residence time distribution of gas flowing through rotating drum bioreactors, Biotechnol. Bioeng. 74 (2001) 145-153.

N. Harnby, M. F. Edwards and A. W. Nienow (eds.), Mixing in the Process Industries, Buttetworths, London, (1992), 42-61.
J.L. Harion, B. Bertin, B. Bahadori, in Proc. of the 3rd European Thermal Sciences Conference (Editioni ETS), ISBN 88-467-0305-7 (2000) I, 331-335.

P. Harriot, Mass transfer to particles: Part I. Suspended in agitated tanks, Aiche Journal 8 (1962) 93

A.D. Harvey, S.E. Rogers, Steady and Unsteady Computation of impeller-stirred Reactors. AICHE Journal 42 (1996) 2701-2712.

H. Hausner, Friction conditions in a mass of metal powder, International Journal of Powder Metallurgy 3 (1967) 7–13.

R. Higbie, Institution of Chemical Engineers, The rate of absorption of a pure gas into a still liquid during short periods of exposure, 31 (1935) 365–389.

A.W. Hixon, G. A. Wilkens, Performance of Agitators in Liquid -Solid **Chem**ical Systems Ind. Eng. chem., 25 (11) (1933) 1196-1203.

A.W. Hixon, S.J. Baum ; Mass transfer coefficients in liquid-solid systems ; Industrial and Engineering Chemistry, 33 (1941) 478-485

T. Jongen, Characterization of batch mixers using numerical flow simulations. AIChE Journal, 46 (2000) 2140-2150.

T. Jongen, Characterization of batch mixers using numerical flow simulations, AIChE J., 46 (2000) 2140-2150.

J.B. Joshi, A.B. Pandit, M.M. Sharma, Mechanically agitated gas-liquid reactors. Chem. Eng. J. 37 (1982) 813-844.

M. Kaminoyama, K. Arai, M. Kamiwano, Numerical Analysis of power consumption and mixing time for a pseudoplastic liquid in geometrically similar stirred vessels with several kind of plate-type impellers. Journal of chemical engineering of Japan 27 (1994) 17-24 P. C. Knight, J. P. K. Seville, A. B. Wellm, T. Instone, Prediction of impeller torque in high shear powder mixers, Chem. Eng. Sci., 56 (2001) 4457–4471.

H. Kramers, G.M. Baars, W.H. Knoll, A comparative study on the rate of mixing in stirred tanks, Chem. Eng. Sci. 2 (1953) 25-42.

P. M. C. Lacey, Developments in the theory of particle mixing, J. Appl. Chem. 4 (1954) 257–268.

M. Landin, P. York, M. J. Cliff, R. C. Rowe, Scaleup of a pharmaceutical granulation in planetary mixers, Pharmaceutical Development and Technology, 4 (1999) 145-150.

J.P. Leclerc, C. Detrez, A. Bernard, D. Schweich, DTS : Un logiciel d'aide à l'élaboration de modèles d'écoulement dans les réacteurs, Revue de l'institut Francais du Pétrole, 50 (5) (1995) 641-654.

J.C. Leuliet, E. Brito De La Fuente, L. Choplin, Power Consumption With Helical Impellers Mixing Highly Viscous Newtonian, Shearthinning And Viscoelastic Fluids. Entropie 171 (1992) 53-58.

D. M. Levins, J. R. Glastonbury, Application of Kolmogoroff's theory to particle- liquid mass transfer in agitated vessels, Chem. Eng. Sci., 27 (1972) 537

W. Lin, C.E. Weinell, P.F.B. Hansen, K. Dam-Johansen, Hydrodynamics of commercial scale CFB boiler-study with radioactive tracer particles, Chem. Eng. Sci. 54 (1999) 5495-5506.

S. Massol-Chaudeur, H. Berthiaux, J. A. Dodds, The development of a static segregation test to evaluate the robustness of various types of powder mixtures. Transactions of the IChemE, Part C - Food & Bioproducts Processing, 81 (2003) 106-118

71

A.B. Metzner, R.E. Otto, Agitation of Non-Newtonian Fluids. AICHE Journal 3 (1957) 3 - 10.

X. Ni, N.E. Pereira, Parameters affecting fluid dispersion in a continuous oscillatory baffled tube, AIChE Journal 46 (2000) 37-45.

A.W. Nienow, On impeller and mixing effectiveness in the turbulent flow regime. Chem. Eng. Sci. 52 (1997) 2557-2565.

A.W. Nienow, Mixing in the process industries, seconde édition "The mixer as a reactor: liquid/solid systems" (1992) 394-411

A.W. Nienow, D. Miles ; The effect of impeller/tank configurations on fluid-particle mass transfert ; Chem. Eng. J., 15 (1978) 13.

A.W. Nienow; The effect of impeller/tank configurations on fluid-particle mass transfert : a comparison between theories and data ; Chem. Eng. J.,9 (1975) 153

A. Nishiwaki, I.J. Dunn, Analysis of two-stage fermentor with recycle for continuous ethanol production, Chem. Eng. Comm. 168 (1998) 207-227.

A. Nishiwaki, I.J. Dunn, Analysis of the performance of a two-stage fermentor with cell recycle for continuous ethanol production using different kinetic models, Biochem. Eng. J. 4 (1999) 37-44.

A.S. Noyes, W. Whitney, The rate of solution of solid substances in their own solutions, J. Am. Chem. Soc. 19 (1987) 930-934

D. Olivier, J. Valls, M.A. Gordillo, A. Freixo, A. Sanchez, Application of residence time distribuion technique to the study of the hydrodynamic behaviour of a full-scale wastexater treatment plant plug-flow bioreactor, J. Chem. Technol. Biotechnol. 80 (2005) 425-432.

J. M. Ottino, D. V. Khakhar, Fundamental research in heaping, mixing and segregation of granular materials: challenges and perspectives. Powder Technol., 121 (2001) 117-122

V. Papadopoulou, K. Kosmidis, M. Vlachou, P. Macheras, On the use of the Weibull function for the discernment of drugrelease mechanisms, Int. J. of Pharmaceutics, 309 (2006) 44–50

V.K. Pareek, Z. Yap, M.P. Brungs, A.A. Adesina, Particle residence time distribution (RTD) in three-phase annular bubble column reactor, Chem. Eng. J. 56 (2001) 6063-6071.

P. Perlot, F. Daujat, J. Mazellier, Fermentation alcoolique par bioreacteur à membrane: forte densité cellulaire, performances du procédé, Ind. Alim. Agr. 106 (1989) 855-860.

A. Pinheiro Torres, F.A.R. Oliviera, S.P. Fortuna, Residence time distribution of liquids in a continuous tubular thermal processing system. Part I : Relating RTD to processing conditions, *J. Food Eng.*, 35 (1998) 147-163.

M. Poux, P. Fayolle, J. Bertrand, D. Bridoux, J. Bousquet, Powder mixing: Some practical rules applied to agitated systems. Powder Technol., 68 (1991) 213–234

B. Puyuelo, T. Gea, A. Sánchez, A new control strategy for the composting process based on the oxygen uptake rate. Chem. Eng. J. 165 (2010) 161–169.

W.E. Ranz, W.R. Marshall, Evaporation from drops, Chem. Eng. Progr. 48 (1952) 141

A. Realpe, C. Velázquez, Image processing and analysis for determination of concentrations of powder mixtures. Powder Technol. 134 (2003) 193–200.

E. Roca, C. Ghommidh, J.M. Navarro, J.M. Lema, Hydraulic model of a gas-lift bioreactor with flocculating yeast, Bioprocess Eng. 12 (1995) 269-272.

73

W. Roetzel, F. Balzereit, Axial dispersion in shell-and-tube heat exchangers, *Int. J. Therm. Sci.*, 39 (2000) 1028-1038.

R. Rosal, A. Rodríguez, J. Antonio Perdigón-Melón, A. Petre, E. García-Calvo. Oxidation of dissolved organic matter in the effluent of a sewage treatment plant using ozone combined with hydrogen peroxide (O_3/H_2O_2). Chem. Eng. J. 149 (2009) 311–318.

M. Roustan, J.C. Pharamond, A. Liné, Agitation-Mélange Concept et theorie de base, In: Techniques de l'ingénieur (Eds), Traité Génie des Procédés, J3800, 2005, pp. 1-22.

M. Roustan, Agitation-Mélange Caractéristique des mobiles d'agitation. In: Techniques de l'ingénieur (Eds), Traité Génie des Procédés, J3802, 2005, pp.1-12.

M.F. Sancho, M.A. Rao, Residence time distribution in a holding tube, *J. Food Eng.*, 15 (1992) 1-19.

M. Sato, Y. Abe, K. Ishii, T. Yano, Power Requirement of Horizontal Ribbon Mixers, J. Soc. Powder Technol., Japan, 14 (1977) 441-447

M. Sato, K. Miyanami, T. Yano, Power Requirement of Horizontal Cylindrical Mixer, J. Soc. Powder Technol., Japan, 16 (1979) 3-7

R.K. Shah, A.L. London, *Laminar flow forced convection in ducts*. Ed. Irvine and Hartnett, Academic press, 1978.

D.E. Swaine, A.J. Daugulis, Liquid residence time distributions in immobilized cell bioreactors, Biotechnol. Bioeng. 33 (1989) 604-612.

D. Tang, A. Jess, X. Ren, B. Blümich, S. Stapf, Axial dispersion and wall effects in narrow fixed bed reactors – a comparative study based on RTD- and NMR-measurements, Chem. Eng.Technol. 27 (2004) 866-873.

P.A. Tanguy, F. Thibault, C. Dubois, A. Aït-Kadi. Mixing Hydrodynamics in a double planetary mixer. Transaction of Institution of Chemical Engineers, 77 (1999) 318-323.

P.A. Tanguy, F. Bertrand, R. Labrie, E. Brito De La Fuente, Numerical modelling of the mixing of viscoplastic slurries in a twin blade planetary mixer, Trans IChemE 74 Part A (1996) 499-504.

P.A. Tanguy, F. Thibault, C. Dubois, A. Aït-Kadi, Mixing Hydrodynamics in a double planetary mixer, Trans IChemE 77 Part A (1999) 318-323.

J. Thereska,. L'application des radiotraceurs dans les unités industrielles. Bilan et Perspectives. In: Récent Progrès en Génie des Procédés : traceurs et méthodes de traçage. Nancy. Ed. Lavoisier Tech et Doc., 12(1998). 1-7.

H. L. Toor, J. M. Marchello, Film-penetration model **for** mass and heat transfer, Aiche J., 4 (1958) 97-101.

V.W. Uhl, J.B. Gray Mixing Theory and Practice, Academic Press, New York, (1966).

B.Van Hasselt, H.P.A. Calis, S.T. Sie, C.M. van den Bleek, Gas- and liquid-phase residence time distribution in three-levels-of-porosity reactor, Chem. Eng. Sci. 54 (1999) 5047-5053.

Y. Wang, Sanly, M. Brannock, G. Leslie, Diagnosis of membrane bioreactor performance through residence time distribution measurements – a preliminary study, Desalination 236 (2009) 120-126.

J.C. Williams, The segregation of particulate materials - A review. Powder Technol., 15 (1976) 245-251

G. Zhou, P.A. Tanguy, C. Dubois, Power consumption in a double planetary mixer with non-Newtonian and viscoelastic material, Trans IChemE, 78 Part A (2000) 445-453.

75

T. N. Zwietering, Suspending of solid particles in liquid by agitators, Chem. Eng. Sci., 8 (1958) 244-253.

Thèses

M.F. Ben Chaabane, Intensification de la production d'éthanol biocarburant dans un bioréacteur bi-étagé avec recyclage cellulaire : modélisation et stratégie de conduite, PhD thesis n®31, INSA Toulouse, France (2006)

J.F. Demeyre, Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe, PhD Thesis report, Institut National Polytechnique de Toulouse, France (2007)

S. Lefebvre, PhD thesis, UTC, Compiegne, France, 1998.

J. Moureh, Approche numerique tridimensionnelle de l'agitation mécanique en régime turbulent." PhD thesis, INPT (1992).

• Ouvrages généraux

F. A. Holland; F. S. Chapman : Liquid mixing and processing in stirred tanks. Publisher: New York, Reinhold Pub. Corp (1966)

W.M. Lai, D. Rubin, E. Krempl, Introduction to Continuum Mechanics, third Edition, Pergamon Press, Oxford, England (1993).

O. Levenspiel, Non-ideal flow. In: Chemical Reaction Engineering. 3rd Ed. John Wiley & Sons Inc. 1999.

K. Miyanami, Mixing Powder Technology Handbook, Linoya – Gotoh – Higashitani Editors, (1991) 595-612

S. Nagata, Mixing - Principles and Applications, New York, John Wiley and Sons Inc., 1975

D. Schweich, Génie de la réaction chimique, Editions Tec et Doc ISBN 2-7430-0459-2, p.168.

A.H.P. Skelland Mixing and Agitation of Non-Newtonian Liquids, Handbook of fluids in Motion, Chapter 7, Nicholas P. Cheremisinoff edition, Ann Arbor Science, (1983) 179-209.

K. Van't Riet, J. Tramper, Basic bioreactor design. Ed. Marcel Dekker. N.Y, 1991

J. Villermaux, Génie de la réaction chimique : conception et fonctionnement des réacteurs. Ed. Tec & Doc Lavoisier, 1993.

M. Zlokarnik, Stirring: Theory and Practice, WILEY-VCH verlag GmbH, Weinheim, Germany (2001)

6. Liste des publications

Revues internationales avec comité de lecture

 Christophe André, René David, Jean-Claude André, Jacques Villermaux
 "A New Fluorescence Method for Measuring Cross-fluctuations of two Non-reactive Components in a Mixing Device"
 Chem. Eng. Technol. 15 (1992) 182- 185

2 Christophe André, René David

"Comparison of Single and Double Inert Tracer Fluctuation Measurements in a Continuous Stirred Tank"

J. Chem. Eng. Technol. 16 (1993) 234-237

3 Claude Torrez, Christophe André

"Power Consumption with Rushton Turbine mixing viscous newtonian and shearthinning fluids: comparison between experimental and numerical results obtained with the code Fluent"

Chem. Eng. Technol. 21 (1998) 599-604.

4 Claude Torrez, Christophe André "Simulation of a Rusthon turbine mixing yield stress fluids: Application of the Metzner-otto concept"

Chem. Eng. Technol. 22 (1999) 701-706

5 Guillaume Delaplace, Claude Torrez, Jean-Claude Leuliet, Nicolas Belaubre, Christophe André

"Experimental and CFD simulation of heat transfer to highly viscous fluids in an agitated vessel equipped with a non standard helical ribbon impeller" Trans IChemE, 79, Part A, (2001) 927-937.

6 Christophe André, Benjamin Boissier, Luc Fillaudeau

"Residence time distribution in tubular Joule Effect Heaters with and without geometric modifications",

J. Chem. Eng. Technol., 30 (2007) 33-40.

7 Guillaume Delaplace, Rajeev K Thakur, Laurent Bouvier, Christophe André, Claude Torrez.

"Dimensional analysis for planetary mixer: Mixing time and Reynolds numbers". Chemical Engineering and Science, 62, issue 5 (2007) 1442-1447.

8 Rajendra P. Chhabra, Laurent Bouvier, Guillaume Delaplace, Gérard Cuvelier, Sandra Domenek, Christophe André

"Determination of Mixing Times with Helical Ribbon Impeller for Non-Newtonian Viscous Fluids Using an Advanced Imaging Method."

J. Chem. Eng. Technol, 30, Issue 12, (2007) 1686-1691.

9 Guillaume Delaplace, Rajeev K. Thakur, Laurent Bouvier, Clémence Leprêtre, Caroline Ilnyzckyj, Christophe André, Christian Nouarc "Influence of rheological behaviour of purely viscous fluids on analytical residence time distribution in straight tubes" Chem. Eng. Technol., 31 (2008) 231-236.

10 Luc Fillaudeau , Kathy Le-Nguyen, Christophe André "Influence of flow regimes and heat power on residence time distribution in tubular joule effect heaters" Journal of Food Engineering., 45 (2009) 489-498

11 Romain Jeantet, Pierre Schuck, Thierry Six, Christophe André, Guillaume Delaplace

"The influence of stirring speed, temperature and solid concentration on the rehydration time of micellar casein powder"

Dairy Sci. Technol., 90 (2010) 225

12 Guillaume Delaplace, Laurent Bouvier, Anne Moreau, Christophe André "An Arrangement of Ideal Reactors as A Way to Model Homogenizing Processes with A Planetary Mixer" Aiche Journal, 57 (2011) 1678-1683

13 Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve, Luc Fillaudeau
"Hydrodynamic modeling and parametric study of a two-stage bioreactor with cell recycle for the intensive microbial production control under aerated conditions"

Chemical Engineering Journal 183 (2012) 222-230

14 Christophe André, Bruno Richard, Jean-François Le Page, Romain Jeantet, Guillaume Delaplace
"Influence of mixing system design and operating parameters on dissolution process"
Chem. Eng. Technol., 35 (2012) 247–254

15 Christophe André, Jean François Demeyre, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux, Guillaume Delaplace
"Dimensional analysis for planetary mixer homogenizing granular materials: Mixing time and Froude numbers"
Chemical Engineering Journal 198-199 (2012) 371–378

16 Bruno Richard, Jean François Le Page, Pierre Schuck, Christophe André, Romain Jeantet, Guillaume Delaplace

"Towards a better control of dairy powder rehydration process" International Dairy Journal 31 (2013) 18-28

17 Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve, Luc Fillaudeau
"Bioperformance interpretation of a two-stage membrane bioreactor with cell recycling for intensive microbial production using residence time and internal age distributions"
Process Biochemistry 48 (2013) 13–24

18 Frederic Auger, Guillaume Delaplace, Laurent Bouvier, Andreas Redl, Christophe André, Marie-Hélène Morel

"Hydrodynamic of a planetary mixer used for dough process: Influence of impeller speeds ratio on the power dissipated for Newtonian Fluids." Journal of Food Engineering 118 (2013) 350–357

Revues internationales avec comité de lecture (article soumis)

19 Christophe André, Jean François Demeyre, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux, Guillaume Delaplace

"Derivation of dimensionless relationships for the agitation of powders of different flow behaviour in a planetary mixer" soumis à Powder Technology.

Revues nationales avec comité de lecture

20 Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve, Luc Fillaudeau
"Modélisation hydrodynamique d'un réacteur bi-étagé avec recirculation cellulaire (BBRC) pour la maîtrise des prodictions microbiennes intensives "
Ind. Alim. Agr. (03-04) (2010) 10-20

Communications avec actes dans un congrès international

21 Christophe André, René David, Jacques Villermaux, Jean-Noel Gence
"Measurement of concentration fluctuations during mixing in a stirred tank and in a channel flow by laser induced fluorescence spectroscopy"
Proc. 7th European Conference on Mixing, Bruges, 1991, 43-50

22 Guillaume Delaplace, Claude Torrez, Christophe André, Jean Claude Leuliet, Luc Fillaudeau

CFD simulation of foodstuff flows in an agitated vessel

Proc. 1st International Conference on simulation in food and Bioindustries, edited by Daniel Thiel, Publication of the Society for Computer Simulation international, 2000, 179-186.

23 Guillaume Delaplace, Claude Torrez, Michel Gradeck, Jean Claude Leuliet, Christophe André

Flow of Newtonian and non-Newtonian fluids in an agitated vessel equipped with a non-standard anchor impeller

Proc. 10th European Conference on Mixing, Delft, The Netherlands, H.E.A. van den Akker and J.J. Derksen (editors) © 2000 Elsevier Science B.V., 2000, 321-328

24 Guillaume Delaplace, Claude Torrez, Christophe André, Nicolas Belaubre, Patrice Loisel

Numerical simulation of flow of Newtonian fluids in an agitated vessel equipped with a non standard helical ribbon impeller Proc. 10th European Conference on Mixing, Delft, The Netherlands, H.E.A. van den Akker and J.J. Derksen (editors) © 2000 Elsevier Science B.V., 2000, 289-296

25 Guillaume Delaplace, Claude Torrez, Jean Claude Leuliet, Nicolas Belaubre, Christophe André

Experimental and CFD simulation of heat transfer to highly viscous fluids in an agitated vessel equipped with a non standard helical ribbon impeller

Proc. International Symposium on Mixing in Industrial Processes - ISMIP4, EFCE event n°623, Toulouse, France, 14-16 May 2001, p.31 0-321.

26 Guillaume Delaplace, Claude Torrez, Jean Claude Leuliet, Christophe André Tracer experiments – a way to validate computational fluid dynamic simulations in an agitated vessel

Proc. First International Congress and Second French Congress on tracers and tracing methods, Nancy, 29-31 Mai 2001.

Récents Progrès en Génie des Procédés (ISBN 2-910239-53-5), 2001, vol 15, n79, p. 77-84.

27 Guillaume Delaplace, Romuald Guérin, Jean Claude Leuliet, Claude Torrez, Christophe André

Sliding mesh method to simulate flow of highly viscous fluid in stirred tank agitated with helical ribbon impeller,

Proc. 2nd International Conference On Simulation In Food And Bio Industries, Edited By Barry O'connor And Daniel Thiel, Publication of The Society For Computer Simulation International Printed In Ghent, Belgium 2002, 151-157.

28 Guillaume Delaplace, Romuald Guérin, Anne Moreau, Claude Torrez, Christophe André, Jean Claude Leuliet

Experimental and CFD study of power consumption with gate agitators – Effects Of Bottom Clearance and Scale Up. Presented In Foodsim 2004 June 16-18, Wageningen, The Netherlands and In The Proc. European Simulation And Modelling Conference, Paris 2004, 338-344.

29 Guillaume Delaplace, Claude Torrez, Christophe André, Céline Fouquemberg, Jean Claude Leuliet

Numerical simulation of flow of newtonian fluids in an agitated vessel equipped with a planetary mixer. International Symposium on Mixing In Industrial Processes – ISMIP5, Sevilla, Spain, 2004.

30 Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve , Luc Fillaudeau

"Liquid and gas residence time distribution in a two-stage bioreactor with cell recycle."

Tracers and Tracing methods, Tiradentes, Brazil, 26 November, 2008. (présentation orale).

31 Romain Jeantet, Pierre Schuck, Thierry Six, Christophe Andre, Guillaume Delaplace "Stirring speed, temperature and solid concentration influence on micellar casein powder rehydration time."

4th International Symposium on Spray Dried Dairy Products,15-17 avril 2009, Melbourne, Australie (presentation orale).

Communications avec actes dans un congrès national

32 Claude Torrez et Christophe André
"Utilisation du logiciel "D.T.S." à des fins pédagogiques : modélisation de l'hydrodynamique d'un lit fluidisé continu"
Récents Progrès en Génie des Procédés: Traceurs et Méthodes dev traçage (ISBN 2-910239-35-7), 1998, vol 12, n°61,p.249-254
(poster)

33 Christophe André, Benjamin Boissier, Luc Fillaudeau
"Modelling and measurement of residence time distribution in tubular Joule effect heaters with and without geometric modifications"
TRACER 4, Autrans/Grenoble, France, 2-5 October 2006. (poster).

34 Guillaume Delaplace, Laurent Bouvier, Anne Moreau, Christophe André"An arrangement of ideal reactors as a way to model homogenizing processes with a planetary mixer"

SFGP 2009, 14-16 octobre 2009, Marseille, France. (poster).

35 Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve, Luc Fillaudeau

"Using tracer experiments to identify hydrodynamic behaviour of a two-stage bioreactor with cell recycle."

SFGP 2009, 14-16 octobre 2009, Marseille, France. (poster).

36 Sami Ghnimi, Christophe André, I. Zaid, Jean-François Maingonnat, Guillaume Delaplace

"Etude des performances thermiques et hydrodynamiques d'une nouvelle cellule de chauffage ohmique à jet de fluide"

SFGP 2009, 14-16 octobre 2009, Marseille, France. (poster).

37 Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve, Luc Fillaudeau

"RTD/IAD parametric study of liquid and biomass phases in a two-stage bioreactor with cell recycle"

SFGP 2011, 29-30 novembre - 1 décembre 2011, Lille, France. (exposé).

Communications orale sans actes dans un congrès national ou international

38 Jean-François Le Page, Bruno Richard, Christophe André, Romain Jeantet, Guillaume Delaplace

"La granulomorphometrie : une nouvelle technique pour mieux comprendre les mécanismes de réhydratation de poudres de protéines laitières"

3 juin 2010, Université du Littoral Côte d'Opale (Dunkerque).

39 Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve, Luc Fillaudeau

Bioperformance interpretation of a two-stage bioreactor with cell recycle considering residence time and internal age distributions of biomass. Bioprotech International Conference on Bioproduction, BICB 2012, Sfax, Tunisia, 05-08 November 2012.

40 Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux, Christophe André, Guillaume Delaplace

"Characterizing the mixing efficiency of the planetary powder mixer Triaxe® through an extended power consumption study"

13th AIChE Annual Meeting "Global Challenges for Engineering a Sustainable Future" ,November 3-8, 2013, San Francisco (presentation orale).

Communications par affiche sans actes dans un congrès national ou international

41 Luc Fillaudeau, Joseph Korolczuk, Benjamin Boissier, Christophe André "Tubular Joule Effect Heater with and without geometric modifications: Investigation of flow regime and tube diameter impacts on Residence Time Distribution" EFFoST conference, Varsovie 27-29 oct 2004

42 Luc Fillaudeau, Alexis Detavernier, Benjamin Boissier, Christophe André
"Impact of processing conditions (flow regime, heating) on residence time distribution in tubular joule effect heaters"
IUFOST, 13th World Congress of Food Science and Technology "Food is Life", 17-21
Septembre 2006, Nantes, France, p.217-218.

43 Aishwary Dale, Bruno Richard, Jean-François Le Page, Guillaume Delaplace, Christophe André, Romain Jeantet
"Détermination de temps de mélange et de coefficient de transfert solide-liquide dans une cuve agitée"
JNOEJC, 18-19 Mars 2010, Lille

44 Alexis De Saint-Romain, Christophe André, Christel Pierlot"Détermination de facteurs de forme d'agitateurs de proximité en régime laminaire"JNOEJC, 18-19 Mars 2010, Lille

45 Christophe André, Bruno Richard, Jean-François Le Page, Romain Jeantet, Guillaume Delaplace

"Modélisation d'un processus de dissolution dans une cuve agitée"

SFGP 2011, 29-30 novembre - 1 décembre 2011, Lille, France.

46 Laurent Bouvier, Christophe André, Claude Torrez, Guillaume Delaplace
« Simulation Numérique de la Dénaturation des Protéines dans un Echangeur de Chaleur à Plaques »
SFGP 2011, 29-30 novembre - 1 décembre 2011, Lille, France.

47 Christophe André, Mathieu Cerf, Geoffroy Luez, Bruno Richard, Romain Jeantet, Guillaume Delaplace"Extrapolation d'un procédé de dissolution dans une cuve agitée"

SFGP 2013, 08-10 octobre 2013, Lyon, France.

7. Travaux Encadrés

Thèses soutenues

Bruno RICHARD

Thèse soutenue le 26/10/2012 (taux d'encadrement 30%) :

"Influence de la physico-chimie des poudres laitières et des conditions opératoires de dispersion sur la dynamique de réhydratation".

• Sami GHIMI

Thèse soutenue le 12/09/2008 (taux d'encadrement 20%) :

Cet encadrement s'est effectué suite à la mutation de Jean-François Maingonnat sous la coordination de Guillaume Delaplace.

"Etude des performances thermique et hydraulique d'une cellule à effet Joule direct avec Jet de fluide : Applications aux fluides visqueux et encrassants".

L'encadrement a porté plus précisément sur le Chapitre IIII : Etude des écoulements et champ de température générés par la cellule ohmique à jet non-encrassée. Les résultats de la modélisation ont donné lieu à une communication au congrès national SFGP 2009.

Thèse en cours

Marwa KHALDI

Thèse débutée le 1 novembre 2012 (taux d'encadrement 20 %)

"Etude du lien entre la physico-chimie de dérivés laitiers et leur aptitude à l'encrassement lors du traitement thermomécanique en échangeur à plaques"

Post-Doctorants

• Jean-Francois Le Page

Janvier 2010 à Décembre 2010 : Laboratoire PIHM INRA (taux d'encadrement 30%) Développement de la granulomorphométrie pour mieux comprendre les mécanismes de réhydratation de poudres de protéines laitières

• Lamia BEN GADIA

2007-2009 : INSA Toulouse (taux d'encadrement 30%)

Identification et modélisation hydrodynamique d'un réacteur bi-étagé avec recirculation cellulaire (BBRC) à travers la distribution des temps de séjour (DTS) des phases liquide, biomasse et gaz.

Romuald Guérin

Fév. 2005 à Déc. 2006 (taux d'encadrement 20%)

Influence du calcium et des paramètres du procédé sur la dénaturation des protéines laitières dans les échangeurs de chaleur à plaques- financement CEPIA-INRA

• Thakur Rajeev

Janvier 2005 jusqu'à Sept. 2007 (taux d'encadrement 20%)

Etudes d'inversions de phases d'émulsions agroalimentaires et leurs liens avec les conditions hydrodynamiques et physico-chimiques – financement CEPIA-INRA

Master 2

• Boissier Benjamin

Janvier à Juin 2003 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (Université de Technologie de Compiègne)

."Etude hydrodynamique (courbe de frottement, distribution des temps de séjour) d'un échangeur tubulaire à passage de courant avec et sans modifications géométriques"

• Lecompte Jean-Yves

Janvier-Septembre 2002 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (Université de Technologie de Compiègne)

"Chauffage par tube à passage de courant de fluides contenant de grosses particules : étude de la distribution cumulée en particules dans une section cylindrique circulaire."

• Legrand A.

Janvier-Septembre 2002 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (Université de Technologie de Compiègne)

"Traitement thermique en continu de fluides alimentaires complexes chargés en particules : application à la sauce Chili, mise au point d'un fluide modèle & étude de l'écoulement de la suspension"

• Beuf Morgane

Mars - Septembre 2000 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (Université de Technologie de Compiègne)

"Longueur d'établissement thermique dans un échangeur tubulaire à densité de flux constante"

• Lefebvre Sophie

Janvier à Juin 1995 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (Université de Technologie de Compiègne)

"Caractérisation de l'efficacité d'un échangeur de chaleur"

• Duquesnoy Jean-Alain

Janvier à Juin 1994 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (UTC)

" Etude de la distribution des temps de séjour dans un échangeur de chaleur"

• Delaplace Guillaume

Janvier à Juin 1994 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (UTC)

"Etude des pertes de charge et des cisaillements engendrés par l'écoulement de fluides alimentaires complexes (non-Newtoniens) à l'intérieur de conduites cylindriques de section particulière (triangulaire, carrée, rectangulaire, échangeur à plaques)."

• Fillaudeau Luc

Janvier à Juin 1994 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (UTC)

"Analyse du fonctionnement d'un stérilisateur en continu traitant des fluides contenant des grosses particules"

• Tarwacki Jacques

Janvier à Juin 1993 (taux d'encadrement 50%): DEA Option Génie des Procédés Industriels (UTC)

"Estimation de la température de mélange lors du chauffage de fluides visqueux en régime laminaire"

Master 1

• WILPOTE Pauline

Janvier à juin 2007 (taux d'encadrement 30%) : Master Sciences de la Matière

"Etude de la cinétique de réhydratation des poudres de lait"

• Six Thierry

Janvier à juin 2007 (taux d'encadrement 30%) : IUP QEPI

"Influence des coudes et de la longueur de la conduite tubulaire sur la DTS lors de l'écoulement de fluide newtoniens en régime laminaire".

Etudiants à l'international

• Dale Aishwary (IIT Bombay- Inde)

Mai à juillet 2009 (taux d'encadrement 70%) dans le cadre d'échange universitaire à l'international (niveau d'étude master 1)

"Influence of mixing system design and operating parameters on dissolution process"

• Le-Nguyen Kathy (Université d'Alberta – Canada)

Septembre à Décembre 2008 (taux d'encadrement 70%) dans le cadre d'échange universitaire à l'international (niveau d'étude master 1)

"Influence of flow regimes and heat power on residence time distribution in tubular joule effect heaters"

Stage de fin d'études HEI : Niveau Master 2 (durée: 3 mois)

Travail Etudes Recherche (TER)

Rigolet D. "Modélisation numérique de l'hydrodynamique dans les échangeurs de chaleur" HEI TER 2011

Richard T. "Simulation numérique des écoulements dans un échangeur de chaleur à plaques avec encrassement" HEI TER 2010

Villeneuve A. "Identification des performances thermiques et hydrauliques d'un échangeur à plaques" HEI TER 2009

Fossoux M. "Simulation numérique de l'écoulement et du transfert thermique par une double enveloppe d'un agitateur type turbine à pales inclinées sérigraphiées" HEI TER 2008

Debreu S. ,Mannechez L. "Influence des coudes et de la longueur de la conduite tubulaire sur la DTS lors de l'écoulement de fluide newtoniens." HEI TER 2007 Ilnyzckyj C. ,Lepretre C. "DTS des fluides non newtoniens en écoulement laminaire dans des conduites droites tubulaires isothermes." HEI TER 2007

Touach A. ,Vallez R. "Simulation du comportement d'un fluide newtonien dans les conduites tubulaires coudées. Modélisation de la distribution des temps de séjour" HEI TER 2006

Douay C. ,Gandouet A. " Influence des coudes et de la longueur de la conduite tubulaire sur la DTS lors de l'écoulement de fluide newtoniens" HEI TER 2006 Detavernier A. "Étude de la distribution des temps de séjour (DTS) dans des échangeurs tubulaires a passages de courant (TPC).Incidence de la chauffe sur l'homogénéité de traitement" HEI TER 2005

Fouquemberg C. "Simulation numérique de l'écoulement dans une cuve agitée par le triaxe" HEI TER 2004

Legros G. "Simulation numérique du transfert de chaleur dans une cuve agitée de 300 litres" HEI TER 2003

Flachez M. ,Decuyper B." Simulation numérique de l'écoulement dans une cuve agitée par un mobile de proximité" HEI TER 2003

Duminil L. ,Meyer L. "Mesure indirecte d'un champ de température dans les milieux polyphasiques" HEI TER 2002

Muller A. "Mesure du champ de vitesse en cuve agitée par les techniques PIV et PUV" HEI TER 2002

Delahaye C. ,Gaigher F."Simulation numérique et traçage de particules en cuve agitée" HEI TER 2002

Drouet F. ,Maureaux A. "Simulation numérique de traçage d'éléments de fluide en cuve agitée" HEI TER 2001

Laurioz A.C. ,Marot S. "simulation numérique de transfert de chaleur et traçage de particules pour de fluides newtoniens en cuve agitée" HEI TER 2001

Dupire A. ,Fort B. "Simulation numérique du transfert de chaleur de fluides newtoniens dans une cuve agitée" HEI TER 2000

Deman X., Pietrzak D. "Simulation numérique du transfert de chaleur de fluides newtoniens dans une cuve agitée" HEI TER 2000

Cossart O., Piccoli F. "Simulation numérique de l'agitation de fluides newtoniens ou non par un ruban hélicoïdal" HEI TER 1999

Dollet F., Feron T. "Caractérisation du micromélange par le système iodure-iodate dans un réacteur agité" HEI TER 1999

Gingreau J., Vanhersecke S. "Simulation numérique de l'agitation de fluides visqueux par mobiles de proximité" HEI TER 1997

Barré V., Guillerme C. "Etude et validation des résultats obtenus à l'aide du logiciel Fluent lors de la simulation de système d'agitation à mobile rotatif noyé" HEI TER 1996

Devries L. ,Petitprez A. "Etude de la consommation de puissance lors de l'agitation de fluides complexzes" HEI TER 1996

Gaillard P. ,Catteau F. "Agitation de fluides non-newtoniens : application du concept de Metzner et Otto à un fluide d'Otswald" HEI TER 1995

Bado L., Dreumont V. "Etude du temps de mélange et de la puissance consommée lors d'une opération d'agitation" HEI TER 1995

Magny M., Joos V. "Mesure du temps de mélange par méthode thermique" HEI TER 1994

Honvault T., Petit G. "Développement d'une méthode de mesure de temps de mélange en cuve agitée" HEI TER 1993

Stage d'initiation à la recherche HEI 4 : Niveau Master 1 (durée : 1 mois)

Cornillot T. ,Fournier A. "Analyse dimensionnelle d'un procédé de mélange de poudre par un agitateur planétaire", projet HEI 4 C juin 2012

Cerf M. ,Luez G. "Extrapolation d'un procédé de dissolution de pastilles de soude en cuve agitée", projet HEI 4 C juin 2012

Battault J. ,Moranta R. "Etude cinétique de la dissolution de pastilles de soude dans une cuve agitée", projet HEI 4 C juin 2009.

Cohen-Solal J. "Etude de la cinétique de la réhydratation du lait en poudre" Polytech Lille juin 2008

Becquart A. ,Dormieux E. , "Etude expérimentale de la dispersion des poudres de lait", projet HEI 4 C juin 2008.

Vial G. ,Lebec Q. "Comparaison du modèle DPF et du modèle PF + 2 CSTR sur les essais isothermes en l'absence de convolution" projet HEI 4 C juin 2008.

Olive M. ,Ammouial K. "Comparaison du modèle DPF et du modèle PF + 2 CSTR sur les essais à puissance de chauffe variable" projet HEI 4 C juin 2007.

Wengerow F. ,Lemille C. "Comparaison du modèle DPF et du modèle PF + 2 CSTR sur les essais isothermes" projet HEI 4 C juin 2006.

Rapports liés à des activités contractuelles de recherche

• Rapport de prestation de service dans le cadre du Contrat de Recherche «Réhydratation Poudre de Protéines Laitières » CNIEL-UMR STLO, INPL-ENSAIA-CEMAGREF, G. Delaplace, R. Jeantet, C. André, T. Six, P. Schuck, Diaporama : Maîtrise des temps de mise en œuvre des ingrédients en jouant sur les conditions de réhydratation des poudres, 53 pages, Fev.-dec. 2008.

• Rapport de l'ANR-05-NT03-3_42450 : "Interactions dynamiques entre les phénomènes biologiques et physiques pour la maitrise des performances des bioprocédés."

Action 4: Modélisation des phénomènes de transport – Modélisation hydrodynamique d'un réacteur bi-étagé avec recirculation cellulaire (BBRC) à travers la Distribution des Temps de Séjour (DTS) des phases gaz, liquide et biomasse.

L. Fillaudeau, L. Ben Gaida, T. Leroy, G. Chareix, C. André, 30 pages, 1/11/2005 – 30/10/2008

• Projet Régional ARCIR2 : « Influence des conditions d'écoulement, physicochimie et Propriétés d'interfaces sur l'adhésion/cohésion de dépôts alimentaire en paroi d'équipements » Compte rendu d'exécution – C. André, J. F. Lecrigny, A. Gucker, 01/09/2009-01/09/2012

8. Reproduction de 5 articles représensatifs du parcours scientifique

• Christophe André, Jean-François Demeyre, Cendrine Gatumel, Henri Berthiaux, Guillaume Delaplace

"Dimensional analysis for planetary mixer homogenizing granular materials: Mixing time and Froude numbers"

Chemical Engineering Journal 198-199 (2012) 371-378

Lamia Ben-Gaïda, Christophe André, Carine Bideaux, Sandrine Alfenore, Xavier Cameleyre, Carole Molina-Jouve, Luc Fillaudeau
"Hydrodynamic modeling and parametric study of a two-stage bioreactor with cell recycle for the intensive microbial production control under aerated conditions"
Chemical Engineering Journal 183 (2012) 222–230

• Christophe André, Bruno Richard, Jean-François Le Page, Romain Jeantet, Guillaume Delaplace

"Influence of mixing system design and operating parameters on dissolution process" Chem. Eng. Technol., 35 (2012) 247–254

• Christophe André, Benjamin Boissier, Luc Fillaudeau

"Residence time distribution in tubular Joule Effect Heaters with and without geometric modifications",

J. Chem. Eng. Technol., 30 (2007) 33-40.

• Claude Torrez, Christophe André

"Power Consumption with Rushton Turbine mixing viscous newtonian and shearthinning fluids: comparison between experimental and numerical results obtained with the code Fluent"

Chem. Eng. Technol. 21 (1998) 599-604.

Chemical Engineering Journal 198-199 (2012) 371-378

ELSEVIER

Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Chemical Engineering Journal

Chemical Engineering Journal

journal homepage: www.elsevier.com/locate/cej

Dimensional analysis of a planetary mixer for homogenizing of free flowing powders: Mixing time and power consumption

C. André ^{a,b,*}, J.F. Demeyre ^c, C. Gatumel ^c, H. Berthiaux ^c, G. Delaplace ^a

^a INRA, U.R. 638 Processus aux Interfaces et Hygiène des Matériaux, F-59651 Villeneuve d'Ascq, France ^b UC Lille, Hautes Etudes Ingénieurs (H.E.I.), Laboratoire de Génie des Procédés, 13 Rue de Toul, 59046 Lille, France ^c Université de Toulouse, Centre RAPSODEE, Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, Campus Jarlard, 81013 Albi Cedex 09, France

HIGHLIGHTS

► An innovative planetary mixer was used for homogenizing free flowing powders.

- Mixing times were determined using a method based on image processing.
- ▶ Dimensional analysis was validated by experimental results.
- ▶ Generalized power and mixing numbers were defined.
- $\triangleright \Theta_M$ represents the path to achieve an imposed degree of homogeneity.

ARTICLE INFO

Article history: Received 10 November 2011 Received in revised form 29 March 2012 Accepted 13 May 2012 Available online 1 June 2012

Keywords: Mixing time Power consumption Planetary mixer Free flowing powder Dimensional analysis

ABSTRACT

Powder mixing is crucial to the processing stages in many industries. However, there is still a paucity of information about the effects of process parameters on mixing efficiency. This paper investigates the homogenization of free flowing granular materials with a planetary mixer, TRIAXE[®], examining the effect of the ratio of impeller rotational speeds (N_R/N_G) on the mixing process.

First, a dimensional analysis carried out with mixing time and power consumption as target variables, established that both a Froude number and N_R/N_G controlled the process for the given free flowing powder mixture and planetary mixer.

A further theoretical approach also suggested that these two dimensionless ratios which control hydrodynamics can be reduced to a modified Froude number providing that the maximum linear velocity achieved (u_{ch}) by the planetary mixer is introduced, replacing the dual impeller rotational speeds (N_R and N_G).

Mixing time and power experiments validated the above hypothesis. Homogeneity tests performed in a granular media showed that the length of path achieved by the impeller governs the obtained mixing level.

Finally, this work reflected that (i) dimensional analysis was also well suited to model powder homogenization with a planetary mixer. (ii) A concise set of dimensionless numbers governing mixing phenomena can be deduced through the introduction of the maximum linear velocity as obtained in previous studies on gas/liquid and miscible liquids mixing processes.

© 2012 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Powder mixing is an important unit operation in a wide variety of industries involved in solids processing. The end-use properties of products of the pharmaceutical, food, plastics and fine chemicals industries, often depend on process history which includes thermal and mechanical actions of dry mixers and/or contact machines (e.g.

E-mail address: christophe.andre@hei.fr (C. André).

for encapsulation, agglomeration, etc.). These properties are usually determined through a formulation procedure involving costly evaluations of biological activities to determine the composition, dosage and form of a drug. Although constant efforts are devoted to this aspect, little is known about the manufacturing process itself which makes the study of mixing and mixtures a key subject for both academic and industrial product and process engineers [1–3].

Once a scale of scrutiny of a mixture is set, its homogeneity is usually defined on a statistical basis, considering samples of like size. In industrial practice, when n samples are considered, the

^{*} Corresponding author at: UC Lille, Hautes Etudes Ingénieurs (H.E.I.), Laboratoire de Génie des Procédés, 13 Rue de Toul, 59046 Lille, France.

^{1385-8947/\$ -} see front matter @ 2012 Elsevier B.V. All rights reserved. http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2012.05.069

Nomenclatur	e
-------------	---

C_b d_{p1} d_{p2} d_s D Fr	bottom clearance, m characteristic length, m diameter of powder 1, m diameter of powder 2, m diameter of horizontal part of planetary mixer, m diameter of turbine part, m Eroude number	$t_{m99\%}$ mixing time for $X_M = 0.99$, s T vessel diameter, m u_{ch} maximum tip speed of agitator, m s^{-1} $u_{impeller tip}$ impeller tip speed, m s^{-1} x massic composition of the powder X_M mixing index
F_{T_G} F_{T_M} F_{L}	Froude number Froude number based on gyrational speed of agitator generalized Froude number based on tip speed agitator height, m liquid height, m speed of agitator, s ⁻¹ gyrational speed of agitator, s ⁻¹ rotational speed of agitator, s ⁻¹ power number power number based on gyrational speed of agitator generalized power number based on tip speed power, W time, s mixing time, s	$ \begin{array}{ll} Greek \ letters \\ \mu & viscosity of viscous medium, Pa s \\ \rho & density of viscous medium, kg m^{-3} \\ \rho_1 & density of powder 1, kg m^{-3} \\ \rho_2 & density of powder 2, kg m^{-3} \\ \Theta & mixing time number \\ \Theta_G & modified mixing time number based on gyrational speed of agitator \\ \Theta_M & modified mixing time number based on the characteristic speed u_{ch} \sigma^2 & experimental value of the variance \\ \sigma_{\infty}^2 & minimum value of the variance \\ \sigma_{\infty}^2 & minimum value of the variance \end{array} $

homogeneity of a mixture is judged by comparing the coefficient of variation (CV) of the distribution of the sample composition of a key ingredient to a standard value. In the pharmaceutical industry, a mixture exhibiting a coefficient of variation greater than 6% is rejected as non-conform [4]. The variance σ^2 of the mixture can also be used. For batch operations, the dynamics of the mixing process are monitored by examining the changes of variance with time. Such a curve usually features a quick decrease in variance due to the efficiency of convection mechanisms in reducing the intensity of segregation at a macro scale, followed by a much slower decrease due to micro scale particle diffusion. This latter plateau region sometimes exhibits oscillations which are classically attributed to a competition in particle segregation. Mixing kinetics determine mixing time, the time corresponding to the smallest value of variance [5–8].

Different mixer geometries and agitation devices exist usually based on empirical methods [9]. The use of chemical engineering tools, such as correlations between dimensionless numbers, ought to be considered to improve knowledge on the mixing powder media [10]. However, the traditional method of dimensional analysis applied for liquids including a Reynolds number cannot be derived since no apparent viscosity can be introduced. As such, empirical correlations involving Froude number have often been used for many systems: generalities and correlations [11,12]. One may refer to the correlations of Sato et al. for a horizontal drum mixer [13] or a ribbon mixer [14], the relations of Entrop for a screw mixer [15]. Planetary mixers are often used to optimize mixing processes. Pioneer and more intensive works on non-conventional mixers have been conducted by Tanguy and co-workers. However, if we focus only on planetary mixers defined as combining dual revolution motion around two axes, the literature is still scarce [16-23]. Most of these works concern mixing of miscible fluids. Few of them deal with foaming fluids [24] or granular media [25].

For the investigated planetary mixer (the Triaxe system), Delaplace et al. [22,23] proposed a definition of power and mixing numbers when mixing viscous liquids. Originally built for operating with viscous fluids [21], this mixer has also shown its capability to achieve good mixtures of granular products [25]. However, currently, there is a lack of knowledge concerning dimensionless ratios controlling the mixing of granular materials with such a Triaxe system. The objectives of this work are twofold: (i) to perform dimensional analysis governing mixing time and power consumption in a planetary mixer for the case of granular materials, (ii) to validate this approach by experimental results obtained with a pilot-scale planetary mixer.

2. Theory

2.1. Dimensional analysis for conventional mixing in solid phase

An agitated vessel without baffles equipped with an impeller mounted vertically and centrally is schematically shown in Fig. 1.

For such a mixing system subjected to a gravity field, with a given stirrer type and under given installation conditions (vessel diameter, agitator height, bottom clearance and solid height, see Fig. 1), mixing time t_m depends on agitator diameter, material parameters of the medium (densities (ρ_1, ρ_2) , particle size (d_{p1}, d_{p2}) and solid/solid fraction (x)) and speed of the agitator:

$$F_1(t_m, d, T, H, C_b, \rho_1, \rho_2, d_{p1}, d_{p2}, x, N, g) = 0$$
(1)

Introducing $\Delta\rho=\rho_2-\rho_1,$ this list of relevant parameters can be rewritten as



Fig. 1. Classical geometric parameters and notations used for mixing vessel equipped with an impeller vertically and centrally mounted in a tank.

$$F_2(t_m, d, T, H, C_b, \rho_1, \Delta \rho, d_{p1}, d_{p2}, x, N, g) = 0$$
(2)

Taking (N, ρ_1, d) as reference parameters to form the π -terms, dimensional analysis considerably reduces the dependent variables as follows [26]:

$$F_3\left(\Theta, T/d, H/d, C_b/d, \frac{\Delta\rho}{\rho_1}, \frac{d_{p1}}{d}, \frac{d_{p2}}{d}, x, Fr\right) = 0$$
(3)

where $\Theta = N \cdot t_m$ is the so-called mixing time number or mixing number and $Fr = N^2 \cdot d/g$ is the Froude number. For a given mixing system (tank + agitator) and fixed position of the agitator in the vessel, geometrical ratios are constant. When the characteristics of the two powders (particle sizes, compositions, densities) are fixed, Eq. (3) is further reduced to a single dependence between Θ and Fr.

$$F_4(\Theta, Fr) = 0 \tag{4}$$

A similar analysis concerning the consumption of power, *P* as target variable, can be made and led to following equation:

$$F_5(N_p, Fr) = 0$$
(5)
where $N_p = \frac{P}{\rho_1 \cdot N^3 \cdot d^5}$ is the power number.

To sum up, both Θ and N_p are target ratios which are dependent only on the Froude number for a fixed mixer and given characteristics of the powder mixture. F_i (for *i* ranging from 3 to 5) are process relationships which linked target ratios to other π -terms governing transport phenomena.

2.2. Dimensional analysis of a planetary mixer in solid phase

Similar to the above case, the relevant dimensional parameters influencing the mixing time with the TRIAXE[®] system can be written as:

$$F_6(t_m, D, d_s, T, C_b, H_L, \rho_1, \Delta \rho, d_{p1}, d_{p2}, x, N_R, N_G, g) = 0$$
(6)

In Eq. (6), N_R and N_G are rotational and gyrational speeds respectively; D, T, C_b and d_s are the geometric parameters reported in Fig. 2. H_L refers to the powder height.

For fixed installation conditions, taking (N_G, ρ_1, d_s) as reference parameters to form the π -terms, this 14-parametric dimensional space leads to a power characteristic consisting of three pinumbers:

$$F_7\left(\Theta_G, Fr_G, \frac{N_R}{N_G}\right) = 0 \tag{7}$$

where $\Theta_G = N_G \cdot t_m$ and $Fr_G = N_G^2 \cdot d_s/g$.

A same analyse concerning the power *P* can be made.

$$F_8(P, D, d_s, T, C_b, H_L, \rho_1, \Delta \rho, d_{p1}, d_{p2}, x, N_R, N_G, g) = 0$$
(8)



Fig. 2. Sketch and symbols used for the TRIAXE[®] system investigated.

Taking (N_G , ρ_1 , d_s) as reference parameters to form the π -terms, power characteristic reduced to interdependence of the following 3-parametric pi-set:

$$F_9\left(N_{pG}, Fr_G, \frac{N_R}{N_G}\right) = 0$$
(9)
where $N_{pG} = \frac{P}{\rho_1 \cdot N_G^3 \cdot d_S^5}$.

Note that in Eqs. (7)–(9), the variables (N_G , ρ_1 , d_s) have been taken as reference parameters to form the π -terms. This choice allows, in the absence of rotational motion of the planetary mixer (i.e. $N_R = 0$), sets of π -numbers describing mixing time and power consumption to become similar to those commonly used with a classical mixing system (Fig. 3). This result was expected since, when $N_R = 0$, a planetary mixer runs like a traditional mixer.

It is of obvious importance to reduce the number of variables in the reference list to minimize the set of π numbers defining the transport phenomena. Consequently, it is of major importance to consider introducing into the reference list intermediate variables able to concisely take into account and replace the effect of other groups of variables. A characteristic velocity u_{ch} , characterizing the intensity of the flow due to the dual motion of the impeller, is such an intermediate quantity. This characteristic velocity can replace all the corresponding dimensional variables as shown below:

$$F_{10}(t_m, D, d_s, T, C_b, H_L, \rho_1, \Delta \rho, g, d_{p1}, d_{p2}, x, u_{ch}) = 0$$
(10)

Taking (u_{ch}, ρ_1, d_s) as reference parameters to form the π -terms allows us to reduce interdependence of the mixing characteristic to the following 2-parametric π set for fixed granular media and planetary mixer:

$$F_{11}(\Theta_M, Fr_M) = 0 \tag{11}$$

with $\Theta_M = t_m \cdot u_{ch}/d_s$ and $Fr_M = u_{ch}^2/(g \cdot d_s)$. A same analysis concerning the power P led to Eq. (12)

$$F_{11}(N_{pM}, Fr_M) = 0$$
(12)
where $N_{pM} = \frac{P}{\rho_1 \cdot u_{ch}^3 \cdot d_s^2}.$

It is not trivial to define which characteristic velocity should be taken as reference for a planetary mixer but its definition becomes logical if we keep in mind that the characteristic velocity used for a classical mixing system is $N_G \cdot d_s$.

For a classical mixing system, the impeller tip speed (m/s) is defined as $u_{\text{impeller tip}} = 2 \cdot \pi \cdot N_G \cdot d_s/2$. This impeller tip speed represents the average but also the maximum velocity (m/s) which could be achieved by an element of fluid in the tank. So, for a classical mixing system, the characteristic velocity $N_G \cdot d_s$ is nothing other than the impeller tip speed divided by π . Contrary to classical



Fig. 3. Analogies between the geometric parameters of the classical mixing system and the TRIAXE[®] planetary mixer when rotational speed is set to zero.

mixing systems, the instantaneous impeller tip speed $u_{\text{impeller tip}}(t)$ in an inert reference frame is not a constant value with time *t*. Nevertheless, it is possible to deduce from analytical expression of the impeller tip speed its maximum value which represents also the highest velocity that an element of fluid can reach: $\max(u_{\text{impeller tip}})$.

The only way to obtain a characteristic velocity having a similar physical meaning, as obtained with a classical mixing system, is to take the maximum velocity which could be encountered by the agitated media $\max(u_{\text{impeller tip}})$ and then to divide it by π .

$$u_{ch} = \max\left(u_{\text{impeller tip}}(t)\right)/\pi \tag{13}$$

This expression of $u_{\text{impeller tip}}(t)$ and its maximum $\max(u_{\text{impeller tip}}(t))$ have been established elsewhere [22]. The maximum value depends on the value of the ratio N_R/N_G . Its final expression is given by the following equations:

when
$$N_R \cdot d_s / N_G \cdot D < 1$$
: $u_{ch} = (N_R \cdot D + N_G \cdot d_s)$ (14)

when
$$N_R \cdot ds / N_G \cdot D < 1$$
: $u_{ch} = \sqrt{\left(N_R^2 + N_G^2\right) \cdot \left(d_s^2 + D^2\right)}$ (15)

To sum up, dimensional analysis of the TRIAXE[®] mixer for homogenizing granular materials in a fixed installation, led to either a relationship between three (Eqs. (7) and (9)) or two π numbers (Eqs. (11) and (12)). The latter was possible when the characteristic speed, proportional to the maximum impeller tip speed, was introduced into the parametric dimensional space. In addition, it has been shown that the π numbers reduced to wellknown Froude, mixing time and power numbers when the rotational speed is zero, which was expected since in this case a planetary mixer runs like a classical mixer.

3. Materials and methods

3.1. Mixing equipment

The mixer used in this work was a TRIAXE[®] system (TriaProcess, France) which combines two motions: gyration and rotation (cf. Fig. 4).

Gyration is the revolution of the agitator around a vertical axis while rotation is a revolution of the agitator around a nearly horizontal axis. This dual motion allows the agitator to sweep the entire volume of the vessel. The mixing element of the TRIAXE[®] system is a pitched four blade turbine and the axes of the two



Fig. 4. Diagram of the TRIAXE[®] system investigated ($d_s = 0.14$ m and D = 0.38 m).

revolutionary motions are nearly perpendicular driven by two variable speed motors. The mixing vessel is a stainless steel sphere, the blades of the agitator pass very close to the vessel wall in less than a millimeter. For all the experiments, the mass of powder was maintained to 33.35 kg. The overall power *P* was determined using torque and impeller speeds measurements. *P* refers to the net power. Net power is deduced from loaded power minus unloaded power (power monitored at the fixed impeller rotational speeds when no powder is present in the tank).

3.2. Particulate system involved

The solids used are free flowing powders (couscous and semolina). The true densities of the semolina and the couscous were measured with a Helium pycnometer (Accumulator Pyc 1330, Micromeritics). The packed densities were measured by a volumenometer. A powder mass is introduced into a graduated test-tube of 250 cm³ and the bulk volume is recorded after a certain number of standard taps (500 taps). We can note that the densities of the powders are similar (see Table 1). From these values, the Carr index (IC) to evaluate the flowability [27] as well as the Hausner ratio (HR) to evaluate the compressibility of the powder [28], were determined. It is widely admitted that free flowing powders have low IC (<18%) and low HR (<1.25). In contrast, cohesive, high compressive powders have high IC (>20%) and high HR (>1.4).

The particle size distribution of the couscous was obtained by sieving using a vibrating sieve Retsch[®] under defined conditions (mean amplitude and 3 min vibration). Sieving was performed using a standard set of sieves. The particle size distributions of semolina and mixtures of semolina and couscous were obtained by laser diffraction using a Mastersizer[®] particle size analyzer operating under its dry mode see Table 2: d_x is the particle diameter, for which x% of the particles distribution has a diameter smaller than this value.

3.3. Mixing operation and determination of mixing time

Only binary mixtures were considered. Couscous was stained with a mixture of iodine, betadine and ethanol, giving it a black color in order to be contrasted with semolina during image analysis. Semolina is light colored and smaller in size. These components were chosen because they could easily be re-used after sieving, and also to define experimental conditions favoring segregation which makes the homogenization process difficult. Optical methods were developed in order to determine mixing time in granular mixing processes [29-31]. In this study, a method based on image processing using a camera Lord DVL 5000 T was developed under Labview in order to determine the homogeneity level of the mixture at any given time of the batch process [24]. Since the granular medium consists of only two powders, a threshold was applied to each image in order to distinguish couscous from semolina. The ratio of black pixels to white led to the couscous proportion. A calibration curve was established to convert pixel proportion into mass composition (Fig. 5).

Table 1Densities and properties of the powders.

Density (kg l ⁻¹)	Semolina	Couscous	Couscous/semolina
True ^a	1.45	1.43	1.45
Aerated ^b	0.76	0.72	0.71
Packed (500 taps) ^b	0.82	0.76	0.96
Carr index	7.3%	5.3%	12.03%
Hausner ratio	1.08	1.06	1.14

^a Established with the Helium pycnometer.

^b Established with a volumenometer.

Table	2
-------	---

Characteristic particle diameters of semolina and cousce	ous.
--	------

_				
	Diameter (µm)	Semolina ^a	Couscous ^b	Couscous/semolina ^a
	<i>d</i> ₁₀	200	1100	266
	d ₅₀	340	1400	412
	d ₉₀	840	1800	1304
	$\text{Span} = (d_{90} - d_{10})/d_{50}$	1.88	0.5	2.52

Established with the laser particle-measurement instrument.

Established by sifting.







Fig. 6. Experimental set-up

The experimental set-up is shown in Fig. 6. Each experiment was performed according to the following procedure: (i) Fill the vessel with a known mass of each component:

7 kg of couscous and 26.35 kg of semolina. (ii) Introduce these

components manually, starting with the introduction of couscous.

(iii) Start the agitation at the speeds directly selected. (iv) Stop the mixer at a chosen time. (v) Empty the mixer to a conveyor passing under the image processing system. The composition of the mixture was chosen in order to optimize the precision of the image treatment according to the calibration curve behavior. The whole medium is thus analyzed, drastically reducing sampling errors. This protocol is summarized in Fig. 7.

For any given experimental condition, the variance σ^2 was obtained and plotted as a function of time. A mixing index X_M was defined [32-34].

$$X_M = \frac{\sigma_0^2 - \sigma^2}{\sigma_0^2 - \sigma_\infty^2} \tag{16}$$

 σ_0^2 corresponds to the initial state (total segregation), σ_0^2 is given by Eq. (17)

$$\sigma_0^2 = \mathbf{x} \cdot (1 - \mathbf{x}) \tag{17}$$

In Eq. (17), x represents the mass fraction of couscous in the mixture, σ_{∞}^2 is the minimum value of σ^2 in the kinetic curve. Mixing time $t_{m99\%}$ was determined when X_M achieved the value of 0.99, leading to a limit value of σ^2 , of 0.00207 (see Fig. 8).

Experiments were carried out for various ratios of gyration and rotation speeds. The ratios are represented as shown in the first column of Table 3. For example, G100R200 refers to a mixing process performed with a gyration and a rotation speed of 10% and 20% of full speed range.

4. Results and discussion

Mixing time and power measurements obtained for the TRI-AXE[®] system are shown in Table 3. The obtained mixing time was in between 52 and 367 s for different speed ratios. Increase in the speed of any one motion obviously decreased mixing time.

When mixing time is presented in terms of dimensionless numbers (Θ_G versus Fr_G) as defined in Eq. (9), Θ_G appears to be a constant for the range of Fr_G investigated varying only significantly with N_R/N_G . The range of Θ_G is between 1 and 22. (cf. Fig. 9).

 Θ_{C} represents the number of revolutions made around the vertical shaft required to obtain the desired homogeneity level. Results show that this number of revolutions is highly dependent on the intensity of N_R/N_G , which is the number of rotations around the horizontal axis made by the agitator during one gyrational revolution. High values of N_R/N_G mean that the volume of granular media contained in the vicinity of the blade is swept out by the rotational motion at high frequency. Consequently, good overall dispersion of the powders is obtained in a single revolution of the blade around the vertical shaft in the vessel. In Fig. 9, it can be observed that the gyration number Θ_G to achieve homogeneity is equal to 1, until N_R/N_G reaches a value of 26. It can be observed that a higher value of N_R/N_G (69 in Fig. 9) is not necessary and



Fig. 7. Diagram of the experimental protocol.



Fig. 8. Determination of mixing time t_m .

 Table 3

 Experimental conditions and experimental results.

Run names	$N_{G}(s^{-1})$	$N_R \left(s^{-1} \right)$	$t_{m}(s)$	P (W)
G200R50	0.069	0.114	309	31
G50R100	0.017	0.157	367	32
G300R75	0.104	0.171	125	46
G100R200	0.035	0.314	153	67
G800R75	0.276	0.273	80	83
G600R150	0.207	0.343	97	95
G50R300	0.017	0.451	81	102
G800R200	0.276	0.457	70	117
G200R400	0.069	0.629	132	143
G200R600	0.069	0.923	52	207
G400R600	0.138	0.964	62	224
G800R600	0.276	1.045	54	249
G50R800	0.017	1.187	67	270
G400R800	0.138	1.258	56	294

cannot improve mixing. Conversely, it is also shown in Fig. 9 that when the speed ratio is close to 1, the number of revolutions around the vertical shaft to achieve homogeneity becomes high, and equal to 22. In this case, the contribution of rotational motion in the homogeneity process is weak; only gyrational motion contributes to dispersion.

In contrast, it is shown in Fig. 10 that the use of modified Froude and mixing time numbers involving the characteristic speed u_{ch} , as suggested in Eq. (11), considerably reduces the influence of N_R/N_G on Θ_M values. Θ_M values were found between 89 and 240. The ratio between the minimum and maximum values is reduced to 2.7 (in Fig. 10) compared to 22 (in Fig. 9). This result proves the feasibility to obtain a unique mixing curve when u_{ch} , characterizing the overall flow, is introduced.

The fact that Θ_M is nearly constant agrees with the results obtained with classical or planetary mixing systems when mixing highly viscous fluids under laminar regime [23]. Θ_M can be considered as the length of path achieved by the impeller to obtained the desired level of homogeneity. This constant value proved that the degree of homogeneity in the planetary mixer, whatever the speed ratio, is controlled by this length of path made by the impeller.

Finally, as the average value of Θ_M was found to be 150, it can be deduced that mixing times of the planetary mixer are:

when
$$N_R \cdot d_s / N_G \cdot D < 1$$
: $t_m = \frac{150 \cdot d_s}{\sqrt{(N_R^2 + N_G^2) \cdot (d_s^2 + D^2)}}$ (18)

when
$$N_R \cdot d_s / N_G \cdot D > 1$$
: $t_m = \frac{150 \cdot d_s}{(N_R \cdot D + N_G \cdot d_s)}$ (19)

Of course, it cannot be ignored that the emptying operation could disturb the real homogeneity situation existing in the mixer. Nevertheless, the fact that mixing time data (measured after emptying) are still strongly dependent on the impeller rotational speed ratio (N_R/N_G) shows that the emptying is not in capacity to



Fig. 9. Evolution of Θ_G against Fr_G .



Fig. 11. Evolution of N_{pG} against Fr_G .

significantly modify the state of homogeneity induced by the mixing process. Additional pouring effect due to the emptying is consequently not the major operation causing particle transport.

Our major aim in this paper was to illustrate that u_{ch} is a key process parameter and consequently should be considered to analyse homogenization data with a planetary mixer. Analysis of



Fig. 12. Evolution of N_{pM} against Fr_G .

power consumption measurements, made before emptying, confirmed the predominant influence of this factor.

Fig. 11 shows the evolution of N_{pG} against Fr_G . Each symbol represents a different speed ratio. This figure proves that the speed ratio and the Froude number have a strong influence on the power consumption of the mixer. For a fixed value of the speed ratio, the exponent of the power law is equal to -1. This value is in agreement with the result obtained by Knight et al. [11].

Fig. 12 shows that all power consumption data can be gathered on a unique curve when u_{ch} is introduced.

This result ascertains, for another target variable, that u_{ch} governs the flow of powders. It can be noted that data for power consumption are less scattered than those obtained for the mixing time. This was expected since power measurements are more accurate than mixing time data (no disturbing effect of discharge procedure and associated evaluation).

5. Conclusions

This work provides guidelines to obtain a concise set of dimensionless numbers governing power and mixing time for a planetary mixer homogenizing granular media. Modified Froude, power and mixing time numbers for a planetary mixer were developed in the case of the mixing of free-flowing granular materials. These modified dimensionless numbers proposed are a generalization of the well-known mixing and power numbers used to describe a conventional mixer.

This study tends to prove (i) the powerful application field of dimensional analysis, (ii) that boundaries should not be considered between granular (free flowing powder) and fluid media, even if, of course, viscosity cannot be considered in the granular medium.

Indeed, it illustrates here that u_{ch} governs also transport phenomena involving granular media as obtained with other mixing processes involving gas/liquid [23] and miscible viscous liquids [22–23] with planetary mixers.

In future work, we will study mixtures consisting of cohesive powders, for which inter-particle forces are dominating particle motion. It is expected that such systems may exhibit different behavior while operated in such a mixer.

References

- [1] N. Harnby, M.F. Edwards, A.W. Nienow (Eds.), Mixing in the Process Industries, Buttetworths, London, 1985. p. 42-61.
- [2] M. Poux, P. Fayolle, J. Bertrand, D. Bridoux, J. Bousquet, Powder mixing: some practical rules applied to agitated systems, Powder Technol. 68 (1991) 213-234.
- [3] J. Bridgwater, Mixing of particles and powders: where next?, Particuology 8 (2010) 563-567
- [4] G. Boehm, Report on the industry blend uniformity practices survey, Pharm. Technol. August (2001) 20-26
- [5] A. Rosato, K.J. Strandburg, F. Prinz, R.H. Swendsen, Why the Brazil nuts are on top: size segregation of particulate matter by shaking, Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 1038-1051.

- [6] J.M. Ottino, D.V. Khakhar, Fundamental research in heaping, mixing and segregation of granular materials: challenges and perspectives, Powder Technol. 121 (2001) 117–122.
- [7] J.C. Williams, The segregation of particulate materials a review, Powder Technol. 15 (1976) 245-251.
- [8] S. Massol-Chaudeur, H. Berthiaux, J.A. Dodds, The development of a static segregation test to evaluate the robustness of various types of powder mixtures, Trans. IChemE, Part C - Food Bioprod. Process. 81 (2003) 106-118. [9] L.T. Fan, Y.M. Chen, F.S. Lai, Recent developments in solids mixing, Powder
- Technol. 61 (3) (1990) 255-287. [10] Y.L. Ding, R.N. Forster, J.P.K. Seville, D.J. Parker, Scaling relationships for
- rotating drums, Chem. Eng. Sci. 56 (2001) 3737-3750. [11] P.C. Knight, J.P.K. Seville, A.B. Wellm, T. Instone, Prediction of impeller torque
- in high shear powder mixers, Chem. Eng. Sci. 56 (2001) 4457-4471
- [12] K. Miyanami, Mixing, in: K. Linoya, K. Gotoh, K. Higashitani (Eds.), Powder Technology Handbook, Marcel Dekker, New York, 1991, pp. 595–612. [13] M. Sato, Y. Abe, K. Ishii, T. Yano, Power requirement of horizontal ribbon
- mixers, J. Soc. Powder. Technol. Jpn. 14 (1977) 441-447. [14] M. Sato, K. Miyanami, T. Yano, Power requirement of horizontal cylindrical
- mixer, J. Soc. Powder. Technol. Jpn. 16 (1979) 3-7.
- [15] W. Entrop, in: Proc. European Conference On Mixing in the Chemical and Allied Industries, vol. D1, Mons, Belgium, 1978, pp. 1–14. [16] P.A. Tanguy, F. Bertrand, R. Labrie, E. Brito De La Fuente, Numerical modelling
- of the mixing of viscoplastic slurries in a twin blade planetary mixer, Trans. IChemE 74 (Part A) (1996) 499-504. [17] P.A. Tanguy, F. Thibault, C. Dubois, A. Aït-Kadi, Mixing Hydrodynamics in a
- double planetary mixer, Trans. IChemE 77 (Part A) (1999) 318–323.
 [18] M. Landin, P. York, M.J. Cliff, R.C. Rowe, Scaleup of a pharmaceutical granulation in planetary mixers, Pharm. Develop. Technol. 4 (1999) 145–150.
- [19] G. Zhou, P.A. Tanguy, C. Dubois, Power consumption in a double planetary mixer with non-Newtonian and viscoelastic material, Trans. IChemE 78 (Part A) (2000) 445-453.
- [20] T. Jongen, Characterization of batch mixers using numerical flow simulations, AIChE I. 46 (2000) 2140-2150.
- [21] G. Delaplace, L. Bouvier, A. Moreau, R. Guérin, J.C. Leuliet, Determination of mixing time by colourimetric diagnosis-application to a new mixing system, Exp. Fluids 36 (2004) 437-443.
- [22] G. Delaplace, R. Guérin, J.C. Leuliet, Dimensionnal analysis for planetary mixer: modified power and Reynolds numbers, AIChE J. 51 (2005) 3094-3100.
- [23] G. Delaplace, R.K. Thakur, L. Bouvier, C. André, C. Torrez, Dimensional analysis for planetary mixer: mixing time and Reynolds numbers, Chem. Eng. Sci. 62 (2007) 1442-1447.
- [24] G. Delaplace, P. Coppenolle, J. Cheio, F. Ducept, Influence of whip speed ratios on the inclusion of air into a bakery foam produced with a planetary mixer device, J. Food Eng. 108 (2012) 532-540.
- [25] J.F. Demeyre, Caractérisation de l'homogénéité de mélange de poudres et de l'agitation en mélangeur Triaxe, PhD Thesis Report, Institut National Polytechnique de Toulouse, France, 2007.
- [26] M. Zlokarnik, Stirring: Theory and Practice, WILEY-VCH verlag GmbH, Weinheim, Germany, 2001.
- [27] H. Hausner, Friction conditions in a mass of metal powder, Int J Powder Metall 3 (1967) 7-13
- [28] R.L. Carr, Evaluating flow properties of solids, Chem. Eng. 18 (1965) 163-168.
- [29] B. Daumann, H. Nirschl, Assessment of the mixing efficiency of solid mixtures
- by means of image analysis, Powder Technol. 182 (2008) 415-423. [30] A. Realpe, C. Velázquez, Image processing and analysis for determination of
- concentrations of powder mixtures, Powder Technol. 134 (2003) 193-200. [31] B. Daumann, A. Fath, H. Anlauf, H. Nirschl, Determination of the mixing time in a discontinuous powder mixer by using image analysis, Chem. Eng. Sci. 64 (2009) 2320-2331.
- [32] P.M.C. Lacey, Developments in the theory of particle mixing, J. Appl. Chem. 4 (1954) 257-268.
- [33] L.T. Fang, R.H. Wang, On mixing indices, Powder Technol. 11 (1975) 27-32.
- [34] H. Berthiaux, Mélange et homogénéisation des solides divisés, in: Techniques de l'ingénieur, Traité Génie des Procédés, J 3397, 2002, pp. 1-20.
Contents lists available at SciVerse ScienceDirect



Chemical Engineering Journal

Chemical Engineering Journal

journal homepage: www.elsevier.com/locate/cej

Modelling of hydrodynamic behaviour of a two-stage bioreactor with cell recycling dedicated to intensive microbial production

Lamia Ben Gaida^{e, f}, Christophe Andre^{d,*}, Carine Bideaux^{a,b,c}, Sandrine Alfenore^{a,b,c}, Xavier Cameleyre^{a,b,c}, Carole Molina-Jouve^{a,b,c}, Luc Fillaudeau^{a,b,c}

^a Université de Toulouse; INSA, UPS, INP; LISBP, 135 Avenue de Rangueil, F-31077 Toulouse, France

^b INRA, UMR792 Ingénierie des Systèmes Biologiques et des Procédés, F-31400 Toulouse, France

^c CNRS, UMR5504, F-31400 Toulouse, France

^d UC Lille, HEI, Laboratoire de Génie des Procédés, 13 rue de Toul, F-59046 Lille, France

^e Institut Supérieur de Biologie Appliquée de Médenine; Route El Jorf - 4119 Médenine, Tunisia

^f Laboratoire d'Ecologie et de Technologie Microbienne; Institut National des Sciences Appliquées et de Technologie de Tunis, Université de Carthage, Centre Urbain Nord BP 676, 1080 Tunis, Tunisia

ARTICLE INFO

Article history: Received 20 May 2011 Received in revised form 5 December 2011 Accepted 14 December 2011

Keywords: Modelling Hydrodynamic Bioreactor RTD Polyphasic medium

ABSTRACT

An innovative two-stage continuous bioreactor with cell recycle (TSCB) previously allowed us to reach very high ethanol productivity ($41 \text{ kg m}^{-3} \text{ h}^{-1}$) with the yeast *Saccharomyces cerevisiae* under high cell densities (~100 gCDW/L) suitable for industrial transposition. Nevertheless, bioreactor performances and complex interactions between hydrodynamics (gas, liquid and solid phases) and biological activity (viability, conversion yield, ethanol stress) need to be investigated.

In this work, an overall TSCB hydrodynamic identification (under abiotic conditions) was carried out by using residence time (RTD) and internal age (IAD) distribution studies, according to a suitable methodology.

First, experiments led to identify and formulate the analytical RTD and IAD functions in continuous mode with and without recycling. Mixing time experiments were carried out in order to characterize batch mode for the liquid phase. Secondly, a systemic approach was used to identify the model parameters and characterize their evolution within the investigated operating conditions, and then to corroborate the reliability of the model by considering the experiments with recycling. For the gas phase, it was shown that each stage (R1 and R2) exhibited independent behaviour and could be modelled as a plug-flow reactor associated to *j* Continuous Stirred Tank Reactor, CSTR in series; the values of the model parameters (α , *j*) remained constant within the investigated operating range (VVM, Re and Re_A). For the liquid phase, the hydrodynamic behaviour of R1 and R2 could be represented by CSTR behaviour. A plug-flow reactor is thus proposed to describe the permeate compartment behaviour.

© 2011 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The application of three phase reactors (solid, liquid and gas) in a wide variety of chemical processing operations is well established, such as the production of fine chemicals, wastewater treatment and biotechnological processes. For these last cases, increasing cell density in bioreactors is useful to improve overall productivity of continuous mode processes particularly for bio-ethanol production which has to be competitive according to energetic, economic and environmental criteria. Another determining factor to optimize the overall performance of biological process stands in the configuration of the bioreactor. Such performance is

* Corresponding author.

E-mail address: christophe.andre@hei.fr (C. Andre).

strongly influenced by the complex interactions between gas and liquid hydrodynamics as well as solids (microorganism) activities [1].

Among three phase reactors, membrane bioreactors appeared in the 70s [2,3] and were largely applied in biotechnology (pharmacy, food industry) and environment (wastewater treatments). Complex bioreactors have been investigated at laboratory and plant scales and optimized through a better knowledge of their hydrodynamic behaviour [4–15]. Moreover, it is well known that high cell density in bioreactors, in continuous mode, leads to high productivity. Bioreactor configuration is also important in optimizing the bioprocess. Theoretical studies [16–18] showed that recycling two-stage continuous fermentations with a membrane separator would be potentially the most efficient system for improving ethanol productivity in high cell density cultures (~100 gDW/L).

^{1385-8947/\$ –} see front matter @ 2011 Elsevier B.V. All rights reserved. doi:10.1016/j.cej.2011.12.065

Nomenclature

Latin let	ters
а	recirculation rate [/]
d	agitator diameter [m]
D	tank diameter [m]
Ε	residence time distribution function [s ⁻¹]
F	cumulative residence time distribution function [/]
G	Laplace transforms of $E(t)$ [/]
Н	liquid height in tank [m]
Ι	internal age distribution function [s ⁻¹]
I	cumulative internal age distribution function [/]
Ĺ	length [m]
Ν	rotational stirring speed [s ⁻¹]
Р	pressure [bar]
Q	circulation flow [Lh ⁻¹]
S	Laplace variable [/]
S	skewness [/]
Т	temperature [°C]
t	time [s]
t _M	mixing time [s]
t _{M-90%}	mixing time for a level of homogeneity equal to 90%
	[s]
t _{M-98%}	mixing time for a level of homogeneity equal to 98%
	[s]
ts	mean residence time [s]
и	velocity [m s ⁻¹]
V	volume [L]
VVM	aeration rate [L/L min ⁻¹]
x	normalized experimental inlet signal [s ⁻¹]
Χ	Laplace transforms of <i>x</i> (<i>t</i>) [/]
у	normalized experimental outlet signal [s ⁻¹]
Y	Laplace transforms of <i>y</i> (<i>t</i>) [/]
C 11	
Greek le	tters
τ	holding time [s]
ρ	density [g L ⁻¹]
Ø	diameter [m]
σ^2	variance [s ²]
	moment of j order [s]
15	centred moment of <i>j</i> order [S ^j]
α	contribution factor of plug flow behaviour [/]
<i>p</i> ²	reduced variance [/]
μ	VISCOSILY [Pas]
θ	normalized reduced time [/]
Dimensi	onless numbers
Fr	Froude Number [/]
Nt _M	mixing number [/]
N _{p0}	power number of the impeller [/]
Non	pumping number of the impeller [/]
Re	Reynolds number [/]
Re _A	Reynolds number of agitation [/]
Abbrevia	ations
ISCB	two-stage continuous bioreactor with cell recycle
CSTR	continuous stirred tank reactor
IAD	internal ages distribution
KID	residence time distribution
PFK	plug-now reactor
Indices	
Feed	feeding
С	circulation
ext	external

int	internal
р	permeate
pg	bleed
Р	pumping
R1	R1 reactor
R2	R2 reactor
t	total
v	viable
12	circulation from R1 to R2
21	circulation from R2 to R1
R1-I	R2 between R1 and R2
R1-j	permeate between R1 and permeate

An innovative two-stage bioreactor with cell recycling (TSCB) was developed to study the behaviour of *Saccharomyces cerevisiae* under high cell concentration, taking into account the control of growth, ethanol production and cell viability [19–21]. The first stage of the bioreactor was dedicated to cell growth without any oxygen limitation and at a non-inhibitory ethanol concentration. The second stage was dedicated to high ethanol productivity. The high cell density was thus obtained by an ultrafiltration module coupled to the second reactor under micro-aeration conditions. The innovative part of the bioprocess consists in the use of a recycling loop from the second stage to the first to manage both cell viability and activity.

The hydrodynamic complexity of TSCB induces a population distribution requiring identification and modelling of 3 phase flow: gas, liquid and solid (biomass). No previous work has mentioned the interaction between hydrodynamic behaviour and biological performances (yields, productivity) in such bioreactor. Only a few studies consider interactions between hydrodynamic interactions of one or two phase systems with biological performances, when using membrane bioreactors used in wastewater treatments.

In the present work, a global hydrodynamic study was carried out with the TSCB. RTD and IAD formulations which constitute efficient tools to give new insight into complex hydrodynamic phenomena occurring in bioreactor. In our case, numerical simulation could not be considered because of the geometric complexity of TSCB, the three phase system (liquid, gas and biomass), the various operating parameters (aeration, agitation, and circulation, dilution and recirculation rates) and the absence of in situ metrology able to corroborate numerical approach.

Our scientific objectives focus on the hydrodynamic investigation of TSCB through RTD and IAD studies in order to (i) get new insights in complex hydrodynamic phenomena inside TSCB and (ii) study and model RTD (and IAD) of each phase (liquid, gas and biomass). An overall hydrodynamic characterization (under abiotic conditions) was carried out by using residence time (RTD) and internal age (IAD) distribution studies, according to suitable methodology [22]. First, experiments determined the mixing time for each stage and TSCB, to identify and formulate the analytical RTD and IAD functions, in continuous mode with and without recycling. Second, a systemic approach was used to identify the model parameters and characterize their evolution within the investigated operating conditions, and then to verify the reliability of the model by considering the experiments with recycling.

2. Theory

2.1. Mixing time

Mixing time is one of the criteria most widely investigated to characterize bioprocess performance. Mechanical agitated

-		
1.3	nı	
Ia	v	

Reynolds numbers, pumping and mixing times.

	Stirred tank	Cylindrical bath agitated by plunging jet
Reynolds number	$Re_{\rm A} = \rho N d^2 / \mu$	$Re = ho U_{\rm jet} d_{\rm jet} / \mu$
Circulation time	$t_{\rm C} = V/Q_{\rm C}$ with $Q_{\rm C} = 1.8N_{\rm Op}Nd^3$	$t_{\rm C} = V/Q_{\rm jet}$
Mixing time	$Nt_{\rm M} = 3(d/D)^{-3} N_{\rm p0}^{-0.3}$	$t_{\rm M} = A(DH/U_{\rm jet}d_{\rm jet})(d_{\rm jet}/H)$

contactors are very versatile for conducting a variety of gas-liquid operations, with or without bio or chemical reaction and in the presence or absence of solid particles (i.e. catalytic biomass). In the bioreactor, mixing time depends mainly on the amount of energy supplied, reactor configuration and stirrer shapes, aeration rate and rheology of the medium [23–25]. In TSBC, two compartments are considered: (i) a conventional stirred bioreactor for the first stage (5 L cylindrical tank equipped with a 6 blade Rushton impeller and 3 baffles) and (ii) a cylindrical batch agitated by a plunging jet tank for the second stage (8 L cylindrical tank connected to a filtration loop). The theory and the scientific literature provide definitions of flow regime, circulation and mixing times as well as theoretical or semi-empirical relations to quantify these parameters in each stage (Table 1).

The performance of gas–liquid reactors depends, in addition to the interface mass transfer and intrinsic chemical kinetics, on the intensity of mixing in both phases. In batch mode at a macroscopic scale, the mixing time, $t_{\rm M}$ corresponds to the lapse of time required to obtain a defined degree of homogeneity (signal derivation, or difference between *n* sensors inside one system) [26]. A number of methods to measure mixing performance or efficiency have been studied. Different criteria have been used to define the degree of mixing or homogeneity, for example at 90 and 98% respectively $t_{\rm M-90\%}$ and $t_{\rm M-98\%}$. Based on these results, empirical correlations have been proposed for the dimensionless mixing-time $Nt_{\rm M}$ for different types of agitators and vessel geometries [25,27,28].

A plunging jet is also a powerful tool for the agitation of a bath as well as the entrapment of fine powder. Some correlations to estimate the mixing time in the bath are reported by Abe and Iguchi [29] and Harnby et al. [30].

In Table 1, relations defining flow regime and circulation times are defined for a stirred tank and a cylindrical bath agitated by a plunging jet. In R1, a mixing time correlation is defined by Nienow [28] with $N_{\rm Qp}$ = 0.80, $N_{\rm P0}$ = 5.33 issued from Roustan [31] for a bioreactor with n-blade = 6, n-baffle = 3, w/d = 0.2, l/d = 0.3 and d/D = 0.33 under turbulent regime. In R2, mixing time is estimated with the correlation reported by Harnby et al. [30] restricted to 5000 < Re < 80 000 and $A = 120 ({\rm Fr}_{jet}/Re)^{0.17}$.

2.2. Residence time and internal age distributions (RTD/IAD)

Flow patterns in continuous systems are usually too complex to be measured experimentally or theoretically predicted from Navier–Stokes equations or statistical mechanical considerations. Residence time distribution (RTD) is a chemical engineering concept introduced by Danckwerts [32] to study hydrodynamic behaviour within any chemical reactor and to assess the degree of mixing and flow patterns [33]. Models derived from tracer experiments are often limited to simple elementary reactors such as perfect mixing cells in series [34], plug flow with axial dispersion [35], mixing cells in series exchanging with a dead zone [36] or simple compartment models [33].

In our study, analysis of RTD profile can be used to determine the deviations from ideal reactor behaviour and to give indications about the modifications that the system needs to overcome distribution problems. RTD profiles may be measured by monitoring the evolution of an internal tracer, from entrance to exit of the bioreactor. The RTD function, E(t) is defined by Eq. (1) [37].

$$E(t)dt = \frac{dQ}{Q} \Rightarrow \int_{0}^{\infty} E(t)dt = 1$$
(1)

The cumulative residence time distribution function of E(t) is F(t) and represents the proportion of particles having travelled through the bioreactor in a time shorter than t (Eq. (2)).

$$F(t) = \int_{0}^{t} E(t) dt$$
(2)

One can define x(t) and y(t) as the experimental inlet and outlet normalized signals. The mathematical relationship between x(t) and y(t) is described by Eq. (3).

$$y(t) = \int_0^t E(u)x(t-u)\mathrm{d}u \tag{3}$$

The product of the convolution can be replaced in the Laplace domain by a simple product, where X(s), Y(s) and G(s) are the Laplace transforms of x(t), y(t) and E(t), Eq. (4).

$$Y(s) = G(s)X(s) \text{ with } G(s) = \int_0^\infty \exp(-st)E(t)dt$$
(4)

Each distribution function can be characterized by a set of moments and centred moments of order *j* [37,38].

$$\Gamma^{i} = \int_{0}^{\infty} t^{i} E(t) dt \quad \text{and} \quad \Gamma^{i'} = \int_{0}^{\infty} (t - t_{\rm S})^{i} E(t) dt \tag{5}$$

The function E(t) is characterized by the mean residence time, t_S (Eq. (5)) which is the moment of first order, Γ^1 . The holding time, τ is defined as the ratio between the volume of the corresponding test section and the flow rate. For such experimental set-ups, t_S and τ are equal. If this is not the case, then the experimental results must be rejected as an indication that hydraulic "short-circuits" or "dead zones" could be present in the fluid circuit.

The centred moment of second order, $\Gamma^{2'}$ defines the variance, σ^2 and reduced variance, β^2 which describe the spread of the RTD curve. The centred moment of third order, $\Gamma^{3'}$ estimates skewness which is the deviation from a symmetrical distribution (*S*=0). A left-skew distribution exists for *S* < 0 and a right skew for *S* > 0. The centred moment of fourth order, $\Gamma^{4'}$ evaluates the spread of the RTD. In theory, all moments and centred moments of order *j* could be calculated. However, the quality of signals often leads to non significant or unreliable results for $\Gamma^{3'}$ and $\Gamma^{4'}$.

Van der Laan's relation establishes an expression between moments and transfer function (Eq. (6)). This relation is useful and demonstrates that mean residence time t_s and RTD variance of the bioreactor (Eq. (7)) can be obtained from the difference between the entry and exit signal expressions.

$$\mu_n = (-1)^n \cdot \lim_{s \to 0} \frac{\partial^n G}{\partial s^n} \tag{6}$$

$$t_{\rm S} = \Gamma_Y^1 - \Gamma_X^1 \text{ and } \sigma^2 = \sigma_Y^2 - \sigma_X^2 \tag{7}$$

Another function, called internal age distribution (IAD), I(t) describes the reactor content. This function has a similar definition as E(t): I(t)dt is the fraction of the internal fluid volume within the reactor, V, containing particles with an age ranging between t and t + dt.

The relation between E(t) and I(t), and between cumulative RTD and IAD functions, F(t) and J(t), can be established from mass balance (Eqs. (8) and (9)).

$$I(t) = \frac{1}{\tau} \left(1 - \int_{0}^{t} E(t) dt \right)$$
(8)

with
$$E(t) = -\tau \frac{dI(t)}{dt}$$
 and $J(t) = \tau I(t) = 1 - F(t)$ (9)

3. Materials and methods

3.1. Experimental set-up

Experiments were carried out using pilot plant (Fig. 1) which was composed of four major parts: the first and second bioreactors (R1 and R2) and the filtration and permeate loops.

The TSCB included a first, R1 (Chemap CMF100, 5 L) and a second bioreactor, R2 (SGI, 8 L) controlled by CB5 control units (B. Braun Biotech International, pH, dissolved oxygen, mixing, temperature). The second reactor (R2) was connected to a filtration loop (6.5 L, $\emptyset = 25.4$ mm) composed of two parallel modules (Rhodia–Orelis company, Miribel, France, Kerasep-K01-B-X2, Al₂O₃-TiO₂ ceramic membrane, $\emptyset_{int/ext} = 6/25$ mm, 7 channels, 1178 mm length, UF cutoff: 150 kDa, unit surface: 0.155 m²) and a tubular heat exchanger (Shell L = 550 mm, $\emptyset_{int} = 48$ mm, $\emptyset_{tube} = 8/10$ mm, 7 channel/pass-1 pass) including temperature regulation. The membranes weight cut-off allows the passage of extracted molecules (ethanol) and the retention of micro-organisms and macromolecules (cellular lyses).

The transmembrane pressure was adjusted with a counter pressure valve to obtain an accurate permeate flow-rate ($20Lh^{-1}\pm 5$). Permeate was extracted and partially recycled in the R2 reactor as mentioned in Table 2.

Peristaltic pumps (Masterflexl, $0 < Q < 10 Lh^{-1}$) circulated the liquid phase as feed, Q_{feed} , circulation between R1 and R2, Q_{12} and Q_{21} , second stage bleed, Q_{pg} and permeate extraction, Q_p . Flow rate in the filtration loop was achieved with a volumetric pump (PCM pump, Moineau M6000-C4, SN: 250103, $Q_{max} = 5 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$, P_{max} = 5 bars). Two mass flowmeters (1-Micromotion, model R100, SN 706617, Q_{max} = 16325 kg h⁻¹, precision ±0.5%, P_{max} = 100 bars, -40 to +125 °C and 2-Micromotion, model CMF010, SN 391389, $Q_{\text{max}} = 108 \text{ kg h}^{-1}$, precision ±0.5%, $P_{\text{max}} = 100 \text{ bars}$, -240 to +204 °C) measured the total flow in the filtration module and the permeate flow. Each reactor was equipped with an inlet air flow meter (Bronkhorst high-tech, Instrutec type F, Q_{max} SN 9311001A, $Q_{\text{max-R1}} = 5 \text{ NLmin}^{-1}$, and Brooks, Type 5850TR, SN T00912/010, $Q_{\text{max-R2}} = 2.5 \text{ NL min}^{-1}$). The experimental set-up was connected to a computer with a custom software performing the on-line acquisition of controlled parameters (stirring rate, pH, temperature, inlet air flow, dissolved oxygen, liquid level regulation), and peristaltic pumps. The control of feed flow, Q_{feed} , circulation flow from R1 to R2, Q₁₂ and outlet flow, Q_{pg} and Q_p, allowed us to keep the working volume constant in each reactor.

3.2. Tracing experiments

Mixing times in TSBC were determined through 3 sensors (electrical conductivity) inside the bio-reactor (R1, R2 and permeate loop) and the differences between two measurements (R1–R2 and R1–permeate) analysed as a function of the exchange flow-rate (2 to $10 L h^{-1}$) between R1 and R2. Mixing time are estimated at 90 and 98% homogeneity between two measures respectively

 $t_{M-90\%/R1-R2}, t_{M-98\%/R1-R2}, t_{M-90\%/R1-permeate}, t_{M-98\%/R1-permeate}$

The tracing methods were respectively a step of di-oxygen or nitrogen concentration as gas tracer, injected at the inlet of the reactor R1 or R2, and a pulse (Dirac) of NaCl/NaOH as liquid tracer, injected rapidly with a syringe (50 mL) at R1 inlet. In each experiment, the quantity of tracer injected was controlled.

For the gas phase, oxygen/nitrogen concentration at R1 and R2 outlets were simultaneously monitored with two gas analysers (Innova Air Tech Instruments, Type 1313, ± 0.2 –1.2%) (Fig. 1). The percentage of dissolved di-oxygen inside R1 and R2 reactors and permeate loop was measured using 3 dissolved oxygen electrodes (Hamilton type Oxyferm FDA120, OxyProbe Serie Dissolved Oxygen Sensor and Ingold n° 322 756800/83264).

For the liquid phase, the tracer concentration was measured simultaneously with 3 conductivity probes (Kemotron type 9147, \pm 3% per decade and Conducell 4USF-PG215 and PG325, \pm 1% per decade) and 3 pH electrodes (Hamilton type Easyferm plus VP/120, pH FermProbe F-615-B130-DH and F-635-B325-DH), located on different zones of the bioreactor (R1, R2 and permeate extraction).

All sensor signals were electrically conditioned and collected using an on-line data-acquisition system (Agilent technologies, Loveland, Colorado, USA, type 34970A with specific cards 34901A and 34907A). A PC (Dell, Intel(R) Core(TM)2 CPU, T56001@ 1.83 GHz) equipped with a software driver (Benlink Data Logger, version 3.00.02) were used for the configuration and the acquisition of data.

3.3. Operating conditions and methodology for RTD/IAD study

Experimental RTD and IAD were conducted in TSCB under abiotic conditions. The experiments were carried out under 4 operating conditions (a, b, c and d, Table 1), identified and selected among 8 experiments established during cell cultures with growth rate and ethanol production [19,21], and 3 process modes: batch ($Q_{\text{feed}} = 0$), continuous with recycling and without recycling ($Q_{21} = 0$).

Each experiment was repeated at least 2 times, and the impact of the recirculation rate was studied for experiments (c) and (d). The experimental plan covered a wide range of operating conditions corresponding to minimum and maximum feed and extraction flow-rates ($Q_{\text{feed}} = 1.5$ and 6 Lh^{-1}) with variable recycle rate, a ($Q_{21}/Q_{12} = 0, 0.4$ and 0.8) considering hydraulic conditions.

The TSCB hydrodynamic characteristic parameters (i.e. mixing rate, gas flow rate, liquid flow rate, recirculation rate) were calculated using conventional dimensionless numbers (Re, Re_A, recirculation rate) and aeration rate VVM.

Two flow regimes were observed: (i) a highly turbulent flow regime inside R1 due to mixing $(36\,000 < Re_{A-R1} < 47\,000)$ and inside R2 due to the strong flow-rate inside the filtration loop $(20\,000 < Re_{loop-R2} < 50\,000)$ and (ii) a close laminar flow regime inside the permeate extraction loop $(1400 < Re_{permeate} < 2400)$. It was also deduced that the rate of recirculation between R1 and R2 was almost constant (around 0.4) for all operating conditions whereas VVM exhibits a wide range of values in both reactors $(0.03 < VVM_{R1} < 0.58 \text{ and } 0.05 < VVM_{R2} < 0.33)$.

Tracing experiments were conducted following the methodology described by Thereska [37]. The distribution functions formulation and analytical solutions draw up a first diagnosis of bioreactor behaviour under various operating conditions. Each experiment was studied according to process modes (batch, continuous with and without recycling) for each phase (gas and liquid). Experiments and analytical solutions were followed by a systemic approach using Progepi v.4.2 software [36]. Relevance is based on the quality of experimental measurements and data interpretation, in relation to the physical structure of the reactor and proposition of pertinent model (reduction of the number of parameters).

Since the hydrodynamics of the liquid phase are complex, an appropriate methodology is required to identify several parameters (mixing time, mean residence time and variance, impact of



Fig. 1. Overview of experimental set-up and specific instrumentation for tracing experiments.

Table 2

Average operating conditions and dimensionless numbers.

Parameters	Dimensions	Exp. (a)	Exp. (b)	Exp. (c)	Exp. (d)
T di di di decento	Dimensions	2.1p. (u)	2	2	Enpi (u)
Q ₂₁	$[Lh^{-1}]$	1.00	4.10	1.00 and 5.00	4.00 and 8.00
Q ₁₂	[Lh ⁻¹]	2.56	9.11	2.56 and 6.5	9.79 and 13.8
Q _{loop-R2}	[Lh ⁻¹]	2500	2600	1100	2600
Qp	$[Lh^{-1}]$	1.38	4.95	1.38	5.70
Q _{pg}	$[Lh^{-1}]$	0.18	0.06	0.18	0.09
Q _{feed}	[Lh ⁻¹]	1.56	5.01	1.56	5.79
Ν	[s ⁻¹]	11.7	15	14.2	15
Q _{air_R1}	[Lmin ⁻¹]	1.5	1.7	0.15	2.6
Q _{air-R2}	[Lmin ⁻¹]	2.0	3.8	0.6	0.8
V _{R1}	[L]	4.5	4.5	4.5	4.5
V _{loop-R2}	[L]	5+6.5	5+6.5	5+6.5	5+6.5
Т	[°C]	30	30	30	30
Α	[/]	0.39	0.45	0.39 and 0.76	0.44 and 0.58
Re _{A-R1}	[/]	36400	46800	44 200	46800
Re _{loop-R2}	[/]	46 600	48 700	20700	48 000
Repermente	[/]	1800	1900	1400	2300
VVM _{R1}	$[L/L min^{-1}]$	0.33	0.38	0.03	0.58
VVM _{R2}	$[L/L min^{-1}]$	0.17	0.33	0.05	0.07

recycling). For the liquid phase, a specific and accurate experimental strategy was used to determine mixing time, RTD and IAD:

- batch mode to determine mixing time in the bioreactor,
- continuous mode without recycling to establish a compartmental model and parameters by adjusting simulated results with experimental data,
- continuous mode with recycling to test and validate robustness of models, quantify impact of the recycling loop on RTD and IAD.

4. Results and discussion

4.1. Mixing time

For TSBC in batch mode (a = 1), experimental values for mixing times are plotted versus pumping times in Fig. 2 and compared to calculated circulation and mixing times in R1 (stirred tank) and R2 (cylindrical batch agitated by plunging jet) in Table 3. Mixing



Fig. 2. Experimental mixing time in TSCB at 90 and 98% of homogeneity versus circulation flow-rate.

L. Ben Gaida et al. / Chemical Engineering Journal 183 (2012) 222-230

 Table 3

 Reynolds numbers, circulation and mixing times in R1, R2 and TSCB.

		Exp.(a)	Exp. (b)	Exp. (c)	Exp. (d)
	$Q_{12} = Q_{21} [L h^{-1}]$	2.56	2.56	9.11	9.79
R1	Re _{A-R1}	36400	44200	46800	46800
	t_{C-R1} [s]	2.2	1.8	1.7	1.7
	t _{M-R1} [s]	4.0	3.3	3.1	3.1
R2	Re _{loop-R2}	46450	20900	48 500	48 470
	t_{C-R2} [s]	16.7	37.0	16.0	16.0
	t _{M-R2} [s]	8.3	18.5	8.0	8.0
TSCB	t _{C-TSCB} [s]	20400	20400	5700	5300
	t _{M-TSCB} at 90% [s]	11400	10440	2790	2400
	t _{M-TSCB} at 98%[s]	18840	16200	4710	3990

times at 90 and 98% exhibit the same order of magnitude with each difference and remain slightly inferior to TSCB circulation time, t_{C-TSCB} .

Flow regimes are turbulent in R1 and R2 under investigated conditions. Mixing times in R1, t_{M-R1} and R2, t_{M-R2} , respectively inferior to 5 s and 20 s, are negligible in comparison to mixing times in TSCB, t_{M-TSCB} (superior to 1000 s for recirculation flow rate close to 10 L h⁻¹), correspond to perfect STR behaviour.

For mixing time at 90 and 98% in TSCB, mixing times are inferior to circulation times. Since internal mixing times are negligible in R1 and R2 then concentration balance is established after circulating to half of the larger stage (R2).

4.2. Analytical solutions and systemic approach

Data analysis and RTD formulation were realized and input and output RTD signals, x(t) and y(t) were formulated. Measured parameters (electric conductivity and gas percentage) were converted into concentration values. Concentration profiles c(t) were obtained as a function of time and reduced and normalized signals established E(t) and $E(\theta)$. Then, experimental residence time (of the gas and liquid phases) and internal age (of the liquid phase) distributions, E(t) and I(t), or cumulative, F(t) and J(t), were analysed under different operating conditions and process modes.

The distribution functions are characterized by a set of moments (mean residence times) and centred moments of order *i*.

Next, the hydrodynamic behaviour of the bioreactor was described by a systemic analysis of RTD signals for liquid and gas phases. The selected models were based on (i) the TSCB physical structure (ii) the experimental results of RTD (analytical approach) and (iii) assumptions relating to hydrodynamic behaviour of the bioreactor. The systemic analysis integrates parametric identification and validation of model robustness by comparison with experiments.

4.2.1. Gas phase

Experiments demonstrated that each reactor R1 and R2 exhibit independent behaviour. No gas passage between R1 and R2 was observed. For an infinite time (300–400 s), $F_{R1}(t)$ tends towards unit value whereas $F_{R2}(t)$ remains null after one step in R1. Holding time, τ , mean residence time, t_s and reduced variance, β^2_{exp} were determined, demonstrating different hydrodynamic behaviour between R1 and R2.

A larger spread of RTD signal was noticeable in R2 which seems correlated with the physical structure of filtration loop associated with R2. A gas retention inducing liquid hold-up was indicated by the holding time and mean residence time ratio of 1.5 in R1 and 2 in R2. Under highly turbulent flow or mixing, these ratios stand at constant values independant VVM.

RTD curves of the gas phase showed that there is no significant difference between RTD curves E(t) with different process modes (batch, continuous with and without recycling) and normalized



Fig. 3. Reduced RTD, $E(\theta)$ in R1 stage in continuous mode with recycle (Experiments a, b, c and d, Fig. 3a). Experimental and simulated, E(t) in R1 and R2 for gas phase, continuous mode with recycle (Exp. a, Fig. 3b).

RTD curves $E(\theta)$ (Fig. 3a). Experimental values of the moment of first order (t_S) and centred moments of second order (σ^2) obtained for both R1 and R2 corroborate these observations.

R1 and R2 under investigated conditions demonstrate that both reactors exhibit a single hydrodynamic behaviour. However, dissolved oxygen sensors located in R1 and R2 indicated that a short delay exists between inlet and outlet in both reactors.

In conclusion, both reactors behaviour could be assumed to be that of a plug flow reactor (PFR) associated with *j* CSTR.

A single model was assumed for R1 and R2 and structured as a cascade of a plug reactor (τ_{PFR}) in series with *j* CSTR (τ_{CSTR} . *j*). This model was chosen because it is simple and closely correlated to the physical structure of the process and perfectly fits experimental data (Fig. 3b).

The corresponding expression of the transfer function G(s) and E(t) were formulated by Eqs. (10) and (11):

$$G(s) = \frac{\exp\left(-s\tau_{\rm PFR}\right)}{\left(1 + \left(\frac{s\tau_{\rm CSTR}}{i}\right)\right)^j} \tag{10}$$

$$E(t) = H(t - \tau_{\text{PFR}}) \cdot \left(\frac{j}{\tau_{\text{CSTR}}}\right)^{j} \cdot \frac{(t - \tau_{\text{PFR}})^{j-1} \cdot \exp\left(\frac{-j \cdot (t - \tau_{\text{PFR}})}{\tau_{\text{CSTR}}}\right)}{(j-1)!}$$
(11)

With Van der Laan's relations (Eq. (5)), a simple relation between α and β^2 was established. The advantage of this simple model is that it uses only two parameters *j* and α , considering the mean residence time is equal to holding time, τ . The plug-flow contribution in terms of residence time (Eq. (12)) leads to a reduced variance (Eq. (13)).

$$\alpha = \frac{\tau_{\rm PFR}}{\tau_{\rm PFR} + \tau_{\rm CSTR}} \tag{12}$$



Fig. 4. IAD, *J*(*t*), and RTD, *F*(*t*) curves of liquid phase in TSCB (Exp. a).

$$\beta^2 = \frac{(1-\alpha)^2}{j} \tag{13}$$

Experimental and model mean residence times exhibited close values for R1 and R2 (difference < 5% except for experiment (d) in R2). Calculated reduced variances showed good agreement with experimental data for R1 (average error < 10%). The chosen model is then in adequacy with the physical structure of TSCB and the measured values.

4.2.2. Liquid phase

Both reactors (R1 and R2) and outlets (bleed and permeate) were considered. In Fig. 4, the experimental residence time distribution, E(t), or cumulative, F(t), and the internal age distribution cumulative J(t) were reported for experiment (a) in continuous mode without recycling. Mass balance between internal age distribution and cumulative residence time distribution was verified. RTD and IAD curves exhibited high spread value.

In the case of no recycling between R1 and R2 (a=0), Van der Laan's equation enables us to find residence time and variance for each compartment (R1, R2 and permeate). However, calculated reduced variances for the permeate compartment were no significant (β^2 : n.s.) since residence time of this loop is negligible compared to global residence time in TSCB (<10%) and inlet and outlet signals uncertainty is non negligible.

In presence of recycling ($a \neq 0$), calculated moments show that the recycle rate increase leads to a higher dispersion of outlet.

For R1, functions are interpreted as an internal age distribution drift using different recycling and feed rates. This could be translated by an increase of the first order moment and associated

Table 4

Plug flow and continuous stirred tank reactor.

	CSTR	Plug (PFR)
Transfer function, <i>G</i> (<i>s</i>) Distribution function, <i>E</i> (<i>t</i>)	$G(s) = \left[1 + (\tau/J)s\right]^{-j}$ $E(t) = (J/\tau)^{j}[(t^{j-1}\exp(-jt/\tau))/(j-1)!]$	$G(s) = \exp(-s)$ $E(t) = \delta(t - \tau)$
Residence time, $t_{ m S}$ Variance, σ^2	$t_{\rm s} = \tau$ $\sigma^2 = t_{\rm s}^2/j$	$\begin{array}{l}t_{\rm s}=\tau\\\sigma^2=0\end{array}$



Fig. 5. Experimental and simulated RTD and IAD functions. Exp. c with *a* = 0.76.

variance. In this case, the recirculation index should be considered to correct the signals.

The absolute values of residence times, variances and reduced variances β^2 should be taken into account during critical analysis of bioreactions.

The evolution of normalized and reduced liquid RTD for all experiments without recycling shows a single behaviour in each TSCB compartment. R1 and R2 behaviours are close to CSTR with a reduced variance equal to 0.97 (\pm 0.03) for R1 and 0.67 (\pm 0.33) for R2.

Permeate extraction was simply described by a plug flow reactor since the permeate circulation section is cylindrical. The volume in this compartment is lower than total volume in TSCB and the flow regime is laminar. The corresponding expression of the transfer function G(s) and E(t) for ideal reactors (CSTR PFR) were formulated in Table 4 [35].

The hydrodynamic behaviour of R1 and R2 could be assimilated to CSTR. For R1, experimental reduced variance values are close to 1 and are in agreement with the proposed model. The relative



Fig. 6. Reactor models for gas and liquid phases in TSCB.

Table 5 Average identified parameters for RTD of all phases and TSCB compartments under investigated operating conditions.						
		α [/]	J [/]	Re [/]		
Gas	R1	0.09	1.51	36400 < Re _{A-R1} < 46800		
phase	R2	0.15	1.45	$20700 < \text{Re}_{\text{Loop-R2}} < 48700$		

		α [/]	J [/]	Re [/]	VVM [min ⁻¹]
Gas	R1	0.09	1.51	36400 < Re _{A-R1} < 46800	0.03 < VVM _{R1} < 0.58
phase	R2	0.15	1.45	$20700 < \text{Re}_{\text{Loop-R2}} < 48700$	$0.05 < VVM_{R2} < 0.33$
		<i>V</i> [L]	J [/]	Re [/]	VVM [min ⁻¹]
Liquid	R1	4.22	1.009	36400 < Re _{A-R1} < 46800	0.03 < VVM _{R1} < 0.58
phase	R2	11.82	1.002	$20700 < \text{Re}_{\text{Loop-R2}} < 48700$	$0.05 < VVM_{R2} < 0.33$
	Permeate	0.74	_	590 < Re _{permeate} < 980	-

difference between experimental and calculated values is close to 6% for residence times and 10% for reduced variances. This is not the case of R2 since experimental reduced variance uncertainty is higher (\approx 33%). Globally, simulated values agreed with experimental data for the set of experiments (a, b, c and d) carried out without recycling. Comparison between experimental and simulated data for experiment c with recycle rate a = 0.76 showed good agreements (Fig. 5).

4.3. Overall TSCB model

Experiments led to identify and formulate analytic solutions in the first and second reactors: RTD (for liquid and gas phases) and IAD (for liquid phase) functions in continuous mode with and without recycling. A systemic analysis was carried out and reactor models proposed. RTD of the gas phase showed that both reactors R1 and R2 exhibit independent behaviour and could be simulated by a single model (plug flow in series with *j* CSTR) with constant parameters (α j) whatever investigated operating conditions range (VVM, Re and Re_A). For the liquid phase, RTD for the permeate and purge flow and IAD in the first and second reactors were obtained and formulated. Under assumptions, a systemic analysis of liquid IAD and RTD led to propose a reactor model in close relation with TSCB structure (Fig. 6).

Models were finally validated on experiments conducted in continuous mode with recirculation between the two stages. Defined models and selected hypothesis led to describe RTD and IAD functions for gas and liquid (supernatant) phases in the TSCB.

An ideal behaviour of reactors is indicated by low mixing times inside R1, $t_{M-R1} < 10$ s and circulation times inside R2, $t_{C-R2} < 15$ s in turbulent flow regimes: $36400 < Re_{A-R1} < 46800$ for R1 and 20700 < Re_{Loop-R2} < 48700 for R2 (Table 5).

These characteristic times are negligible compared to residence times in R1 and R2 which are respectively comprised between $2500 < \tau_{R1} < 11\,000\,\text{s}$ and $7000 < \tau_{R2} < 30\,000\,\text{s}$.

For the permeate compartment, plug flow behaviour is considered with one residence time negligible compared to the global residence time in TSCB (<10%).

5. Conclusion

Our study provides an overall TSCB hydrodynamic characterization under abiotic conditions by using residence time distribution (RTD) of gas and liquid phases. The hydrodynamic complexity of TSCB induces a population distribution under particular hydrodynamics.

Experiments led to analytical RTD and IAD functions characterization and formulation, in continuous mode with and without recycling. A systemic approach was used to identify model parameters and to characterize their evolution, and to corroborate the model by considering the experiments with recycling.

For the gas phase, it was shown that each compartment (R1 and R2) exhibited independent behaviour, and could be modelled by a plug-flow reactor associated to *j* Continuous Stirred Tank

Reactor, CSTR in series, the values of the model parameters (α , *j*) remained constant within the investigated range of operating parameters (VVM, Re and Re_A). For the liquid phase, the hydrodynamic behaviour of R1 and R2 could be represented by CSTR behaviour. A plug-flow reactor was proposed to describe the permeate compartment behaviour.

Further studies might include:

- The comparison of established models with tracing experiments (passive tracer as lactose) under biotic conditions.
- The simulation of experiments carried out under biotic conditions in order to interpret and explain the obtained performances (cell concentration, viability, ethanol production, growth rate).
- The investigation of optimal conditions of hydrodynamics under microbiological control in order to optimize productivity, conversion yield.

Acknowledgements

Authors are grateful to INRA and National Research Agency (ANR) for funding.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data associated with this article can be found, in the online version, at doi:10.1016/j.cej.2011.12.065.

References

- V.K. Pareek, Z. Yap, M.P. Brungs, A.A. Adesina, Particle residence time distri-[1]bution (RTD) in three-phase annular bubble column reactor, Chem. Eng. J. 56 (2001) 6063-6071.
- [2] C. Smith, D. Di Gregorio, R.M. Talcott, The use of ultrafiltration membranes for activated sludge separation, in: Proceedings Purdue IWC, 1969, pp. 1300-1310.
- [3] P. Aimar, G. Daufin, Séparations par membrane dans l'industrie alimentaire, F3250, in: Techniques de l'ingénieur, Traité agroalimentaire, 2004, pp. 1-23.
- [4] I. Capela, M.J. Bilé, F. Silva, H. Nadais, A. Prates, L. Arroja, Hydrodynamic behaviour of a full-scale anaerobic contact reactor using residence time distribution technique, J. Chem. Technol. Biotechnol. 84 (2009) 716-724.
- Y. Wang, Sanly, M. Brannock, G. Leslie, Diagnosis of membrane bioreactor performance through residence time distribution measurements - a preliminary study, Desalination 236 (2009) 120-126.
- [6] S. Dutta, R. Chowdhury, P. Bhattacharya, Stability and response of bioreactor: an analysis with reference to microbial reduction of SO2, Chem. Eng. J. 133 (2007) 343-354.
- [7] D. Olivier, J. Valls, M.A. Gordillo, A. Freixo, A. Sanchez, Application of residence time distribtuion technique to the study of the hydrodynamic behaviour of a full-scale wastewater treatment plant plug-flow bioreactor, J. Chem. Technol. Biotechnol. 80 (2005) 425-432.
- [8] H. Benkhelifa, J. Legrand, P. Legentilhomme, A. Montillet, Study of the hydrodynamic behaviour of the batch and continuous torus reactor in laminar and turbulent flow regimes by means of tracer methods, Chem. Eng. Sci. 55 (2000) 1871-1882
- M.T. Hardin, T. Howes, D.A. Mitchell, Residence time distribution of gas flowing [9] through rotating drum bioreactors, Biotechnol. Bioeng. 74 (2001) 145-153.
- [10] X. Ni, N.E. Pereira, Parameters affecting fluid dispersion in a continuous oscillatory baffled tube, AIChE J. 46 (2000) 37-45.
- E. Roca, C. Ghommidh, J.M. Navarro, J.M. Lema, Hydraulic model of a gas-lift [11] bioreactor with flocculating yeast, Bioprocess Eng. 12 (1995) 269-272.
- [12] D.E. Swaine, A.J. Daugulis, Liquid residence time distributions in immobilized cell bioreactors, Biotechnol, Bioeng, 33 (1989) 604-612.

- [13] M. Asraf-Snir, V. Gitis, Tracer studies with fluorescent-dyed microorganisms - A new method for determination of residence time in chlorination reactors, Chem. Eng. J. 166 (2011) 579-585.
- [14] B. Puyuelo, T. Gea, A. Sánchez, A new control strategy for the composting process based on the oxygen uptake rate, Chem. Eng. J. 165 (2010) 161-169.
- [15] R. Rosal, A. Rodríguez, J. Antonio Perdigón-Melón, A. Petre, E. García-Calvo., Oxidation of dissolved organic matter in the effluent of a sewage treatment plant using ozone combined with hydrogen peroxide (O₃/H₂O₂), Chem. Eng. J. 149 (2009) 311–318.
- [16] P. Perlot, F. Daujat, J. Mazellier, Fermentation alcoolique par bioreacteur à membrane: forte densité cellulaire, performances du procédé, Ind. Alim. Agr. 106 (1989) 855-860.
- [17] A. Nishiwaki, I.J. Dunn, Analysis of two-stage fermentor with recycle for continuous ethanol production, Chem. Eng. Comm. 168 (1998) 207-227.
- [18] A. Nishiwaki, I.J. Dunn, Analysis of the performance of a two-stage fermentor with cell recycle for continuous ethanol production using different kinetic models, Biochem. Eng. J. 4 (1999) 37-44.
- [19] A.S. Aldiguier, Activité bio-catalytique en haute densité cellulaire de Saccharomyces cerevisiae pour l'intensification de la production de bio-éthanol, PhD Thesis no. 820, INSA Toulouse, France, 2006.
- [20] M.F. Ben Chaabane, A.S. Aldiguier, S. Alfenore, X. Cameleyre, P. Blanc, C. Bideaux, S.E. Guillouet, G. Roux, C. Molina-Jouve, Very high ethanol productivity in an innovative continuous two-stage bioreactor with cell recycle, Bioprocess Biosys. Eng. J. 29 (2006) 49-57.
- [21] M.F. Ben Chaabane, Intensification de la production d'éthanol biocarburant dans un bioréacteur bi-étagé avec recyclage cellulaire: modélisation et stratégie de conduite, PhD Thesis no. 831, INSA Toulouse, France, 2006.
- [22] L. Ben Gaïda, C. André, C. Bideaux, S. Alfenore, X. Cameleyre, C. Molina-Jouve, L. Fillaudeau, Modélisation hydrodynamique d'un bioréacteur bi-étagé avec recyclage cellulaire (BBRC) pour la malitrise des productions microbiennes intensives, Ind. Alim. Agr. 127 (2010) 10–20.
- [23] K. Van't Riet, J. Tramper, Basic Bioreactor Design, Marcel Dekker, NY, 1991. [24] P. Bonvillani, M.P. Ferrari, E.M. Ducros, J.A. Orejas, Theoretical and experimental
- study of the effects of scale-up on mixing time for a stirred-tank bioreactor, Brazil. J. Chem. Eng. 23 (2006) 1-7.

- [25] M. Roustan, J.C. Pharamond, A. Liné, Agitation-Mélange Concept et theorie de base, in: Techniques de l'ingénieur, Traité Génie des Procédés, J3800, 2005, pp. 1_22
- [26] H. Kramers, G.M. Baars, W.H. Knoll, A comparative study on the rate of mixing in stirred tanks, Chem. Eng. Sci. 2 (1953) 25-42.
- [27] J.B. Joshi, A.B. Pandit, M.M. Sharma, Mechanically agitated gas-liquid reactors, Chem. Eng. J. 37 (1982) 813-844.
- [28] A.W. Nienow, On impeller and mixing effectiveness in the turbulent flow regime, Chem. Eng. Sci. 52 (1997) 2557-2565.
- [29] K.J. Abe, M. Iguchi, Mixing time in cylindrical bath agitated by plunging jet, ISIJ Int. 42 (2002) 581-587.
- [30] N. Harnby, M.F. Edwards, A.W. Niemow, Mixing in the process industries, Butterworth Heinemann, 1997.
- [31] M. Roustan, Agitation-Mélange Caractéristique des mobiles d'agitation. in: Techniques de l'ingénieur, Traité Génie des Procédés, J3802, 2005, pp. 1–12.[32] P.V. Danckwerts, Continuous flow systems. Distribution of residence times,
- Chem. Eng. Sci. 2 (1953) 1-13.
- [33] O. Levenspiel, Non-ideal flow, in: Chemical Reaction Engineering, 3rd ed., John Wiley & Sons Inc., 1999.
- [34] W. Lin, C.E. Weinell, P.F.B. Hansen, K. Dam-Johansen, Hydrodynamics of commercial scale CFB boiler-study with radioactive tracer particles, Chem. Eng. Sci. 54 (1999) 5495-5506.
- [35] B. Van Hasselt, H.P.A. Calis, S.T. Sie, C.M. van den Bleek, Gas- and liquid-phase residence time distribution in three-levels-of-porosity reactor, Chem. Eng. Sci. 54 (1999) 5047-5053.
- [36] J.P. Leclerc, C. Detrez, A. Bernard, D. Schweich, Un logiciel d'aide à l'élaboration de modèles d'écoulement dans les réacteurs, Revue de l'Institut Français du Pétrole 50 (1995) 641-654.
- [37] J. Thereska, L'application des radiotraceurs dans les unités industrielles. Bilan et Perspectives, in: Récent Progrès en Génie des Procédés: traceurs et méthodes de traçage, Nancy, vol. 12, Lavoisier Tech et Doc., 1998, pp. 1–7.
- [38] J. Villermaux, Génie de la réaction chimique: conception et fonctionnement des réacteurs, Tec & Doc Lavoisier, 1993.

Christophe Andre¹ Bruno Richard² Jean-François Le Page² Romain Jeantet³ Guillaume Delaplace²

¹ Laboratoire de Génie des procédés, HEI, Lille, France.

²INRA-PIHM, Villeneuve d'Ascq, France.

³ INRA-Agrocampus Ouest, UMR1253, Rennes, France.

Research Article

Influence of Mixing System Design and Operating Parameters on Dissolution Process

Over recent years, the solid dissolution rate in liquid has been the subject of intense and profitable scientific developments. This work aims to study the influence of hydrodynamics on the dissolution rate of solid in water. The impact of the mixing system design was also investigated. The dissolution process can be followed through several parameters. First, experimental results were validated by kinetic models based on mass transfer coefficients such as the Hixson-Crowell equation. The Weibull model and *n*-order model were also tested. Then, the dissolution time $t_{d,x\%}$ was defined as the time needed to reach a given dissolution degree (*X*). Finally, the dimensionless dissolution number ($N t_d$) was defined and correlated with the Reynolds number. This correlation provides a more direct and simple link between operating conditions and process efficiency.

Keywords: Dissolution rate, Hydrodynamics, Mixing system design, Modeling *Received:* August 17, 2011; *revised:* November 7, 2011; *accepted:* November 15, 2011 **DOI:** 10.1002/ceat.201100441

1 Introduction

Solid dissolution is classically considered as being governed by the Noyes-Whitney equation [1], where the dissolution rate is proportional to the difference of dissolved concentration *C* at time *t* from the solubility level C_s in a first-order manner¹):

$$\frac{\mathrm{d}C}{\mathrm{d}t} = k(C_{\mathrm{S}} - C) \tag{1}$$

The parameter k is the dissolution rate constant. This model means that the dissolution profile, obtained upon integration of Eq. (1), is exponential, reaching the plateau value C_s at infinite time.

$$C = C_{\rm S}(1 - \exp(-kt)) \tag{2}$$

Obviously, this approach cannot be used to describe numerous dissolution data because the variation of the exchange surface A is not taken into account. To evaluate the solid release with changes in the surface area and the diameter of the particles, Hixon and Crowell [2] proposed a modified equation assuming a size reduction with an invariable shape:

$$-\frac{\mathrm{d}W}{\mathrm{d}t} = k_{\mathrm{L}}A(C_{\mathrm{S}} - C) \tag{3}$$

with

$$A = A_0 \left(\frac{W_t}{W_0}\right)^{2/3} \tag{4}$$

 $W_{\rm t}$ and W_0 are the mass of solid remaining at time *t* and at initial time. A_0 is the initial solid-liquid exchange area, $k_{\rm L}$ is the mass transfer coefficient. This approach is the most often used in the chemical engineering area.

In other industry sectors, for example pharmaceutical, experiments can also be described by a very simple, semiempirical equation called the power law equation [3]:

$$\frac{M_{\rm t}}{M_{\infty}} = k' t^{\rm n} \tag{5}$$

 M_t and M_∞ are the absolute cumulative amounts of solid released at time *t* and at infinite time, respectively ($M_t = W_0 - W_t$ and $M_\infty = W_0$ in the case here), k' is a constant incorporating structural and geometric characteristics of the device and *n* is the release exponent, indicative of the release mechanism. Eq. (5) has two distinct physical realistic meanings in the special cases of n = 0.5 (indicating diffusion controlled solid release) and n = 1.0 (indicating swelling controlled solid release). Values of '*n*' between 0.5 and 1.0 can be considered as representative of the superposition of both phenomena.

Correspondence: Dr. C. Andre (christophe.andre@hei.fr), Laboratoire de Génie des procédés, HEI, 59046 Lille, France.

¹⁾ List of symbols at the end of the paper.

Another alternative for the description of release profiles via an empirical approach, is based on the empirical use of the Weibull function:

$$\frac{M_{\rm t}}{M_{\infty}} = 1 - \exp\left(-at^{\rm b}\right) \tag{6}$$

where *a* and *b* are constants. Although this function is frequently applied to the analysis of dissolution and release studies [4], its empirical use has been criticized [5]. The criticism is focused on: (i) the lack of a kinetic basis for its use and (ii) the nonphysical nature of its parameters. Besides, various attempts have been made to improve its performance and validate its use [6].

This brief analysis of these dissolution models shows that few of them deal exhaustively with the role of hydrodynamic conditions in dissolution kinetics. It can be noted that the impact of stirring conditions on dissolution is very often studied by correlating $k_{\rm L}$ to operating conditions (values of stirring speed N or specific power). More precisely, approaches to predict the effect of flow behavior on the mass transfer coefficient can be classified into four groups. The first is mere dimensional analysis, in which the flow effect is presented in terms of the impeller Reynolds number based on the impeller diameter and tip velocity [7]. The second is the slip velocity theory proposed by Harriot [8]. He started from the Ranz-Marshall equation [9] for a single sphere in steady-state motion and tried to correlate the mass transfer coefficient of particles in agitated vessels with the coefficient of spherical particles moving at terminal velocity. However, he could only explain the qualitative analogy between them. The third are nonsteady state models based on Higbie's penetration theory [10]. This theory has been improved by Danckwerts [11] and Toor [12] but the limit of such models is the difficulty to determine the contact time from operating parameters. The fourth is based on Kolmogorov's theory of local isotropic turbulence [13]. Kolmogorov postulated that the characters of eddies in the "equilibrium range" were dependent neither on the geometry of equipment nor on the method of flow energy supply. The eddies are then dependent on only two simple parameters, i.e., the rate of energy dissipation per unit mass of fluid and the kinematic viscosity. However, Kolmogorov's theory refers to the local dissipation rate and not to the average rate obtained from torque measurements. This way of modeling the influence of operating conditions has been used to validate experimental results through comparison to results obtained in literature.

The purpose of this study is to provide a more direct link between operating conditions and process efficiency. Here, the dissolution time behavior was compared to the mixing time behavior determined under monophasic conditions.

2 Materials and Methods

2.1 Dissolution Test

The dissolution experiments were carried out using a 20-L jacketed glass vessel (30 cm diameter) that can be equipped with four baffles to limit vortex formation. The agitator (10 cm diameter) was a Rushton turbine vertically and cen-

trally mounted and positioned at a distance of one third of the liquid depth as recommended in [14]. The turbine was driven by a 300 W power electric motor type FL 300 MS (Ekato, Germany) equipped with a variable speed drive and a torquemeter. The influence of impeller rotational speed *N* was studied within the range of $1-5 \text{ s}^{-1}$ (60–300 rpm) and measured using a digital tachymeter. The temperature was fixed to 20 °C. Experimental conditions are summed up in Tab. 1.

Table 1. Experimental conditions.

Experiment	Baffles	$N\left[\mathrm{s}^{-1} ight]$
1	with	1
2	with	2
3	with	3
4	with	4
5	with	5
6	without	1
7	without	2
8	without	3
9	without	4
10	without	5

The solid used was NaOH. The particles were spherical (2 mm diameter). Their density was equal to $\rho_s = 2130 \text{ kg m}^{-3}$. Each dissolution experiment was performed according to the following procedure: (i) Rinse the vessel. (ii) Fill the vessel with distilled water. (iii) Heat this solution to the desired temperature of 20 °C (±0.1 °C) under the impeller rotational speed studied. (iv) Add NaOH manually into the liquid surface at a solid/liquid concentration (w/w) equal to 0.02 %. The final concentration of A in the tank is 0.2 kg m^{-3} . The solubility of NaOH in water at T = 20 °C is $C_{\text{S}} = 1100 \text{ kg m}^{-3}$. We have $C \ll C_S$ (sink conditions). During all the experiments, the incorporation protocol and injection zone were kept constant. The dissolution process was followed by a conductimeter CDRV62 (Tacussel, France) monitored by a computer. The position of the probe was varied in preliminary experiments. Finally, an optimal position (for practical purposes regarding introduction of the solid and reproducibility of experiments) was chosen at the top of the liquid (10 cm from the free liquid surface and 20 cm from the bottom), the radial position was 5 cm from the wall and 10 cm from the rotational axis). The experiments were repeated five times in order to produce an average value.

2.2 Dissolution Time Determination

The dissolution degree *X* is defined by the following equation:

$$X = \frac{M_{\rm t}}{M_{\infty}} = \frac{W_0 - W_{\rm t}}{W_0}$$
(7)

Fig. 1 explains the principle of determination of dissolution time t_{dX} corresponding to a defined dissolution degree *X*.



2.3 Mass Transfer Coefficient Determination

Under sink conditions, it can be considered that the driven force of mass exchange is constant ($C_S >> C$). Eq. (3) becomes:

$$\frac{\mathrm{d}W}{\mathrm{d}t} = -k_{\mathrm{L}}AC_{\mathrm{S}} \tag{8}$$

$$\frac{\mathrm{d}W}{\mathrm{d}t} = -k_{\mathrm{L}}A_{0}C_{\mathrm{S}}\left(\frac{W_{\mathrm{t}}}{W_{0}}\right)^{2/3} = -k_{\mathrm{L}}C_{\mathrm{S}}\left(\frac{A_{0}}{W_{0}}\right)W_{0}^{1/3}W_{\mathrm{t}}^{2/3} \tag{9}$$

The ratio A_0/W_0 can be evaluated knowing the specific area of the particles a_g using the following equation:

$$\frac{A_0}{W_0} = \frac{a_g}{\rho_S} \tag{10}$$

$$-\frac{\mathrm{d}W}{W^{2/3}} = \frac{k_{\rm L}a_{\rm g}W_0^{1/3}C_{\rm S}}{\rho_{\rm s}}\,\mathrm{d}t\tag{11}$$

The initial condition is:

At t = 0, $W = W_0$.

Integration of Eq. (11) leads to:

$$-\int_{W_0}^{W_t} \frac{\mathrm{d}W}{W_t^{2/3}} = \frac{k_{\rm L} a_{\rm g} W_0^{1/3} C_{\rm S}}{\rho_{\rm s}} \int_0^t \mathrm{d}t \tag{12}$$

The final solution is:

$$1 - \left(\frac{W_{\rm t}}{W_0}\right)^{1/3} = \frac{k_{\rm L} a_{\rm g} C_{\rm S}}{3\rho_{\rm S}} t = 1 - (1 - X)^{1/3}$$
(13)

Chem. Eng. Technol. 2012, 35, No. 2, 247–254

Plotting $1 - (1 - X)^{1/3}$ versus time led to the determination of $k_{\rm L}$ through the slope of the curve given by Eq. (13); $k_{\rm L}$ can also be determined by the least mean squares method. Figs. 2a and

Figure 1. Determination of t_{dX} for

X = 0.75 in experiment 2.

2b give examples of such adjustments. It can be noted that:

$$\left(\frac{W_{\rm t}}{W_0}\right)^{1/3} = \frac{d_{\rm t}}{d_0} \tag{14}$$

Integration of the cubic root equation under sink conditions leads to a linear diameter profile in function of time *t*:

$$\frac{d_{\rm t}}{d_{\rm o}} = 1 - \frac{k_{\rm L} a_{\rm g} C_{\rm S}}{3\rho_{\rm S}}t\tag{15}$$

2.4 Mixing Time Determination

The mixing time technique based on the visual discoloration of iodine/iodide solution with sodium thiosulfate as tracer, has been used in this work [15]. This discoloration reaction is optimized in the presence of a starch indicator to obtain a color change from dark brown to completely colorless. Mixing time is defined as the time required to obtain complete discoloration. These experiments were also repeated five times in order to produce an average value.

3 Results and Discussion

3.1 Empirical Data Treatment

As in [4], successful fittings were obtained when Eq. (5) was fitted to the first 60 % of the release curve. Similarly, successful fittings were obtained when Eq. (6) was fitted to the entire release curve. An overview of the derived estimates for b and n from the fitting of Eqs. (5) and (6) is listed in Tab. 2.



Figure 2. a) $1 - (1 - X)^{1/3}$ vs. time (experiment 2); b) determination of k_{L} by the least mean squares method (experiment 2).

Table 2.	Values	of n	and	b	obtained.

Experiment	n [–]	R^2	b [-]	R^2
1	0.925	0.998	1.12	0.995
2	0.921	0.998	1.15	0.992
3	0.922	0.998	1.14	0.993
4	0.921	0.998	1.14	0.994
5	0.917	0.998	1.14	0.994
6	0.923	0.998	1.15	0.993
7	0.920	0.998	1.15	0.993
8	0.917	0.998	1.15	0.993
9	0.917	0.998	1.16	0.993
10	0.917	0.998	1.16	0.993

Constant values of n and b were obtained. This fact tends to prove that all experiments were governed by the same mechanism. We obtained 0.5 < n < 1, which indicates that solid release is limited by diffusion and transport in a liquid medium [5]. We obtained b > 1 which confirms the existence of a complex release mechanism [6]. However, as already underlined, it is difficult to derive more information on the dissolution mechanism involved, when using such semi-empirical approaches.

3.2 Influence of Hydrodynamics on Dissolution Process

The influence of operating conditions and mixing system design were first investigated through mass transfer coefficients as a way of experimental result validation. In a second step, dissolution times were determined. Tab. 3 shows experimental values of $k_{\rm L}$ and $t_{\rm dX}$ for dissolution degrees of 50, 75, 90 and 95 %.

3.2.1 Influence of Hydrodynamics on $k_{\rm L}$

First, the influence of stirring speed N on the mass transfer coefficient $k_{\rm L}$ was investigated. Fig. 3 shows the evolution of $k_{\rm L}$ against N. The results obtained obey a power law. The exponent is equal to 0.82 for the baffled system and to 0.797 for the unbaffled one. Nienow [16] explains that the value of the exponent is not universal but can vary from 0 to 1.4. More precisely, he underlines that this exponent depends on the relative values of experimental rotational speeds and just suspended stirring speed $N_{\rm js}$ defined by Zwietering [17]. According to him, the case of high values (superior to

Table 3. Values of $k_{\rm L}$ and $t_{\rm d}$ obtained.

Experiment	$k_{\rm L} \cdot 10^6 [{\rm m \ s}^{-1}]$	$t_{d50} [s]$	$t_{\rm d75} [\rm s]$	$t_{\rm d90} [s]$	$t_{\rm d95} [s]$
1	3.50	104	167	208	233
2	7.49	59	97	136	154
3	9.31	47	81	110	127
4	11.3	36	63	91	109
5	13.6	31	53	77	91
6	5.03	66	117	169	198
7	9.15	45	80	116	136
8	12.6	33	58	84	98
9	15.6	27	48	69	80
10	18.0	26	45	65	77



Figure 3. Evolution of k_L against *N* with and without baffles. The error bars show the standard deviation. \bullet : with baffles; \bigcirc : without baffles.

0.7) of the exponent would be observed when $N < N_{is}$ because, under such conditions, the repartition of solid particles in the liquid medium strongly depends on stirring speed. The opposite case (n = 0) would be observed when $N >> N_{is}$. When computing N_{is} we obtained $N_{is} = 5.3 \text{ s}^{-1}$, indicating that experimental values of stirring speeds were inferior to N_{is}. Experimental results obey Nienow's analysis. The values of $k_{\rm L}$ for a baffled system are inferior to those obtained for an unbaffled one. Vortex formation is known to have a positive effect on solid incorporation in liquid media [18]. Baffles induce strong modifications of the velocity field. They are used to prevent vortex formation by cancelling the tangential movement. An important consequence is the impact on power values. For a baffled mixing system, it is known that $N_{\rm p}$ is constant and equal to C_t under turbulent flow (Re_A > 10⁴). For an unbaffled system, the Froude number intervenes, and the power function, $\phi_{\rm p}$, must be considered. Therefore, two cases can be distinguished [19]:

a) with baffles

$$N_{\rm p} = \frac{P}{\rho N^3 D^5} = C_{\rm t} \quad \Rightarrow \quad P = C_{\rm t} \rho N^3 D^5 \tag{16}$$

b) without baffles

$$\Phi_{\rm p} = \frac{N_{\rm p}}{\Pr\left(\frac{a' - \log({\rm Re}_{\rm A})}{b'}\right)} = {\rm C'}_{\rm t} \implies$$

$$P = C'_{\rm t} \rho N^3 D^5 {\rm Fr} \frac{a' - \log({\rm Re}_{\rm A})}{b'} \qquad (17)$$

The characteristic parameters of the mixing system used here have been thus determined (see Tab. 4). These parameters allow us to determine the specific power ε for a baffled or an unbaffled mixing system. Fig. 4 shows the evolution of $k_{\rm L}$ against ε . This type of representation is more representative than plotting $k_{\rm L}$ against the stirring speed N. It was observed that at a fixed stirring speed, ε values are superior for a baffled mixing system. Consequently, the baffle impact is negative for two reasons: (i) the dissolution rate decreases (estimated in terms of $k_{\rm L}$ or $t_{\rm d}$), (ii) energy consumption is higher.

3.2.2 Influence of Hydrodynamics on $t_{\rm d}$

Fig. 5 shows the evolution of t_d against N for a fixed value of dissolution degree X. This evolution can be compared to the behavior of mixing time t_m against N. The evolution of mixing time as a function of stirring speed can be seen in Fig. 6. Dissolution time exhibits the same behavior as mixing time. However, an important difference is observed concerning the impact

Table 4. Characteristic parameters of mixing system used.

6

Ct	$C'_{\rm t}$	a'	b'
5	1	1	40

of baffles. Baffles have a positive effect, decreasing mixing time (see Fig. 6) although an increase in power is also detected. Fig. 7 shows the impact of baffles on dissolution time at a fixed value of X. In section 3.2.1, this impact was quantified in terms of mass transfer coefficient. The loss of efficiency due to baffles can also be measured using dissolution time as a key indicator.

The evolution of t_d against t_m was plotted in Fig. 8, with and without baffles, for X = 0.95 (a similar behavior is observed at lower values of *X*). Experimental results were fitted by a linear law following Eq. (18):

$$t_{\rm d} = a.t_{\rm m} + \beta \tag{18}$$

a and β were determined. For the baffled system, a value for *a* was obtained which is the double of the value obtained for the unbaffled system (5.6452 instead of 2.7897). This can be explained by the fact that baffles limiting vortex formation have not the same influence on mixing and dissolution processes. The values of β can be related to fundamental information about the mass transfer at high Reynolds number corresponding to the mixing time value tending to zero.

Most often, reactors are baffled so as to break the circular motion generated by the stirrer and to increase the axial flow rate. Therefore, baffles enhance turbulent mixing and induce lower values of mixing time under monophasic conditions. However, the dissolution process is a case in which the use of unbaffled tanks may be desirable because of the positive impact of tangential flow.

www.cet-journal.com



Figure 4. Evolution of k_{L} against the massic power ε with and without baffles. •: with baffles; \bigcirc : without baffles.



Figure 5. Evolution of t_d against *N* for different values of *X* without baffles. •: X = 0.95; \Box : X = 0.90; •: X = 0.75; +: X = 0.5.



Figure 6. Evolution of t_m against *N* with and without baffles. \bullet : with baffles; \bigcirc : without baffles.

3.2.3 Dimensional Analysis

Under monophasic conditions, dimensional analysis of experimental mixing time determination leads to a representation of the product of the impeller's rotational speed N multiplied by mixing time $t_{\rm m}$ as a function of the Reynolds number Re_A [20]. This product is called the mixing number. This number represents the number of revolutions required to achieve the complete mixing process. A lower value of $Nt_{\rm m}$ is expected for the baffled system due to the positive effect of baffles on mixing.

Using the least squares method, an average value was determined. $Nt_m = 28.9$ was obtained for the baffled system and $Nt_m = 92.6$ for the unbaffled one (see Fig. 9). However, the straight line plotted $(Nt_{\rm m} = 92.6)$ must be considered as a first approximation because the Froude number interferes especially at high Reynolds numbers. This can lead to a slight increase in mixing number against the Reynolds number. Considering the fact that mixing time can be dependent on experimental techniques used for determination, the values of mixing time obtained are in agreement with those proposed by Nienow [21]. Jeantet et al. [22] adapted this dimensional analysis and defined a rehydratation number in a study involving a dairy powder rehydratation process. Following this approach, the dissolution number was computed. Fig. 10 shows the evolution of the dissolution number against the Reynolds number for the baffled system.

In contrast to the results reported by Jeantet et al. [22], the dissolution number is not constant but obeys a power law. An increase in the dissolution degree induces an increase in the exponent. Fig. 11 shows the evolution of the dissolution number against the Reynolds number for the unbaffled system. For the unbaffled system, the exponent of the power law is comparatively constant. These correlations between the dissolution number and the Reynolds number are very useful tools especially during process scale-up.

4 Conclusion

A dissolution process in an agitated vessel was studied. In particular, several approaches were used to quantify the effect of hydrodynamics. For validation, mass transfer coefficients were calculated. A method was developed to determine the conductimetric curve dissolution time corresponding to various degrees of dissolution. It has been shown that, for the range of process conditions tested, impeller rotational speed strongly influences dissolution kinetics. The impact of baffles was also investigated. Baffles have no positive effects on the dissolution process because they break the tangential flow. This study is an example of the fact that there is no universal mixing system design. The choice depends on the purpose of the operation carried out (blending of miscible liquids, solid suspension or dis-



Figure 7. Evolution of t_d against *N* for X = 0.95 with and without baffles. • with baffles; \bigcirc : without baffles.



Figure 8. Evolution of t_d against t_m for X = 0.95 with and without baffles. •: with baffles; \bigcirc : without baffles.



Figure 9. Evolution of mixing number Nt_m of Reynolds number Re_A with and without baffles. \bullet : with baffles; \bigcirc : without baffles.

Chem. Eng. Technol. 2012, 35, No. 2, 247–254

© 2012 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim

D d_{t}

solution, chemical reactions, etc.) and can vary widely. As a consequence, a dissolution number is proposed to link dissolution time to hydrodynamic conditions. The correlation between dissolution number and Reynolds number appears to govern dissolution rate. This result, obtained with a highly soluble salt, agrees with the results previously reported, although the dissolution number is not constant. Robustness will be further tested, with slower dissolution processes, such as the process of benzoic acid in water.

Acknowledgment

The authors thank Aishwary Dale (Indian Institute of Technology, Bombay, India) for his valuable help in experimental work.

The authors have declared no conflict of interest.

Symbols used

[s ^{-b}]	Weibull equation coefficient
[-]	shape factor in power function
$[m^2]$	solid-liquid exchange surface
$[m^2]$	solid-liquid exchange surface at
	time $t = 0$
$[m^{-1}]$	specific area of solid particles
[-]	exponent of Weibull equation
[-]	shape factor in power function
$[\text{kg m}^{-3}]$	massic concentration of solid
$[\text{kg m}^{-3}]$	solubility of solid under
	experimental conditions
[-]	power number value under
	turbulent conditions with baffles
[-]	power function value under
	turbulent conditions without
	baffles
[m]	impeller diameter
[m]	diameter of solid particle at time t
[m]	initial diameter of solid particle
$[m s^{-2}]$	gravitational constant
$[s^{-1}]$	dissolution rate constant (Eq. (1))
$[m s^{-1}]$	mass transfer coefficient
[s ⁻ⁿ]	coefficient of power law equation
[kg]	initial dissolved mass
[kg]	total dissolved mass at time t
[-]	exponent of power law equation
$[s^{-1}]$	stirring speed
[W]	puissance
[K]	absolute temperature
[s]	time
[s]	mixing time
[s]	dissolution time
[kg]	initial solid mass
[kg]	solid mass at time t
[_]	dissolution degree



Figure 10. Dissolution number against Reynolds number with baffles. $\blacklozenge: X = 0.95$; $\Box: X = 0.90$; $\blacklozenge: X = 0.75$; +: X = 0.5.



Figure 11. Dissolution number against Reynolds number without baffles. (: X = 0.95; \Box : X = 0.90; \oplus : X = 0.75; +: X = 0.5.

Greek letters

a	[—]	slope of curve $t_d = a t_m + \beta$
β	[s]	theoretical value of t_d when $t_m = 0$
		following the equation $t_d = a t_m + \beta$
3	$[W kg^{-3}]$	massic power
μ	[Pas]	viscosity of liquid phase
ρ	$[\text{kg m}^{-3}]$	density of liquid phase
$\rho_{\rm S}$	$[\text{kg m}^{-3}]$	density of solid (NaOH)

Dimensionless numbers

Fr Froude number; Fr =
$$\frac{N^2 D}{g}$$

N_p power number; N_p = $\frac{P}{\rho N^3 D^5}$

M

$$\Phi_{\rm P} \quad \text{power function; } \Phi_{\rm p} = \frac{N_{\rm P}}{Fr\left(\frac{a' - \log(Re_{\lambda})}{b'}\right)}$$

Re_A Reynolds Number; Re_A = $\frac{\rho ND^2}{2\mu}$

*Nt*_m mixing number

*Nt*_d dissolution number

References

- [1] A. S. Noyes, W. Whitney, J. Am. Chem. Soc. 1897, 19, 930.
- [2] A. W. Hixon, J. H. Crowell, Ind. Eng. Chem. 1931, 23, 923.
- [3] C. Brazel, N. Peppas, *Eur. J. Pharm. Biopharm.* 2000, 49, 47.
- [4] V. Papadopoulou, K. Kosmidis, M. Vlachou, P. Macheras, Int. J. Pharm. 2006, 309, 44.
- [5] P. Costa, J. M. Sousa Lobo, Eur. J. Pharm. Sci. 2001, 13, 123.
- [6] A. Dokoumetzidis, P. Macheras, Int. J. Pharm. 2006, 321, 1.
- [7] J. J. Barker, R. E. Treybal, AIChE J. 1960, 6, 289.
- [8] P. Harriot, AIChE J. 1962, 8, 93.
- [9] W. E. Ranz, W. R. Marshall, Chem. Eng. Prog. 1952, 48, 141.
- [10] P. V. Danckwerts, Ind. Eng. Chem. 1951, 43, 1460.
- [11] R. Higbie, Inst. Chem. Eng. 1935, 35, 36.
- [12] H. L. Toor, J. M. Marchello, AIChE J. 1958, 4, 97.
- [13] D. M. Levins, J. R. Glastonbury, Chem. Eng. Sci. 1972, 27, 537.
- [14] F. A. Holland, F. S. Chapman, *Liquid mixing and processing in stirred tanks*, Reinhold Publishing Corporation, New York **1966**.
- [15] D. G. Cronin, A. W. Nienow, G. W. Moody, Food Bioprod. Process. (Trans. Inst. Chem. Eng. Part C) 1994, 72, 35.
- [16] N. Harnby, M. F. Edwards, A. W. Nienow, *Mixing in the Process Industries*, Butterworth Heinemann, Oxford 1992.

[17] T. N. Zwietering, Chem. Eng. Sci. 1958, 8, 244.

- [18] A. W. Hixon, G. A. Wilkens, Ind. Eng. Chem. 1933, 25 (11), 1196.
- [19] S. Nagata, *Mixing Principles and Applications*, John Wiley and Sons Inc., New York **1975**.
- [20] J. B. Joshi, A. B. Pandit, M. M. Sharma, Chem. Eng. Sci. 1982, 37 (6), 813.
- [21] A. W. Nienow, Chem. Eng. Sci. 1997, 52 (15), 2557.
- [22] R. Jeantet, P. Schuck, T. Six, C. Andre, G. Delaplace, *Dairy Sci. Technol.* 2010, 90, 225.

Christophe André¹ Benjamin Boissier² Luc Fillaudeau³

¹HEI, Lille, France.

² ENSAM, Montpellier, France.

³NSA-LBB, Toulouse, France.

Research Article

Residence Time Distribution in Tubular Joule Effect Heaters with and without Geometric Modifications

In the food industry, heat treatment of highly viscous fluids in continuous processes is becoming more and more common, and the process should perform as a homogenous thermal treatment, in order to ensure quality and safety of the final product. To improve treatment homogeneity, geometric modifications can be used even in the laminar regime, to induce flow perturbation and mixing. The objectives of this work include: (i) Investigation of the residence time distribution (RTD) for industrial indirect Joule effect heaters (JEH), with smooth (ST) and modified (MT) tubes, (ii) Demonstration and quantification of the efficiency of the geometrical modifications, and (iii) Proposition of a single semi-empirical model including the flow regime (10 < Re < 2000) and tube diameters (18 and 23 mm). The results obtained confirm that the simple Dispersed Plug Flow (DPF) model is not adaptable to small Reynolds numbers. Further analysis demonstrates that certain geometrical modifications improve the treatment homogeneity by increasing the plug flow contribution and reducing the value of the reduced variance. These beneficial effects increase when the Reynolds number is increased, the nominal diameter is reduced, and modified tubes are used. The proposed model enables the prediction of the RTD in JEH with an accurate degree of confidence.

Keywords: Dispersions, Modeling, Residence time distribution, Turbular heat exchanger *Received:* August 24, 2006; *revised:* September 25, 2006; *accepted:* September 29, 2006 **DOI:** 10.1002/ceat.200600253

1 Introduction

Heat treatment remains the oldest and the most frequently used process in the food industry, e.g., heating, pasteurization, sterilization, cooking and cooling. Heat exchangers are still fundamental equipment in the food processing industry to perform this operation. In spite of great improvements in conventional technologies over the past few decades, heat treatment remains a complex operation which is sometimes delicate. Some examples of the complex nature of the process include reduction of the heat transfer coefficient, fouling mechanism impact and kinetics, heat treatment homogeneity and flow structure. Due to industrial and social requirements, and also to technical and scientific progress, the food processing industry is facing new challenges, i.e., a wide diversification of processing equipment and the emergence of new food matrices which are more and more complex. Therefore, the choice of technologies and processes should achieve the following goals: (i) to ensure the microbiological safety of a given product up to a date limit; (ii) to improve product quality through better control and understanding of the process, and (iii) to enhance the competitiveness and reliability of the process. In this context, the development of electrical technologies such as indirect and direct Joule effect heaters (IJE, DJE) is of great scientific importance and industrial interest.

Previous studies have enabled the selection of geometrical modifications for food applications with respect to the pressure drop increase, heat transfer coefficient, propensity to fouling and cleaning [1]. This theory was validated with a model and a real product at the industrial scale [2], as well as being patented. However, others publications deal with geometrical modification of the whole exchanger in order to generate hydrodynamic instabilities in the laminar flow, e.g., chaotic advection [3–6]. Harion [6] reported mixing and heat transfer increases in a tube with alternate successive deformations. This geometry from a cylindrical tube, imposes radial contractions and stretching on the fluid flow, maintaining a constant (or quasi constant) section. The deformation based on alternate elliptic forms, is a function of the amplitude of the undulations, the streamwise wavelength and the direction of the



Correspondence: Dr. C. André (christophe.andre@hei.fr), HEI, 13, rue de Toul, F-59046 Lille, France.

principal axes of deformation. This results in an efficiency factor of ca. 1.2, for Re < 3000¹⁾. Castelain [3] has investigated the efficiency of a chaotic advection regime in a twisted duct flow. A configuration representing a three-dimensional steady open flow, consisting of helical and chaotic mixers composed of identical bends, was demonstrated. Each bend consisted of a 90 ° curved stainless steel tube of circular cross-section ($\emptyset_{int/ext} = 46/48$ mm). The mean radius of curvature of the bends is 126.3 mm, which yields a mean curvature ratio of 0.18. The results show that at low Reynolds numbers, heat transfer is higher and heating is more homogeneous for chaotic advection flow, with no increase in energy expenditure. At high Reynolds numbers, the configuration has no influence on the heat transfer.

Heat treatment in continuous processes should result in homogenous thermal treatment in order to ensure the quality and safety of the final product. However, the flow regime is often laminar and mixed convection occurs. To improve treatment homogeneity, geometric modifications can be used even in the laminar regime, to induce flow perturbation and mixing. As a response variable, the residence time distribution (RTD) is an important parameter, and has been commonly used in the determination of the performances of industrial heat exchangers [7-9]. RTD analyses provide information about the degree of mixing, cooking and shearing, which all play an important role in the final product quality. RTDs are used for the scale-up and improvement of equipment design. However, the RTD of real processes arise from a complex interaction between the velocity profile, diffusion, and turbulence, etc. For the analysis of experimental results, the non-ideality of the tracer and its detectiability must also be considered. RTDs are often described on the basis of simple models, dispersed plug flow (DPF) or a cascade of N continuous stirred tank reactors (CSTR), whereby the fitting is not always good. The assumptions made for these models, only partially characterize the existing real processes.

In this work, the RTD of tubular JEH was investigated following the methodology described by Thereska [10]. In the first step, the friction curves and the Residence Time Distribution (RTD) study of industrial exchangers made by tubular JEH (6 tubes and junctions), with and without geometric modifications, for different sizes of exchangers ($\emptyset_{int/ext} = 18/$ 20 mm and 23/25 mm) were measured at room temperature. From experimental data, the normalized and reduced experimental inlet, $x(\theta)$ and outlet, $y(\theta)$ signals with $\theta = t/\bar{t}_s$, were deduced. In the second step, the analytical solution of E(t) was obtained from the data analyzed. The experimental criteria (mean residence time and standard deviation) were quantified versus tube diameters, geometric modifications and flow regimes [11]. Finally, a systemic analysis compares the dispersed plug flow model (DPF) and an empirical reactor model (plug flow + 2 perfect mixers in series). The reactor behavior was described using DTS Pro 4.2 software [12]. The second model enabled the quantification of the plug flow contribution, and the reduced variance versus flow regime and geometrical criteria.

2 Theory

2.1 Friction Curves

The sizing of heat transfer equipment requires a knowledge of both the heat transfer area and the pressure drop. For heat exchangers, performance is described by empirical correlations between dimensionless numbers, such as the Darcy, Reynolds or Prandtl numbers. Isothermal flow of Newtonian and non-Newtonian fluids in relatively simple geometries has been studied extensively. Shah and London [13] gave a complete overview of the analytical solutions obtained in laminar flow, and semi-empirical correlations for transition and turbulent flow regimes.

Da is the Darcy number and Re is the classical Reynolds number, defined as follows:

$$Da = \frac{2d_{\rm h}}{\rho U^2} \frac{\Delta P}{L} \tag{1}$$

and

$$\operatorname{Re} = \frac{\rho U d_{\mathrm{h}}}{\mu} \tag{2}$$

The friction curve is the representation of Da against Re. The relationship between the friction factor and the Reynolds numbers for laminar isothermal flow of Newtonian fluids, in cylindrical ducts is given by Eq. (3). The term, ξ , which is the product of the Reynolds and Darcy numbers, represents the geometrical parameters. It may be theoretical (simple geometries, e.g., circular ducts, $\xi = 8$, infinite parallel plate, $\xi = 12$, and square duct, $\xi = 7.113$), semi-theoretical or experimental [13].

$$Da_{lam} = \frac{8\xi}{Re}$$
(3)

For transition and turbulent flow regimes, numerous semiempirical correlations can be used (e.g., Blassius) with the following expression (a, b, c, and d as constant coefficients):

$$Da_{turb} = a \operatorname{Re}^{b}$$
 and $Da_{trans} = c \operatorname{Re}^{d}$ (4)

The friction curve can be described using a unique expression based on Churchill's model, Eq. (5). This expression can be used for a laminar, transitory or a turbulent flow regime [14]. This expression is based on the sum of the three regime contributions, as follows:

$$Da = \left(\left((Da)_{tur}^{n1} + (Da)_{tran}^{n1} \right)^{n2/n1} + (Da)_{lam}^{n2} \right)^{1/n2}$$
(5)

The critical Reynolds numbers, Re_{c1} and Re_{c2} , transition from laminar to transitory regimes, and from transitory to turbulent regimes, can be identified when the differences between the experimental and modeled Darcy numbers, exceed 10 %.

2.2 Residence Time Distribution

Flow patterns in continuous systems are usually too complex to be experimentally measured or theoretically predicted from solutions of the Navier-Stokes equation or statistical mechanical considerations. The residence time of an element in a fluid

¹⁾ List of symbols at the end of the paper.

Chem. Eng. Technol. 2007, 30, No. 1, 33-40

is defined as the time elapsed from its entry into the system until it reaches the exit. The distribution of these times is called the RTD function of the fluid E, or the E-curve, and represents the fraction of fluid leaving the system at each time interval [11]. One can define x(t) and y(t) as the experimental inlet and outlet normalized signals. The mathematical relationship between x(t) and y(t) is described by Eq. (6). The product of the convolution can be replaced in the Laplace domain by a simple product, where X(s), Y(s), and G(s) are the Laplace transforms of x(t), y(t), and E(t), Eq. (7):

$$y(t) = \int_0^t E(u)x(t-u)\mathrm{d}u \tag{6}$$

and

$$Y(s) = G(s)X(s) \tag{7}$$

Each distribution function can be characterized by a set of moments and centered moments of order *j* [11, 15]. The function E(t) is characterized by the mean residence time, t_S (see Eq. (8)) which is a moment of first order, Γ^{l} . The mean holding time, τ , is calculated as the ratio between the volume of the corresponding test section and the flow rate, Eq. (9). For such an experimental setup, $t_{\rm S}$ and τ must be equal. If this is not the case, then the experimental results must be rejected, which is an indication that a channel has occurred in the fluid circuit.

$$\Gamma^{1} = t_{\rm S} = \int_{0}^{\infty} t E(t) \mathrm{d}t \tag{8}$$

and

$$\tau = \frac{V}{Q} \tag{9}$$

The variance (σ^2) and reduced variance (β^2) corresponding to the centered moments of second order, $\Gamma^{2'}$, are defined by Eq. (10) and Eq. (11):

$$\Gamma^{2'} = \sigma^2 = \int_0^\infty (t - t_{\rm S})^2 E(t) dt = \int_0^\infty t^2 E(t) dt - t_{\rm S}^2$$
(10)
and

$$\beta^2 = \frac{\sigma^2}{t_s^2} \tag{11}$$

The centered moment of third order, $\Gamma^{3'}$, estimates the skewness, which is the deviation from a symmetrical distribution (S = 0). A left-skew distribution exists for S < 0 and a right skew for S > 0.

$$\Gamma^{3'} = S = \int_{0}^{\infty} (t - t_{\rm S})^3 E(t) dt$$
(12)

The centered moment of fourth order, $\varGamma^{4'}$ evaluates the spread of the RTD.

$$\Gamma^{4'} = \int_{0}^{\infty} (t - t_{\rm S})^4 E(t) \mathrm{d}t \tag{13}$$

In theory, all moments and centered moments of order *j* could be calculated. However, the quality of the signals often leads to non-significant or unreliable results for $\Gamma^{3'}$ and $\Gamma^{4'}$.

Turbular heat exchanger 35

In terms of the type of flow encountered in a continuous reactor, there are two limiting cases, the ideal plug flow reactor (PFR) and the continuous stirred tank reactor (CSTR). In the PFR, the velocity profile at a given cross-section is flat without axial mixing of fluid elements, which therefore, all have the same residence time. In the CSTR, the fluid is perfectly stirred, which leads to a broad RTD. The flow pattern in a real reactor does not conform to the PFR or CSTR, and in some cases, it even converges [16].

To consider the deviation from ideal flow behavior, simple models such as a cascade of N continuous stirred tank reactors (CSTR) or a dispersed plug flow (DPF) have been extensively used to model RTD experiments, in a large variety of flow systems [3, 7, 8, 16].

The current model considers mass transport in the axial direction as a diffusion-like process (analogous to Fick's diffusion law) in terms of an effective longitudinal diffusivity, D_{ax} (axial dispersion coefficient), which is superimposed on the plug flow. The concentration C, of the tracer injected uniformly over the cross-section at the inlet of the system, is given as a function of time t, and the streamwise coordinate z, by Eq. (14). The axial dispersion coefficient is assumed to be independent of the concentration and the position. The first assumption is usually verified if molecular diffusion can be neglected, and the second can be used when a fully developed flow is obtained at the inlet and outlet of the process.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{\rm ax} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - U \frac{\partial C}{\partial z}$$
(14)

The transfer function G, of the plug flow with the axial dispersion model, is easily found from Eq. (14), when dispersion extends from before the inlet detector to after the outlet detector. This choice for the boundary conditions (called "openopen") leads to the following expression, Eq. (15):

$$E(t) = \frac{1}{2} \left(\frac{\mathrm{Pe}_{\mathrm{L}}}{\pi \tau t}\right)^{1/2} \exp\left(-\frac{\mathrm{Pe}_{\mathrm{L}}(\tau - t)^{2}}{4\tau t}\right)$$
(15)

with

$$\frac{t_{\rm S}}{\tau} = 1 + \frac{2}{{\rm Pe}_{\rm L}}, \qquad \beta^2 = \frac{\sigma^2}{t_{\rm s}^2} = \frac{2}{{\rm Pe}_{\rm L}} + \frac{8}{{\rm Pe}_{\rm L}^2}$$
(16)

and

$$\operatorname{Pe}_{\mathrm{L}} = \frac{L U}{D_{\mathrm{ax}}} \tag{17}$$

Pe_L is calculated from the pipe length and is a dimensionless measure of the axial dispersion, Dax. The DPF model is supposed to yield the best agreement between numerical and experimental results. Furthermore, it has the advantage of necessitating the estimation of only one parameter, i.e., the Peclet number, Pe_L , Eq. (17).

3 Experimental

3.1 **Experimental Setup and Injection Device**

The experimental setup, see Fig. 1, consisted of an agitated vessel (600 L), a volumetric feed pump (Albin, MR 25I2-207548) and a tubular Joule effect heater (JEH). The JEH is a

http://www.cet-journal.com

horizontal tubular heat exchanger supplied by the French company Actini (P = 20 kW, U = 18 V, I = 600 A). From a hydraulic point of view, the JEH consists of six tubes of 1.40 m or 1.50 m length, with 1.20 m of heating length, see Tab. 1. The smooth tubes were regular circular straight tubes with an internal diameter of 18 and 23 mm and a 1 mm wall thickness. The modified tubes are made from smooth tubes, with the geometrical modifications consisting of three pinchings on a section, with a 120° angle between each of them. This pattern is repeated along the heating length with regular spacings (100 or 140 mm) and an alternating angle (60°). For each pinching, the tube wall was pushed inside the tube with a depth ranging from 4–5 mm, on a length of 25 mm.

An injection and detection device was developed to realize homogenous injections of the tracer, even in a laminar flow. Tracer was injected by applying a backpressure on a ceramic micro-filtration membrane (19 channels, diameter 2.5 mm, permeable length, L = 2 cm, see Fig. 1). The objective is to realize an ideal pulse [11], and the tracer was quantified by electrical conductivity measurements at the inlet and outlet of



Figure 1. Experimental setup and injection device (SI) – image of smooth (ST) and modified (MT) tubes. a) QP: Flow meter, P1, P2: Relative pressure sensors; DP: Differential pressure sensor; T1, T2: Temperature gauges (Pt100); SI: Injection device, C1, C2: Electrical conductimeter. b: P_i : Injection pressure; P_{fc} . Flow pressure; P_{atm} : Room Pressure; Q: Flow rate.

 Table 1. Geometrical characteristics of ST and MT.

Tube	L [mm]	d _h [mm]	nb	e [mm]	$L_{\rm m}/l_{\rm m}/e_{\rm m}$ [mm]	V [L]	ΔV [%]
ST 18/20	1400	17.91	0	-	_/_/_	2.37	-
MT 18/20	1400	17.91	9	140	25/13/4	2.31	2.5 %
ST 23/25	1500	22.93	0	-	_/_/_	4.18	-
MT 23/25	1500	22.93	12	100	25/14/5	3.94	5.7 %

the heat exchanger. The injected volume and tracer quantity were controlled at each injection.

The experimental measurements included flow rate, temperature, electric conductivity, differential and relative pressures and electrical conductivity. The flow rate was measured using an electromagnetic flow meter (KHRONE, type X1000/6, precision ± 1 %), the temperatures by use of platinum resistance probes (Pt 100 Ω) placed at the entrance and exit of each exchange zone (precision ± 0.5 °C) and the pressure with relative pressure sensors (JPB, type TB233, precision 0.2%). The differential pressures (Bayley Fischer Porter: 0-75 mBar and 0-900 mBar, and Schlumberger: 0-750 mBar and 0-2 Bar) were measured to establish the friction curve. The electrical conductivity was monitored with two sensors at the inlet and outlet of the exchanger (Stratos, type 9117/93, no. 31308, K = 0.3790 and type 9111/93, no. 31403, K = 0.2340, range 0.2 μ S-1000 mS, precision ± 1 %). All signals were electrically conditioned (module SCX-1) and collected using a data acquisition card (AT-MOI-16E-10). A software driver, Ni-DAQ, made the configuration and control of data acquisition system possible. The measurements were saved on a PC (PC Pentium 200 MHz) with specific software (Labview).

3.2 Fluid and Experimental Conditions

Friction curves and RTD experiments were conducted at room temperature (21.7 ± 3.2 °C) with water and sucrose solutions.

For friction curve determination, the flow rate ranged between 100–7000 L h^{-1} , whereas for RTD experiments, the flow rates remained close to 100 L h^{-1} .

For RTD, three Reynolds numbers were investigated corresponding to the turbulent, transition and laminar regimes, see Tab. 2. Each operating condition was repeated at least three times. A passive tracer, NaCl was used as the tracer for RTD and detected by a conductimetric method.

 Table 2. Friction curve parameters and critical Reynolds numbers.

	Laminar		Turbulent				
	8ξ	Re _{c1}	а	b	Re _{c2}		
Tube	64	< 2000	0.316	-0.25	>4000		
ST18/20	53.8	200	0.25	-0.20	1500		
MT18/20	75.1	100	0.85	-0.25	500		
ST23/25	60.1	300	0.25	-0.17	1300		
MT23/25	78.7	150	0.85	-0.21	450		

Chem. Eng. Technol. 2007, 30, No. 1, 33-40

4 Results and Discussion

4.1 Friction Curves

The friction curves (see Fig. 2) exhibit a classical shape for an industrial tubular heat exchanger, including 180° junctions between the tubes. In the current study, Churchill's equation is simplified and modeled by three parameters (8. ξ , *a*, and *b*, with $n_1 = 1$ and $n_2 = 2$), which are experimentally identified in laminar and turbulent regimes:

$$\mathrm{Da} = \left(\mathrm{Da}_{\mathrm{lam}}^2 + \mathrm{Da}_{\mathrm{turb}}^2\right)^{1/2} \tag{18}$$

The geometrical factor and critical Reynolds numbers, Re_{c1} and Re_{c2} , are determined from the friction curves defining the laminar, transitory and turbulent regimes (see Tab. 2). The Darcy number does not increase in the transitory regime for opposing JEH with a single tube. The more complex is the geometry, the lower the critical Reynolds numbers. For a given flow rate, the turbulent regime is quickly reached in the modified tubes, which may contribute to reducing the dispersion.



Figure 2. Friction curves of ST and MT, 18/20 mm.

Table 3. Average operating conditions and experimental data.

37

4.2 Analytical Solutions: Data Analysis and RTD Formulation

Three flow regimes (Re \approx 110, 925, and 1700), two diameters ($\emptyset_{int/ext} = 18/20$ and 23/25 mm) and two geometries (smooth and modified) were scrutinized in agreement with established friction curves and corresponding to industrial practice. The measured conductivities are converted into concentration values. The concentration profiles of the measured inlet and outlet signals were obtained as a function of time. Fig. 3 shows typical inlet and outlet normalized signals.

Experimental results where the mean holding time τ , differed significantly from the mean residence time t_{s} , obtained from the RTD curve (above 10 %), were rejected. The normalized and reduced experimental, $x(\theta)$ and $y(\theta)$ signals with $\theta = t/\bar{t}_s$ enabled to the determination of the extremum point (x_{max} and $\theta(x_{max})$) and the values of θ for F = 0.05, 0.50, and 0.95 of RTD signal (see Tab. 3). Average experimental data (the mean value of at least three runs) are reported in Tab. 3.



Figure 3. Inlet and outlet normalized signals, $x(\theta)$ and $y(\theta)$ versus θ , for ST 18/20 mm, Re = 138.

	$Q [L h^{-1}]$	<i>T</i> [°C]	V[L]	τ [s]	Re [–]	$x_{\max}(\theta)$	$\theta(x_{\max})$	$\theta_{0.05}$	$\theta_{0.50}$	$\theta_{0.95}$	
ST	96.59	18.56	2.37	88.45	1827	2.68	0.946	0.845	1.04	1.95	
18/20	92.19	24.67	2.37	92.57	908	2.17	0.925	0.797	1.03	2.41	
	97.19	25.81	2.37	87.79	138	1.76	0.833	0.754	1.04	1.82	
MT	93.09	21.58	2.31	89.33	1893	4.62	1.102	1.016	1.13	1.58	
18/20	95.31	22.84	2.31	87.29	892	3.28	1.040	0.925	1.08	1.47	
	98.08	22.74	2.31	84.79	123	2.41	0.919	0.804	1.01	1.61	
ST 23/25	108.79	16.19	4.18	138.35	1518	2.64	0.909	0.823	1.01	2.10	
	98.19	23.09	4.18	153.27	868	2.49	0.909	0.798	1.00	1.92	
	108.39	22.68	4.18	138.84	89	1.87	0.823	0.688	0.97	1.59	
MT	107.74	16.05	3.94	131.66	1494	4.66	1.037	0.948	1.06	1.36	
23/25	110.04	24.26	3.94	128.93	1032	2.82	1.051	0.921	1.11	1.73	
	107.11	22.96	3.94	132.44	90	2.21	0.821	0.715	0.95	1.57	

38 C. André et al.

Chem. Eng. Technol. 2007, 30, No. 1, 33-40

4.3 Systemic Analysis

4.3.1 Comparison between DPF and PF+2CSTR Models

The DPF model, Eq. (13), has been widely applied to describe the flow in a tube, and is frequently selected to simulate flow in holding tubes in aseptic processes [7, 17]. The Peclet number Pe_L, was determined by curve fitting and minimizing the sum of the squares of residuals (SSR). If the model is in agreement with the experimental β^2 values, showing the difference between ST and MT (see Tab. 4); the analysis of specific RTD curves is found to yield inconsistent and inaccurate results under laminar and transitory flow regimes. Consequently, the representation of the Peclet number Pe_L, versus the dimensionless Reynolds Schmidt product, or the calculation of the axial dispersion coefficient D_{axy} would not have any meaning in the current case.

In order to obtain a better agreement, a second model defined by a cascade of a plug reactor (τ_p) in series with 2 CSTR (τ_{cs}) was investigated, see Fig. 4. This model was chosen because it is simple and correlates closely to the physical structure of the process. However, other models can also be used as reported by Ham and Platzer [15]. The corresponding express-

sions for the transfer function, G(s) and E(t) are formulated by Eq. (19) and Eq. (20):

$$G(s) = \frac{\exp\left(-s\tau_{\rm p}\right)}{\left(1 + \left(\frac{s\tau_{\rm cs}}{2}\right)\right)^2} \tag{19}$$

$$E(t) = H(t - \tau_{\rm p}) \left(\frac{2}{\tau_{\rm cs}}\right)^2 (t - \tau_{\rm p}) \exp\left(\frac{-2(t - \tau_{\rm p})}{\tau_{\rm cs}}\right)$$
(20)

The main advantage of this simple model is that only one parameter *a*, is used, which is the plug reactor contribution, in terms of residence time, Eq. (21). Van Laar's equation leads to a simple relationship between *a* and β^2 , Eq. (22).

$$a = \frac{\tau_{\rm p}}{\tau_{\rm p} + \tau_{\rm cs}} \tag{21}$$

$$\beta^2 = \frac{(1-a)^2}{2}$$
(22)

DTS Progepi software was used to determine *a* and β^2 . The function *E*(*t*) was obtained for all experiments, and all parameters are reported in Tab. 4. This allows a comparison be-



Figure 4. Cascade of a plug reactor (τ_p) in series with 2CSTR.

Table 4. Parameters obtained from the fitting of PDF and PF+2CSTR models with experimental data.

	Experiments			DPF mc	DPF model			PF+2CSTR model		
	Re [–]	τ [s]	<i>t</i> _S [s]	β^2 [–]	Pe_{L}	$t_{\rm S} [s]$	β^2 [–]	$t_{\rm S} [s]$	a [-]	β^2 [–]
ST 18/20	1827	88.45	97.5	0.104	39	93.0	0.057	93.3	0.669	0.0547
	908	92.57	108.2	0.192	35	97.9	0.064	96.2	0.656	0.0592
	138	87.79	93.8	0.104	15	99.5	0.169	91.0	0.490	0.1302
MT 18/20	1893	89.33	100.4	0.033	264	90.0	0.008	96.5	0.870	0.008
	892	87.29	94.1	0.024	105	89.0	0.020	93.6	0.795	0.021
	123	84.79	86.5	0.062	41	88.9	0.054	85.8	0.680	0.051
ST 23/25	1518	138.35	155.0	0.144	56	143.3	0.038	139.3	0.723	0.038
	868	153.27	165.7	0.130	47	159.8	0.046	150.3	0.701	0.045
	89	138.84	136.9	0.085	25	149.9	0.093	137.5	0.597	0.081
MT 23/25	1494	131.66	139.2	0.019	203	133.0	0.010	136.6	0.852	0.011
	1032	128.93	143.3	0.064	84	132.0	0.025	131.9	0.773	0.026
	90	132.44	129.6	0.077	31	141.0	0.073	127.8	0.637	0.066

Chem. Eng. Technol. 2007, 30, No. 1, 33-40



Figure 5. Comparison between experimental, DPF and PF+2CSTR models (MT 18/20 mm in transitory flow regime, Re = 892).

tween experimental conditions which are not a function of the inlet signal x(t). The PF+2CSTR model and experimental curves provide a very close fit, and deliver β^2 as an indication of the difference between ST and MT in terms of spread. Fig. 5 shows an example of adjustment of the parameters models.



Figure 6. RTD curves, E(t) versus Reynolds numbers for smooth and modified tubes and diameters 18/20 (A) and 23/25 mm (B).

4.3.2 Impact of Flow Regime, Dimension and Geometrical Modifications

Fig. 6 represents the RTD curves issued from the semi-empirical model versus the geometry, the tube diameter and Reynolds numbers. The geometrical modifications improve treatment homogeneity by increasing the plug flow contribution and reducing the value of the reduced variance, see Fig. 7. These beneficial effects increase when the Reynolds number is increased, the nominal diameter is reduced and the modified tubes are used. However, the reduction of dispersion is stronger in the laminar and transitory regimes, than in turbulent flow. The semi-empirical model developed (PF+2CSTR), enables the prediction of RTD in JEH with an accurate degree of confidence. The dispersion criterion, however, is insufficient to fully characterize and compare the performances of a mixing device with other systems. Additional

parameters, such as the energy consumed, must also be taken into account. An increased pressure drop due to the higher Darcy number exists between smooth and modified tubes.



Figure 7. Reduced variance from semi-empirical model of RTD curves versus Reynolds numbers for smooth and modified tubes and diameters 18/20 mm and 23/25 mm.

5 Conclusions

A tracer injection and detection method has been used successfully to obtain RTD curves in a Joule effect heater. The experimental evaluation and analysis of the residence time distribution in tubular Joule effect heaters has allowed the determination of the reduced variance, β^2 , demonstrating the impact of the geometrical modifications. The semi-empirical model developed (PF + 2 CSTR) is closely correlated to the physical structure of the process and is able to predict RTD in JEH with an accurate degree of confidence. The parameters from the model can be easily determined from the experimental results. The results obtained confirm that a simple DPF model is not adaptable to the small Reynolds numbers.

This work demonstrates that the geometrical modifications improve treatment homogeneity. These beneficial effects in-

40 C. André et al.

crease when the Reynolds number is increased, and the nominal diameter is reduced. These benefits should be compared to increased pressure drop due to higher Darcy numbers.

In the future, the impact of heat transfer must be taken into account and investigated with Newtonian and non-Newtonian fluids.

Symbols used

a, b, c, d	[-]	coefficient
С	[mol/L]	concentration
Da	[-]	Darcy number
$D_{\rm ax}$	$[m^2/s]$	axial dispersion coefficient
$d_{\rm h}$	[m]	hydraulic diameter
е	[m]	space
Ε	[s] or [–]	RTD function
F	[_]	cumulative RTD function
G	[-]	Laplace transform of <i>E</i>
L	[m]	length
п	[-]	exponents
Per	[_]	Peclet number calculated with
- L		the pipe length
0	$[m^3/s]$	volume flow rate
Re	[_]	Reynolds number
S	$[s^{3}]$	skewness
t	[s]	time
te	[s]	mean residence time
T	[°C]	temperature
U	[0] [m/s]	mean fluid velocity
V	$[m^3]$	volume
x v	[_]	inlet and outlet normalized
<i>A</i> , <i>y</i>	[]	signale
7	[m]	avial direction
$\frac{z}{X V}$	[_]	Laplace transform of x and y
Λ, 1	[_]	Laplace transform of x and y
Greek syn	nbols	
a	[_]	plug flow contribution
z	[_]	geometrical factor
β^2	[_]	reduced variance
р A	[_]	reduced time
ΔΡ	[bar]	pressure drop
	[Dar]	viecosity
μ	$[kam^{-3}]$	fluid density
r^{2}	[Kg III] [e ²]	variance
D ⁱ	[0]	moment or order i
л Г [']	ره ا [م]	contared moment or order :
1 °	[8]	mean holding times
l	[S]	mean notding time

Chem. Eng. Technol. 2007, 30, No. 1, 33-40

Indices

CS	constant stirred tank reactor
р	piston reactor
lam	laminar
m	modification
trans	transitory
turb	turbulent

References

- [1] S. Lefebvre, Ph.D. Thesis, UTC, Compiegne, France 1998.
- [2] L. Fillaudeau et al., in Proc. of the 5th World Conf. on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics (Eds: G. P. Celata, P. Di Marco, A. Goulas, A. Mariani), Thessaloniki, Greece 2001.
- [3] C. Castelain, A. Mokrani, P. Legentilhomme, H. Peerhossaini, *Exp. Fluids* 1997, 22, 359.
- [4] C. Castelain, P. Legentilhomme, Chem. Eng. J. 2006, 120, 181.
- [5] C. Chagny, C. Castelain, H. Peerhossaini, *Appl. Therm. Eng.* 2000, 20, 1615.
- [6] J. L. Harion, B. Bertin, B. Bahadori, in *Proc. of the 3rd European Thermal Sciences Conf.* (Eds: E. W. P. Hahne, W. Heidemann, K. Spindler), Edizioni ETS, Pisa, Italy 2000.
- [7] A. Pinheiro Torres, F. A. R. Oliviera, S. P. Fortuna, J. Food Eng. 1998, 35, 147.
- [8] W. Roetzel, F. Balzereit, Int. J. Therm. Sci. 2000, 39, 1028.
- [9] M. F. Sancho, M. A. Rao, J. Food Eng. 1992, 15, 1.
- [10] J. Thereska, in Proc. of Récent Progrès en Génie des Procédés: Traceurs et Méthodes de Traçage, Lavoisier Tec&Doc, Paris 1998.
- [11] J. Villermaux, Génie de la Reaction Chimique: Conception et Fonctionnement des Réacteurs, 2nd ed., Lavoisier Tec&Doc, Paris 1993.
- [12] J. P. Leclerc, C. Detrez, A. Bernard, D. Schweich, Revue de l'institut Francais du Pétrole 1995, 50 (5), 641.
- [13] R. K. Shah, A. L. London, Advances in Heat Transfer (Eds: T. F. Irvine, J. P. Hartnett), 1st suppl., Academic Press, New York 1978.
- [14] C. Churchill, Chem. Eng. 1977, 84 (24), 91.
- [15] J. H. Ham, B. Platzer, Chem. Eng. Technol. 2004, 27 (11), 1172. DOI: 10.1002/ceat.200407038
- [16] D. Tang, A. Jess, Chem. Eng. Technol. 2004, 27 (8), 866. DOI: 10.1002/ceat.200402076
- [17] W. Roetzel, F. Balzerzereit, Rev. Gén. Therm. 1997, 36, 635.

Power Consumption of a Rushton Turbine Mixing Viscous Newtonian and Shear-thinning Fluids: Comparison between Experimental and Numerical Results

By Claude Torrez and Christophe André *

A fluid dynamics software package (Fluent) was used to calculate the local velocities in a standard tank fitted with a Rushton turbine. We defined the local average shear rate $\dot{\gamma}$ as a user variable. The power was computed from the values of $\dot{\gamma}$ with a user subroutine. The influence of the rheological behaviour of the fluid was investigated: the shape factor K_p for a Newtonian fluid, and in the case of a shear-thinning fluid Metzner and Otto's concept was used to determine the effective shear rate $\dot{\gamma}_e \cdot \dot{\gamma}_e$ verified the classical relation: $\dot{\gamma}_e = K_s \cdot N$. The influence of position and stirring speed on the local average shear rate $\dot{\gamma}$ was also studied. As expected, higher values were obtained near the turbine. At a fixed position, $\dot{\gamma}$ was found to be proportional to the stirring speed N. The power values obtained by numerical procedures were compared to experimental results: the Fluent software yielded results in excellent agreement with experimental findings. The calculation of local parameters such as the local average shear rate $\dot{\gamma}$ as well as global characteristic shape factors demonstrate the validity of Fluent software in the laminar range.

1 Introduction

Stirred vessels are widely used in biotechnological processes for mixing very viscous liquids. Depending upon the application, various types of rotating mixers are in use. The most common ones are simple propellers, turbines, or anchor agitators. We chose to investigate a comparatively simple experimental set-up, *viz.* a standard tank equipped with a Rushton turbine. It is one of the most widely studied systems and easy to define with the aid of Fluent.

Mixing performance is usually described by measuring the power requirements. Power consumption determinations are always related to the economy of mixing, as well as to the design of the mixing equipment. However, power is also closely related to the flow pattern. For these reasons, a comparison between experimental and numerical power values is an important element in the validation of Fluent software.

Experimental determination of the power required during a mixing operation is straightforward; however, its numerical determination in terms of local velocities by a program such as Fluent is more difficult. The purpose of this study is to compare the resulting values of the shape factors K_p and K_s with those found in the literature.

2 Material and Methods

2.1 Equipment

The experiments were carried out in a 0.3 m diameter, flatbottomed cylindrical glass tank without baffles. A schematic

[*] C. Torrez and Dr. C. André, Ecole des Hautes Etudes Industrielles, Laboratoire de Génie des Procédés, 13, rue de Toul, F-59046 Lille Cedex, France. of the experimental apparatus is shown in Fig. 1. The turbine was positioned at a distance of one-third of the liquid depth. The liquid height, $h_{\rm L}$ was equal to the vessel diameter, t. The diameter d of the turbine was equal to 0.15 m. The agitator shaft was driven by a variable speed electric motor. The torque was measured by a non-contact strain gauge torque meter (Hottinger Baldwin Messtechnik type 34 FN) The torque. The impeller speed was measured in the range from 40 to 120 rpm. The temperature of the fluid was measured by a Pt 100 type probe (Dostmann electronic mbH ref. P 555) in order to take into account the temperature dependence of the fluids.

2.2 Fluids

The Newtonian fluid studied was a 95 mass-% glucose syrup. It was designated fluid no. 1. The shear-thinning fluid, designated fluid no. 2, was a 3 mass-% solution of alginate. The rheological properties of the two solutions were determined on a Carrimed CSL 100 rheometer using a cone-and-plate geometry.

Steady-shear viscosity tests have shown that the viscosity of the fluid no. 1 is independent of the shear rate $\overline{\dot{\gamma}}$ at a fixed temperature. The dependence of the viscosity μ with respect to the temperature for the fluid no. 1 is expressed by an Arrhenius type function:

$$\mu = 5.6 \times 10^{-15} \,\mathrm{e}^{10428/T} \tag{1}$$

The density of fluid no. 1 was 1400 kg m⁻³.

The rheological behaviour of fluid no. 2 at T = 293 K was fitted by a power-law $\tau = k \cdot \gamma^n$. In order to increase the precision of the calculations we distinguish 3 zones:

$$\dot{\gamma} < 1.8 \text{ s}^{-1}$$
: $\tau = 16.75 \dot{\gamma}^{0.86}$ (2)



Figure 1. Experimental set-up. $1.8 \text{ s}^{-8} \le \dot{\gamma} \le 6.8 \text{ s}^{-1}$: $\tau = 18.51 \dot{\gamma}^{0.69}$ (3)

 $6.8 \text{ s}^{-\text{s}} \le \dot{\gamma}: \quad \tau = 25.16 \ \dot{\gamma}^{0.53} \tag{4}$

th haffles

The density of the fluid no. 2 was equal to 1000 kg $\mathrm{m^{-3}}$

2.3 Methods

2.3.1 Power Consumption: Experimental Approach [1–3]

• For Newtonian fluids, torque measurements as a function of rotational speed are transformed into a dimensionless power number N_p and Reynolds number by:

$$N_{p} = \frac{P}{\rho \cdot N^{3} \cdot d^{5}}$$
(5)

where

$$\mathbf{P} = 2 \cdot \boldsymbol{\pi} \cdot \mathbf{N} \cdot \mathbf{C} \tag{6}$$

and

$$Re = \frac{\rho \cdot N \cdot d^2}{\mu} \tag{7}$$

In the laminar range (Re < 10), we obtain the classical result:

$$N_{p} \cdot Re = \frac{P}{\mu \cdot N^{2} \cdot d^{3}} = K_{p}$$
(8)

The factor K_p is constant and can be considered as a shape factor characteristic of the agitator we used. Eq. (8) is the equation of the power curve of the agitator in the laminar range (the Froude number Fr does not interfere because of the absence of vortex).

• For non-Newtonian fluids, Metzner and Otto [4] proposed an effective shear rate, $\dot{\gamma}_{e}$. If this shear rate is estimated according to the mixing conditions existing in the vessel, then the resulting power curves for Newtonian and pseudoplastic fluids coincide. Therefore, $\dot{\gamma}_{e}$. should have a value such that:

$$N_{p} = K_{p} \cdot \left(\frac{\rho \cdot N \cdot d^{2}}{\mu_{e}}\right)^{-1} = K_{p} \cdot \left(\frac{\rho \cdot N \cdot d^{2}}{k \cdot \dot{\gamma}_{e}^{n-1}}\right)^{-1}$$
(9)

Hence:

$$\dot{\gamma}_{\rm e} = \left(\frac{\rm P}{\rm k \cdot K_{\rm p} \cdot N^2 \cdot d^3}\right)^{1/n-1} \tag{10}$$

Experiments show that the effective shear rate $\dot{\gamma}_{e}$. is, in fact, proportional to the stirring speed N:

$$\dot{\gamma}_{\rm e} = \mathbf{K}_{\rm s} \cdot \mathbf{N} \tag{11}$$

 $K_{\rm s}$ and $K_{\rm p}$ can be considered as experimentally determined constants of the mixing system.

Finally, we obtain a generalised expression for the power P:

$$\mathbf{P} = \mathbf{K}_{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{k} \cdot (\mathbf{K}_{\mathbf{s}})^{\mathbf{n}-1} \cdot \mathbf{N}^{\mathbf{n}+1} \cdot \mathbf{d}^{3}$$
(12)

2.3.2 Power Consumption: Numerical Approach [5-6]

The local shear stress $\dot{\gamma}$ can be obtained from the local velocities in each cell:

$$\dot{y}_{ij} = \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i}\right)$$
(13)

The local average shear rate $\overline{\dot{\gamma}}$ is:

$$\overline{\dot{\gamma}} = \sqrt{\frac{1}{2}} \cdot \operatorname{trace}(\dot{\gamma}_{ij}^2) \tag{14}$$

The local viscous dissipative function Φ is:

$$\Phi = (\bar{\gamma})^{-2} \tag{15}$$

For a shear-thinning fluid, the viscosity μ_a becomes a local parameter:

$$\mu_{a} = k \cdot \left(\overline{\dot{\gamma}}\right)^{n-1} \tag{16}$$

The local average volumetric power ε is:

Chem. Eng. Technol. 21 (1998) 7

Newtonian fluid

$$\varepsilon = \mu \cdot \Phi \tag{17}$$

Non-Newtonian fluid

$$\varepsilon = \mu_a \cdot \Phi \tag{18}$$

The power can obtained by summation over the whole domain:

$$\mathbf{P} = \sum_{\text{domain}} \varepsilon \cdot \mathbf{V} \tag{19}$$

3 Results and Discussions

3.1 Experimental Results: Power Consumption

Determination of K_p with fluid no. 1:

The stirring speed N was limited to 2 s^{-1} in order to avoid local warm-up effects. A simple way of controlling these effects is to verify that the torque C is proportional to N.

The equation of the experimental power curve is (see Fig. 8):

$$N_{p} = \frac{63}{Re}$$
(20)

Determination of K_s with fluid no. 2:

The application of Metzner and Otto's concept determined the effective shear rate $\dot{\gamma}_e$. We verified that $\dot{\gamma}$ is proportional to N (see Fig. 10). The slope of the curve is equal to Metzner and Otto's constant K_s . We obtained:

$$\dot{\gamma}_{e \exp} = 12.1 \cdot N \tag{21}$$

3.2 Numerical Results

The first step of the numerical part of this study was to define the geometry of the experimental set-up. We chose a mixing system without baffles in order to limit the domain for reasons of symmetry. We defined only a sixth of the total domain with 5980 cells ($0 \le \alpha \le 60^{\circ}$), the rest was automatically deduced by symmetrical considerations. We used the sliding mesh method [7]. The criterion of convergence was fixed at 10^{-3} . We tried to find a justifiable compromise between the calculation time and the precision of the result. To simplify the problem for the purposes of validation, the flows considered in this study are laminar. This is a much simpler situation than under turbulent conditions where the choice of the mathematical model is crucial [8]. Moreover, in turbulent flow, the characteristic size of cells near the turbine should be smaller (about 10 μ m)

3.2.1 Local Average Shear Rate

The power is determined from the local average shear rate $\overline{\dot{\gamma}}$. $\overline{\dot{\gamma}}$ is a very helpful variable because it is a scalar which localises dead zones where the turbine has almost no effect. On the other hand, high values of $\overline{\dot{\gamma}}$ are expected near the turbine.

Fig. 2 shows an example of local average shear rate profile near the turbine (r = 0.0795 m) in a vertical plane containing the turbine blade ($\alpha = 0$) with N = 2 s⁻¹, for the two fluids. As expected, the largest values are observed near the turbine at z = 0.115 m.



Figure 2. Influence of the fluid on local average shear rate profile. \Box : fluid no. 1, \bullet : fluid no. 2.

The evolution of this parameter determines the local viscosity profile of fluid no. 2 according to its rheological behaviour. Fig. 3 compares the local viscosity profiles for the two fluids.



Figure 3. Local viscosity profile for fluid no. 1 and no. 2 ($N = 2 \text{ s}^{-1}$, r = 0.0795 m and $\alpha = 0$). -: fluid no. 1, \square : fluid no. 2.

The local power consumption of a mixing operation is indicated by the volumetric power ε given by Eq. (17) or Eq. (18). Fig. 4 shows an example of volumetric power profile at r = 0.0795 m for $\alpha = 0$ with N = 2 s⁻¹ for the fluid no. 2. This profile is compared to the average volumetric power $P_{\text{num}}/V_{\text{r}}$. The largest part of the energy provided by the turbine is consumed in the vicinity of the turbine.



Figure 4. Local volumetric power profile for fluid no. 2 ($N = 2 \text{ s}^{-1}$, r = 0.0795 m and $\alpha = 0$).

Fig. 5 compares local average shear rate values at r = 0.0795 m and r = 0.12 m for $\alpha = 0$ with N = 2 s⁻¹ for fluid no. 2. This figure confirms that the turbine has a highly localised effect.



Figure 5. Influence of the radius on local average shear rate profile for fluid no. 2 ($N = 2 \text{ s}^{-1}$ and $\alpha = 0$). \Box : r = 0.0795 m, \oplus : r = 0.12 m.





Figure 6. Influence of the stirring speed *N* on local average shear rate profile for fluid no. 2 (r = 0.0795 m and $\alpha = 0$). \Box : N = 2 s⁻¹, \oplus : N = 0.66 s⁻¹.

602 © WILEY-VCH Verlag GmbH, D-69469 Weinheim, 1998

We defined a normalised local average shear rate at fixed values for *r* and α :

$$K_{sl} = \frac{\overline{\dot{\gamma}}(z)}{N}$$
(22)

Fig. 7 shows a plot of K_{sl} vs. z at r = 0.0795 m and $\alpha = 0$ for N = 0.66 s⁻¹ and N = 2 s⁻¹. We obtained a unique curve. This simple result proves that the local average shear rate values are proportional to the stirring speed N.



Figure 7. Normalised local average shear rate profile for fluid no. 2 (r = 0.0795 m and $\alpha = 0$). $\Box: N = 2 \text{ s}^{-1}$, $\bullet: N = 0.66 \text{ s}^{-1}$.

3.2.2 Power Consumption

The equation of the numerical power curve is (see Fig. 8):

$$N_{\rm p} = \frac{57}{\rm Re} \tag{23}$$

The application of Metzner and Otto's concept from the numerical values of the power with fluid no. 2 determined the effective shear rate $\dot{\gamma}_{e}$. We obtained:

$$\dot{\gamma}_{e num} = 11.2 \cdot N \tag{24}$$

3.3 Comparison between Experimental and Numerical Power

For fluid no. 1, power values depend only on the shape factor $K_{\rm p}$. The observed difference between numerical and experimental power values is 9%. Fig. 8 compares the numerical power curve to the experimental one.

For fluid no. 2, Fig. 9 shows the verification of numerically calculated results of power consumption, P_{num} calculated from Eq. (19) by comparison with experimental data, P_{exp} , based on the measurements of shaft torque by a torque meter. The observed difference between numerical and experimental power values is 2%.

Fig. 10 compares experimental and numerical effective shear rate values calculated from power values according to Metzner and Otto's concept.

Tab. 1 compares experimental and numerical values with those given in the literature.



Figure 8. Comparison between the numerical and experimental power curves of the Rushton turbine. \Box : N_p exp. = 63/Re , \bullet : N_p num. = 57/Re.



Figure 9. Comparison between numerical and experimental power values for fluid no. 2.



Figure 10. Comparison between numerical and experimental effective shear rate versus N.

4 Conclusion

The use of the Fluent program yields numerical power values in agreement with those obtained by experiment and reported literature. We could determine the shape factors $K_{\rm p}$ and Metzer and Otto's constant K_s . The evolution of local average shear rate with position showed that the turbine has Table 1. Experimental and numerical results.

	Кр	K _S
Experimental result	63	12.1
Numerical result	57	9.6
Average value in literature [3]	70	11.5

only a local effect when stirring high viscous fluids. In the future, we shall study more efficient mixing system in the laminar range, such as close-clearance impellers. In particular, we plan to investigate the evolution of K_s as a function of n which is still debated for these systems [9].

Received: December 8, 1997 [CET 969]

Symbols used

С	[Nm]	Torque
d	[m]	Impeller diameter
g	$[ms^{-2}]$	Gravitational constant
h_L	[m]	Height of liquid in the vessel
k	[Pas ⁿ]	Consistency index
K_p	[-]	Proportionality constant of the power number (Eq. (8))
K_s	[-]	Metzner-Otto coefficient defined by (Eq. (11))
K_{SL}	[-]	Normalised local average shear rate
n	[-]	Flow behaviour index
N	$[s^{-1}]$	Stirring speed
Р	[W]	Power
Pexp	[W]	Experimental power value
$P_{\rm num}$	[W]	Numerical power value
R	[m]	Radial position in the vessel
t	[m]	Vessel diameter
Т	[K]	Absolute temperature
$u_{\rm i}$, $u_{\rm j}$	$[ms^{-1}]$	Fluid velocity
υ	$[m^3]$	Elementary cell volume
$V_{\rm r}$	$[m^3]$	Vessel volume
x_i, x_j	[m]	Spatial coordinates
z	[m]	Vertical position in the vessel

Greek letters

α	[°]	Angle defined in Fig. 1
3	$[Wm^{-3}]$	Volumetric power
γ̈́	$[s^{-1}]$	Shear rate
$\overline{\dot{\gamma}}$	$[s^{-1}]$	Local average shear rate
γ̈́e	$[s^{-1}]$	Effective shear rate
Уе exp	$[s^{-1}]$	Experimental value of the effective
		shear rate
γe num	$[s^{-1}]$	Numerical value of the effective shear
		rate

Chem. Eng. Technol. 21 (1998) 7,

$$\overset{C}{\&}_{T}^{E}$$
 Full Paper

Ϋ́ij	$[s^{-1}]$	Local shear rate
Φ	$[s^{-2}]$	Local dissipative function
μ	[Pas]	Newtonian viscosity
$\mu_{\rm a}$	[Pas]	Apparent viscosity
ρ	[kgm ⁻³]	Density
τ	[Pa]	Shear stress

Dimensionless numbers

Fr	Froude number
N _p	Power number
Re	Reynolds number

References

- [1] Uhl, V. W.; Gray, J. B., Mixing Theory and Practice, Academic Press, New York 1966.
- [2] Nagata, S., Mixing - Principles and Applications. Wiley, New York 1975. [3] Skelland, A. H. P., Mixing and Agitation of Non-Newtonian Liquids, Handbook of Fluids in Motion, Chapter 7, N. P. Cheremisinoff (Ed.),

- [7] Kaminoyama, M.; Arai, K.; Kamiwano, M., J. Chem. Eng. Jpn 27 (1994)
- [8] [9]
- Moureh J., *PhD Thesis*, INPT 1992. Leuliet, J. C.; Brito de la Fuente, E.; Choplin L., *Entropie 171* (1992) pp. 53–58.