



HAL
open science

Etude expérimentale de la maldistribution des fluides dans un réacteur à lit fixe en écoulement co-courant descendant de gaz et de liquide

Juan-David Llamas

► **To cite this version:**

Juan-David Llamas. Etude expérimentale de la maldistribution des fluides dans un réacteur à lit fixe en écoulement co-courant descendant de gaz et de liquide. Sciences de l'ingénieur [physics]. Institut National Polytechnique de Lorraine - INPL, 2008. Français. NNT : . tel-00376283

HAL Id: tel-00376283

<https://theses.hal.science/tel-00376283v1>

Submitted on 17 Apr 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Etude expérimentale de la maldistribution des fluides dans un réacteur à lit fixe en écoulement co-courant descendant de gaz et de liquide

THÈSE

Présenté pour l'obtention du titre de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
(Spécialité Génie des Procédés)

Par

Juan David Llamas

Ingénieur de l'Universidad de los Andes (Bogota – Colombie) et de l'Ecole Nationale Supérieure en Génie des Technologies Industrielles (Pau – France)

Composition du jury :

Rapporteurs : M. C. BOYER, Docteur – HDR, Ingénieur (IFP – Lyon)
M. F. LARACHI, Professeur (Université de Laval, Québec)

Examineurs : M. J-C. CHARPENTIER, Directeur de Recherches (CNRS – INPL)
Mme. C. DEROUIN, Docteur, Ingénieur (TOTAL, Gonfreville)
M. F. LESAGE, Maître de conférences (ENSIC – INPL)
Mme. D. TOYE, Professeur (Université de Liège)
M. G. WILD, Directeur de Recherches (CNRS – INPL)

Invité : M. P. LEROY, Ingénieur (TOTAL, Gonfreville)

Sommaire

SOMMAIRE	I
TABLE DES FIGURES	IV
LISTE DES TABLEAUX	IX
NOMENCLATURE	1
INTRODUCTION GENERALE	3
1 GENERALITES	5
1.1 INTRODUCTION.....	6
1.2 REGIMES D'ECOULEMENT.....	6
1.3 TAUX DE RETENTION DE LIQUIDE.....	7
1.4 DISTRIBUTION DU LIQUIDE.....	7
1.4.1 GENERALITES SUR LA MALDISTRIBUTION DU LIQUIDE.....	7
1.4.2 TECHNIQUES POUR L'ETUDE DE LA DISTRIBUTION DU LIQUIDE.....	7
1.4.3 FACTEURS INFLUANT SUR LA DISTRIBUTION DU LIQUIDE.....	7
1.5 CONCLUSION.....	7
2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET TECHNIQUES DE MESURE	7
2.1 INTRODUCTION.....	7
2.2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	7
2.2.1 LE REACTEUR.....	7
2.2.2 LA DISTRIBUTION DES FLUIDES.....	7
2.2.3 CONDITIONS OPERATOIRES.....	7
2.2.4 CATALYSEUR SOLIDE ET POROSITE.....	7
2.3 TECHNIQUES DE MESURE.....	7
2.3.1 LE COLLECTEUR DE LIQUIDE.....	7
2.3.2 LES THERMISTANCES.....	7
2.3.3 LA TOMOGRAPHIE A FILS.....	7
2.4 CONCLUSION.....	7

3	<u>ETUDE DE LA MALDISTRIBUTION DU LIQUIDE EN REGIME STATIONNAIRE.....</u>	7
3.1	INTRODUCTION	7
3.2	EXPERIENCES PRELIMINAIRES AVEC LA TOMOGRAPHIE A FILS	7
3.2.1	MESURES QUALITATIVES	7
3.2.2	MESURES QUANTITATIVES GLOBALES	7
3.2.3	MESURES QUANTITATIVES LOCALES	7
3.3	CONDITIONS EXPERIMENTALES EN REGIME STATIONNAIRE.....	7
3.4	INFLUENCE DU TYPE DE CHARGEMENT SUR LA DISTRIBUTION DE LIQUIDE.....	7
3.4.1	DISTRIBUTEUR COMPLET	7
3.4.2	DISTRIBUTEUR EN CROIX	7
3.4.3	DISTRIBUTEUR CENTRAL.....	7
3.5	EXTRUDES HYDROPHOBES	7
3.5.1	DISTRIBUTEUR COMPLET	7
3.5.2	DISTRIBUTEUR EN CROIX	7
3.5.3	DISTRIBUTEUR CENTRAL.....	7
3.6	CONCLUSIONS	7
4	<u>ETUDE DE LA MALDISTRIBUTION DU LIQUIDE EN REGIME TRANSITOIRE.....</u>	7
4.1	INTRODUCTION	7
4.2	ACQUISITION DES DONNEES	7
4.3	CARACTERISTIQUES GENERALES DES SIGNAUX MESURES.....	7
4.4	FREQUENCE DES PULSATIONS.....	7
4.4.1	BILLES DE VERRE	7
4.4.2	EXTRUDES CYLINDRIQUES POREUX	7
4.5	COEXISTENCE DE REGIMES D'ECOULEMENT A L'INTERIEUR D'UN LIT FIXE	7
4.6	CONCLUSIONS	7
5	<u>INTRODUCTION AUX ETUDES DE SIMULATION NUMERIQUE.....</u>	7
5.1	INTRODUCTION	7
5.2	MODELISATION.....	7
5.2.1	LOIS DE FERMETURE	7
5.3	GEOMETRIE DU PROBLEME ET MAILLAGE	7
5.4	CONDITIONS AUX LIMITES ET INITIALISATION.....	7
5.5	SIMULATION DES EXPERIENCES REALISEES EN LIQUIDE SEUL.....	7
5.5.1	MAILLAGE.....	7
5.5.2	RESULTATS.....	7
5.6	SIMULATION DU CHANGEMENT DE POROSITE A L'INTERIEUR DU LIT	7
5.6.1	MAILLAGE.....	7
5.6.2	RESULTATS.....	7

5.7 CONCLUSION.....	7
<u>CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES.....</u>	<u>7</u>
<u>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</u>	<u>7</u>
<u>ANNEXES.....</u>	<u>7</u>
ANNEXE I : FICHE TECHNIQUE DES THERMISTANCES.....	7
ANNEXE II : RESULTATS DES EXPERIENCES EN REGIME STATIONNAIRE	7

Table des figures

Figure 1-1. Représentation des différents régimes d'écoulement en fonction des vitesses du gaz et du liquide. (Inspiré de Reinecke et Mewes, 1996)	7
Figure 1-2. Gianetto et coll. (1978): Cartes d'écoulement proposées par différents auteurs selon les coordonnées de Gianetto et coll. (1978).....	7
Figure 1-3. Nguyen et coll (2005): mesure de la porosité en proche paroi par résonance magnétique	7
Figure 2-1. Pilote expérimental.....	7
Figure 2-2. Système de distribution des fluides	7
Figure 2-3. Plateaux perforés pour la distribution des fluides	7
Figure 2-4. Distribution des longueurs.....	7
Figure 2-5 Distribution des diamètres.....	7
Figure 2-6. Collecteur de liquide.....	7
Figure 2-7 Thermistances 151-111 fournies par Farnell.....	7
Figure 2-8 Evolution du terme $1/US$ en fonction de la vitesse du fluide.	7
Figure 2-9 Variation du R_{th} en fonction du ΔT	7
Figure 2-10 Configurations utilisées pour le calcul du R_{th}	7
Figure 2-11 Distribution des R_{th}	7
Figure 2-12 Distribution des surfaces de transfert pour les thermistances.	7
Figure 2-13 Récapitulatif du modus operandi pour la détermination des paramètres des thermistances.....	7
Figure 2-14 Nu Vs Re pour une particule dans un écoulement de liquide seul.....	7
Figure 2-15 Comparaison entre les résultats obtenus expérimentalement et la corrélation de Briens et coll. (1993).	7
Figure 2-16 Valeurs de Nusselt moyens pour des billes de verre de 2mm	7
Figure 2-17 Nusselt en fonction du Reynolds pour des extrudés cylindriques.....	7

Figure 2-18 Montage individuel des thermistances.	7
Figure 2-19. Schéma de la plaque sur laquelle sont installées les thermistances.....	7
Figure 2-20. Circuit imprimé sur la partie inférieure de la plaque des thermistances.	7
Figure 2-21 Plaque avec les 87 thermistances.	7
Figure 2-22 Dispositif des thermistances à l'intérieur du réacteur (vue de haut).....	7
Figure 2-23 Faisceaux de fils dans une colonne rectangulaire. La conductivité mesurée sur le point de croisement i - j dira s'il y a du liquide entre ces deux fils.....	7
Figure 2-24 Situation hypothétique: écoulement de liquide au point de croisement 1A, rétention statique seule au point 2A	7
Figure 2-25 Représentation de la Figure 2-24 sous la forme d'un circuit électrique.....	7
Figure 2-26. Ecoulement en anneau.....	7
Figure 2-27 Système de tomographie à fils.....	7
Figure 2-28 Positionnement des systèmes de tomographie à fils dans le réacteur	7
Figure 2-29 Système de tomographie à fils à l'intérieur du réacteur (vue du dessus).	7
Figure 3-1 Mesures de distribution du liquide pour trois distributeurs différents.	7
Figure 3-2 Plateau perforé "asymétrique" divisé en 4 zones imaginaires.....	7
Figure 3-3 Résultats obtenus avec le système de tomographie à fils (à 0.33 m du distributeur de liquide).....	7
Figure 3-4 Réduction de la surface disponible autour de certains points de croisement en utilisant des obstacles solides.....	7
Figure 3-5 Résultats obtenus avec la tomographie à fils (gauche). Image imposée (droite). ...	7
Figure 3-6 Plateaux perforés utilisés pour les expériences en régime stationnaire.....	7
Figure 3-7 Disposition des particules « inertes » en tête de colonne.	7
Figure 3-8 Distributeur complet : Images obtenues pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.....	7
Figure 3-9 θ_R en fonction de U_G à différents débits de liquide pour un lit chargée à la chaussette.	7
Figure 3-10 θ_R en fonction de la vitesse du liquide pour les 3 types de chargement.....	7
Figure 3-11 Pertes de charge en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0031$ m/s.....	7

Figure 3-12 Evolution de l'indice de maldistribution en fonction de la vitesse superficielle du gaz.	7
Figure 3-13 Distribution des vitesses de liquide mesurés avec les thermistances en fonction de la vitesse superficielle de gaz (chargement sock - $U_L = 0,0082$ m/s).....	7
Figure 3-14 Evolution du taux de fluctuation des vitesses de liquide mesurées en fonction de la vitesse superficielle du gaz.....	7
Figure 3-15 Distributeur en croix : Images obtenues pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.....	7
Figure 3-16 Résultats obtenus pour un chargement sock à $U_G \approx 0,17$ m/s et à différents débits de liquide.....	7
Figure 3-17 Indice de maldistribution en fonction de U_G pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s.	7
Figure 3-18 Taux de fluctuation mesurés avec la tomographie à fils à différents débits de gaz pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s.	7
Figure 3-19 Images obtenues par tomographie à fils pour les trois chargements étudiés à $U_L = 0,0064$ m/s et $U_G = 0,17$ m/s.	7
Figure 3-20 Distributeur central : Images obtenues pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.....	7
Figure 3-21 Section occupée par le liquide en fonction de son débit pour un chargement sock et une vitesse de gaz de 0,17 m/s.	7
Figure 3-22 Evolution de la différence des écarts types supérieur et inférieur pour les trois chargements en fonction de U_L/U_G	7
Figure 3-23 Evolution de la différence des écarts types pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0082$ m/s	7
Figure 3-24 Evolution de la différence des écarts types pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0016$ m/s.	7
Figure 3-25 Evolution du pourcentage d'amélioration pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0082$ m/s	7
Figure 3-26 Evolution du pourcentage d'amélioration pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0016$ m/s	7
Figure 3-27 Diminution de la saturation de liquide sur la zone central du réacteur en fonction de U_L	7
Figure 3-28. Pourcentage du débit total qui est recueilli sur la zone centrale du collecteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour $U_L = 0,0082$ m/s.	7

Figure 3-29. Pourcentage du débit total qui est recueilli sur la zone central du collecteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour $U_L = 0,0016$ m/s.	7
Figure 3-30 Structure schématique du lit en fonction d chargement. La porosité diminue de gauche à droite.	7
Figure 3-31 Distributeur complet : Images obtenues pour un lit d'extrudés en polyéthylène à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.	7
Figure 3-32 Evolution de la saturation de liquide totale pour un lit d'extrudés en PE en fonction de χ	7
Figure 3-33 Indice de maldistribution en fonction du débit de liquide pour un lit de particules hydrophobes sur toute la gamme de débits de gaz étudié.	7
Figure 3-34 Résultats obtenus avec le collecteur de liquide à $U_G = 0,17$ m/s	7
Figure 3-35 Distributeur en croix : Images obtenues pour un lit de particules en PE à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.....	7
Figure 3-36 Distributeur en croix : Images obtenues pour les différents garnissages à débit de gaz nul.	7
Figure 3-37 Distributeur central : Images obtenus pour un lit de particules en PE à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.....	7
Figure 4-1 Signal obtenu à l'intérieur d'un lit fixe de billes de verre fonctionnant en régime pulsé ($U_L = 0,0099$ m/s et $U_G = 0,285$ m/s).....	7
Figure 4-2 Influence des vitesses superficielles de gaz et de liquide sur la fréquence des pulsations dans un lit de billes de verre.....	7
Figure 4-3 Fréquence des pulsations en fonction de la vitesse en excès.....	7
Figure 4-4 Fréquence de pulsations en fonction 4 des vitesses superficielles de gaz et de liquide dans un lit d'extrudés cylindriques.	7
Figure 4-5 Comparaison entre les fréquences des pulsations observées pour un lit de billes de verre et un lit d'extrudés cylindriques.	7
Figure 4-6 Distribution des taux de fluctuation sur une section transversale du réacteur pour un lit de billes de verre à $U_L = 0,0105$ m/s et $U_G = 0,197$ m/s.	7
Figure 4-7 Evolution de la saturation de liquide en fonction du temps pour les points de croisement A, B et C de la Figure 4-6.....	7
Figure 4-8 Distributeur de liquide divisé en 9 zones d'égale surface.	7
Figure 4-9 Distributeur de liquide modifié.	7
Figure 4-10 Evolution de la saturation de liquide avec le temps pour deux points de croisement typiques.....	7

Figure 4-11 Spectre de puissance typique pour un point de croisement à $U_L = 0,0105$ m/s et $U_G = 0,197$ m/s en utilisant le distributeur modifié.	7
Figure 4-12 Distribution des taux de fluctuation sur une section transversal du réacteur pour un lit d'extrudés cylindriques à $U_L = 0,0114$ m/s et $U_G = 0,245$ m/s.	7
Figure 4-13 Evolution de la saturation de liquide avec le temps pour les points de croisement A, B et C de la Figure 4-12.	7
Figure 4-14 Plateau perforé modifié.	7
Figure 4-15 Evolution de la saturation du liquide avec le temps pour deux points de croisement.	7
Figure 5-1 Zones du réacteur définies selon la taille du maillage.	7
Figure 5-2 Comparaison entre les saturations de liquide obtenues par les expériences (dispositif supérieur de tomographie à fils) et par les simulations ($z = 0,63$ m).	7
Figure 5-3 Comparaison entre les saturations de liquide obtenues par les expériences (dispositif inférieur de tomographie à fils) et par les simulations ($z = 0$ m).	7
Figure 5-4 Résultat de la simulation pour $U_L = 0,0016$ m/s.	7
Figure 5-5 Résultat expérimental pour $U_L = 0,0016$ m/s et $z=0,63$ m.	7
Figure 5-6 Rayon du jet de liquide à $z = 0,63$ m. Comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations.	7
Figure 5-7 Rayon du jet de liquide à $z = 0$ m. Comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations.	7
Figure 5-8 Zones du réacteur définies selon la taille du maillage.	7
Figure 5-9 Résultat de la simulation numérique : $t = 1500$ s, $U_L = 0,004$ m/s et $U_G = 0,19$ m/s.	7

Liste des tableaux

Tableau 1-1 Récapitulatif des études de la distribution du liquide	7
Tableau 3-1 Corrélations pour la détermination de la saturation de liquide totale.	7
Tableau 4-1 Diverses corrélation pour la prédiction de la fréquence des pulsations.....	7
Tableau 5-1 Caractéristiques des différentes zones de maillage.....	7
Tableau 5-2 Caractéristiques des différentes zones de maillage.....	7

Nomenclature

Symboles latins

A	: Pourcentage d'amélioration (évolution relative du taux de fluctuation dans le réacteur, page 7)	
C	: Conductance électrique	S
D_C	: Diamètre de la colonne	m
d_p	: Diamètre de la particule	m
d_e	: Diamètre équivalent de la particule = $6V_p/S_p$	m
EtM	: Ecart type relatif moyen entre les deux dispositifs de tomographie à fils	
F	: Fréquence des pulsations	Hz
G	: Vitesse massique superficielle du gaz	kg/m ² s
Ga_i^*	: Nombre de Galilée modifié pour la phase i (page 7 et 7)	
Gr	: Nombre de Grashof (page 7)	
g	: Accélération de la pesanteur	m/s ²
H	: Hauteur du lit	m
h	: Coefficient local de transfert de chaleur	W/Km ²
L	: Vitesse massique superficielle du liquide	kg/m ² s
M_f	: Indice de maldistribution (page 7)	
N	: Nombre de compartiments du collecteur de liquide	
Nu	: Nombre de Nusselt (pages 7, 7)	
P	: Pression	Pa
Pr	: Nombre de Prandtl (page 7)	
\overline{Q}_i	: Débit volumique de la zone i	m ³ /s
\overline{Q}	: Débit volumique moyen	m ³ /s
Re_i	: Nombre de Reynolds pour la phase i : $\rho_i U_i d_p / \mu_i$ (Reynolds particule) ou $\rho_i U_i D_c / \mu_i$ (Reynolds conduite) ou encore $\rho_i U_i d_p / \varepsilon \mu_i$ dans le cadre de la corrélation 2-VIII (page 7)	
Re_i^*	: Nombre de Reynolds modifié pour la phase i (pages 7 et 7)	
R_{th}	: Résistance intrinsèque des thermistances au transfert de chaleur	K/W
R_{WP}	: Tomographie à fils: « distance entre les fils d'un faisceau / distance entre les faisceaux »	
S	: Surface des thermistances	m ²
S_p	: Surface de la particule	m ²

U_i	: Vitesse superficielle de la phase i	m/s
U	: Coefficient global de transfert de chaleur	W/Km ²
u_i	: Vitesse locale de la phase i	m/s
v_i	: Vitesse interstitielle de la phase i ($v_i = U_i/\varepsilon_i$)	m/s
v_{iT}	: Vitesse interstitielle de la phase i à la transition entre les régimes ruisselant et pulsé	m/s
V_i	: Volume de la phase i	m ³
V_P	: Volume de la particule	m ³
V_R	: Volume du réacteur	m ³
X	: Longueur caractéristique	m
X_{ij}	: Coefficient d'interaction entre les phase i et j	m

Symboles grecs

β_L	: Saturation de liquide	
$\overline{\beta}_L$: Saturation de liquide moyenne	
β_T	: Saturation de liquide total	
$E\beta_L$: Evolution de la saturation de liquide au centre de la colonne. Critère de performance pour l'étude de la dispersion radiale (page 7)	
γ	: Conductivité électrique	(Ωm) ⁻¹
ε	: Porosité extragranulaire	
ε_i	: Fraction volumique de la phase i par rapport au volume du réacteur	
ε_{stat}	: Rétenction liquide statique	
ε_{dyn}	: Rétenction liquide dynamique	
η_{CE}	: Efficacité du mouillage	
θ	: Taux de fluctuation (Ecart type des mesures divisé par la moyenne des mesures en question page 7)	
θ_R	: Taux de fluctuation du réacteur (page 7)	
λ	: Conductivité thermique	W/mK
μ	: Viscosité dynamique	Pa.s
ρ	: Masse volumique	kg/m ³
σ_i	: Tension superficielle de la phase i	N/m
σ	: Ecart type des mesures	
ϕ	: Sphéricité de la particule	
χ	: Paramètre de Lockhart-Martinelli	

Introduction générale

Dans la pratique industrielle, de nombreuses réactions chimiques nécessitent la mise en contact de deux phases fluides avec un catalyseur solide. Les réacteurs utilisés pour la mise en œuvre de ces types de réactions peuvent être divisés en deux grandes catégories : les réacteurs à solide suspendu et les réacteurs à lit fixe. Dans le premier cas, la suspension du solide peut être assurée par agitation ou par l'effet d'une des phases fluides. On trouve notamment dans cette catégorie les réacteurs slurry et les lits fluidisés triphasiques. En ce qui concerne les réacteurs à lit fixe, le sens d'écoulement des phases fluides donne lieu à différents modes opératoires. On trouve ainsi les réacteurs à co-courant descendant, à co-courant ascendant et, plus rarement, à contre-courant. Chacun des différents types de réacteurs présente un certain nombre d'avantages et d'inconvénients et la préférence de l'un par rapport à l'autre ne dépend que du type de procédé à mettre en œuvre.

Quand le transfert thermique n'est pas un point prépondérant et que la vie utile du catalyseur est relativement longue, les réacteurs à lit fixe à écoulement co-courant descendant se présentent comme une bonne alternative. En effet, ces réacteurs, plus connus sous le nom de trickle-beds, présentent des avantages considérables: faible coût de maintenance, pertes de charge inférieures à celles des réacteurs à écoulement ascendant, conversions importantes, bonne sélectivité, possibilité de travailler avec des grands tonnages, faible perte de catalyseur, pas de problème d'engorgement et possibilité de travailler à pressions et températures élevées. L'utilisation des trickle-beds est néanmoins limitée par deux inconvénients importants : un transfert thermique déficient et une difficulté à bien distribuer les phases liquide et gazeuse sur la surface du solide catalytique. Ces deux inconvénients limitent non seulement le champ d'applications de ces réacteurs (qui ne sont pas les plus adaptés pour des réactions très exothermiques par exemple) mais peuvent aussi porter atteinte à leur efficacité et à leur sécurité (p.ex. zones mal irriguées et formation des points chauds).

Industriellement, les trickle-beds sont utilisés pour différentes réactions d'oxydation et d'hydrogénation. Dans l'industrie pétrolière par exemple, des trickle-beds de grand taille sont utilisés entre autres dans des réactions d'hydrodésulfuration où l'hydrogène est utilisé pour, à des pressions et températures élevées, réduire la teneur en soufre d'une coupe pétrolière moyenne du type kérosène ou gasoil.

En raison des considérations environnementales, les normes européennes ont, depuis 1996, réduit la teneur maximale en soufre des carburants d'un facteur 10 et une nouvelle diminution est prévue à partir de 2009. Au vu de ces contraintes, il est clair que la constante amélioration des réacteurs d'hydrodésulfuration est, du point de vue environnemental et économique, un enjeu important pour l'industrie pétrolière. Si les performances d'un trickle-bed peuvent être améliorées en travaillant par exemple sur la cinétique de la réaction et le développement de catalyseurs plus performants, l'étude des phénomènes liés à l'hydrodynamique et à la distribution des phases est aussi très importante. C'est dans ce cadre que s'inscrit ce travail, qui cherchera donc à compléter les nombreuses études qui depuis des années ont été menées sur les trickle-beds afin d'ajouter à la compréhension des facteurs ayant une influence sur la maldistribution du liquide dans les lits fixes, grâce à des techniques expérimentales innovantes.

1 Généralités

1.1 Introduction

Au long de ce chapitre, quelques généralités concernant les trickle-beds seront présentées. Loin de se vouloir exhaustives, les informations qui seront présentées ici ne cherchent qu'à donner des bases théoriques concernant des concepts qui pourraient être nécessaires à la compréhension des chapitres à venir. Ainsi, on commencera par la présentation des différents régimes d'écoulement qui peuvent être observés à l'intérieur d'un trickle-bed, ensuite, des définitions concernant la saturation de liquide seront exposées et pour finir, on s'intéressera aux problèmes de maldistribution du liquide en essayant de donner les différents facteurs qui peuvent l'influencer ainsi que les types de techniques qui peuvent être utilisées pour la quantifier.

1.2 Régimes d'écoulement

La coexistence de deux phases fluides s'écoulant à l'intérieur d'un milieu poreux conduit, selon les débits mis en jeu, à différents régimes hydrodynamiques. Ces régimes conditionnent la distribution et le degré d'interaction des phases : en régime à forte interaction, le contact entre le gaz et le liquide est intense, l'écoulement d'une phase peut influencer considérablement celui de l'autre et le transfert de matière par exemple, est maximisé. Au contraire, lorsque l'interaction est faible, le contact entre le gaz et le liquide est limité, les fluides occupent des zones quasi distinctes dans le réacteur et la qualité des phénomènes de transfert et mélange est diminuée.

A nature des fluides, conditions opératoires et caractéristiques du catalyseur fixées, le régime d'écoulement sera déterminé par la vitesse superficielle de chacune des phases fluides. Ainsi, dans un trickle-bed opéré avec des fluides coalescents, 4 régimes principaux peuvent être observés (p.ex. Ng, 1986) :

- Régime ruisselant

Le régime ruisselant est un régime d'écoulement à faible interaction qui a lieu à des petites vitesses de gaz et de liquide. Dans ce régime, le liquide s'écoule sur la surface des particules sous la forme de films ou filets tandis que le gaz occupe les espaces vides du milieu poreux. Dans un réacteur opérant en régime ruisselant, il est fréquent que le garnissage ne soit que partiellement mouillé et pour cette raison, il est souvent intéressant d'estimer le pourcentage de la surface du solide qui est en contact avec le liquide. Ainsi, différentes corrélations permettant d'estimer l'efficacité du mouillage ont été proposées.

Boyer et coll. (2005) par exemple, proposent d'estimer l'efficacité du mouillage (η_{CE}) en utilisant la corrélation d'El-Hisnawi (1981):

$$\eta_{CE} = 1.021 \left(\frac{\varepsilon_L}{1 - \varepsilon_S} \right)^{0.224} \quad (1-I)$$

Où ε_i est la fraction volumique de la phase i par rapport au volume du réacteur.

Malheureusement, la corrélation d'El-Hisnawi n'a été développée que pour être utilisée à pression atmosphérique, or, il est bien connu que les réacteurs industriels opèrent à des pressions élevées. Pour palier cette difficulté, Al-Dahhan et Dudukovic (1995) ont proposé une corrélation censée prédire l'efficacité du mouillage pour toute pression entre 0 et 300 bars. Cette corrélation est :

$$\eta_{CE} = 1.104 (Re_L^*)^{1/3} \left[\frac{1 + [(\Delta P / H) / \rho_L g]}{Ga_L^*} \right]^{0.1/9} \quad (1-II)$$

Avec ΔP la perte de charge, H l'hauteur du réacteur et Re_L^* Ga_L^* les nombres modifiés de Reynolds et Galilée pour la phase liquide :

$$Re^* = \frac{\rho_L U_L d_p}{\mu_L \varepsilon_S} \quad (1-III)$$

$$Ga_L^* = \frac{\rho_L^2 g d_p^3 (1 - \varepsilon_S)^3}{\mu_L \varepsilon_S^3} \quad (1-IV)$$

D'autres approches pour étudier l'efficacité du mouillage ont été proposées. Ainsi Larachi et coll. (2001) ont utilisé une technique de réseau de neurones et une base de données d'environ 490 points expérimentaux pour déterminer une corrélation généralisée permettant d'estimer l'efficacité du mouillage en fonction des conditions opératoires et du type de solide.

- Régime pulsé

Le régime pulsé apparaît pour des vitesses de gaz et de liquide relativement élevées. Ce régime à forte interaction est caractérisé par le passage successif de zones riches en liquide et de zones riches en gaz. Si pour des colonnes de petit diamètre ces zones occupent toute la section transversale de la colonne, il est très probable que cela ne soit

pas le cas pour des réacteurs de grand taille. Dans le cas des réacteurs bidimensionnels par exemple, Christensen et coll. (1986) ont observé, à l'intérieur d'un lit fixe de 0,051x0,457x1,83 m, des pulsations qui n'occupaient pas la totalité de la section transversale. Un phénomène similaire sera décrit plus loin (Chapitre 4)

Même si les mécanismes à l'origine du passage du régime ruisselant au régime pulsé ont été l'objet de nombreuses études, ils ne sont pas encore parfaitement compris. Ainsi, Sicardi (1979) attribue le déclenchement des pulsations à l'obstruction des canaux de passage à l'échelle du pore par du liquide, tandis que Grosser et coll. (1988) l'attribuent à la perte de stabilité du film de liquide occasionnée par des effets inertiels.

- Régime à bulles

Le régime à bulles est un régime d'écoulement à haute interaction qui apparaît à des vitesses de liquide élevées et des vitesses de gaz faibles. Dans ces conditions, le liquide remplit la colonne et le gaz circule sous la forme de bulles légèrement allongées. Si la vitesse du gaz est augmentée, la forme des bulles devient irrégulière et le régime d'écoulement est quelquefois connu sous le nom de régime à bulles dispersées.

- Régime à brouillard

Si la vitesse du gaz est importante tandis que celle du liquide reste faible, le régime à brouillard s'établira dans le réacteur. Ce régime à haute interaction est caractérisé par un écoulement de liquide qui, entraîné par le gaz, se fait sous la forme de gouttelettes.

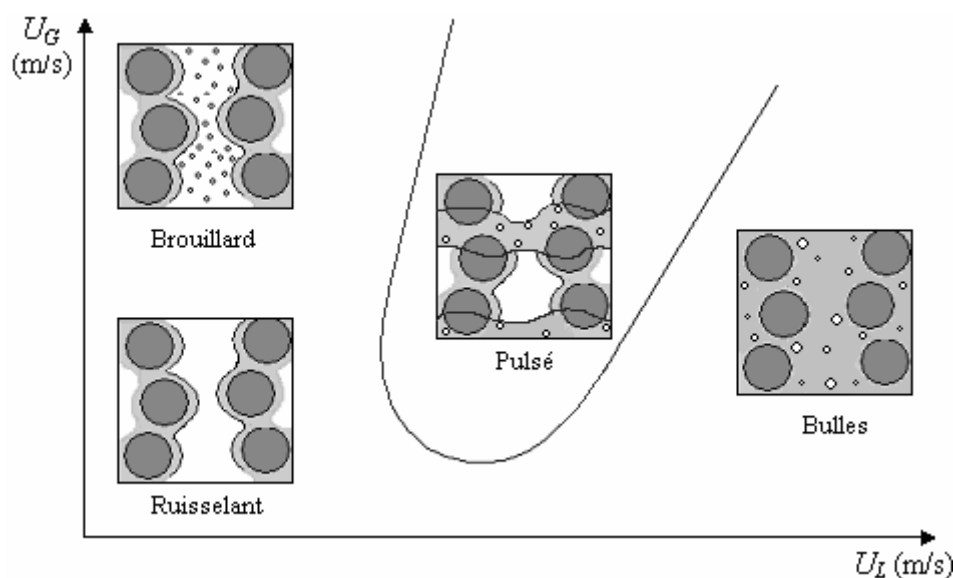


Figure 1-1. Représentation des différents régimes d'écoulement en fonction des vitesses du gaz et du liquide. (Inspiré de Reinecke et Mewes, 1996)

Dans le cas des liquides moussants, d'autres régimes d'écoulement ont été observés. Ainsi, Charpentier et Favier (1975) font état d'un régime moussant et d'un régime pulsé moussant qui apparaissent entre les régimes ruisselant et pulsé classiques lorsque, pour un débit de liquide donné, la vitesse du gaz augmente.

De nombreuses études expérimentales visant à identifier les frontières entre les différents régimes hydrodynamiques ont été réalisées. Les résultats de ces études sont souvent présentés graphiquement sous la forme de cartes d'écoulement comme celle de la Figure 1-2. Cette carte, extraite de Gianetto et coll. (1978), est tracée selon les coordonnées définies par le même auteur sur la base des coordonnées de Charpentier et Favier (1975) : L et G sont les vitesses massiques superficielles du liquide et du gaz, ε est la porosité du lit et ψ et λ sont des paramètres correctifs définis comme :

$$\psi = \frac{\sigma_{Eau}}{\sigma_L} \left(\frac{\mu_L}{\mu_{Eau}} \left(\frac{\rho_{Eau}}{\rho_L} \right)^2 \right)^{1/3} \quad (1-V)$$

$$\lambda = \left(\frac{\rho_L \cdot \rho_G}{\rho_{Air} \cdot \rho_{Eau}} \right) \quad (1-VI)$$

avec σ la tension superficielle, μ la viscosité et ρ la masse volumique.

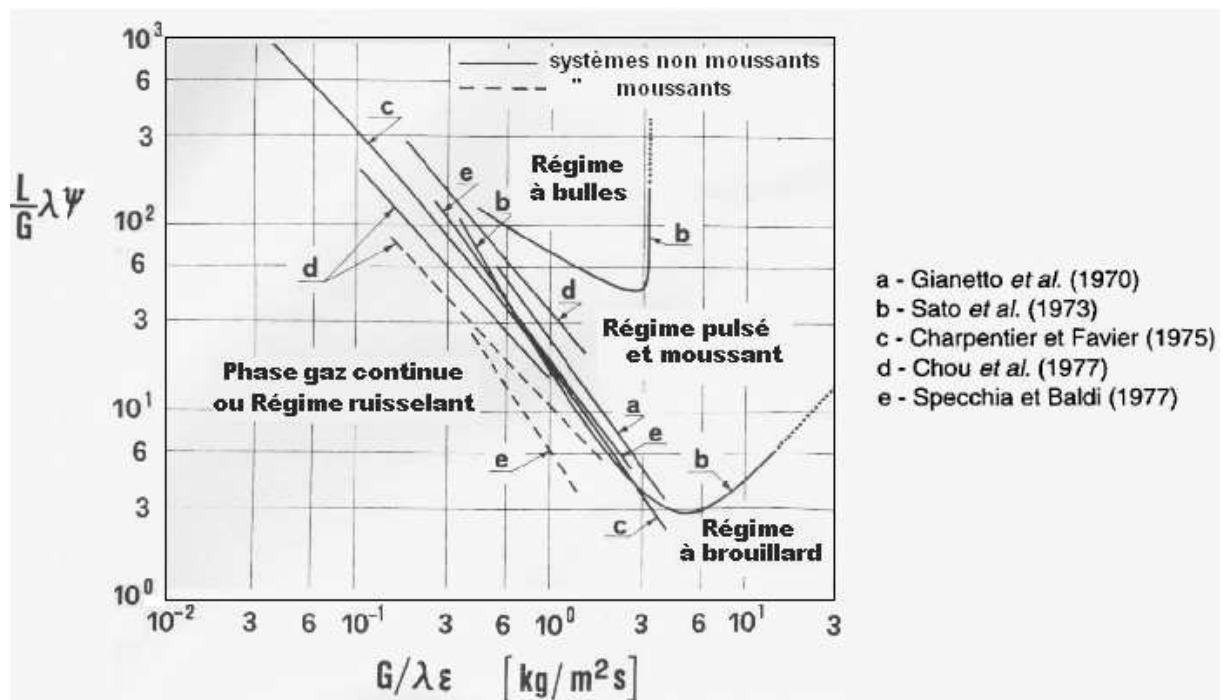


Figure 1-2. Gianetto et coll. (1978): Cartes d'écoulement proposées par différents auteurs selon les coordonnées de Gianetto et coll. (1978)

La dispersion des données représentées sur la Figure 1-2 témoigne de la difficulté à établir avec précision des frontières entre les régimes. En effet, de nombreux paramètres tels que la température (p.ex. Aydin et Larachi, 2005), la pression (p.ex Larachi et coll, 2003), les propriétés physico-chimiques des fluides (p.ex Chou et coll, 1977) et les caractéristiques du garnissage (p.ex. Moreira et Freire, 2003) peuvent influencer la position de ces frontières. En outre, du moins pour les liquides non inhibiteurs de coalescence, la transition entre les régimes se fait de façon progressive, donnant ainsi lieu à des zones de transition relativement larges qui rajoutent, dans certains cas, un peu de subjectivité à l'identification d'un régime donné.

On trouve dans la littérature plusieurs autres corrélations (et modèles) pour la détermination des frontières entre les régimes d'écoulement. Elles peuvent être consultées dans des revues sur l'hydrodynamique des trickle-beds telles celles de Saroha et Nigam (1996), Attou et Boyer (1999) ou Dudukovic et coll. (2002). On notera en particulier le travail de l'équipe de l'université de Laval, qui a réalisé une banque de données très complète et proposé une corrélation des limites de régimes mettant en œuvre de manière raisonnée la technique de corrélation dite des réseaux neuronaux.(Iliuta et coll., 1999)

Dans le cas des réacteurs industriels, pour lesquels la détermination expérimentale du régime hydrodynamique n'est pas toujours possible, l'utilisation des cartes d'écoulement reste très délicate. En effet, non seulement les conditions de pression et température des réacteurs industriels restent loin de celles utilisées pour l'établissement des cartes, mais aussi, comme conséquence de leur taille, l'homogénéité du régime d'écoulement sur toute la section d'un réacteur industriel n'est pas garantie. Il est néanmoins accepté que les réacteurs industriels (et notamment les réacteurs d'hydrodésulfuration dans le domaine pétrolier) fonctionnent quelque part aux alentours de la zone de transition entre les régimes ruisselant et pulsé (Saroha et Nigam, 1996).

1.3 Taux de rétention de liquide

Le taux de rétention de liquide correspond au volume de liquide présent dans le réacteur à un moment donné. Cette grandeur est très importante car elle a une influence directe sur les performances du réacteur, affectant la perte de charge, le flux de transformation par réaction et les paramètres de transfert entre autres.

Plusieurs définitions du taux de rétention pouvant être rencontrées dans la littérature, il est donc important de faire quelques précisions. Pour commencer, la *rétention* liquide ou « liquid holdup » en anglais, est le volume de liquide présent dans le réacteur, divisé par le volume

total du réacteur. Par contre, la *saturation* liquide ou « liquid saturation » en anglais, rapporte la quantité du liquide (extragranulaire) au volume poreux (extragranulaire) du réacteur.

- Rétention liquide (ε_L) = $\frac{V_L}{V_R}$
- Saturation liquide (β_L) = $\frac{V_L}{\varepsilon V_R}$
- $\varepsilon_L = \varepsilon \cdot \beta_L$

D'autres définitions concernant cette fois-ci des composants de la rétention liquide peuvent aussi être rencontrées. De ces définitions, les deux les plus fréquentes sont la rétention statique (ε_{Stat}), qui fait référence au liquide retenu par capillarité aux jointures des grains, et la rétention dynamique (ε_{Dyn}), qui fait référence à la quantité de liquide recueillie par égouttage après arrêt des alimentations en gaz et en liquide. Dans le cas d'un lit fixe rempli de catalyseur non poreux (cas le plus fréquent dans les maquettes de laboratoire), la somme des rétentions statique et dynamique est la rétention liquide totale. D'autres définitions, ainsi que les méthodes utilisées pour le calcul de ces rétentions peuvent être consultées chez Marcandelli (1999).

De nombreuses corrélations de la rétention liquide sont disponibles dans la littérature. De même que les corrélations pour la détermination du régime d'écoulement, elles peuvent être consultées dans des revues concernant l'hydrodynamique des trickle-beds (p.ex. Saroha et Nigam, 1996, Attou et Boyer, 1999, Dudukovic et coll., 2002). Certaines de ces corrélations ont été utilisées lors des travaux présentés ici, elles peuvent être consultés dans le Tableau 3-1 (voir chapitre 3).

1.4 Distribution du liquide

1.4.1 Généralités sur la maldistribution du liquide

Dans un trickle-bed, la trajectoire du liquide s'écoulant à travers le lit de particules solides peut être influencée par un grand nombre de paramètres. La maîtrise de cette trajectoire est d'une importance considérable, car elle affecte directement les performances du réacteur. Du point de vue le plus général, il est évident qu'une distribution du liquide qui entraîne des

zones sèches à l'intérieur d'un réacteur porte atteinte à sa performance, car le catalyseur solide chargé n'est pas utilisé en sa totalité.

D'autres problèmes peuvent aussi être envisagés si on considère l'évacuation de la chaleur. En effet, le liquide étant le principal régulateur de température dans un trickle-bed, une mauvaise distribution de celui-ci peut provoquer non seulement des profils de température hétérogènes favorisant des réactions secondaires mais aussi l'apparition de points chauds. Ces derniers, comme l'ont expliqué Nguyen et Balakotaiah (1994), engendrent la formation d'agglomérats de particules qui diminuent l'activité et l'aire superficielle du catalyseur. Le résultat est une diminution de la durée de vie du catalyseur, une augmentation des coûts opératoires du réacteur et éventuellement une atteinte à la sécurité du procédé. Pour toutes ces raisons, l'étude de la maldistribution et la compréhension des facteurs qui peuvent la provoquer est très importante et a été l'objet de nombreuses recherches (quelques exemples sont présentés sur le Tableau 1-1).

En étudiant la maldistribution dans les trickle-beds, on peut différencier deux échelles. La maldistribution à l'échelle macroscopique, ou maldistribution à l'échelle du réacteur, concerne les différences de débit de liquide entre zones du réacteur composées d'un nombre considérable de particules. Au niveau des études de laboratoire par exemple, l'étude du flux de liquide près de la paroi par rapport au liquide qui occupe le reste de la surface passante du réacteur est une étude de la maldistribution à l'échelle macroscopique (Wang et coll., 1998). La deuxième échelle est l'échelle de la particule ou petite échelle, qui, comme son nom laisse prévoir, concerne des zones de la taille de quelques particules. L'origine de ce type de maldistribution est beaucoup moins bien connue et elle peut avoir lieu même si une bonne distribution à l'échelle macroscopique est atteinte, comme l'a montré p.ex. Vergel (1993, 1995).

1.4.2 Techniques pour l'étude de la distribution du liquide

En fonction de l'échelle considérée et du type d'information désiré, il existe plusieurs techniques pour l'étude de la distribution du liquide dans les trickle-beds. La technique la plus utilisée à ces fins est sans doute le collecteur de liquide. Celui-ci est un dispositif placé à la base du réacteur qui permet de recueillir le liquide qui sort de ce dernier. En divisant le collecteur en plusieurs zones, il est possible d'avoir accès à des mesures globales de la distribution des débits de liquide en sortie du réacteur. Les collecteurs de liquide ont l'avantage de la simplicité de leur mise en œuvre mais ne peuvent apporter d'information que sur la sortie du réacteur, où la distribution du liquide n'est pas forcément le reflet de celle qui existe tout au long du lit fixe.

Pour estimer le degré de maldistribution global en tenant compte de ce qui se passe au long du réacteur, une technique chimique comme celle présentée par Vergel (1993) et Vergel et coll. (1995) peut être utilisée. Cette technique utilise l'hydrogénation sélective du butadiène en 1-butène qui, étant très sensible à la distribution des phases ainsi qu'aux fluctuations spatiales et temporelles de l'écoulement, permet, en mesurant la conversion et la sélectivité, d'estimer un degré de maldistribution dans le réacteur.

Quand il s'agit d'obtenir des mesures à l'intérieur du lit, le plus souvent des sondes plus ou moins intrusives ont été utilisées. Ce type de sondes, dont les sondes thermiques sont un exemple, donne accès à la valeur locale de certaines grandeurs et sont bien adaptées à l'étude de la maldistribution à l'échelle de la particule. Leur inconvénient vient du fait que, étant capables de réaliser des mesures locales seulement, un nombre important de sondes est souvent nécessaire pour avoir un aperçu complet des phénomènes ayant lieu à l'intérieur du réacteur. Plus le nombre de sondes est important, plus leur caractère intrusif devient problématique.

Des mesures avec un traceur coloré peuvent aussi être utilisées pour des études de maldistribution à l'échelle de la particule. Ce type de technique est cependant limité à des observations en proche paroi (Vergel, 1993) ou à des réacteurs de petite taille (Ravindra et coll., 1997).

Depuis environ une quinzaine d'années, une nouvelle gamme de techniques a été développée pour étudier l'intérieur des lits fixes en évitant les problèmes liés aux sondes. Il s'agit notamment des techniques permettant de visualiser en 2 ou 3 dimensions la distribution des phases à l'intérieur des réacteurs. Dans ce domaine, on trouve les mesures par atténuation de photons (tomographies X et γ) et l'imagerie par résonance magnétique (IRM). Ces techniques ont l'avantage d'une bonne résolution spatiale tout en étant non intrusives. Quelques exemples d'applications peuvent être consultés dans les publications de Boyer et coll. (2005) pour la tomographie à rayons γ , de Marchot et coll. (1999) pour la tomographie à rayons X et de Sederman et Gladden (2001) ou Nguyen et coll (2005) pour l'IRM. Malheureusement ces techniques présentent des inconvénients importants du point de vue de la sécurité et surtout de leur coût de mise en œuvre (à titre d'exemple, un système de tomographie à rayons γ capable de faire des mesures dans un réacteur de taille moyenne coûte entre 100000 et 200000€) ; de plus, il y a une limitation en ce qui concerne la taille de la zone à visualiser ; l'IRM p.ex. est limitée par la taille de l'aimant utilisé. Une alternative moins onéreuse est la tomographie électrique. Cette technique, dont la résolution spatiale est un peu inférieure aux techniques précédentes, permet en général une acquisition des données assez rapide, arrivant ainsi à un

bon équilibre entre la qualité de ses résultats et son coût de mise en œuvre. Les performances de cette méthode dépendent néanmoins d'un algorithme de reconstruction assez compliqué dont des améliorations récentes ont été présentés par l'équipe de L.S. Fan (Warsito et Fan, 2005). Un exemple d'application de cette méthode est donné par Reinecke et Mewes (1997).

Les techniques qui viennent d'être présentées ne sont que des exemples parmi les différents moyens que peuvent être employés pour l'étude des trickle-beds aux différentes échelles. Un recueil de plusieurs de ces techniques avec de l'information plus détaillée sur chacune d'entre elles a été présenté par Boyer et coll (2002).

1.4.3 Facteurs influant sur la distribution du liquide

L'étude de la maldistribution du liquide dans le trickle-beds a été menée par de nombreux auteurs. Le Tableau 1-1 résume les conditions dans lesquelles certaines de ces études expérimentales ont été réalisées. Cette liste, qui ne se veut pas exhaustive, concerne notamment des études qui seront citées au long de ce chapitre, et qui, avec d'autres, ont permis d'identifier certains paramètres qui peuvent influencer de façon plus au moins importante la qualité de la distribution du liquide à l'intérieur d'un trickle-bed. Il est important de préciser ici que la définition de la maldistribution peut dépendre du paramètre étudié : ce n'est pas la même chose de parler par exemple de maldistribution en termes des débits ou en termes de rétention de liquide. Ainsi, chaque auteur définit souvent la maldistribution en termes de la grandeur à laquelle sa technique de mesure permet d'avoir accès. Par la suite, il faudra garder à l'esprit cette nuance, de façon à saisir de façon convenable l'impact des différents paramètres qui seront présentés comme ayant une influence sur la maldistribution du liquide. Ces paramètres sont :

- Le distributeur de liquide

La façon dont le liquide est introduit dans le réacteur joue un rôle déterminant sur les performances de celui-ci. Un bon distributeur garantit un mouillage homogène des couches supérieures du catalyseur et peut déterminer la qualité de la distribution du liquide tout au long du lit catalytique. Harter et coll (2005) par exemple ont diminué d'un facteur 3 la déviation standard de la distribution du flux de liquide en sortie de leur réacteur en remplaçant un distributeur « classique » (environ 25 entrées par m² de section droite du lit) par un distributeur « optimisé » (les détails concernant l'amélioration effectuée sur le distributeur ne sont malheureusement pas précisés par les auteurs). Tsochatzidis et coll (2002) ont remarqué que la qualité de la distribution initiale pouvait même déplacer la transition entre les régimes ruisselant et pulsé, tandis que Kouri et

Sohlo (1996) ont observé, dans un réacteur opérant à contre-courant, comment la mauvaise distribution initiale du liquide pouvait affecter la distribution du gaz dans la colonne. Dans le cas des réacteurs industriels, Trambouze et Euzen (2002) recommandent une alimentation de liquide sous forme d'une pluie fine et régulière, mettant en œuvre au moins 40 à 100 points de distribution du liquide par mètre carré de section droite du lit catalytique.

- L'effet de paroi

L'effet de paroi (wall channelling) fait référence à l'accumulation du liquide près des parois du réacteur où la porosité est plus importante. Ce phénomène qui affecte particulièrement les lits de particules sphériques (Figure 1-3), nuit aux performances du réacteur car les parois ne sont pas actives du point de vue catalytique. La grandeur du flux à la paroi dépend des propriétés physico-chimiques du mélange réactionnel, de la mouillabilité et de la porosité du catalyseur solide et surtout du rapport entre le diamètre des particules solides et le diamètre du réacteur (Saroha et Nigam, 1996). Ainsi, pour négliger les effets du flux à la paroi, Herskowitz et Smith (1978) proposent un rapport $D_c/d_p > 18$ tandis que Al-Dahhan et Dudukovic (1994) rapportent que même à des pressions élevées (expériences entre 0,3 et 5 bar), un rapport $D_c/d_p > 20$ permet de minimiser la maldistribution du liquide.

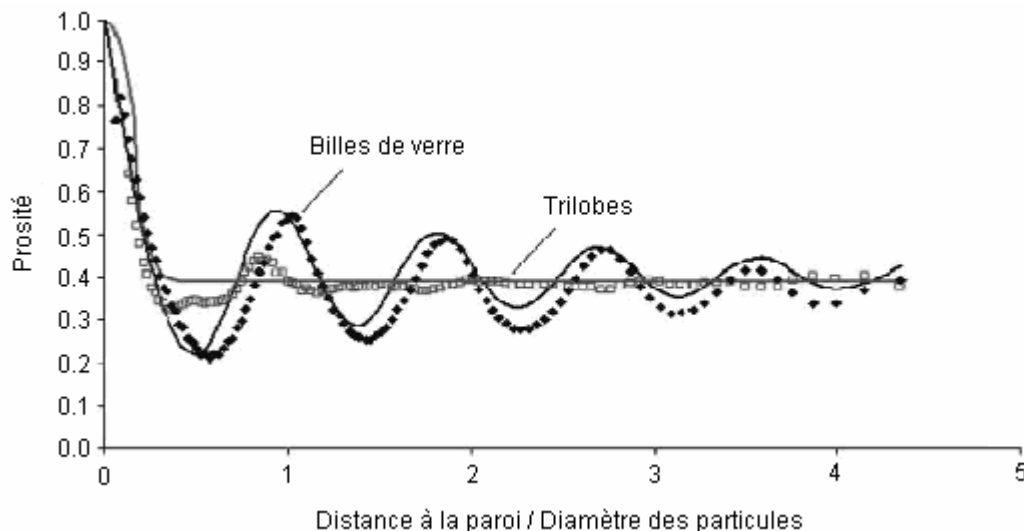


Figure 1-3. Nguyen et coll (2005): mesure de la porosité en proche paroi par résonance magnétique

Tableau 1-1 Récapitulatif des études de la distribution du liquide

Auteurs	Système	Géométrie	Gammes	Technique
Bemer et Zuiderweg (1978)	Liquide seul : Eau et Eau+alcools	$D_c = 0,2$ m $H = 50-300$ mm $d_p = 10-30$ mm Anneaux Raschig	$L = 0,5-8,9$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide à 177 zones
Borda et coll (1987)	Liquide: Eau, Eau +CMC Gaz : Air	$D_c = 72$ mm $H = 0,85$ m $d_p = 4,8-7$ mm Billes, cylindres et anneaux Raschig	$G = 0,02-0,13$ Kg/m ² s $L = 2-20$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 3 ou 4 zones
Boyer et coll (2005)	Liquide : Eau Gaz : Air	$D_c = 0,4$ m $H = 1,8$ m $d_p = 1,99$ mm Billes de verre	$G = 0,12-0,24$ Kg/m ² s $L = 0,28$ Kg/m ² s	Tomographie à rayons γ
Dutkai et Ruckenstein (1968)	Liquide seul : Eau	$D_c = 0,15$ et $0,25$ m $d_p = 1-2,5$ mm anneaux Raschig selles Intalox	$L = 4-8,5$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 5 zones
Gladden et Sederman (2001)	Liquide : Eau Gaz : Air	$D_c = 40$ mm $H = 0,5$ m $d_p = 5$ mm Billes de verre	$G = 0,08-0,43$ Kg/m ² s $L = 0,5-5,8$ Kg/m ² s	Imagerie par résonance magnétique
Harter et coll (2001)	Liquide : Heptane Gaz : Azote $P = 1-4$ bar	$D_c = 0,6$ m $H = 1-5$ m	$G = 0,06-0,52$ Kg/m ² s $L = 0,35-14$ Kg/m ² s	Tomographie gamma + collecteur de liquide à 60 zones
Herskowitz et Smith (1978)	Liquide: Eau, Eau +tensioactif Gaz : Air	$D_c = 40,8$ et 114 mm $H = 0 - 0,7$ m $d_p = 2,58-11,1$ mm granulés, sphères, cylindres	$G = 0,001-0,05$ Kg/m ² s $L = 1-5$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 3, 4 ou 6 zones
Hoek et coll (1986)	Liquide seul	$D_c = 0,5$ m $H = 0-2$ m $d_p = 1-5$ mm anneaux Raschig anneaux Pall selles Intalox	$L = 5-15$ Kg/m ² s	Collecteur du liquide à 657 zones
Kouri et Sohlo (1996)	Contre-courant Liquide : Eau Gaz : air	$D_c = 0,5$ m $H = 0-3$ m $d_p = 2,5-5$ mm anneaux Pall, selles Intalox	$G = 0-0,27$ Kg/m ² s $L = 2,5-10$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 5 zones
Kundu et coll (2001)	Liquide : Eau, kérosène, éthylèneglycol, Eau+tensioactif Gas : air	$D_c = 0,152$ m $d_p = 1,5$ mm Extrudés, trilobes, cylindres, tablettes, sphères, tablettes creuses.	$G = 0-0,027$ Kg/m ² s $L = 0,7-5$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 6 zones
Lutran et coll (1991)	Liquide seul: Eau, Eau +tensioactif	$D_c = 0,1$ m $H = 0,19$ m $d_p = 3-6$ m Billes	$L = 3,2-9,1$ Kg/m ² s	Tomographie à rayons X assistée par ordinateur (CAT)
Møller et coll (1996)	Liquide: Eau, Eau +tensioactif Gaz : Air	$D_c = 0,144$ m $H = 0,77$ m $d_p = 1,6$ mm cylindres et tablettes cylindriques TK-10 (1,6x1,1 mm)	$G = 0-0,07$ Kg/m ² s $L = 2-8$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide à 8 zones

Tableau 1-1 Suite... Récapitulatif des études sur les facteurs affectant la distribution du liquide

Auteurs	Système	Géométrie	Gammes	Technique
Marcandelli et coll (2000) et Marcandelli (1999)	Liquide : Eau Gaz : air	$D_c = 0,3$ m $H = 0,13$ m $dp = 2$ mm Billes, extrudés polylobes	$G = 0-0,18$ Kg/m ² s $L = 0,6-8$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide, DTS, thermistances
Nguyen et coll (2005)	Liquide: Gasoil Gaz : Azote $T = 298-398$ K $P = 1-10$ bar	$D_c = 19$ mm $H = 21,5$ mm $dp = 2$ mm Billes et extrudés trilobés	$G = 0,035$ Kg/m ² s $L = 0-3$ Kg/m ² s	Imagerie par résonance magnétique
Onda et coll (1973)	Liquide seul: Eau, Eau +tensioactif	$D_c = 0,152$ m $H = 0,065-0,1$ m $dp = 4,8-12,7$ mm anneaux Raschig selles Berl	$L = 0,83-8,3$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 4 zones et mesures de conductivité avec traceur.
Ravindra et coll (1997)	Liquide : Eau Gaz : air	Lit rectangulaire = $0,06 \times 0,08$ m $H = 0,20$ m $dp = 1,6-6,3$ mm Billes, extrudés en alumina	$G = 0,05$ Kg/m ² s $L = 1-8$ Kg/m ² s	Observations visuelles par une méthode d'absorption d'encre Collecteur de liquide à 16 zones
Saroha et coll (1998)	Liquide : Eau, kérosène, éthylèneglycol, Eau+tensioactif Gaz : air	$D_c = 0,152$ m $dp = 1,5$ mm Extrudés en alumina	$G = 0-0,027$ Kg/m ² s $L = 0,7-5$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 6 zones
Sylvester et Pitayagulsarn (1975)	Liquide : Eau Gaz : air	$D_c = 0,15$ m $H = 0,15-0,91$ m $dp = 3,2-6,3$ mm selles Intalox cylindres	$G = 0,04-0,78$ Kg/m ² s $L = 3,6-19,7$ Kg/m ² s	Collecteur de liquide annulaire à 6 zones
Tsochatzidis et coll (2002)	Liquide : Eau, liquide moussant Gaz : air	$D_c = 0,14$ m $H = 1,24$ m $dp = 1,5-6$ mm sphères cylindres	$G = 0,13-0,37$ Kg/m ² s $L = 1,36-20,34$ Kg/m ² s	Mesures de conductivité (moyennes par section passante et mesures locales)
Tukač et coll (1992)	Liquide : Eau Gaz : air	$D_c = 0,107$ m $H = 1$ m $dp = 1,8$ mm Cylindres en alumine	$G = 0-0,052$ Kg/m ² s $L = 0-12,1$ Kg/m ² s	DTS et collecteur de liquide annulaire à 4 zones
Vergel (1993), Vergel et coll. (1995)	Expériences avec traceur : Liquide : Eau Gaz : Air $P = 6,5$ bar Liquide : Coupe pétrolière C4 Gaz : Hydrogène $P = 6,5$ bar	Expériences avec traceur : $D_c = 0,1$ m $H = 0,75$ m $dp = 2,2$ mm Billes en alumine Expériences avec réaction chimique : $D_c = 55$ et 105 mm $H = 1,8$ et $2,63$ m $dp = 2,2$ mm Extrudés en alumine	Expériences avec traceur : $G = 0,017 - 0,053$ Kg/m ² s $L = 5-15$ Kg/m ² s Expériences avec réaction chimique : $G = 0,17 - 0,53$ Kg/m ² s $L = 2,9-8,9$ Kg/m ² s	Traceur colorant et photo ; mise en œuvre d'une réaction complexe dont la sélectivité dépend de la distribution du liquide

- La couche supérieure de particules

L'utilisation d'une couche de particules inertes placées entre le distributeur de liquide et le catalyseur solide a été recommandée par plusieurs auteurs et est couramment mise en œuvre dans l'industrie. Ces particules peuvent limiter les effets d'un mauvais distributeur en favorisant la dispersion radiale du liquide. Møller et coll (1996), par exemple, ont utilisé en tête de lit une couche de 10cm de particules TK-10 (tablettes cylindriques semi creuses) plus grosses que celles du reste du réacteur. Avec ces particules, la performance du réacteur est équivalente pour des distributeurs ayant 1 ou 8 entrées de liquide. Tsochatzidis et coll (2002) font remarquer que l'utilisation de particules inertes de taille et masse volumique supérieures à celles du reste du réacteur permet non seulement d'améliorer la distribution du liquide, mais aussi d'éviter le mouvement des couches supérieures de catalyseur.

- Les débits des fluides

Comme l'ont observé de nombreux auteurs, la distribution du liquide dans les trickle-beds est influencée de façon considérable par les débits de gaz et de liquide. Dans le cas du liquide, il est facile d'imaginer que, comme l'ont observé Lutran et coll (1991), l'augmentation du débit provoque un grossissement des filets de liquide qui finit par obliger ceux-ci à se répandre dans des zones du réacteur initialement sèches. Ainsi, l'augmentation du débit de liquide favorise de façon considérable sa bonne distribution (Møller et coll., 1996, Saroha et coll., 1998, Marcandelli et coll., 2000). Dans le cas du gaz, une forte amélioration de la distribution du liquide a lieu au moment ou celui-ci est rajouté à un écoulement de liquide seul dans le réacteur (Borda et coll., 1987, Marcandelli, 1999, Kundu et coll., 2001). Les augmentations subséquentes du débit de gaz améliorent légèrement la qualité de la distribution sans avoir une influence aussi importante que le débit du liquide (Sylvester et Pitayagulsarn, 1975, Kundu et coll., 2001).

- Les propriétés physiques des fluides

En ce qui concerne le liquide, l'une des propriétés les plus étudiées est sa tension superficielle. Ainsi, pour Onda et coll. (1973) par exemple, la dispersion radiale du liquide augmente avec la tension superficielle. Cette observation est partagée par Lutran et coll. (1991) qui remarquent aussi que la diminution de la tension superficielle favorise un écoulement du liquide sous la forme de filets. Møller et coll. (1996) étudient l'efficacité d'un trickle-bed avec deux fluides ayant des tensions superficielles différentes.

Ils concluent d'après les valeurs d'efficacité que la diminution de la tension superficielle affecte négativement la qualité de la distribution du liquide. D'un autre côté, Kundu et coll. (2001) et Saroha et coll. (1998) trouvent des résultats qui ne vont apparemment pas dans le même sens. Selon leurs observations, la maldistribution macroscopique (plus spécifiquement le flux à la paroi) diminue avec la diminution de la tension superficielle. Kundu et coll. (2001) affirment que cette amélioration dans la qualité de la distribution du liquide est due à la diminution de l'épaisseur du film liquide comme conséquence de la diminution de la tension superficielle. Il est probable que les divergences entre ces deux auteurs et les précédents sont la conséquence de la façon dont ils expriment leurs résultats. En effet, Kundu et coll. (2001) et Saroha et coll. (1998) utilisent un collecteur annulaire pour mesurer, entre autres, les flux à la paroi. Etant donné qu'ils utilisent un bon distributeur du liquide (les deux publications sont issues de la même équipe et ils utilisent les mêmes installations) et que ces études ont été faites en absence de gaz, il est tout à fait probable que la diminution de la dispersion radiale du liquide reportée par les autres auteurs permette au liquide de s'écouler à travers le solide en suivant plus fidèlement la « bonne » distribution imposé par le distributeur. Le résultat ainsi obtenu serait en effet une amélioration de la distribution du liquide comme résultat de la diminution de la tension superficielle. A noter cependant que, comme on le verra plus loin, les mesures en absence d'écoulement gazeux sont d'un intérêt limité pour l'étude de la maldistribution dans les trickle-beds.

A la différence des études précédentes, Herskowitz et Smith (1978) ont étudié l'effet de la tension superficielle avec un écoulement gazeux non nul. Ils ont observé qu'une diminution de la tension superficielle diminuait le flux à la paroi tout en ayant un effet négligeable sur la dispersion radiale du liquide. Finalement, en diminuant la tension superficielle du liquide, Tsochatzidis et coll. (2002) ont étudié l'effet du caractère moussant du liquide sur la distribution du liquide. Ils concluent que la distribution radiale était plus uniforme avec des liquides moussants et que, en partant d'une maldistribution initiale, les liquides moussant arrivaient plus facilement à uniformiser la distribution. Notons cependant que Marcandelli (1999) a observé qu'en cas de très mauvaise distribution initiale du liquide, le caractère inhibiteur de coalescence du liquide peut accroître la maldistribution.

Il est important de remarquer que les études de l'influence de la tension superficielle sont souvent sujettes à caution : lorsqu'on modifie cette grandeur en remplaçant un liquide pur par un mélange, on peut modifier assez profondément le comportement interfacial. Ainsi, deux substances ayant la même tension superficielle pourraient présenter des comportements différents du fait des différences en termes du gradient de tension

superficielle au voisinage de l'interface, des variations d'angle de mouillage ou d'autres phénomènes interfaciaux.

Un peu moins étudiée que la tension superficielle, la viscosité peut aussi influencer la distribution du liquide. Selon Borda et coll. (1987) une augmentation de la viscosité entraînerait une légère détérioration de la qualité de la distribution du liquide tandis que pour Onda et coll. (1973), l'influence de la viscosité serait négligeable. Il faut néanmoins préciser que non seulement les types de solide sont différents mais aussi que, tandis que Onda et coll. (1973) travaillent avec des viscosités comprises entre 0,001 et 0,0025 Pa.s, Borda et coll. (1987) passent d'une viscosité de 0,001 Pa.s à une viscosité de 0,008 Pa.s. Bien que réel, l'effet de la viscosité serait donc faible et il faudrait des changements assez importants pour modifier de façon conséquente la distribution du liquide.

Finalement, l'influence des masses volumiques des fluides sur la distribution du liquide a aussi été étudiée. En ce qui concerne le liquide, Kundu et coll. (2001) et Saroha et coll. (1998) observent une amélioration de la distribution du liquide quand la masse volumique de celui-ci diminue. Kundu et coll. (2001) expliquent ceci par le fait que, en étant plus léger pour un volume équivalent, un liquide à faible masse volumique serait moins enclin à s'écouler par le chemin le plus court, diminuant ainsi, la probabilité de formation de chemins préférentiels. À noter cependant qu'il est impossible de modifier la masse volumique du liquide sans en modifier la nature, donc les autres propriétés physico-chimiques. En ce qui concerne le gaz, Al-Dahhan et coll. (1997) affirment qu'une augmentation de sa masse volumique améliore la distribution du liquide et l'efficacité du mouillage.

- Les caractéristiques du catalyseur solide

Que ce soit la taille, la forme ou encore les propriétés physiques, les caractéristiques du catalyseur solide ont une forte influence sur la qualité de la distribution du liquide. En ce qui concerne la taille des particules solides, même si la magnitude observée de son effet sur la distribution du liquide n'a pas été de la même ampleur pour les différentes études, Onda et coll. (1973), Bemmer et Zuiderweg (1978) et Tsochatzidis et coll. (2002) ont tous remarqué une augmentation de la dispersion radiale du liquide avec le diamètre des particules.

La forme des particules joue elle aussi un rôle important. Ainsi, Tsochatzidis et coll. (2002) considèrent que les particules sphériques ont de meilleures performances en termes de dispersion radiale que les cylindres tandis que Tukač et Hanika (1992)

conditionnent la performance des cylindres à leur orientation majoritaire dans la colonne. Une orientation principalement horizontale favoriserait la dispersion radiale tandis qu'une orientation verticale favoriserait plutôt la formation de chemins préférentiels. La forme du catalyseur peut affecter aussi l'influence d'autres paramètres sur la distribution du liquide. Dans ce sens, Kundu et coll. (2001) affirment que des 6 types de solides dont ils se sont servis, les billes de verre étaient celles pour lesquelles le flux à la paroi était le plus influencé par le débit de liquide et en même temps le moins influencé par le débit de gaz. Ils expliquent ceci en remarquant que, le lit de billes étant le plus régulier, la distribution du liquide dépend principalement des débits des fluides sans subir l'influence des paramètres tels que l'orientation des particules. Ainsi, une fois que le débit de gaz est suffisant pour interagir avec le liquide, la distribution de ce dernier est considérablement améliorée.

Finalement, la mouillabilité des particules influence elle aussi la distribution du liquide. Des particules n'ayant qu'une affinité faible pour le liquide (p.ex. réacteur fonctionnant avec de l'eau et des particules hydrophobes) favorisent un écoulement sous la forme des filets (Chou et coll., 1977) et diminuent l'efficacité du mouillage (Horowitz et coll., 1999). Pour Khanna et Nigam (2002), l'importance de l'effet de la mouillabilité du solide sur l'efficacité du mouillage dépendrait aussi de la géométrie des particules. Ainsi, ils ont remarqué que cet effet était plus prononcé pour des particules sphériques que pour des cylindres.

- La méthode de chargement du catalyseur

La façon dont le catalyseur est introduit dans le réacteur peut affecter de façon considérable la porosité et l'orientation des particules solides, influençant ainsi la manière dont le liquide s'écoule à travers le lit. Les deux types de chargements les plus communément utilisés sont le chargement à la chaussette (de l'anglais « sock ») et le chargement dense. Le premier consiste à introduire le catalyseur en vrac dans le réacteur. Ce type de remplissage est très hétérogène et favorise l'apparition de zones à forte porosité locale. Dans le cas du chargement dense au contraire, les particules sont introduites lentement dans le réacteur afin de favoriser une forte compacité. Ainsi, en fonction du type de particules, des diminutions de porosité de l'ordre de 15% par rapport au chargement vrac peuvent être atteintes. Dans le cas des particules allongées (p.ex. des particules cylindriques), le chargement dense favorise également le positionnement horizontal de celles-ci. Tukač et Hanika (1992), par exemple, ont remarqué que le chargement dense améliorerait la distribution radiale du liquide. Ceci n'est pas étonnant si l'on considère que ce type de chargement permet d'augmenter les points de contact entre

les particules et que selon Herskowitz et Smith (1978), la dispersion radiale a lieu aux endroits où les particules solides se touchent. Plus loin cependant, on sera amené à questionner cette affirmation.

- Le prémouillage du lit

Le dernier des facteurs qui sont considérés, mais en même temps l'un des plus importants est le prémouillage du lit. En effet, l'opération d'un trickle-bed est fortement influencée par l'état du lit au moment du démarrage. Ainsi, le prémouillage du lit favorise l'écoulement du liquide sous la forme de films (Lutran et coll., 1991, Maiti et coll., 2004), améliore la distribution du liquide (Lutran et coll., 1991, Møller et coll., 1996, Ravindra et coll., 1997) et diminue l'influence du distributeur sur la distribution du liquide (Lutran et coll., 1991, Ravindra et coll., 1997). Le prémouillage du lit semblerait aussi diminuer les effets de la tension superficielle et du débit de liquide sur la distribution de celui-ci (Lutran et coll., 1991) et permettrait aux particules poreuses de se comporter (du point de vue hydrodynamique) comme des particules non poreuses (Ravindra et coll., 1997, Maiti et coll., 2004).

L'effet d'autres paramètres tels que la pression et la température n'a pas été détaillé ici car ils n'affectent que de façon indirecte la distribution du liquide. Ainsi, une augmentation de pression affectera la distribution du liquide dans la mesure où elle fait augmenter la masse volumique du gaz tandis que l'effet de la température est lui, liée aux changements de la viscosité et de la tension superficielle du liquide.

1.5 Conclusion

De par son intérêt du point de vue industriel, l'étude des trickle-beds a été l'objet de nombreuses recherches. Dans ce cadre là, la compréhension de la maldistribution des fluides et des paramètres pouvant l'influencer occupe une place primordiale. Cependant, il est clair qu'à l'heure actuelle des doutes persistent quant à la façon optimale d'opérer ce type de réacteurs, ceci non seulement à cause des difficultés à extrapoler les résultats obtenus au laboratoire aux réacteurs industriels mais aussi à cause des difficultés inhérentes aux mesures dans un milieu aussi complexe que les lits triphasiques. Différents types de techniques ont été employés pour l'étude de la maldistribution, chacune avec ses forces et ses faiblesses mais toutes ayant une influence sur la façon dont la maldistribution est caractérisée. Dans le cadre de cette thèse, deux nouvelles techniques sont proposées pour l'étude de la maldistribution du liquide. L'utilisation complémentaire de ces techniques devrait permettre d'étudier simultanément la maldistribution en termes de deux grandeurs différentes: les vitesses et les

réentions de liquide. Elles sont associées à un collecteur de liquide permettant de caractériser la maldistribution globale des débits de liquide en sortie du réacteur. L'étude qui sera présentée par la suite cherche à faire un apport à la compréhension de l'effet des paramètres tels que la distribution initiale, les débits des fluides et le type de chargement du solide sur la distribution du liquide à l'intérieur des trickle-bed.

2 Dispositif expérimental et techniques de mesure

2.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la présentation du montage expérimental, des conditions opératoires et des techniques de mesures utilisés lors de cette étude. Une attention particulière sera portée à la présentation des étalonnages ainsi qu'aux limitations des différentes techniques de mesures employées.

2.2 Dispositif expérimental

2.2.1 Le réacteur

Les expériences sont réalisées dans un lit fixe de 30cm de diamètre et 130cm de hauteur (Figure 2-1). Le gaz et le liquide sont injectés par la partie supérieure de la colonne et leur débit est contrôlé à l'aide de plusieurs rotamètres. Le liquide, qui circule en circuit fermé, est stocké dans une cuve d'environ 500 litres et sa température est régulée à l'aide d'une résistance chauffante et d'un serpentin fonctionnant à l'eau de ville. Le gaz circule en circuit ouvert et est donc rejeté à l'atmosphère après son passage par le réacteur. La pression à l'intérieur du réacteur est contrôlée à l'aide de deux capteurs à membrane placés à l'entrée et à la sortie de la colonne.

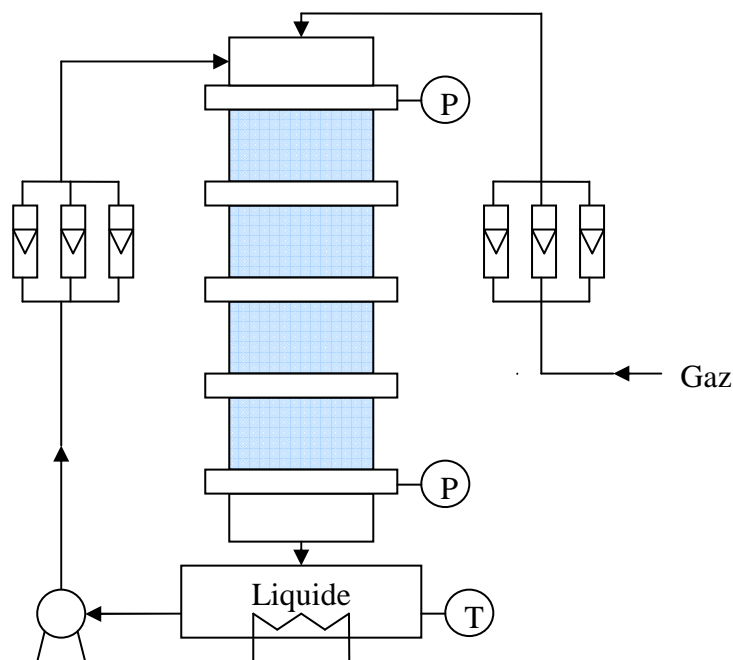


Figure 2-1. Pilote expérimental

2.2.2 La distribution des fluides

L'entrée des fluides en tête du réacteur se fait à l'aide d'un dispositif de type industriel (fourni à C. Marcandelli par J.R. Bernard (ELF) en 1995). Tandis que l'entrée du gaz dans la colonne se fait en utilisant 4 cheminées, la distribution du liquide est assurée par un plateau perforé (Figure 2-2).

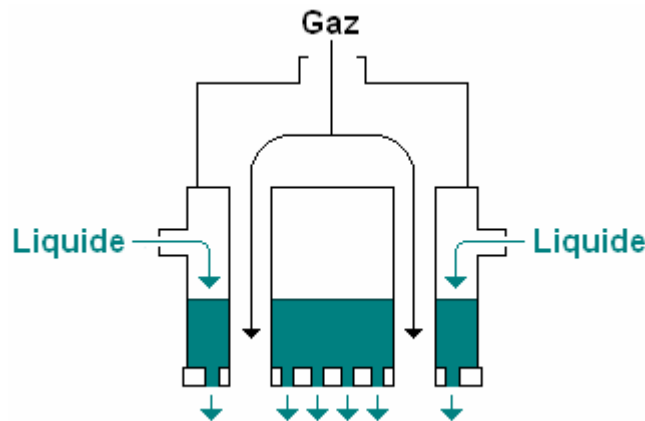


Figure 2-2. Système de distribution des fluides

Trois plateaux perforés différents principaux sont utilisés au long de cette étude (Figure 2-3). Des modifications sur ces plateaux (en refermant des entrées de liquide) permettent d'avoir divers types de distribution initiale de liquide.

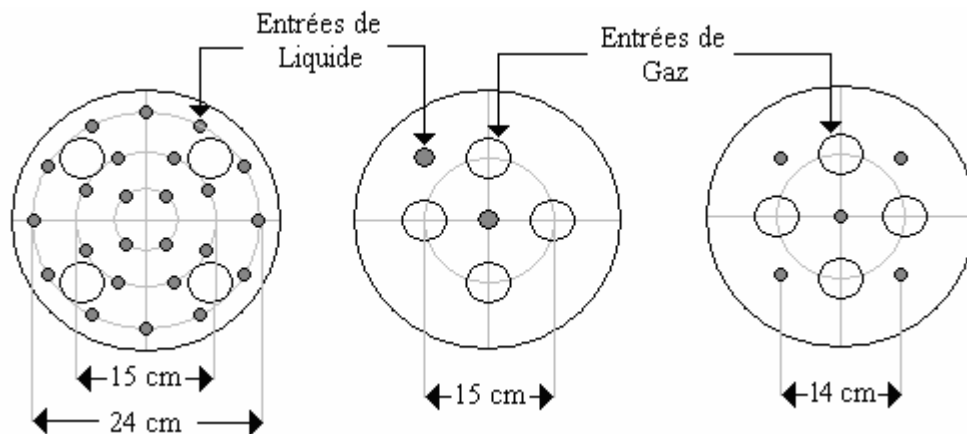


Figure 2-3. Plateaux perforés pour la distribution des fluides

2.2.3 Conditions opératoires

Toutes les expériences sont réalisées à pression et température ambiantes (≈ 1 bar et 22 °C). De l'air, issu du circuit d'air comprimé du laboratoire, est utilisé comme gaz, tandis que l'eau

de ville est utilisée comme liquide. Les vitesses superficielles maximales mises en œuvre sont de 0,015 m/s pour le liquide et de 0,35 m/s pour le gaz. Il faut noter que la gamme des débits gazeux étudiée n'est pas très étendue. En effet, des contraintes techniques liées aux pertes de charge dans la colonne et à la capacité du réseau d'air comprimé du laboratoire empêchaient la réalisation des expériences à des débits de gaz plus forts.

2.2.4 Catalyseur solide et porosité

Pour les différentes expériences, trois types de solide sont utilisés :

- Billes de verre

Avec un diamètre de 2mm et une masse volumique de 2552 kg/m^3 , les billes de verre sont surtout utilisées pour des expériences préliminaires où l'objectif est de tester la fiabilité des différentes méthodes. La porosité du lit lorsqu'il est rempli de billes de verre est d'environ 0,39.

- Extrudés cylindriques poreux

Les extrudés cylindriques sont des particules d'alumine utilisées industriellement dans des réacteurs d'hydrodésulfuration. La masse volumique apparente des particules sèches est d'environ 1510 kg/m^3 (déterminée par porosimétrie à mercure) tandis que leur masse volumique réelle (déterminée par pycnométrie à l'hélium) est de 2800 kg/m^3 (Pérat, 2003). Le diamètre et surtout la longueur de ces particules varient fortement de l'une à l'autre. Ainsi, leur diamètre et longueur moyens sont de 0,12 cm et 0,43 cm respectivement, mais les écarts type relatifs de ces grandeurs sont de 12 et 35%. La Figure 2-4 et la Figure 2-5 montrent la distribution de ces deux grandeurs.

En ce qui concerne la porosité du lit lorsqu'il est rempli de ce type de particules, elle dépend du mode de chargement mis en œuvre (voir partie consacré à « la méthode de chargement du catalyseur » au paragraphe 1.4.3). Ainsi, quand le lit est chargé « à la chaussette » les particules s'orientent de façon aléatoire et la porosité est relativement élevée (0,47 dans le cas présent). Par contre, si un chargement dense est effectué, une compacité plus importante est atteinte et la porosité du réacteur se situe alors aux environs de 0,39.

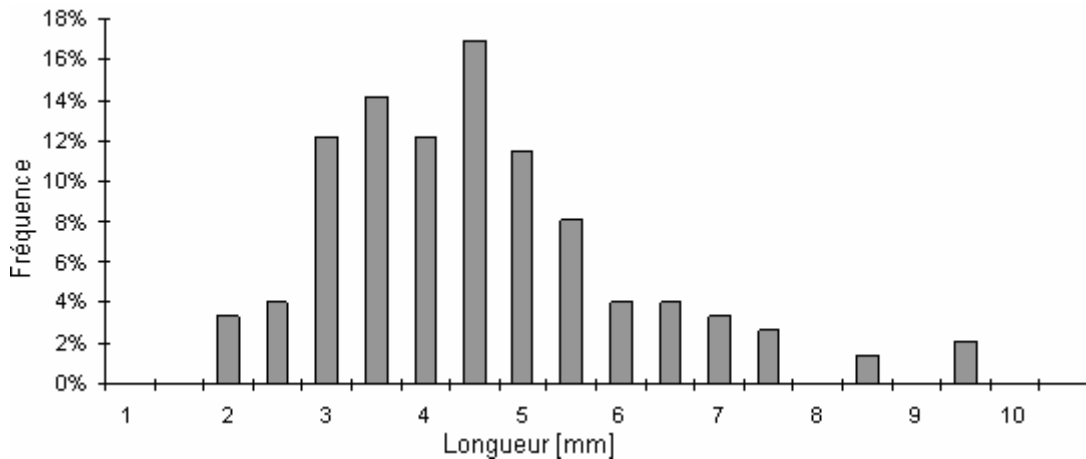


Figure 2-4. Distribution des longueurs.

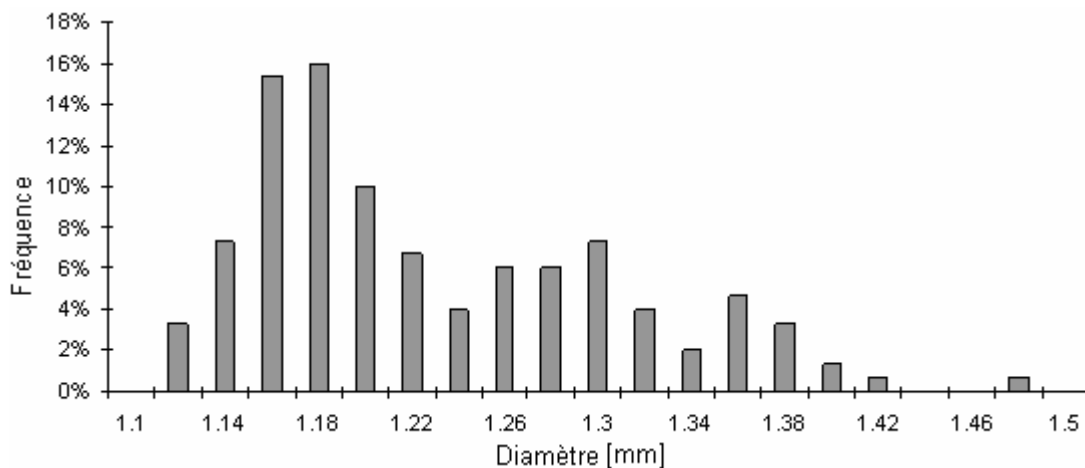


Figure 2-5 Distribution des diamètres.

- Extrudés non poreux

Les extrudés non poreux sont des cylindres de base elliptique en polyéthylène de basse densité. A la différence des cylindres poreux, les dimensions de ce type de particules sont plus régulières, avec des écarts type relatif de l'ordre de 3%. En moyenne, les particules ont des axes d'environ 1,12 et 1,70 mm avec une longueur de 3,65 mm. Dans le cadre de ce travail, ce type de particules est principalement utilisé pour étudier l'influence de leur caractère hydrophobe sur la distribution du liquide. La porosité du réacteur rempli d'extrudés en polyéthylène est d'environ 0,42.

2.3 Techniques de mesure

En plus des mesures de pression à l'entrée et à la sortie du réacteur, trois techniques sont utilisées pour l'étude de la maldistribution du liquide à différentes échelles. Ces techniques

sont : un collecteur de liquide, un grand nombre de thermistances et deux systèmes de tomographie à fils.

2.3.1 Le collecteur de liquide

Un collecteur de liquide avec 9 compartiments de surfaces égales (Figure 2-6) est utilisé pour étudier la maldistribution à l'échelle macroscopique en sortie du réacteur. Pour quantifier cette maldistribution, l'indice de maldistribution (M_f) défini par Marcandelli (1999) est utilisé :

$$M_f = \sqrt{\frac{1}{N(N-1)} \sum_i \left(\frac{Q_i - \bar{Q}}{\bar{Q}} \right)^2} \quad (2-I)$$

Pour cette expression, N est le nombre de compartiments, Q_i est le débit de la zone i et \bar{Q} est le débit moyen. Les débits spécifiques à chaque zone sont mesurés par empotage. Il faut noter que, lorsque les débits sont importants, des erreurs de mesure peuvent apparaître notamment par le mouvement de l'interface du liquide lorsque ce dernier remplit le volume utilisé pour l'empotage. Ces erreurs sont estimées au maximum à environ 8-10%.

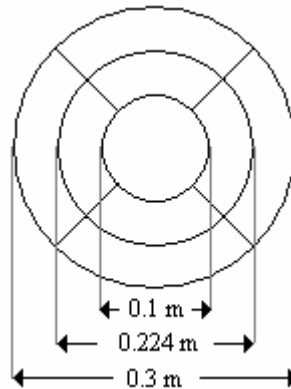


Figure 2-6. Collecteur de liquide

2.3.2 Les thermistances

Une thermistance est un élément électronique dont la résistance (R) varie en fonction de la température (T) en suivant une relation de la forme:

$$T = \frac{1}{A + B \cdot \ln(R)} \quad (2-II)$$

Sous un courant faible, une thermistance permet de mesurer la température T_f du milieu dans lequel elle se trouve. Si un courant (i) de plus forte intensité est appliqué, la thermistance chauffe (effet Joule) et la température mesurée dans ces conditions est alors fonction de la quantité de chaleur (Q) qui peut être évacuée par le fluide :

$$Q = R \cdot i^2 = U \cdot S \cdot (T_{th} - T_f) \quad (2-III)$$

En connaissant la température du fluide, la surface (S) de la thermistance, et les constantes A et B de la relation 2-II, la mesure de la résistance d'une thermistance permet de calculer sa température (T_{th}) et le coefficient global de transfert de chaleur (U). Avec ces grandeurs et une relation du type $Nu = f(Re)$ (avec Nu et Re les nombres de Nusselt et de Reynolds respectivement), la vitesse du fluide qui circule autour de la thermistance peut être estimée.

Del Pozo (1992), Nore (1992), Marcandelli (1999) et Borremans (2003) ont tous utilisé les principes précédents pour mesurer des vitesses de liquide dans des réacteurs triphasiques à l'aide de thermistances. Cependant, dans leurs travaux un nombre relativement faible de thermistances était utilisé. Dans le cadre de cette étude, qui est la suite directe de la thèse de Pérat (2005), 87 thermistances placées à une profondeur donnée du lit fixe sont utilisées pour étudier la distribution du liquide à l'échelle de la particule sur une section transversale du réacteur.

Avant la mise en œuvre de la technique, quelques étapes préliminaires sont nécessaires. Pour commencer, le type de thermistances à utiliser doit être choisi, tous les paramètres inhérents à chacune de ces thermistances doivent être ensuite estimés (constantes A et B , surface...) et enfin, une relation du type $Nu = f(Re)$ permettant de calculer des vitesses de fluide en fonction des mesures de résistance doit être établie.

2.3.2.1 Choix des thermistances

Etant donné la configuration du dispositif (voir paragraphe 2.3.2.10), les thermistances utilisées ne peuvent pas être remplacées facilement. Pour cette raison, des sondes présentant une longévité assez importante doivent être choisies. Trois types de thermistances différentes ont été testées : les 44033 fabriquées par Omega et utilisées par Del Pozo (1992), les 151-111 fournis par Farnell et les thermistances utilisées par Marcandelli (1999). Après un certain nombre d'expériences visant notamment à déterminer la durée de vie moyenne des thermistances en conditions d'opération ainsi que leur résistance à des variations successives du courant fourni, on est arrivé à la conclusion que les thermistances 151-111 fournies par

Farnell (Figure 2-7) présentaient les caractéristiques de longévité les plus satisfaisantes et ce sont donc elles qui ont été choisies pour cette étude.



Figure 2-7 Thermistances 151-111 fournies par Farnell.

La couche de verre qui entoure ces sondes, et qui est peut-être à l'origine de leur longévité, rend aussi ces thermistances moins sensibles que les deux autres. Etant donné que la sensibilité aux changements de vitesse du fluide augmente avec le courant fourni aux thermistances, un courant d'environ 10mA (supérieur à la valeur 5mA proposée par les autres auteurs) est utilisé lors des mesures du coefficient de transfert.

2.3.2.2 Calcul des constantes A et B

Le premier pas à effectuer après le choix de thermistances est l'estimation, pour chacune d'entre elles, des constantes A et B de la relation 2-II. La procédure est assez simple: il suffit de placer les sondes dans un bain thermostaté et de mesurer les résistances obtenues en faisant varier la température du bain. Ensuite, les valeurs de A et B sont obtenues en traçant la droite $1/T$ en fonction de $\ln(R)$.

Pour ce premier étalonnage, comme dans toutes les circonstances où il s'agit de mesurer la température du fluide, les sondes doivent être alimentées avec un courant assez faible (0,5mA) de façon à éviter l'échauffement produit par l'effet Joule.

Les valeurs de A et B obtenues sont en moyenne de $1,07 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ et $3,11 \times 10^{-4}$, avec des écarts- types relatifs de 3 et 1% respectivement.

2.3.2.3 Estimation de la résistance intrinsèque au transfert de chaleur des thermistances (R_{th})

La couche de verre qui recouvre les thermistances oppose une résistance au transfert de chaleur R_{th} qui doit être décomptée du coefficient de transfert global pour calculer le coefficient de transfert particule – fluide :

$$\frac{1}{hS} = \frac{1}{US} - R_{th} \quad (2-IV)$$

A des vitesses suffisamment élevées, le terme $1/hS$ devient négligeable et le transfert est limité seulement par la résistance intrinsèque des sondes. Ainsi, des expériences à haute vitesse permettent d'estimer la valeur de R_{th} , qui équivaut donc à la valeur de $1/US$ lorsque celle-ci n'évolue plus avec la vitesse du fluide. Cette technique d'estimation a été utilisée notamment par Del Pozo (1992), Nore (1992), Marcandelli (1999) et Borremans (2003).

L'estimation de R_{th} pour chacune des thermistances a été réalisée dans une colonne de petit diamètre (2,1cm de diamètre intérieur) dans laquelle 5 sondes espacées d'environ 20cm pouvaient être placées. La valeur de R_{th} pouvait être mesurée pour 4 sondes à la fois, la cinquième étant utilisée pour mesurer la température à l'intérieur de la colonne. Le fluide, qui circulait du bas vers le haut, pouvait atteindre une vitesse maximale d'environ 2,7m/s ce qui correspond à un nombre de Reynolds de particule d'environ 7000.

Pour s'assurer que la vitesse de 2,7m/s était effectivement suffisante pour le calcul des R_{th} , des expériences dans lesquelles la valeur de $1/US$ était calculée à des vitesses différentes ont été réalisées (Figure 2-8). Ces expériences montrent que la valeur du terme $1/US$ continue à diminuer au-delà de la vitesse maximale de 2,7m/s.

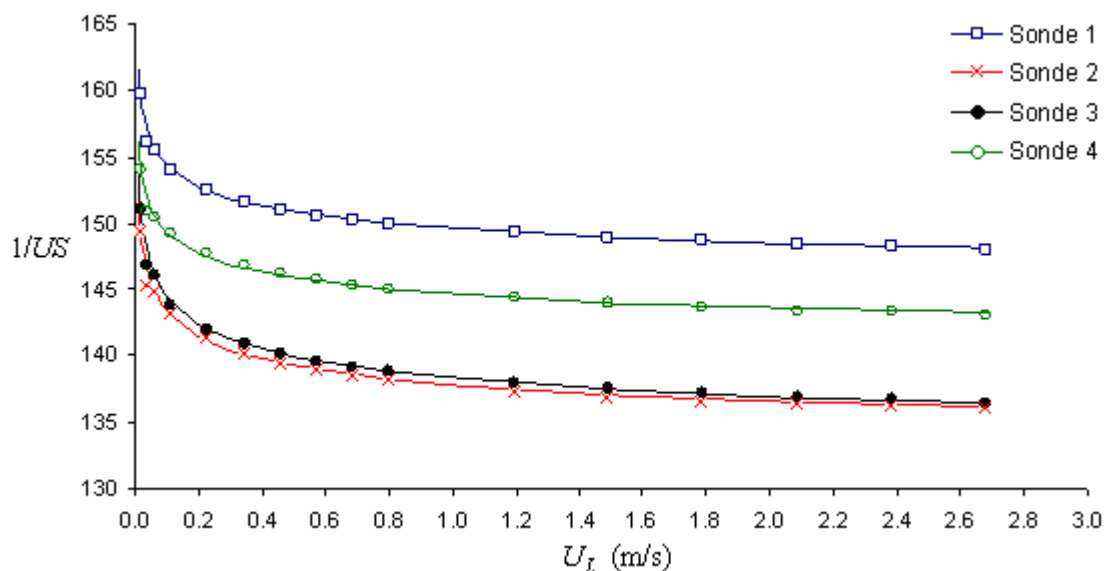


Figure 2-8 Evolution du terme $1/US$ en fonction de la vitesse du fluide.

Etant donné que l'appareillage expérimental ne permettait pas de travailler avec des vitesses plus importantes, il a été nécessaire d'utiliser une corrélation de la littérature pour corriger la valeur de R_{th} mesuré. L'idée a été alors de calculer la valeur du terme $1/hS$ à la vitesse à laquelle R_{th} a été estimé expérimentalement (2,7m/s) en utilisant une corrélation du type $Nu = A + B \cdot Re^C$. L'expression finale permettant de calculer R_{th} devient alors :

$$R_{th} = \frac{1}{US} \Big|_{Re=7000} - \frac{1}{hS} \Big|_{Re=7000} = \left(\frac{1}{US} \Big|_{Re=7000} \right) - \left(\frac{d_p}{[A + B \cdot Re^C] \cdot \lambda S} \Big|_{Re=7000} \right) \quad (2-V)$$

Où A , B et C sont des constantes, λ est la conductivité thermique du fluide et d_p est la longueur caractéristique (diamètre de la particule).

Un calcul préliminaire en utilisant la corrélation de Ranz et Marshall (1952) donne une correction d'environ 2,5K/W sur la valeur expérimentale de R_{th} . Ceci équivaut à environ 2% de la valeur totale de la résistance intrinsèque des sondes au transfert de chaleur.

Pour cette correction préliminaire de la résistance intrinsèque au transfert, une valeur moyenne de la surface des sondes a été utilisée. Cette valeur est corrigée une fois que la surface de chacune des sondes est déterminée (paragraphe 2.3.2.6). La démarche suivie est donc une série d'itérations où la surface calculée permet d'estimer la correction sur R_{th} qui est ensuite utilisée pour recalculer la surface (Voir Figure 2-13, paragraphe 2.3.2.6 pour un récapitulatif du modus operandi)

2.3.2.4 Effet de la température

Les premiers essais visant à calculer R_{th} ont permis d'identifier une dépendance de cette valeur par rapport à la différence de température entre la thermistance et le fluide (ΔT). Pour déterminer une corrélation entre ces deux paramètres, des expériences à des ΔT différents ont été réalisées : la température du fluide était maintenue constante tandis que la température interne des thermistances était modifiée en faisant varier le courant fourni entre 7 et 11 mA. Les résultats montrent que, pour les différences des températures étudiées, une équation logarithmique permet de bien corrélérer ces deux paramètres (Figure 2-9).

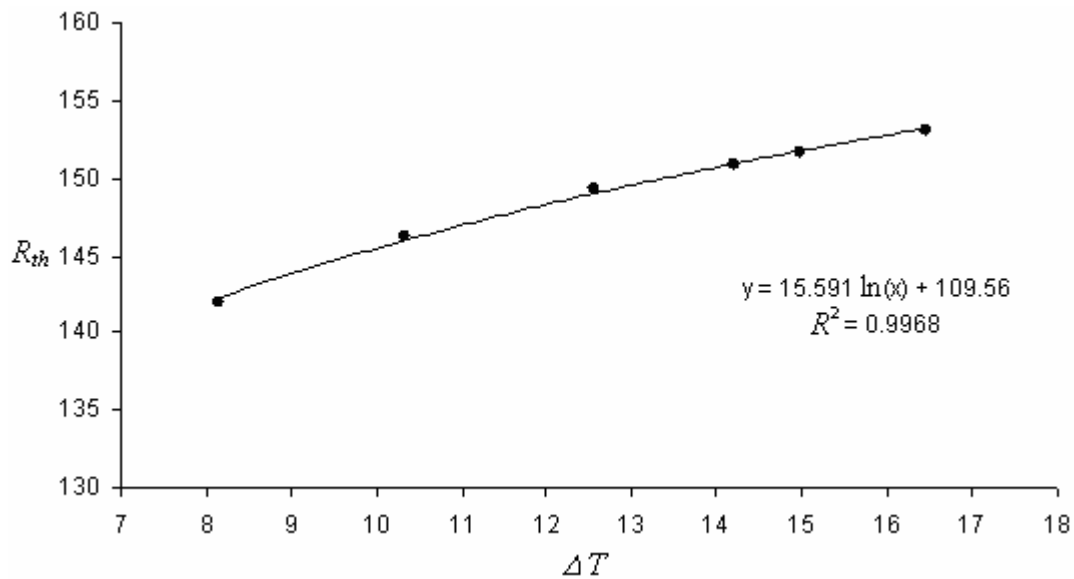


Figure 2-9 Variation du R_{th} en fonction du ΔT .

2.3.2.5 Effet de la position des sondes par rapport à l'écoulement

Un autre facteur qu'il faut prendre en compte pour calculer la valeur de R_{th} , est le fait que les sondes ne sont pas parfaitement symétriques. En effet, la thermistance ne se trouve pas exactement au centre de la bille de verre qui la protège (Figure 2-7). De ce fait, les valeurs de R_{th} dépendent du côté de la sonde qui fait face à l'écoulement.

Pour étudier l'amplitude du problème, la valeur de R_{th} a été calculée selon les deux cas présentés dans Figure 2-10.

L'écart entre les deux mesures n'est que de l'ordre de 1.5% (selon la sonde en question) mais étant donné que même des écarts assez faibles peuvent avoir une forte influence sur le calcul du coefficient de transfert et que, dans les conditions réelles (à l'intérieur du trickle-bed), l'orientation de la sonde par rapport au fluide ne sera pas connue, il a été décidé d'utiliser, pour chaque sonde, une valeur de R_{th} correspondant à la moyenne des valeurs obtenues selon les cas A et B de la Figure 2-10.

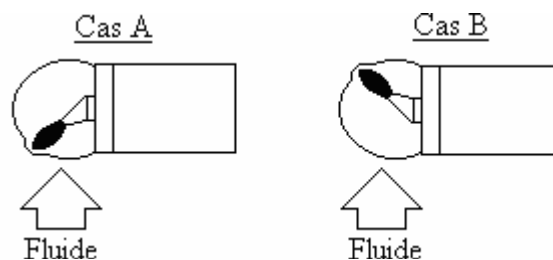


Figure 2-10 Configurations utilisées pour le calcul du R_{th}

L'histogramme de la Figure 2-11 montre la distribution des R_{th} obtenus avant la correction des surfaces pour toutes les sondes avec un ΔT fixé à 16K.

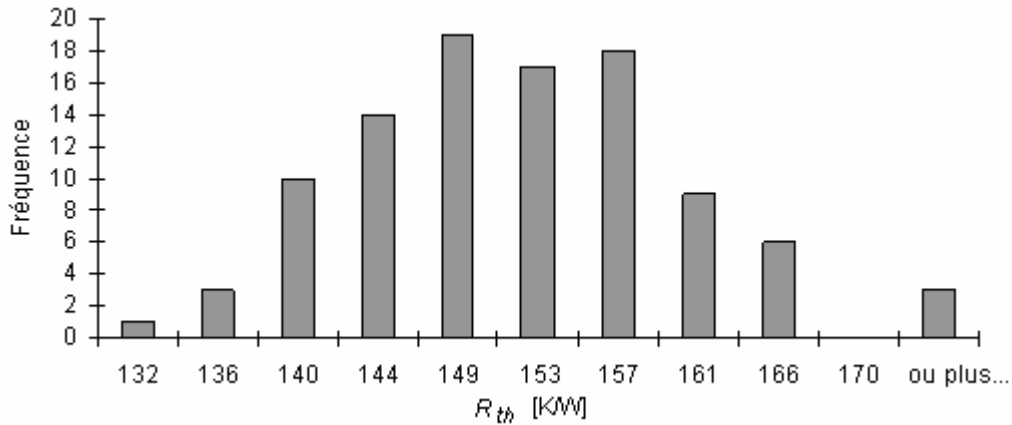


Figure 2-11 Distribution des R_{th}

2.3.2.6 Estimation de la surface des thermistances

Une fois la valeur de la résistance intrinsèque des sondes au transfert de chaleur estimée, il reste à calculer la surface de chacune des thermistances. Pour ceci, la méthode décrite par Del Pozo (1992) a été utilisée. La technique consiste à placer les sondes dans une conduite à l'intérieur de laquelle s'écoule un liquide (eau) à une vitesse connue. Dans ces conditions, la valeur du coefficient de transfert h (et donc du critère de Nusselt) entre chaque sonde et le fluide doit être la même. Il suffit alors de faire varier la surface estimée de chaque sonde de façon à minimiser l'écart-type entre les mesures. En termes mathématiques, cela revient à modifier les surfaces de façon à trouver la valeur J tel que :

$$J = \underset{s}{\text{Min}} \left[\sqrt{\frac{1}{(n-1)} \sum_{i=1}^n (f(S) - \overline{Nu})^2} \right] \quad (2-VI)$$

Avec :

$$f(S) = Nu_i = \frac{X}{\left(\frac{1}{US} - R_{th} \right) \cdot S \cdot \lambda} \quad (2-VII)$$

Où λ est la conductivité thermique de l'eau et X est une longueur caractéristique qui, dans ce cas, est le diamètre moyen des thermistances (0,26 cm).

Il est évident que la précision de l'étalonnage dépend du contrôle que l'on a sur la vitesse du fluide à l'intérieur de la conduite. Etant donné que le profil de vitesse d'un écoulement laminaire est parabolique (la vitesse dépend fortement de la position radiale) et qu'il nécessite une longueur de conduite assez importante pour s'établir, la solution plus adaptée pour l'étalonnage en question est de le faire en régime turbulent (profil de vitesse uniforme loin des parois). Il y a cependant un inconvénient ; lorsque la vitesse du fluide augmente, la sensibilité des sondes diminue. Il faut donc travailler aux vitesses les plus faibles qui garantissent un profil de vitesse turbulent établi.

Dans une conduite cylindrique, à partir d'un Reynolds de conduite de 5000 (Reynolds calculée par rapport au diamètre de la conduite et qui correspond à un Reynolds de particule d'environ 250) le profil de vitesse peut être considéré comme turbulent. Des valeurs de Reynolds de conduite d'environ 5050, 6250 et 7850 ont alors été choisies pour cet étalonnage (l'écart significatif entre les valeurs est dû à la faible sensibilité des sondes à ces vitesses). Ces expériences ont été menées dans une colonne de 5cm de diamètre avec des conditions semblables à celles utilisées dans la colonne de 2,5cm pour l'estimation des R_{th} (écoulement ascendant, 4 thermistances à la fois). La distribution des valeurs des surfaces obtenues après étalonnage est présentée sur la Figure 2-12.

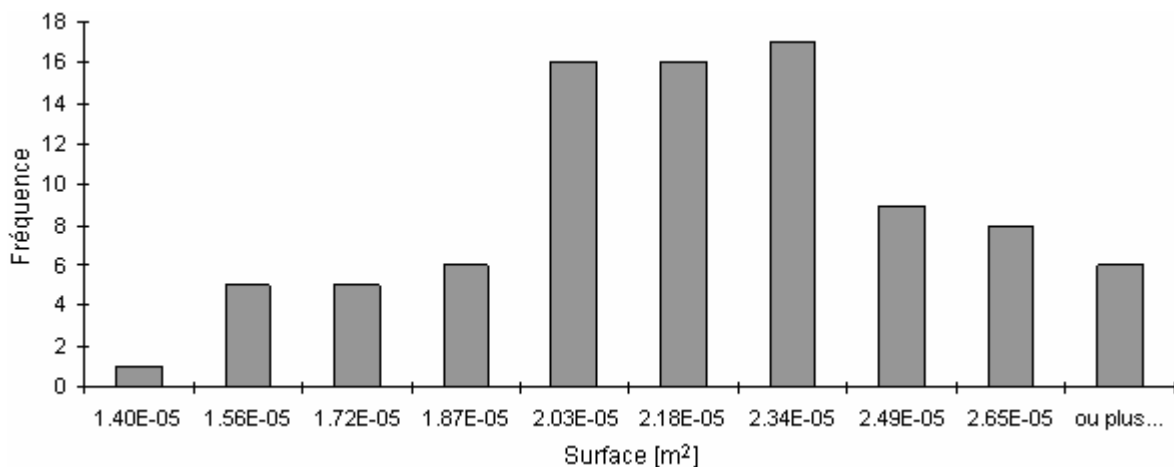


Figure 2-12 Distribution des surfaces de transfert pour les thermistances.

Le calcul des différents paramètres nécessaires à l'utilisation des thermistances peut être schématisé à l'aide du diagramme suivant :

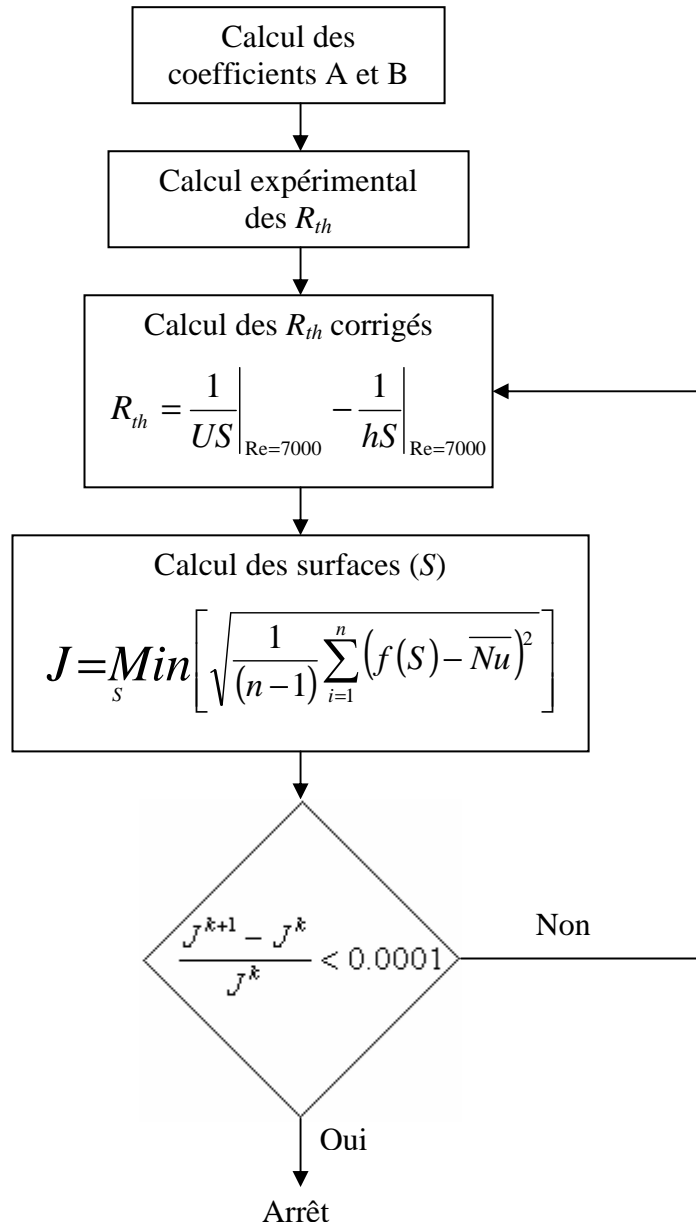


Figure 2-13 Récapitulatif du modus operandi pour la détermination des paramètres des thermistances.

2.3.2.7 Transfert de chaleur particule – fluide pour une particule seule

Dans le cadre de l'estimation des surfaces des 87 thermistances, des mesures du coefficient de transfert de chaleur particule – fluide ont été réalisées pour des Reynolds de particule de 260, 320 et 410 (équivalents à des Reynolds de conduite de 5050, 6250 et 7850).

Une fois la surface des thermistances établies, les valeurs du nombre de Nusselt obtenues sont contenues dans un intervalle de $\pm 4\%$ par rapport à la valeur moyenne et les résultats montrent un bon accord avec la corrélation de Drake (1952) : $Nu = 2 + 0,459Re^{0,55}Pr^{0,33}$. La Figure 2-14 compare les points obtenus par rapport à cette corrélation. L'écart relatif entre la

corrélation et la moyenne des valeurs obtenues expérimentalement augmente avec le nombre de Reynolds pour atteindre une valeur maximale de 3,6%.

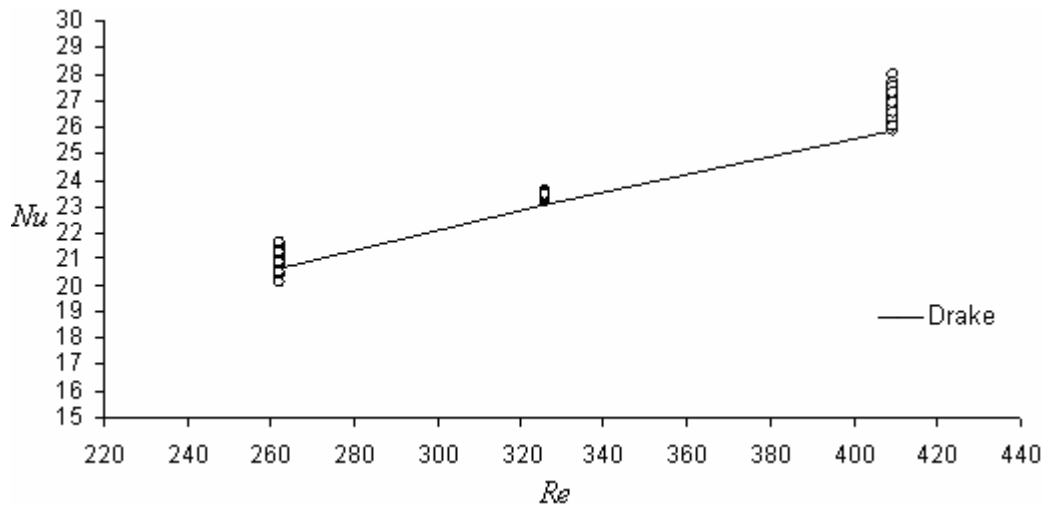


Figure 2-14 Nu Vs Re pour une particule dans un écoulement de liquide seul

2.3.2.8 Transfert de chaleur particule – fluide en lit fixe (billes de verre)

En vue de déterminer une corrélation du type $Nu = f(Re)$ permettant l'estimation de la vitesse du liquide en fonction du coefficient de transfert de chaleur mesuré, des expériences avec un lit de billes de verre de 2mm ont été réalisées dans une colonne de 5cm de diamètre. Une fois les particules introduites dans la colonne, de fortes variations du débit de liquide ont été utilisées pour tasser les billes (l'écoulement du liquide se faisant du bas vers le haut de la colonne, une forte compacité du lit des billes était souhaitée pour éviter des possibles mouvements locaux de fluidisation). De cette façon, une porosité moyenne de 0,35 a été atteinte dans la colonne.

Les résultats des expériences réalisés ont été comparés avec la corrélation proposée par Briens et coll. (1999) pour le transfert de chaleur particule – fluide dans des réacteurs triphasiques :

$$Nu = \left[2 + 0.43 \cdot (Gr \cdot Pr)^{1/4} \right] \cdot \left[\varepsilon_L (1 - \varepsilon_s)^{0.8} \right] + \left[1 + Nc \right]^{1/4} \cdot \left[0.459 Re^{0.55} \cdot Pr^{1/3} \right] \quad (2-VIII)$$

Avec :

$$Nc = \left(1 + \frac{d_{pa}}{d_p} \right)^2 \left(3.46 - \sqrt{10.93 - 14.5 \cdot \varepsilon_s} \right) \quad (2-IX)$$

Pour ces expressions, ε_i est la saturation de la phase i (dans ce cas $\varepsilon_S = 1 - \varepsilon_L$), Nc est le nombre de points de contact entre la particule « active » et les particules voisines, d_{pa} est le diamètre de la particule active (diamètre de la thermistance), d_p est le diamètre des particules du lit (2mm) et Gr et Pr sont les nombres de Grashof et Prantdl respectivement. Ces derniers sont définis comme suit:

$$Gr = \frac{g\beta\rho_L^2 d_{pa}^3 (T_s - T_{lit})}{\mu_L^2} \quad (2-X)$$

$$Pr = \frac{\mu_L C_P}{\lambda} \quad (2-XI)$$

où β est le coefficient d'expansion thermique (à ne surtout pas confondre avec la saturation liquide β_L), T_s est la température à la surface de la thermistance, T_{lit} est la température du lit, et C_p et λ sont respectivement la capacité calorifique et la conductivité thermique du liquide.

Concernant l'utilisation de cette corrélation, certaines précisions sont nécessaires. La première, c'est que le terme $[2 + 0,43 (Gr \cdot Pr)^{1/4}] \cdot [\varepsilon_L(1-\varepsilon_S)^{0,8}]$ de la corrélation, qui concerne les contributions de la conduction et de la convection naturelle, peut, dans le cadre des expériences réalisées ici, être négligé. En effet, étant donné que la différence de température entre la surface des thermistances et le fluide est normalement inférieure à 2 °C, le transfert de chaleur est principalement contrôlé par la convection forcée. La deuxième précision concerne la définition du critère de Reynolds (Re). Ainsi, pour la corrélation de Briens et coll (1999), qui a par ailleurs été principalement développée dans le cadre des lits fluidisés, la valeur de Re inclut une composante de la tortuosité. Dans le cadre des expériences réalisées ici, et comme c'était le cas lors des mesures de transfert de chaleur pour une particule seule (qui avaient donnée un accord satisfaisant avec la corrélation de Drake, 1952), une définition classique du critère de Reynolds (utilisant une vitesse interstitielle égale à la vitesse superficielle divisée par la porosité) a été préférée.

La Figure 2-15 montre les résultats obtenus pour les mesures du coefficient de transfert particule – fluide à l'intérieur d'un lit fixe et les compare avec la corrélation 2-VIII. Les résultats expérimentaux semblent en bon accord avec cette corrélation, les valeurs des nombres de Nusselt obtenus étant contenus presque entièrement dans l'intervalle de $\pm 20\%$. Un pourcentage significatif de la dispersion des points expérimentaux peut être attribué à des différences dans l'arrangement local des billes de verre autour des thermistances. En effet, pour le calcul des Reynolds, une valeur moyenne de la porosité sur toute la colonne a été utilisée ($\varepsilon = 0,35$). Cette affirmation semble d'autant plus pertinente qu'il n'y a pratiquement

aucun écart entre la moyenne à nombre de Reynolds donné des points obtenus (qui serait plus cohérent avec le fait d’avoir calculé le Reynolds avec une porosité moyenne) et la corrélation de Briens et coll.(1999) (Figure 2-16).

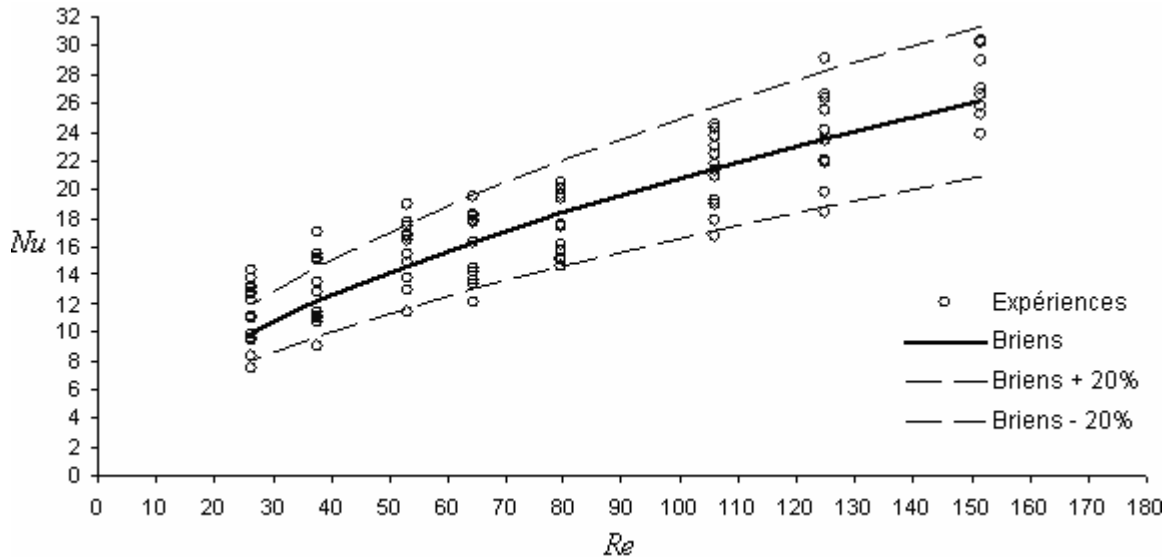


Figure 2-15 Comparaison entre les résultats obtenus expérimentalement et la corrélation de Briens et coll. (1993).

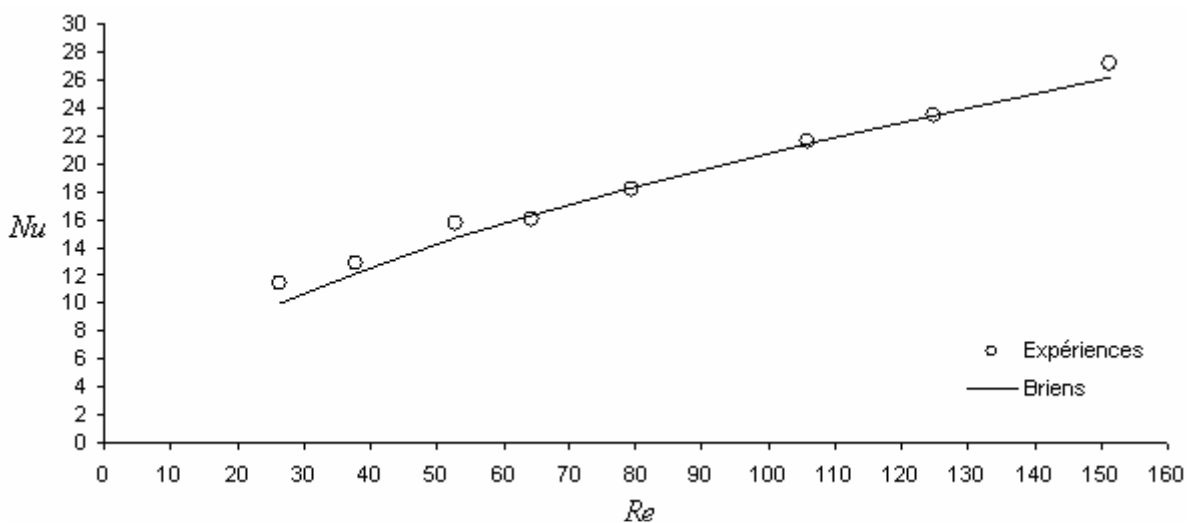


Figure 2-16 Valeurs de Nusselt moyens pour des billes de verre de 2mm

Étant donné que les expériences ont toutes été réalisées avec des billes de verre de 2mm et en utilisant toujours le même liquide, les résultats obtenus ne permettent pas de confirmer l’applicabilité de la corrélation « complète » de Briens et coll. (1999). Cependant, il est envisageable de penser qu’une version « simplifiée » de cette corrélation, en considérant tous les paramètres comme étant des constantes, peut être utilisée pour déterminer la vitesse du liquide dans les conditions opératoires propres à cette étude. Ainsi, le coefficient de transfert

particule – fluide dans un lit fixe de billes de verre de 2mm, dépendra de la vitesse en suivant une relation de la forme :

$$h = 15117.9 \cdot (u_L)^{0.55} \quad (2\text{-XII})$$

où u_L est la vitesse locale du liquide au niveau de la thermistance.

2.3.2.9 Transfert de chaleur particule – fluide en lit fixe (extrudés cylindriques)

Le même type d'expériences réalisées avec les billes de verre pour déterminer une corrélation du type $Nu=f(Re)$, ont aussi été réalisées avec des extrudés cylindriques d'hydrodésulfuration. Le montage et les conditions opératoires sont les mêmes que dans le cas des billes de verre. Seule la porosité est passée de 0,35 pour les billes de verre à 0,46 pour les extrudés. La Figure 2-17 montre les résultats obtenus avec ce type de particules.

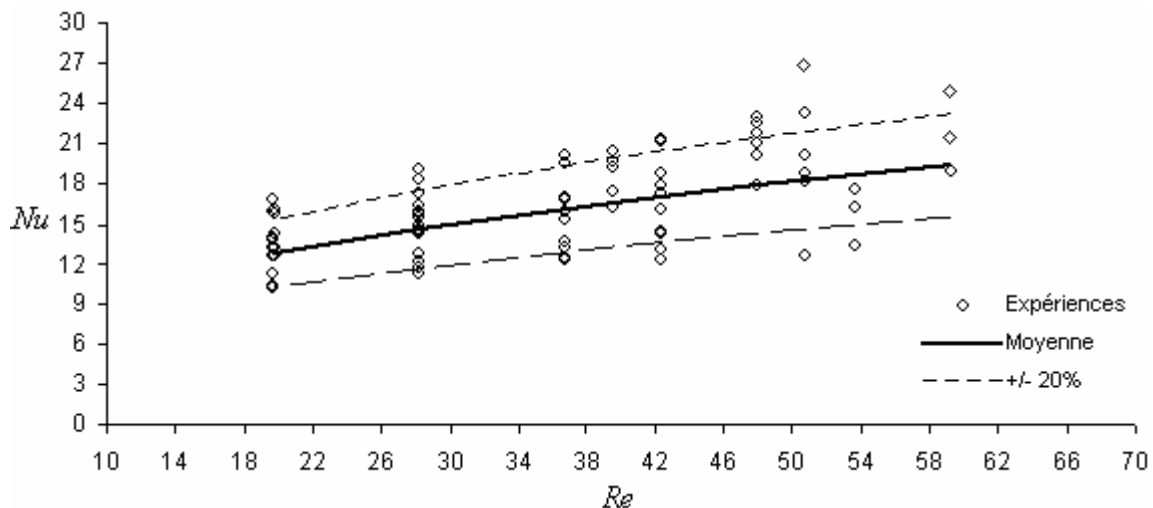


Figure 2-17 Nusselt en fonction du Reynolds pour des extrudés cylindriques.

Comme attendu, la dispersion des points est plus importante que pour les billes de verre. En effet, dans le cas des extrudés il est difficile de parler d'une taille moyenne (surtout en ce qui concerne la longueur) comme c'était le cas avec les billes de verre et il faut considérer plutôt une distribution des tailles. Cette distribution non uniforme, augmente de façon non négligeable les différences locales de porosité qui sont en partie à l'origine de la dispersion des points. Malheureusement, dans le cas des extrudés, la comparaison des valeurs moyennes avec la corrélation de Briens et coll. (1999) n'est pas possible. En effet, un des paramètres de cette corrélation est le nombre de points de contact (Nc) entre les particules. Ce nombre peut être estimé de façon relativement simple pour des particules sphériques mais non pas quand il s'agit des particules des tailles différentes qui s'empilent de façon aléatoire.

Deux remarques intéressantes peuvent être tirées de la comparaison entre les valeurs obtenues avec les extrudés et celles obtenues avec les billes de verre. D'une part, les valeurs de Nusselt pour un Reynolds donné sont plus élevées pour les extrudés. D'autre part, la variation de Nu par rapport à Re est moins importante (l'exposant de 0,55 du Reynolds avec les billes de verre devient 0,38 avec les extrudés).

En ce qui concerne l'augmentation du nombre de Nusselt, il est envisageable que les extrudés étant poreux (et donc imbibés de liquide en permanence), ils aient une conductivité thermique plus importante que les billes de verre, ce qui augmenterait l'apport de la conduction au transfert de chaleur global. Cette hypothèse peut aussi expliquer la diminution de l'exposant du nombre de Reynolds, car en termes relatifs, l'apport de la convection forcée sera moins important que dans le cas des billes de verre.

Une autre explication pour la diminution de l'exposant de Re peut être la non uniformité de la phase solide. En effet, dans le cas des fortes variations de porosité, le liquide peut avoir tendance à passer de façon préférentielle par les endroits où celle-ci est maximale, ce qui impliquerait qu'une augmentation du débit d'alimentation ne sera pas forcément reflétée par une augmentation proportionnelle de la vitesse locale du liquide aux emplacements des thermistances.

Pour conclure, il est important de préciser que, même si une relation du type $Nu=f(Re)$ est pour les raisons citées précédemment difficile à établir, la technique des thermistances permet malgré tout de faire des mesures comparatives de vitesse (même si l'on ne connaît pas la relation précise entre Nusselt et Reynolds, on sait que le premier augmente avec la vitesse) tout en sachant que les différences entre les points de contact auront aussi une importance. En effet, dans le cas des billes de verre par exemple, une augmentation de 10% du Nusselt peut être expliquée par une augmentation de 20% de la vitesse ou de 50% du nombre de points de contact.

2.3.2.10 Montage

Pour leur implantation dans le réacteur, chaque thermistance est introduite dans un tube en acier de façon à garantir un support mécanique qui permette aux sondes de rester sur place (Figure 2-18). Les tubes en acier sont ensuite insérés verticalement dans une plaque conçue à cet effet (Figure 2-19). Cette plaque, qui occupe 50% de la surface passante du réacteur, est placée juste au dessus du collecteur et est équipée sur sa partie inférieure d'un circuit imprimé permettant l'alimentation électrique des sondes et la récupération des signaux (Figure 2-20).



Figure 2-18 Montage individuel des thermistances.

L'assemblage final de la plaque avec les 87 thermistances (tel qu'il a été mis au point par Pérat, 2005) est présenté sur la Figure 2-21. Même si le dispositif en tant que tel doit, de par sa taille, perturber l'écoulement de liquide, l'orientation verticale des thermistances permet une acquisition des données qui n'est pas soumise à cette perturbation (Figure 2-22). La plaque étant placée en sortie du réacteur, seules les mesures faites avec le collecteur de liquide (qui se trouve juste sous la plaque) risquent d'être altérées par la présence de celle-ci.

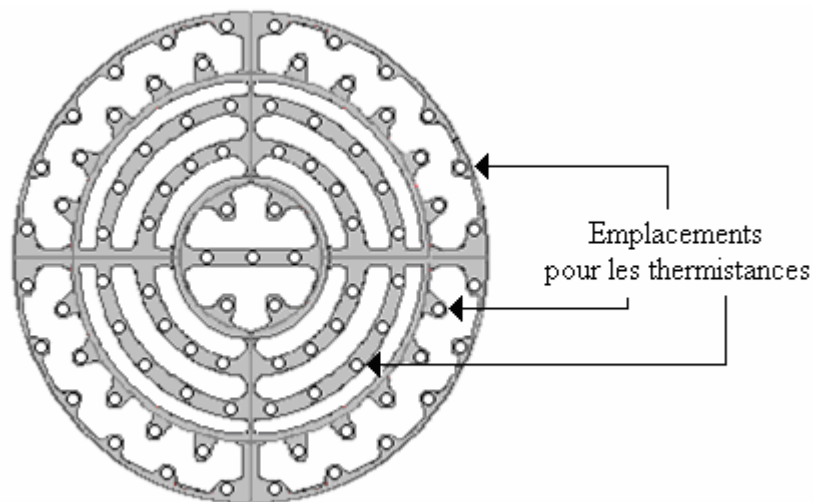


Figure 2-19. Schéma de la plaque sur laquelle sont installées les thermistances.

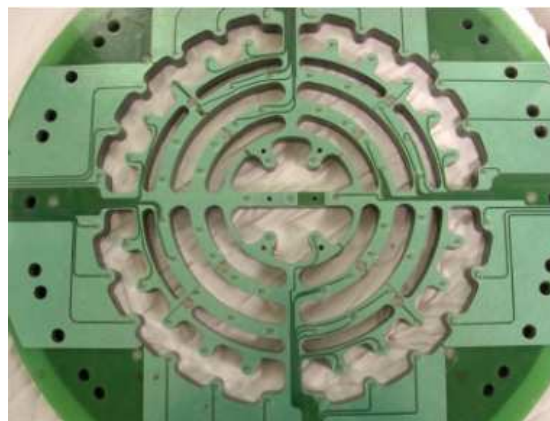


Figure 2-20. Circuit imprimé sur la partie inférieure de la plaque des thermistances.

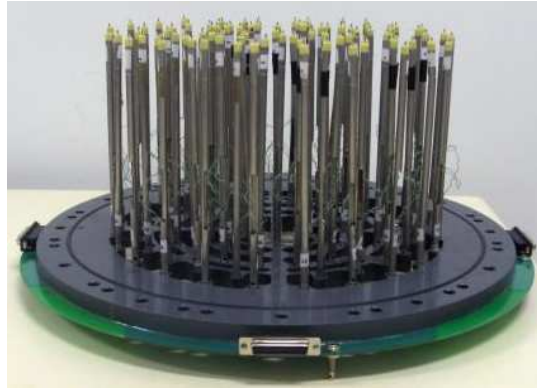


Figure 2-21 Plaque avec les 87 thermistances.



Figure 2-22 Dispositif des thermistances à l'intérieur du réacteur (vue de haut).

2.3.3 La tomographie à fils¹

Comme il avait été noté au chapitre 1.4.2, il existe plusieurs techniques permettant de visualiser la distribution des phases à l'intérieur des lits fixes (tomographies X et γ , tomographie électrique et IRM). Malgré la qualité des résultats, certains des inconvénients liés à ces techniques (coûts élevés ou algorithmes de reconstruction complexes) empêchent leur utilisation plus généralisée dans le cadre des études sur la distribution du liquide dans les réacteurs polyphasiques. Peu coûteuse et simple à mettre en œuvre, la tomographie à fils

¹ La description de la tomographie à fils appliquée aux trickle-beds a fait l'objet

- d'une communication : J.D. Llamas, C. Pérat, U. D'Ortona, F. Lesage, G. Wild (2007) : « Tomographie à fils: une nouvelle technique pour l'étude de la maldistribution du liquide dans les réacteurs gaz-liquide à lit arrosé. » (Communication orale) Congrès de la Société Française de Génie des Procédés (Saint-Etienne, 9-11 octobre 2007). Actes: Récents Progrès en Génie des Procédés ISBN 2-910239-70-5, 96 (2007) n° 242
- et d'une publication acceptée dans une revue internationale à comité de lecture : Llamas, J.D., C. Pérat, F. Lesage, U., M. Weber, D'Ortona, G. Wild (2007) « Wire mesh tomography applied to trickle-beds: a new way to study liquid maldistribution » Chemical Engineering and Processing - Process Intensification doi: 10.1016/j.cep.2007.09.017

apparaît comme une bonne alternative aux techniques précédentes et pour cette raison, son étude et développement dans le cadre des lits fixes a été l'une des priorités de ce travail.

L'idée, proposée à l'origine par Johnson (1987), consiste à placer à l'intérieur d'un lit fixe deux faisceaux horizontaux de fils parallèles. Les deux faisceaux sont placés assez près l'un de l'autre (quelques millimètres), les fils du premier étant perpendiculaires à ceux du deuxième. Si un fil du premier faisceau est alimenté en courant, ce courant pourra être détecté dans un fil du deuxième faisceau uniquement si un fluide conducteur fait la liaison entre eux. De cette façon, les mesures de conductivité entre les points d'intersection des fils des faisceaux permettent d'identifier les endroits de la colonne qui sont irrigués par le liquide (Figure 2-23).

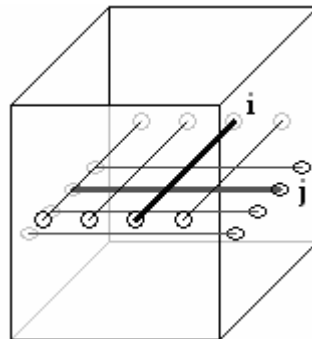


Figure 2-23 Faisceaux de fils dans une colonne rectangulaire. La conductivité mesurée sur le point de croisement i - j dira s'il y a du liquide entre ces deux fils.

2.3.3.1 Quantification de mesures : Estimation de la saturation liquide

Pour un conducteur filiforme homogène, à une température donnée, la conductance en Siemens est:

$$C = \frac{\gamma \cdot S}{L} \quad (2-XIII)$$

γ étant la conductivité du matériau en $(\Omega\text{m})^{-1}$, S la surface de sa section transversale en m^2 et L sa longueur en m.

Si cette équation est utilisée pour calculer la conductance d'un filament de liquide qui s'écoule entre les deux faisceaux d'un système de tomographie à fils, la longueur L sera la distance entre les faisceaux et la conductance mesurée sera seulement fonction de la surface occupée par le liquide autour du point de croisement. Ainsi, un étalonnage préalable aux mesures sera suffisant pour estimer la fraction du liquide aux alentours de chaque point de

croisement. Un raisonnement de ce type avait déjà été utilisé par Prasser et coll. (1998) pour l'application de la tomographie à fils dans des colonnes à bulles. Il considérait la conductance comme étant proportionnelle à la quantité du liquide et estimait quantitativement cette dernière en comparant la conductance mesurée aux mesures d'étalonnage effectuées pour les situations « colonne remplie de liquide » et « colonne remplie de gaz ». Dans le cas présent, la conductance mesurée avec la colonne remplie de gaz étant nulle, la saturation de liquide locale pour le point de croisement i (β_L^i) peut être estimée par :

$$\beta_L^i = \frac{\varepsilon_L^i}{\varepsilon} = \frac{C^i}{C_{\text{colonne remplie de liquide}}^i} \quad (2\text{-XIV})$$

Avec ε_L^i étant la rétention de liquide locale au point de croisement i et ε la porosité moyenne du lit (ou plus rigoureusement, la porosité locale au point de croisement i).

2.3.3.2 Inconvénients du système de tomographie à fils

Même si elle a des avantages du point de vue du coût, de la simplicité ou encore de la sécurité, l'application de la tomographie à fils présente quelques inconvénients. Certains d'entre eux sont liés à la nature même du système et sont difficiles à contourner :

- Son caractère intrusif

Deux faisceaux de fils traversant la surface passante du réacteur vont probablement affecter l'écoulement liquide et la texture du lit. L'effet est cependant atténué par les dimensions du système. En effet, les dimensions du système sont choisies de façon à ce que la distance entre les faisceaux soit supérieure au diamètre des particules tandis que le diamètre des fils est inférieur. Au total, moins de 13% de la surface passante du réacteur vide est occupé par les fils (avec le système de tomographie le plus intrusif des deux qui ont été développés).

- Son incapacité à quantifier la vitesse du liquide

Comme il a été précisé précédemment, la conductance mesurée est fonction de la surface occupée par le liquide autour des points de croisement mais elle est indépendante de sa vitesse.

- L'impossibilité de travailler avec des particules poreuses

Une fois mouillées, les particules poreuses restent imbibées de liquide et deviennent conductrices. Tel qu'il est présenté ici, le système de tomographie à fils ne peut pas faire la différence entre un empilement de particules poreuses mouillées et un filet de liquide s'écoulant à travers le lit. Pour cette raison, pour les expériences dans des lits de particules poreuses, la section du réacteur occupé par le système de tomographie à fils (environ 3-4 cm d'hauteur) est remplie de billes de verre. Même si l'ajout des billes modifie localement la topologie du lit, l'utilisation de ce type de solide (pour lequel la dispersion radiale du liquide est faible) sur une distance aussi courte, ne devrait pas altérer de façon sensible la distribution du liquide.

Certains autres inconvénients ont été détectés après la réalisation de quelques expériences. Ils concernent pour la plupart le fait que, dans certaines conditions, un courant peut être mesuré entre deux points même si il n'y a pas de liquide entre eux. Ce phénomène a été appelé « communication croisée » d'après le terme anglais « cross-talk » utilisé par Prasser et coll. (1998), traduit de l'allemand « Übersprechen ».

Dans le cadre de cette étude, les problèmes de communication croisée envisagés apparaissent lorsque le rapport entre la distance entre les fils d'un même faisceau et la distance entre les faisceaux (R_{WP}) n'est pas assez grand. Ceci, ajouté au fait qu'une partie du liquide reste toujours coincée aux jointures des grains (rétention statique), permet au courant de se transmettre horizontalement avec une résistance qui n'est pas infinie par rapport à la résistance du déplacement vertical, augmentant ainsi certains des signaux mesurés. Deux exemples de ce type de comportement sont présentés par la suite.

- Influence d'un point de croisement irrigué sur ses voisins

La conductivité électrique d'un point de croisement est proportionnelle à la quantité de liquide qui l'entoure. A cause des forces capillaires, une petite quantité d'eau reste toujours coincée autour des particules solides (rétention statique) et donc, une conductance faible (résistance importante) peut être mesurée même en absence d'un flux de liquide. La présence d'un filament de liquide sur un point de croisement diminue fortement sa résistance, et ce faisant, crée un chemin avec une résistance inférieure pour aller vers les points de croisement voisins. La Figure 2-24 et la Figure 2-25 schématisent cet événement. Dans ce cas hypothétique, la zone autour du point de croisement 1A (le fil « 1 » du premier faisceau avec le fil « A » du deuxième) est remplie de liquide, tandis

celle autour de son voisin 2A ne contient que le liquide issu de la rétention statique. Le chemin pour aller du fil « 2 » au fil « A » en passant par les résistances R2 et R3 (dont la somme est inférieure à R4) est créé par la présence du liquide sur le point de croisement 1A et va augmenter la conductance du point de croisement 2A. En faisant des mesures dans une colonne prémouillée (sans écoulement de liquide ni de gaz) avec un système de tomographie dont R_{WP} vaut 1,5 et en faisant l'hypothèse selon laquelle la surface du chemin de liquide créé par la rétention statique est indépendante de la direction, les résistances R1, R2, R3 et R4 peuvent être estimées. Le résultat de cette estimation donne pour le point de croisement 2A une conductance qui équivaut à environ 9% de la conductance du point 1A, alors qu'elle ne serait que de l'ordre de 3% s'il n'y avait pas d'interférence.

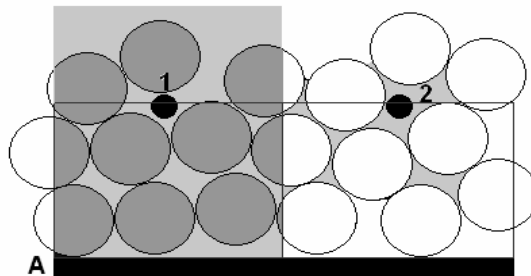


Figure 2-24 Situation hypothétique: écoulement de liquide au point de croisement 1A, rétention statique seule au point 2A

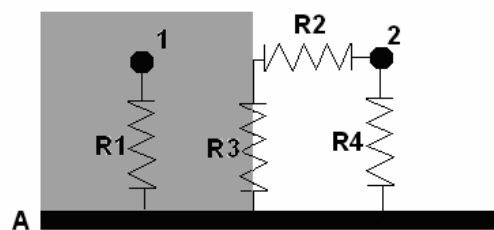


Figure 2-25 Représentation de la Figure 2-24 sous la forme d'un circuit électrique.

Vu les hypothèses faites, le résultat du calcul précédent doit être traité avec une extrême précaution. Cependant, il est important de remarquer que la conductance obtenue avec ce calcul correspond au pire des cas : un point de croisement sera difficilement saturé de liquide à 100% tout en ayant un voisin pour lequel le flux de liquide est nul.

- Écoulement en anneau

L'écoulement en anneau est un autre exemple de communication croisée où le courant peut aller d'un fil du premier faisceau à un fil du deuxième sans qu'il n'y ait de liquide sur le point de croisement entre les deux. Dans la Figure 2-26, une partie de la colonne

soumise à ce type d'écoulement est représentée. Dans ce cas, le point de croisement 3B (point rouge) n'est pas irrigué, mais le courant peut aller du fil B au fil 3 en passant par la zone irriguée (en suivant, par exemple, le chemin indiqué par la flèche). Si la valeur de R_{WP} n'est pas assez grande, la conductance mesurée pour le point 3B pourrait être similaire à celles mesurées pour des points qui, comme 4A par exemple, sont vraiment irrigués. Etant donné que la section transversale du réacteur est circulaire, tandis que la grille formée par les faisceaux des fils est carrée, l'interférence produite par un écoulement en anneau peut être estimée expérimentalement sans trop de difficulté. En effet, si la périphérie extérieure de l'anneau de liquide représenté dans la Figure 2-26 est délimitée par la paroi du réacteur, le point de croisement 1A, qui se trouve en dehors du réacteur et qui n'est donc pas en contact avec le liquide, sera affecté par le phénomène de communication croisée car, à l'intérieur du réacteur, les fils 1 et A sont en contact avec le liquide. Ainsi, la conductivité mesurée pour des points de croisement tel que 1A quand le réacteur est rempli de liquide sera du même ordre que celle mesurée pour le point 3B de la Figure 2-26 dans le cadre d'un écoulement en anneau. La mesure expérimentale de la conductivité pour des points tel que 1A, montre que pour un dispositif dont la valeur de R_{WP} est de 1,5, le point de croisement 3B affichera une conductivité égale à 10% de celle mesurée pour un point qui, tel que 4A, est complètement irrigué.

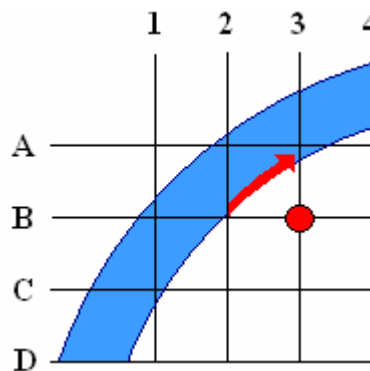


Figure 2-26. Ecoulement en anneau.

Les deux cas précédents sont des exemples des difficultés qui peuvent apparaître lors de l'utilisation de la tomographie à fils dans un lit fixe. Ces problèmes doivent cependant se limiter aux points de croisement qui se trouvent au voisinage immédiat des points de croisement vraiment irrigués. Pour des points de croisement plus lointains, la résistance augmente de façon proportionnelle à l'éloignement, et une grande partie du courant sera évacuée par des fils plus proches qui sont connectés à la masse du système. On peut donc conclure que la communication croisée peut réduire légèrement la résolution spatiale de la mesure (en surestimant la fraction de liquide présente sur certains points de croisement), sans empêcher pour autant l'identification des principales caractéristiques de l'écoulement liquide.

2.3.3.3 Dispositif de tomographie à fils

Le système de tomographie a été conçu d'après les travaux de Prasser et coll. (1998) et les travaux de Pérat (2005). Il est constitué de deux faisceaux de 19 fils d'acier inoxydable, donnant lieu à 313 « points de croisement » (Figure 2-27). En ce qui concerne la distance entre les faisceaux et le diamètre de fils, deux configurations ont été utilisées. La première, employée notamment pour les expériences préliminaires (avec les billes de verre de 2mm), utilisait des fils de 0,1cm avec une distance entre les nappes de 1cm. Peu intrusive (environ 6,5% de la surface passante du réacteur occupé par le système) cette configuration était néanmoins trop soumise aux effets de communication croisée décrits précédemment. Pour la deuxième configuration, la distance entre les fils a donc été réduite à 0,4cm de façon à diminuer la communication croisée et à augmenter la résolution spatiale des mesures ($R_{WP} = 3,7$). Avec cette configuration, les effets liés aux écoulements en anneau par exemple (interférences les plus faciles à déterminer expérimentalement) ont été réduits à la moitié. Cependant, pour garantir un meilleur maintien des fils à l'intérieur du réacteur, le diamètre de ces dernières a dû être doublé, augmentant par là-même le caractère intrusif du système (environ 13% de la surface passante du réacteur occupé par les fils). Dans les deux configurations décrites, la distance entre deux fils d'un même faisceau était de 1,5cm. Il est important de remarquer que, comme les avantages et inconvénients des deux configurations conçues le laissent prévoir, ces distances sont le résultat d'un compromis entre le niveau d'intrusion de la méthode, la résolution spatiale, les contraintes techniques liées au maintien des fils et la précision des mesures. Ces distances ne sont donc pas restrictives et la conception d'un système ayant des dimensions différentes en vue de favoriser l'un ou l'autre de ces paramètres (au détriment des autres) est parfaitement envisageable.



Figure 2-27 Système de tomographie à fils.

Pour l'alimentation en courant, le système de mesure comprend aussi un générateur électrique connecté à l'un des faisceaux de fils (faisceau transmetteur). Comme suggéré par Prasser et

coll. (1998), le courant alternatif est préféré au courant continu afin d'éviter des problèmes liés à l'électrolyse de l'eau. Tandis que chaque fil du faisceau transmetteur est tour à tour alimenté en courant, un circuit multiplexeur active de façon successive chacun des fils du deuxième faisceau (faisceau récepteur). Le système garantit que la conductivité est mesurée seulement à un point de croisement à la fois, les fils inactifs étant connectés à la masse du système. Le cycle de mesure prend fin une fois que tous les fils du faisceau transmetteur ont été alimentés en courant.

Le temps nécessaire pour compléter un cycle de mesure dépend du nombre de points de croisement considérés. Ainsi, pour une analyse complète en utilisant les 38 fils, entre 10 et 15 secondes sont nécessaires. Cependant, s'il s'agit de visualiser des phénomènes plus locaux, la résolution temporelle de la technique peut être améliorée en diminuant le nombre de points de croisement à mesurer. De cette façon, des temps de mesure de l'ordre du centième de seconde peuvent être atteints, si on se contente d'un seul point de croisement dans le réacteur. Le stockage des données ainsi qu'une visualisation en temps réel des mesures sont assurés par un ordinateur de bureau connecté au système.

Une modification de l'électronique d'acquisition est prévue à terme, et permettra d'atteindre des fréquences comparables à celles obtenues par Prasser et coll. (1998).

2.3.3.4 Positionnement à l'intérieur du réacteur

Deux systèmes de tomographie à fils sont utilisés pour étudier la distribution du liquide à l'intérieur du réacteur. Ils sont placés à 0,33 et 0,96 m en-dessous du distributeur de liquide (Figure 2-28).

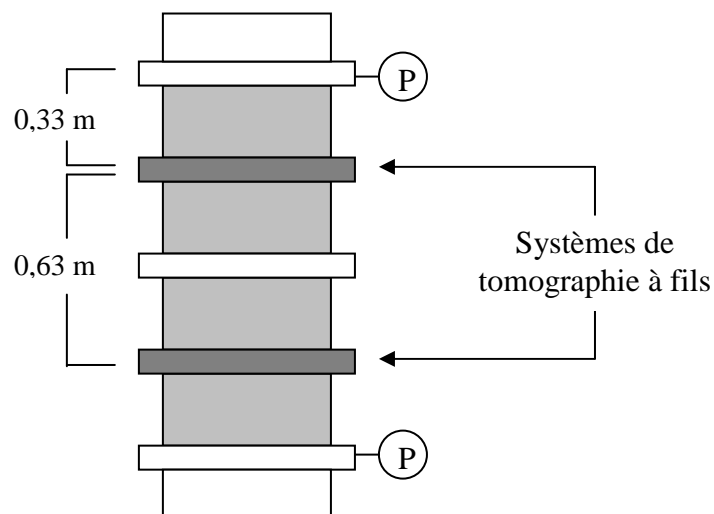


Figure 2-28 Positionnement des systèmes de tomographie à fils dans le réacteur



Figure 2-29 Système de tomographie à fils à l'intérieur du réacteur (vue du dessus).

2.4 Conclusion

Le montage expérimental et les conditions opératoires qui seront utilisés pour l'étude de la maldistribution dans les lits fixes ont été présentés. Malgré leur limitations, les 3 techniques de mesure devraient permettre d'étudier la maldistribution du liquide de façon complémentaire en se focalisant, chacune sur des grandeurs différentes. Ainsi, même si le nombre de points de contact est difficile à déterminer pour un chargement de particules cylindriques, les thermistances devraient donner accès à une cartographie qualitative de la distribution du liquide en termes de vitesses. En ce qui concerne la tomographie à fils, les problèmes de communication croisée abordés précédemment ont été diminués avec la construction du deuxième dispositif ($R_{WP} = 3,7$). Ceci, ajouté aux caractéristiques propres de la technique permettra d'étudier la maldistribution en termes de saturation de liquide pour deux hauteurs de colonne différents. Finalement le collecteur de liquide, dont le mode de fonctionnement est bien connu de par son utilisation répétée dans le cadre des études sur la maldistribution, permet d'étudier la maldistribution globale en termes de débit de liquide en sortie du réacteur.

3 Etude de la maldistribution du liquide en régime stationnaire

3.1 Introduction

Les techniques décrites précédemment sont utilisées pour étudier la distribution du liquide à l'intérieur d'un trickle-bed. Ce chapitre concerne les résultats obtenus dans le cadre des expériences réalisées en régime ruisselant.

Pour commencer, les expériences préliminaires réalisées en vue d'estimer le degré de fiabilité de la tomographie à fils sont présentées. Ensuite, l'étude de la distribution du liquide en fonction des paramètres tels que les débits, le type de chargement (sock ou dense) et la distribution initiale est abordée. Enfin, les résultats obtenus en utilisant des particules hydrophobes en polyéthylène en tant que phase solide sont présentés.

3.2 Expériences préliminaires avec la tomographie à fils

Ces expériences, réalisées (à l'exception des expériences de quantification locale) dans un lit de billes de verre de 2 mm et en absence d'écoulement gazeux, ont comme objectif d'estimer la fiabilité de la tomographie à fils pour étudier la distribution de liquide dans les lits fixes. Les expériences sont divisées en trois catégories : les mesures qualitatives, les mesures quantitatives globales et les mesures quantitatives locales.

3.2.1 Mesures qualitatives

L'idée derrière ces expériences était d'imposer en tête du réacteur des distributions de liquide particulières, en espérant les retrouver un peu plus bas dans la colonne avec les mesures de tomographie à fils. Trois plateaux perforés différents (obtenus en modifiant ceux présentés dans le chapitre 2.2.2) sont utilisés : le premier (qui sera appelé dans le cadre de ces expériences « distributeur 1 »), ayant seulement une entrée de liquide de 25 mm de diamètre placée dans son centre, le deuxième (distributeur 2), comportant en plus de l'entrée central du distributeur 1, une entrée excentrée placée à 0,1 m de la première et le troisième (distributeur 3), composé de 12 entrées de 7 mm de diamètre disposées de façon à former une circonférence de 0,2 m de diamètre. Des schémas de ces distributeurs sont présentés sur la première rangée d'images de la Figure 3-1.

Pour les mesures avec les distributeurs 1 et 2, un débit de liquide de $1,7 \text{ kg/m}^2\text{s}$ ($U_L = 1,7 \text{ mm/s}$) a été utilisé. Pour le distributeur 3, dont les entrées sont plus nombreuses, un débit de $2,2 \text{ kg/m}^2\text{s}$ ($U_L = 2,2 \text{ mm/s}$) a été utilisé. Le choix de ces débits est fait de façon à ce que, tout

en essayant d'irriguer avec la même intensité toutes les entrées d'un distributeur donné, le liquide ne puisse pas occuper la totalité de la section transversale du réacteur avant le premier dispositif de tomographie à fils (à 33cm du distributeur). Comme mentionné précédemment, ces expériences sont réalisées dans un lit de billes de verre de 2 mm et en absence d'écoulement gazeux.

Les résultats des ces expériences ont été obtenus en utilisant un système de tomographie à fils ayant une valeur de $R_{WP} = 1,5$. Ces résultats sont présentés dans la Figure 3-1 où la première rangée d'images correspond aux distributeurs utilisés tandis que la deuxième et la troisième, correspondent aux images obtenues avec les deux systèmes de tomographie à fils situés à 0.33 et 0.96 m du distributeur respectivement.

Pour un point de croisement donné, la saturation du liquide est définie comme étant le rapport de la conductance en condition de fonctionnement à la conductance mesurée lorsque la colonne est entièrement remplie d'eau (voir chapitre 2.3.3.1). Pour les images obtenues avec la tomographie à fils, chaque point de croisement est coloré en fonction de sa saturation liquide.

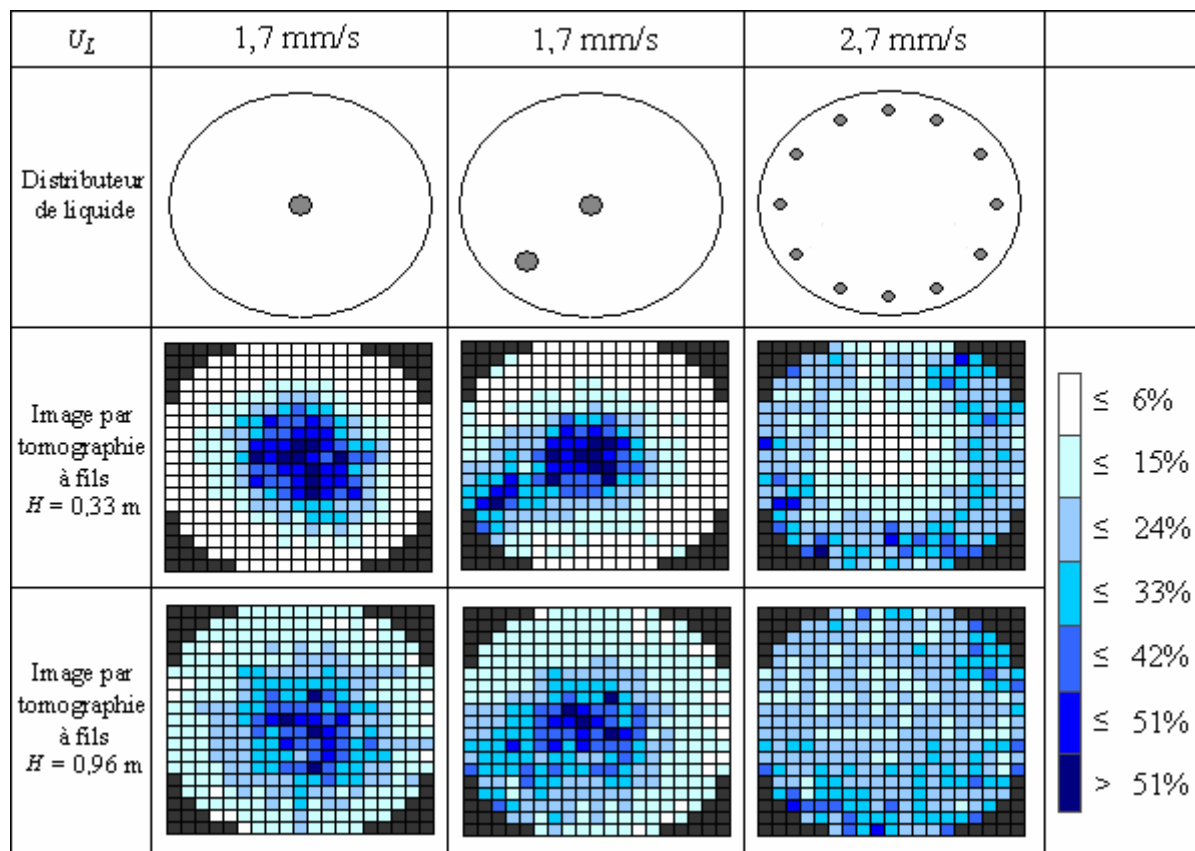


Figure 3-1 Mesures de distribution du liquide pour trois distributeurs différents.

Qualitativement, les images obtenues sont satisfaisantes. Avec le premier dispositif, à 0,33 m du distributeur, on voit que l'écoulement de liquide n'est que faiblement affecté par la dispersion radiale. Sur ces images, les points de croisement pour lesquels la saturation liquide est la plus importante se trouvent principalement sous les orifices d'entrée du liquide. Les images obtenues avec le deuxième dispositif, quant à elles, mettent en évidence la tendance naturelle du liquide à se disperser radialement. En effet, sur ces images, une meilleure distribution du liquide sur la section du réacteur est observée, avec notamment, une diminution des zones à forte concentration du liquide (situées sous les points d'entrée du liquide) au profit des zones initialement sèches dont la saturation se voit légèrement augmentée.

3.2.2 Mesures quantitatives globales

Etant donné qu'au laboratoire on ne dispose d'aucun autre système de mesure des saturations liquides locales, la validation locale des mesures obtenues avec la tomographie à fils à l'intérieur du lit fixe n'est pas aisée. Cependant, même si la validation des valeurs locales est difficile, il est possible d'utiliser une approche un peu plus globale pour apprécier la qualité des résultats. Ainsi, si un distributeur non symétrique est utilisé et si on admet l'hypothèse selon laquelle la vitesse interstitielle du liquide est la même pour toutes les zones mouillées du réacteur (hypothèse sensée dans le cas présent où le lit est constitué de billes de verre et le débit gazeux est nul), il est possible, en utilisant un débit de liquide relativement faible (de façon à éviter une dispersion radiale excessive), de comparer les débits imposés par le distributeur sur les différentes zones du réacteur avec les valeurs de saturation liquide mesurées avec la tomographie à fils pour les zones en question ($Q_{Zone\ i} \propto \beta_{Zone\ i}$).

Considérons par exemple le plateau perforé de la Figure 3-2. Ce distributeur asymétrique est divisé en 4 « zones » (A, B, C et D) ayant 4, 3, 2 et 1 entrées de liquide. Comme le débit de liquide par orifice d'entrée est le même, il est envisageable qu'au moins sur une courte distance (en tenant compte de l'hypothèse sur la vitesse interstitielle), 40% de la quantité total de liquide présente sur la section transversal du réacteur sera contenu sous la zone A du distributeur, 30% sous la zone B, 20% sous la zone C et le 10% restante sous la zone D. Ainsi, la tomographie à fils peut être utilisée pour estimer la saturation liquide de chacune des 4 zones et ces valeurs peuvent ensuite être comparés aux valeurs imposées par le distributeur.

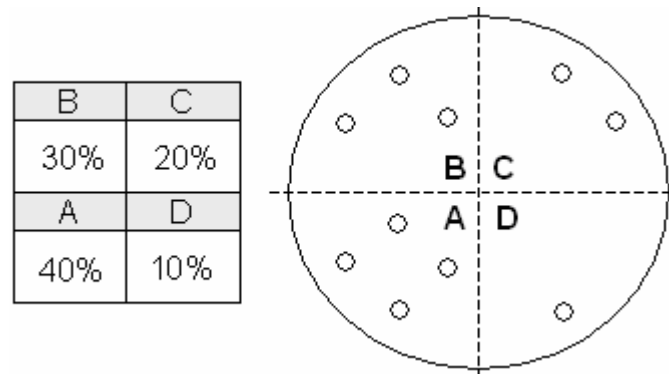


Figure 3-2 Plateau perforé “asymétrique” divisé en 4 zones imaginaires.

De façon à améliorer la résolution spatiale de la technique et pour diminuer l'importance des interférences décrites au paragraphe 2.3.3.2, toutes les expériences réalisées par la suite sont effectuées avec le dispositif de tomographie à fils dont la valeur de R_{WP} est de 3,7. On rappelle qu'avec ce dispositif les interférences du type « écoulement en anneau » sont d'environ 5% tandis qu'elles étaient de l'ordre de 10% avec le dispositif précédent ($R_{WP} = 1,5$).

Les résultats obtenus avec le dispositif de tomographie à fils placée à 0,33 m du distributeur pour un flux de liquide de $3,5 \text{ kg/m}^2\text{s}$ ($U_L = 3,5 \text{ mm/s}$) sont présentés dans la Figure 3-3.

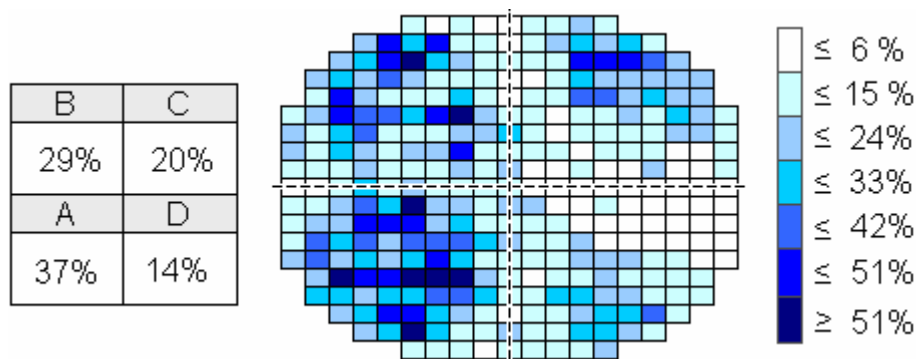


Figure 3-3 Résultats obtenus avec le système de tomographie à fils (à 0.33 m du distributeur de liquide)

Bien que ces résultats ne constituent pas en soi une preuve de la bonne estimation des saturations liquides locales, ils montrent que, au moins d'un point de vue global, les résultats obtenus sont assez réalistes car, aussi bien qualitativement que quantitativement, ils reflètent bien la distribution de liquide imposée par le plateau perforé utilisé. En effet, étant donné les caractéristiques de l'expérience présentée, même l'écart le plus grand obtenu (14% à la place du 10% imposé pour la zone D) peut être considéré comme étant acceptable.

3.2.3 Mesures quantitatives locales

Pour avoir une idée de la précision du système de tomographie à fils, des valeurs locales de saturation de liquide doivent être connues. Vu la difficulté à obtenir ces valeurs dans les conditions opératoires habituelles, une expérience avec des conditions particulières a été réalisée. En effet, la seule condition dans laquelle les saturations liquides locales sont connues est quand celles-ci sont maximales ou plus précisément quand, en absence de particules solides, la colonne est noyée. Si dans ces conditions la surface disponible autour d'un point de croisement est diminuée en utilisant par exemple des obstacles solides de volume connu, la saturation liquide du point de croisement en question sera modifiée de façon relativement maîtrisable. L'idée à mettre en œuvre est schématisée dans la Figure 3-4. En utilisant des obstacles, la surface disponible (et donc, la colonne étant noyée, la saturation de liquide) autour du point de croisement C4 de la figure est ainsi réduite à 36% de sa valeur sans obstacle tandis que celles des points de croisement B3 ou F2 est diminuée à 84%.

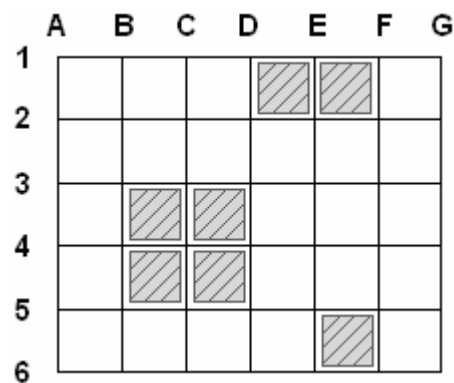


Figure 3-4 Réduction de la surface disponible autour de certains points de croisement en utilisant des obstacles solides.

La Figure 3-5 montre le résultat d'une expérience réalisée en suivant le principe décrit précédemment. En tant qu'obstacles, 8 cubes en PVC ont été utilisés. L'image de droite correspond à celle qui a été imposée en utilisant les obstacles pour diminuer les saturations liquides de certains points de croisement, celle de gauche, présente les saturations liquides mesurées avec la tomographie à fils. Ici, l'échelle colorée qui représente le niveau de saturation liquide des points de croisement a été inversée par souci de clarté. Les points le plus foncés correspondent donc à ceux pour lesquels la saturation liquide est moindre.

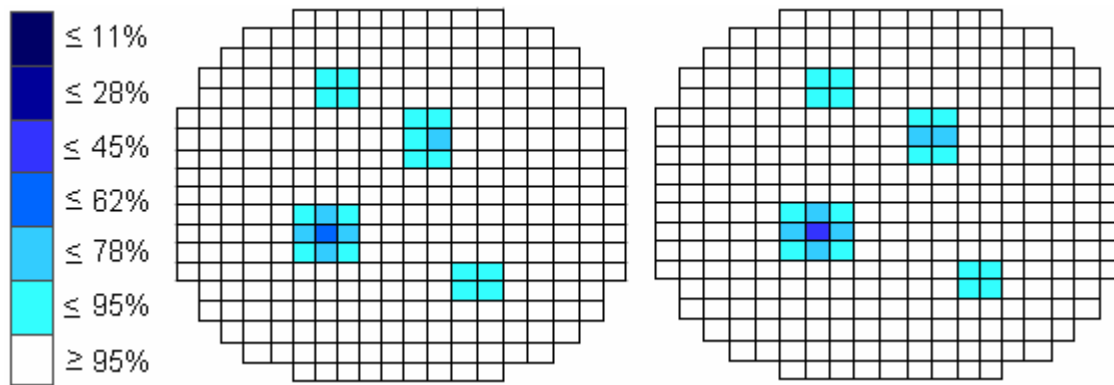


Figure 3-5 Résultats obtenus avec la tomographie à fils (gauche). Image imposée (droite).

La similitude des images obtenues montre que, à l'échelle à laquelle les mesures sont faites, la tomographie à fils donne de résultats tout à fait satisfaisants. Cependant, une surestimation systématique des saturations liquides a été observée avec la tomographie à fils. En effet, pour les points de croisement pour lesquels une saturation liquide de 0,84 avait été imposée, des valeurs aux alentours de 0,91 ont été mesurées. Pour ceux dont 0,68 avait été imposé, environ 0,77 a été mesuré. Finalement, le pire des cas a été observé pour le point de croisement pour lequel la saturation la plus faible avait été imposée. En effet, au lieu de 0,36, une valeur de 0,55 a été mesurée.

Il est important de préciser que, en absence de particules solides, la surface disponible pour le liquide est maximisée. Dans le cas où la colonne est noyée (comme ce fut le cas de l'expérience présentée sur la Figure 3-5), la résistance électrique dans toutes les directions est diminuée et les interférences peuvent être augmentées. Il est donc probable que les erreurs observées dans ces circonstances décrites plus haut soient plus importantes que celles qui apparaissent pour des conditions « normales » de fonctionnement. Quoiqu'il en soit, les différentes expériences ont montré que, au moins globalement, la tomographie à fils permet d'observer les principales caractéristiques de l'écoulement liquide.

3.3 Conditions expérimentales en régime stationnaire

Même si en termes généraux les conditions opératoires et les caractéristiques des équipements utilisés sont celles décrites au chapitre 2, les expériences en régime stationnaire présentaient certaines particularités. Pour commencer, le distributeur de liquide à deux entrées de la Figure 2-3 a été modifié de façon à garder seulement l'entrée centrale. Les expériences ont donc été réalisées avec les trois plateaux perforés présentés dans la Figure 3-6 dont les noms ont été choisis de façon à ce qu'ils donnent une idée du type de distribution de liquide imposé. Par la suite, on se référera à ces distributeurs en utilisant ces noms.

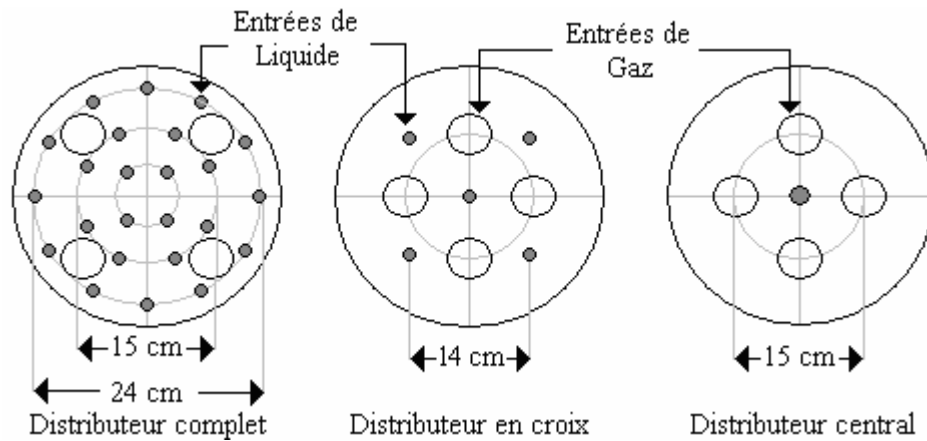


Figure 3-6 Plateaux perforés utilisés pour les expériences en régime stationnaire.

Ensuite, pour se rapprocher des caractéristiques des réacteurs industriels en tête de colonne, des particules solides « inertes » ont été placées entre le plateau perforé et le catalyseur solide. Ces particules ont été disposées en trois couches, avec, du haut vers le bas, une couche de billes céramiques de 6 mm, une couche de billes métalliques de 5 mm et une couche de billes métalliques de 3 mm. La Figure 3-7 schématise la hauteur des différentes couches de façon proche de la réalité (la première couche étant la plus fine). Au total, seulement environ 25 mm du réacteur était rempli avec ces particules « inertes ».

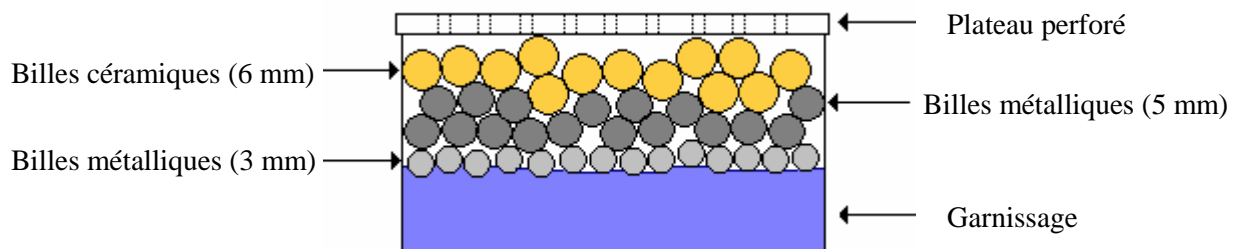


Figure 3-7 Disposition des particules « inertes » en tête de colonne.

Pour la comparaison entre les types de chargement, des extrudés cylindriques poreux chargés selon les modes sock et dense ont été utilisés. Dans ce cadre, un chargement sock ($\epsilon \approx 0,47$) est comparé à deux chargements denses : Dense1 ($\epsilon \approx 0,40$) et Dense2 ($\epsilon \approx 0,38$).

En ce qui concerne les débits, des vitesses comprises entre 0,0016 m/s et 0,0082 m/s pour le liquide et 0 et 0,31 m/s pour le gaz étaient envisagées. Pour des questions de perte de charge, surtout dans le cas des remplissages denses, la vitesse maximale du gaz a souvent dû être diminuée.

3.4 Influence du type de chargement sur la distribution de liquide

Des efforts importants sont faits dans l'industrie pour obtenir des chargements denses des lits catalytiques, et ce pour deux raisons : la première raison est que, plus le volume de catalyseur est important, plus il peut y avoir de production pour un volume de réacteur donné ; la deuxième raison est qu'il y a un consensus sur le fait que la maldistribution devrait être moindre en chargement dense, parce que l'orientation des extrudés y est plus horizontale et le nombre des points de contact est plus important, ce qui est censé améliorer la dispersion radiale (Tukač et Hanika, 1992 ; Møller et coll., 1996). Pour vérifier cette deuxième assertion, ce chapitre s'intéressera aux lits composés d'extrudés cylindriques poreux et notamment, à la comparaison entre les deux principaux types de chargements utilisés dans l'industrie (sock et dense) en fonction de la distribution initiale imposée par les trois plateaux perforés utilisés.

Le remplissage de la colonne, qui est réalisé manuellement, est fait en fonction du type de chargement que l'on souhaite obtenir. Ainsi, pour le chargement sock, des volumes importants de catalyseur sont versés en vrac à l'intérieur du réacteur. Ce type de remplissage, qui ne permet pas aux particules de s'orienter dans une direction particulière donne habituellement des valeurs de porosité extragranulaire relativement élevées (0,47 dans le cas présent). Pour les chargements denses, un récipient de 200 ml est utilisé pour saupoudrer lentement des petits volumes de solide. Les particules ainsi versées tombent séparément et peuvent s'orienter principalement dans la direction horizontale. En utilisant ce type de chargement, on augmente la compacité du lit et les valeurs de porosité extragranulaire sont diminuées d'environ 20%. Pour cette étude, deux chargements denses ont été effectués. Les porosités extragranulaires de ces chargements sont d'environ 0,4 pour le chargement « Dense1 » et d'environ 0,38 pour le chargement « Dense2 ». A noter que mises à part les différences qui peuvent être occasionnées par le caractère « manuel » du remplissage, une légère modification de la méthode de remplissage a eu lieu entre les deux chargements denses. Ainsi, tandis que pour le chargement Dense1 les particules ont été saupoudrées à l'intérieur du réacteur vide, pour le chargement Dense2 les dispositifs de tomographie à fils ont été placés dans le réacteur avant le remplissage de façon à les utiliser comme de grilles de redistribution.

Pour comparer les performances des deux types de chargement, les résultats obtenus avec les différents dispositifs doivent être quantifiés. Tandis que pour le collecteur de liquide cette quantification est apportée par l'utilisation de l'indice de maldistribution défini au chapitre 2.3.1, pour à la tomographie à fils certaines grandeurs statistiques sont utilisées. Ainsi, étant donné que chaque dispositif de tomographie à fils (supérieur et inférieur) dispose de 313 points de croisement mesurables donnant donc accès à la valeur de la saturation locale du liquide sur 313 emplacements, on peut calculer aisément les grandeurs suivants :

- Saturation de liquide moyenne ($\overline{\beta}_L$) : pour un dispositif de tomographie à fils donné, la saturation moyenne du liquide sur la section du réacteur correspondant au dispositif en question est calculée selon la définition classique de la moyenne:

$$\overline{\beta}_L = \frac{\sum_{i=1}^{313} \beta_L^i}{313} \quad (3-I)$$

- L'écart type (σ): Il caractérise la répartition des saturations locales de liquide mesurées par rapport à la valeur moyenne. L'écart type est donc égal à :

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{313} \sum_{i=1}^{313} (\beta_L^i - \overline{\beta})^2} \quad (3-II)$$

- Le taux de fluctuation ou écart type relatif (θ): Il permet de pondérer les écart types par la moyenne des mesures. Cette grandeur sera souvent utilisée pour comparer les performances des différents types de remplissage. Ainsi, pour la section du réacteur considérée, un taux de fluctuation proche de zéro sera le reflet d'une bonne distribution de liquide car il traduit une uniformité des valeurs de saturation locale. Au contraire, une valeur élevée du taux de fluctuation sera le reflet d'une mauvaise distribution du liquide car elle attestera des accumulations de liquide dans certaines zones du réacteur. Pour un dispositif de tomographie à fils donné, le taux de fluctuation est défini par :

$$\theta = \frac{\sigma}{\overline{\beta}_L} \quad (3-III)$$

- Taux de fluctuation moyen ou taux de fluctuation du réacteur (θ_R) : même si le taux de fluctuation mesuré pour chacun des dispositifs de tomographie à fils est utilisé pour caractériser la qualité de la distribution de liquide aux endroits occupés par les dits dispositifs, dans certaines circonstances il peut être intéressant de quantifier la qualité de la distribution sur toute l'hauteur du réacteur en utilisant une seule grandeur. Pour ce faire, le taux de fluctuation du réacteur est défini tout simplement comme la moyenne des taux de fluctuation supérieur (dispositif de tomographie à fils à 0,33 m du distributeur) et inférieur (dispositif de tomographie à fils à 0,96 m du distributeur):

$$\theta_R = \frac{\theta_{Supérieur} + \theta_{inférieur}}{2} \quad (3-IV)$$

En ce qui concerne les mesures réalisées avec les thermistances, des grandeurs statistiques équivalentes sont utilisées. Il est évident que dans ce cadre, les valeurs de saturation de liquide mesurées par tomographie à fils cèdent leur place aux vitesses locales mesurées avec les thermistances.

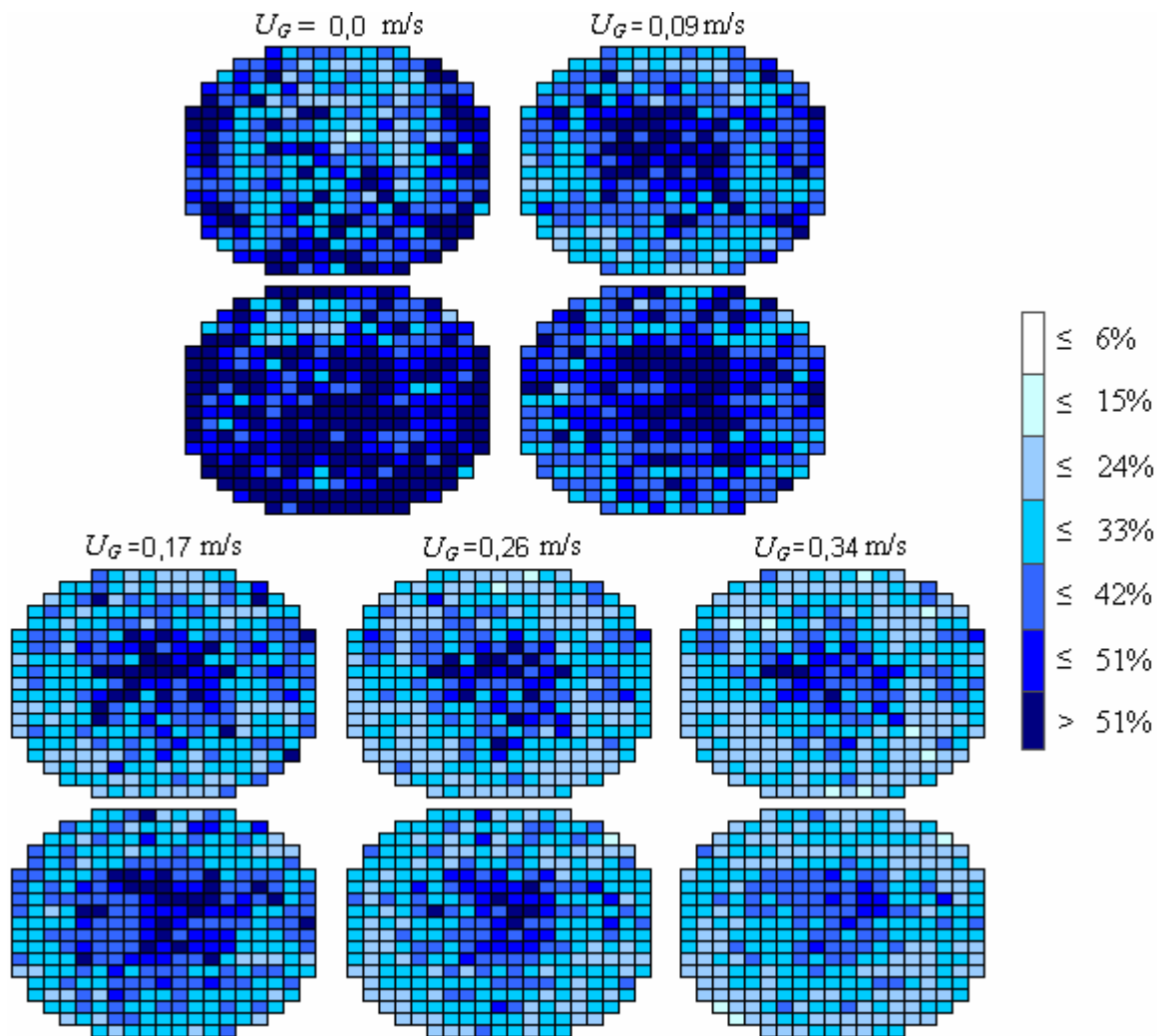
3.4.1 Distributeur complet

Avec ses 24 entrées de liquide sur un réacteur de 0,3 m de diamètre, le distributeur complet dispose de 340 entrées par m² de section droite de réacteur et peut être considéré comme un bon distributeur de liquide (pour garantir une bonne irrigation, Trambouze et Euzen, 2002, proposent l'utilisation d'au moins 40 entrées de liquide par m² de section droite de réacteur). Bien qu'industriellement l'utilisation des plateaux perforés ne soit plus très fréquente (en particulier dans le domaine pétrolier), l'étude de la distribution de liquide en utilisant ce distributeur complet cherche à imiter le fonctionnement des réacteurs à lit fixe industriels en imposant, en tête de colonne, la meilleure distribution possible.

Par la suite, l'étude de la distribution de liquide en utilisant les trois techniques de mesure est exposée. Pour ce distributeur en particulier, s'agissant des premiers résultats présentés, chaque technique sera traitée séparément, de façon à mieux montrer les spécificités de chacune d'entre elles.

3.4.1.1 Résultats obtenus avec la tomographie à fils

Pour commencer, des images typiques, obtenues en utilisant le distributeur complet sont présentées sur la Figure 3-8. Ici, les images présentées par paires (l'une au-dessus de l'autre), représentent les saturations locales de liquide (selon l'échelle de couleurs à droite de l'image) aux deux niveaux étudiés (0,33 m et 0,96 m en-dessous du distributeur de liquide) pour des débits de gaz différents. Ces résultats concernent un réacteur rempli d'extrudés cylindriques selon le mode de chargement sock (ou à la chaussette) pour une vitesse de liquide égale à 0,0082 m/s.



Les images obtenues permettent de faire quelques remarques générales sur l'écoulement. On observe ainsi la diminution attendue de la saturation du liquide avec l'augmentation du débit de gaz. Les images montrent aussi que cette diminution ne se traduit pas par des changements significatifs de la distribution du liquide, qui garde la même configuration dès que le gaz est introduit dans le réacteur. En effet, toutes les images prises en présence d'un flux gazeux non nul montrent une accumulation du liquide près du centre de la colonne qui est, comme on verra par la suite, au moins en partie la conséquence de la distribution initiale imposée en tête de la colonne. Par contre, les deux images prises en absence d'écoulement gazeux, montrent une distribution de liquide différente qui est sans doute influencée de façon prépondérante par la topologie du garnissage et les forces capillaires. C'est à cause de ces différences que par la suite, l'attention sera portée de façon primordiale aux expériences réalisées avec un écoulement gazeux non nul qui sont par ailleurs les seules à avoir un réel intérêt du point de vue industriel, dans le cadre des réacteurs d'hydrodésulfuration par exemple.

Des images comme celles de la Figure 3-8 ont été réalisées pour les trois chargements décrits plus haut. Pour essayer de comparer les 3 chargements utilisés, le taux de fluctuation du réacteur (θ_R) a été choisi comme critère de performance.

Le premier constat effectué en étudiant les différents images est que la valeur de θ_R ne semble pas influencée de façon significative par le débit de gaz. En effet, comme on peut le voir sur la Figure 3-9 pour un chargement sock, quel que soit le débit de gaz, les taux de fluctuation du réacteur pour un débit de liquide donné restent quasiment les mêmes ; cette constatation est valable pour tous les types de chargements effectués. Comme conséquence de cette observation, la comparaison entre les trois chargements est faite en fonction du débit de liquide en utilisant indistinctement les valeurs obtenues pour des débits de gaz différents (Figure 3-10).

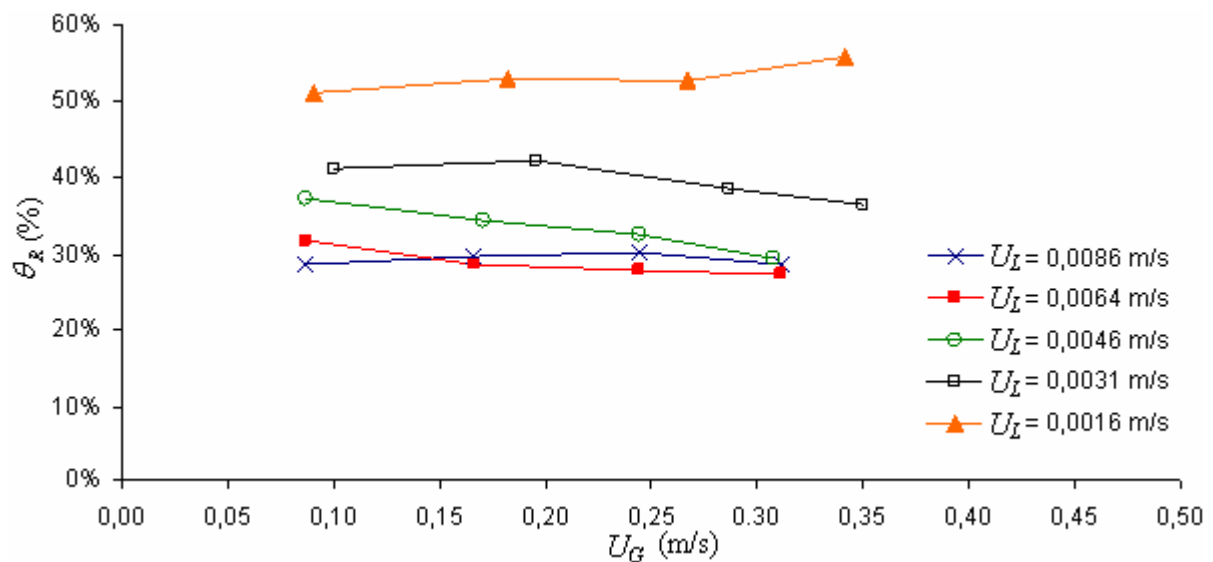


Figure 3-9 θ_R en fonction de U_G à différents débits de liquide pour un lit chargée à la chaussette.

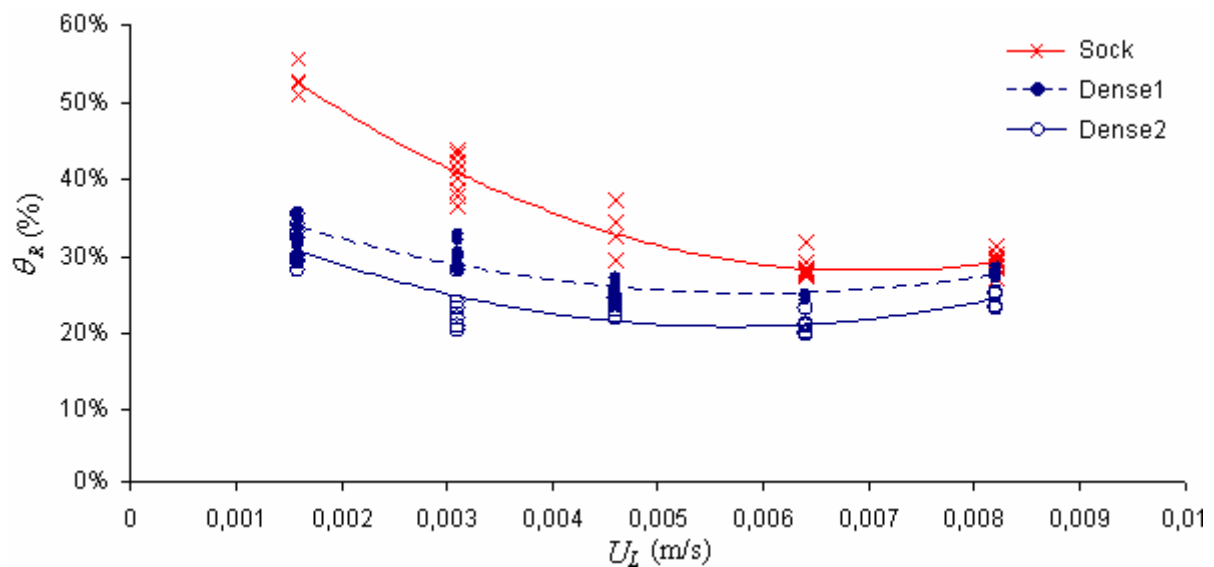


Figure 3-10 θ_R en fonction de la vitesse du liquide pour les 3 types de chargement.

La représentation du θ_R en fonction du débit de liquide de la Figure 3-10 permet de distinguer les performances des trois chargements étudiés. Ainsi, sur toute la gamme de mesures, les chargements denses semblent offrir des meilleures performances que le chargement sock tout en étant moins sensibles au débit de liquide. En effet, à des débits de liquide faibles, le chargement sock présente des performances assez médiocres, performances qui s'améliorent au fur et à mesure que le débit augmente, pour atteindre, aux débits les plus forts étudiés, des niveaux comparables à ceux des chargements denses. Un autre constat qui peut être effectué en observant la Figure 3-10 est la différence entre les deux chargements denses étudiés. Cette non reproductibilité, qui est la conséquence du remplissage manuel, était déjà reflétée dans les valeurs de porosité (environ 0,40 pour le premier et environ 0,38 pour le deuxième) et a été confirmée grâce aux valeurs des pertes de charge observées tout au long des expériences (voir Figure 3-11).

Les résultats obtenus avec cette « bonne » distribution imposée en tête du réacteur seraient donc dans la ligne des études précédentes qui attribuent aux chargements denses de meilleures performances par rapport aux chargements sock grâce, notamment, à l'augmentation des points de contact et à l'horizontalité des particules (Tukač et Hanika, 1992, Møller et coll., 1996).

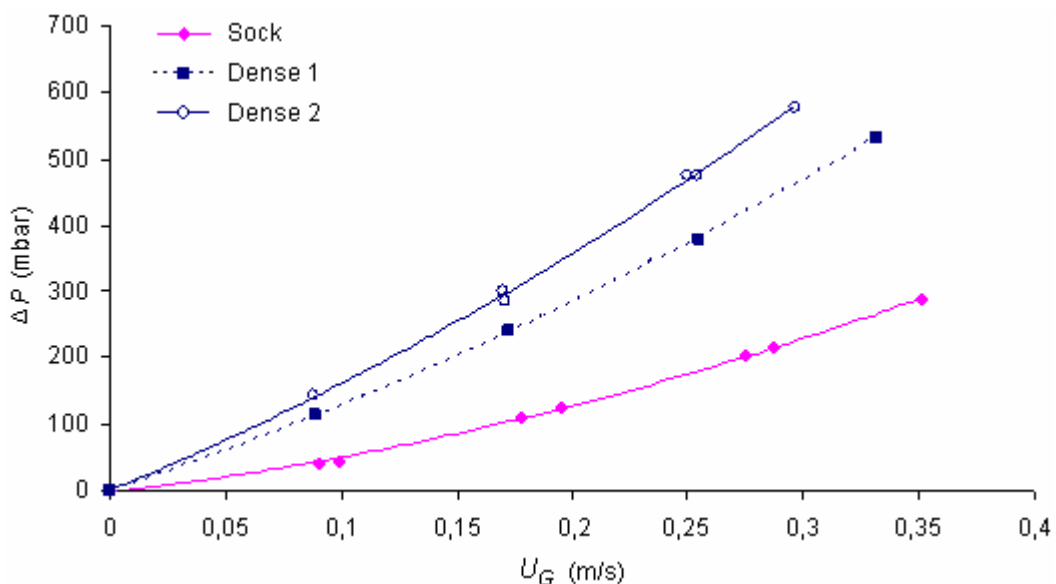


Figure 3-11 Pertes de charge en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0031\text{m/s}$

3.4.1.2 Résultats obtenus avec le collecteur de liquide

En ce qui concerne le collecteur de liquide, les résultats sont un peu plus difficiles à présenter. En effet, même si la dépendance de M_f avec le débit de liquide n'est pas à remettre en cause, celle-ci ne semblait pas être de la même ampleur pour tous les différents débits considérés. A

noter aussi que le tracé des indices de maldistribution en fonction du débit de liquide implique des expériences à débit de gaz constante ; or, cette grandeur est difficile à maîtriser car elle dépend notamment de la perte de charge, donc du débit de liquide alimenté au réacteur. Pour comparer les performances des trois chargements en termes du débit à la sortie du réacteur et étant donné que l'influence du liquide semble légèrement plus faible que celle du gaz pour les conditions opératoires considérés, les indices de maldistribution ont été tracés en fonction de la vitesse superficielle du gaz en faisant l'hypothèse (fausse, bien entendu, mais qui permet une représentation plus simple des données) que le débit de liquide n'influence pas la maldistribution globale en sortie du réacteur. Les résultats sont ainsi représentés dans la Figure 3-12, où les valeurs obtenues pour toutes les vitesses de liquide sont tracées de façon indistincte. Les valeurs de l'indice de maldistribution ne permettent pas de départager les trois chargements utilisés. En effet les performances et les tendances globales sont semblables dans les 3 cas. Ces résultats ne sont pas en accord avec ceux présentés par d'autres auteurs et notamment, avec ceux de Pérat (2005) qui, avec le même type de garnissage avait trouvé des indices de maldistribution légèrement plus faibles pour le chargement dense. A noter cependant que la comparaison réalisée par Pérat (2005) avait été faite pour un débit de gaz plus faible (0,03 m/s contre au moins 0,08 m/s pour les expériences de la Figure 3-12) et que dans le cas présent, la présence de la plaque des thermistances en bas de la colonne peut éventuellement perturber la mesure de l'indice de maldistribution. Il est donc possible que, si les différences entre les chargements ne sont pas très marquées, cela soit dû à la présence des thermistances.

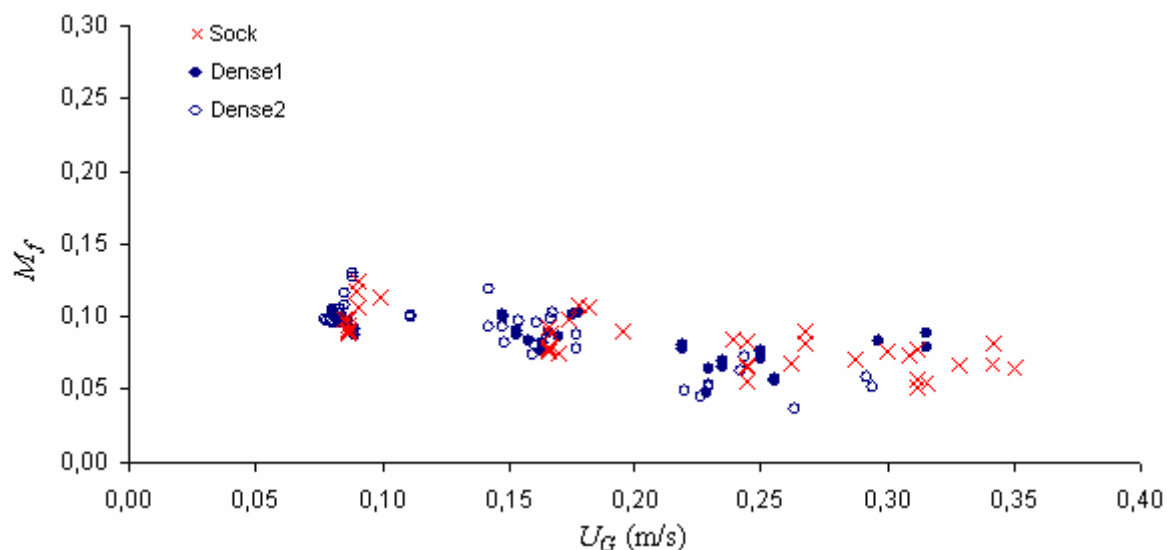


Figure 3-12 Evolution de l'indice de maldistribution en fonction de la vitesse superficielle du gaz.

3.4.1.3 Résultats obtenus avec les thermistances

Les performances des thermistances dans le cadre de cette étude ont été assez décevantes. En effet, des investissements importants en termes économiques et de temps ont été faits avec l'objectif de mettre au point cette technique qui avait déjà posé des problèmes dans le passé au sein du laboratoire. Comme reporté au chapitre 2.3.2, des expériences préliminaires avaient été réalisées pour identifier les thermistances les plus robustes qui seraient ensuite incorporés au dispositif de mesure. Après avoir obtenu des résultats très satisfaisants en termes de longévité avec les thermistances 151-111 fournis par Farnell et s'être investi pendant plusieurs mois à la mise au point de celles-ci sans rencontrer des problèmes particuliers, une dégradation très rapide des thermistances est survenue dès que celles-ci ont été implantées dans le réacteur. Malgré l'étude de quelques hypothèses (p.ex. sauts de tension et chocs thermiques) aucune certitude sur la cause des problèmes n'a été trouvée. L'hypothèse la plus probable est que la durée de vie trop limitée des thermistances est liée à leur étanchéité. Les mesures effectuées avec les thermistances (avec déjà un grand nombre d'entre elles hors service) se sont donc limitées au chargement sock en utilisant le distributeur complet. Si des mesures ont également été réalisées avec les chargements denses, le nombre décroissant de thermistances à chaque début d'expérience rend hasardeuse toute comparaison.

La Figure 3-13 présente des résultats obtenus pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s en fonction de la vitesse superficielle du gaz. Dans la figure, les zones rayées correspondent à celles où il n'y a pas de mesure, soit parce que à l'origine il n'y avait pas de thermistances (zones encadrées par des lignes noires plus épaisses), soit parce que la ou les thermistances qui se trouvent dans ces emplacements sont hors service. Il est important de préciser que l'échelle de couleurs est définie ici en termes de la vitesse de liquide moyenne mesurée pour chacune des vitesses superficielles de gaz considérées. En termes absolus, les couleurs ne correspondent donc pas à la même vitesse de liquide lorsque l'on passe d'une image à l'autre, mais plutôt au même écart de vitesse par rapport à la vitesse moyenne mesurée pour l'image. Cette attribution des couleurs permet de s'affranchir des confusions qui pourraient être occasionnés par l'augmentation logique de la vitesse superficielle du liquide avec le débit de gaz et vise plus particulièrement à mettre en avant le rapport entre les vitesses locales de liquide pour chaque vitesse de gaz de façon indépendante.

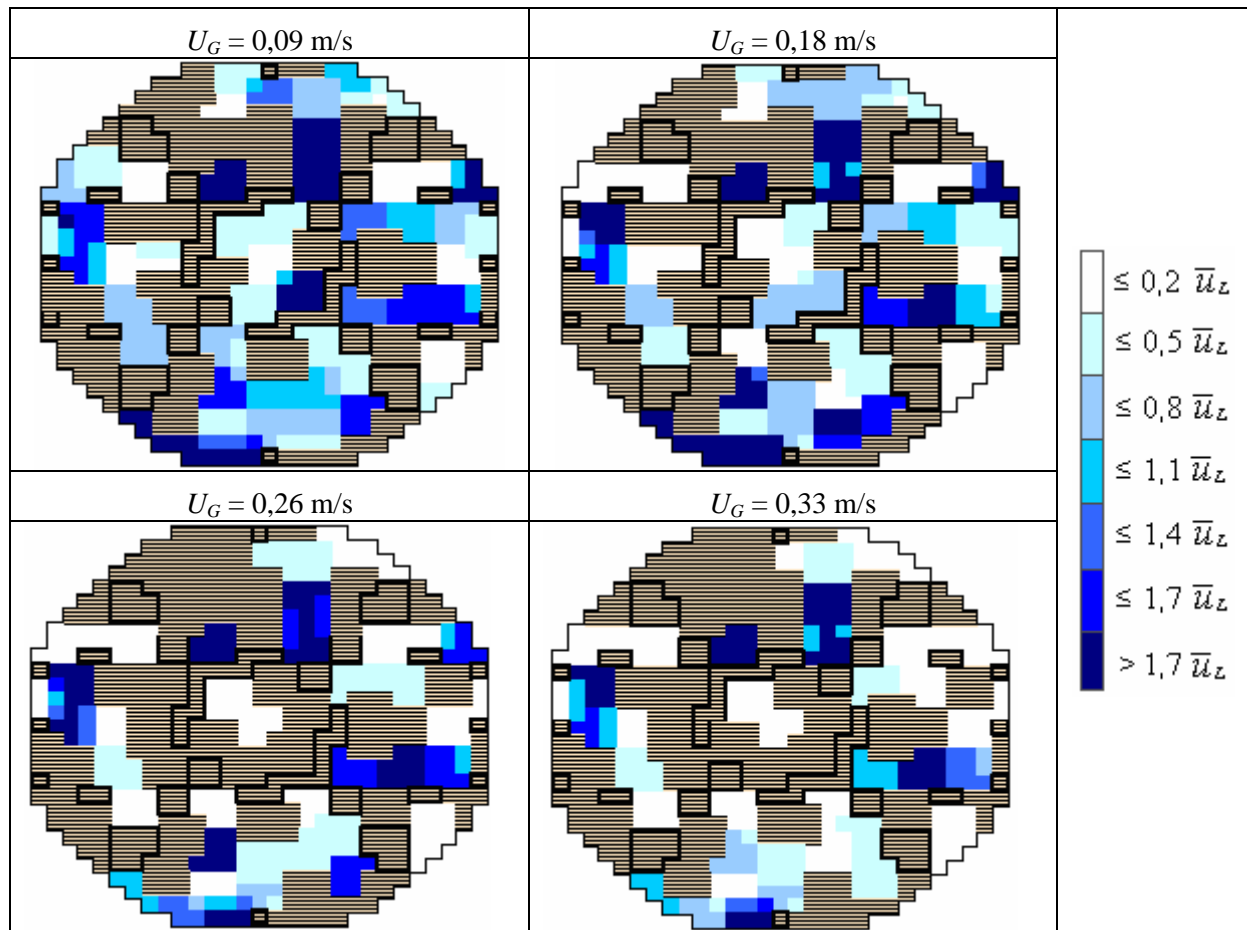


Figure 3-13 Distribution des vitesses de liquide mesurées avec les thermistances en fonction de la vitesse superficielle de gaz (chargement sock - $U_L = 0,0082$ m/s).

Même si l'analyse quantitative est déconseillée pour les raisons mentionnées au chapitre 2.3.2.9, les images de la Figure 3-13 permettent d'apprécier comment, en augmentant la vitesse de gaz, les zones à vitesse intermédiaire ont tendance à disparaître. En effet, en regardant les couleurs qui apparaissent dans chacune des figures on peut remarquer que, tandis que pour la première image ($U_G = 0,09$ m/s) les différents tonalités de bleu de l'échelle des couleurs sont distribuées sur toute la section du réacteur, pour la dernière image ($U_G = 0,33$ m/s) les tonalités intermédiaires ont presque disparu pour laisser la place à des zones à très forte (bleu le plus foncé) ou très faible (zones blanches) vitesse de liquide. En termes plus concrets, les figures montrent une augmentation du taux de fluctuation des vitesses de liquide avec le débit de gaz. Cette affirmation est corroborée par la Figure 3-14 où ces taux de fluctuation ont été calculés et tracés en fonction de la vitesse superficielle de gaz.

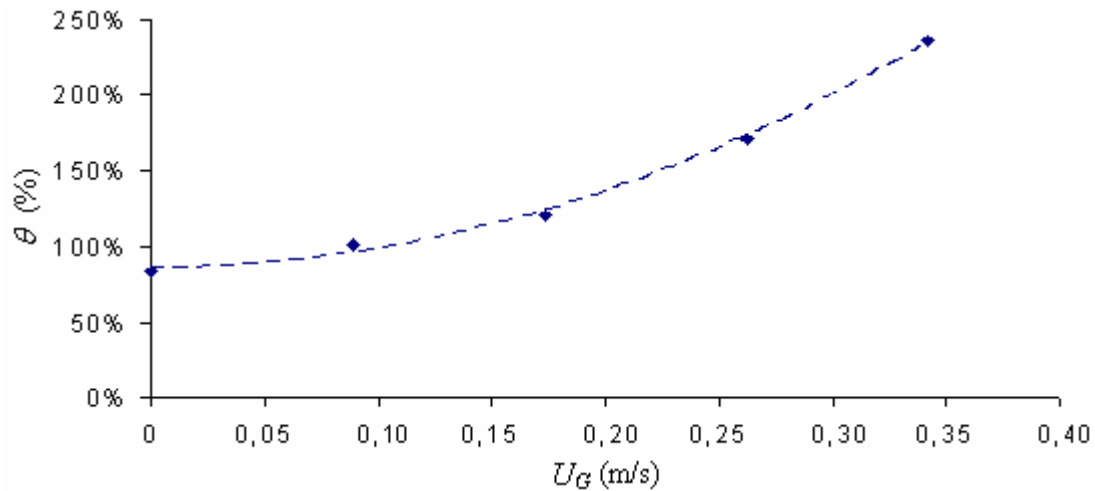


Figure 3-14 Evolution du taux de fluctuation des vitesses de liquide mesurées en fonction de la vitesse superficielle du gaz.

Ces observations, ajoutées à celles qui ont été faites avec les autres systèmes de mesure, permettent de se faire une idée de l'influence du gaz sur la distribution du liquide à l'intérieur du réacteur. En effet, la tomographie à fils a montré que la distribution du liquide en tant que telle n'était pas beaucoup affectée par l'augmentation du débit de gaz, car le taux de fluctuation des rétentions de liquide n'évolue pas de façon remarquable avec cette grandeur (Figure 3-9). Le collecteur de liquide par contre, a montré (Figure 3-12) que l'indice de maldistribution diminue avec l'augmentation du débit de gaz, ce qui revient à dire que le gaz permet d'uniformiser les débits en sortie du réacteur. En observant les résultats obtenus avec les thermistances on arrive à la conclusion que l'écoulement gazeux à l'intérieur du réacteur se fait en suivant des chemins préférentiels. Dans ces endroits, le liquide serait moins présent qu'ailleurs (ce qui est assez compréhensible en tête de colonne de par la conception même des plateaux perforés) mais sa vitesse se verrait fortement augmentée grâce à son interaction avec l'écoulement gazeux. Ainsi, le débit mesuré en sortie du réacteur pour les zones faiblement irriguées serait, grâce au gaz, similaire à celui des zones plus irriguées où la quantité de gaz est plus faible. Cette idée sera confortée en examinant les résultats obtenus avec le distributeur en croix où des entrées bien distinctes de liquide sont utilisées.

3.4.2 Distributeur en croix

Avec ses 5 entrées de liquide bien séparées, le distributeur en croix permet de mieux observer l'influence du gaz sur des filets de liquides individuels. La Figure 3-15 montre l'allure typique des résultats obtenus. Dans le cas présent, les résultats concernent un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s et à différents débits de gaz.

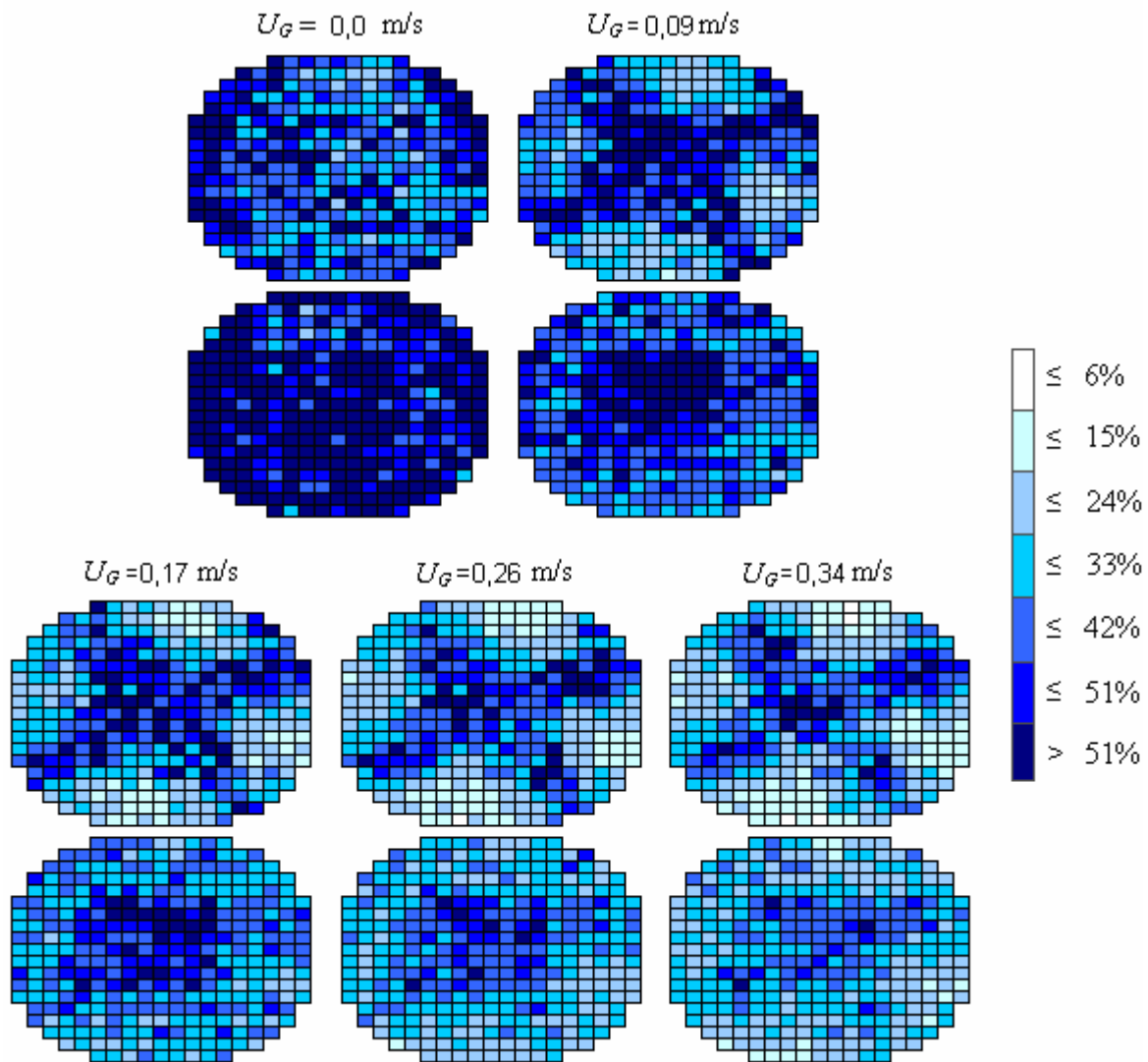


Figure 3-15 Distributeur en croix : Images obtenues pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.

En termes généraux, le même type de comportement est observé avec les trois chargements étudiés. Comme nous l'avons observé avec le distributeur complet et mise à part l'évidente diminution de la saturation de liquide avec l'augmentation du débit gazeux, les résultats mettent en évidence de façon assez claire la différence entre les mécanismes qui gouvernent l'écoulement en liquide seul et l'écoulement gaz – liquide. En effet, la présence d'un écoulement gazeux, même faible, structure l'écoulement de liquide, lui faisant conserver une distribution proche de celle imposé en tête de colonne, du moins pour la partie supérieure du réacteur. Cette « mauvaise » distribution, qui affecte le réacteur sur une distance supérieure à son diamètre (le premier dispositif de tomographie à fils est à $H = 0,33$ m), est aggravée lorsqu'on augmente le débit de gaz, au point que, pour le débit de liquide correspondant aux résultats présentés sur Figure 3-15 et à $U_G = 0,34$ m/s, les 5 entrées de liquide peuvent être facilement distinguées sur l'image obtenue grâce à la tomographie à fils. Ce comportement est, comme l'atteste la Figure 3-16, également aggravé par l'augmentation du débit de

liquide ; il ne disparaît pas complètement aux débits les plus faibles pour lesquels, même si la distribution en croix est moins évidente, l'augmentation des zones pauvrement irrigués provoque, en général, une augmentation des taux de fluctuation mesurés. A noter que dans la Figure 3-16, pour s'affranchir des erreurs d'appréciation qui pourraient apparaître comme conséquence de la diminution de la saturation liquide avec le débit de liquide, les couleurs des nœuds de chaque image sont attribuées en fonction de la saturation de liquide moyenne de l'image en question.

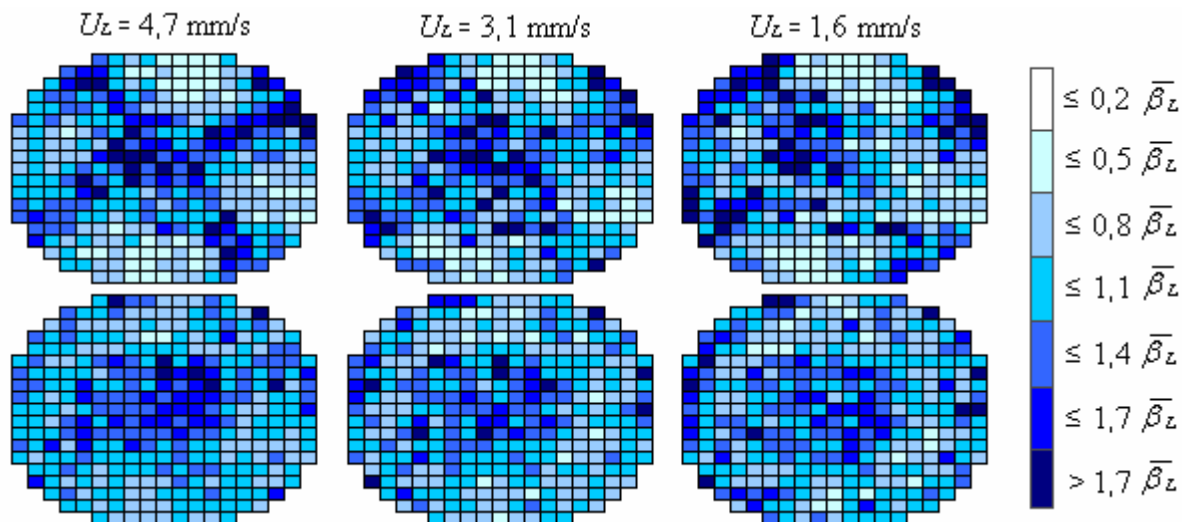


Figure 3-16 Résultats obtenus pour un chargement sock à $U_G \approx 0,17$ m/s et à différents débits de liquide.

D'autres observations intéressantes peuvent être réalisées lorsque les résultats obtenus avec la tomographie à fils sont comparés à ceux du collecteur de liquide. En effet, comme cela était déjà le cas avec le distributeur complet, les indices de maldistribution mesurés avec le collecteur diminuent légèrement en augmentant le débit de gaz pour tous les débits de liquide étudiés (à l'exception du plus petit débit étudié avec le remplissage Dense1 où celui-ci semble augmenter légèrement). Ce comportement est reflété par la Figure 3-17 où l'indice de maldistribution pour un chargement sock est tracé en fonction de la vitesse de gaz pour une vitesse de liquide égale à 0,0082 m/s (conditions opératoires de la Figure 3-15). Cependant, lorsque l'on s'intéresse aux résultats obtenus avec la tomographie à fils, on observe que le taux de fluctuation du réacteur (l'effet étant particulièrement important au niveau du dispositif supérieur) augmente avec le débit de gaz (ce qui correspond à une aggravation de la maldistribution en termes de saturation). Cette tendance peut être observée sur la Figure 3-18, où l'évolution des taux de fluctuation supérieur (mesuré avec le dispositif de tomographie à fils à 0,33 m du distributeur) et inférieur (mesuré avec le dispositif de tomographie à fils à 0,96 m du distributeur) des saturations de liquide est tracé en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s.

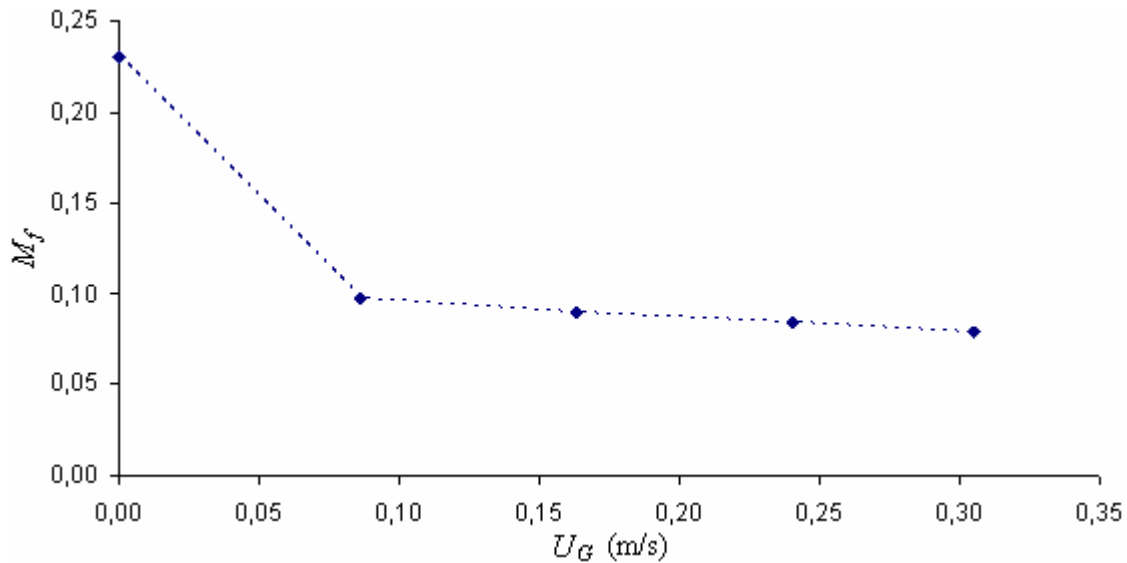


Figure 3-17 Indice de maldistribution en fonction de U_G pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s.

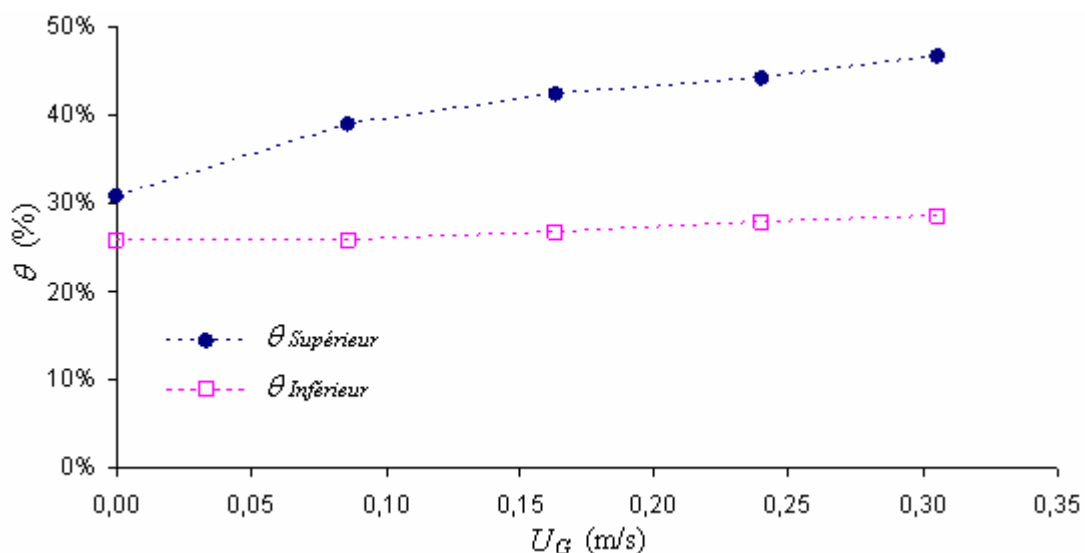


Figure 3-18 Taux de fluctuation mesurés avec la tomographie à fils à différents débits de gaz pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s.

Le résultat de cette comparaison montre non seulement les limites du collecteur de liquide en tant que technique pour mesurer la maldistribution de liquide dans les lits fixes, mais donne aussi quelques indices sur la façon dont l'écoulement gaz – liquide a lieu à l'intérieur du réacteur lorsque des plateaux perforés sont utilisés pour la distribution des fluides. Comme mentionné à la fin du chapitre concernant les expériences avec le distributeur complet, de par la conception même des plateaux perforés, les endroits par où le gaz est introduit dans la colonne sont, à l'origine, dépourvus de liquide. En faisant son apparition dans le réacteur, l'écoulement gazeux va pousser le liquide en le cantonnant, pendant une certaine hauteur, au voisinage du point par lequel ce dernier est entré dans la colonne. Ainsi, le réacteur sera

partagé (de façon assez claire lorsque les entrées de liquide sont suffisamment distantes les unes des autres comme dans le cas du distributeur en croix) entre des zones à faible concentration de liquide où le gaz est majoritaire, et des zones à plus forte concentration de liquide où le gaz est moins présent. Lorsque le débit de gaz augmente, la taille des zones à faible concentration de liquide augmente aussi, mais grâce à la présence majoritaire du gaz qui circule à haute vitesse, le débit de liquide dans ces zones devient, à l'échelle du collecteur, comparable à celui des zones à plus forte concentration de liquide. Le résultat est celui reflété par les deux figures précédentes, à savoir, une uniformisation des débits en sortie du réacteur, mais en même temps, une détérioration de la distribution du liquide en termes de saturation de liquide à l'intérieur de la colonne (et plus particulièrement dans la partie supérieure de celle-ci). Ces observations mettent en cause, jusqu'à un certain point, l'idée habituelle selon laquelle l'augmentation du débit de gaz améliore la distribution de liquide dans les lits fixes (chapitre 1.4.3). En effet, dans le cas des plateaux perforés et au vu des résultats des expériences réalisées, cette affirmation ne semblerait vraie que si une bonne distribution initiale est imposée en tête du réacteur. Dans le cas d'une distribution initiale imparfaite (comme ici avec le distributeur en croix), l'augmentation du débit de gaz ne fera que renforcer la maldistribution imposée en tête de colonne. En résumé, avec des plateaux perforés, si on augmente le débit de gaz, le liquide respectera plus facilement, sur une distance supérieure au diamètre du réacteur, la distribution initiale de liquide, que celle-ci soit bonne ou mauvaise.

En ce qui concerne la comparaison entre les performances des trois chargements utilisés, le distributeur en croix ne permet pas de tirer des conclusions significatives. Il est possible cependant en observant les images obtenues avec la tomographie à fil, de se faire quelques idées concernant la dispersion du liquide. En effet, les images obtenues pour les trois chargements à des conditions opératoires similaires (Figure 3-19) montrent que pour les chargements denses, non seulement la croix sur l'image supérieure est plus nette mais surtout, il est possible de l'apercevoir encore légèrement sur l'image inférieure. Cette observation, bien que d'une portée limitée de part sa nature entièrement « graphique », semble donc octroyer aux chargements à la chaussette une capacité à disperser le liquide quelque peu supérieure à celle des chargements denses. La véracité de cette assertion sera étudiée par la suite, lorsque les résultats obtenus en utilisant le distributeur central seront présentés. A noter que sur la Figure 3-19 le décalage angulaire de la « croix » de liquide sur l'image concernant le chargement sock par rapport à celles du chargement dense n'est pas un phénomène physique produit par le garnissage ou autre mais le résultat d'un léger décalage par inadvertance du plateau distributeur de liquide.

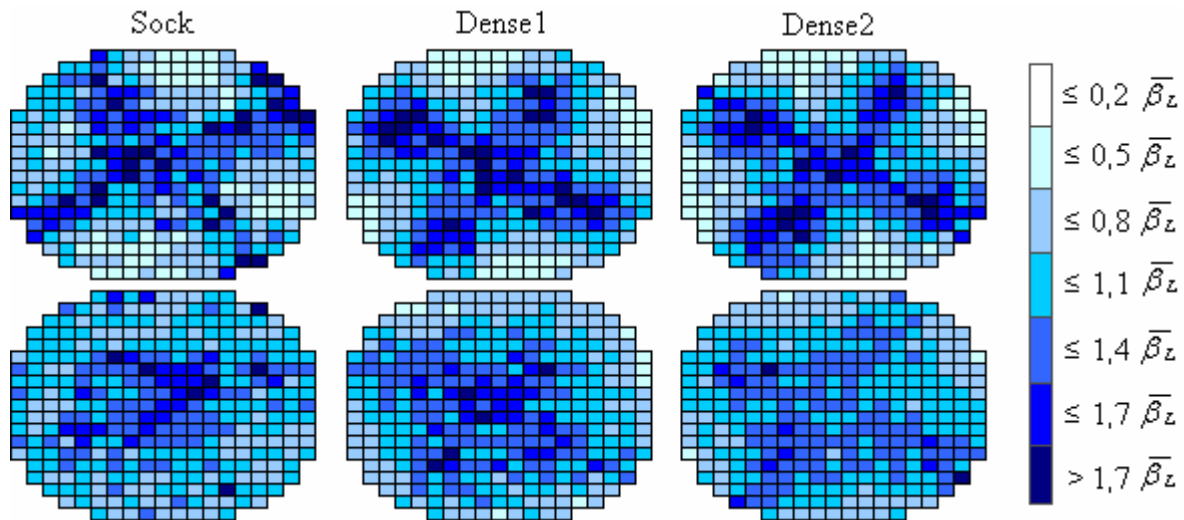


Figure 3-19 Images obtenues par tomographie à fils pour les trois chargements étudiés à $U_L = 0,0064$ m/s et $U_G = 0,17$ m/s.

3.4.3 Distributeur central

Disposant d'une seule entrée de liquide, le distributeur central permet d'observer, en fonction du chargement utilisé, la facilité avec laquelle le liquide se répand à l'intérieur du réacteur. Ce distributeur est donc adapté à l'étude de la dispersion radiale du liquide en fonction du chargement et des débits mis en jeu. Ainsi, le niveau de concentration de liquide au centre de la colonne ou plus particulièrement, la différence de concentration sur cette zone entre le haut et le bas du réacteur pour chaque débit et chaque garnissage utilisé, donneront des indications sur la capacité de ce dernier à disperser radialement le liquide.

L'allure typique des résultats obtenus avec ce distributeur est présentée dans la Figure 3-20, elle concerne particulièrement la distribution du liquide pour un chargement sock à $U_L = 0,0082$ m/s et différents débits de gaz. Comme avec les autres distributeurs, l'introduction du gaz dans le réacteur change radicalement la distribution du liquide, en concentrant ce dernier dans la zone située sous son orifice d'entrée. Plus le débit de gaz est important, moins le liquide aura la possibilité de se répandre pour occuper la section du réacteur. De façon similaire bien que plus prévisible, pour un débit de gaz donné, plus le débit de liquide est important, plus la section occupée par celui-ci sera grande (Figure 3-21).

Pour comparer les trois chargements il est tout d'abord nécessaire de choisir un critère de performance pertinent. En effet, même si les deux dispositifs de tomographie à fils permettent d'observer la répartition du liquide à deux hauteurs différentes, ils ne donnent pas accès aux débits. Ceci rend difficile le calcul des coefficients de dispersion radial en utilisant par exemple, un modèle de diffusion comme l'avaient déjà fait, entre autres, Bemer et

Zuiderweg (1978) ou Hoek et coll. (1986). Pour éviter donc d'aboutir à des conclusions qui pourraient être dépendantes du critère utilisé, on propose d'étudier la dispersion radiale en fonction de trois critères différents : l'évolution du taux de fluctuation des saturations en termes absolus, l'évolution relative (ou pourcentage d'amélioration) de ce taux de fluctuation et l'évolution relative de la saturation de liquide au centre de la colonne. Ces critères, qui permettent d'étudier les résultats obtenus grâce à la tomographie à fils, seront ensuite complétés avec les résultats du collecteur de liquide.

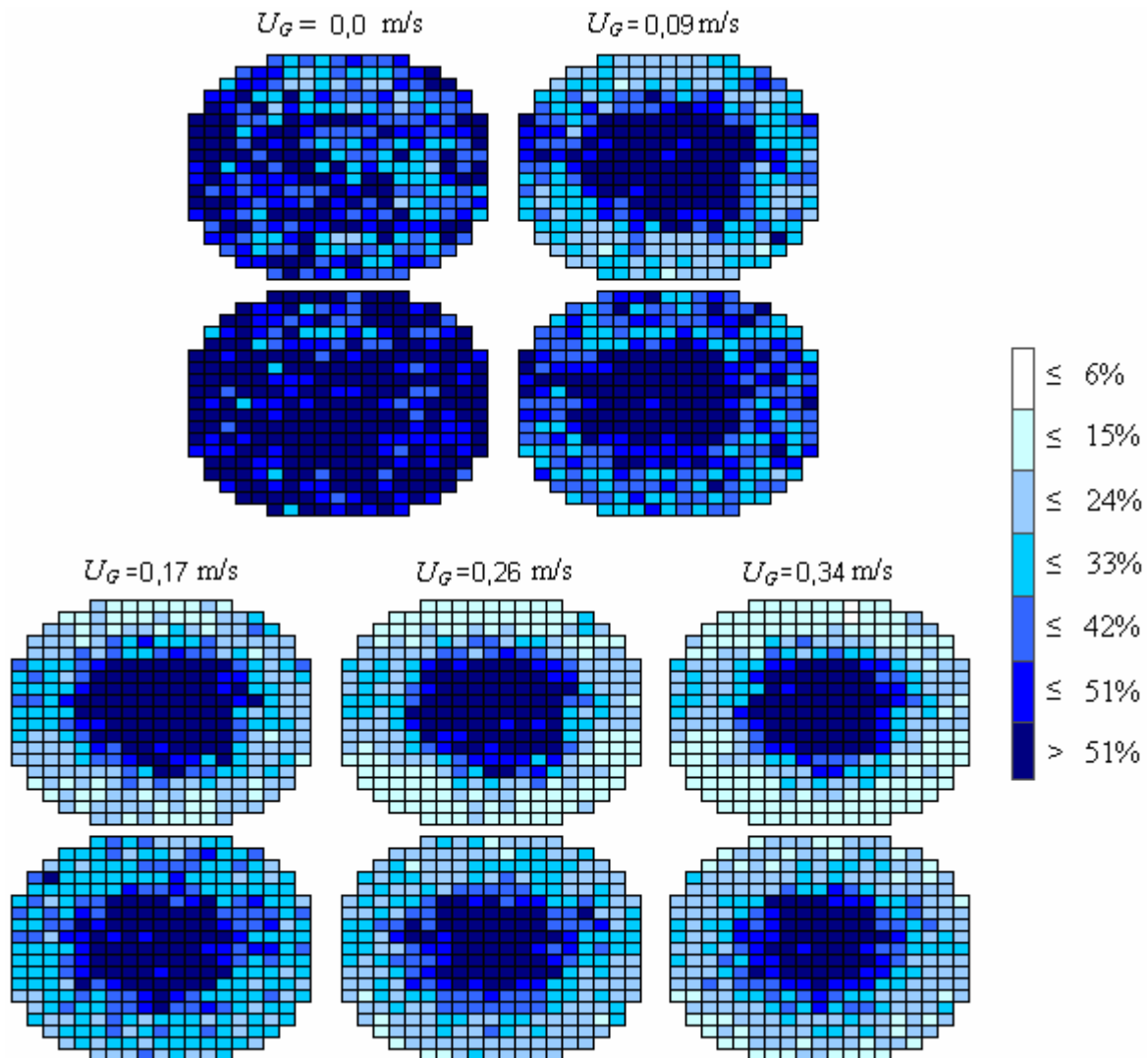


Figure 3-20 Distributeur central : Images obtenues pour un chargement sock à $U_L = 0,0082 \text{ m/s}$ pour différents débits de gaz.

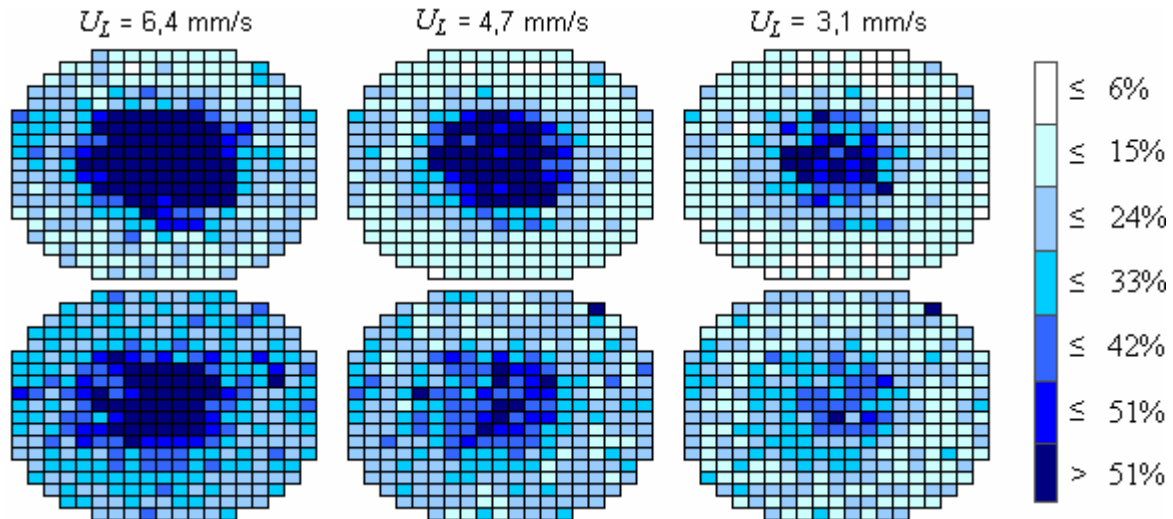


Figure 3-21 Section occupée par le liquide en fonction de son débit pour un chargement sock et une vitesse de gaz de 0,17 m/s.

3.4.3.1 Evolution du taux de fluctuation en termes absolus

L'imposition d'une mauvaise distribution en tête de colonne implique, du point de vue des résultats qui peuvent être obtenus avec la tomographie à fils, que le taux de fluctuation des saturations de liquide mesurées dans la partie supérieure du réacteur (avec le dispositif supérieur de tomographie à fils) sera élevé. S'agissant du distributeur central, qui dès l'entrée du gaz dans la colonne concentre le liquide au centre de celle-ci, il est envisageable que toute diminution du taux de fluctuation au fur et à mesure que les fluides descendent dans le réacteur soit, au moins dans une certaine mesure, due à la dispersion radiale du liquide. Ainsi, il est raisonnable de penser qu'à des débits de gaz et de liquide constants, le garnissage présentant le taux de fluctuation le plus faible en bas de la colonne sera celui qui favorise le plus la dispersion radiale du liquide. Pour s'affranchir des possibles effets de bord occasionnés par l'entrée des fluides dans le réacteur ou par la présence des billes « inertes » en tête de colonne, plutôt que directement le taux de fluctuation en bas du réacteur, c'est la différence entre les taux de fluctuation supérieur et inférieur ($\theta_{\text{Supérieur}} - \theta_{\text{Inférieur}}$) qui sera utilisée pour comparer les performances des trois chargements considérés. Etant donné que la dispersion radiale augmente avec le débit de liquide et diminue avec l'augmentation du débit de gaz, la première tentative pour regrouper toutes les données sur un même graphique a consisté à tracer la différence entre les taux de fluctuation supérieur et inférieur en fonction de U_G/U_L (Figure 3-22).

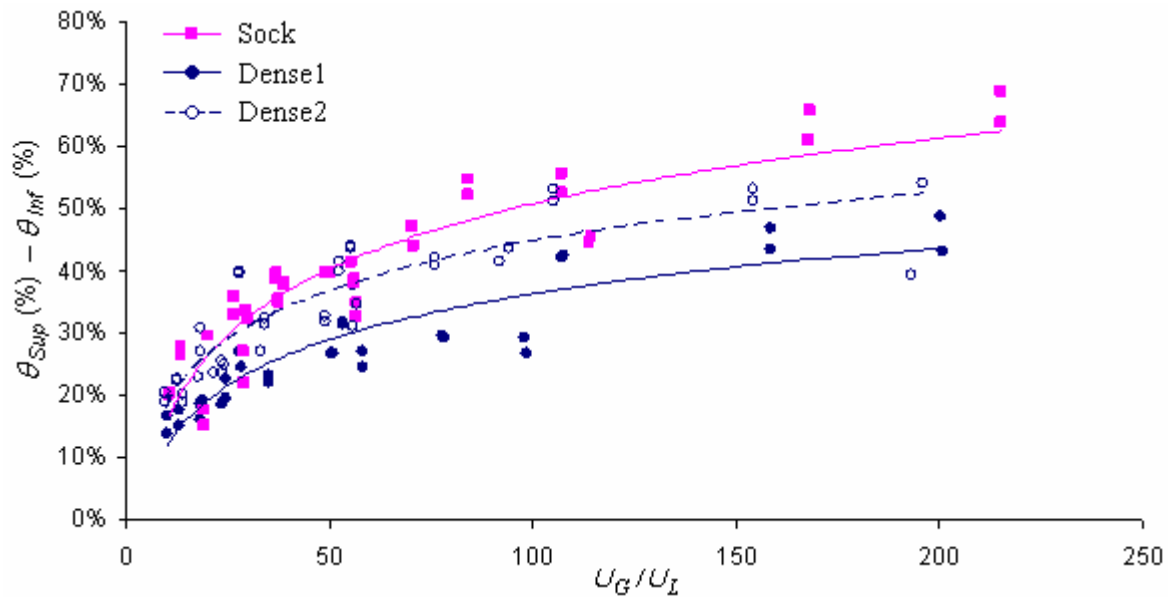


Figure 3-22 Evolution de la différence des écarts types supérieur et inférieur pour les trois chargements en fonction de U_G/U_L .

Pour essayer de corrélérer ces résultats, des expressions logarithmiques du type $(\theta_{Supérieur} - \theta_{Inférieur}) = \ln(U_G/U_L) + B$ ont été utilisées. Même si cette représentation est loin d'être optimale (l'indice de corrélation R^2 des courbes obtenues est compris entre 0,8 et 0,85), elle permet d'avoir les premières indications concernant la dispersion radiale en fonction des débits et des chargements utilisés. Ainsi, on remarque tout d'abord la différence marquée entre les performances des deux chargements denses. En effet, sur toute la gamme des débits étudiés, le chargement Dense2 exhibe, en termes de dispersion radiale, des performances supérieures à celles du chargement Dense1. Ensuite, la figure montre comment les performances des chargements en termes de dispersion radiale dépendent des débits mis en jeu. En effet, tandis que pour des rapports U_G/U_L faibles les trois chargements présentent des performances similaires, dès que ce rapport augmente, le chargement sock devient nettement plus performant en termes de dispersion radiale.

Etant donnée la dispersion des données sur la Figure 3-22 et de façon à avoir des précisions sur les performances des trois chargements, l'évolution du taux de fluctuation $(\theta_{Sup} - \theta_{Inf})$ a été tracée en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour les débits de liquide le plus fort (Figure 3-23) et le plus faible (Figure 3-24). Dans les deux cas et comme on peut le remarquer sur la Figure 3-22, pour les fort débits de gaz, le chargement sock est le plus performant. Cependant, le débit de gaz nécessaire pour que cette différence devienne notable diffère en fonction du débit de liquide. En effet, à fort débit de liquide le comportement des trois chargements est similaire lorsque le débit de gaz est faible, mais les différences apparaissent très rapidement lorsque ce dernier augmente. A faible débit de liquide par contre, des débits de gaz plus importants sont nécessaires pour marquer la supériorité du chargement sock, au

point que, pour environ la moitié de la gamme de débits de gaz étudiés, les chargements denses semblent plus performants. Pour finir, les deux figures permettent aussi d’apprécier l’écart déjà mentionné entre les performances des deux chargements denses. Contrairement au comportement du chargement sock, l’écart entre ces deux chargements semblerait, lui, peu évoluer avec le débit de gaz.

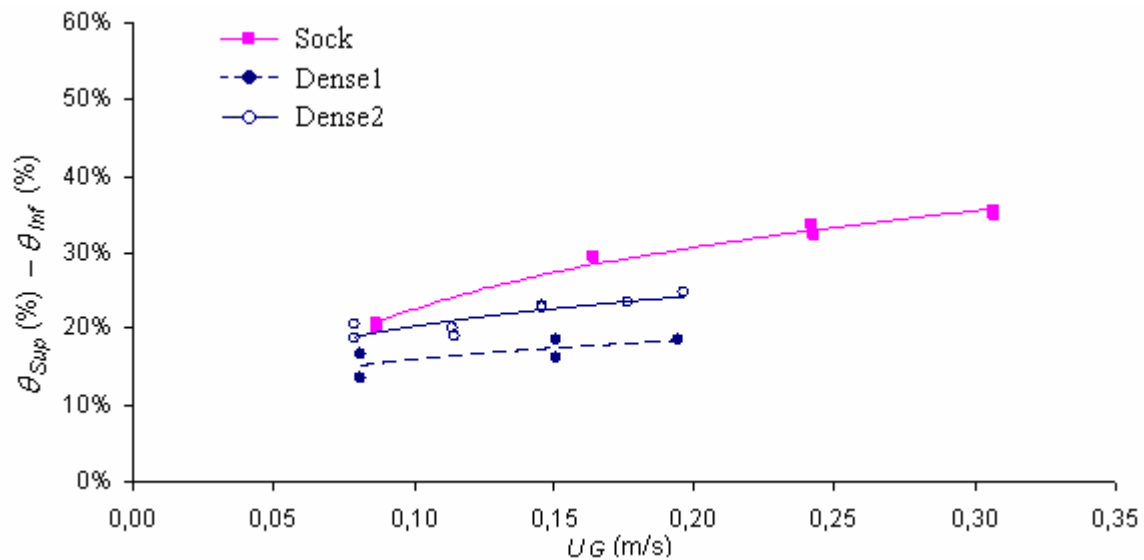


Figure 3-23 Evolution de la différence des écarts types pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0082$ m/s

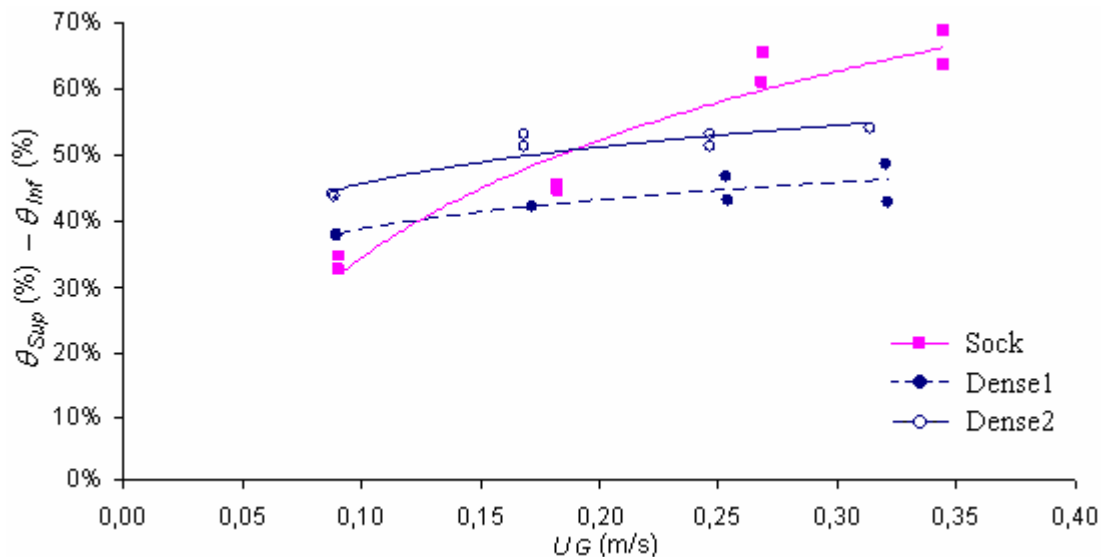


Figure 3-24 Evolution de la différence des écarts types pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0016$ m/s.

3.4.3.2 Evolution relative du taux de fluctuation

Même si l'écart entre les taux de fluctuation supérieur et inférieur semble adéquat pour exprimer l'amélioration de la distribution du liquide dans le réacteur, il peut néanmoins être influencé par la valeur supérieure du taux de fluctuation. Ainsi, un taux de fluctuation faible en bas de la colonne (qui correspondrait à une bonne qualité de distribution) peut être masqué par un taux de fluctuation faible en tête (ce qui rendrait faible la différence entre les deux grandeurs). Pour éviter ces erreurs d'appréciation, la différence entre les taux de fluctuation supérieur et inférieur a été divisée par la moyenne de ces deux valeurs de façon à calculer une évolution « relative ». Cette évolution, qui sera appelé par la suite « pourcentage d'amélioration » est donc égale à :

$$A(\%) = \frac{\theta_{\text{Supérieur}} - \theta_{\text{inférieur}}}{\left(\frac{\theta_{\text{Supérieur}} + \theta_{\text{inférieur}}}{2} \right)} = \frac{\theta_{\text{Supérieur}} - \theta_{\text{inférieur}}}{\theta_R} \times 100\% \quad (3-V)$$

De la même façon que pour l'évolution absolue des taux de fluctuation, le chargement permettant d'obtenir le pourcentage d'amélioration le plus élevé sera considéré, selon ce critère, comme celui qui disperse le mieux le liquide dans la direction radiale. Par souci de clarté et étant donné la difficulté à trouver un paramètre permettant le regroupement de tous les données sur une même graphique, les points expérimentaux ont été tracés en fonction du débit de gaz à des vitesses superficielles de liquide constantes. La Figure 3-25 et la Figure 3-26 présentent donc les pourcentages d'amélioration obtenus pour des vitesses superficielles de liquide égales à 0,0082 m/s et 0,0016 m/s respectivement.

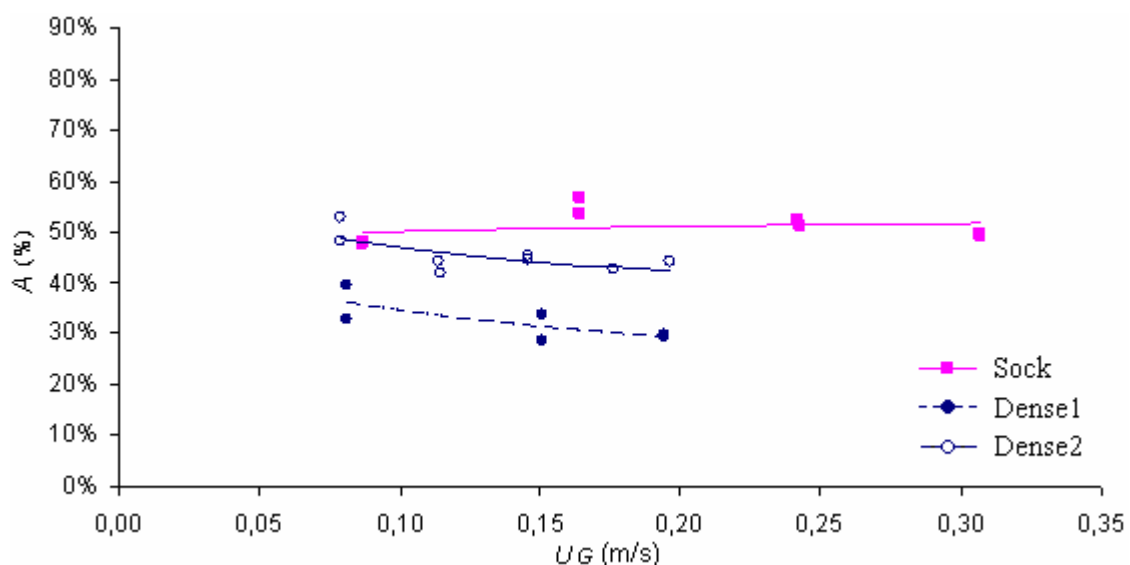


Figure 3-25 Evolution du pourcentage d'amélioration pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0082$ m/s

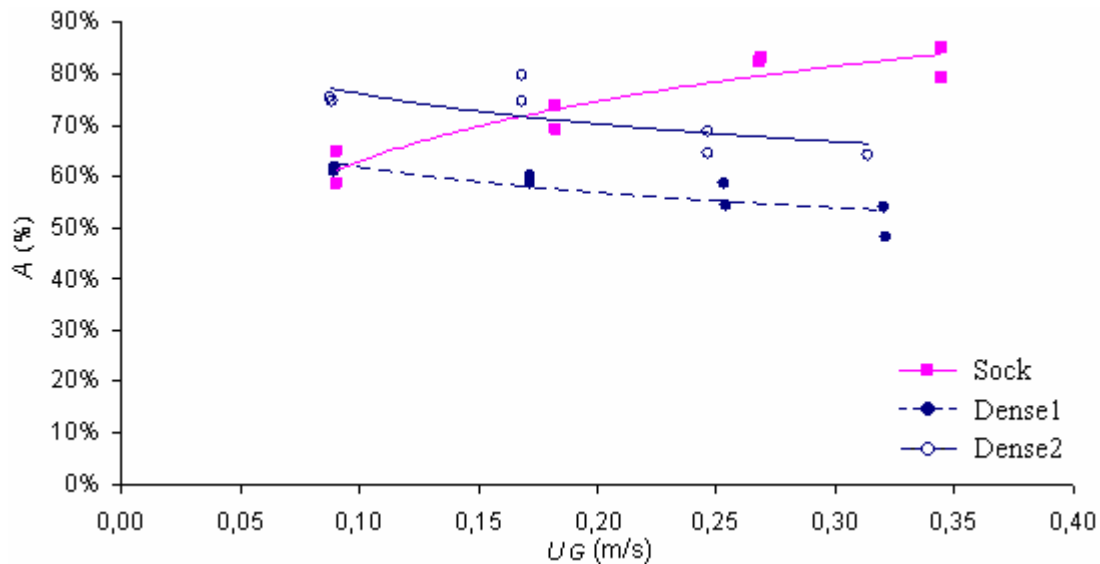


Figure 3-26 Evolution du pourcentage d'amélioration pour les trois chargements en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour $U_L = 0,0016$ m/s

Les deux figures et les conclusions qu'elles peuvent apporter, sont semblables à celles obtenues précédemment avec l'utilisation de l'évolution absolue des taux de fluctuation. On observe donc qu'à des débits de gaz importants, c'est toujours le chargement sock qui est le plus performant, mais que la quantité de gaz nécessaire pour marquer l'écart des performances dépend du débit de liquide. Les figures ont permis aussi de mettre en évidence, une fois de plus, l'écart existant entre les deux chargements denses. En effet, tandis que le chargement Dense1 est le moins performant sur presque la totalité de la gamme de débits étudiés, le chargement Dense2 arrive même à dépasser les performances du chargement sock lorsque les débits de gaz et de liquide sont dans la partie basse de la gamme considérée. On remarquera que même si le critère utilisé quantifie une évolution relative, en termes absolus le résultat de l'étude est le même : aux débits pour lesquels le critère relatif fait état d'une supériorité du chargement sock, les taux de fluctuation en bas du réacteur (mesurés avec le deuxième dispositif de tomographie à fils) pour ce chargement sont aussi les plus faibles.

3.4.3.3 Evolution relative de la saturation de liquide au centre de la colonne

La saturation de liquide sur l'axe de la colonne est proposée comme critère de performance car elle permet d'observer le comportement des 3 chargements en se basant sur des données autres que les écart types ou les taux de fluctuation. L'idée derrière ce critère est la suivante : pour chacun des deux dispositifs de tomographie à fils, on définit une surface circulaire dont le centre est l'axe de la colonne. Ensuite, la saturation de liquide moyenne de cette surface est calculée (en faisant la moyenne des saturations locales des points de croisement situés à l'intérieur de la surface en question) et comparée à la saturation moyenne mesurée sur la

section complète de la colonne. Il est évident que cette comparaison n'a de fondement physique consistant que dans le cas où les surfaces disponibles au liquide autour de chaque point de croisement sont identiques. Même si ceci n'est pas le cas du réacteur étudié (car outre les simples considérations géométriques qui montrent que la surface des points de croisement périphériques ne peut pas être la même que celle des points centraux, il y a aussi des différences locales de porosité) cette valeur permet de faire une estimation grossière du pourcentage de liquide qui s'écoule par la zone centrale du réacteur. Ainsi, la diminution de la saturation de liquide au centre du réacteur entre les dispositifs supérieur et inférieur de tomographie à fils peut donner une idée de la capacité d'un chargement donné à disperser radialement le liquide. Le critère proposé ($E\beta_L$), qui est pondéré par la valeur moyenne de la saturation de liquide sur la zone central est égal à:

$$E\beta_L (\%) = \frac{\left. \frac{\beta_L^{Centre}}{\beta_L} \right|_{Supérieur} - \left. \frac{\beta_L^{Centre}}{\beta_L} \right|_{Inférieur}}{\left. \frac{\beta_L^{Centre}}{\beta_L} \right|_{Moyenne}} \times 100\% \quad (3-VI)$$

Comme dans les cas précédents, une valeur élevée du critère implique que le liquide a abandonné la zone centrale de la colonne au profit des zones périphériques. Ainsi, le chargement dont la valeur du critère est la plus élevée sera celui qui disperse le mieux le liquide. A noter aussi que dans le cas présent, la zone centrale considérée pour la détermination du critère $E\beta_L$ a été définie (de façon complètement arbitraire) comme étant une zone dont la taille est semblable à celle de la zone centrale du collecteur (1/9 de la surface passante totale du réacteur, soit une zone circulaire de 0,1 m de diamètre).

En termes de résultats obtenus, les valeurs expérimentales montrent que, pour la gamme considérée, le débit de gaz ne semble pas influencer de façon déterminante la valeur de $E\beta_L$. Pour cette raison, sur la Figure 3-27 toutes les valeurs ont été tracées en fonction de la vitesse superficielle du liquide en négligeant l'influence du gaz.

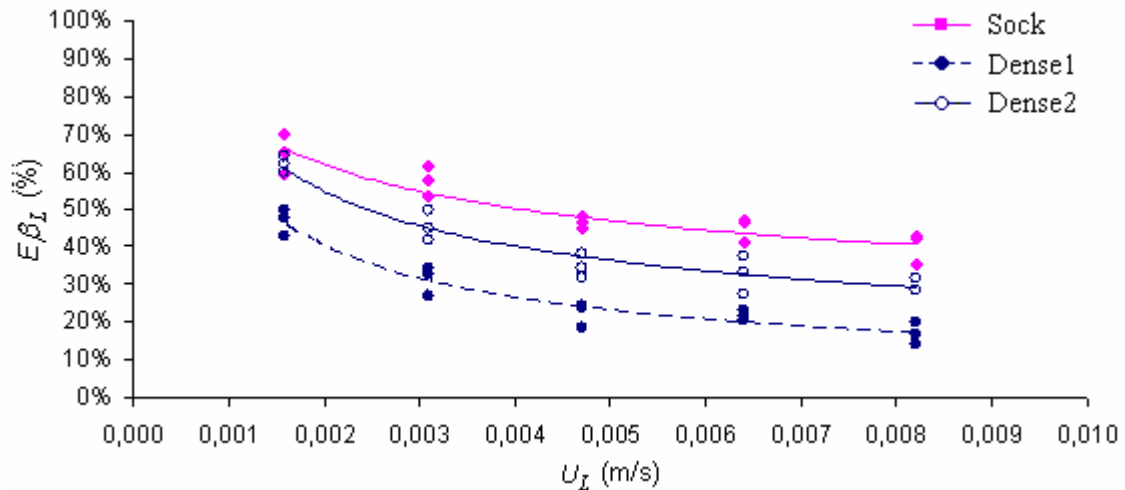


Figure 3-27 Diminution de la saturation de liquide sur la zone central du réacteur en fonction de U_L .

La Figure 3-27 conforte les résultats précédents. On observe ainsi un chargement Dense1 qui est le moins performant sur toute la gamme des débits et un chargement Sock qui semble supérieur aux autres. Le chargement Dense2 de son côté, affiche des performances intermédiaires, arrivant même à être équivalent au chargement Sock pour le débit de liquide le plus faible.

3.4.3.4 Utilisation du collecteur de liquide

Enfin, la performance des différents chargements a aussi été évaluée en considérant les débits recueillis en sortie du réacteur par le collecteur de liquide. En effet, la totalité du liquide étant introduite sur la zone centrale du réacteur, la comparaison du débit recueilli pour cette zone du collecteur par rapport aux autres permet de se faire une idée du niveau de dispersion du liquide. En sachant que le collecteur est divisé en 9 zones de surface identique, les meilleures performances en termes de dispersion seront attribuées aux chargements dont le débit de sortie sur la zone centrale se rapprochera le plus du 11% du débit total. En revanche, un garnissage pour lequel 100% du débit est recueilli par la zone centrale présentera la pire des performances.

Afin de commenter les résultats obtenus, le pourcentage du débit total qui est recueilli sur la zone centrale du collecteur est tracé en fonction du débit de gaz pour les trois chargements utilisés. La Figure 3-28 et la Figure 3-29 présentent les résultats obtenus respectivement pour le plus fort et le plus faible des débits de liquide étudiés.

Bien que non identiques aux résultats obtenus avec la tomographie à fils, les résultats du collecteur semblent conforter les conclusions obtenues avec celle-ci. Les débits en sortie du

réacteur sont donc plus uniformes lorsque le chargement sock est utilisé, spécialement pour les vitesses superficielles de liquide les plus faibles. En ce qui concerne les chargements denses, des performances légèrement supérieures sont obtenues avec le chargement Dense2. A noter cependant que la magnitude des différences entre les différents chargements doit être considérée avec précaution. En effet, il faut garder à l'esprit les expériences réalisées avec le distributeur en croix, qui mettaient en évidence les limitations du collecteur lorsqu'un « mauvais » distributeur est utilisé.

En termes généraux, sur la majeure partie de la gamme étudiée, le chargement sock du catalyseur, contrairement aux attentes, semble favoriser un peu plus la dispersion radiale du liquide à l'intérieur du réacteur. En effet, après avoir étudié la dispersion radiale en utilisant deux techniques et 4 critères de performance différents on s'aperçoit que au mieux, et seulement pour certains débits, les chargements denses (et plus particulièrement le chargement Dense2) peuvent rivaliser avec le chargement Sock. Lorsque les débits de gaz et de liquide sont importants, c'est cependant le chargement Sock qui semble le plus performant.

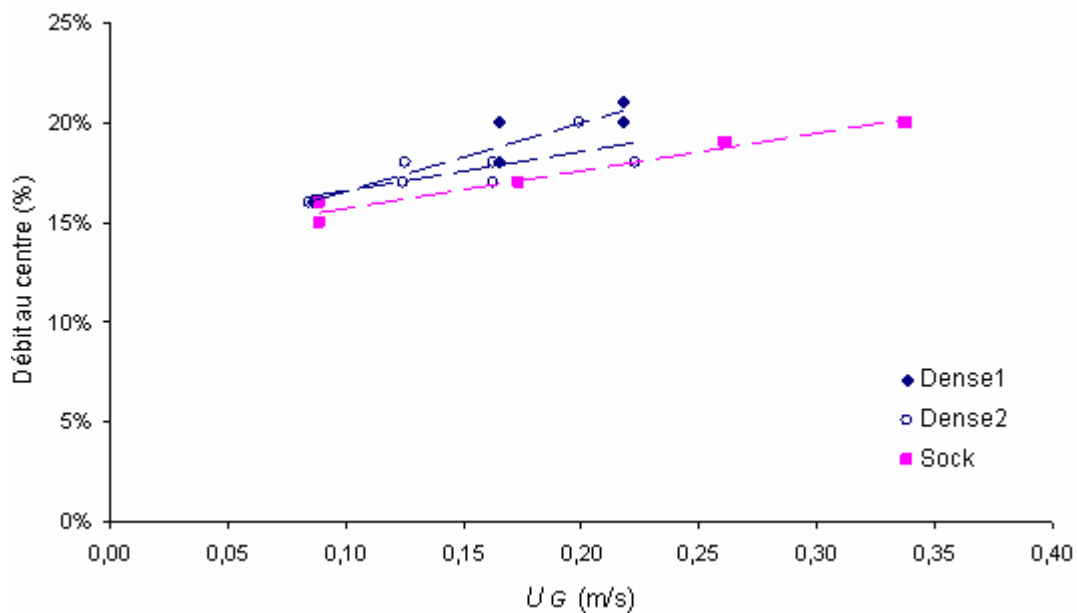


Figure 3-28. Pourcentage du débit total qui est recueilli sur la zone centrale du collecteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour $U_L = 0,0082$ m/s.

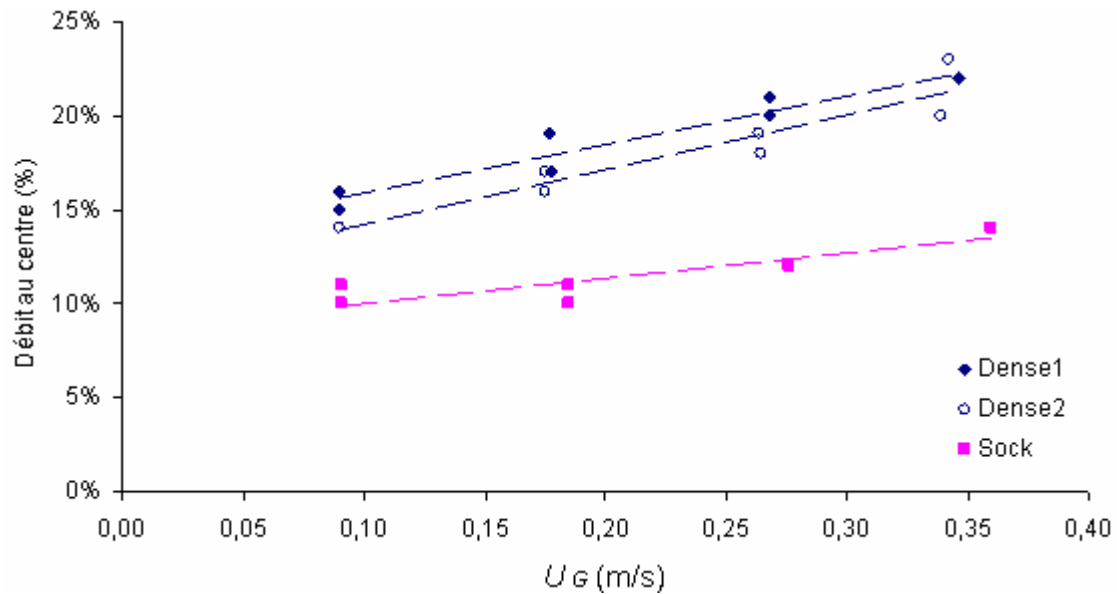


Figure 3-29. Pourcentage du débit total qui est recueilli sur la zone centrale du collecteur en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour $U_L = 0,0016$ m/s.

Les différences entre les résultats obtenus ici et ceux issues d'autres études peuvent être causées principalement par deux facteurs. En premier lieu, comme l'ont montré les expériences réalisées avec le distributeur complet, une bonne distribution initiale permet aux chargements denses d'atteindre des performances supérieures (en termes d'équirépartition du liquide) à celles du chargement sock. Cette amélioration des performances a pu être interprétée par d'autres auteurs comme le résultat d'une meilleure dispersion du liquide, quand il s'agirait plutôt d'une capacité plus importante du chargement dense à respecter la « bonne distribution » imposée par le distributeur en tête de colonne. Le deuxième facteur concerne la technique de mesure. En effet, la technique de mesure la plus utilisée pour les études de maldistribution dans les lits fixes est le collecteur de liquide. Or, comme on l'a remarqué avec le distributeur en croix, cette technique, bien que simple et utile dans des nombreuses circonstances, a des limitations importantes. A noter aussi que les résultats obtenus au long de cette étude sont propres au système de distribution initiale utilisé. L'utilisation de distributeurs de liquide autres que les plateaux perforés (plateau à cheminées par exemple) pourrait, de par l'interaction entre le gaz et le liquide avant l'entrée dans le garnissage, mener à des résultats différents.

Malheureusement le nombre de chargements qui ont pu être étudiés n'est pas assez grand pour établir des théories sur l'influence de celui-ci sur la dispersion radiale du liquide. Un constat peut néanmoins être fait: bien que le chargement sock, dont la porosité est la plus élevée, soit celui qui semble disperser le mieux le liquide, en ce qui concerne les deux chargements denses, c'est celui dont la porosité est la plus faible qui présente les meilleures performances. Ce constat peut faire penser que, si les résultats obtenus sont suffisamment

représentatifs, la porosité à elle seule ne suffit pas à déterminer les performances d'un chargement donné et qu'il faut aussi s'intéresser aussi à l'organisation des particules. En effet, pour le chargement sock les particules s'organisent de façon aléatoire, donnant, en moyenne, des canaux de passage de taille semblable dans toutes les directions. Lorsque la porosité totale d'un lit chargé en sock est diminuée, il est donc raisonnable de penser que la taille de ces canaux diminue elle aussi dans toutes les directions. Pour les chargements denses par contre, les particules s'organisent majoritairement de façon horizontale. La taille des canaux verticaux doit donc être supérieure à celle des canaux horizontaux et la taille de ces derniers doit être, les particules étant entassées les unes sur les autres, plus difficilement modifiable. Ainsi, si la porosité d'un lit chargé en dense est diminuée, il est envisageable de penser que cette diminution se fera principalement au détriment de la taille des canaux verticaux, les canaux horizontaux n'étant que faiblement affectés. Le passage d'un chargement sock à un chargement dense pourrait donc, dans un premier temps, diminuer la dispersion radiale du liquide du fait de la diminution de taille des canaux de passage horizontaux ; mais, lorsque ensuite la porosité du chargement dense est diminuée, la taille des canaux de passage verticaux diminue en se rapprochant (comme c'était le cas du lit chargé sock) de celle des canaux horizontaux augmentant ainsi les déplacements latéraux du liquide. La Figure 3-30 schématise les idées précédentes. La diminution de la taille d'un canal de passage horizontal est représentée à l'intérieur de l'ovale rouge.

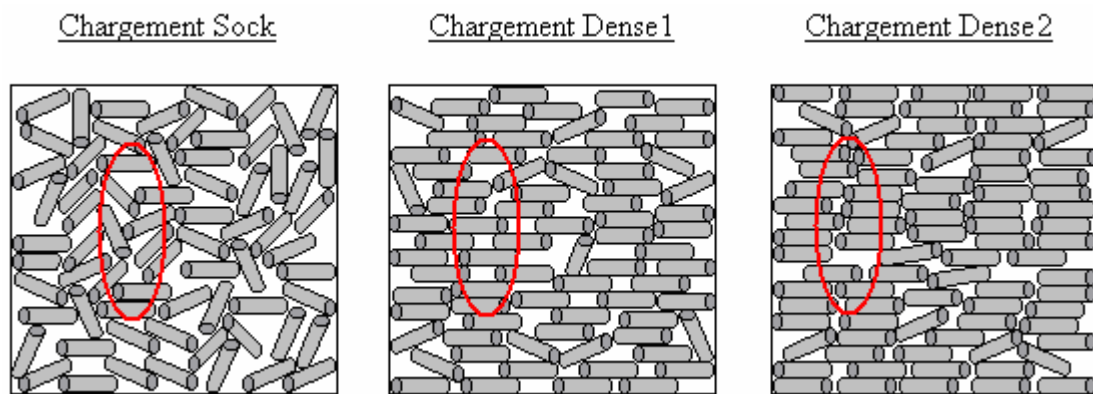


Figure 3-30 Structure schématique du lit en fonction d chargement. La porosité diminue de gauche à droite.

Ces affirmations sont très hypothétiques et ne cherchent pas à donner des explications certaines sur le comportement des différents types de chargement en termes de dispersion radiale. Pour apporter des détails supplémentaires, des expériences en utilisant les deux types de chargement avec des porosités diverses seraient en effet nécessaires.

3.5 Extrudés hydrophobes

Des expériences ont été réalisées avec des extrudés en polyéthylène base densité pour observer l'effet de leur hydrophobicité sur la distribution du liquide. Contrairement aux extrudés en alumine, les extrudés en polyéthylène ne sont pas poreux et ne posent donc pas de problèmes en termes de conductivité électrique lorsque la tomographie à fils est utilisée pour l'acquisition des données. Malheureusement, la masse volumique de ces particules, inférieure à celle de l'eau, rend la prise de données difficile car les particules peuvent flotter et le lit a tendance à se déformer. Ces changements dans la structure du lit rendent peu précises les mesures car l'étalonnage des systèmes de tomographie à fils dépend de la structure du lit au moment où l'étalonnage est effectué. Même si des étalonnages réguliers ont été effectués pour pallier cette difficulté, les augmentations du débit propres aux expériences avaient tendance à comprimer le lit. Ceci modifiait non seulement la structure du garnissage une nouvelle fois, mais pouvait aussi déplacer les fils du système de tomographie au point que ceux-ci finissaient par se toucher (en générant évidemment, des points de haute conductivité indépendants de la présence du liquide). Les résultats qui sont présentés dans ce qui suit sont donc à prendre avec précaution et ont pour seule ambition de donner des impressions très générales sur l'effet de l'hydrophobicité sur l'écoulement fluide.

3.5.1 Distributeur complet

L'allure de la distribution du liquide lorsque le distributeur complet est utilisé peut être appréciée sur la Figure 3-31. Ces images concernent plus précisément des données obtenues à $U_L = 0,0082$ m/s et à différents débits de gaz. Deux constats intéressants peuvent être faits d'après les images. En premier lieu, le comportement du liquide lorsque le débit de gaz est nul est assez remarquable. En effet, contrairement aux garnissages précédents pour lesquels le liquide avait tendance à se répandre (bien que mal) sur toute la section, l'utilisation des extrudés en polyéthylène provoque l'apparition de zones qui semblent opposer une forte résistance à l'écoulement fluide. Les images montrent ainsi que, en absence de gaz, le liquide s'écoule par des chemins préférentiels laissant des zones du réacteur quasiment sèches (ou très faiblement irriguées par rapport aux zones adjacentes). Ensuite, quand le gaz est introduit dans le réacteur et contrairement au comportement observé avec les extrudés en alumine, le liquide ne semble pas s'accumuler, par effet du distributeur, au centre du réacteur. En effet, pour les images obtenues en présence de gaz, les plus hautes rétentions de liquide apparaissent sur le côté droit du réacteur. Il est important de rappeler avec quelles précautions ces résultats doivent être interprétés car, comme il avait été mentionné précédemment, les changements dans la structure du lit peuvent altérer les valeurs locales de saturation de liquide mesurées.

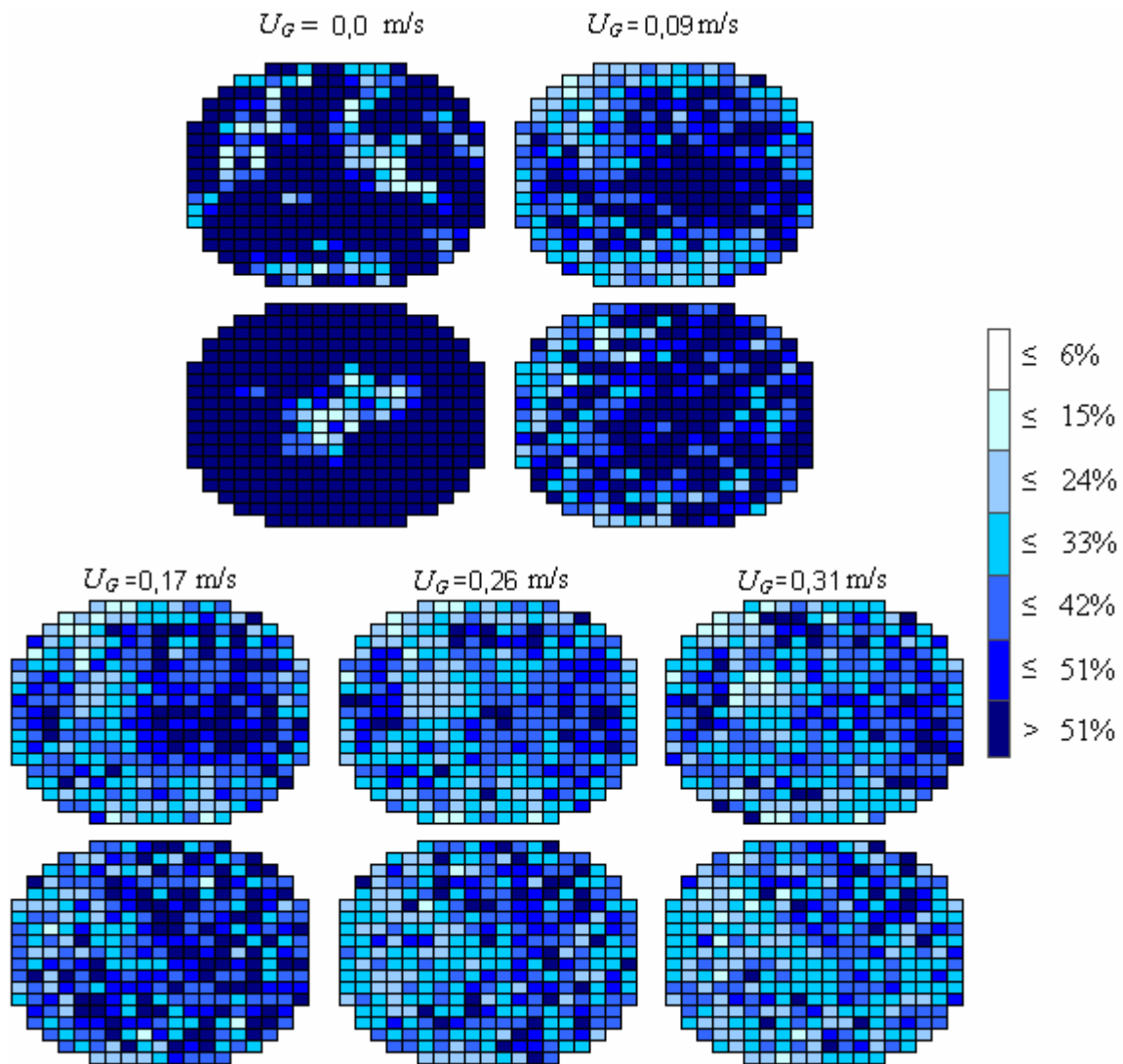


Figure 3-31 Distributeur complet : Images obtenues pour un lit d'extrudés en polyéthylène à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.

Etant donné que pour les expériences avec des extrudés en polyéthylène, l'utilisation de billes de verre au niveau des fils n'est plus nécessaire, la saturation de liquide moyenne dans le réacteur peut-être estimée de façon convenable. En effet, lorsque le distributeur complet est utilisé, la saturation moyenne mesurée à 0,33 m avec le premier système de tomographie à fils est très proche de celle mesurée à 0,96 m (avec le deuxième dispositif). Ceci ne semble pas trop difficile à envisager car, même si le liquide a tendance à se répandre en descendant dans le réacteur, cette tendance est, en moyenne, plus ou moins compensée non seulement par la diminution des saturations locales de liquide des points initialement irrigués (qui vont apporter du liquide aux zones les moins irriguées), mais aussi par la diminution de la masse volumique du gaz du fait de la diminution de la pression au fur et à mesure que la distance par rapport au distributeur augmente (la pression en tête du réacteur est environ 30% supérieure à

la pression en sortie). Ainsi, cette affirmation qui semble confortée par les résultats expérimentaux conduit à supposer que la saturation de liquide moyenne sur la section du réacteur n'évolue pas de façon remarquable au long du lit et, par conséquent, la moyenne des valeurs de saturation obtenues avec les deux systèmes de tomographie à fils peut être considérée comme étant une bonne approximation de la saturation de liquide totale du réacteur.

Les valeurs ainsi obtenues qui correspondent - les extrudés n'étant pas poreux - à la saturation de liquide total ($\beta_T = \beta_{Stat} + \beta_{Dyn}$) sont tracées en fonction du paramètre χ de Lockhart-Martinelli (3-I). Pour déterminer les pertes de charge individuelles du gaz et du liquide nécessaires au calcul du paramètre χ , l'équation d'Ergun (3-II) peut être utilisée :

$$\chi = \left(\frac{\Delta P_L}{\Delta P_G} \right)^{0.5} \quad (3-VII)$$

$$\frac{\Delta P_i}{L} = \rho_i g \left(A \frac{Re_i^*}{Ga_i^*} + B \frac{Re_i^{*2}}{Ga_i^*} \right) \quad (3-VIII)$$

Avec :

$$Re_i^* = \frac{\rho_i U_i d_e}{\mu_i (1 - \varepsilon)} \quad (3-IX)$$

$$Ga_i^* = \left(\frac{\rho_i}{\mu_i} \right)^2 g \left(\frac{d_e \varepsilon}{(1 - \varepsilon)} \right)^3 \quad (3-X)$$

Le choix des constantes A et B de l'équation d'Ergun est un peu plus délicat. En effet, les valeurs originelles de 150 et 1,75 sont contestables dès lors que la géométrie du solide s'éloigne de celle des sphères. Ainsi, McDonald et coll (1979) par exemple, ont proposé des valeurs de 180 et 1,8 comme étant plus appropriés à des particules de géométrie arbitraire. Plus récemment, Nemeč et Levec (2005) ont proposé pour des particules cylindriques, une estimation des constantes qui tient compte de la sphéricité des particules. Les particules en polyéthylène utilisées pour cette étude étant des cylindres à base elliptique, c'est cette dernière approche qui a été retenue. Ainsi, les valeurs de A et B sont estimées par :

$$A = \frac{150}{\phi^{3/2}} \approx 222 \quad (3-XI)$$

$$B = \frac{1,75}{\phi^{4/3}} \approx 2,5 \quad (3\text{-XII})$$

ϕ étant la sphéricité des particules qui peut être calculée avec :

$$\phi = \left(\frac{36\pi V_p^2}{S_p^3} \right)^{1/3} \quad (3\text{-XIII})$$

où V_p et S_p sont respectivement le volume et la surface de la particule et la valeur de ϕ estimée pour les extrudés cylindriques en polyéthylène considérés ici est de 0,76.

Les valeurs de saturation obtenues avec la tomographie à fils ont donc été tracées en fonction du paramètre χ (Figure 3-32) et comparées à 4 corrélations de la littérature (Tableau 3-1). A noter que les corrélations choisies pour cette comparaison ne sont que des exemples parmi celles disponibles et qui peuvent être consultées dans des revues sur les trickle-beds telles que Saroha et Nigam (1996) et Dudukovic et coll. (2002).

Tableau 3-1 Corrélations pour la détermination de la saturation de liquide totale.

Auteur	Corrélation	Conditions d'obtention
Midoux et coll. (1976)	$\beta_t = \frac{0,66\chi^{0,81}}{1 + 0,66\chi^{0,81}}$	$L : 0,5-40$ (hydrocarbures) $G : 0,001-1,5$ (air) Sphères et cylindres $16,6 < D_C/d_p < 34,5$
Rao et coll. (1983) ¹	$\beta_t = 0,35a_s^{1/3} \left(\frac{Re_L}{Re_G} \right)^{0,14}$	$L : 4,1-99,1$ (eau) $G : 0,16-3,2$ (air) Sphères, cylindres, anneaux raschig, selles de Berl. $6,9 < D_C/d_p < 29,4$
Sai et Varma (1988)	$\beta_t = \frac{0,34}{\sqrt{\varepsilon}} a_s^{1/3} \left(\frac{Re_L}{Re_G} \right)^{1/5}$	$L : 3-59,8$ (eau, solutions de glycérine et liquides organiques) $G : 0,17-2,32$ (air) Sphères, cylindres, anneaux raschig. $4,7 < D_C/d_p < 29,4$
Larachi et Grandjean (La méthode utilisée peut être consulté dans des articles tel que Iliuta et coll., 1999b)	Simulateur des trickle-beds ²	Base des données avec plus de 4000 points expérimentaux obtenus dans des conditions diverses.

¹ D'après Sai et Varma (1988)

² Feuille de calcul proposé sur le site <http://www.gch.ulaval.ca/bgrandjean/pbrsimul/pbrsimul.html>

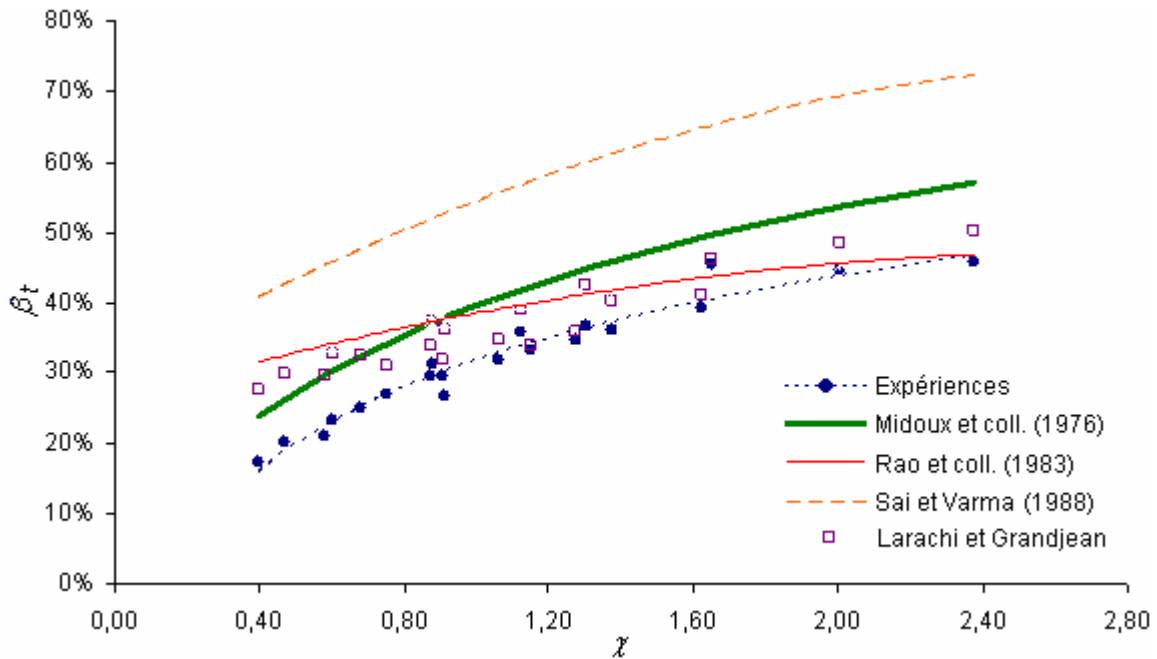


Figure 3-32 Evolution de la saturation de liquide totale pour un lit d'extrudés en PE en fonction de χ .

La Figure 3-32 montre les résultats obtenus. En termes quantitatifs, les saturations mesurées sont, pour des valeurs de χ supérieures à 0,8, bien prédites par les corrélations de Rao et coll. (1983) et par le calcul de Larachi et Grandjean. Cependant, en ce qui concerne l'évolution des saturations en fonction de χ , l'allure de la courbe obtenue semble plus proche de celles proposées par Midoux et coll. (1976) et Sai et Varma (1988). Rentrer dans les détails à propos des différences trouvées entre les valeurs obtenues et les corrélations de la littérature ne semble pas très pertinent. En effet, non seulement la prise des données est soumise aux problèmes déjà mentionnés (qui devraient néanmoins être atténués du fait d'utiliser une moyenne sur toutes les données) mais aussi, la dispersion existante entre les données reportées par les différents auteurs (et mise en évidence par le positionnement des courbes dans la Figure 3-32) atteste d'une certaine difficulté à mesurer la saturation totale de liquide dans les lits fixes. En ce qui concerne ces résultats, il sera donc suffisant de garder à l'esprit l'obtention d'une évolution cohérente de la saturation de liquide mesurée en fonction de χ ainsi que des valeurs numériques qui semblent « réalistes » au vue des débits mis en jeu.

En ce qui concerne les mesures réalisées avec le collecteur de liquide, un constat intéressant a été fait. En effet, comme il avait été mentionné précédemment, pour les extrudés en alumine l'indice de maldistribution semblait légèrement plus influencé par le débit de gaz que par le débit de liquide même si, en termes généraux, il ne variait pas considérablement avec les débits mis en jeu (pour la gamme considérée, l'indice de maldistribution passait en moyenne de 0,11 à 0,07 lorsque la vitesse superficielle du gaz passait de 0,09 à 0,35 m/s). Par contre, pour les particules en polyéthylène, l'indice de maldistribution semble dépendre relativement peu

du débit de gaz mais il varie de façon conséquente avec le débit de liquide. En effet, sur la Figure 3-33 qui résume ces résultats, on observe que l'indice de maldistribution passe en moyenne de 0,31 à 0,09 lorsque la vitesse superficielle de liquide passe de 0,0016 à 0,0082 m/s. Ce comportement pourrait être interprété comme étant le résultat d'une plus forte tendance du liquide à s'écouler en suivant des chemins préférentiels lorsque le garnissage est constitué de particules hydrophobes. Si c'est le cas, il est évident que l'influence de ces chemins sera d'autant plus forte que le débit le liquide est faible car, comme noté par Lutran et coll. (1991), l'augmentation du débit de liquide augmenterait la taille des filets qui seraient donc forcés de se répandre vers des zones initialement sèches (ou peu irriguées) réduisant ainsi la maldistribution à l'échelle globale. Cette hypothèse semble renforcée par la distribution du liquide mesurée au collecteur, non plus en termes d'indice de maldistribution mais en termes de pourcentage du débit recueilli par zone. La Figure 3-34 montre ainsi comment, pour les débits les plus faibles et malgré une distribution du liquide relativement uniforme en tête du réacteur, le liquide a tendance à désertter la zone centrale pour se concentrer sur la partie gauche de la colonne. Ce type de comportement devient moins évident lorsque le débit de liquide augmente.

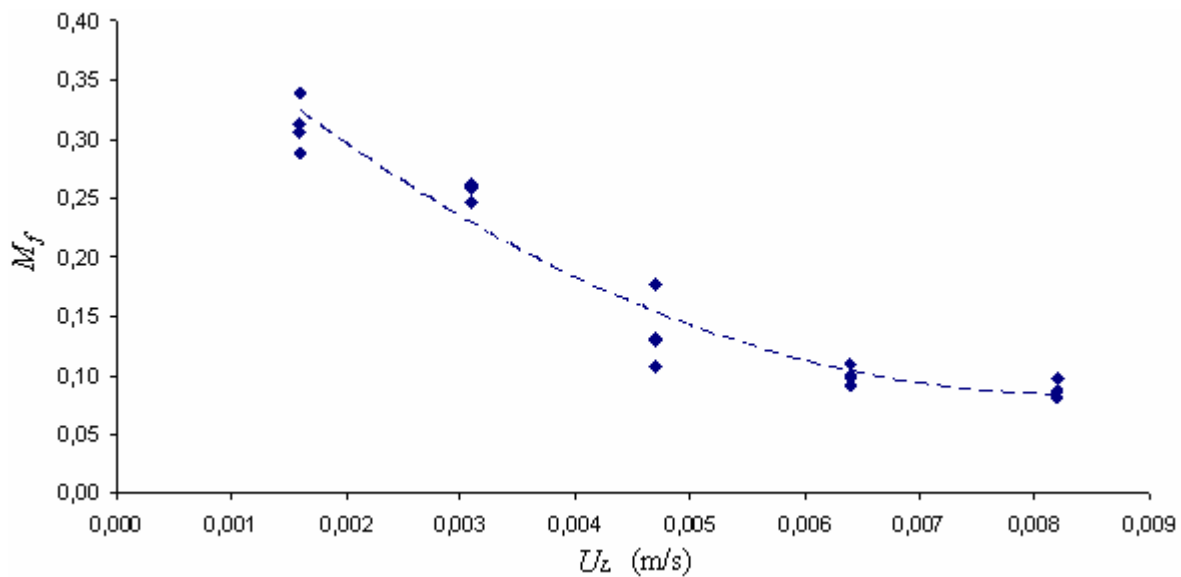


Figure 3-33 Indice de maldistribution en fonction du débit de liquide pour un lit de particules hydrophobes sur toute la gamme de débits de gaz étudié.

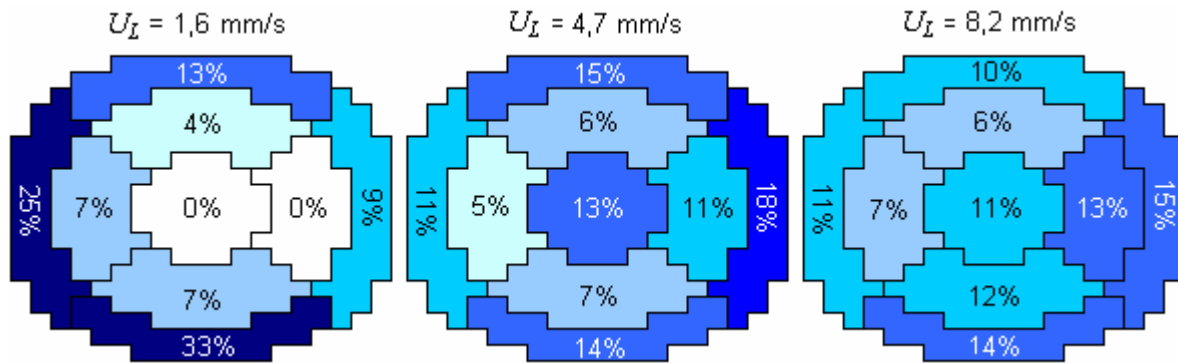


Figure 3-34 Résultats obtenus avec le collecteur de liquide à $U_G = 0,17 \text{ m/s}$

3.5.2 Distributeur en croix

L'allure des résultats obtenus avec le distributeur en croix est semblable à celle qui avait été déjà observé avec les extrudés en alumine. Certaines des images obtenues sont présentées dans la Figure 3-35. Comme dans les cas précédents, c'est l'entrée du gaz qui, sur la partie supérieure du réacteur, force le liquide à « respecter » la distribution imposée par le plateau perforé. A débit de gaz nul, contrairement aux observations réalisées avec le distributeur complet, on n'observe pas de zones faiblement irriguées (mis à part quelques points isolés). Ce constat, qui pourrait sembler surprenant à première vue, peut être expliqué par deux facteurs. Le premier est que la structure du lit n'est pas forcément la même pour les deux expériences. En effet, comme mentionné précédemment, il arrivait que les fils, sous la pression des particules, finissent par se toucher. Dans ces circonstances, la structure du lit devait être modifiée de façon à décoller les fils. Le deuxième facteur, dont le rôle est peut-être plus significatif, concerne la diminution des points d'entrée de liquide. En effet, en passant du distributeur complet au distributeur en croix, le nombre d'entrées passe de 24 à 5 tandis que les vitesses superficielles du liquide restent les mêmes. Ainsi, la vitesse par entrée est augmentée de façon considérable ce qui peut, au moment où le liquide entre en contact avec le solide, favoriser la dispersion radiale des filets.

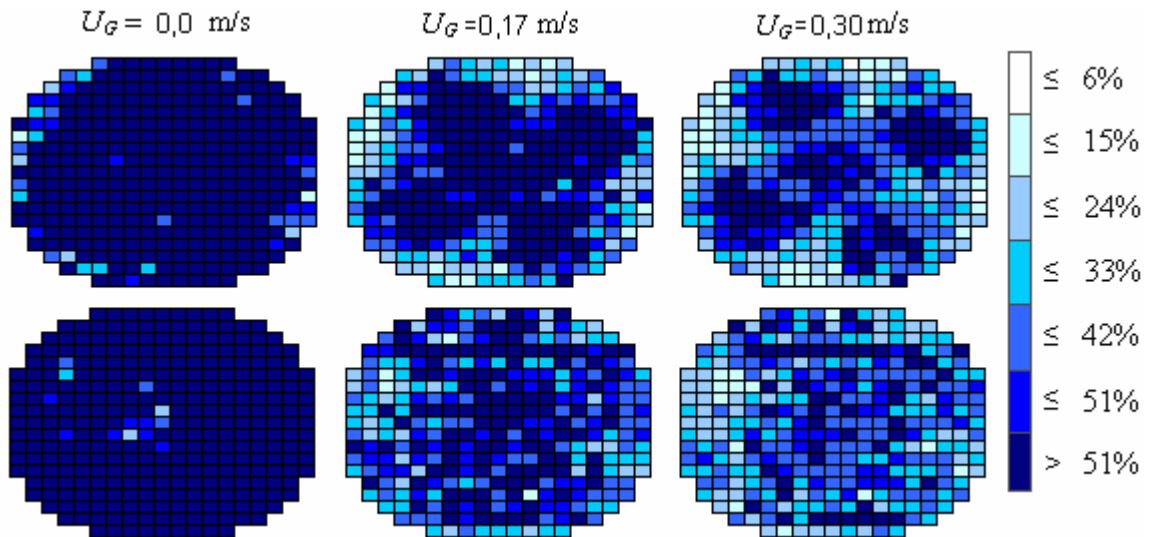


Figure 3-35 Distributeur en croix : Images obtenues pour un lit de particules en PE à $U_L = 0.0082$ m/s pour différents débits de gaz.

Enfin, les images obtenues avec le distributeur en croix montrent ce qui pourrait être interprété, par rapport aux extrudés en alumine, comme une plus faible capacité des extrudés en polyéthylène à disperser radialement le liquide en absence de gaz. En effet, à débit de gaz nul, les images obtenues pour les extrudés en polyéthylène en utilisant le dispositif supérieur de tomographie à fils laissent apercevoir la distribution en croix imposé par le distributeur (Figure 3-36). Dans le cas des extrudés en alumine, ceci n'est observé ni pour le chargement sock ni pour les chargements denses. A noter que pour éviter des erreurs d'appréciation, pour chaque image de la Figure 3-36 les couleurs sont attribuées en fonction de la saturation de liquide moyenne mesurée pour l'image en question.

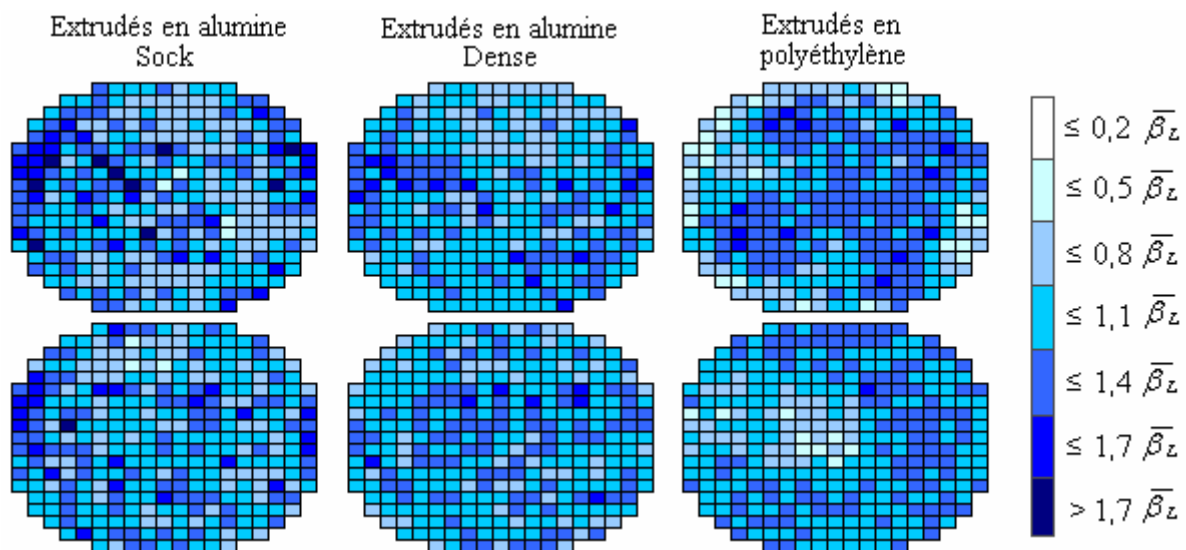


Figure 3-36 Distributeur en croix : Images obtenues pour les différents garnissages à débit de gaz nul.

3.5.3 Distributeur central

Bien que le comportement du liquide soit, du point de vue général, similaire à celui observé avec les autres garnissages (Figure 3-37), une comparaison avec ceux-ci reste délicate. En effet, comme c'était déjà le cas (bien que dans une moindre mesure) avec les distributeurs précédents, la force du jet d'entrée de liquide perturbe fortement les premiers couches du garnissage qui ne peuvent plus être protégés (comme c'était le cas avec les extrudés en alumine dont la rigidité et la masse volumique des particules étaient supérieures) par les particules « inertes », ces dernières finissant par être enfouis sous les particules en polyéthylène de faible masse volumique. Ainsi, la structure du lit au début de chaque expérience est modifiée (surtout lors des expériences à fort de débit de liquide) et l'influence de cette modification sur la distribution du liquide est difficilement maîtrisable. Les conditions d'entrée du liquide dans le réacteur ne sont donc pas les mêmes que pour les extrudés en alumine ce qui, rajouté aux imprécisions liées aux mesures avec des particules en polyéthylène, rend hasardeuse toute comparaison. Comme preuve, la différence des écarts types supérieur et inférieur des saturations de liquide mesurées avec la tomographie à fils aux différents débits ne peut plus être tracée en fonction de U_L/U_G (comme c'était le cas avec les extrudés en alumine), car son comportement vis-à-vis du débit de gaz semble dépendre du débit de liquide. Cette dépendance ne peut pas être interprétée comme étant un phénomène physique réel mais plutôt le résultat des difficultés rencontrées lors des mesures.

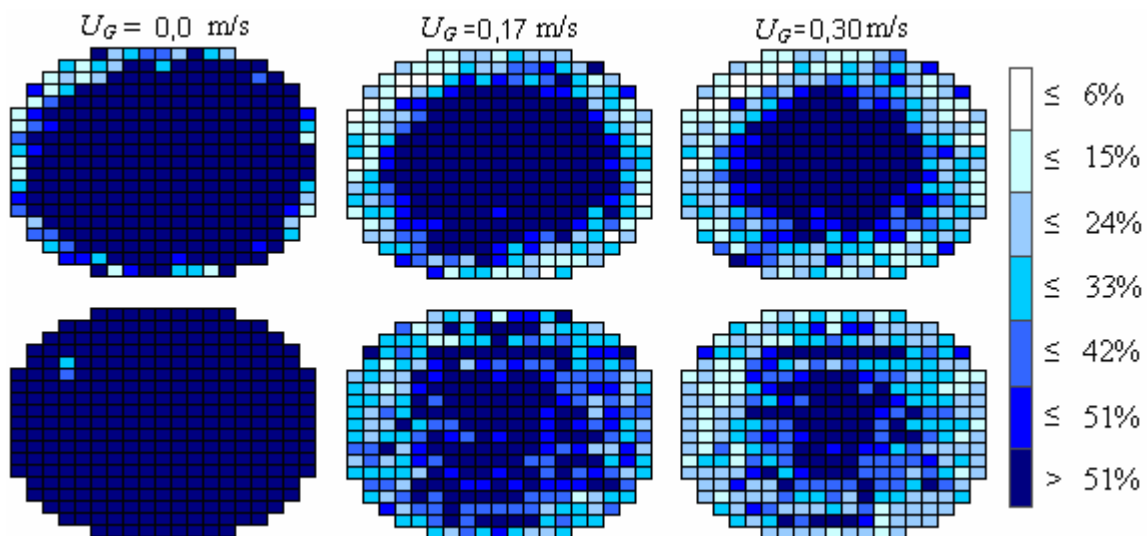


Figure 3-37 Distributeur central : Images obtenus pour un lit de particules en PE à $U_L = 0,0082$ m/s pour différents débits de gaz.

3.6 Conclusions

Trois techniques de mesure ont été proposées pour étudier la distribution du liquide dans un lit fixe fonctionnant en régime ruisselant : de nombreuses thermistances, un collecteur de liquide et deux systèmes de tomographie à fils. Malgré les efforts réalisés autour de sa mise au point, la technique des thermistances n'a pas donné les résultats attendus. En effet, à fur et à mesure des expériences les thermistances tombaient en panne les unes après les autres au point que, pour la première mesure réalisée avec le chargement sock, presque 50% des thermistances étaient hors service. Cette technique a permis d'avoir un aperçu concernant l'influence du gaz sur la distribution de liquide et de se faire une idée à propos de la maldistribution à l'échelle des particules (en termes de vitesses interstitielles). Bien qu'intéressants, ces résultats restent cependant très marginaux en tenant compte du volume de travail nécessaire pour la mise au point de la technique. En ce qui concerne le collecteur du liquide et la tomographie à fils, les résultats ont été assez satisfaisants et confirment cette dernière comme une technique intéressante pour l'étude de la distribution du liquide dans les lits fixes.

Au niveau des résultats proprement dits, l'utilisation des différents types de chargements et les trois configurations de distribution utilisées (trois plateaux perforés) ont permis de réaliser des constats intéressants. Pour les conditions opératoires étudiées et notamment avec le type de distributeur de liquide utilisé, ces observations mènent aux conclusions suivantes :

- En termes généraux, le chargement sock semble disperser mieux le liquide dans la direction radiale. Ce constat est d'autant plus marqué que le débit de gaz est important (comme ce serait le cas pour des procédés industriels). Ceci dit, si la distribution du liquide en tête du réacteur est de bonne qualité, le chargement dense permettra d'atteindre, en termes hydrodynamiques, des performances supérieures à celles du chargement sock car le liquide respectera plus facilement la distribution initiale imposée.
- L'augmentation du débit de gaz n'améliore pas forcément la distribution du liquide au sein du réacteur. En effet, l'effet du gaz semble se limiter à obliger le liquide à respecter, pendant une distance supérieure au diamètre du lit, la distribution imposée en tête de colonne. Ainsi, si une bonne distribution est imposée en tête, le gaz améliorera la distribution du liquide au sein du lit. Par contre, si c'est une mauvaise distribution qui est imposée, l'augmentation du débit de gaz ne fera que l'empirer.
- Bien que simple à mettre en œuvre, le collecteur de liquide présente certaines limitations. En effet, au-delà du fait que ses mesures se limitent à la sortie du réacteur,

lorsque le gaz s'écoule par des chemins préférentiels sont, par définition, faiblement fournis en liquide, il peut accélérer de façon considérable ce dernier. Ce comportement, qui semble être favorisé par une mauvaise distribution du liquide en tête du réacteur, a comme conséquence que des zones pauvres en liquide mais dans lesquelles celui-ci s'écoule, par effet du gaz, à haute vitesse, donneront des débits de sortie comparables à celles de zones bien irriguées dont la vitesse du liquide est faible. Les résultats ainsi obtenus afficheront donc, une fausse impression de bonne distribution et ceci d'autant plus que le débit de gaz est fort.

Enfin, une étude concernant des particules hydrophobes en polyéthylène a été réalisée. Les conclusions de cette étude sont à prendre avec des précautions, suite à des problèmes liés au fonctionnement avec ce type de particules dont la masse volumique est inférieure à celle de l'eau et dont la rigidité est limitée. L'utilisation de ce type de garnissage a montré cependant l'intérêt d'utiliser la tomographie à fils avec des particules non poreuses pour lesquelles des grandeurs telle que la saturation de liquide totale peuvent être estimées de façon adéquate. La mesure de cette grandeur a montré par ailleurs que, comme il avait été proposé par divers auteurs, son évolution peut être exprimée de façon convenable en fonction du paramètre χ de Lockhart et Martinelli. L'utilisation de ces particules a montré aussi que, contrairement aux extrudés en alumine, l'indice de maldistribution mesuré avec le collecteur était fortement influencé par le débit de liquide à l'entrée du réacteur. Ce comportement a été interprété comme une plus forte tendance des extrudés hydrophobes à favoriser la formation des chemins préférentiels.

4 Etude de la maldistribution du liquide en régime transitoire

4.1 Introduction¹

Dans ce chapitre, on présente l'étude d'un trickle-bed fonctionnant en régime pulsé, à proximité de la zone de transition avec le régime ruisselant. L'opération des trickle-beds en régime pulsé peut être intéressante car ce régime à haute interaction est caractérisé par une diminution de la dispersion axiale, une augmentation globale des transferts de matière et de chaleur et un mouillage plus efficace du solide catalytique (Rao et Drinkenburg, 1985). Il est important de remarquer aussi que, comme mentionné au chapitre 1.2, dans la pratique industrielle de nombreux trickle-beds fonctionnent quelque part aux alentours de la zone de transition entre les régimes ruisselant et pulsé.

La plupart des études concernant le régime pulsé ont été réalisées dans des réacteurs pour lesquels le rapport D_c/d_p est faible (voir Tableau 4-1). Dans ces conditions les pulsations, limitées par le diamètre de la colonne, occupent la totalité de la section passante du réacteur. Pour des réacteurs de plus grande taille, ceci peut ne pas être le cas, et au moins au voisinage de la transition, les régimes ruisselant et pulsé peuvent coexister à l'intérieur du réacteur. Le fonctionnement d'une unité dans ces conditions pourrait entraîner des conséquences en termes de rendement (zones pénalisés par un faible transfert de matière) et de sécurité (formation de points chauds dans les zones pauvrement irriguées) qui viendraient affecter le fonctionnement optimal du réacteur.

L'étude présentée dans ce chapitre est basée sur le suivi de l'évolution des saturations de liquide locales en fonction du temps. Pour avoir accès à ces données, le dispositif inférieur (à 0,96 m du distributeur) de tomographie à fils est utilisé. Etant donné la vitesse à laquelle les saturations de liquide évoluent dès lors que le régime ruisselant est dépassé, l'acquisition des données telle qu'elle avait été effectuée au cours des expériences réalisées en régime stationnaire n'est plus adaptée. Ce chapitre commencera donc par présenter la façon dont l'acquisition des données est réalisée, il abordera ensuite les mesures expérimentales des fréquences de pulsation en fonction des débits et finira avec une étude concernant l'influence de la distribution initiale sur le régime d'écoulement présent dans le réacteur.

¹ Ce chapitre a fait l'objet d'une communication au 8^{ème} congrès international sur le génie des réacteurs gaz-liquide et gaz-liquide-solide, (GLS 8, new Delhi, Inde, 16-19 décembre 2007), communication publiée dans la revue Chemical Engineering Science :

Llamas, J.D., F. Lesage, G. Wild (2007) "Local liquid saturation measurements inside a trickle bed reactor operating near the transition between pulsing and trickling flow." Chemical Engineering Science 62 (24): 7225 – 7232

4.2 Acquisition des données

A la différence du système de tomographie à fils développé par Prasser et coll. (1998) pour étudier l'hydrodynamique des colonnes à bulles, le dispositif utilisé pour cet étude a été conçu principalement pour avoir accès à des distributions de liquide en régime stationnaire. En effet, en utilisant un amplificateur opérationnel pour chacun des fils récepteurs, le système développé par Prasser et coll. (1998) est capable de réaliser une lecture simultanée de tous ces fils pour atteindre des fréquences d'acquisition supérieures à 1000 Hz. Le système présenté ici par contre, utilise un seul amplificateur opérationnel (et un circuit de multiplexage) pour tous les fils récepteurs. De ce fait, seul un point de croisement est mesuré à la fois et environ 10 s sont nécessaires pour réaliser un balayage complet sur toute la section transversale du réacteur (mesure successive de plus de 300 points de croisement). Pour être en mesure de suivre l'évolution des saturations locales de liquide en régime transitoire, la procédure d'acquisition est légèrement modifiée. Ainsi, pour chaque point de croisement, de nombreuses mesures (environ 20000) sont réalisées avant de passer au point de croisement suivant. De cette façon le temps consommé par le circuit de multiplexage pour passer d'un point de croisement à l'autre est économisé et, même s'il n'est pas possible de mesurer de façon simultanée tous les points de croisement, des fréquences d'acquisition de l'ordre de 130 Hz sont atteintes. Un des principaux inconvénients de ce mode de fonctionnement (mis à part la non simultanété des mesures) concerne le temps d'acquisition. En effet, si 20000 mesures sont effectuées pour chaque point de croisement, environ 13 h sont nécessaires pour compléter la mesure des 313 points. Quand il s'agit d'observer des comportements locaux sur toute la section transversale du réacteur, seulement 78 points de croisement (1 point sur 4) sont considérés, afin que les expériences puissent être réalisées dans des temps raisonnables.

4.3 Caractéristiques générales des signaux mesurés

Les expériences ont été réalisées pour un lit de billes de verre et un lit d'extrudés poreux chargés en « sock ». Pour le chargement dense des extrudés en alumine et les extrudés en polyéthylène, les limitations du dispositif expérimental en termes de pertes de charge ne permettent pas d'atteindre le régime pulsé. Sauf indication du contraire, toutes les expériences sont réalisées avec un plateau perforé à 24 entrées de liquide (présenté dans la Figure 2-3 sous le nom de distributeur A). A la différence des expériences réalisées en régime stationnaire, des particules dites « inertes » (billes métalliques ou céramiques) ne sont pas utilisées, le garnissage étant donc en contact avec le plateau distributeur du liquide.

Des valeurs typiques de saturation de liquide (β_L) mesurées avec la tomographie à fils à l'intérieur d'un lit fixe fonctionnant en régime pulsé sont présentées sur la Figure 4-1. Sur la figure, les variations périodiques de la saturation de liquide propres au régime pulsé peuvent être observées. Comme l'avaient affirmé Blok et Drinkenburg (1982), la fréquence de ces variations n'est pas parfaitement stable. Cette instabilité devient plus importante dès lors que les débits de gaz et de liquide sont proches des limites du régime pulsé. En outre, des pulsations doubles comme celles reportées par Blok et Drinkenburg (1982) et Tsochatzidis et coll. (1995) peuvent aussi être observées.

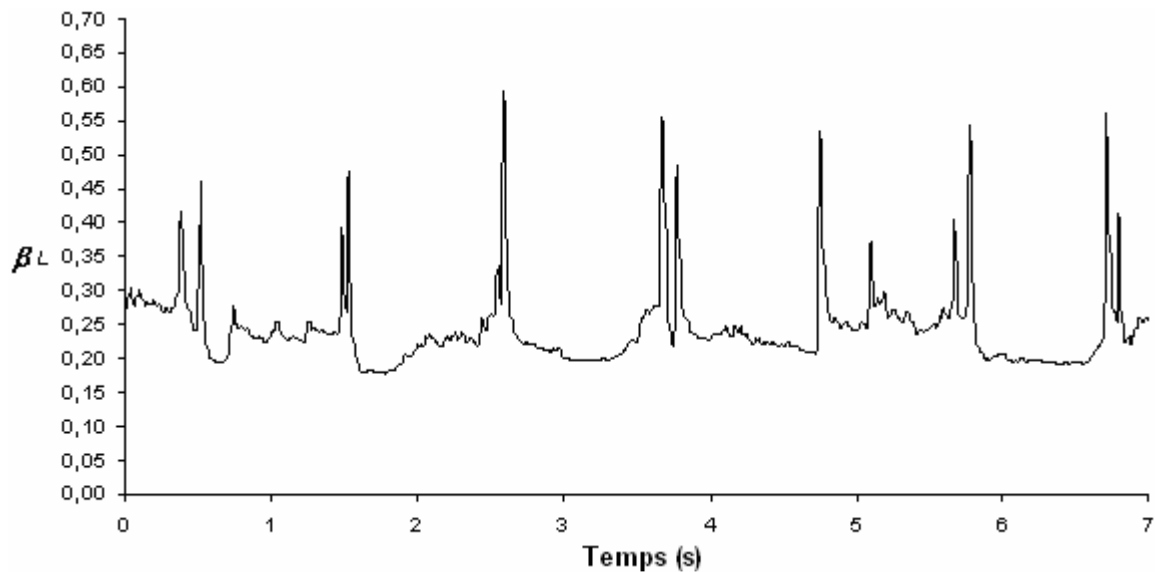


Figure 4-1 Signal obtenu à l'intérieur d'un lit fixe de billes de verre fonctionnant en régime pulsé ($U_L = 0,0099$ m/s et $U_G = 0,285$ m/s).

4.4 Fréquence des pulsations

De façon à tester la fiabilité de la méthode d'acquisition et assurer le caractère physique des données mesurées, des fréquences de pulsations ont été mesurées pour des débits de gaz et de liquide différents en utilisant, comme mentionné précédemment, des billes de verre et des extrudés poreux comme garnissages solides. Les mesures ont été réalisées avec le système inférieur de tomographie à fils pour 5 points de croisement différents repartis sur toute la section du réacteur. 10000 mesures, correspondant à un temps d'acquisition d'environ 75 s, ont été réalisées pour chaque point de croisement. Le spectre de puissance des signaux mesurés a été utilisé pour estimer la fréquence dominante des pulsations.

4.4.1 Billes de verre

Pour les billes de verre, les fréquences mesurées sont en accord avec les observations réalisées visuellement à travers la paroi du réacteur. Comme l'ont reporté différents auteurs (p.ex. Christensen et coll., 1986, Blok et Drinkenburg, 1982, Tsochatzidis et coll., 1995, Boelhouwer et coll., 2001), une augmentation de la fréquence des pulsations a été observée aussi bien avec l'augmentation du débit du gaz qu'avec celle du débit de liquide (Figure 4-2). Pour comprendre ceci, Blok et Drinkenburg (1982) et Rao et Drinkenburg (1983) proposent l'explication suivante : pour un débit de gaz donné, l'excès de liquide au-delà du débit de liquide critique (qui correspondrait au débit de liquide de transition entre les régimes ruisselant et pulsé) est transporté par les pulsations. Plus la quantité de liquide en excès est importante, plus le nombre de pulsations nécessaires pour le transporter doit être important. De façon similaire, pour un débit de liquide donné, l'augmentation du débit de gaz fait diminuer la rétention de liquide moyenne dans la colonne, produisant ainsi un excès supplémentaire de liquide dont le transport nécessite une augmentation du nombre de pulsations.

Tsochatzidis et Karabelas (1995) pour leur part ont observé que, au-delà d'une vitesse superficielle du liquide de 0,015 m/s, la fréquence des pulsations ne dépend que du débit de gaz. Cette affirmation n'a pas pu être vérifiée avec le dispositif expérimental utilisé. En effet, comme mentionné précédemment, pour des vitesses de liquide trop élevées ($U_L > 0,0112$ m/s), la fréquence des pulsations devient instable et aucune information ne peut être tirée des spectres de puissance. Ce type de comportement peut être interprété soit comme une limitation du système d'acquisition, soit comme le commencement du régime à bulles pour lequel des perturbations non périodiques de la saturation de liquide ont lieu. Il faut cependant remarquer que pour des raisons techniques liées aux pertes de charge maximales supportées par l'installation, la vitesse du gaz ne peut pas dépasser les 0,37 m/s ; pour des vitesses de gaz plus élevées, il n'est pas à exclure que l'affirmation de Tsochatzidis et Karabelas (1995) soit vérifiée pour notre système.

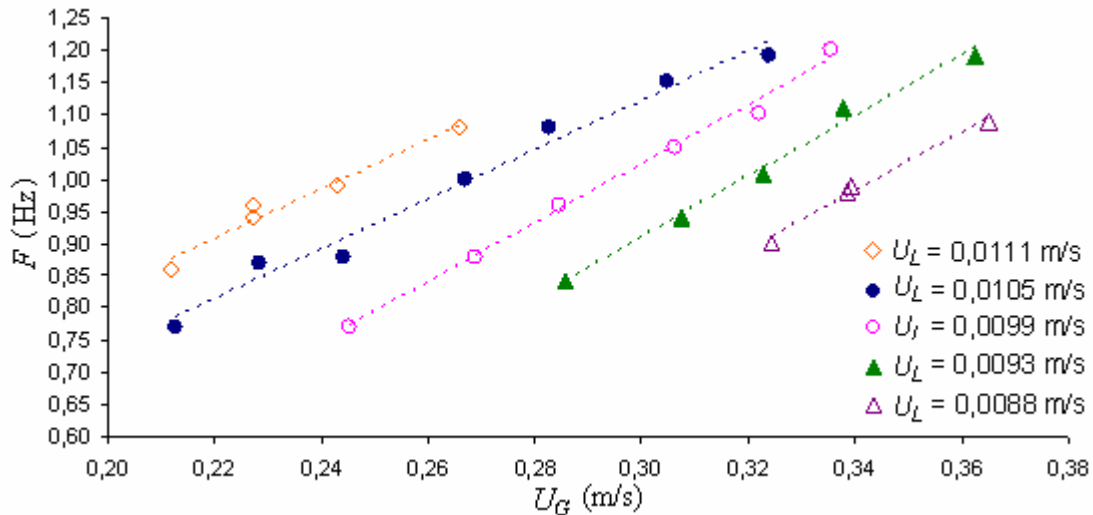


Figure 4-2 Influence des vitesses superficielles de gaz et de liquide sur la fréquence des pulsations dans un lit de billes de verre.

Pour essayer de prédire la fréquence des pulsations, différents auteurs ont proposé des corrélations permettant de la relier aux débits de gaz et de liquide utilisés. Quelques-unes de ces corrélations sont présentées dans le Tableau 4-1. Il est important de noter que les trois premières corrélations du tableau partent du même principe, à savoir que la fréquence de pulsation (F) est proportionnelle à la différence entre la vitesse interstitielle du liquide (v_L) et la vitesse interstitielle du liquide à la transition entre les régimes ruisselant et pulsé (v_{LT}). En effet, pour développer leur corrélation, Blok et Drinkenburg (1982) ont utilisé leurs résultats sur la transition des régimes et la rétention liquide moyenne pour exprimer la fréquence des pulsations en termes des vitesses superficielles de gaz et de liquide. La corrélation de Tsochatzidis et Karabelas (1995) est quant à elle issue du constat des auteurs selon lequel, pour des vitesses de liquide élevées, la fréquence des pulsations n'est dépendante que du débit de gaz. Cette corrélation est donc seulement valable pour des vitesses superficielles supérieures à 0,015 m/s.

Dans la Figure 4-3 les résultats expérimentaux sont comparés aux corrélations du Tableau 4-1 (mis à part celle présentée par Tsochatzidis et Karabelas qui n'est valable qu'au-delà de $U_L = 0,015$ m/s). Pour le calcul des vitesses linéaires, les corrélations de saturation de liquide de l'équipe de Drinkenburg ont été utilisées (Rao et Drinkenburg, 1983). Pour la détermination de la vitesse du liquide à la transition (v_{LT}), le simulateur des trickle-beds proposé par Larachi et Grandjean¹ a été utilisée.

¹ Feuille de calcul proposé sur le site <http://www.gch.ulaval.ca/bgrandjean/pbrsimul/pbrsimul.html>

Tableau 4-1 Diverses corrélation pour la prédiction de la fréquence des pulsations.

Auteur	Corrélation	Dispositif expérimental
Blok et Drinkenburg (1982)	$\frac{F}{d_p^{0.5}} = 1800 \frac{U_L U_G^{0.265}}{\varepsilon \cdot d_p^{0.5} S_e^{0.265}} - 58$	$D_c = 0,05, 0,1$ et $0,2$ m $d_p = 2,5$ et 4 mm Anneaux Raschig ¹
Christensen et coll. (1986) ²	$F = 82,43(v_L - v_{LT}) - 0,0143$	$D_p = 0,051 \times 0,457$ m (rectangulaire) $d_p = 3$ mm Billes de verre
Rao et Drinkenburg (1983) ⁷	$F = 110,86(v_L - v_{LT}) - 0,0381$	$D_c = 0,05$ m $d_p = 6$ et 3 mm Anneaux Raschig et billes de verre
Tsochatzidis et Karabelas (1995)	$F = 2,13 + 2,87U_G$	$D_c = 0,14$ m $d_p = 6$ mm Billes de verre
Burghardt et coll. (2004)	$F = 1 + \left[8,256 \times 10^{-3} \cdot \left(\frac{v_G \rho_G d}{\mu_G} \right)^{1,089} + 51,39 \right] v_L$	$D_c = 0,05$ m $d_p = 3$ mm Billes de verre

Une surestimation des fréquences est observée avec toutes les corrélations essayées, avec notamment une plus faible dépendance envers la vitesse du liquide pour les données expérimentales. Plusieurs détails sont cependant à considérer. Mis à part le fait que des corrélations ont été nécessaires pour estimer la vitesse de liquide à la transition et la vitesse linéaire du liquide, il faut préciser que la colonne utilisée par Christensen et coll. (1986) est bidimensionnelle tandis que les résultats présentés par Burghardt et coll. (2004), Blok et Drinkenburg (1982) et Rao et Drinkenburg (1983) avec des billes de verre (ces deux derniers auteurs ayant travaillé principalement avec des anneaux Raschig) ont été obtenus dans des réacteurs de petit diamètre ($D_C \leq 0,1$ m). Les écarts entre les différentes corrélations de la littérature et les données expérimentales mettent l'accent non seulement sur l'importance d'étudier les caractéristiques du régime pulsé dans des réacteurs de diamètre importants, mais aussi sur la nécessité de développer des corrélations plus générales, celles-ci semblant être, malgré les efforts des différents auteurs, assez dépendantes des conditions opératoires.

¹ Pour établir leur corrélation ils utilisent aussi les données (4 points) de Weekman et Myers (1964) obtenus avec des billes de verre de 4.7 mm dans une colonne d'environ 0.08 m.

² Corrélation déduit d'auprès les points représentés sur la figure 17 de l'article de Christensen et coll (1986).

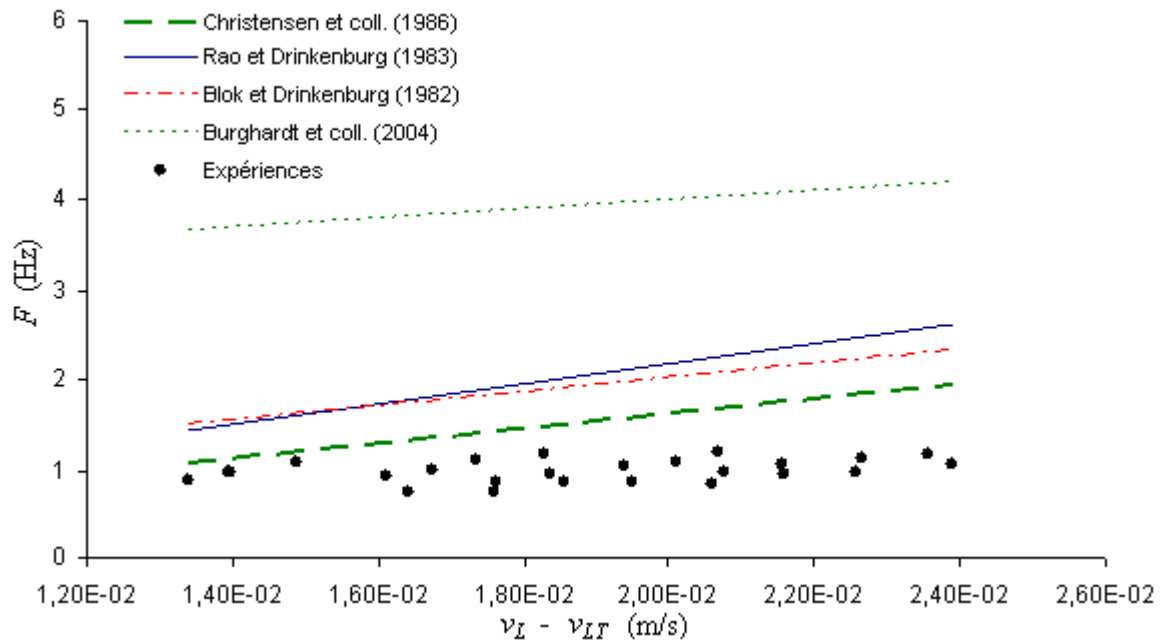


Figure 4-3 Fréquence des pulsations en fonction de la vitesse en excès.

4.4.2 Extrudés cylindriques poreux

Pour des raisons techniques liées aux pertes de charge, la mesure des fréquences de pulsation à l'intérieur du lit d'extrudés cylindriques a été limitée à un nombre réduit de points. Comme pour les billes de verre, une augmentation de la fréquence des pulsations a été observée avec les débits de gaz et de liquide. Cependant, les signaux mesurés ont montré que la transition entre les régimes ruisselant et pulsé a lieu à des débits de gaz et de liquide supérieurs pour les cylindres que pour les billes. Ce constat ressort clairement sur la Figure 4-5 où les fréquences de pulsations obtenues dans un lit d'extrudés cylindriques sont comparées à celles obtenues dans un lit de billes de verre à une vitesse superficielle de liquide similaire. La figure montre que, malgré une vitesse de liquide légèrement inférieure pour le lit de billes de verre, les pulsations non seulement démarrent à des vitesses de gaz inférieures mais aussi que leur fréquence est plus importante. Ceci est probablement la conséquence de l'augmentation de la porosité extragranulaire du lit qui passe de 0,39 avec les billes à 0,47 avec les extrudés (chargement sock) et qui implique que des débits plus importants sont nécessaires pour obstruer les canaux de passage.

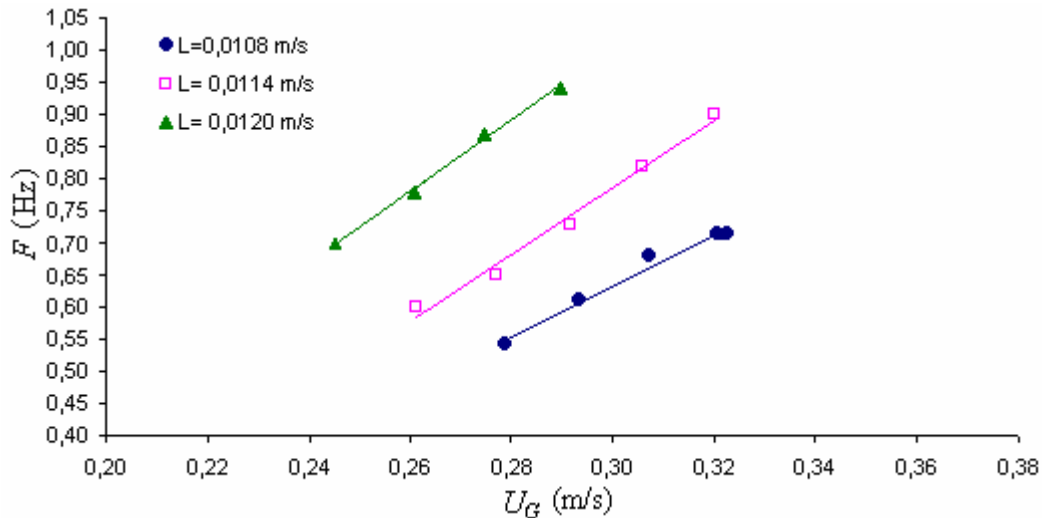


Figure 4-4 Fréquence de pulsations en fonction des vitesses superficielles de gaz et de liquide dans un lit d'extrudés cylindriques.

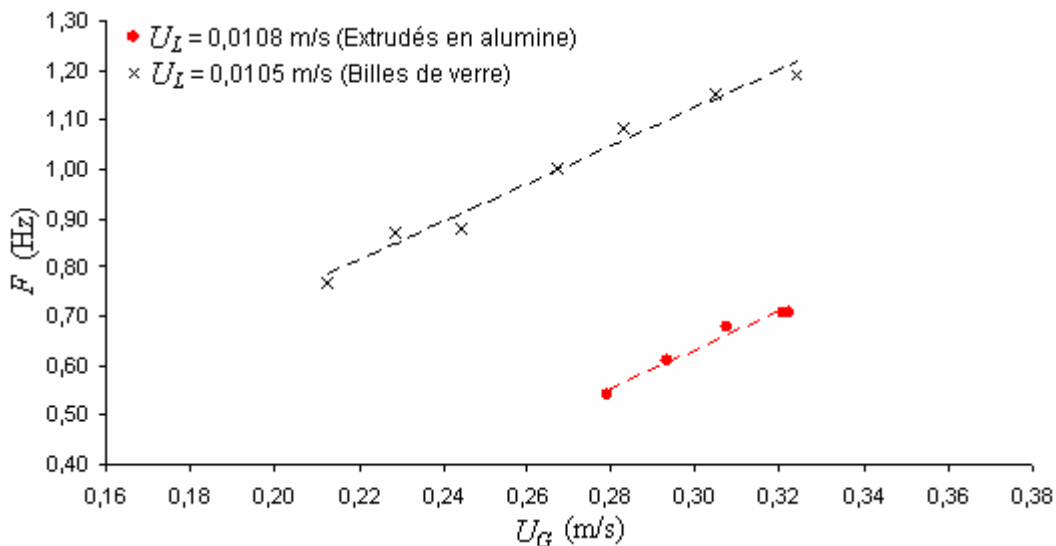


Figure 4-5 Comparaison entre les fréquences des pulsations observées pour un lit de billes de verre et un lit d'extrudés cylindriques.

4.5 Coexistence de régimes d'écoulement à l'intérieur d'un lit fixe

De façon à observer si les pulsations occupaient ou pas la totalité de la surface passante du réacteur, l'évolution de la saturation locale du liquide avec le temps a été suivie pour 78 points de croisement différents. Ces expériences ont été réalisées pour des débits de gaz et de liquide proches de la transition entre les régimes ruisselant et pulsé, aussi bien pour des billes de verre que pour des extrudés cylindriques poreux. Pour chacun des 78 points de croisement considérés, plus de 120 secondes de mesures à 130 Hz ont été réalisées.

L'identification des zones du réacteur pour lesquelles l'écoulement fluide se fait dans un régime à haute interaction commence par l'étude des taux de fluctuation (θ) des valeurs de saturation de liquide mesurés pour chaque point de croisement. A noter que cette grandeur n'est plus définie, comme au chapitre 3.4, par rapport aux mesures obtenus sur les différents points de croisement mais en considérant cette fois l'évolution de la saturation en fonction du temps pour un point de croisement donné. Ainsi, si n mesures ont été réalisées entre les temps t_0 et t_f pour le point de croisement i , le taux de fluctuation de ce point dans l'intervalle de temps considéré sera égal à :

$$\theta_i = \frac{\sigma^i}{\beta_L^i} = \frac{\sqrt{\frac{1}{n} \sum_{j=0}^n (\beta_L^i|_j - \overline{\beta_L^i})^2}}{\beta_L^i} \quad (4-1)$$

Même si la valeur de θ pour un point de croisement ne constitue pas à elle seule une preuve incontestable de l'existence d'un régime d'écoulement donné, il est raisonnable de penser que des taux de fluctuation élevés seront plutôt associés à des régimes à haute interaction pour lesquels les saturations liquides locales ne sont pas stables. Ensuite, pour compléter l'aperçu donné par les taux de fluctuation, le tracé de l'évolution de la saturation locale de liquide avec le temps permet de définir avec un peu plus de certitude le type de régime auquel chaque point de croisement est soumis. Enfin, l'analyse des spectres de puissance de chacun des 78 points de croisement permet de déterminer l'existence des fréquences dominantes caractéristiques des pulsations régulières.

Pour le lit de billes de verre, les expériences ont été réalisées à $U_L = 0,0105$ m/s et $U_G = 0,197$ m/s, ce qui correspond, selon les expériences réalisées pour déterminer les fréquences de pulsation, à la zone de transition entre les régimes ruisselant et pulsé. Les résultats obtenus avec cette expérience montrent que, même en utilisant un « bon » distributeur de liquide en tête de colonne (le distributeur utilisé dispose de 24 entrées de liquide ce qui correspond, pour un réacteur de 0.3 m de diamètre, à 340 entrées par m² de section droite du réacteur...) des régimes d'écoulement différents peuvent coexister dans le réacteur. En effet, quand le taux de fluctuation des données a été calculé pour chacun des 78 points de croisement, des valeurs allant de 3% (régime à faible interaction) à 14% (régime à forte interaction) ont été obtenues, avec une concentration des valeurs les plus faibles près de la périphérie droite du réacteur (Figure 4-6). L'existence de plusieurs régimes d'écoulement est ensuite confirmée par les tracés des saturations de liquide en fonction du temps. La Figure 4-7 par exemple, montre les saturations de liquide mesurées pour les points de croisement A, B et C de la Figure 4-6 pour lesquels les taux de fluctuation sont de 7, 5 et 9% respectivement. La figure montre que, tandis que le point C affiche les fortes variations de saturation de liquide propres aux régimes

à haute interaction, les points A et B sont, avec des saturations de liquide relativement stables, plutôt sous un régime d'écoulement ruisselant. Une étude de chacun des 78 points de croisement montre qu'environ 20% de la colonne se trouve dans la même situation que les points A et B (en régime à faible interaction). Pour les 80% restants, même si un écoulement à forte interaction est observé, l'analyse des spectres de puissance ne permet pas d'identifier une fréquence dominante qui puisse attester de l'existence d'un régime pulsé stable.

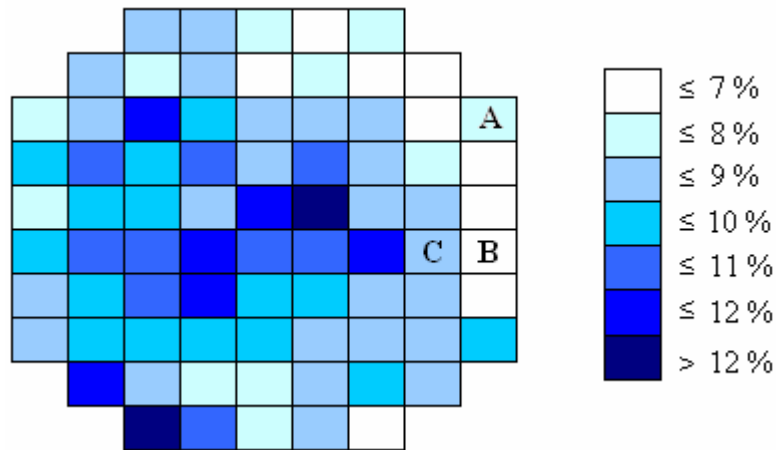


Figure 4-6 Distribution des taux de fluctuation sur une section transversale du réacteur pour un lit de billes de verre à $U_L = 0,0105$ m/s et $U_G = 0,197$ m/s.

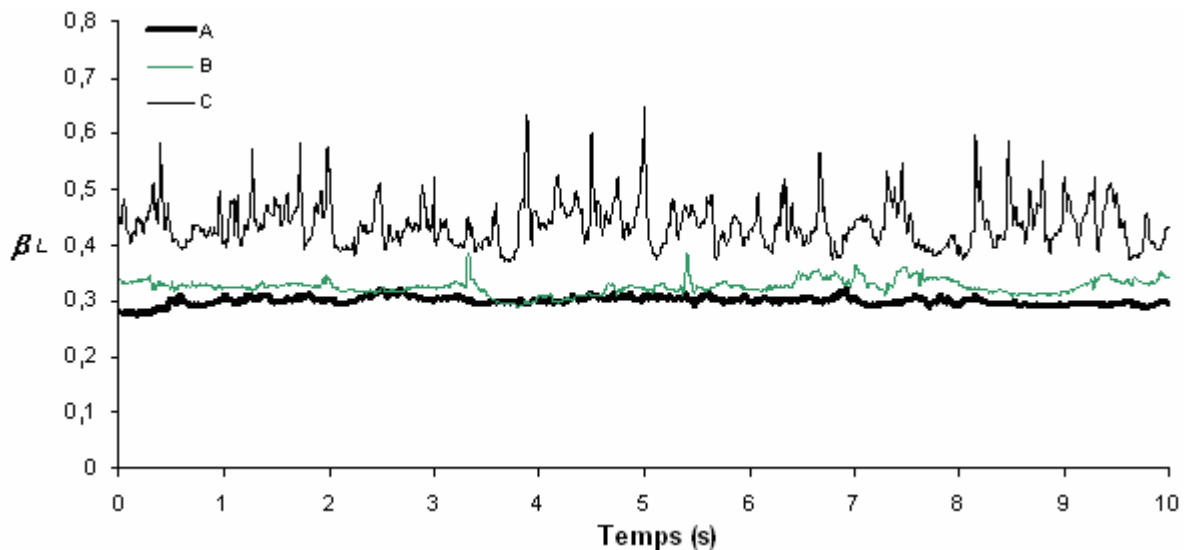


Figure 4-7 Evolution de la saturation de liquide en fonction du temps pour les points de croisement A, B et C de la Figure 4-6.

Les premiers indices permettant d'expliquer pourquoi les parties centrale et gauche du réacteur (centre et gauche étant définies selon la vue supérieur du réacteur comme dans la Figure 4-6) se trouvaient sous un régime d'écoulement à haute interaction tandis que la partie droite ne l'était pas, sont apparus en étudiant le distributeur de liquide. En effet, en divisant

celui-ci en 9 zones d'égale surface, il est possible de constater que la zone centrale, comparée aux autres, a plus d'entrées par m^2 de section droite et est donc plus irriguée. En ce qui concerne le côté gauche du réacteur par contre, seule la topologie du lit semble pouvoir expliquer l'apparition du régime à haute interaction observé dans cette zone.

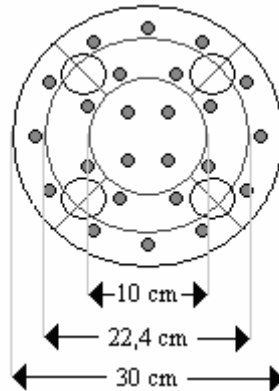


Figure 4-8 Distributeur de liquide divisé en 9 zones d'égale surface.

Pour vérifier l'hypothèse précédente et en même temps pour observer l'influence de la distribution initiale sur les régimes d'écoulement à l'intérieur du réacteur, le plateau perforé utilisé pour la distribution du liquide a été légèrement modifié en refermant 2 des 4 entrées centrales. La façon dont cette modification a été effectuée a montré tout l'intérêt de la tomographie à fils pour ce type d'étude. En effet, même si on avait vu que la conception du distributeur de liquide était à l'origine d'une sur-irrigation de la partie centrale du réacteur, il fallait ensuite décider lesquels des 4 orifices d'entrée il fallait obturer pour résoudre ce problème. La réponse à cette question est directement apportée par la tomographie à fils car ce sont les résultats obtenus avec cette technique (Figure 4-6) qui montrent que, dans cette configuration du réacteur, le côté gauche du réacteur est plus affecté par la sur-irrigation que le côté droit. Cette information a donc permis d'adapter le distributeur de liquide aux caractéristiques du lit en refermant les deux entrées « gauches » de la zone centrale du distributeur (Figure 4-9).

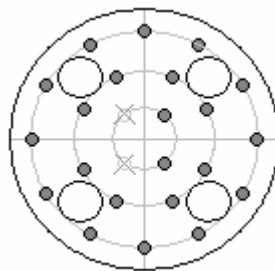


Figure 4-9 Distributeur de liquide modifié.

Les résultats obtenus en reproduisant l'expérience précédente avec le distributeur modifié aux mêmes vitesses superficielles de gaz et de liquide ($U_L = 0,0105$ m/s et $U_G = 0,197$ m/s) furent assez remarquables. En effet, non seulement les taux de fluctuation de tous les points de croisement se sont élevés au delà de 8,5% mais aussi, le tracé des signaux mesurés (Figure 4-10) et l'analyse des spectres de puissance (Figure 4-11) ont confirmé l'existence d'un régime pulsé régulier avec des pulsations à une fréquence de 0,75 Hz ayant lieu sur toute la section passante du réacteur à la hauteur étudiée.

Il est aussi important de remarquer que pour la vitesse superficielle de liquide considérée ($U_L = 0,0105$ m/s), quand le plateau perforé sans modification est utilisé, il est nécessaire d'aller jusqu'à une vitesse de gaz d'environ 0,213 m/s (augmentation de 8%) pour avoir des pulsations régulières dans la colonne. Cette augmentation de la vitesse de gaz se traduit forcément par une augmentation de la perte de charge d'environ 10% (de 22000 Pa/m à 24000 Pa/m). Au contraire, avec le distributeur modifié, un régime pulsé régulier avec les avantages que ce régime peut comporter, est obtenu sans augmentation significative de la vitesse superficielle de gaz ($U_G = 0,197$ m/s) ou de la perte de charge ($\Delta P/L = 22000$ Pa/m). Cette observation est assez surprenante car habituellement, l'apparition du régime pulsé est accompagnée par une augmentation de la perte de charge qui n'a pas eu lieu ici. Même si une explication rigoureuse de ce phénomène ne peut, pour l'instant, être donnée, il faut garder à l'esprit que la modification apportée au distributeur, en plus de développer le régime pulsé viens aussi redistribuer un régime à haute interaction qui était déjà présent sur 80% de la surface du réacteur à la hauteur de colonne étudiée.

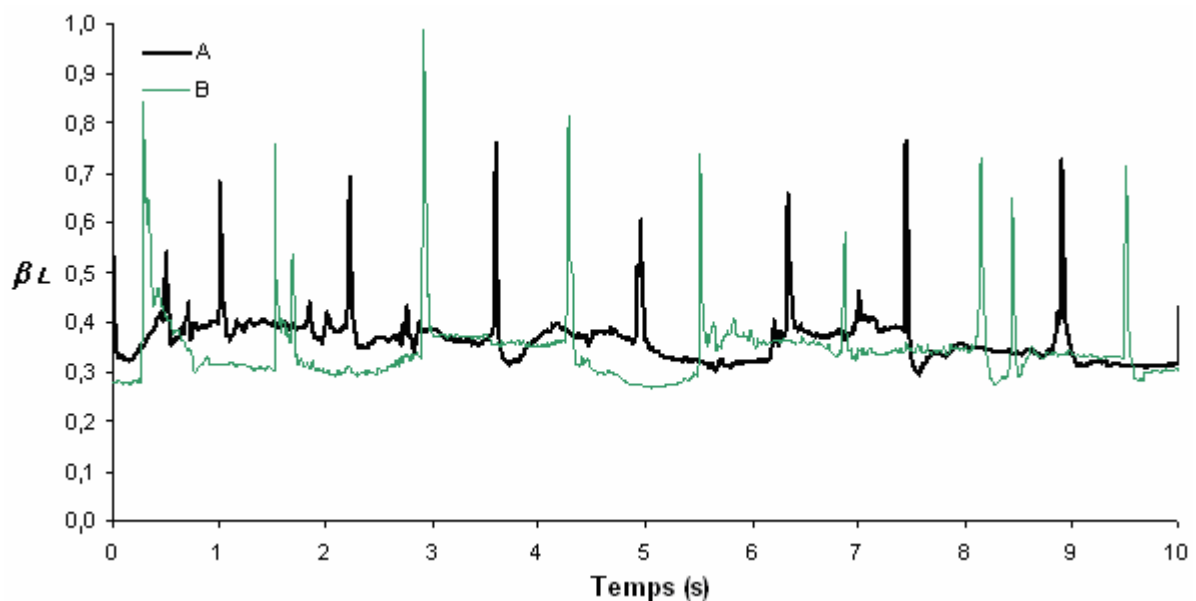


Figure 4-10 Evolution de la saturation de liquide avec le temps pour deux points de croisement typiques.

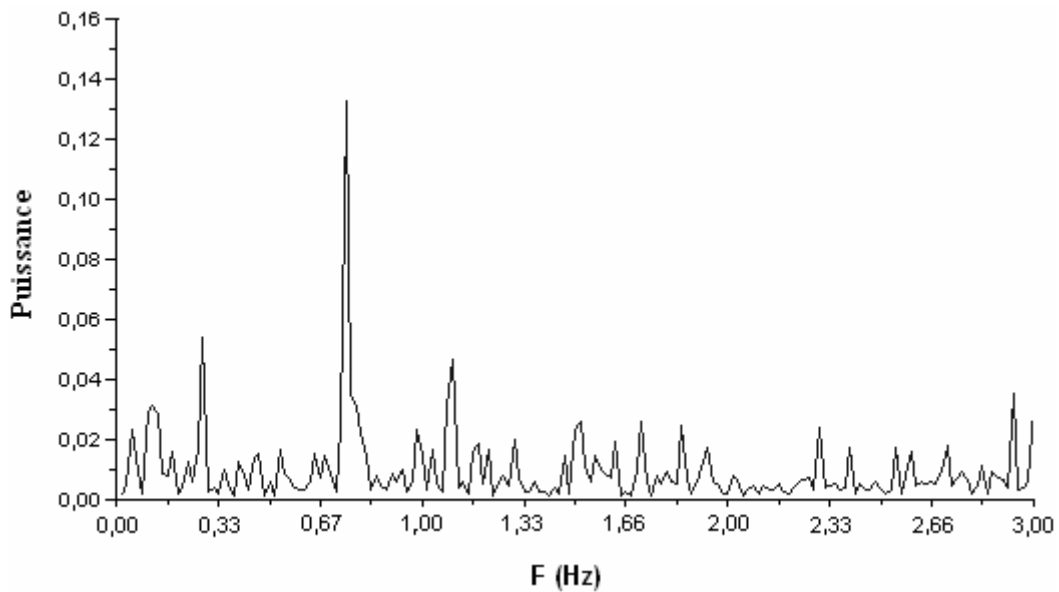


Figure 4-11 Spectre de puissance typique pour un point de croisement à $U_L = 0,0105$ m/s et $U_G = 0,197$ m/s en utilisant le distributeur modifié.

Le même type de mesures a été réalisé avec un lit d'extrudés cylindriques poreux à $U_L = 0,0114$ m/s et $U_G = 0,245$ m/s. Les résultats de cette expérience sont semblables à ceux obtenus avec les billes de verre, avec des zones à haute interaction et des zones à faible interaction coexistant dans le réacteur. Cette fois cependant, la zone à haute interaction semblait occuper non pas la partie centrale gauche du réacteur mais plutôt la centrale inférieure (Figure 4-12 et Figure 4-13), venant conforter ainsi l'idée d'une influence conjointe de la distribution initiale et de la topologie du garnissage sur le régime d'écoulement présente dans le réacteur.

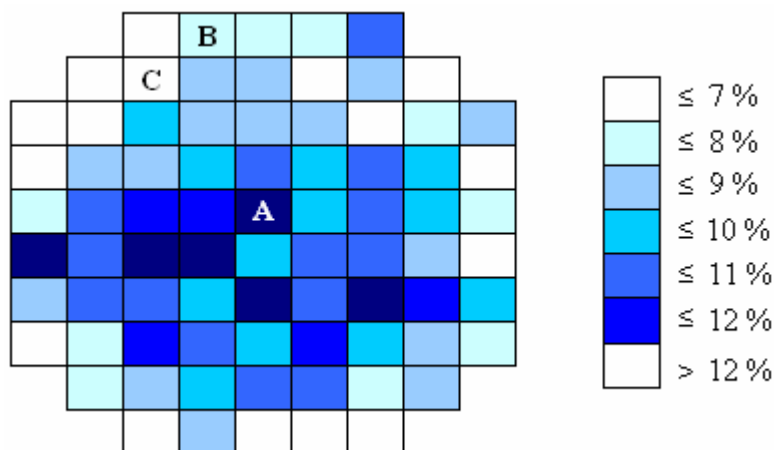


Figure 4-12 Distribution des taux de fluctuation sur une section transversal du réacteur pour un lit d'extrudés cylindriques à $U_L = 0,0114$ m/s et $U_G = 0,245$ m/s.

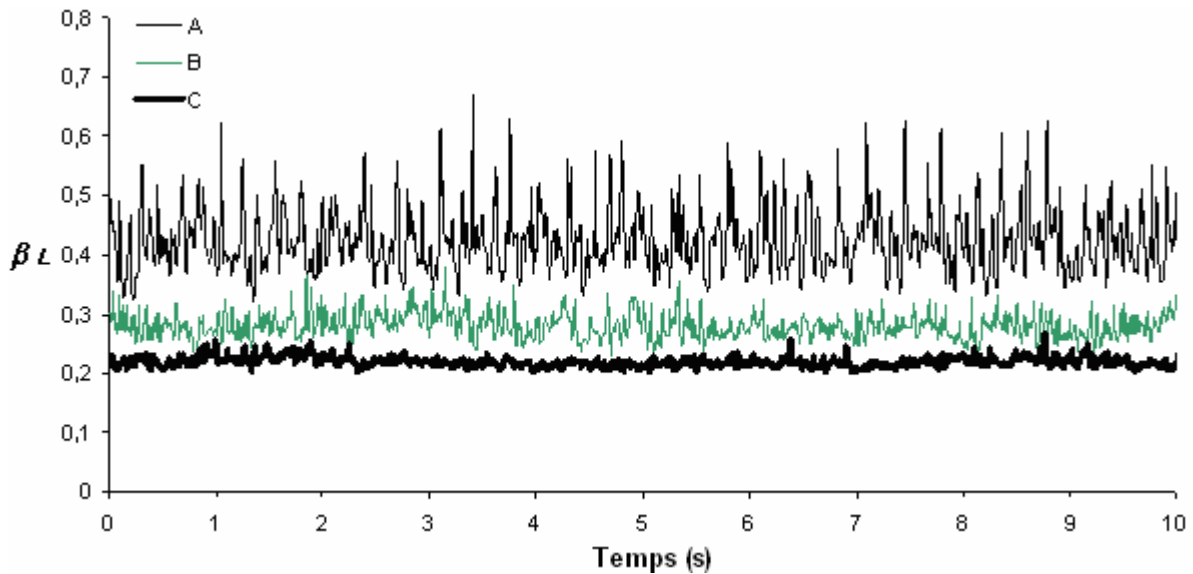


Figure 4-13 Evolution de la saturation de liquide avec le temps pour les points de croisement A, B et C de la Figure 4-12.

De la même façon que pour les billes de verre, l'expérience a été répétée avec les mêmes vitesses superficielles ($U_L = 0,0114$ m/s et $U_G = 0,245$ m/s) mais en modifiant légèrement le plateau perforé pour améliorer la distribution du liquide. Une fois de plus, ce sont les résultats obtenus avec la tomographie à fils qui permettent d'orienter les modifications apportées au distributeur de liquide. Dans le cas présent, ce sont les deux entrées « inférieures » de la zone centrale qui ont été obturées (Figure 4-14).

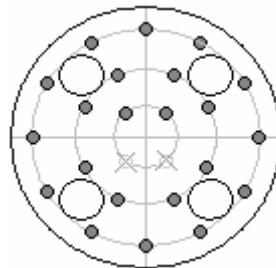


Figure 4-14 Plateau perforé modifié.

Là encore, l'amélioration de la distribution du liquide en tête de colonne permet d'étendre le régime de haute interaction sur toute la surface passante du réacteur (les taux de fluctuation se situent au delà de 9%) et, même si l'intensité n'est pas la même pour tous les points de croisement, un régime pulsé avec une fréquence de pulsations de 0,65 Hz se développe dans la colonne (Figure 4-15). Comme c'était déjà le cas avec les billes de verre, une petite modification du plateau perforé permet donc aux pulsations de se développer à des vitesses de gaz, et donc des pertes de charge, plus faibles.

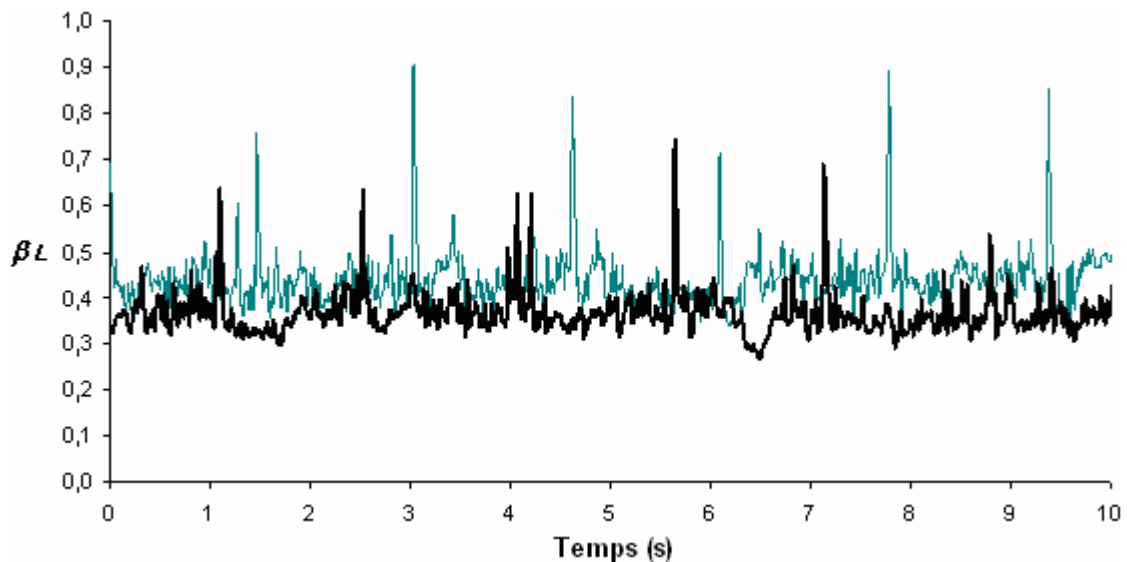


Figure 4-15 Evolution de la saturation du liquide avec le temps pour deux points de croisement.

4.6 Conclusions

En utilisant la tomographie à fils pour estimer la saturation locale de liquide à l'intérieur d'un lit fixe, des conditions pour lesquelles des régimes d'écoulement différents coexistent dans le réacteur ont été observées. La distribution de ces différents régimes semble être influencée principalement par la topologie du garnissage et, de façon assez remarquable, par la distribution initiale du liquide. L'information apportée par la technique de mesure a permis d'améliorer le plateau perforé utilisé pour la distribution de liquide en uniformisant le flux de liquide par zone et en l'adaptant à la topologie du garnissage présent à l'intérieur du réacteur. Le distributeur ainsi modifié a permis, bien qu'il ne soit pas parfaitement symétrique et qu'il ait moins d'entrées par section droite de réacteur que le distributeur original, de passer, sans augmentation notable de la perte de charge, d'une situation où 20% de la section du réacteur se trouvait dans un régime à faible interaction, à une situation où un régime pulsé stable occupait toute la section étudiée.

Les résultats obtenus au long de ce chapitre montrent non seulement l'étroite relation qui existe entre la distribution du liquide en tête de colonne et le régime d'écoulement mais, aussi l'importance d'étudier l'hydrodynamique des trickle-beds dans des conditions proches de la transition (entre les régimes ruisselant et pulsé) pour des colonnes de taille relativement importante de façon à obtenir un maximum d'outils permettant d'améliorer les performances des réacteurs industriels. Dans ces conditions, la tomographie à fils apparaît comme une technique très performante. En effet, elle permet non seulement d'étudier de façon simple, économique et sûre l'évolution des saturations locales de liquide avec le temps, mais aussi

d'obtenir des informations permettant d'adapter le distributeur de liquide à la topologie du garnissage.

5 Introduction aux études de simulation numérique

5.1 Introduction

Ce chapitre s'intéressera à la comparaison entre certains des résultats obtenus expérimentalement grâce à la tomographie à fils et des simulations numériques. L'objectif de ce chapitre n'est pas d'approfondir les modèles ou les techniques de simulation qui peuvent être employées, mais plutôt de tester la pertinence d'un des modèles proposés par la littérature (Jiang et coll., 2002, Boyer et coll., 2005) pour la prédiction de la qualité de la dispersion radiale et des rétentions de liquide observées dans les conditions opératoires étudiées ici. Finalement, les simulations sont utilisées pour vérifier la validité, du point de vue des modèles hydrodynamiques considérés, d'une hypothèse importante faite lors des études présentées aux chapitres précédents et qui est que le changement de porosité produit par l'utilisation des billes de verre autour des dispositifs de tomographie à fils lors des expériences réalisés avec des extrudés cylindriques (chargés à la chaussette), n'affecte pas de façon considérable la distribution du liquide.

5.2 Modélisation

La description des transferts dans le milieu poreux est effectuée en réalisant une prise de moyenne du comportement physique à l'échelle microscopique. Dans le cadre de ce travail, les simulations sont réalisées à l'aide du code de calcul CFDLIB développé par le Los Alamos National Laboratory. Ce dernier utilise, comme méthode de prise de moyenne, la formulation statistique moyennée proposée par Kashiwa et Rauenzahn (1994) qui donne comme résultat les équations de conservation suivantes :

- Conservation de masse

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_i u_i = \langle \rho_i \dot{\alpha}_i \rangle$$

où la variation de la masse de la phase i en un point (variation temporelle + terme convective) est exprimée comme étant égale à une source de masse due aux changements de phase ($\langle \rho_i \dot{\alpha}_i \rangle$).

- Conservation de la quantité de mouvement

$$\frac{\partial \rho_i \bar{u}_i}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_i \bar{u}_i \bar{u}_i = \langle \rho_i \dot{\alpha}_i \bar{u}_i \rangle - \nabla \cdot \langle \alpha_i \rho_i \bar{u}_i \bar{u}_i \rangle - \varepsilon_i \nabla P + \rho_i \bar{g} - \nabla \varepsilon_i (P_k^0 - P) + \nabla \cdot \langle \alpha_i \bar{\tau}_0 \rangle - \langle [(P_0 - P)\bar{I} + \bar{\tau}_0] \cdot \nabla \alpha_i \rangle$$

Cette équation exprime la variation de la quantité de mouvement en un point comme étant le résultat des contributions apportées par (dans l'ordre dans l'équation) les changements de phase, les fluctuations de vitesses (tenseur de Reynolds), les forces de pression, la pesanteur, la tension interfaciale gaz – liquide (ici, la pression capillaire entre le gaz et le liquide), le tenseur moyen des contraintes visqueuses et l'échange de quantité de mouvement entre les phases.

La résolution de ces équations nécessite l'utilisation de « lois de fermeture » permettant la description des termes inconnues par des modèles mathématiques. Dans le cas présent, le tenseur de Reynolds dû à la fluctuation des vitesses par rapport à leur valeur moyenne est négligé car on peut considérer que, aux vitesses de liquide étudiées, l'écoulement ne présente pas des caractéristiques de turbulence et parce que, dans le cadre des lit fixes, on peut considérer que la plupart des fluctuations sont amorties par le garnissage (Boyer et coll., 2005). En outre, comme conséquence de l'absence des changements de phase où de réaction chimique, les termes en $\dot{\alpha}_i$ sont nuls. Ainsi, seuls les termes concernant les interactions entre phases et la pression capillaire doivent être modélisés. Les modèles utilisés dans le cadre de cette étude sont présentés par la suite.

5.2.1 Lois de fermeture

Pour modéliser les termes manquants dans l'équation de la conservation de la quantité de mouvement, l'approche suivie par Boyer et coll. (2005) a été utilisée. Ainsi, le modèle de Holub et coll. (1992) a été retenu en tant que fermeture pour le terme d'interaction entre le solide et les fluides, tandis que le modèle de Attou et coll (1999) a été utilisé comme fermeture pour les échanges gaz – liquide. En ce qui concerne la pression capillaire, la corrélation proposée par Attou et Ferschneider (2000) a été choisie.

En termes généraux, le flux de quantité de mouvement entre les phases est modélisé par :

$$F_{D(i-j)} = \langle [(P_0 - P)\bar{I} + \bar{\tau}_0] \cdot \nabla \alpha_i \rangle = \varepsilon_j \varepsilon_i X_{iL} (u_i - u_j) \quad (5-1)$$

Avec u_i et ε_i la vitesse interstitielle et la fraction volumique de la phase i respectivement et X_{ij} le coefficient d'échange entre les phases i et j . D'après les modèles choisis, ces coefficients d'échange sont définis par :

$$X_{is} = 180 \frac{(1-\varepsilon)\mu_i}{\varepsilon_i^2 d_p^2} + 1.8 \frac{\rho_i}{\varepsilon_i^2 d_p} U_i \quad (5-II)$$

$$X_{GL} = 180 \frac{(1-\varepsilon_G)^{4/3} \mu_i}{\varepsilon d_p^2 \varepsilon_G (1-\varepsilon)^{1/3}} + 1.8 \frac{\rho_i}{\varepsilon d_p \varepsilon_G} \left(\frac{1-\varepsilon_G}{1-\varepsilon} \right)^{2/3} U_r \quad (5-III)$$

Avec ε la porosité extragranulaire du lit de façon à ce que $\varepsilon_s = 1 - \varepsilon$ et U_r la vitesse superficielle relative entre le gaz et le liquide tel que $U_r = \varepsilon_G (u_G - u_L)$.

D'autre part, la pression capillaire est définie selon la corrélation :

$$P_L = P_G - 2\sigma(1-\eta_{CE}) \left(\frac{\varepsilon_s}{1-\varepsilon_G} \right)^{1/3} \left(\frac{1}{d_p} + \frac{1}{d_{\min}} \right) F \left(\frac{\rho_G}{\rho_L} \right) \quad (5-IV)$$

Où σ est la tension superficielle et F et d_{\min} sont données par :

$$d_{\min} = \left(\sqrt{\frac{3}{\pi}} - 0.5 \right)^{1/2} d_p \quad (5-V)$$

$$F \left(\frac{\rho_G}{\rho_L} \right) = 1 + 88.1 \left(\frac{\rho_G}{\rho_L} \right) \quad (5-VI)$$

En ce qui concerne l'efficacité du mouillage η_{CE} , elle est calculée en utilisant la corrélation d'El-Hisnawi (1981) qui avait été présenté au chapitre 1.2 (équation 1-I) :

$$\eta_{CE} = 1.021 \left(\frac{\varepsilon_L}{1-\varepsilon_G} \right)^{0.224}$$

5.3 Géométrie du problème et maillage

L'objectif est de comparer les résultats des simulations à ceux obtenus expérimentalement avec la tomographie à fils à l'intérieur d'un lit de billes de verre alimenté par un distributeur à une entrée unique (distributeur central tel qu'il est défini au chapitre 3.3). Le réacteur à

simuler mesure donc 0,3 m de diamètre et 0,96 m de hauteur (ce qui correspond à l'endroit où se trouve le deuxième dispositif de tomographie à fils dans le réacteur expérimental). L'entrée de liquide, de 25 mm de diamètre, est placée au centre du plan de hauteur $z = 0$. Pour des questions de simplicité (bien que l'on puisse considérer ceci comme étant proche de la réalité), on considère que les 0,275 m restants sur ce plan servent d'entrée au gaz.

Pour les simulations, des coordonnées 2D axi-symétriques et des mailles rectangulaires ont été utilisées. La taille de ces mailles n'est cependant pas la même sur tout le réacteur et diffère aussi selon le type de simulation réalisée. On notera cependant deux constats qui sont valables aussi bien pour les simulations en liquide seul que pour la simulation de l'effet du changement de porosité. Le premier c'est que, l'entrée de liquide étant petite devant le diamètre de la colonne, il est raisonnable de mailler plus finement la zone comprise entre $0 \leq r \leq 12,5$ mm. Le deuxième, c'est que les simulations préliminaires ont montré que des phénomènes de dispersion importantes avaient lieu sur la partie haute du réacteur. Ces phénomènes ont incité à utiliser un maillage plus fin pour cette partie du réacteur (ici, entre $0 \leq z \leq 0,26$ m). Plus de détails concernant la taille des mailles en fonction de la position dans le réacteur seront donnés dans la partie consacrée aux résultats obtenus pour chacune des situations simulées (liquide seul et changement de la porosité).

5.4 Conditions aux limites et initialisation

Les conditions aux limites suivantes ont été imposées : Axe de symétrie sur le plan $r = 0$, condition de non glissement sur la paroi ($r = 0,15$ m) et gradient normal égal à zéro sur le plan de sortie $z = 0,96$ m (condition de sortie). De façon plus générale, la porosité extragranulaire est considérée constante et égale à 0,39 tout au long du lit (du moins pour les simulations en liquide seul) et pour des questions de simplicité, le modèle utilisé considère la masse volumique du gaz comme étant, elle aussi, constante. Pour simuler des conditions de prémouillage, à l'instant $t = 0$, le taux de liquide à l'intérieur du réacteur est fixé à 0,07. En outre, pour éviter des problèmes liés à la résolution des équations lorsque l'on veut simuler des conditions opératoires dans lesquelles le débit de gaz à l'entrée est nul, la vitesse de ce dernier est fixé à 0,005 m/s pour simuler des expériences réalisés en liquide seul. A noter finalement que sur le plan $z = 0$ au moment de l'entrée des fluides dans le réacteur, le liquide occupe la totalité de l'espace extragranulaire disponible entre $0 \leq r \leq 12,5$ mm mais il est complètement absent ailleurs.

5.5 Simulation des expériences réalisées en liquide seul

Les premières simulations réalisées visaient à déterminer si le modèle considéré était capable de prédire les résultats expérimentaux obtenus dans un lit de billes de verre à débit de gaz nul et pour des vitesses de liquide comprises entre 0,0008 et 0,0022 m/s. Deux critères de comparaison ont été étudiés : la saturation de liquide moyenne à deux hauteurs différentes (correspondant aux emplacements occupés par les dispositifs de tomographie à fils) et la surface de la colonne couverte par le liquide à ces deux mêmes hauteurs. A noter que les valeurs expérimentales sont issues des expériences préliminaires (dans un lit de billes de verre). Celles-ci ont été réalisées avec le premier dispositif de tomographie à fils conçu ($R_{WP} = 1,5$) pour lequel les interférences (« cross-talk ») sont plus importantes.

5.5.1 Maillage

Pour ce type de simulations, et comme conséquence des constats mentionnés au paragraphe 5.3, le réacteur est divisé en 4 zones de maillages différents (Figure 5-1). La taille de ces mailles est présentée dans le Tableau 5-1.

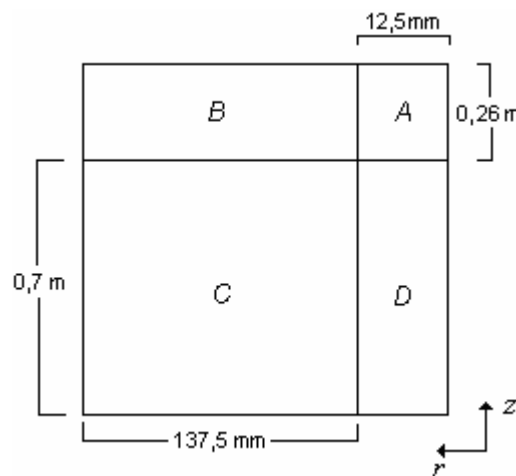


Figure 5-1 Zones du réacteur définies selon la taille du maillage.

Tableau 5-1 Caractéristiques des différentes zones de maillage

Zone	Direction radiale		Direction axiale	
	Nombre de mailles	Longueur par maille	Nombre de mailles	Longueur par maille
A	10	1,25 mm	65	4 mm
B	40	3,4375 mm	65	4 mm
C	40	3,4375 mm	100	7 mm
D	10	1,25 mm	100	7 mm

5.5.2 Résultats

5.5.2.1 Saturations de liquide à $z = 0$ et $z = 0,66$ m

Pour les deux hauteurs considérées, la saturation de liquide moyenne obtenue avec les simulations est estimée par :

$$\overline{\beta}_t = \frac{2\pi}{S} \int_0^R \beta(r) r dr \quad (5-VII)$$

Il est important de remarquer que la coordonnée z des simulations a son origine en bas du réacteur. Ainsi, $z = 0$ et $z = 0,63$ m correspondent respectivement à des distances de 0,96 m et 0,33 m par rapport au distributeur de liquide (ce qui correspond aux emplacements des deux dispositifs de tomographie à fils).

Les résultats obtenus pour $z = 0$ et $z = 0,63$ m sont présentés respectivement sur la Figure 5-2 et la Figure 5-3.

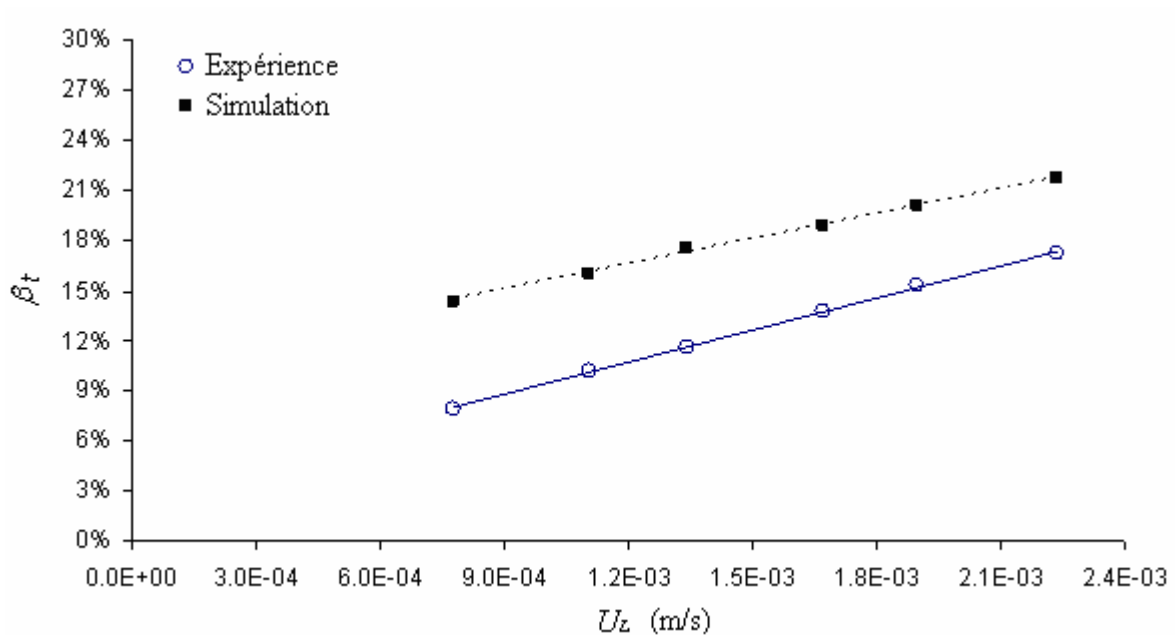


Figure 5-2 Comparaison entre les saturations de liquide obtenues par les expériences (dispositif supérieur de tomographie à fils) et par les simulations ($z = 0,63$ m).

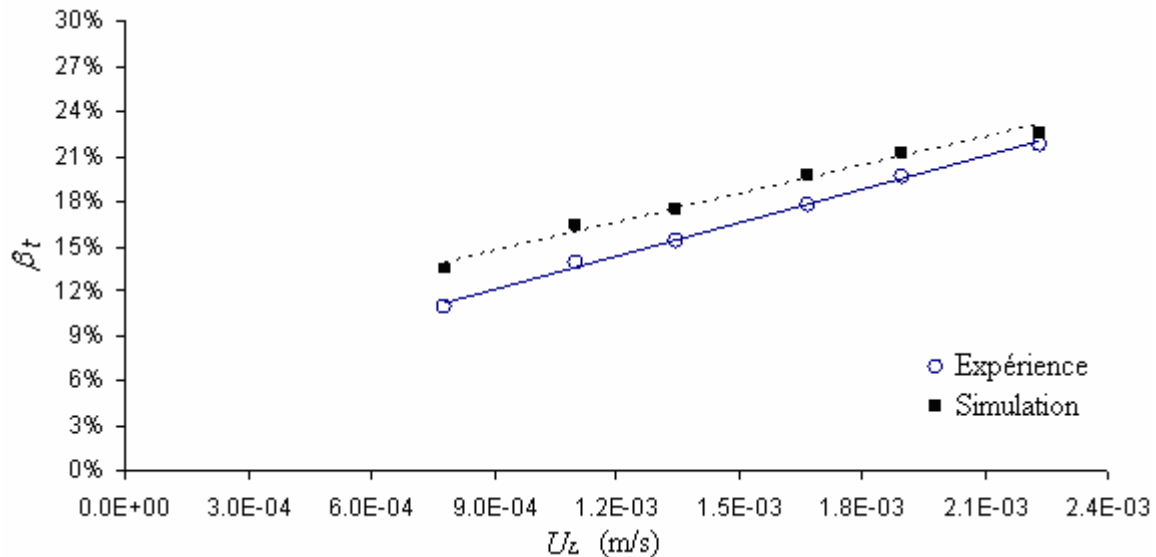


Figure 5-3 Comparaison entre les saturations de liquide obtenues par les expériences (dispositif inférieur de tomographie à fils) et par les simulations ($z = 0$ m).

On observe que l'augmentation de la saturation de liquide avec la vitesse superficielle du liquide est bien prédite par les simulations. Cependant, ces dernières surestiment de façon non négligeable les valeurs de saturation (surtout en tête de colonne). Cette surestimation est d'autant plus importante que l'on sait que le dispositif de tomographie à fils surestime lui-même les saturations de liquide réelles (ceci est particulièrement vrai pour le dispositif de tomographie utilisée, pour lequel $R_{WP} = 1,5$).

Un autre constat intéressant est le fait que, dans le cadre des simulations, la saturation moyenne de liquide ne semble pas évoluer de façon significative entre le haut et le bas de la colonne. Ceci permet aux valeurs expérimentales de « rattraper » celles prédites par les simulations en bas du réacteur où l'écart entre les deux devient faible (Figure 5-3).

5.5.2.2 Surface couverte par le liquide à $z = 0$ et $z = 0,66$ m

La deuxième approche utilisée pour comparer les résultats des expériences à ceux des simulations concerne la taille du jet de liquide et plus précisément, la surface du réacteur qui est couverte par le liquide à $z = 0$ et $z = 0,63$ m.

La Figure 5-4 est un exemple des résultats obtenus avec les simulations. Sur cette figure, la répartition du liquide qui entre dans la colonne à une vitesse superficielle de 0,0016 m/s peut être observée. On notera que la dispersion radiale du liquide est importante en tête de colonne mais ne varie que très peu après les premiers 0,3 m du réacteur. En ce qui concerne la détermination de la surface du réacteur qui est couverte par le liquide, il est évident qu'elle

peut être déterminée aisément pour n'importe quelle valeur de z avec des graphiques comme celui de la Figure 5-4.

La détermination de la surface mouillée est un peu plus délicate lorsque l'on s'intéresse aux résultats expérimentaux (Figure 5-5). En effet, la tomographie à fils mesure non seulement la saturation de liquide dynamique mais aussi la statique. Il faut donc commencer par se demander ce que l'on va considérer comme étant effectivement mouillé par l'écoulement fluide (à noter que sur la Figure 5-5 les couleurs sont déterminées par l'utilisateur après avoir répondu à cette question, la tomographie à fils ne renvoyant que des valeurs de conductance). Le deuxième inconvénient est que, dans le cadre des expériences, il est évident que le liquide ne s'écoulera pas en dessinant une circonférence parfaite comme c'est le cas dans les simulations. On doit donc estimer la surface mouillée à partir des images comme celle de la Figure 5-5.

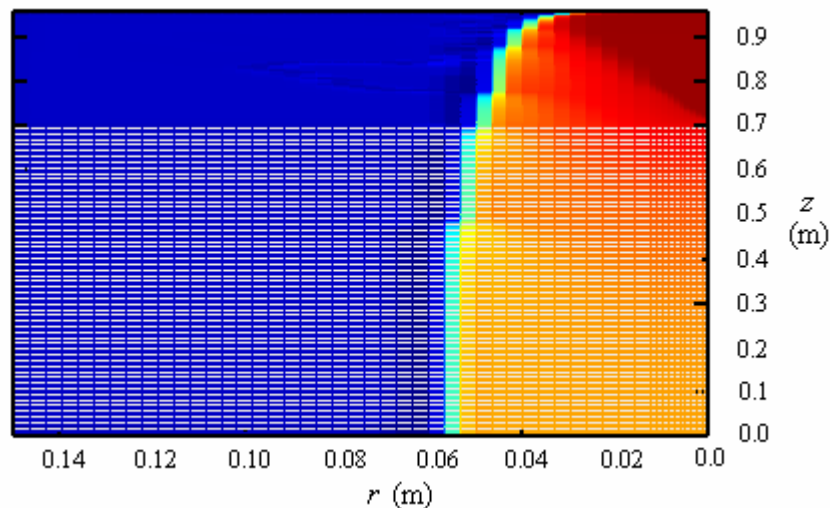


Figure 5-4 Résultat de la simulation pour $U_L = 0.0016$ m/s

La surface mouillée par l'écoulement fluide dans le cadre des expériences a donc été estimée comme suit : étant donné que l'on utilise un dispositif de tomographie à fils pour lequel les interférences du type « écoulement en anneau » font apparaître des valeurs de l'ordre de 10% à des points qui ne sont pas mouillés, cette valeur a été utilisée comme seuil de mouillage. Ainsi, seuls les points pour lesquels la saturation de liquide est supérieure à 10% seront considérés comme étant effectivement mouillés. Les points qui remplissent cette condition sont comptés et le chiffre obtenu est divisé par le nombre total de points de croisement étudiés (313 pour chaque dispositif de tomographie à fils). Le rapport ainsi obtenu est considéré comme étant le pourcentage de la surface qui est mouillée par l'écoulement de liquide

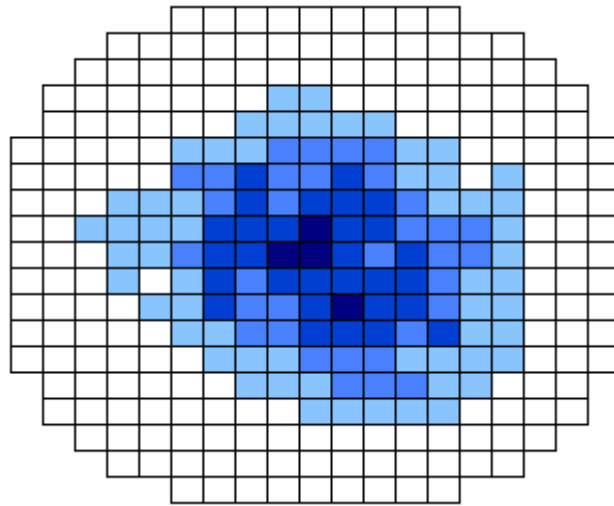


Figure 5-5 Résultat expérimental pour $U_L = 0,0016$ m/s et $z=0,63$ m

En suivant la démarche du paragraphe précédent, on a estimé la rayon du jet de liquide pour les deux hauteurs considérés en fonction du débit d'entrée. Les résultats obtenus expérimentalement sont comparés à ceux des simulations sur la Figure 5-6 pour $z = 0.63$ m et sur la Figure 5-7 pour $z = 0$.

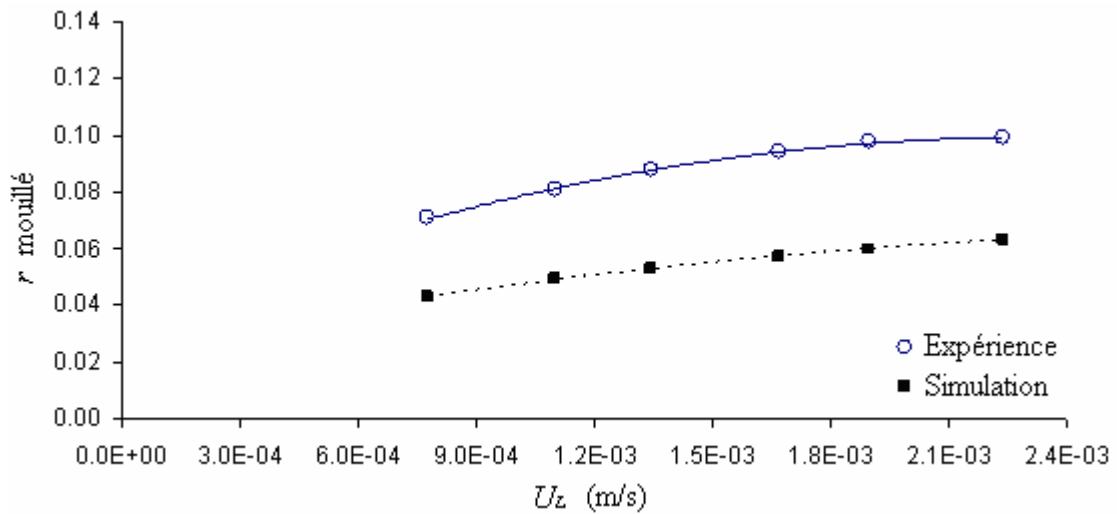


Figure 5-6 Rayon du jet de liquide à $z = 0.63$ m. Comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations.

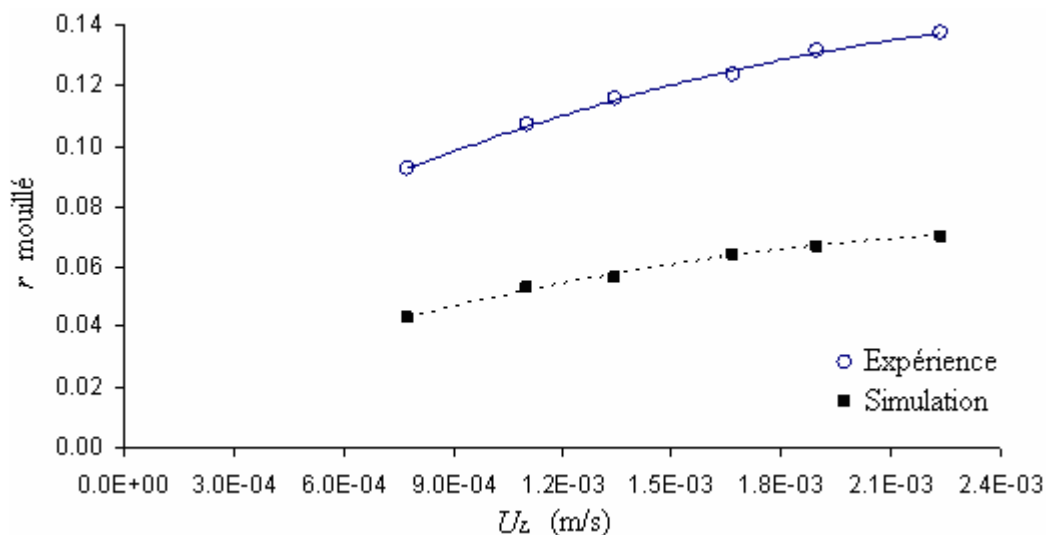


Figure 5-7 Rayon du jet de liquide à $z = 0$ m. Comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations.

On observe que, du point de vue qualitatif, les simulations arrivent à prédire correctement l'évolution de la taille du jet de liquide en fonction du débit de l'entrée. Quantitativement cependant, les résultats des simulations sous-estiment considérablement les observations expérimentales. On notera que, comme c'était déjà le cas avec les saturations de liquide (et comme on a pu l'observer sur la Figure 5-4), le rayon du jet prédit par les simulations n'évolue pas de façon considérable entre les deux positions axiales considérées.

En termes généraux, le même type de résultats est obtenu avec les deux comparaisons réalisées (saturation de liquide et taille du jet) : du point de vue qualitatif, les tendances sont bien prédites par la simulation alors que quantitativement, les valeurs obtenues grâce au modèle ne reflètent pas les observations expérimentales. Plusieurs points doivent cependant être remarqués. Le premier, c'est que, les simulations effectuées ici ne concernent plus une entrée uniforme de liquide comme c'était le cas des exemples présentés par Jiang et coll. (2002) mais à une seule entrée centrale. Comme l'avaient fait remarquer Boyer et coll. (2005), cette configuration est sensiblement différente de la précédente car, d'une part, on s'intéresse non seulement à la saturation de liquide mais aussi à la dispersion radiale, et d'autre part, elle donne lieu à des zones du réacteur où seulement l'un des deux fluides est présent. Dans ce cadre, il peut être important de rappeler que l'une des hypothèses faites par Attou et coll. (1999) pour le développement de leur modèle (en plus du coefficient d'interaction gaz – liquide) était que le lit catalytique était mouillé à 100%. Ceci n'est pas le cas du problème simulé ici. Par ailleurs, on notera aussi que, pour obtenir des résultats satisfaisants avec ce modèle pour une configuration similaire, Boyer et coll. (2005) avaient dû modifier l'expression de la pression capillaire en ajoutant un exposant au terme $(1 - \eta_{CE})$. Cette modification, dont les fondements physiques devaient, selon les auteurs mêmes, être

approfondis, n'a pas été prise en compte dans le cadre de ce travail, entre autres parce que les vitesses superficielles de liquide utilisées ici sont environ 10 fois supérieures à celles utilisées par Boyer et coll. (2005) et rien ne garantissait la validité de cette modification pour cette gamme de débits. Pour finir, on peut aussi faire remarquer que les techniques utilisées pour la simulation du problème peuvent être améliorées. Les simulations seraient plus précises si par exemple, un maillage mobile, plus fin à l'interface gaz – liquide avait été utilisé. Ce type de modifications était cependant hors du cadre de ce travail.

5.6 Simulation du changement de porosité à l'intérieur du lit

Lors des expériences avec les extrudés cylindriques en alumine, des billes de verre avaient été placées autour des systèmes de tomographie pour éviter les problèmes liés à l'utilisation de particules poreuses quand on s'intéresse à la mesure des conductances électriques. Cependant, lorsque les extrudés cylindriques étaient chargés selon la méthode « sock », le liquide était soumis à un changement de porosité lorsque il passait de la zone remplie de cylindres ($\varepsilon \approx 0,47$) à la zone remplie de billes ($\varepsilon \approx 0,40$). Étant donné que les billes n'occupaient qu'une hauteur de 25 mm, on a considéré que l'effet de ce changement de porosité devait être négligeable et c'était principalement pour essayer de valider cette hypothèse à la lumière d'un modèle hydrodynamique que les simulations numériques avaient été considérées. Au vu des résultats des simulations en liquide seul, on s'aperçoit que les résultats obtenus avec ce modèle seront, s'ils valident l'hypothèse, loin de pouvoir être considérés comme concluants. Cependant, la simulation pourrait permettre de mettre en cause les résultats expérimentaux obtenus si jamais l'hypothèse effectuée n'était pas validée par un modèle qui, comme celui-ci, semble sous-estimer la dispersion radiale.

5.6.1 Maillage

Six zones de maillage ont été considérées pour cette simulation (Figure 5-8). La taille des mailles est présentée au Tableau 5-2. A noter que la porosité varie elle aussi en fonction de zones. Ainsi, pour les zones A, B, E et F la porosité est de 0,47 tandis qu'elle est de 0,4 pour les zones B et C. Pour finir, on notera que, l'objectif n'étant pas de comparer avec les dispositif de tomographie à fils, seulement 0,624 m du réacteur (dans la direction de z) ont été simulés.

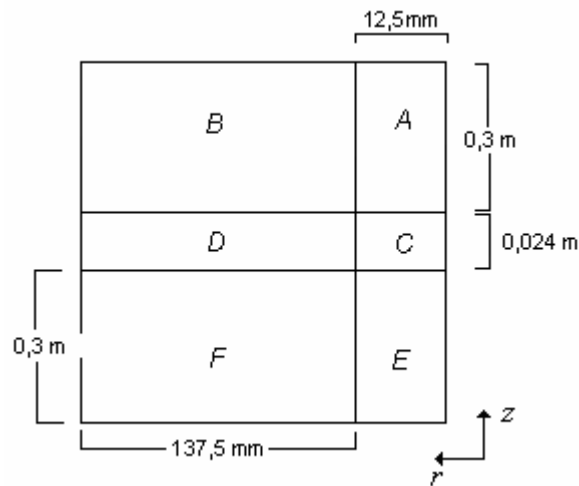


Figure 5-8 Zones du réacteur définies selon la taille du maillage.

Tableau 5-2 Caractéristiques des différentes zones de maillage

Zone	Direction radiale		Direction axiale	
	Nombre de mailles	Longueur par maille	Nombre de mailles	Longueur par maille
A	10	1,25 mm	60	5 mm
B	40	3,4375 mm	60	5 mm
C	10	1,25 mm	12	2 mm
D	40	3,4375 mm	12	2 mm
E	10	1,25 mm	50	6 mm
F	10	1,25 mm	50	6 mm

5.6.2 Résultats

La Figure 5-9 montre le contour du jet de liquide obtenu grâce à la simulation numérique. Comme on peut le remarquer, selon le modèle hydrodynamique utilisé, le changement de porosité qui a lieu à $z = 0,3$ m ne perturbe pas de façon significative la trajectoire du liquide. Bien qu'incapable de pouvoir valider l'hypothèse effectuée, le résultat de la simulation est réconfortant car il ne met pas en cause les résultats obtenus expérimentalement. Pour avoir plus des certitudes concernant l'hypothèse effectuée, le développement d'un nouveau modèle hydrodynamique décrivant mieux la dispersion radiale serait nécessaire.

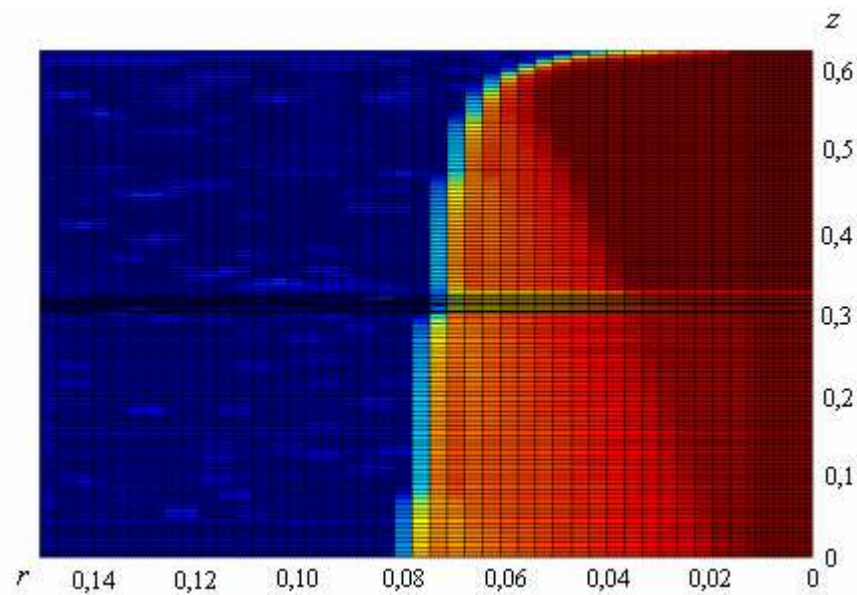


Figure 5-9 Résultat de la simulation numérique : $t = 1500$ s, $U_L = 0,004$ m/s et $U_G = 0,19$ m/s.

5.7 Conclusion

Des simulations numériques ont été réalisées en utilisant un modèle proposé par la littérature (Boyer et coll., 2005). La comparaison entre les résultats de ces simulations et les observations effectuées pour des expériences réalisées en absence d'écoulement gazeux montrent que le modèle utilisé ne semble pas complètement adapté à la prédiction des phénomènes de dispersion radiale, même si certains points de simulation, comme le maillage, demanderaient à être approfondis. On a ainsi observé que la taille de la zone mouillée prédite par les simulations était inférieure à celle déterminée expérimentalement tandis que les saturations de liquide étaient, quant à elles, surestimées. Par ailleurs, selon les résultats des simulations et contrairement à ce qui est observé expérimentalement, l'évolution des deux grandeurs étudiées est quasi nulle après les premiers centimètres du réacteur. On remarquera néanmoins que le modèle utilisé a été conçu principalement pour estimer la perte de charge et la saturation de liquide des trickle-beds dont la distribution initiale de liquide est uniforme. Dans ces conditions, le modèle a déjà donné des résultats satisfaisants (Jiang et coll., 2002). En outre, on remarquera que des améliorations, notamment en ce qui concerne le maillage, peuvent être apportées aux simulations du point de vue de la résolution numérique du problème. Ces améliorations sortaient du cadre de ce travail, dans lequel on a choisi de favoriser le temps de calcul nécessaire à la résolution des problèmes.

Enfin, le modèle a été utilisé pour essayer de valider l'une des hypothèses faites lors des mesures expérimentales. Malheureusement, même si le modèle hydrodynamique simulé ne met pas en cause les résultats expérimentaux, il ne permet pas non plus, à la lumière des

résultats obtenus pour la simulation des expériences réalisées en absence d'écoulement gazeux, une réelle validation.

Conclusions générales et perspectives

Conclusions

Le travail réalisé au cours de cette thèse avait comme objectif principal la mise au point de deux nouvelles techniques de mesure ainsi que leur application à l'étude de la maldistribution du liquide dans les lits fixes. Ces techniques sont : l'utilisation d'un grand nombre de thermistances et la tomographie à fils. Leur mise au point ainsi que leurs limitations ont été développées tout au long du chapitre 2.

En ce qui concerne les thermistances, elles devaient permettre d'étudier la maldistribution du liquide en termes des vitesses interstitielles de ce dernier. Malgré le temps investi dans sa mise au point, cette technique s'est malheureusement avérée très fragile et son application a été très limitée. Malgré ce bilan négatif en termes de moyens investis et de résultats obtenus, les thermistances ont permis d'observer une maldistribution à l'échelle local qui persiste même lorsque une bonne distribution initiale a été imposée en tête de colonne ; cette maldistribution locale a tendance à se développer lorsque le débit de gaz augmente. Cette observation, liée à celles qui ont été faites avec les autres techniques employées, conduit à penser que l'écoulement du gaz à travers le réacteur se fait en suivant des chemins préférentiels. Ainsi, lorsque le débit de gaz augmente, la vitesse du liquide aux endroits où celui-ci est présent, augmente. Ceci conduit à une uniformisation des débits à la sortie du réacteur sans que pour autant la distribution en termes de saturation du liquide soit modifiée de façon appréciable.

La tomographie à fils a quant à elle donné des résultats satisfaisants et a pu être utilisée pour l'étude des régimes ruisselant et pulsé. Les expériences en régime ruisselant étaient destinées à comparer les performances des deux types de chargements de catalyseur les plus utilisés dans l'industrie (chargement sock et chargement dense) en fonction de la distribution initial et les débits mis en jeu. Les expériences réalisées dans ce cadre ont mené à quelques conclusions intéressantes :

- La comparaison des expériences avec les différents types de distributeur a montré que l'effet du gaz semble, contrairement aux observations réalisées par d'autres auteurs, conditionné par la distribution initiale de liquide. Ainsi, lorsque une bonne distribution est imposée en tête de colonne, l'augmentation du débit de gaz a un effet faible mais

qui peut être considéré comme bénéfique pour la distribution du liquide. Par contre, lorsque la distribution des fluides en tête de colonne est mauvaise, l'augmentation du débit de gaz ne fait qu'aggraver la maldistribution de liquide. En résumé, on a constaté que l'augmentation du débit de gaz force le liquide à respecter la distribution initiale, que celle-ci soit bonne ou mauvaise, pour une distance qui est supérieure à un diamètre du réacteur. On remarquera cependant que l'effet observé concerne la maldistribution en termes de saturation de liquide locale à l'intérieur de la colonne et non pas en termes de débit de liquide à la sortie (les études ayant constaté un effet bénéfique du gaz avaient été réalisées à l'aide d'un collecteur de liquide).

- Les limitations du collecteur de liquide pour l'étude de la maldistribution du liquide dans les lits fixes ont été mises en évidence. En effet, on a observé que lorsque la distribution de liquide en termes des saturations locales est mauvaise, l'augmentation du débit de gaz, qui s'écoule par les endroits où la présence du liquide est la plus faible a comme conséquence une augmentation de la vitesse de ce dernier. Ainsi, la colonne se retrouve divisée en zones où la quantité de liquide est faible mais où celui-ci se déplace à grande vitesse, et des zones où le liquide est bien présent mais s'écoule à des vitesses faibles. Cela a pour conséquence des débits de liquide à la sortie qui ont tendance à s'uniformiser (et donc des mesures faites avec le collecteur qui font état d'une bonne distribution de liquide), mais en même temps, une distribution en termes de saturations de liquide à l'intérieur du réacteur qui reste mauvaise (voire empirée, ce qui ne peut pas être observé avec le seul collecteur de liquide).
- En utilisant un distributeur de liquide avec alimentation centrale, on a pu étudier la dispersion radiale en fonction du type de chargement utilisé. En comparant divers critères de performance, on est arrivé à la conclusion que, contrairement aux attentes, le chargement sock correspondait à une meilleure distribution du liquide que le chargement dense, et ce pour la quasi-totalité de la gamme des débits étudiés (et principalement aux forts débits de gaz). On notera cependant que dans le cas d'une bonne distribution initiale, les performances des chargements denses sont supérieures. Ceci résulte probablement du fait que, pour ce type de chargements, le liquide peut respecter plus aisément la distribution imposée en tête de colonne. La comparaison des résultats obtenus avec les trois types de chargement conduit également à penser que pour comprendre la dispersion radiale et estimer son ampleur, il n'est pas suffisant de s'intéresser à la porosité mais qu'il faudrait aussi s'intéresser à des caractéristiques telles que la structure du lit (notamment compacité et orientation des particules).

- L'utilisation de la tomographie à fil à l'intérieur d'un lit d'extrudés en polyéthylène a montré tout l'intérêt de cette technique lorsqu'elle est utilisée avec des particules non poreuses. Malgré un certain nombre de difficultés et des précautions avec lesquelles les résultats concernant ces particules doivent être traités, le travail avec les particules hydrophobes a montré la pertinence de la représentation de la saturation de liquide moyenne en termes du paramètre de Lockhart et Martinelli. Les résultats, qui ont aussi montré une forte dépendance de l'indice de maldistribution (mesuré avec le collecteur) par rapport à la vitesse superficielle de liquide, font penser que par rapport aux extrudés en alumine, les extrudés en polyéthylène (hydrophobes) favorisent la formation de chemins préférentiels pour le liquide.

L'utilisation de la tomographie à fils dans le cadre d'une étude en régime pulsé est venue compléter la démonstration des capacités de cette technique. En effet, c'est la première fois que, à la connaissance de l'auteur, des mesures locales de saturation de liquide sont effectuées au sein du lit en régime pulsé. Grâce à ces mesures, on a pu non seulement mesurer des fréquences de pulsation en fonction des débits de gaz et de liquide pour un lit de billes de verre et un lit d'extrudés en alumine, mais aussi, on a pu mettre en évidence l'existence simultanée de plusieurs régimes hydrodynamiques à l'intérieur du réacteur (sur le même plan horizontal). Les mesures réalisées avec la tomographie à fils ont ensuite été utilisées pour améliorer le distributeur de liquide en l'adaptant aux caractéristiques du réacteur. Ces améliorations ont eu comme conséquence une uniformisation du régime d'écoulement qui passait d'un mélange entre des régimes à faible et forte interaction à un régime pulsé établi avec une fréquence de pulsations stable.

Pour finir, une introduction à la simulation numérique a été réalisée. Bien que de portée limitée, l'étude réalisée a montré la difficulté à modéliser la dispersion radiale dans les lits fixes. Le modèle étudié n'a pas mis en cause la validité des résultats expérimentaux obtenus en faisant l'hypothèse que le changement de porosité liée à l'introduction des billes de verre autour de la tomographie à fils ne perturbe pas de façon significative la dispersion radiale du liquide.

On se doit de faire remarquer que les résultats obtenus tout au long de ce travail sont conditionnés par les conditions dans lesquelles ils ont été réalisés. On pense notamment au distributeur des fluides. En effet, les résultats pourraient être très différents si un autre type de distributeur était utilisé. Il faut aussi remarquer que certaines des conclusions proposées ici ne sont qu'au stade d'hypothèse. En effet, en ce qui concerne par exemple la dispersion radiale des différents types de chargement, des expériences supplémentaires seraient nécessaires pour obtenir plus de certitudes.

Perspectives

La mise au point de la tomographie à fils au cours de ce travail ouvre des possibilités intéressantes pour approfondir l'étude de la maldistribution de liquide dans les lits fixes. Pour commencer, les résultats obtenus lors de ce travail pourraient être améliorés en considérant, notamment, des points tels que:

- Le chargement du catalyseur

Les expériences ont montré que des différences en termes de dispersion radiale pouvaient être observées avec un catalyseur solide donné en fonction du type de chargement effectué. Cependant, les deux chargements denses effectués au cours de ce travail ont été réalisés manuellement. Mise à part la pénibilité que ceci implique, le caractère manuel du remplissage a sûrement été à l'origine des différences observées en termes de porosité pour les deux chargements denses considérés. Par la suite, il serait intéressant d'utiliser des moyens automatiques de remplissage. Ceci permettra non seulement d'obtenir un chargement dense dont les caractéristiques seraient plus proches de ceux effectués industriellement, mais garantirait aussi une meilleure reproductibilité.

- Le distributeur de fluides

Tout au long de cette étude, des distributeurs de type plateau perforé ont été utilisés. Ayant observé l'influence de la distribution initiale sur la distribution de liquide tout au long du lit, il semble clair que les résultats obtenus sont propres à ce système de distribution. Malheureusement, les plateaux perforés sont de moins en moins utilisés industriellement (en particulier dans le domaine pétrolier) ce qui peut enlever de la pertinence aux observations effectués. La réalisation d'expériences en utilisant des distributeurs plus répandus du type plateau à cheminées est fortement souhaitable.

- Les propriétés physico-chimiques des fluides

Une des critiques les plus fréquemment adressées aux études de distribution des fluides dans les lits fixes est le fait que les conditions opératoires restent loin de celles observées dans le domaine industriel. D'après la littérature (voir chapitre 1), en termes de distribution des fluides, les principales conséquences de l'opération à haute pression et température sont liées aux modifications qu'elles induisent en termes de masse volumique du gaz et de viscosité et tension superficielle du liquide. S'il paraît difficile d'effectuer des expériences à des pressions ou températures élevées, il pourrait donc être

envisageable de travailler avec des fluides ou des mélanges de fluides dont les propriétés physico-chimiques soient plus proches de celles observées dans les conditions d'opération industrielle.

D'autres études pourraient aussi être envisagées. On peut notamment penser à l'étude des conséquences du cokage catalytique dans les réacteurs pétroliers. En insérant des obstacles solides à l'intérieur du lit on pourrait, à l'aide de la tomographie à fils, observer par exemple les conséquences en termes de distribution de liquide que ces obstacles peuvent introduire en fonction du type de chargement utilisé et des débits mis en jeu.

Des modifications du dispositif expérimental peuvent aussi être considérées. Il serait très intéressant par exemple, de modifier le système de tomographie à fils de façon à augmenter sa résolution temporelle (en réalisant, à l'instar de Prasser et coll, 1998, des mesures simultanées sur tous les fils du plan récepteur). Ce type de modification permettrait d'approfondir l'étude du régime pulsé en s'affranchissant des problèmes liés à une prise de mesure non simultanée comme c'était le cas de l'étude présenté ici.

Pour les résultats obtenus en régime stationnaire, il serait très intéressant de comparer, sur un même appareillage et un même garnissage les performances d'une installation de tomographie à rayons γ ou à rayons X avec ce que donne la tomographie à fils, en particulier pour vérifier les conséquences du caractère intrusif des fils.

Enfin, nous sommes conscients que l'étude numérique présentée ici n'est qu'une ébauche de fin de thèse de ce qui pourrait être fait. Nous disposons avec les mesures effectuées d'un « benchmark » permettant de juger de la pertinence des paramètres des études de mécanique des fluides numérique, et sommes persuadés qu'il y a encore beaucoup de travail à faire dans ce domaine afin de disposer de modèles numériques prédictifs qui permettront le dimensionnement optimal et la maîtrise du fonctionnement des réacteurs catalytiques à lit fixe à co-courant vers le bas de gaz et de liquide.

Références bibliographiques

- Al-Dahhan M. H., M. P. Dudukovic (1994). "Pressure drop and liquid holdup in high pressure trickle-bed reactors." *Chemical Engineering Science* **49**(24B):5681-5688.
- Al-Dahhan M. H., M. P. Dudukovic (1995). "Catalyst wetting efficiency in trickle-bed reactors at high pressure." *Chemical Engineering Science* **50**(15):2377-2389.
- Al-Dahhan M. H., F. Larachi, M. P. Dudukovic, A. Laurent (1997). "High-pressure trickle-bed reactors : A review." *Ing. Eng. Chem. Res.* **36**: 3292-3314.
- Attou, A. et C. Boyer (1999). "Revue des aspects hydrodynamiques des réacteurs catalytiques gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé." *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP* **54**: 29-66.
- Attou, A., Boyer, C., Ferschneider, G. (1999) "Modelling of the hydrodynamics of the cocurrent gas-liquid trickle flow through a trickle-bed reactor". *Chemical Engineering Science* **54** (6) : 785-802
- Attou, A., Ferschneider, G. (2000) "A two-fluid hydrodynamic model for the transition between trickle and pulse flow in a cocurrent gas-liquid packed-bed reactor". *Chemical Engineering Science* **55** (3) : 491-511
- Aydin, B., Larachi, F. (2003). "Trickle bed hydrodynamics and flow regime transition at elevated temperature for a Newtonian and a non-Newtonian liquid." *Chemical Engineering Science* **60** (23) : 6687-6701
- Bemer, G. G. et F. J. Zuiderweg (1978). "Radial Liquid Spread and Maldistribution in Packed Columns under Different Wetting Conditions." *Chemical Engineering Science* **33**: 1637-1643.
- Blok, J. R. et A. A. H. Drinkenburg (1982). "Hydrodynamics properties of pulses in two-phase downflow operated packed columns." *Chemical Engineering Journal* **25**(1): 89-99.
- Boelhouwer, J. G., H. W. Piepers et A. A. H. Drinkenburg (2001). "Particle-liquid heat transfer in trickle-bed reactor." *Chemical Engineering Science* **56**: 1181-1187.
- Borda M., J. F. Gabitto, N. O. Lemcoff (1987). "Radial liquid distribution in a trickle bed reactor." *Chemical Engineering Communications* **60**: 243-252.
- Borremans, D. (2003). *Opération périodique des réacteurs catalytiques à lit fixe arrosé - Etude expérimentale de l'hydrodynamique, de la conductivité thermique radiale et de la maldistribution de l'écoulement liquide. Thèse de doctorat. Nancy, Institut National Polytechnique de Lorraine.*
- Boyer, C., A. M. Duquenne et G. Wild (2002). "Measuring techniques in gas-liquid and gasliquid-solid reactors." *Chemical Engineering Science* **57**: 3185-3215.
- Boyer C., A. Koudil, P. Chen, M. P. Dudukovic (2005). "Study of liquid spreading from a point source in a trickle bed via gamma-ray tomography and CFD simulation" *Chemical Engineering Science* **60** (22): 6279-6288.

- Briens C., M. Del Pozo, C. Trudell, G. Wild (1999). "Measurement and modelling of particle-liquid heat transfer in liquid-solid and gas-liquid-solid fluidized beds." *Chemical Engineering Science* **54**(6): 731-739.
- Burghardt, A., Bartelmus, G. et A. Szlemp. (2004). "Hydrodynamics of pulsing flow in three-phase fixed-bed reactor operating at an elevated pressure" *Industrial and Engineering Chemistry Research* **43** (16): 4511-4521
- Charpentier, J. C. et M. Favier (1975). "Some Liquid Holdup Experimental Data in Trickle-bed Reactors for Foaming and Nonfoaming Hydrocarbons." *AIChE Journal* **21**: 1213-1218.
- Chou, T.S., F. L. Worley Jr. et D. Luss, (1977). "Transition to pulsed flow in mixed-phase cocurrent downflow through a fixed bed." *Industrial and Engineering Chemistry Process Design and Development* **16** (3): 424-427.
- Christensen G., S. J. McGovern, S. Sundaresan (1986). "Cocurrent downflow of air and water in a two-dimensional packed column." *AIChE Journal* **32** (10): 1677-1689.
- Del Pozo M. (1992). Transfert de matière et de chaleur particule – liquide en lit fluidisé gaz – liquide – solide. Thèse de doctorat. Nancy, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Drake, R.M., Backer, G.H. (1952) "Heat transfer from spheres to rarefied gas in supersonic flow" *Trans. ASME*, **74**:1241-1249
- Duduković M. P., F. Larachi, P. L. Mills (2002). "Multiphase catalytic reactors: A perspective on current knowledge and future trends" *Catalysis Reviews - Science and Engineering* **44** (1): 123-246.
- Dutkai, E. et E. Ruckenstein (1968). "Liquid distribution in packed columns." *Chemical Engineering Science* **23**: 1365-1373.
- El-Hisnawi A.A. (1981). Tracer and reaction studies in trickle-bed reactors, D.Sc. Thesis, Washington University, St. Louis, Missouri.
- Gianetto, A., G. Baldi, V. Specchia et S. Sicardi (1978). "hydrodynamics and Solid-Liquid Contacting Effectiveness in Trickle-bed Reactors." *AIChE Journal* **24**(6): 1087-1104.
- Gladden, L. F., M. H. M. Lim, M. D. Mantle, A. J. Sederman et E. H. Stitt (2003). "MRI visualisation of two-phase instructured and trickle-bed reactors." *Catalysis Today* **79-80**: 203-210.
- Grosser, K., R. G. Carbonell et S. Sundaresan (1988). "Onset of Pulsing in Two-Phase Cocurrent Downflow Through a Packed Bed." *AIChE Journal* **34**: 1850-1860.
- Harter, I., C. Boyer, L. Raynal, G. Ferschneider et T. Gauthier (2001). "Flow distribution studies applied to deep hydrodesulfuration." *Ing. Eng. Chem. Res.* **40**: 5262-5267.
- Herskowitz, M. et J. M. Smith (1978). "Liquid Distribution in Trickle-Bed Reactors." *AIChE Journal* **24**(3): 439-454.

- Hoek, P. J., J. A. Wesselingh et F. J. Zuiderweg (1986). "Small scale and large scale liquid maldistribution in packed columns." *Chem. Eng. Res. Des.* **64**: 431-449.
- Holub, R.A., Dudukovic, M.P., Ramachandran, P.A. (1992) "Phenomenological model for pressure drop, liquid holdup, and flow regime transition in gas-liquid trickle flow". *Chemical Engineering Science* **47** (9-11) : 2343-2348.
- Horowitz, G.I., Martínez, O., Cukierman, A.L., Cassanello, M.C. (1999). "Effect of the catalyst wettability on the performance of a trickle-bed reactor for ethanol oxidation as a case study" *Chemical Engineering Science* **54** (21): 4811-4816
- Iliuta I., F. Larachi, P. M. A. Grandjean (1999). "Catalyst wetting in trickle-flow reactors. A phenomenological model." *Chemical Engineering Research and Design* **77** (8): 759-763.
- Iliuta, I., A. Ortiz-Arroyo, F. Larachi, B. P. A. Grandjean et G. Wild (1999b). "Hydrodynamics and mass transfer in trickle-bed reactors: an overview." *Chemical Engineering Science* **54**: 5329-5337.
- Jiang, Y., Khadilkar, M.R., Al-Dahhan, M.H., Dudukovic, M.P. (2002) "CFD of multiphase flow in packed-bed reactors: I. k-fluid modeling issues and II. Results and applications". *A.I.Ch.E. Journal* **48**, 701-730.
- Johnson I.D. (1987) U.S. patent, No 4,644,263 (cité dans Prasser et coll, 1998)
- Kashiwa B., Rauenzahn, R. M. (1994) "A multimaterial formalism". *Numerical Methods in Multiphase Flows* **185**:149-158.
- Khanna R., K. D. P. Nigam (2002). "Partial wetting in porous catalysts: Wettability and wetting efficiency." *Chemical Engineering Science* **57** (16): 3401-3405.
- Kouri, R. J. et J. Sohlo (1996). "Liquid and gas flow patterns in random packings." *The Chemical Engineering Journal* **61**: 95-105.
- Kundu, A., A. K. Saroha et K. D. P. Nigam (2001). "Liquid distribution studies in trickle-bed reactors." *Chemical Engineering Science* **56**: 5963-5967.
- Larachi F., L. Belfares, B. P. A. Grandjean (2001). "Prediction of liquid - Solid wetting efficiency in trickle flow reactors." *International Communications in Heat and Mass Transfer* **28** (5), pp. 595-603.
- Larachi, F., Laurent, A., Wild, G., et N. Midoux. (1993) "Effet de la pression sur la transition ruisselant-pulsé dans les réacteurs catalytiques à lit fixe arrosé." *Can. J. Chem. Eng.* **71** : 319-321
- Lutran P. G. (1991). "Liquid distribution in trickle beds. An experimental study using computer-assisted tomography." *Industrial and Engineering Chemistry Research* **30** (6): 1270-1280.

- Maiti R.N., R. Khanna, P. K. Sen, K. D. P. Nigam (2004). "Enhanced liquid spreading due to porosity." *Chemical Engineering Science* **59** (13): 2817-2820.
- Marcandelli, C. (1999). Hydrodynamique, transfert de chaleur particule-fluide et distribution des phases dans les réacteurs à lit fixe à co-courant descendant de gaz et de liquide. Thèse de doctorat. Nancy, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Marcandelli, C., A. S. Lamine, J. R. Bernard et G. Wild (2000). "Liquid Distribution in Trickle-Bed Reactor." *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP* **55**: 407-415.
- Marchot, P., D. Toye, M. Crine, A.-M. Pelsser et G. A. L'Homme (1999). "Investigations of liquid maldistribution in packed columns by X-Ray Tomography." *Trans IChemE, Part A: Chemical Engineering Research and Design* **77**(Part A): 511-518.
- McDonald, I.F., El-Sayed, M.S., Mow, K., Dullien, F.A.L. (1979). "Flow through porous media – the Ergun equation revisited" *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals* **18**, 199-208.
- Midoux, N., M. Favier et J. C. Charpentier (1976). "Pressure Loss and Liquid Holdup Date in Gas-Liquid Downflow Packed Beds with Foaming and Nonfoaming Hydrocarbons." *Journal of Chemical Engineering of Japan* **9**: 350-356.
- Moreira, M.F.P., Freire, J.T. (2003). "Influence of gas and liquid flow rates and the size and shape of particles on the regime flow maps obtained in concurrent gas-liquid downflow and upflow through packed beds." *Industrial and Engineering Chemistry Research* **42** (4): 920-928.
- Møller, L. B., C. Halken, J. A. Hansen et J. Bartholdy (1996). "Liquid and Gas Distribution in Trickle-Bed Reactors." *Ing. Eng. Chem. Res.* **35**: 926-930.
- Nemec D., J. Levec (2005). "Flow through packed bed reactors: 1. Single-phase flow" *Chemical Engineering Science* **60** (24): 6947-6957.
- Ng, K. M. (1986). "A Model for Regime Transitions in Cocurrent Down-Flow Trickle-Bed Reactors." *AIChE Journal* **32**: 115-122.
- Nguyen, D., Balakotaiah, V. (1994). "Flow maldistributions and hot spots in down-flow packed bed reactors" *Chemical Engineering Science* **49** (24 B): 5489-5505.
- Nguyen N.L., V. Van Buren, A. Von Garnier, E. H. Hardy, R. Reimert (2005). "Application of Magnetic Resonance Imaging (MRI) for investigation of fluid dynamics in trickle bed reactors and of droplet separation kinetics in packed beds" *Chemical Engineering Science* **60** (22): 6289-6297.
- Nore O. (1992) "Les lits fluidisés triphasiques destinés à la biotechnologie, utilisant des particules de faible masse volumique: Hydrodynamique, transferts de chaleur et de matière." Thèse de doctorat. Nancy, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Onda, K., H. Takeuchi, Y. Maeda et N. Takeuchi (1973). "Liquid distribution in a packed column." *Chemical Engineering Science* **28**: 1677-1683.

- Pérat C. (2005). Etude de la distribution liquide dans un réacteur à lit fixe arrosé à écoulement à co-courant descendant de gaz et de liquide. Thèse de doctorat. Nancy, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Prasser, H. M., A. Böttger et J. Zschau (1998). "A new electrode-mesh tomograph for gas-liquid flows." *Flow Measurements and Instrumentation* **9**: 111-119.
- Ranz W. E., W. R. Marshall (1952). "Evaporation from Drops." *Chem. Eng. Prog.* **48** (3):141-146, 173-180.
- Rao V.G., A. A. H. Drinkenburg (1983). "Pressure drop and hydrodynamics properties of pulse in two-phase gas-liquid downflow through packed columns" *Canadian Journal of Chemical Engineering* **61** (2): 158-167.
- Rao V.G., A. A. H. Drinkenburg (1985). "Solid-liquid mass transfer in packed beds with cocurrent gas-liquid downflow" *AIChE Journal* **31** (7): 1059-1068.
- Rao, V.G., Ananth, M.S., Varma, Y.B.G. (1983). "Hydrodynamics of two-phase cocurrent downflow through packed beds" *AIChE Journal* **29** (3): 467-473
- Ravindra P.V., D. P. Rao, M. S. Rao (1997). "Liquid Flow Texture in Trickle-Bed Reactors: An Experimental Study." *Industrial and Engineering Chemistry Research* **36** (12): 5133-5145.
- Reinecke, N. et D. Mewes (1996). "Tomographic imaging of trickle-bed reactors" *Chemical Engineering Science* **51** (10): 2131-2138
- Reinecke, N. et D. Mewes (1997). "Investigation of the two-phases flow in trickle-bed reactors using capacitance tomography." *Chemical Engineering Science* **52**: 2111-2127.
- Saroha, A. K. et K. D. P. Nigam (1996). "Trickle-bed reactors." *Reviews in chemical engineering*: 206-347.
- Saroha, A. K., K. D. P. Nigam, A. K. Saxena et V. K. Kapur (1998). "Liquid Distribution in Trickle-Bed Reactors." *AIChE Journal* **44** (9): 2044-2052.
- Sicardi, S., Gerhard, H., Hoffmann, H. (1979). "Flow Regime Transition in Trickle-Bed Reactor." *The Chemical Engineering Journal* **18** (3): 173-182.
- Sai, P.S.T., Varma, Y.B.G. (1988) "Flow pattern of the phases and liquid saturation in gas-liquid concurrent downflow through packed beds" *Canadian Journal of Chemical Engineering* **66** (3): 353-360
- Sylvester, N.D. P. Pitayagulsarn (1975). "Radial Liquid Distribution in Cocurrent Two-Phase Downflow in Packed Beds". *Canadian Journal of Chemical Engineering* **53**: 599-605.
- Trambouze, P., Euzen, J. P., (2002). *Les réacteurs chimiques – de la conception à la mise en œuvre*. Editions Technip. Paris, France.
- Tsochatzidis N. A., Karabelas A. J (1995). Properties of pulsing flow in a trickle bed. *AIChE Journal* **41**: 2371-2382.

Tsochatzidis, N. A., A. J. Karabelas, D. Giakoumakis et G. A. Huff (2002). "An investigation of liquid maldistribution in trickle beds." *Chemical Engineering Science* **57**: 3543-3555.

Tukač V., J. Hanika (1992). "Influence of catalyst particles orientation on the pressure drop and the liquid dispersion in the trickle bed reactor." *Chemical Engineering Science* **47** (9-11): 2227-2232.

Vergel, C., J. P. Euzen, P. Trambouze et J. P. Wauquier (1995). "Two-Phase Flow Catalytic Reactor, Influence of Hydrodynamics on Selectivity." *Chemical Engineering Science* **50**:3303-3312.

Vergel Hernandez, C. A. (1993). Les réacteurs catalytiques à lit fixe avec écoulement de gaz et de liquide. Comparaison sur les plans théorique et expérimental de la performance du réacteur dans différents sens d'écoulement. Thèse de doctorat. Nancy, Institut National Polytechnique de Lorraine. Travail effectué à l'Institut Français du Pétrole (Solaize)

Wang Y.-F., Z. S. Mao, J. Chen (1998). "A new instrumentation for measuring the small scale maldistribution of liquid flow in trickle beds." *Chemical Engineering Communications* **163** : 233-244.

Warsito W., L. S. Fan (2005). "Dynamics of spiral bubble plume motion in the entrance region of bubble columns and three-phase fluidized beds using 3D ECT." *Chemical Engineering Science* **60** (22): 6073-6084.

Annexes

5.8 *Annexe I : Fiche technique des thermistances*

01/04 '93 09:00

THERMOMETRICS

002/003



○ NTC Thermistors
INDUSTRIAL/CONSUMER

Description

Type G thermistors incorporate a directly heated bead of semiconductor material in a solid glass pellet, connection being by means of two cunife wires. These wires are normally tinned but thermistors G55, G26 and G16 which are intended to operate at temperatures up to 300°C have untinned cunife wires suitable for welding or brazing.

The type G thermistor is available in three styles of glass pellet, the largest size is referred to as 'Standard' (G - C), the smaller size as 'Miniature (G - D) and the Probe as GL - eg a miniature G13 is coded G13D.

These thermistors are suitable for general use in the field of temperature measurement, control or compensation, flow measurement and similar applications.

Data

B value tolerance	±5%
τ G - C	21s
G - D	19s
k G - C	1.3mW/°C
G - D	1.1mW/°C
GL	1.2mW/°C

Low Resistance Types

T _A max	125°C
T _B max	125°C
P _{max} at 20°C G - C	140mW
G - D	120mW
GL	130mW

Derate linearly to zero at 125°C

Medium Resistance Types

T _A max	155°C
T _B max	200°C
P _{max} at 20°C G - C	230mW
G - D	200mW
GL	220mW

G - C Derate linearly to 55mW at 155°C
G - D Derate linearly to 50mW at 155°C
GL - Derate linearly to 53mW at 155°C

High Resistance Types

T _A max	300°C
T _B max	300°C
P _{max} at 20°C G - C	360mW
G - D	310mW
GL	340mW

Derate linearly to zero at 300°C

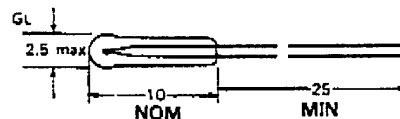
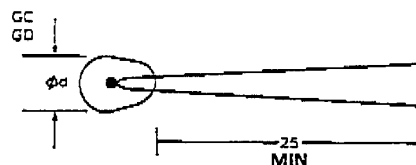
TYPE **G GL**

151-110
151-111

Temperature Measurement & Control

Fluid Level Detection
Flow Measurement & Control

Outline



Code	Lead Dia. mm	Body Dia. (max)	Average Weight
G - C	0.4	3.2	0.15
G - D	0.35	2.5	0.11
GL -	0.35	2.5	

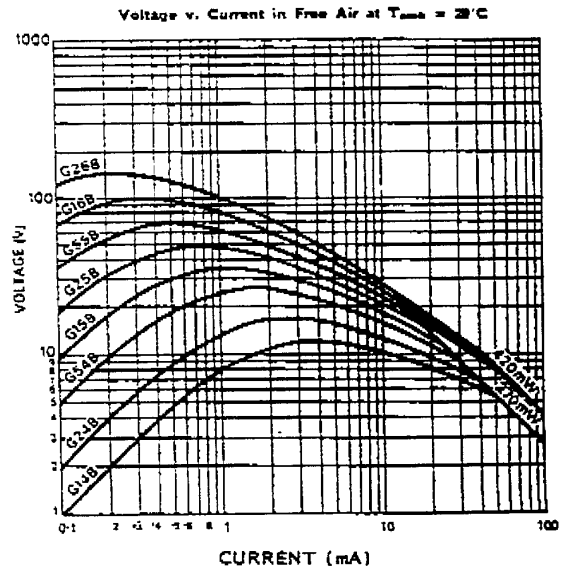
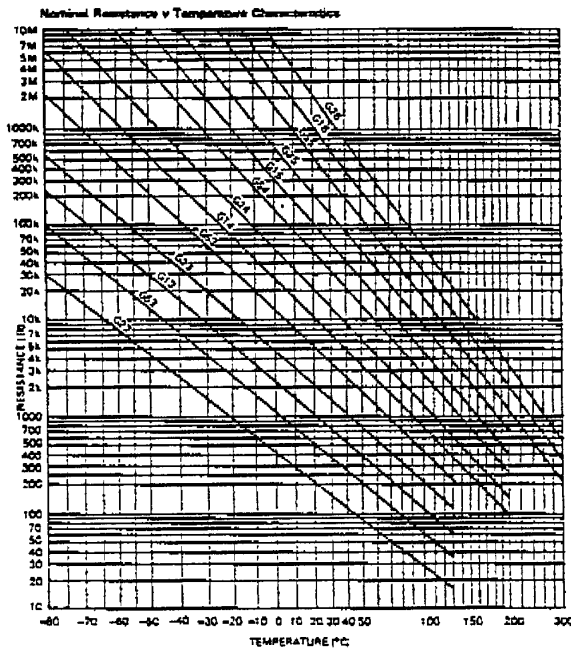
D10 - 3

01/04 '93 09:01

THERMOMETRICS

003/00

Code	R_{20} Ω	R_{25} Ω	E_{max} in free air at 20° C GC only (V)	R_{min} Ω	B_{25-85} K
Low resistance types					
G22 C, D and L	200	172	1.9	19	2750
G52	500	425	2.9	40	2900
G13	1k	840	3.9	70	3000
G23	2k	1.65k	5.3	113	3125
G53	5k	4.15k	8.2	250	3400
Medium resistance types					
G14	10k	8.2k	11	110	3600
G24	20k	16.2k	16	160	3800
G54	50k	40k	24	320	4075
G15	100k	79k	34	520	4275
G25	200k	156k	46	810	4400
High resistance types					
G55	500k	15k	62	180	4700
G16	1M	30k	87	330	4850
G26	2M	60k	120	560	5000



OPERATING:

Thermistors are designed to be intrinsically safe components provided they are operated within the rated voltages or currents and inside the recommended temperature range.

STORAGE :

The normal care required for electronic components should be exercised.

DISPOSAL :

No special hazards are involved in disposal. Incineration of thermistors is not recommended due to the emission of toxic fumes from epoxy coated devices or the shattering of glass and/or ceramic with possible hazard from hot jagged material.

PHYSICAL FORM :

The wire ends should not be bent nearer than 3mm to the glass body of the thermistor

PRODUCT SAFETY NOTES :

Although these devices are glass encapsulated no insulation properties are implied.

Some of the thermistors in this range, when operated at or near maximum rated dissipation in a self-heat mode, may require applied voltages capable of causing dangerous electric shock.

FLAMMABLE FLUIDS :

These devices attain high surface temperatures when used as liquid sensors. This precludes their direct use in flammable fluids; please contact the Technical Sales Department for further information.

Performance figures and data quoted in this document are typical and must be specifically confirmed in writing by BOWTHORPE THERMISTORS before they become applicable to any particular order or contract. The company reserves the right to make alterations or amendments to the detailed specification at its discretion. The publication of information in this document does not imply freedom from patent or other protective rights of Bowthorpe Thermistors or others.

© BOWTHORPE COMPONENTS LTD.

May 1989
D10 - 3

BOWTHORPE THERMISTORS
CROWN INDUSTRIAL ESTATE
PRIORSWOOD ROAD
TAUNTON
SOMERSET TA2 8QY

TELEPHONE 0823 335200
TELEX 46748
FAX 0823 332637

5.9

5.10 *Annexe II : Résultats des expériences en régime stationnaire*

Distributeur complet

Données expérimentales obtenues pour le chargement sock :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1	0.00	0.41	0.50	0.46	0.31	0.30	0.26
0.0082	1.137	1.0685	0.09	0.38	0.42	0.40	0.33	0.29	0.10
0.0082	1.255	1.1275	0.17	0.33	0.35	0.34	0.32	0.27	0.09
0.0082	1.382	1.191	0.24	0.28	0.31	0.30	0.28	0.26	0.08
0.0082	1.505	1.2525	0.30	0.28	0.27	0.28	0.34	0.25	0.08
0.0082	0	0.5	0.00	0.40	0.52	0.46	0.33	0.29	0.26
0.0082	1.102	1.051	0.09	0.38	0.42	0.40	0.32	0.25	0.10
0.0082	1.206	1.103	0.17	0.33	0.35	0.34	0.33	0.27	0.09
0.0082	1.326	1.163	0.24	0.30	0.30	0.30	0.34	0.27	0.08
0.0082	1.44	1.22	0.31	0.27	0.28	0.28	0.32	0.25	0.08
0.0064	1	1	0.00	0.30	0.37	0.33	0.39	0.32	0.21
0.0064	1.102	1.051	0.09	0.30	0.35	0.32	0.34	0.30	0.09
0.0064	1.206	1.103	0.17	0.27	0.30	0.28	0.32	0.25	0.08
0.0064	1.326	1.163	0.24	0.25	0.26	0.25	0.32	0.24	0.07
0.0064	1.44	1.22	0.31	0.23	0.23	0.23	0.31	0.23	0.05
0.0064	1	1	0.00	0.30	0.38	0.34	0.39	0.31	0.24
0.0064	1.102	1.051	0.09	0.32	0.35	0.34	0.32	0.26	0.09
0.0064	1.206	1.103	0.17	0.28	0.29	0.29	0.32	0.25	0.08
0.0064	1.326	1.163	0.24	0.25	0.26	0.25	0.32	0.25	0.07
0.0064	1.44	1.22	0.31	0.23	0.23	0.23	0.32	0.24	0.06
0.0046	1	1	0.00	0.22	0.29	0.26	0.42	0.34	0.21
0.0046	1.102	1.051	0.09	0.24	0.28	0.26	0.39	0.36	0.09
0.0046	1.206	1.103	0.17	0.22	0.24	0.23	0.37	0.32	0.08
0.0046	1.326	1.163	0.24	0.21	0.22	0.21	0.36	0.30	0.06
0.0046	1.44	1.22	0.31	0.19	0.20	0.19	0.33	0.26	0.07
0.0046	1	1	0.00						0.22
0.0046	1.102	1.051	0.09						0.09
0.0046	1.206	1.103	0.17						0.08
0.0046	1.326	1.163	0.24						0.07
0.0046	1.44	1.22	0.32						0.06
0.0031	0	0.75	0.00	0.14	0.20	0.17	0.49	0.36	0.16
0.0031	1.044	1.011	0.10	0.15	0.18	0.16	0.46	0.36	0.11
0.0031	1.127	1.03175	0.20	0.13	0.17	0.15	0.46	0.39	0.09
0.0031	1.216	1.054	0.29	0.13	0.15	0.14	0.43	0.34	0.07
0.0031	1.289	1.07225	0.35	0.13	0.14	0.14	0.41	0.32	0.06
0.0031	1	1	0.00	0.15	0.20	0.17	0.51	0.37	0.15
0.0031	1.041	1.0205	0.09	0.14	0.18	0.16	0.49	0.37	0.12
0.0031	1.112	1.056	0.17	0.14	0.16	0.15	0.50	0.38	0.10
0.0031	1.204	1.102	0.26	0.14	0.15	0.14	0.44	0.36	0.07
0.0031	1.289	1.1445	0.33	0.13	0.14	0.13	0.43	0.33	0.07
0.0016	1	1	0.00	0.09	0.12	0.11	0.57	0.43	0.17
0.0016	1.021	1.0105	0.09	0.09	0.12	0.10	0.58	0.44	0.12
0.0016	1.064	1.032	0.18	0.08	0.11	0.10	0.61	0.44	0.11
0.0016	1.128	1.064	0.27	0.08	0.10	0.09	0.59	0.46	0.09
0.0016	1.2	1.1	0.34	0.08	0.08	0.08	0.57	0.54	0.08
0.0016	1	1	0.00						0.14
0.0016	1.022	1.011	0.09						0.11
0.0016	1.064	1.032	0.18						0.11
0.0016	1.128	1.064	0.27						0.08
0.0016	1.2	1.1	0.34						0.07

Données expérimentales obtenues pour le chargement Densel :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1.013	1.0065	0.00	0.60	0.64	0.62	0.24	0.20	0.20
0.0082	1.275	1.1375	0.08	0.46	0.46	0.46	0.27	0.28	0.10
0.0082	1.478	1.239	0.15	0.39	0.38	0.38	0.28	0.28	0.10
0.0082	1.573	1.2865	0.18	0.36	0.35	0.36	0.28	0.27	0.10
0.0082	1	1	0.00	0.58	0.63	0.61	0.25	0.21	0.17
0.0082	1.27	1.135	0.08	0.47	0.46	0.46	0.28	0.27	0.11
0.0082	1.477	1.2385	0.15	0.39	0.39	0.39	0.29	0.28	0.10
0.0082	1.562	1.281	0.18	0.36	0.35	0.36	0.28	0.28	0.10
0.0064	1	1	0.00	0.48	0.54	0.51	0.24	0.22	0.24
0.0064	1.215	1.1075	0.08	0.41	0.42	0.42	0.26	0.24	0.10
0.0064	1.391	1.1955	0.15	0.34	0.34	0.34	0.25	0.24	0.09
0.0064	1.597	1.2985	0.22	0.30	0.28	0.29	0.25	0.24	0.08
0.0064	1	1	0.00	0.49	0.53	0.51	0.26	0.23	0.23
0.0064	1.218	1.109	0.08	0.41	0.42	0.42	0.25	0.24	0.10
0.0064	1.391	1.1955	0.15	0.34	0.33	0.34	0.24	0.24	0.09
0.0064	1.59	1.295	0.22	0.30	0.29	0.29	0.25	0.25	0.08
0.0046	1	1	0.00	0.37	0.41	0.39	0.29	0.27	0.18
0.0046	1.164	1.082	0.08	0.35	0.36	0.36	0.24	0.27	0.10
0.0046	1.323	1.1615	0.17	0.29	0.29	0.29	0.24	0.25	0.09
0.0046	1.49	1.245	0.23	0.25	0.24	0.25	0.26	0.25	0.05
0.0046	1.58	1.29	0.26	0.23	0.22	0.23	0.25	0.23	0.06
0.0046	1	1	0.00	0.38	0.41	0.40	0.30	0.27	0.21
0.0046	1.169	1.0845	0.08	0.35	0.35	0.35	0.26	0.28	0.10
0.0046	1.32	1.16	0.16	0.29	0.29	0.29	0.24	0.23	0.08
0.0046	1.476	1.238	0.23	0.25	0.24	0.25	0.27	0.24	0.06
0.0046	1.58	1.29	0.26	0.24	0.22	0.23	0.28	0.23	0.06
0.0031	1	1	0.00	0.28	0.31	0.30	0.34	0.28	0.16
0.0031	1.115	1.0575	0.09	0.28	0.30	0.29	0.32	0.29	0.10
0.0031	1.24	1.12	0.16	0.24	0.24	0.24	0.32	0.29	0.08
0.0031	1.379	1.1895	0.23	0.20	0.20	0.20	0.30	0.28	0.07
0.0031	1.533	1.2665	0.30	0.18	0.17	0.18	0.33	0.31	0.08
0.0031	1	1	0.00	0.28	0.31	0.29	0.33	0.29	0.16
0.0031	1.115	1.0575	0.09	0.28	0.29	0.29	0.31	0.29	0.10
0.0031	1.24	1.12	0.16	0.24	0.24	0.24	0.29	0.27	0.08
0.0031	1.379	1.1895	0.23	0.20	0.20	0.20	0.31	0.28	0.07
0.0031	1.533	1.2665	0.30	0.18	0.17	0.17	0.35	0.31	0.08
0.0016	1	1	0.00	0.17	0.20	0.19	0.36	0.31	0.13
0.0016	1.059	1.0295	0.09	0.17	0.18	0.18	0.36	0.34	0.09
0.0016	1.16	1.08	0.17	0.16	0.16	0.16	0.34	0.34	0.09
0.0016	1.273	1.1365	0.25	0.13	0.13	0.13	0.33	0.32	0.08
0.0016	1.38	1.19	0.32	0.12			0.31		0.09
0.0016	1	1	0.00	0.16	0.18	0.17	0.38	0.32	0.12
0.0016	1.059	1.0295	0.09	0.17	0.18	0.17	0.36	0.35	0.09
0.0016	1.16	1.08	0.17	0.15	0.15	0.15	0.34	0.36	0.09
0.0016	1.273	1.1365	0.25	0.13	0.13	0.13	0.31	0.32	0.07
0.0016	1.38	1.19	0.32	0.12	0.11	0.12	0.30	0.30	0.08

Données expérimentales obtenues pour le chargement Dense2 :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta_L}_{Sup}$	$\overline{\beta_L}_{Inf}$	$\overline{\beta_L}$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1	0.00	0.59	0.81	0.70	0.20	0.27	0.27
0.0082	1.349	1.1745	0.08	0.46	0.45	0.45	0.28	0.22	0.10
0.0082	1.474	1.237	0.11	0.42	0.42	0.42	0.28	0.22	0.10
0.0082	1.58	1.29	0.14	0.39	0.38	0.39	0.29	0.21	0.09
0.0082	1	1	0.00	0.57	0.64	0.61	0.21	0.25	0.15
0.0082	1.359	1.1795	0.08	0.45	0.44	0.45	0.26	0.21	0.10
0.0082	1.474	1.237	0.11	0.41	0.41	0.41	0.25	0.21	0.10
0.0082	1.581	1.2905	0.14	0.38	0.37	0.38	0.26	0.21	0.12
0.0064	1	1	0.00	0.49	0.67	0.58	0.22	0.38	0.22
0.0064	1.284	1.142	0.08	0.40	0.40	0.40	0.23	0.19	0.10
0.0064	1.483	1.2415	0.15	0.34	0.33	0.33	0.22	0.18	0.09
0.0064	1.583	1.2915	0.18	0.31	0.31	0.31	0.22	0.20	0.09
0.0064	1	1	0.00	0.48	0.67	0.57	0.23	0.42	0.21
0.0064	1.262	1.131	0.08	0.41	0.42	0.42	0.27	0.20	0.10
0.0064	1.47	1.235	0.15	0.34	0.34	0.34	0.23	0.18	0.08
0.0064	1.584	1.292	0.18	0.32	0.31	0.32	0.23	0.19	0.08
0.0046	1	1	0.00	0.37	0.70	0.54	0.28	0.41	0.16
0.0046	1.211	1.1055	0.08	0.35	0.35	0.35	0.27	0.20	0.10
0.0046	1.385	1.1925	0.16	0.28	0.29	0.29	0.25	0.19	0.10
0.0046	1.583	1.2915	0.22	0.25	0.24	0.24	0.24	0.21	0.05
0.0046	1	1	0.00	0.38	0.65	0.51	0.28	0.49	0.17
0.0046	1.188	1.094	0.08	0.33	0.34	0.33	0.28	0.21	0.11
0.0046	1.378	1.189	0.15	0.29	0.28	0.29	0.26	0.21	0.10
0.0046	1.476	1.238	0.23	0.24	0.24	0.24	0.26	0.20	0.05
0.0031	1	1	0.00	0.27	0.37	0.32	0.33	0.53	0.16
0.0031	1.144	1.072	0.09	0.27	0.29	0.28	0.31	0.25	0.12
0.0031	1.286	1.143	0.16	0.23	0.23	0.23	0.25	0.21	0.08
0.0031	1.476	1.238	0.23	0.19	0.19	0.19	0.24	0.20	0.05
0.0031	1	1	0.00	0.28	0.35	0.31	0.32	0.44	0.16
0.0031	1.145	1.0725	0.09	0.28	0.28	0.28	0.26	0.23	0.11
0.0031	1.299	1.1495	0.16	0.23	0.23	0.23	0.23	0.19	0.07
0.0031	1.476	1.238	0.23	0.20	0.20	0.20	0.22	0.19	0.05
0.0031	1.578	1.289	0.26	0.18	0.18	0.18	0.23	0.19	0.04
0.0016	1	1	0.00	0.17	0.19	0.18	0.40	0.29	0.16
0.0016	1.074	1.037	0.09	0.17	0.18	0.17	0.39	0.29	0.13
0.0016	1.19	1.095	0.17	0.15	0.16	0.15	0.37	0.27	0.10
0.0016	1.347	1.1735	0.24	0.13	0.13	0.13	0.33	0.26	0.06
0.0016	1.513	1.2565	0.29	0.12	0.11	0.12	0.34	0.25	0.06
0.0016	1	1	0.00	0.17	0.19	0.18	0.40	0.29	0.14
0.0016	1.078	1.039	0.09	0.17	0.18	0.17	0.40	0.31	0.13
0.0016	1.197	1.0985	0.17	0.15	0.16	0.15	0.38	0.29	0.10
0.0016	1.333	1.1665	0.24	0.13	0.14	0.13	0.33	0.27	0.07
0.0016	1.494	1.247	0.29	0.12	0.12	0.12	0.31	0.25	0.05

Données expérimentales obtenues pour les extrudés en polyéthylène :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1	0.00	0.67	0.90	0.78	0.50	0.34	0.26
0.0082	1.175	1.0875	0.08	0.42	0.49	0.46	0.38	0.37	0.10
0.0082	1.301	1.1505	0.16	0.37	0.41	0.39	0.37	0.35	0.09
0.0082	1.437	1.2185	0.23	0.34	0.35	0.35	0.35	0.34	0.09
0.0082	1.533	1.2665	0.27	0.34	0.32	0.33	0.35	0.34	0.08
0.0082	1	1	0.00	0.82	0.94	0.88	0.48	0.35	0.26
0.0082	1.187	1.0935	0.08	0.55	0.53	0.54	0.36	0.37	0.10
0.0082	1.314	1.157	0.16	0.46	0.44	0.45	0.35	0.37	0.09
0.0082	1.457	1.2285	0.23	0.40	0.39	0.40	0.31	0.38	0.09
0.0082	1.555	1.2775	0.27	0.38	0.36	0.37	0.31	0.37	0.08
0.0064	1	1	0.00	0.60	0.80	0.70	0.60	0.45	0.31
0.0064	1.112	1.056	0.09	0.43	0.47	0.45	0.43	0.43	0.11
0.0064	1.245	1.1225	0.16	0.34	0.39	0.36	0.39	0.37	0.10
0.0064	1.366	1.183	0.24	0.30	0.33	0.32	0.38	0.33	0.09
0.0064	1.478	1.239	0.31	0.29	0.29	0.29	0.37	0.35	0.10
0.0047	1	1	0.00	0.48	0.67	0.58	0.73	0.58	0.23
0.0047	1.049	1.0245	0.09	0.43	0.48	0.45	0.71	0.75	0.18
0.0047	1.149	1.0745	0.17	0.35	0.37	0.36	0.57	0.62	0.13
0.0047	1.276	1.138	0.25	0.29	0.30	0.29	0.52	0.53	0.13
0.0047	1.398	1.199	0.31	0.27	0.27	0.27	0.46	0.48	0.11
0.0047	1	1	0.00	0.52	0.74	0.63	0.76	0.53	0.30
0.0047	1.149	1.0745	0.17	0.37	0.41	0.39	0.63	0.63	0.13
0.0047	1.398	1.199	0.31	0.25	0.29	0.27	0.49	0.51	
0.0031	1	1	0.00	0.43	0.55	0.49	0.82	0.68	0.22
0.0031	1.035	1.0175	0.09	0.36	0.37	0.37	0.80	0.80	0.26
0.0031	1.109	1.0545	0.17	0.31	0.31	0.31	0.70	0.68	0.25
0.0031	1.207	1.1035	0.26	0.25	0.25	0.25	0.77	0.63	0.26
0.0031	1.301	1.1505	0.33	0.20	0.21	0.21	0.76	0.64	0.26
0.0016	1	1	0.00	0.28	0.42	0.35	1.04	1.01	0.29
0.0016	1.024	1.012	0.09	0.24	0.29	0.27	1.02	1.05	0.31
0.0016	1.069	1.0345	0.18	0.22	0.25	0.23	0.99	1.07	0.34
0.0016	1.142	1.071	0.27	0.19	0.21	0.20	0.97	1.11	0.31
0.0016	1.228	1.114	0.34	0.16	0.19	0.17	0.94	1.12	0.29

Distributeur en croix

Données expérimentales obtenues pour le chargement sock :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1	0.00	0.42	0.56	0.49	0.31	0.26	0.27
0.0082	1.115	1.0575	0.09	0.39	0.45	0.42	0.39	0.25	0.10
0.0082	1.244	1.122	0.16	0.33	0.36	0.35	0.41	0.27	0.09
0.0082	1.368	1.184	0.24	0.31	0.31	0.31	0.44	0.28	0.08
0.0082	1.49	1.245	0.31	0.28	0.28	0.28	0.46	0.28	0.07
0.0082	1	1	0.00	0.42	0.56	0.49	0.31	0.25	0.19
0.0082	1.124	1.062	0.09	0.39	0.43	0.41	0.39	0.26	0.10
0.0082	1.244	1.122	0.16	0.34	0.35	0.35	0.44	0.26	0.10
0.0082	1.368	1.184	0.24	0.30	0.31	0.31	0.45	0.28	0.09
0.0082	1.49	1.245	0.31	0.28	0.28	0.28	0.47	0.29	0.09
0.0064	1	1	0.00	0.32	0.39	0.35	0.34	0.30	0.16
0.0064	1.092	1.046	0.09	0.32	0.36	0.34	0.41	0.24	0.10
0.0064	1.186	1.093	0.17	0.29	0.31	0.30	0.46	0.28	0.09
0.0064	1.307	1.1535	0.25	0.25	0.27	0.26	0.48	0.29	0.08
0.0064	1.421	1.2105	0.31	0.24	0.24	0.24	0.51	0.29	0.08
0.0064	1	1	0.00	0.32	0.39	0.36	0.34	0.31	0.18
0.0064	1.093	1.0465	0.09	0.32	0.37	0.35	0.41	0.26	0.10
0.0064	1.192	1.096	0.17	0.28	0.31	0.29	0.44	0.27	0.09
0.0064	1.313	1.1565	0.25	0.26	0.27	0.26	0.46	0.26	0.07
0.0064	1.42	1.21	0.31	0.24	0.24	0.24	0.49	0.29	0.07
0.0046	1	1	0.00	0.24	0.29	0.27	0.39	0.32	0.14
0.0046	1.065	1.0325	0.09	0.24	0.29	0.26	0.44	0.32	0.09
0.0046	1.15	1.075	0.18	0.22	0.25	0.24	0.48	0.31	0.08
0.0046	1.243	1.1215	0.25	0.20	0.22	0.21	0.54	0.30	0.11
0.0046	1.346	1.173	0.33	0.20	0.20	0.20	0.52	0.29	0.07
0.0046	1	1	0.00	0.25	0.29	0.27	0.40	0.32	0.19
0.0046	1.065	1.0325	0.09	0.24	0.29	0.27	0.42	0.31	0.10
0.0046	1.151	1.0755	0.18	0.22	0.25	0.24	0.47	0.29	0.09
0.0046	1.243	1.1215	0.25	0.21	0.22	0.21	0.50	0.30	0.08
0.0046	1.349	1.1745	0.33	0.19	0.20	0.19	0.51	0.29	0.06
0.0031	1	1	0.00	0.19	0.18	0.19	0.46	0.47	0.18
0.0031	1.038	1.019	0.09	0.17	0.19	0.18	0.51	0.39	0.12
0.0031	1.11	1.055	0.17	0.16	0.18	0.17	0.55	0.40	0.09
0.0031	1.181	1.0905	0.26	0.15	0.16	0.16	0.58	0.37	0.08
0.0031	1.29	1.145	0.33	0.15	0.15	0.15	0.56	0.34	0.07
0.0031	1	1	0.00	0.17	0.21	0.19	0.45	0.36	0.17
0.0031	1.035	1.0175	0.09	0.17	0.20	0.18	0.45	0.39	0.12
0.0031	1.098	1.049	0.17	0.16	0.18	0.17	0.47	0.39	0.09
0.0031	1.186	1.093	0.26	0.15	0.16	0.16	0.51	0.38	0.08
0.0031	1.266	1.133	0.33	0.14	0.15	0.15	0.57	0.35	0.07
0.0016	1	1	0.00	0.10	0.13	0.12	0.56	0.36	0.15
0.0016	1.02	1.01	0.09	0.10	0.12	0.11	0.53	0.40	0.11
0.0016	1.061	1.0305	0.18	0.10	0.11	0.11	0.55	0.41	0.10
0.0016	1.123	1.0615	0.27	0.09	0.10	0.10	0.57	0.41	0.10
0.0016	1.193	1.0965	0.34	0.09	0.10	0.09	0.60	0.40	0.08
0.0016	1	1	0.00	0.10	0.13	0.11	0.52	0.42	0.16
0.0016	1.02	1.01	0.09	0.10	0.12	0.11	0.53	0.42	0.13
0.0016	1.061	1.0305	0.18	0.09	0.11	0.10	0.54	0.42	0.12
0.0016	1.123	1.0615	0.27	0.09	0.10	0.09	0.56	0.41	0.11
0.0016	1.193	1.0965	0.34	0.08	0.09	0.09	0.56	0.37	0.08

Données expérimentales obtenues pour le chargement Densel :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1.000	0.00	0.60	0.65	0.62	0.22	0.20	0.20
0.0082	1.258	1.129	0.08	0.48	0.47	0.48	0.37	0.27	0.10
0.0082	1.462	1.231	0.15	0.40	0.38	0.39	0.42	0.30	0.10
0.0082	1.556	1.278	0.18	0.37	0.35	0.36	0.44	0.31	0.10
0.0082	1	1	0.00	0.61	0.67	0.64	0.22	0.20	0.26
0.0082	1.275	1.1375	0.08	0.47	0.47	0.47	0.36	0.27	0.10
0.0082	1.451	1.2255	0.15	0.40	0.39	0.39	0.41	0.31	0.10
0.0082	1.56	1.28	0.18	0.38	0.36	0.37	0.44	0.31	0.09
0.0064	1	1	0.00	0.50	0.55	0.52	0.23	0.22	0.19
0.0064	1.2	1.1	0.08	0.43	0.43	0.43	0.39	0.29	0.10
0.0064	1.378	1.189	0.15	0.35	0.34	0.34	0.44	0.31	0.10
0.0064	1.572	1.286	0.22	0.31	0.29	0.30	0.48	0.33	0.09
0.0064	1	1	0.00	0.49	0.53	0.51	0.25	0.23	0.22
0.0064	1.205	1.1025	0.08	0.42	0.43	0.42	0.37	0.28	0.10
0.0064	1.391	1.1955	0.15	0.35	0.34	0.35	0.43	0.31	0.10
0.0064	1.587	1.2935	0.22	0.30	0.29	0.29	0.47	0.32	0.09
0.0046	1	1	0.00	0.39	0.42	0.41	0.27	0.26	0.17
0.0046	1.158	1.079	0.08	0.35	0.36	0.36	0.42	0.31	0.10
0.0046	1.301	1.1505	0.16	0.30	0.30	0.30	0.43	0.31	0.10
0.0046	1.478	1.239	0.23	0.26	0.25	0.25	0.48	0.31	0.09
0.0046	1.579	1.2895	0.26	0.24	0.22	0.23	0.49	0.32	0.09
0.0046	1	1	0.00	0.38	0.42	0.40	0.28	0.26	0.16
0.0046	1.158	1.079	0.08	0.37	0.38	0.37	0.44	0.30	0.10
0.0046	1.301	1.1505	0.16	0.30	0.30	0.30	0.45	0.31	0.10
0.0046	1.482	1.241	0.23	0.26	0.25	0.25	0.47	0.30	0.09
0.0046	1.574	1.287	0.26	0.24	0.22	0.23	0.51	0.32	0.09
0.0031	1	1.000	0.00	0.29	0.33	0.31	0.35	0.29	0.14
0.0031	1.104	1.052	0.09	0.29	0.30	0.29	0.38	0.31	0.11
0.0031	1.243	1.122	0.16	0.24	0.24	0.24	0.43	0.32	0.11
0.0031	1.381	1.191	0.24	0.21	0.20	0.20	0.51	0.31	0.09
0.0031	1.529	1.265	0.30	0.19	0.18	0.18	0.52	0.30	0.09
0.0031	1	1	0.00	0.29	0.32	0.31	0.32	0.28	0.15
0.0031	1.103	1.0515	0.09	0.29	0.30	0.30	0.41	0.28	0.11
0.0031	1.239	1.1195	0.16	0.24	0.24	0.24	0.44	0.32	0.11
0.0031	1.371	1.1855	0.24	0.21	0.20	0.21	0.49	0.31	0.10
0.0031	1.513	1.2565	0.30	0.19	0.18	0.18	0.52	0.30	0.09
0.0016	1	1	0.00	0.18	0.20	0.19	0.54	0.31	0.13
0.0016	1.053	1.0265	0.09	0.17	0.19	0.18	0.62	0.37	0.10
0.0016	1.146	1.073	0.17	0.16	0.16	0.16	0.68	0.43	0.11
0.0016	1.269	1.1345	0.25	0.14	0.14	0.14	0.64	0.45	0.11
0.0016	1.39	1.195	0.31	0.12	0.12	0.12	0.67	0.47	0.13
0.0016	1	1	0.00	0.17	0.19	0.18	0.58	0.34	0.13
0.0016	1.053	1.0265	0.09	0.18	0.18	0.18	0.66	0.44	0.11
0.0016	1.153	1.0765	0.17	0.16	0.16	0.16	0.66	0.48	0.14
0.0016	1.262	1.131	0.25	0.14	0.14	0.14	0.57	0.45	0.13
0.0016	1.378	1.189	0.32	0.12	0.12	0.12	0.74	0.50	0.14

Données expérimentales obtenues pour le chargement Dense2 :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta_L}_{Sup}$	$\overline{\beta_L}_{Inf}$	$\overline{\beta_L}$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1	0.00	0.62	0.75	0.68	0.19	0.26	0.26
0.0082	1.332	1.166	0.08	0.48	0.47	0.47	0.37	0.23	0.10
0.0082	1.46	1.23	0.11	0.43	0.42	0.42	0.39	0.24	0.10
0.0082	1.546	1.273	0.14	0.40	0.39	0.40	0.42	0.26	0.10
0.0082	1	1	0.00	0.62	0.78	0.70	0.19	0.25	0.20
0.0082	1.338	1.169	0.08	0.48	0.47	0.47	0.35	0.21	0.10
0.0082	1.455	1.2275	0.11	0.43	0.43	0.43	0.39	0.24	0.10
0.0082	1.558	1.279	0.14	0.40	0.39	0.40	0.42	0.24	0.10
0.0064	1	1	0.00	0.50	0.74	0.62	0.22	0.34	0.22
0.0064	1.256	1.128	0.08	0.42	0.43	0.42	0.35	0.22	0.10
0.0064	1.437	1.2185	0.15	0.36	0.36	0.36	0.43	0.25	0.10
0.0064	1.56	1.28	0.18	0.33	0.32	0.32	0.45	0.26	0.09
0.0064	1	1	0.00	0.50	0.71	0.61	0.22	0.37	0.22
0.0064	1.257	1.1285	0.08	0.42	0.42	0.42	0.38	0.23	0.10
0.0064	1.455	1.2275	0.15	0.35	0.35	0.35	0.42	0.25	0.10
0.0064	1.567	1.2835	0.18	0.33	0.32	0.33	0.46	0.26	0.09
0.0046	1	1	0.00	0.39	0.63	0.51	0.29	0.50	0.16
0.0046	1.2	1.1	0.08	0.36	0.36	0.36	0.41	0.23	0.10
0.0046	1.377	1.1885	0.15	0.30	0.30	0.30	0.41	0.24	0.09
0.0046	1.577	1.2885	0.22	0.26	0.25	0.25	0.49	0.28	0.08
0.0046	1	1	0.00	0.39	0.64	0.52	0.30	0.48	0.19
0.0046	1.19	1.095	0.08	0.36	0.36	0.36	0.37	0.22	0.11
0.0046	1.369	1.1845	0.15	0.29	0.30	0.30	0.42	0.24	0.10
0.0046	1.567	1.2835	0.22	0.25	0.25	0.25	0.49	0.27	0.08
0.0031	1	1	0.00	0.29	0.40	0.35	0.39	0.57	0.19
0.0031	1.112	1.056	0.09	0.28	0.30	0.29	0.43	0.31	0.13
0.0031	1.289	1.1445	0.17	0.23	0.24	0.24	0.48	0.27	0.09
0.0031	1.461	1.2305	0.23	0.20	0.21	0.20	0.48	0.28	0.07
0.0031	1.57	1.285	0.27	0.19	0.19	0.19	0.52	0.29	0.06
0.0031	1	1	0.00	0.31	0.39	0.35	0.38	0.60	0.29
0.0031	1.123	1.0615	0.09	0.28	0.30	0.29	0.43	0.24	0.11
0.0031	1.276	1.138	0.16	0.24	0.25	0.24	0.49	0.25	0.10
0.0031	1.455	1.2275	0.23	0.20	0.20	0.20	0.52	0.27	0.08
0.0031	1.585	1.2925	0.27	0.19	0.19	0.19	0.52	0.29	0.07
0.0016	1	1	0.00	0.15	0.16	0.15	0.55	0.29	0.15
0.0016	1.053	1.0265	0.09	0.15	0.15	0.15	0.58	0.33	0.11
0.0016	1.153	1.0765	0.17	0.13	0.13	0.13	0.60	0.34	0.10
0.0016	1.262	1.131	0.25	0.11	0.11	0.11	0.60	0.34	0.08
0.0016	1.378	1.189	0.32	0.10	0.10	0.10	0.56	0.36	0.07
0.0016	1	1	0.00	0.15	0.16	0.15	0.56	0.29	0.15
0.0016	1.071	1.0355	0.09	0.15	0.15	0.15	0.59	0.33	0.11
0.0016	1.194	1.097	0.17	0.13	0.13	0.13	0.56	0.34	0.10
0.0016	1.33	1.165	0.24	0.11	0.11	0.11	0.55	0.35	0.08
0.0016	1.474	1.237	0.30	0.10	0.10	0.10	0.60	0.36	0.08

Distributeur central*Données expérimentales obtenues pour le chargement sock :*

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1.000	0.00	0.43	0.57	0.50	0.30	0.24	0.24
0.0082	1.115	1.058	0.09	0.41	0.45	0.43	0.53	0.33	0.10
0.0082	1.226	1.113	0.16	0.36	0.37	0.37	0.70	0.40	0.11
0.0082	1.339	1.170	0.24	0.32	0.32	0.32	0.80	0.47	0.13
0.0082	1.452	1.226	0.31	0.29	0.29	0.29	0.88	0.53	0.15
0.0082	1	1	0.00	0.45	0.62	0.53	0.29	0.24	0.26
0.0082	1.119	1.0595	0.09	0.40	0.45	0.42	0.52	0.32	0.10
0.0082	1.228	1.114	0.16	0.36	0.37	0.37	0.67	0.37	0.11
0.0082	1.347	1.1735	0.24	0.32	0.32	0.32	0.81	0.47	0.13
0.0082	1.448	1.224	0.31	0.30	0.30	0.30	0.89	0.54	0.15
0.0064	1	1	0.00	0.33	0.40	0.37	0.34	0.31	0.19
0.0064	1.09	1.045	0.09	0.32	0.37	0.35	0.57	0.29	0.10
0.0064	1.181	1.0905	0.17	0.29	0.32	0.31	0.72	0.39	0.11
0.0064	1.289	1.1445	0.25	0.27	0.28	0.27	0.85	0.47	0.12
0.0064	1.403	1.2015	0.32	0.24	0.25	0.25	0.94	0.55	0.14
0.0064	1	1	0.00	0.34	0.41	0.37	0.35	0.31	0.18
0.0064	1.09	1.045	0.09	0.34	0.39	0.36	0.55	0.29	0.10
0.0064	1.181	1.0905	0.17	0.31	0.33	0.32	0.77	0.42	0.11
0.0064	1.289	1.1445	0.25	0.28	0.28	0.28	0.89	0.51	0.12
0.0064	1.403	1.2015	0.31	0.25	0.25	0.25	0.94	0.54	0.14
0.0046	1	1	0.00	0.25	0.30	0.27	0.43	0.34	0.19
0.0046	1.059	1.0295	0.09	0.24	0.28	0.26	0.55	0.40	0.10
0.0046	1.143	1.0715	0.17	0.23	0.25	0.24	0.83	0.43	0.10
0.0046	1.231	1.1155	0.25	0.21	0.22	0.22	0.94	0.53	0.11
0.0046	1.324	1.162	0.32	0.20	0.20	0.20	1.08	0.61	0.13
0.0046	1	1	0.00	0.25	0.30	0.28	0.45	0.34	0.19
0.0046	1.056	1.028	0.09	0.25	0.29	0.27	0.57	0.40	0.11
0.0046	1.139	1.0695	0.17	0.24	0.26	0.25	0.84	0.45	0.10
0.0046	1.222	1.111	0.26	0.22	0.23	0.23	0.97	0.56	0.12
0.0046	1.316	1.158	0.32	0.20	0.21	0.21	1.04	0.60	0.14
0.0031	1	1	0.00	0.17	0.22	0.20	0.56	0.37	0.18
0.0031	1.035	1.0175	0.09	0.17	0.21	0.19	0.63	0.41	0.12
0.0031	1.096	1.048	0.17	0.16	0.19	0.18	0.83	0.44	0.10
0.0031	1.178	1.089	0.26	0.15	0.17	0.16	1.01	0.49	0.11
0.0031	1.257	1.1285	0.33	0.14	0.16	0.15	1.09	0.57	0.11
0.0031	1	1	0.00	0.18	0.22	0.20	0.56	0.37	0.13
0.0031	1.034	1.017	0.09	0.17	0.21	0.19	0.67	0.40	0.10
0.0031	1.1	1.05	0.17	0.17	0.19	0.18	0.83	0.46	0.09
0.0031	1.175	1.0875	0.26	0.16	0.17	0.16	1.05	0.50	0.09
0.0031	1.257	1.1285	0.33	0.15	0.16	0.15	1.14	0.58	0.11
0.0016	1	1	0.00	0.10	0.14	0.12	0.68	0.37	0.20
0.0016	1.018	1.009	0.09	0.10	0.13	0.11	0.72	0.40	0.11
0.0016	1.057	1.0285	0.18	0.09	0.12	0.10	0.87	0.42	0.11
0.0016	1.112	1.056	0.27	0.09	0.11	0.10	1.12	0.46	0.09
0.0016	1.178	1.089	0.34	0.09	0.10	0.09	1.12	0.48	0.08
0.0016	1	1	0.00	0.10	0.14	0.12	0.68	0.36	0.13
0.0016	1.018	1.009	0.09	0.10	0.14	0.12	0.71	0.36	0.10
0.0016	1.055	1.0275	0.18	0.09	0.12	0.11	0.85	0.39	0.09
0.0016	1.115	1.0575	0.27	0.09	0.11	0.10	1.04	0.43	0.07
0.0016	1.18	1.09	0.34	0.09	0.10	0.09	1.15	0.47	0.07

Données expérimentales obtenues pour le chargement Densel :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1	0.00	0.62	0.66	0.64	0.21	0.20	0.27
0.0082	1.256	1.128	0.08	0.50	0.49	0.50	0.48	0.35	0.11
0.0082	1.431	1.2155	0.15	0.42	0.39	0.41	0.64	0.46	0.15
0.0082	1.546	1.273	0.19	0.38	0.35	0.37	0.72	0.54	0.16
0.0082	1	1	0.00	0.63	0.68	0.65	0.21	0.20	0.20
0.0082	1.26	1.13	0.08	0.51	0.49	0.50	0.51	0.34	0.12
0.0082	1.433	1.2165	0.15	0.41	0.40	0.41	0.64	0.48	0.15
0.0082	1.545	1.2725	0.19	0.38	0.36	0.37	0.71	0.53	0.17
0.0064	1	1	0.00	0.53	0.57	0.55	0.23	0.22	0.22
0.0064	1.207	1.1035	0.08	0.45	0.44	0.44	0.53	0.35	0.12
0.0064	1.354	1.177	0.16	0.38	0.36	0.37	0.70	0.47	0.14
0.0064	1.523	1.2615	0.23	0.32	0.30	0.31	0.81	0.58	0.17
0.0064	1	1	0.00	0.50	0.55	0.53	0.23	0.21	0.24
0.0064	1.186	1.093	0.08	0.45	0.45	0.45	0.51	0.36	0.12
0.0064	1.336	1.168	0.16	0.38	0.36	0.37	0.69	0.49	0.15
0.0064	1.523	1.2615	0.23	0.32	0.30	0.31	0.81	0.59	0.18
0.0046	1	1	0.00	0.40	0.45	0.42	0.26	0.25	0.17
0.0046	1.142	1.071	0.09	0.37	0.38	0.38	0.57	0.38	0.12
0.0046	1.279	1.1395	0.16	0.32	0.30	0.31	0.73	0.49	0.14
0.0046	1.434	1.217	0.23	0.27	0.25	0.26	0.87	0.60	0.17
0.0046	1.524	1.262	0.27	0.25	0.24	0.24	0.91	0.65	0.19
0.0046	1	1	0.00	0.43	0.41	0.42	0.26	0.28	0.23
0.0046	1.14	1.07	0.09	0.38	0.38	0.38	0.56	0.38	0.12
0.0046	1.276	1.138	0.16	0.32	0.31	0.31	0.72	0.50	0.15
0.0046	1.451	1.2255	0.23	0.27	0.25	0.26	0.86	0.60	0.16
0.0046	1.533	1.2665	0.27	0.25	0.24	0.25	0.92	0.67	0.19
0.0031	1	1	0.00	0.30	0.33	0.31	0.38	0.29	0.25
0.0031	1.104	1.052	0.09	0.29	0.30	0.30	0.66	0.39	0.12
0.0031	1.221	1.1105	0.17	0.25	0.24	0.25	0.79	0.48	0.13
0.0031	1.345	1.1725	0.24	0.21	0.21	0.21	0.90	0.61	0.17
0.0031	1.464	1.232	0.30	0.19	0.18	0.18	0.97	0.71	0.21
0.0031	1	1	0.00	0.31	0.34	0.32	0.38	0.29	0.31
0.0031	1.095	1.0475	0.09	0.30	0.31	0.30	0.62	0.38	0.12
0.0031	1.211	1.1055	0.17	0.26	0.25	0.25	0.79	0.48	0.14
0.0031	1.346	1.173	0.24	0.22	0.21	0.21	0.89	0.59	0.17
0.0031	1.47	1.235	0.30	0.19	0.18	0.19	0.98	0.69	0.18
0.0016	1	1	0.00	0.18	0.20	0.19	0.66	0.34	0.13
0.0016	1.05	1.025	0.09	0.18	0.19	0.18	0.81	0.43	0.11
0.0016	1.129	1.0645	0.17	0.16	0.17	0.16	0.92	0.49	0.13
0.0016	1.24	1.12	0.25	0.14	0.14	0.14	1.03	0.57	0.15
0.0016	1.343	1.1715	0.32	0.13	0.12	0.12	1.14	0.66	0.18
0.0016	1	1	0.00	0.18	0.20	0.19	0.66	0.36	0.14
0.0016	1.05	1.025	0.09	0.18	0.19	0.19	0.81	0.43	0.11
0.0016	1.135	1.0675	0.17	0.17	0.17	0.17	0.93	0.51	0.13
0.0016	1.239	1.1195	0.25	0.14	0.14	0.14	1.01	0.58	0.15
0.0016	1.338	1.169	0.32	0.13	0.13	0.13	1.11	0.68	0.18

Données expérimentales obtenues pour le chargement Dense2 :

U_L (m/s)	P_{Sup} (bar)	$P_{Moyenne}$ (bar)	U_G (m/s)	$\overline{\beta}_L$ Sup	$\overline{\beta}_L$ Inf	$\overline{\beta}_L$	$\theta_{Supérieur}$	$\theta_{Inférieur}$	M_f
0.0082	1	1	0.00	0.63	0.80	0.72	0.19	0.24	0.20
0.0082	1.325	1.1625	0.08	0.49	0.49	0.49	0.48	0.30	0.12
0.0082	1.419	1.2095	0.11	0.44	0.45	0.44	0.55	0.35	0.13
0.0082	1.514	1.257	0.15	0.40	0.41	0.41	0.62	0.40	0.14
0.0082	1.61	1.305	0.20	0.38	0.39	0.38	0.68	0.44	0.15
0.0082	1	1	0.00	0.63	0.80	0.72	0.19	0.24	0.20
0.0082	1.324	1.162	0.08	0.48	0.50	0.49	0.49	0.29	0.11
0.0082	1.398	1.199	0.11	0.46	0.46	0.46	0.55	0.36	0.13
0.0082	1.514	1.257	0.15	0.40	0.42	0.41	0.62	0.39	0.14
0.0082	1.601	1.3005	0.18	0.38	0.39	0.38	0.67	0.43	0.15
0.0064	1	1	0.00	0.50	0.73	0.62	0.22	0.39	0.23
0.0064	1.254	1.127	0.08	0.43	0.44	0.43	0.50	0.28	0.12
0.0064	1.413	1.2065	0.15	0.37	0.37	0.37	0.65	0.42	0.13
0.0064	1.602	1.301	0.21	0.32	0.32	0.32	0.79	0.52	0.16
0.0064	1	1	0.00	0.51	0.73	0.62	0.22	0.38	0.18
0.0064	1.251	1.1255	0.08	0.43	0.43	0.43	0.52	0.29	0.11
0.0064	1.431	1.2155	0.15	0.36	0.37	0.36	0.66	0.41	0.13
0.0064	1.593	1.2965	0.21	0.31	0.32	0.32	0.77	0.50	0.16
0.0046	1	1	0.00	0.40	0.68	0.54	0.33	0.47	0.17
0.0046	1.181	1.0905	0.08	0.38	0.38	0.38	0.60	0.30	0.11
0.0046	1.331	1.1655	0.16	0.31	0.31	0.31	0.72	0.41	0.14
0.0046	1.511	1.2555	0.23	0.26	0.28	0.27	0.84	0.52	0.17
0.0046	1.598	1.299	0.26	0.25	0.27	0.26	0.89	0.58	0.19
0.0046	1	1	0.00	0.40	0.67	0.54	0.33	0.47	0.16
0.0046	1.179	1.0895	0.08	0.36	0.38	0.37	0.58	0.31	0.12
0.0046	1.333	1.1665	0.16	0.31	0.32	0.32	0.74	0.41	0.13
0.0046	1.522	1.261	0.23	0.26	0.27	0.26	0.86	0.53	0.17
0.0046	1.606	1.303	0.26	0.24	0.25	0.25	0.91	0.57	0.17
0.0031	1	1	0.00	0.30	0.43	0.37	0.51	0.62	0.16
0.0031	1.122	1.061	0.09	0.29	0.31	0.30	0.69	0.29	0.13
0.0031	1.259	1.1295	0.16	0.24	0.26	0.25	0.83	0.42	0.14
0.0031	1.418	1.209	0.23	0.21	0.22	0.21	0.92	0.50	0.16
0.0031	1.569	1.2845	0.29	0.19	0.20	0.19	1.00	0.59	0.19
0.0031	1	1	0.00	0.30	0.42	0.36	0.52	0.63	0.17
0.0031	1.121	1.0605	0.09	0.29	0.31	0.30	0.72	0.32	0.13
0.0031	1.262	1.131	0.16	0.24	0.26	0.25	0.81	0.41	0.14
0.0031	1.416	1.208	0.24	0.21	0.22	0.21	0.92	0.51	0.16
0.0031	1.573	1.2865	0.29	0.18	0.19	0.19	1.03	0.59	0.19
0.0016	1	1	0.00	0.18	0.19	0.18	0.70	0.41	0.19
0.0016	1.075	1.0375	0.09	0.18	0.20	0.19	0.80	0.36	0.12
0.0016	1.175	1.0875	0.17	0.16	0.17	0.16	0.93	0.40	0.13
0.0016	1.302	1.151	0.25	0.14	0.14	0.14	1.09	0.56	0.13
0.0016	1.43	1.215	0.31	0.12	0.12	0.12	1.02	0.62	0.16
0.0016	1	1	0.00	0.18	0.20	0.19	0.72	0.31	0.16
0.0016	1.065	1.0325	0.09	0.17	0.19	0.18	0.80	0.37	0.12
0.0016	1.177	1.0885	0.17	0.16	0.17	0.16	0.94	0.43	0.13
0.0016	1.303	1.1515	0.25	0.13	0.15	0.14	1.00	0.49	0.14
0.0016	1.395	1.1975	0.31	0.12	0.13	0.12	1.11	0.57	0.17

