

Vers une meilleure distribution des fluides dans les réacteurs polyphasiques

Murilo Ricardo Do Nascimento Arrais

▶ **To cite this version:**

Murilo Ricardo Do Nascimento Arrais. Vers une meilleure distribution des fluides dans les réacteurs polyphasiques. Génie des procédés. Université de Toulouse, 2024. Français. ⟨NNT : 2024TLSEP066⟩. ⟨tel-04709626⟩

HAL Id: tel-04709626

https://theses.hal.science/tel-04709626v1

Submitted on 25 Sep 2024

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.



HAL Authorization

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
Liberté Égalité Fraternité

Université de Toulouse

Doctorat de l'Université de Toulouse

préparé à Toulouse INP

Vers une meilleure distribution des fluides dans les réacteurs polyphasiques

Thèse présentée et soutenue, le 12 juillet 2024 par

Murilo Ricardo DO NASCIMENTO ARRAIS

École doctorale
MEGEP - Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés

Spécialité
Génie des Procédés et de l'Environnement

Unité de recherche
LGC - Laboratoire de Génie Chimique

Thèse dirigée par
Anne-Marie BILLET et Hélène CHAUMAT

Composition du jury
M. Gilles HEBRARD, Président, INSA Toulouse
M. Jean-Marc COMMENGE, Rapporteur, Université de Lorraine
M. Christophe BOYER, Rapporteur, IFP Energies Nouvelles
M. Manuel BACA, Examinateur, Sté GALTENCO
Mme Anne-Marie BILLET, Directrice de thèse, Toulouse INP
Mme Hélène CHAUMAT, Co-directrice de thèse, Université Toulouse III - Paul Sabatier

Membres invités
M. Jean-Jacqes LETOURNEAU, IMT Mines Albi
Mme Isablle PITAULT, LAGEPP

RESUME

La maldistribution des phases dans les réacteurs millistructurés de type monolithe est un inconvénient majeur pour les réactions gaz-liquide, qui freine le déploiement de cette technologie à l'échelle industrielle, alors que ces réacteurs, si la distribution est uniforme, sont réputés plus efficaces que les technologies conventionnelles, entre autres pour les réactions catalytiques. Afin de résoudre ce problème, un distributeur gaz-liquide original avec une géométrie basée sur une jonction en T, et conçu au LGC pour un monolithe à 84 canaux, a été construit par fabrication additive (stéréolithographie) et testé avec un système air-eau.

Pour caractériser la distribution de gaz et de liquide en sortie de distributeur, un capteur résistif spécifique a été développé, qui permet de mesurer la fréquence des bulles, la vitesse des bulles et la rétention de gaz dans tous les canaux simultanément. Cet outil est constitué de circuits imprimés et de 84 paires d'électrodes, qui délivrent à haute résolution temporelle la résistivité équivalente du mélange gaz-liquide traversant chaque canal. Le capteur a été évalué avec une précision de ± 10% pour la mesure de la fréquence de passage de bulles et de ± 20% pour la rétention de gaz et la vitesse des bulles, par référence à l'ombroscopie, utilisée comme technique de référence.

Des essais expérimentaux ont été réalisés pour plusieurs régimes d'écoulement avec le distributeur innovant et le capteur spécifique. Elles ont été comparées à celles réalisées avec un distributeur conventionnel, de technologie basée sur des plateaux perforés. Un critère combinant la fréquence des bulles et l'existence d'un écoulement gaz-liquide d'intérêt (écoulement de Taylor c'est à dire à grosses bulles) dans les canaux est choisi pour évaluer la maldistribution. Le distributeur proposé présente une distribution des fluides plus homogène que celui du distributeur conventionnel, avec une maldistribution de 20% pour tous les régimes, à l'exception du régime à bulles (32%). Pour sa part, le distributeur conventionnel donne en moyenne une maldistribution de 61%. Pour le distributeur innovant, l'impact du matériau et de sa rugosité, l'impact de la géométrie interne du distributeur, ainsi que la stabilité des flux distribués tout au long des canaux monolithiques, ont été étudiés.

Parallèlement, une approche de distribution du temps de séjour est proposée pour modéliser le comportement global de l'écoulement – quantifier la dispersion – au sein du monolithe, à l'aide du modèle Piston-Dispersion-Echange. Pour des couples donnés de débits globaux de gaz et de liquide, cette approche combine la représentation DTS des écoulements de Taylor – attendu au sein des canaux – et la maldistribution observée à l'entrée du monolithe. Pour des maldistributions expérimentales allant jusqu'à 20 % sur la vitesse de bulles et/ou le taux de gaz, le degré de mélange apparent est augmenté : le nombre de Péclet chute d'un facteur de plus de 50, par rapport à celui d'une distribution uniforme de débits équivalents.

Le modèle DTS résultant peut ensuite être couplé à une cinétique de réaction afin de prédire l'avancement de celle-ci à la sortie du réacteur, et permet d'explorer l'impact de maldistributions réalistes sur les performances du réacteur. Pour des maldistributions théoriques allant jusqu'à 50% (en écart-type sur le taux de gaz) et en considérant une cinétique de réaction de pseudo premier ordre couplée au transfert de masse d'un réactif issu de la phase gaz, la performance du réacteur est réduite d'un facteur pouvant atteindre 20%, par rapport à une distribution uniforme.

ABSTRACT

Maldistribution of phases in milli-structured reactors type is a major drawback for gas-liquid reactions, which hinders the deployment of this technology on industrial scale. Indeed, this problem is all the more troublesome for monolith reactors, which are known to be more more efficient than conventional reactors for catalytic reactions if the fluid distribution is uniform. In order to solve this problem, an original gas-liquid distributor with a T-junction based geometry, previously designed in the laboratory for an 84-channel monolith, has been built by additive manufacturing (stereolithography), and tested with air-water system.

To characterize the performed gas and liquid distribution, a specific sensor was developed, which allows measuring bubble frequency, bubble velocity, and gas holdup simultaneously in all channels. This tool consists of printed circuit boards and 84 pairs of electrodes, which deliver at high temporal resolution the equivalent resistivity of the gas-liquid mixture passing through each channel. The sensor was assessed with an accuracy of ± 10% for the measurement of bubble frequency and of ± 20% for gas holdup and bubble velocity, with respect to the shadowgraphy as reference technique.

Experimental essays have been carried out for several flow regimes with the innovative distributor and the specific sensor. They were compared to those performed with a conventional one of showerhead type. A criterion combining bubble frequency and the occurrence of gas-liquid flow of interest (Taylor flow i.e. large bubbles) is chosen to assess maldistribution. The proposed distributor is found to induce a more homogeneous distribution than the conventional one, with a maldistribution of 20% for all regimes, except for bubbly flows (32%). The conventional distributor gives an average of 61% of maldistribution. For the innovative distributor, the impact of the material and its roughness, the impact of the distributor inner geometry, as well as the stability of the distributed flows all along the monolith channels are investigated.

Alongside, a Residence Time Distribution approach is proposed to model the overall flow behaviour – i.e. to quantify its dispersion – within the monolith, using the Piston-Dispersion-Echange model. For a given set of gas and liquid global flow rates, this approach combines the RTD representation of the Taylor flows – which is expected within the channels – and the observed maldistribution at monolith inlet. For experimental maldistributions of up to 20% for bubble velocity and/or gas holdup, degree of apparent mixing is increased: the Peclet number is divided by a factor up to 50, as compared to a uniform distribution.

The resulting RTD model can then be coupled to reaction kinetics in order to predict the reaction yield at reactor outlet, and allows exploring the impact of realistic maldistributions onto the reactor performance. For theoretical maldistributions of up to 50% (gas holdup standard deviation) and considering a pseudo first-order reaction kinetics with gas-liquid mass transfer, the reactor yield is reduced by up to 20%, as compared to a uniform distribution.

TABLE DES MATIERES

Résume ..... **I**

Abstract ..... **III**

Table des matières ..... **V**

Liste des figures ..... **XIII**

Liste des tableaux ..... **XXI**

Nomenclature ..... **XXIII**

Introduction **1**

Chapitre I. Etat de l'art sur les réacteurs monolithes **5**

I.1 Réacteurs monolithes opérés en gaz-liquide et écoulements de Taylor **7**

I.1.1 Réacteur monolithe *7*

I.1.2 Applications des réacteurs monolithes en gaz-liquide ou gaz-liquide-solide *9*

I.1.3 Ecoulement de Taylor *9*

I.1.3.1 Hydrodynamique 10

I.1.3.1.1 Régimes d'écoulement : domaine d'existence de l'écoulement de Taylor 10

I.1.3.1.2 Film de lubrification 13

I.1.3.1.3 Vitesse diphasique et vitesse des bulles 13

I.1.3.1.4 Rétention et taux de gaz 14

I.1.3.1.5 Fréquence de bulles 15

I.1.3.1.6 Longueurs caractéristiques 15

I.1.3.1.7 Perte de charge 16

I.1.3.2 Transfert de masse 17

I.2 Maldistribution en écoulement gaz-liquide **20**

I.2.1 Types de distributeurs utilisés *21*

I.2.2 Méthodes expérimentales pour identifier la maldistribution des fluides *26*

I.2.2.1 Tomographie 26

I.2.2.2 Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) 27

I.2.2.3 Sonde à fibre optique ou sonde d'impédance 27

I.2.2.4 Capteurs électroniques dits « wire-mesh » (mesure de conductivité, ou capacitance) 28

I.2.2.5 Techniques d'imagerie (PIV, ombroscopie) 29

I.2.2.6 Gravimétrie 30

I.2.3 Qualification et critères de la maldistribution dans les réacteurs polyphasiques, dont le monolithe 30

I.3 Distribution de temps de séjour et modèles phénoménologiques de l'hydrodynamique de l'écoulement de Taylor 34

I.3.1 Distribution de temps de séjour 35

I.3.2 Méthodes expérimentales associées à la démarche de DTS 36

I.3.3 Modèles hydrodynamiques classiques 39

I.3.3.1 Modèles idéaux 39

I.3.3.1.1 Modèle d'un Réacteur Piston (RP) 39

I.3.3.1.2 Modèle d'un Réacteur Parfaitement Agité (RPA) 40

I.3.3.2 Modèle des RPA en série (ou en cascade) 40

I.3.3.3 Modèle d'un réacteur piston avec dispersion axiale, ou modèle Piston-Dispersion (PD) 41

I.3.3.4 Modèle de deux RPA en série avec échange 43

I.3.3.5 Modèle de J RPA avec rétro-mélange 44

I.3.4 Modèles hydrodynamiques de la phase liquide adaptés aux écoulements de Taylor 44

I.3.4.1 Modèle d'une association de RPA et de RP 44

I.3.4.2 Modèle d'un Réacteur Piston avec diffusion radiale 45

I.3.4.3 Modèle de Réacteurs Parfaitement Agités avec by-pass 46

I.3.4.4 Modèle d'écoulement Piston-Exchange (PE) 47

I.3.4.5 Modèle d'écoulement Piston-Dispersion-Exchange (PDE) 48

I.4 Conclusion 50

Chapitre II. Materiels et méthodes experimentales 51

II.1 Dispositif expérimental 52

II.1.1 Pilote à 84 canaux alimentés 52

II.1.2 Pilote à 12 canaux alimentés 54

II.2 Description des distributeurs utilisés 55

II.3 Fabrication des pièces du pilote 59

II.3.1 Technique de stéréolithographie 59

II.3.2 Procédure de réalisation des pièces par stéréolithographie 60

II.3.3 Qualification des pièces par tomographie à rayon-X 61

II.4 Méthode de référence pour la mesure des caractéristiques hydrodynamiques sur une rangée de canaux : ombroscopie 63

II.4.1 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour qualifier l'écoulement diphasique 63

II.4.2 Validation des mesures réalisées par ombroscopie 65

II.4.2.1 Conditions opératoires 65

II.4.2.2 Estimation des incertitudes sur les mesures du traitement d'images 67

II.4.2.3 Reconstruction des débits globaux 68

II.5 Conclusion 70

Chapitre III. Capteur résistif multicanaux 71

III.1 Introduction 73

III.2 Article : « Innovative fast-dynamic tool to characterize maldistribution in gas-liquid multi-channel reactors » 74

III.2.1 Introduction 74

III.2.2 Capteur résistif 75

III.2.2.1 Principe de mesure 75

III.2.2.2 Lien théorique entre le signal du capteur et l'hydrodynamiques des écoulements 76

III.2.2.2.1 Phénomènes impliqués sur le volume interrogé entre les électrodes 76

III.2.2.2.2 Modélisation du signal du capteur 77

III.2.2.3 Analyse du signal temporal théorique 77

III.2.3 Matériels et méthodes expérimentales 77

III.2.3.1 Dispositif expérimental et conditions opératoires 77

III.2.3.2 Ombroscopie : traitement d'images 79

III.2.3.3 Capteur résistif : formatage du signal brut 80

III.2.4 Stratégie pour extraire les caractéristiques gaz-liquide du signal du capteur ... 80

III.2.4.1 Identification de la fréquence de bulle 80

III.2.4.2 Mesure de taux de vide 80

III.2.4.2.1 Méthode de la dérivée 80

III.2.4.2.2 Méthode de l'intégrale 80

III.2.5 Mesure de vitesse de bulle 81

III.2.5.1.1 Méthode de la dérivée 81

III.2.5.1.2 Méthode de la tangente 82

III.2.6 Application et évaluation du traitement du signal aux données expérimentales 82

III.2.6.1 Résultats préliminaires 82

III.2.6.2 Investigation de l'hydrodynamique avec de différentes méthodes pour l'écoulement de Taylor 82

III.2.6.2.1 Fréquence de bulle 82

III.2.6.2.2 Vitesse de bulle 84

III.2.6.2.3 Taux de vide 84

III.2.6.2.4 Méthodologie optimale et validation *via* bilan matière 84

III.2.6.3 Investigation de l'hydrodynamique avec de différentes méthodes pour tous les écoulements considérés 84

III.2.7 Conclusion 86

III.3 Conclusion 88

Chapitre IV. Etude de la maldistribution et comparaison des distributeurs 89

IV.1 Critères de maldistribution pour les écoulements de Taylor 91

IV.2 Influence du matériau du distributeur sur les écoulements distribués dans 12 canaux 94

IV.2.1 Caractérisation des matériaux 94

IV.2.2 Conditions opératoires testées 98

IV.2.3 Structure des écoulements à l'aide des images 98

IV.2.4 Structure des écoulements à l'aide du capteur 100

IV.2.5 Critères de maldistribution 104

IV.3 Influence de la géométrie du distributeur sur les écoulements distribués dans 12 canaux 108

IV.3.1 Configurations et conditions opératoires testées 108

IV.3.2 Structure des écoulements à l'aide des images des écoulements 108

IV.3.3 Structure des écoulements à l'aide du capteur 109

IV.3.4 Résultats sur les critères de maldistribution 113

IV.4 Configuration à privilégier pour « DistriGazLi » en vue d'obtenir des écoulements de Taylor 115

IV.5 Impact de la perte de charge globale sur la qualité de distribution, pour le distributeur « DistriGazLi » 116

IV.5.1 Modification du pilote 116

IV.5.2 Influence de la longueur du réacteur sur la qualité de la distribution au sortir du distributeur 118

IV.5.3 Influence de la perte de charge totale dans le réacteur sur la qualité de la distribution au sortir du distributeur 121

IV.6 Evolution spatiale des écoulements issus du « DistriGazLi » 124

IV.6.1 Modification du pilote 124

IV.6.2 Résultats sur les critères de maldistribution 126

IV.7 Comparaison des distributeurs à 84 canaux 129

IV.7.1 Configurations et conditions opératoires testées 129

IV.7.2 Résultats sur les critères de maldistribution 130

IV.7.2.1 Analyse des distributions obtenues avec les deux distributeurs 131

IV.7.2.2 Introduction d'un nouveau critère de maldistribution 138

IV.8 Conclusion 139

Chapitre V. Développement d'un modèle phénoménologique pour un réacteur monolithe en écoulement de Taylor avec maldistribution 141

V.1 Démarche d'identification d'un modèle hydrodynamique pour un réacteur monolithe 144

V.2 Matériels et méthodes de la campagne de DTS expérimentale 146

V.2.1 Description de la configuration du pilote et du système d'injection du traceur 146

V.2.2 Protocole de traçage et campagne d'expériences 147

V.3 Résultats et analyse des signaux de traçage des canaux 150

V.3.1 Courbes temporelles de traçage 150

V.3.2 Analyse des courbes de traçage 155

V.3.3 Suite de la démarche 158

V.4 Modèle hydrodynamique Piston-Dispersion-Echange pour l'écoulement de Taylor 158

V.4.1 Mise en place du modèle Piston-Dispersion-Echange 158

V.4.2 Description de la méthode numérique utilisée pour modéliser le transport d'espèces en écoulement de Taylor sur la base du modèle hydrodynamique PDE 161

V.4.3 Analyse de sensibilité des courbes DTS aux paramètres du modèle en canal unique 161

V.4.4 Lien « physique » entre les caractéristiques de l'écoulement de Taylor et les paramètres du modèle choisi : Dax, k.a et ϕ, puis $PePDE$ et N 166

V.4.4.1 Coefficient de dispersion axiale 166

V.4.4.2 Coefficient d'échange entre les zones dynamique et stagnante 168

V.4.4.3 Fraction volumique liquide de la zone dynamique 169

V.4.4.4 Nombre de Péclet $PePDE$ 170

V.4.4.5 Nombre adimensionnel d'échange entre zones : N 170

V.4.4.6 Synthèse : impact des caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement de Taylor sur les paramètres du modèle PDE 171

V.4.5 Cas du réacteur monolithe : association des canaux en parallèle 171

V.5 Influence de la maldistribution sur la DTS du monolithe : étude *via* le modèle PDE 172

V.5.1 Démarche de la modélisation de l'hydrodynamique globale d'un réacteur monolithe soumis à une maldistribution 172

V.5.1.1 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour des distributions de phases théoriques 172

V.5.1.2 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour des distributions des phases expérimentales 174

V.5.1.3 Démarche de modélisation développée 175

V.5.2 Maldistributions artificielles des phases : étude de l'impact sur le degré de mélange apparent du monolithe 176

V.5.2.1 Distribution basée sur la variation des vitesses de bulles U_b 178

V.5.2.2 Distributions basées sur la variation des taux de gaz ε_G 181

V.5.3 Maldistributions expérimentales des phases : étude de l'impact sur le degré de mélange apparent du monolithe 184

V.5.3.1 Effet des paramètres hydrodynamiques expérimentaux, en supposant une distribution uniforme 186

V.5.3.2 Effet couplé des distributions sur U_b et ε_G 189

V.5.4 Synthèse, recommandations 194

V.6 Couplage du modèle hydrodynamique d'un monolithe complet avec une réaction chimique en phase liquide 195

V.6.1 Modèle PDE avec terme source de réaction, et méthode de résolution 195

V.6.1.1 Couplage du modèle PDE avec le terme source de réaction chimique et le terme de transfert de masse gaz-liquide : 195

V.6.1.2 Modélisation du transfert de masse gaz-liquide pour l'absorption réactive d'un gaz A dans un liquide B en excès (cas 3 et 4) 196

V.6.1.3 Calcul du rendement global sur le réacteur 198

V.6.1.4 Maldistributions étudiées, performance du réacteur et choix des grandeurs fixes du problème : 199

V.6.2 Maldistributions artificielles des phases : étude de l'impact sur la performance du monolithe 200

V.6.2.1 Cas 1 : réaction sans transfert de masse 201

V.6.2.2 Cas 2 : transfert de masse sans réaction 203

V.6.2.3 Cas 3 : réaction avec transfert de masse sans pré-saturation de gaz dans la phase liquide 206

V.6.2.4 Cas 4 : réaction avec transfert de masse avec une pré-saturation de gaz dans la phase liquide 210

V.6.2.5 Synthèse de l'impact de maldistributions théoriques sur la performance chimique du monolithe de 12 canaux 213

V.6.3 Perspectives : étude de l'impact de maldistributions expérimentales des phases sur la performance du monolithe 214

V.7 Conclusion 215

Conclusion générale 217

Références XXVII

Annexes XXXVII

A. Annexes concernant les techniques de mesure (chapitres II et III) XXXVII

B. Annexes du Chapitre IV XLIV

C. Annexes du Chapitre V XLVIII

LISTE DES FIGURES

Figure I-1. a) Schéma d'un réacteur monolithe couplé avec un système de distribution et de séparation gaz-liquide. b) schéma d'un bloc monolithe similaire au prototype utilisé dans ces travaux de thèse (voir Chapitre II). 8
Figure I-2. Exemple d'écoulements de Taylor obtenus lors d'expériences réalisées dans cette thèse, pour un monolithe à 12 canaux de 2 mm de diamètre interne (voir Chapitre II)..... 10
Figure I-3. Schémas d'écoulements observés en capillaire annulaire. (a, b) : régime à bulles, (c, d) : régime de Taylor, (e) : transition Taylor/churn, (f) : régime churn, (g) régime à film, (h) régime annulaire. Figure tirée de Kreutzer et coll. (2005c). 11
Figure I-4. Cartographie des régimes hydrodynamiques pour le système air-eau pour trois canaux à sections rondes de diamètres de 1, 2 et 3 mm. Le régime de Taylor correspond ici au « plug » (□). Figures tirées de Yang et Shieh (2001). 12
Figure I-5.Schéma de la géométrie d'une cellule unitaire considérée dans ce travail (en gris, le liquide, et en blanc, le gaz) et ses caractéristiques: les longueurs de la cellule unitaire L_{UC}, de bulle L_b, de bouchons (ou slugs de liquide) L_{slug}, du film de lubrification L_f, les diamètres de bulle d_b et du canal d_c, le rayon de bulle r_b et l'épaisseur du film δ. 15
Figure I-6. Exemple d'une maldistribution de phases issue des expériences réalisées dans cette thèse, pour un monolithe à 12 canaux (voir Chapitre II)..... 21
Figure I-7. Schéma des distributeurs : a) injecteur à aiguilles (figure tirée de Meitzner et coll. (2017) ; b) buse à pulvérisation. 22
Figure I-8. Schémas de distributeurs. a) Pomme de douche (par plateau perforé), figure tirée de Lei et coll. (2020) ; b) Section droite de la géométrie du distributeur en « faisceau de tubes » utilisé dans les travaux de Zhou et coll. (2012) ; les espacements notés ϕ sont donnés en mm ; figure tirée de Zhou et coll. (2012). 22
Figure I-9. Schémas des distributeurs : a) lit de billes ; b) lit de mousse. 23
Figure I-10. Schémas des distributeurs : a) jonction en T ; b) structure à bifurcation. 24
Figure I-11. Distribution de taux de gaz dans un réacteur monolithe à partir de la technique de tomographie aux rayon-X ultrarapide. a) image brute d'atténuation ; b) image traitée. Figures tirées de Schubert et coll. (2016). 26
Figure I-12. Distribution de taux de gaz dans un réacteur à lit ruisselant à partir de la technique de RMN. a) image brute issue de RMN ; b) image traitée où sont visibles les phases solides (en noir), liquides (en blanc) et gaz (en gris). (Figures tirées de Gladden et coll. (2003)..... 27
Figure I-13. Exemples d'écoulements de Taylor obtenus par ombroscopie sur une rangée de 12 canaux transparents : a) image brute; b) image traitée. 30
Figure I-14. Exemple de cartographie de rétention liquide (avec u_L = 0,1 m/s et u_G = 0,2 m/s) et de profil radial de rétention liquide (avec u_G = 0,2 m/s) dans un monolithe circulaire. Figures tirées de Roy et coll. (2019). 31
Figure I-15. Comparaison du critère de maldistribution MDF pour différents distributeurs gaz-liquide par la technique de mesure gravimétrique (issu de Meitzner et coll, 2017)..... 32
Figure I-16. Exemple de cartographie et d'histogramme des vitesses de phases u_{TP} des écoulements de Taylor dans un monolithe, utilisés comme des critères de maldistribution. Figures tirées de Schubert et coll. (2016). 33

Figure I-17. Degré d'uniformité des trois types de distributeurs (■ pomme de douche, u_L =0,075 m/s ; ● faisceau de tubes, u_L =0,075 m/s, ○ u_L= 0,1 m/s ; ▲ buse, u_L 0,075 m/s, △ u_L = 0,1 m/s). Figure tirée de Zhou et coll. (2012). 34
Figure I-18. Schéma du modèle des deux RPA avec échange. 43
Figure I-19. Schéma du modèle hydrodynamique basé sur la représentation des bouchons parfaitement mélangés reliés par des films à comportement piston. 45
Figure I-20. Schéma de l'écoulement de Taylor, avec les régions de bouchon (avec recirculation) et de film. Figure tirée de Thulasidas et coll. (1999). 46
Figure I-21. Schéma du modèle des RPA en série avec by-pass, appliqué aux écoulements de Taylor 46
Figure I-22. Schéma du modèle PE. 47
Figure I-23. Schéma du modèle PDE. 49
Figure II-1. Schéma du dispositif expérimental comportant 84 canaux alimentés en air et eau. 53
Figure II-2. Schéma (à gauche) et image (à droite) du dispositif expérimental modifié avec 12 canaux alimentés. 55
Figure II-3. Prototype et schéma du distributeur gaz-liquide « DistriGazLi ». 56
Figure II-4. Prototype et schéma du distributeur gaz-liquide « pomme de douche ». 57
Figure II-5. Prototype du « distributeur à barrette amovible » possédant 12 canaux pouvant être alimentés (la barrette a été décalée pour la photo ; en fonctionnement, la barrette affleure avec le reste du distributeur), et vue du dessous du distributeur. 58
Figure II-6. Barrettes amovibles utilisées pour cette étude : Invicta (noire), Vitra (transparente) et PA12 (grise). 58
Figure II-7. Schéma du procédé de stéréolithographie (ou photopolymérisation). 59
Figure II-8. Imprimante 3D (DWS XFAB 3500 PD, DWS Systems) utilisée pour la réalisation des pièces du pilote par stéréolithographie. : vue arrière et vue avant. 60
Figure II-9. Organigramme de la procédure de réalisation d'une pièce par impression 3D. 61
Figure II-10. Image de coupe du distributeur « Distrigazli » (section droite), obtenue par tomographie à rayon-X, et image binarisée pour l'analyse des diamètres de capillaire. 62
Figure II-11. Exemple d'écoulements diphasiques sur 12 canaux, obtenus à l'aide du dispositif de visualisation : a) image brute enregistrée par la caméra ; b) image de bulles binarisées et « remplies » après traitement d'image. 63
Figure II-12. Organigramme général du script de traitement d'images. 65
Figure II-13. Cartographie des écoulements obtenus en régime de Taylor et à bulles, pour les expériences du tableau II-2. 66
Figure II-14. Validation des mesures hydrodynamiques par traitement d'images : reconstitution des débits de liquide globaux à partir des débits individuels dans les 12 canaux, eux-mêmes calculés via les valeurs mesurées de Ub et εG. 69
Figure IV-1. Signal de tension filtré délivré par le capteur résistif pour : a) un écoulement diphasique de Taylor ; b) un écoulement monophasique liquide ou gazeux ; c) un écoulement diphasique à bulles, non exploitable quantitativement dû à une faible amplitude du signal. .. 93
Figure IV-2. Barrettes amovibles utilisées pour cette étude, réalisées dans trois matériaux différents : Invicta (noire), Vitra (transparente) et PA12 (grise). 95

Figure IV-3. Exemple de mesure sur une goutte. En bleu apparait la ligne de base et le contour de la goutte approximé par une ellipse. En vert apparaît le résultat de la mesure. Le contour détecté est normalement affiché en rouge, mais il est ici entièrement recouvert par le contour obtenu par approximation. 95
Figure IV-4. Tensiomètre (Krüss DSA100) utilisé pour les mesures d'angles de contact. 96
Figure IV-5. Cartographie des écoulements obtenus pour les 3 matériaux utilisés (Invicta, Vitra et PA12) en fonction des 4 conditions opératoires testées. 99
Figure IV-6.Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°2 101
Figure IV-7. Distribution entre canaux de la fréquence de passage de bulles, de la vitesse de bulles et de taux de gaz pour les résines PA12, Invicta et Vitra dans les conditions de l'expérience n° 2. Les barres d'erreur correspondent à la précision de mesure selon le capteur résistif : ±10% pour f_b et ±20% pour U_b et ε_G. 105
Figure IV-8. Ecart-type normé de la fréquence de passage des bulles f_b calculé pour 12 canaux, pour les 4 expériences réalisées. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience. 106
Figure IV-9. Ecarts-types normés de vitesse des bulles U_b et taux de gaz ε_G calculés pour 12 canaux, pour les 4 expériences réalisées. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience. 106
Figure IV-10. Effet des vitesses superficielles de liquide et gaz sur l'écart-type normé de fréquence des bulles : expériences 1 et 2 avec $u_{G,moy}$ = 0,39 m/s (à gauche) ; expériences 2 et 4 avec $u_{L,moy}$ = 0,18 m/s (à droite). Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience. 107
Figure IV-11. Cartographie des écoulements obtenus pour les 3 diamètres d'orifices latéraux utilisés (0,001 m, 0,0015 m, 0,002 m) en fonction des 3 conditions opératoires testées. 109
Figure IV-12. Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°3, obtenus avec 3 diamètres différents d'orifices latéraux d'injection du gaz. 110
Figure IV-13. Distribution entre canaux de la fréquence de passage de bulles, de la vitesse de bulles et de taux de gaz pour des diamètres d'orifice de 0,001m, 0,0015 m et 0,002 m dans les conditions de l'expérience n° 3. Les barres d'erreur correspondent à la précision des mesures issues du capteur résistif – 10% pour f_b et 20% pour U_b et ε_G. 113
Figure IV-14. Ecarts-types normés de fréquence de passage des bulles f_b, vitesse des bulles U_b et taux de gaz ε_G calculés sur 12 canaux, pour les 3 expériences réalisées. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience. 115
Figure IV-15. Schémas du dispositif expérimental modifié (12 canaux) permettant l'observation des écoulements après le distributeur pour différentes longueurs de canaux : a) configuration 1 (5 cm) ; b) configuration 2 (20 cm) ; c) configuration 3 (35 cm) 117
Figure IV-16. Cartographie des écoulements obtenus pour 3 configurations du capteur résistif, pour les 3 expériences réalisées. 118
Figure IV-17. Valeurs moyennées sur 12 canaux des caractéristiques hydrodynamiques des écoulements générés lors des trois conditions de débits de gaz et de liquide, et pour trois

longueurs totales de monolithe. a) Fréquence de bulle ; b) vitesse de bulle ; c) taux de gaz. 119
Figure IV-18. Ecarts-types sur 12 canaux des caractéristiques hydrodynamiques pour les écoulements générés lors des trois conditions de débits de gaz et de liquide, et pour trois longueurs totales de monolithe. a) Fréquence de bulle ; b) vitesse de bulle ; c) taux de gaz. 120
Figure IV-19. Perte de charge dans le réacteur en fonction de la longueur totale de l'appareil, calculée avec le modèle présenté par Kreutzer et coll. (2005b), avec et sans prise en compte du terme de pression de Laplace. 121
Figure IV-20. Perte de charge linéique dans le réacteur, calculée avec le modèle présenté par Kreutzer et coll. (2005b), tracée en fonction des caractéristiques hydrodynamiques (moyennées sur 12 canaux) pour les trois conditions expérimentales et les 3 longueurs d'appareil. 122
Figure IV-21.Ecarts-types sur les caractéristiques hydrodynamiques (sur 12 canaux) en fonction de la perte de charge globale dans le réacteur, pour les trois conditions expérimentales. 123
Figure IV-22. Schémas du dispositif expérimental modifié (12 canaux) permettant l'observation des écoulements soit après le distributeur et le premier bloc monolithe, soit après le distributeur et le second bloc monolithe. 125
Figure IV-23. Cartographie des écoulements obtenus pour 3 positions du capteur résistif, pour les 3 expériences réalisées. 126
Figure IV-24. Evolution des paramètres hydrodynamiques en fonction de la position du capteur dans le pilote : 1 – après le distributeur, 2 – après le 1er monolithe, 3 – après le 2e monolithe. Les barres d'erreur correspondent à la précision des mesures issues du capteur résistif – 10% pour f_b et 20% pour U_b et ε_G. 128
Figure IV-25. Ecarts-types normés de vitesse des bulles U_b et de taux de gaz ε_G calculés pour 12 canaux, en fonction de la position du capteur dans le pilote : 1 – après le distributeur, 2 – après le 1er monolithe, 3 – après le 2e monolithe. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience. 129
Figure IV-26. Exemples de distribution spatiale de fréquence de bulles dans les 84 canaux du distributeur « DistriGazLi » : a) expérience n° 7 ($u_{L,moy}$ = 0,08 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,47 m/s), b) expérience n° 24 ($u_{L,moy}$ = 0,14 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,07 m/s), c) expérience n° 30 ($u_{L,moy}$ = 0,16 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,16 m/s). 132
Figure IV-27. Exemples de distribution spatiale de fréquence de bulles f_b dans les 84 canaux du distributeur « pomme de douche » : a) expérience n° 7 ($u_{L,moy}$ = 0,08 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,47 m/s), b) expérience n° 24 ($u_{L,moy}$ = 0,14 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,07 m/s), c) expérience n° 30 ($u_{L,moy}$ = 0,16 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,16 m/s). 132
Figure IV-28. Photo du prototype du distributeur « pomme de douche » prise lors d'une expérience, où une poche d'air entourée d'un film liquide est formée dans la chambre de mélange diphasique. 133
Figure IV-29. Ecoulements gaz-liquide observés sur les canaux transparents du monolithe provenant des distributeurs : a) « DistriGazLi » avec écoulements poche-bouchons (à gauche) ; b) pomme de douche en régime stratifié (à droite). 133
Figure IV-30. Comparaison des écarts-types normés de fréquence de bulles f_b, calculés sur 84 canaux pour les 35 expériences réalisées : a) distributeur « DistriGazLi » ; b) distributeur en

« pomme de douche ». Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience. 134
Figure IV-31. Ecart-type normé de fréquence de bulles en fonction des vitesses superficielles a) de liquide et b) de gaz pour le distributeur « DistriGazLi ». 135
Figure IV-32. Ecart-type normé de fréquence de bulles en fonction des vitesses superficielles a) de liquide et b) de gaz pour le distributeur en « pomme de douche ». 135
Figure IV-33. Comparaison de l'écart-type normé de fréquence de bulles en fonction des vitesses superficielles de fluides, pour les 2 distributeurs testés. Pour plus de lisibilité les barres d'erreur ont été enlevées. 136
Figure IV-34. Histogrammes du nombre des canaux comportant des écoulements dégradés gaz et liquide en fonction du n° d'essai (nombre total d'essais = nombre d'expériences (35) x nombre de répétabilités (6)), pour les distributeurs « DistriGazLi » et « pomme de douche ». 137
Figure IV-35. Comparaison du critère combiné de maldistribution en fonction des vitesses superficielles des fluides, pour les 2 distributeurs testés. 138
Figure V-1. Schéma du dispositif expérimental utilisé pour l'étude DTS. 147
Figure V-2. Protocole des expériences de traçage. 148
Figure V-3. Ecoulements correspondant aux expériences de traçage. 149
Figure V-4. Mesure de vitesse d'ensemble des écoulements de la campagne DTS : vérification de la cohérence entre les 2 méthodes de mesure. 150
Figure V-5. Zoom sur des signaux bruts de traçage du canal 1, obtenus avec les 2 capteurs résistifs, pour l'expérience n° 1. 151
Figure V-6. Signaux temporels de traçage, après application d'un filtre passe-bas (10 Hz) ; a) expérience n° 1 ; b) expérience n° 5 ; c) expérience 11. 152
Figure V-7. Temps de passage de l'écoulement entre les 2 capteurs résistifs, obtenus par corrélation croisée des signaux temporels, pour chacun des 12 canaux et chacune des 12 conditions expérimentales testées. 157
Figure V-8. a) Schéma d'un écoulement monophasique liquide en canal avec zone dynamique et zone morte, tel que pris en compte par le modèle PDE ; b) Schéma de la géométrie considérée dans ce travail pour appliquer le modèle PDE à un écoulement de Taylor : dans la cellule unitaire, la zone quadrillée représente la zone liquide dynamique, la zone hachurée représente la zone liquide stagnante. 159
Figure V-9.Exemple de tracé des évolutions temporelles des concentrations en traceur en sortie de canal, en réponse à un signal de type Dirac à l'entrée (L_C = 0,15 m ; Dax,i= 5.10^{-3} m^2/s; Ub,i= 1,12 m/s; ϕi= 0,87; $kiai$= 1,25 s^{-1}) ; a) concentration Cd,i : zone dynamique de l'écoulement liquide ; b) concentration Cst,i : zone statique de l'écoulement liquide 160
Figure V-10. Courbes DTS non dimensionnelles obtenues pour diverses valeurs de Pe_{PDE}, N et ϕ. 163
Figure V-11. Effet de ϕ sur la variance des courbes adimensionnelles du modèle PDE, à Pe_{PDE} et N fixés pour les simulations N° 1, 2, 3, 10, 11, 12, 25, 26 et 27. 164
Figure V-12. Effet de Pe_{PDE} sur la variance des courbes du modèle PDE, à N et ϕ fixés pour les simulations N° 3, 5, 7, 12, 14, 16, 21, 23 et 25. 165
Figure V-13. Effet de N sur la variance des courbes non dimensionnelles issues du modèle PDE, à Pe_{PDE} et ϕ fixés pour les simulations N° 3, 6, 9, 11, 14, 17, 19, 22, 25. 165

Figure V-14. Coefficients de dispersion axiale pour l'écoulement liquide d'un train de bulles dans des capillaires circulaires de 2 mm de diamètre, en fonction du nombre Capillaire. ○ expérimental, ■ théorie (Tiré de Thulasidas et coll., 1999). 167
Figure V-15.Organigramme de la démarche de calcul appliquée pour étudier l'effet de la maldistribution des phases sur le degré de mélange apparent d'un réacteur monolithe. 176
Figure V-16. Schéma des distributions artificielles générées (représentation de 4 canaux seulement), à taille de bulle fixée ; a) maldistribution en vitesse de bulle, avec taux de gaz constant ; b) maldistribution en taux de gaz, avec vitesse de bulle constante..... 177
Figure V-17. Distribution des débits de liquide et de gaz dans les canaux pour les cas n° 1 à 5. 179
Figure V-18. Courbes DTS des 12 canaux et courbe DTS du monolithe pour les cas n° 1 à 5. 180
Figure V-19. Nombre de Péclet Pe et nombre N_{RPA} de RPA en série calculés pour le monolithe global, en fonction du niveau de maldistribution (écart-type) sur la vitesse de bulles U_b dans les 12 canaux..... 181
Figure V-20. Distribution des débits de liquide et de gaz dans les canaux pour les cas n° 1 et 6 à 9. 182
Figure V-21. Courbes DTS des 12 canaux et courbe DTS du monolithe pour les cas n° 1 et 6 à 9. 183
Figure V-22. Nombre de Péclet Pe et nombre N_{RPA} de RPA en série calculés en fonction du niveau de maldistribution (écart-type) sur le taux de gaz ε_G dans les 12 canaux..... 184
Figure V-23. Cartographie des écoulements utilisés pour l'étude de l'impact de la maldistribution (expérimentale) sur le degré de mélange apparent, avec l'ajout des expériences 13 et 14 par rapport à la campagne des expériences de traçage (barrette en PA12). 186
Figure V-24. Exemples de courbes DTS associées aux distributions uniformes construites sur la base des distributions expérimentales dans 12 canaux. a) Expérience 1 ; b) Expérience 12. 187
Figure V-25. Impact de la vitesse de bulles sur Pe_u et $N_{RPA,u}$ (en distribution uniforme dans 12 canaux). 188
Figure V-26. Impact du taux de gaz sur Pe_u et $N_{RPA,u}$ (en distribution uniforme dans 12 canaux). 188
Figure V-27. Impact sur et Pe et N_{RPA} de la distribution de la vitesse de bulles, en distribution expérimentale dans 12 canaux..... 190
Figure V-28. Impact sur et Pe et N_{RPA} de la distribution du taux de gaz, en distribution expérimentale dans 12 canaux..... 190
Figure V-29. Impact sur ΔPe et ΔN_{RPA} de la distribution de la vitesse de bulles, en distribution expérimentale dans 12 canaux..... 191
Figure V-30. Impact sur ΔPe et ΔN_{RPA} de la distribution du taux de gaz, en distribution expérimentale dans 12 canaux..... 191
Figure V-31. Impact sur ΔD_{ax} de la distribution de la vitesse de bulles, en distribution expérimentale dans 12 canaux..... 192
Figure V-32. Impact sur ΔD_{ax} de la distribution du taux de gaz, en distribution expérimentale dans 12 canaux. 192

Figure V-33. Impact sur ΔD_{ax} a) de la distribution des vitesses de bulle, avec courbe de tendance quadratique ; b) de la distribution des vitesses de bulle, avec courbe de tendance exponentielle ; et c) de la distribution du taux de gaz, en distributions expérimentales et théoriques dans 12 canaux..... 193
Figure V-34. Valeurs de flux molaires convertis en A dans tous les canaux, en zone dynamique et en zone statique de la phase liquide, pour la maldistribution théorique n°5. 201
Figure V-35. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide pour (a) la distribution théorique en U_b n° 5, et (b) la distribution théorique en ε_G n° 9, pour les 12 canaux du monolithe, et pour le cas d'une réaction sans transfert de masse. En pointillés noirs sur les graphes : distribution uniforme (n° 1)..... 202
Figure V-36. Performance du réacteur en terme de flux converti en réactif A en zone dynamique de la phase liquide, par référence au cas d'une distribution uniforme de vitesse moyenne de bulle et de taux de gaz moyen identique, et pour le cas d'une réaction sans transfert de masse ; a) distributions théoriques n° 1 à 5 ; b) distributions théoriques n° 1 et n°6 à 9. 203
Figure V-37. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide en transfert gaz-liquide et sans réaction chimique. a) distribution en U_b n° 5 ; b) distribution en ε_G n° 9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1). 204
Figure V-38. Performance du réacteur en termes d'écart relatif de la concentration « mixing cup » de sortie, par référence au cas d'une distribution uniforme de vitesse moyenne de bulle et de taux de gaz moyen identique, et pour le cas du transfert de masse sans réaction ; a) distributions théoriques en U_b (n° 1 à 5) ; b) distributions théoriques en ε_G (n°6 à 9)..... 205
Figure V-39. Concentration « mixing cup » en réactif A du monolithe de 12 canaux pour les 9 distributions théoriques étudiées ; cas du transfert de masse sans réaction. 205
Figure V-40. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide non pré-saturé en A, et pour le cas k_r=0,063 s^{-1} (réaction lente devant le transfert gaz-liquide). a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1)..... 206
Figure V-41. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide non pré-saturé en A, et pour le cas k_r=0,63 s^{-1} (réaction et transfert gaz-liquide de dynamiques équivalentes). a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs sur les graphes : distribution uniforme (n° 1)..... 207
Figure V-42. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide non pré-saturé en A, et pour le cas k_r=6,3 s^{-1} (réaction rapide devant le transfert gaz-liquide). a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1)..... 207
Figure V-43. Rendement global en réactif A du monolithe de 12 canaux pour les 9 distributions théoriques étudiées ; cas de la réaction lente, modérée et rapide. 208
Figure V-44. Impact de la maldistribution de vitesse de bulle sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide non pré-saturée. 209
Figure V-45. Impact de la maldistribution de taux de gaz sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide non pré-saturée. 209

Figure V-46. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques et pour le cas k_r=0,063 s^{-1} (réaction lente devant le transfert gaz-liquide), et liquide pré-saturé. a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1). 210
Figure V-47. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques et pour le cas k_r=0,63 s^{-1} (réaction de dynamique équivalente à celle du transfert gaz-liquide), et liquide pré-saturé. a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1)..... 211
Figure V-48. Profils axiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques et pour le cas k_r=6,3 s^{-1} (réaction rapide devant le transfert gaz-liquide), et liquide pré-saturé. a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1). 211
Figure V-49. Profils axiaux du facteur d'accélération E en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques avec maldistribution en U_b, et pour les cas : a) k_r=0,63 s^{-1} ; b) k_r=6,3 s^{-1}..... 212
Figure V-50. Rendement global du monolithe de 12 canaux pour les 9 distributions théoriques étudiées ; cas de la réaction lente, modérée et rapide..... 212
Figure V-51. Impact de la maldistribution en vitesse de bulles sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide pré-saturée. 213
Figure V-52. Impact de la maldistribution en taux de gaz sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide pré-saturée. 213

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I-1. Aperçu d'études expérimentales de distribution des fluides en monolithe réalisées en réacteur monolithe, trouvées dans la littérature. 25
Tableau I-2. Techniques de traçage et traceurs utilisés selon la phase d'écoulement caractérisé (Houzelot, 2013). 37
Tableau I-3. Aperçu d'études expérimentales de DTS en phase liquide (adapté de Bérard et coll., 2019) ; pour les modèles : PD=Piston-Dispersion, Piston-RPA=association de réacteurs Piston et de Réacteurs Parfaitement Agités, PDE=Piston-Dispersion-Echange, PE=Piston-Echange. (* : réalisé en monolithe) 38
Tableau I-4. Fonction de transfert G(s), temps de séjour moyen et variance du modèle piston dispersion en fonction des conditions aux limites. 42
Tableau II-1. Résultats des diamètres moyens des canaux des pièces, obtenus par le traitement des images issues de la tomographie des rayon-X. 62
Tableau II-2. Expériences réalisées dans cette étude ; les régimes d'écoulement observés sur les images enregistrées sont appelés « ET » = écoulement de Taylor, ou « EB » = écoulement à bulles. 67
Tableau IV-1. Conditions pour classer les écoulements en monophasique ou diphasique. 94
Tableau IV-2. Mesures de mouillabilité par l'eau et de rugosité des matériaux testés (*Rosso et coll., 2020). 97
Tableau IV-3. Expériences réalisées pour l'étude de l'effet du matériau. 98
Tableau IV-4.Expériences réalisées pour l'étude de l'effet du diamètre d'orifices latéraux d'injection de gaz. 108
Tableau IV-5. Expériences réalisées pour l'étude de l'évolution spatiale des écoulements (barrette en Invicta, avec un diamètre d'orifice de 0,0015 m). 116
Tableau IV-6. Expériences réalisées pour l'étude de la stabilité des écoulements le long des canaux (barrette en Invicta, avec un diamètre d'orifice de 0,0015 m). 124
Tableau IV-7. Expériences réalisées pour la comparaison des distributeurs avec alimentation de 84 canaux ; $u_{G,moy}$ et $u_{L,moy}$ sont les vitesses superficielles dans un canal pour une distribution uniforme ; $\beta_{G,moy}$ est déduit des valeurs des vitesses superficielles moyennes. 130
Tableau V-1. Expériences réalisées dans la campagne expérimentale de traçage. 148
Tableau V-2. Combinaisons de valeurs utilisées pour l'analyse de sensibilité aux paramètres du modèle. 162
Tableau V-3. Paramètres hydrodynamiques déduits des débits des phases par canal et de la longueur de bulles. 173
Tableau V-4. Paramètres hydrodynamiques déduits pour une distribution expérimentale. 174
Tableau V-5. Conditions utilisées pour l'étude de la maldistribution de U_b et ε_G sur le monolithe de 12 canaux. 177
Tableau V-6. Paramètres du modèle PDE pour 5 cas de maldistribution théorique de U_b sur le monolithe de 12 canaux 178
Tableau V-7. Paramètres du modèle PDE pour 5 cas de maldistribution théorique de U_b sur le monolithe de 12 canaux 181

Tableau V-8. Conditions utilisées pour l'étude de l'impact de maldistributions expérimentales sur le mélange global dans un monolithe : débits totaux de gaz Q_G et de liquide Q_L, vitesses superficielles moyennes et régime d'écoulement global observé. (* barrette en PA). 185
Tableau V-9.Valeurs des mesures hydrodynamiques appliquées aux diverses expériences pour créer les distributions uniformes associées. 187
Tableau V-10. Niveaux de maldistribution en termes de vitesse de bulles et de taux de gaz pour les expériences étudiées, et valeurs moyennes des paramètres associés pour le modèle PDE (avec D_{ax} constant et égal à 5.10^{-3} m²/s)..... 189
Tableau V-11. Conditions utilisées pour l'étude de la maldistribution de U_b et ε_G sur la performance chimique d'un monolithe de 12 canaux. 200
Tableau V-12. Conditions utilisées et grandeurs calculées pour l'étude des maldistributions expérimentales sur la performance chimique d'un monolithe de 12 canaux. 215

NOMENCLATURE

A (dans A_{canal} et A_{bulle}) : aire de la section transversale, m^2

a_{ij} : aire interfaciale entre les phases i et j, m^2/m^3 de liquide

C* : concentration de gaz dissous à saturation, mol/m^3

C_i, $C_{i,zone}$: concentration de l'espère i dans une zone, mol/m^3

d : diamètre, m

D, D_i : diffusivité moléculaire d'une espèce i, m^2/s

D_{ax} : coefficient de dispersion axiale, m^2/s

d_b : diamètre des bulles, m

E : facteur d'accélération du transfert dû à la réaction, adim

E(θ) : courbe normée de distribution de temps de séjour, adim

E(t) : courbe temporelle de distribution de temps de séjour, s^{-1}

f_{ac} : fréquence d'acquisition, Hz

f_{app} : facteur de friction apparente, adim

f_b : fréquence des bulles, Hz

$F_{c,tot}$: flux molaire de conversion total, mol/s

$F_{c,zone,i}$: flux molaire de conversion dans une zone (dynamique, statique) et canal, mol/s

g : constante gravitationnelle, m/s^2

G, fonction de transfert, adim

J : nombre de RPA dans modèle à J RPA

k_{GL} : coefficient de transfert de matière gaz-liquide, m/s

k_{GS} : coefficient de transfert de matière gaz-solide, m/s

$k_{L,zone}$: coefficient de transfert gaz-liquide dans une zone, s^{-1}

$k_{L,zone}a_{zone}$: coefficient volumétrique de transfert gaz-liquide dans une zone (modèle PDE), s^{-1}

k_{LS} : coefficient de transfert de matière liquide-solide, m/s

k_r : constante cinétique du 1^e ordre pour une vitesse de réaction, s^{-1}

L : longueur caractéristique, m

N : flux molaire, mol/s

$N_{b,moy}$: nombre moyen de bulles dans le canal

N_C : nombre de canaux

$N_{C,inexploitables}$: nombre de canaux inexploitables

P_{bulles}, P_{canal} : périmètres, m

q_i : débit volumique de phase i dans un canal, m^3/s

Q_i : débit volumique total de phase i, m^3/s

r : rayon, m

R : vitesse apparente de réaction, $mol/s/m^3$; résistance électrique, Ω

R_{shunt} : résistance électrique de shunt, Ω

R : fraction de débit du modèle RPA en série avec échange

R(τ) : corrélation croisée

R_q, R_a, R_{sk} : caractéristiques de la rugosité

S : aire de la section transversale, m^2

s : signal de tension électrique, V

t : temps, s

$\bar{t}, \overline{t_s}$: temps de séjour moyen, s

t_p, t_c : temps de séjour moyen dans le film, p, et dans les bouchons, c (modèle d'une association de RPA et de RP)

U_b : vitesse des bulles, m/s

u_i : vitesse superficielle de la phase i, m/s

V : volume, m^3

W : écart entre les vitesses des bulles et diphasique, adim

x : coordonnée axiale adimensionnelle, adim

$X_{distrib}$: facteur combiné de maldistribution, adim

z : coordonnée axiale dimensionnelle, m

Nombres adimensionnels

Ca : Nombre capillaire ; $Ca = \frac{\mu_L u}{\sigma}$

Ha : Nombre de Hatta ; pour une cinétique de réaction de premier ordre : $\mathrm{Ha} = \frac{\sqrt{k_r D_m}}{k_L}$

N : Nombre d'échange (modèle PDE) ; $N = \frac{kaL}{U_b \phi}$

Pe : Nombre de Peclet ; $Pe = \frac{uL}{D_{ax}}$

Re : Nombre de Reynolds ; $Re = \frac{\rho_L d_c u}{\mu_L}$

Sc : Nombre de Schmidt ; $Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D}$

Sh : Nombre de Sherwood ; $Sh = \frac{k_L d_c}{D}$

Lettres grecques

β_i : rétention de la phase i, adim

δ : épaisseur du film de lubrification

Δx : écart d'une variable x

ΔP : perte de charges, Pa

ε_i : taux de la phase i, adim

θ : temps adimensionnel, adim

μ : viscosité dynamique, Pa.s

μ_i : moment d'ordre i

μ_i' : moment centré d'ordre i

ρ : masse volumique, kg/m^3

σ : conductivité électrique, S/m ; tension de surface, N/m

σ^2 : variance, s^2

σ_x : critère de maldistribution quantitatif, écart-type d'une caractéristique hydrodynamique x

τ : temps de passage, s

$\tau_{distrib}$: critère de maldistribution qualitatif sur la distinction des écoulements, adim

ϕ : fraction volumique de la zone dynamique au sein de la phase liquide (modèle PDE)

Indices

* : relatif à la saturation dans C*

A, B : du composé A, B

b : bulle

c : canal ; partie cylindrique de la bulle

caps : référence aux calottes de la bulle

d, dyn : zone dynamique du modèle PDE

Elect : électrodes

f : film de lubrification

G : phase gaz

L : phase liquide

m (dans $E_m(t)$, t_m, σ^2_m) : valeurs globales

max : maximum

mean, moy : moyenne

min : minimum

PDE (dans Pe_{PDE}) : Piston-Dispersion-Echange

slug : bouchon liquide

st : zone statique du modèle PDE

tot, total : total

TP : diphasique (« two-phase »)

traceur : traceur salin

u : uniforme

UC : cellule unitaire

Acronymes

CAO : Conception Assistée par Ordinateur

CFD : dynamique des fluides numérique (« Computational Fluid Dynamics »)

DTS : Distribution de Temps de Séjour

DU : Degré d'Uniformité selon Zhou et coll. 2012

EB : Ecoulement à Bulles

ET / TF : Ecoulement de Taylor

FA : Fabrication Additive

FFT : Transformée de Fourier Rapide

IR : infrarouge

MDF : facteur de maldistribution selon Meitzner et coll. (2017)

PD : Piston-Dispersion

PDE : Piston-Dispersion-Echange

PE : Piston-échange

PIV : vélocimétrie par images de particules

PVC : chlorure de polyvinyle

RMN : Résonance Magnétique Nucléaire

RP : Réacteur Piston

RPA : Réacteur Parfaitement Agité

TI : traitement d'images

UV : ultraviolet

INTRODUCTION

Les enjeux énergétiques et environnementaux impliquent des mutations des outils de production industriels. Ainsi, depuis les années 90, de nouvelles technologies de réacteurs chimiques sont à l'étude, privilégiant les solutions sûres et propres. En particulier, l'intensification des réacteurs tend à les rendre économiques en énergie et en atomes. On peut citer par exemple les travaux de synthèse sur le développement de réacteurs durables pour la pyrolyse (Mong et coll., 2022), sur l'intensification des réacteurs de production de bio-diesel (Gole et Gogate, 2012), sur les réacteurs catalytiques intensifiés assistés par micro-ondes (Chen et coll., 2021).

Un des axes d'intensification des réacteurs chimiques consiste à maximiser les surfaces internes offertes au transfert de masse et/ou au transfert de chaleur, permettant d'une part de meilleurs rendements à travers l'optimisation de la conversion et parfois même de la sélectivité de la réaction visée, et d'autre part l'intégration énergétique des chaleurs en jeu – chaleurs de réaction, préchauffage des réactifs, etc. On assiste ainsi depuis plusieurs décennies au développement de réacteurs milli- ou micro-structurés, constitués d'un empilement de plaques espacées de quelques centaines de microns ou de quelques millimètres (selon les besoins), ou constitués de fins canaux parallèles (diamètre de quelques centaines de microns ou de quelques millimètres) par exemple. Dans ce dernier cas, on parle de réacteurs monolithes, par référence aux structures monoblocs en céramique, extrudées à façon, et utilisées depuis longtemps déjà pour les réactions catalytiques en phase gaz, comme dans le cas des pots catalytiques des véhicules. Ces réacteurs monolithes peuvent comporter, dans leur section droite, plusieurs centaines de canaux juxtaposés. Leur application aux nombreuses réactions gaz-liquide en jeu dans l'industrie est un enjeu de taille, car ils offrent des avantages notables vis-à-vis des technologies conventionnelles de réacteurs. En particulier, dans les réacteurs monolithes, la surface de contact entre les fluides et la paroi est importante. Elle atteint par exemple presque 2000 $m^2.m^{-3}$ dans un réacteur comportant des canaux de 1 mm de diamètre séparés de 50 µm. En outre, dans ces canaux, un dépôt catalytique poreux (ou « washcoat ») peut-être déposé en paroi si besoin, et son épaisseur peut être suffisamment faible (quelques dizaines de microns typiquement, Albrand et coll., 2021) pour minimiser les limitations par le transfert diffusif dans le matériau catalytique. Certains canaux peuvent aussi accueillir un fluide caloporteur et ainsi, si le matériau du monolithe est bon conducteur de la chaleur (aluminium, carbure de silicium, …), le réacteur montre un fonctionnement quasi-isotherme, même dans le cas d'une réaction très exothermique (Durán Martínez, 2017). Par ailleurs, la structuration en canaux parallèles induit des pertes de charges modérées (vis-à-vis des réacteurs à lit fixe, notamment), et la disposition verticale des canaux permet un drainage rapide du liquide en cas de risque (emballement thermique notamment). Enfin, dans des canaux millimétriques, selon les vitesses superficielles en jeu, les phases gaz et liquide s'organisent selon diverses structures d'écoulement ; l'écoulement dit « de Taylor » (ou « poches-bouchons ») est le plus convoité, car il induit un coefficient volumétrique de transfert entre gaz et liquide élevé, observé dans la littérature dans la plage 0,1 – 1 s^{-1} (Heiszwolf et coll., 2001). De plus, le comportement hydrodynamique de la phase liquide – où la réaction prend place – est dans ce cas proche de

l'écoulement idéal dit « piston », autorisant là encore un avancement significatif (voire une bonne sélectivité de la réaction en jeu).

Parallèlement, l'essor des techniques de fabrication additive, depuis une vingtaine d'années, facilite la réalisation des appareils milli-structurés : des géométries internes complexes, qui n'étaient pas accessibles par usinage mécanique traditionnel, peuvent être réalisées. Ainsi, des maquettes froides de laboratoire peuvent être fabriquées en résines époxy ou en plastique, et des réacteurs pouvant opérer à haute température et/ou à haute pression sont imprimés en métal, par exemple en acier ou en aluminium. Les imprimantes industrielles montent en performances, autorisant depuis quelques années la fabrication de pièces de l'ordre du m^3 (typiquement : 1400 × 700 × 500 mm^3, Sepasgozar et coll., 2020).

L'application des réacteurs milli-structurés aux réactions gaz-liquide en milieu industriel est donc très prometteuse. Et pourtant, peu d'ateliers fonctionnent avec des réacteurs monolithes aujourd'hui. La raison se trouve dans un verrou difficile à lever : pour qu'un réacteur comportant de multiples canaux fonctionne de façon optimale, il faut *a priori* que tous les canaux reçoivent des flux de gaz équivalents et des flux de liquides équivalents. Dans le cas contraire, les temps de séjour – et également les coefficients d'échange de masse et de chaleur – sont différents de canal en canal. On parle de « maldistribution ». A l'échelle du réacteur, la variabilité des temps de séjour est représentée, en génie des procédés, par un degré de mélange apparent, ou encore une pseudo-dispersion, qui est néfaste à l'avancement de la réaction. C'est un problème rédhibitoire pour ces réacteurs.

Dans ce travail de thèse, on se penche sur le problème de la maldistribution en tentant d'apporter une réponse aux questions suivantes :

- Comment caractériser la maldistribution du gaz et du liquide dans un réacteur monolithe ?
- Quelles sont les caractéristiques d'un système de distribution des fluides qui impactent la maldistribution du gaz et du liquide?
- Comment la maldistribution impacte-t-elle les performances du réacteur monolithe, en termes de degré de mélange apparent et d'avancement d'une réaction ?

Ainsi, la littérature du domaine sera explorée dans un premier chapitre, afin de réunir les connaissances nécessaires pour traiter les questions ci-dessus. En particulier, les spécificités des réacteurs monolithes et des distributeurs de fluides conventionnels seront présentées, ainsi que les méthodes expérimentales permettant de quantifier la maldistribution ; la méthodologie de Distribution des Temps de Séjour, très utile pour modéliser le comportement hydrodynamique de la phase liquide dans les canaux, sera aussi rappelée. Ensuite, la maldistribution dans un réacteur monolithe fabriqué additivement, associé à un distributeur de nouvelle génération conçu au Laboratoire de Génie Chimique, sera investiguée en maquette froide à l'aide d'un capteur innovant, spécifiquement développé pour cette étude, et donnant accès simultanément aux caractéristiques hydrodynamiques dans tous les canaux. Le deuxième chapitre décrira l'installation et les outils expérimentaux ou numériques associés. Dans un troisième chapitre, le fonctionnement du capteur développé sera explicité, et la méthode de traitement des mesures sera mise au point et validée grâce à une technique expérimentale de référence ; cet outil et son traitement de données associé permettront ainsi, dans la suite, de

caractériser les écoulements dans les canaux, et donc la maldistribution subie par le réacteur monolithe. Dans le quatrième chapitre, on s'interrogera sur l'impact du matériau et des caractéristiques géométriques du distributeur sur la qualité de la distribution des fluides, en tenant compte des contraintes – en termes de nature de matériaux et d'état de surface – liées aux techniques d'impression 3D ; un critère global de maldistribution et des préconisations pour l'optimisation du distributeur innovant conçu au LGC seront proposés. Enfin, dans un dernier chapitre, l'impact de la maldistribution sur la pseudo-dispersion et sur l'avancement d'une réaction en réacteur monolithe sera interrogé. Des maldistributions générées artificiellement, mais aussi obtenues expérimentalement, seront utilisées à cette fin.

Chapitre I. ETAT DE L'ART SUR LES REACTEURS MONOLITHES

Chapitre I. Etat de l'art sur les réacteurs monolithes 5

I.1 Réacteurs monolithes opérés en gaz-liquide et écoulements de Taylor 7

I.1.1 Réacteur monolithe 7

I.1.2 Applications des réacteurs monolithes en gaz-liquide ou gaz-liquide-solide 9

I.1.3 Ecoulement de Taylor 9

I.1.3.1 Hydrodynamique 10

I.1.3.1.1 Régimes d'écoulement : domaine d'existence de l'écoulement de Taylor 10

I.1.3.1.2 Film de lubrification 13

I.1.3.1.3 Vitesse diphasique et vitesse des bulles 13

I.1.3.1.4 Rétention et taux de gaz 14

I.1.3.1.5 Fréquence de bulles 15

I.1.3.1.6 Longueurs caractéristiques 15

I.1.3.1.7 Perte de charge 16

I.1.3.2 Transfert de masse 17

I.2 Maldistribution en écoulement gaz-liquide 20

I.2.1 Types de distributeurs utilisés 21

I.2.2 Méthodes expérimentales pour identifier la maldistribution des fluides 26

I.2.2.1 Tomographie 26

I.2.2.2 Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) 27

I.2.2.3 Sonde à fibre optique ou sonde d'impédance 27

I.2.2.4 Capteurs électroniques dits « wire-mesh » (mesure de conductivité, ou capacitance) 28

I.2.2.5 Techniques d'imagerie (PIV, ombroscopie) 29

I.2.2.6 Gravimétrie 30

I.2.3 Qualification et critères de la maldistribution dans les réacteurs polyphasiques, dont le monolithe 30

I.3 Distribution de temps de séjour et modèles phénoménologiques de l'hydrodynamique de l'écoulement de Taylor 34

I.3.1 Distribution de temps de séjour 35

I.3.2 Méthodes expérimentales associées à la démarche de DTS 36

I.3.3 Modèles hydrodynamiques classiques 39

I.3.3.1 Modèles idéaux 39

I.3.3.1.1 Modèle d'un Réacteur Piston (RP) 39

I.3.3.1.2 Modèle d'un Réacteur Parfaitement Agité (RPA) 40

I.3.3.2 Modèle des RPA en série (ou en cascade) 40

I.3.3.3 Modèle d'un réacteur piston avec dispersion axiale, ou modèle Piston-Dispersion (PD) 41

I.3.3.4 Modèle de deux RPA en série avec échange 43

I.3.3.5 Modèle de J RPA avec rétro-mélange 44

I.3.4 Modèles hydrodynamiques de la phase liquide adaptés aux écoulements de Taylor 44

I.3.4.1 Modèle d'une association de RPA et de RP 44

I.3.4.2 Modèle d'un Réacteur Piston avec diffusion radiale 45

I.3.4.3 Modèle de Réacteurs Parfaitement Agités avec by-pass 46

I.3.4.4 Modèle d'écoulement Piston-Exchange (PE) 47

I.3.4.5 Modèle d'écoulement Piston-Dispersion-Exchange (PDE) 48

I.4 Conclusion 50

Ce chapitre a pour objectif de présenter un état de l'art sur les réacteurs monolithes fonctionnant en écoulement gaz-liquide. Nous présenterons d'abord les régimes d'écoulement possibles au sein de ces réacteurs, en détaillant celui d'intérêt, dit écoulement de Taylor, ainsi que ses caractéristiques hydrodynamiques et de transfert de masse.

Une distribution des fluides non uniforme à l'entrée de ces réacteurs conduit à une dégradation de la performance de l'appareil. La problématique de la distribution gaz-liquide sera ainsi développée dans un second temps, en présentant les types de distributeurs et les techniques expérimentales d'analyse les plus souvent utilisés pour cette technologie, ainsi que des moyens pour quantifier la « maldistribution » des phases dans ces réacteurs.

Enfin, nous nous intéresserons aux modèles hydrodynamiques utilisés dans la littérature pour décrire l'écoulement de Taylor, en utilisant l'approche basée sur la distribution de temps de séjour.

I.1 Réacteurs monolithes opérés en gaz-liquide et écoulements de Taylor

I.1.1 Réacteur monolithe

Développés dans les années 1970 pour détruire les composés de type NOx et les hydrocarbures légers des gaz d'échappement des voitures (Frietzsche et Krause, 1974), les réacteurs monolithes sont constitués d'une structure fabriquée en céramique, en métal ou encore en résine par fabrication additive (Govender et Friedrich, 2017), et sont percés de canaux millimétriques parallèles. La section de ces canaux peut être circulaire ou rectangulaire (le plus souvent), voire triangulaire ou hexagonale (Roy et coll., 2004). Dans le cas d'une réaction catalytique, le dépôt catalytique appelé « washcoat » est déposé sur la paroi des canaux. Un réacteur monolithe est illustré schématiquement en Figure I-1.

Dernièrement, les réacteurs monolithes ont vu leur domaine d'application étendu aux réactions gaz-liquide ou catalytiques (gaz-liquide-solide), comme les absorptions, les hydrogénations ou les oxydations, devenant une alternative aux réacteurs conventionnels de type lit fixe ruisselant (« trickle bed reactors ») ou à catalyseur en suspension (« slurry reactors »).

Au sein du monolithe, l'écoulement du gaz et du liquide se fait à co-courant ascendant ou descendant. L'écoulement descendant est le plus fréquemment rencontré dans les applications décrites, bien qu'il ait été décrit dans la littérature comme étant souvent instable (Edvinsson Albers et coll., 2006). Le type de régime hydrodynamique observé dépend principalement des vitesses superficielles des phases, de leurs propriétés physico-chimiques et de la géométrie des canaux (taille et forme).

Le régime d'écoulement recherché est celui dit de Taylor, aussi appelé « poches-bouchons », consistant en une succession de « poches », bulles de taille supérieure au diamètre du canal, séparées par des « bouchons » de liquide. Le transfert de masse entre les phases gaz et liquide est favorisé grâce à deux caractéristiques de cet écoulement : la présence d'un fin film liquide entourant les bulles – appelé film de lubrification –, et la présence de recirculations au sein des bouchons liquides.

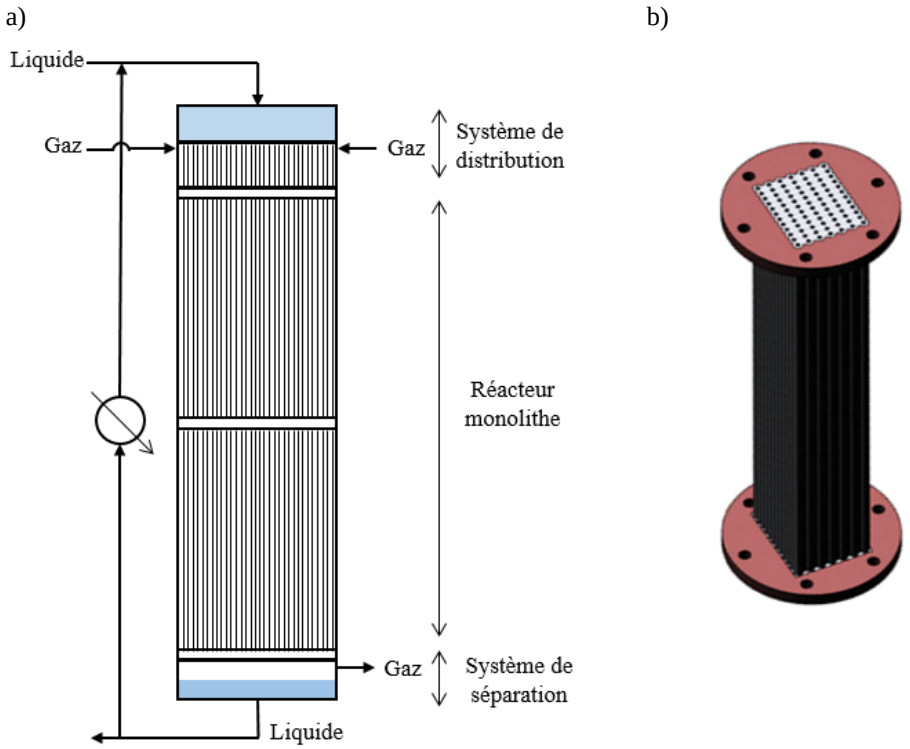


Figure I-1. a) Schéma d'un réacteur monolithe couplé avec un système de distribution et de séparation gaz-liquide. b) schéma d'un bloc monolithe similaire au prototype utilisé dans ces travaux de thèse (voir Chapitre II).

Les avantages de ce type de réacteur sont nombreux, en particulier lorsque les écoulements sont du type de Taylor :

- Faible perte de charge (Ganapathy et coll., 2014; Sobieszuk et coll., 2012 ; Gupta et coll., 2009; Kreutzer et coll., 2005b;) ;
- Transfert de masse gaz-liquide et transfert de chaleur plus importants par rapport aux réacteurs conventionnels (Bercic, 2001 ; Kreutzer et coll., 2001 ; Thulasidas et coll., 1997) ;
- Faibles longueurs de diffusion dans le cas d'une réaction catalytique, notamment dans le « washcoat » (Cybulski et Moulijn, 2006) ;
- Faible dispersion axiale et courbe de distribution des temps de séjour étroite dans le cas d'un écoulement dit de Taylor, car la phase liquide présente un comportement hydrodynamique proche de celui d'un « piston » (Kreutzer et coll., 2005a, Kulkarni et coll., 2005) ;
- Surfaces de contact élevées entre les phases grâce à la structure de l'écoulement de Taylor (Roy et coll., 2004) ;
- Changement d'échelle aisé si la distribution des fluides est maintenue uniforme sur l'intégralité des canaux en amont du réacteur (Cybulski et Moulijn, 2006).

Les réacteurs monolithes présentent néanmoins certaines problématiques pour leur fonctionnement, comme la distribution de phases non uniforme à l'entrée des canaux et le faible temps de séjour, dû aux vitesses superficielles de fluides élevées nécessaires pour maintenir un écoulement de Taylor.

I.1.2 Applications des réacteurs monolithes en gaz-liquide ou gaz-liquide-solide

Comme évoqué plus haut, les monolithes ont été initialement conçus pour être utilisés en monophasique dans le convertisseur catalytique automobile. Dès les années 1970, Horvath et coll. (1973) ont utilisé l'écoulement de Taylor pour améliorer le transfert de masse dans un procédé liquide-solide, où le seul rôle du gaz était d'améliorer le transfert de masse du liquide vers le dépôt catalytique sur la paroi du canal. L'utilisation pionnière des réacteurs monolithes en écoulement de Taylor a été réalisée dans les années 1980 à Chalmers, où l'hydrogénation de composés nitroaromatiques (Hatziantoniouet coll., 1986 ; Hatziantoniou et Andersson, 1984) a été réalisée.

Dans les années 2000, d'autres auteurs (Marwan et Winterbottom, 2004 ; Natividad et coll., 2004 ; Winterbottom et coll., 2003) ont étudié l'hydrogénation du 2-butyne-1,4-diol dans des monolithes à écoulement de Taylor descendant, obtenant une sélectivité (0,98-0,99) supérieure à celle obtenue par un réacteur à cuve agitée (0,90-0,95). L'oxydation du D-lactose en sel de sodium de l'acide D-lactobionique a été réalisée avec succès en réacteur monolithe céramique par Haakana et coll. (2004). Des applications biochimiques sont aussi possibles, comprenant la biodégradation du polluant industriel 2,4-dichlorophenol par un réacteur monolithe en céramique (Quan et coll., 2003) et la valorisation de la biomasse (Schutt et coll., 2002).

Au cours des dernières décennies, la technologie des monolithes a été bien développée du fait de leur potentiel à intensifier les procédés en améliorant le transfert de chaleur et de masse ou en contrôlant les temps de contact, ce qui améliore également la sécurité des procédés (Gascon et coll., 2015 ; Pangarkar et coll., 2008 ; Kreutzer et coll., 2005c). Outre l'application en tant que réacteurs chimiques et biocatalytiques (Bolivar and Nidetzky, 2013 ; Moulijn et coll., 2011 ; Kreutzer et coll., 2005c ; Schubert et coll., 2001), ce réacteur pourrait également être utilisé pour d'autres opérations unitaires, comme pour les extracteurs liquide-liquide (Tsaoulidis et Angeli, 2015) et les absorbeurs de dioxyde de carbone (Ganapathy et coll., 2014).

Les avantages déjà présentés favorisent la réalisation de réactions rapides et exothermiques entre différentes phases, notamment pour les applications gaz-liquide et gaz-liquide-solide. Les réactions gaz-liquide typiques couvrent les oxydations, les fluorations, les chlorations telles que décrites par Hessel et coll. (2005). Les procédés gaz-liquide-solide sont les hydrogénations et les hydrodésulfurations, comme discuté par Kapteijn et coll. (2001). Ce concept de réacteur a également été testé pour la synthèse Fischer-Tropsch (Holmen et coll., 2013 ; Visconti et coll., 2011 ; Knochen et coll., 2010) et pour d'autres synthèses pouvant être appliquées à la production de carburants, examinées par Kolb (2013).

I.1.3 Ecoulement de Taylor

Les avantages mentionnés proviennent de la géométrie du dispositif : les canaux millimétriques permettent des rapports surface/volume élevés, ainsi que l'existence, dans certaines gammes de débits de gaz et de liquide, d'un régime d'écoulement spécifique – l'écoulement de Taylor. Comme indiqué précédemment, ce régime est caractérisé par un

écoulement de deux fluides non miscibles et offre de grandes zones d'interface, de courtes distances de diffusion, des recirculations internes intenses et un comportement d'écoulement quasiment « piston » pour la phase liquide (Kreutzer et coll., 2005a, 2001). Un exemple d'écoulements de Taylor est donné en Figure I-2 ci-dessous.

Comme tous les écoulements gaz-liquide, celui de Taylor est soumis à différents types de forces au sein d'un canal, à savoir : les forces inertielles ($\sim \rho u^2$), gravitationnelles ($\sim \rho d_c$), visqueuses ($\sim \mu u/d_c$) et interfaciales ($\sim \sigma/d_c$). Les deux dernières sont prépondérantes dans des canaux de petits diamètres allant jusqu'à 3 mm (Yang et Shieh, 2001). Des nombres adimensionnels permettent de caractériser un écoulement diphasique dans un capillaire, dont le nombre de Reynolds et le nombre capillaire, notés respectivement Re et Ca :

$$Re = \frac{\rho_L d_c u}{\mu_L} \quad , \quad Ca = \frac{\mu_L u}{\sigma} \qquad (I.1)$$

où, pour un écoulement de Taylor, u peut être la vitesse diphasique, u_{TP}, définie comme la somme des vitesses superficielles des phases, ou la vitesse des bulles, U_b, qui sera utilisée pour ces travaux. Pour les expériences réalisées par Yang et Shieh (2001) (voir Figure I-4), l'ordre de grandeur va de 40 à 3000 pour le nombre de Reynolds et de $2{,}7.10^{-4}$ à $2{,}1.10^{-2}$ pour le nombre capillaire. Pour les expériences réalisées dans cette thèse, nous avons obtenu des gammes comprises dans celles de ces auteurs, avec 400 – 2200 pour le nombre de Reynolds et de $2{,}7.10^{-3}$ – $1{,}5.10^{-2}$ pour le nombre capillaire.

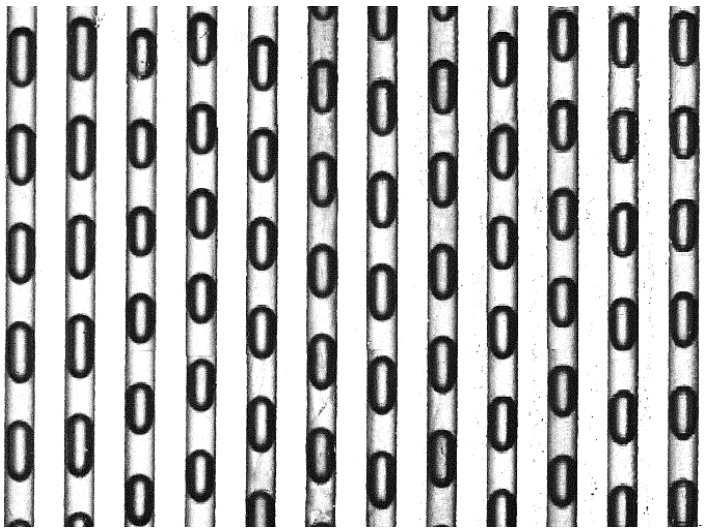


Figure I-2. Exemple d'écoulements de Taylor obtenus lors d'expériences réalisées dans cette thèse, pour un monolithe à 12 canaux de 2 mm de diamètre interne (voir Chapitre II).

I.1.3.1 Hydrodynamique

I.1.3.1.1 Régimes d'écoulement : domaine d'existence de l'écoulement de Taylor

La connaissance de l'hydrodynamique à l'intérieur des réacteurs monolithes est essentielle à leur conception. Le régime d'écoulement dicte les zones interfaciales, le rétro-

mélange (« backmixing ») ainsi que la perte de charge, qui affectent remarquablement le transfert de masse et par conséquent les performances du réacteur.

Selon Shao et coll. (2009), Kreutzer et coll. (2005c) et Liu et coll. (2005), les régimes d'écoulement majeurs observés dans ce type de réacteur sont montrés dans la Figure I-3 : (a, b) écoulement à bulles (dit « bubbly »), (c, d) écoulement de Taylor (parfois appelé « plug flow » par certains auteurs), (e) écoulement de transition Taylor/churn, (f) écoulement churn (appelé « dispersed » ou « slug flow » par certains auteurs), (g) régime à film (ou « wavy »), (h) écoulement annulaire.

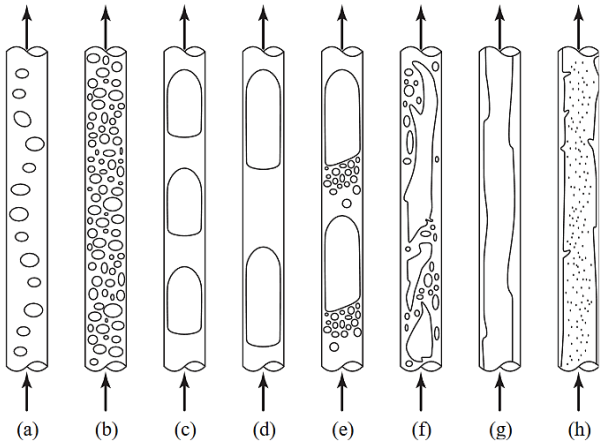


Figure I-3. Schémas d'écoulements observés en capillaire annulaire. (a, b) : régime à bulles, (c, d) : régime de Taylor, (e) : transition Taylor/churn, (f) : régime churn, (g) régime à film, (h) régime annulaire. Figure tirée de Kreutzer et coll. (2005c).

Le régime d'écoulement à bulles se produit généralement à des vitesses de liquide relativement élevées (> 0,5 m/s pour le système air-eau : voir Figure I-4) et à des vitesses de gaz modérées (< 3 m/s en Figure I-4). Il se caractérise par la présence de bulles de diamètres inférieurs ou égaux au diamètre du canal. Les bulles sont souvent de forme sphérique ou sphéroïdale. Les rétentions de gaz sont généralement très faibles dans ce régime.

Le régime de Taylor (ou « plug flow ») est constitué de bulles de gaz dont la longueur est supérieure au diamètre du tube et qui se déplacent le long du canal, séparées les unes des autres par des bouchons de liquide. En fonction des débits et des propriétés du gaz et du liquide, les bulles ont souvent la forme d'un cylindre comportant deux demi-sphères aux extrémités (typiquement pour $Ca < 10^{-3}$, voir figures I-2 et I-5), ou bien une forme proche du cylindre, avec un « nez » oblong et une face arrière aplatie ($Ca > 10^{-3}$) : on parle dans ce dernier cas de bulle en forme de balle de fusil (ou « bullet shape » ; voir par exemple Haase et coll., 2016).

Le régime d'écoulement dit churn (ou dispersed, ou « slug flow ») se produit à des vitesses de gaz très élevées (> 10 m/s) et des vitesses de liquide non négligeables (> 0,5 m/s), et est constitué de très longues bulles de gaz et de bouchons de liquide relativement petits. En raison de la vitesse élevée du gaz, un mouvement d'ondulation est souvent observé au niveau de la queue de la bulle avec de minuscules bulles de gaz entraînées dans le bouchon liquide.

Le régime de film (ou « wavy ») se produit à des vitesses superficielles du liquide très faibles, généralement de l'ordre de quelques cm/s (< 0,05 m/s pour système air-eau : Figure I-

4), dans lequel le liquide s'écoule sur les parois du canal et le gaz s'écoule au centre, l'interface étant soumise à des vaguelettes.

Le régime d'écoulement annulaire est caractérisé par sa vitesse de gaz élevée (> 30 m/s en Figure I-4) vis-à-vis de celle du liquide, et sa faible fraction liquide. Proche du régime du film, il présente un mince film liquide ondulé et stable, s'écoulant le long de la paroi.

Les graphiques ci-dessous montrent des cartographies de régime d'écoulement gaz-liquide en fonction des vitesses superficielles du gaz (notée ici u_{GS}) et du liquide (notée ici u_{Gs}), pour un mélange air-eau et de différentes tailles de capillaires (1, 2 et 3 mm), obtenues par Yang et Shieh (2001) :

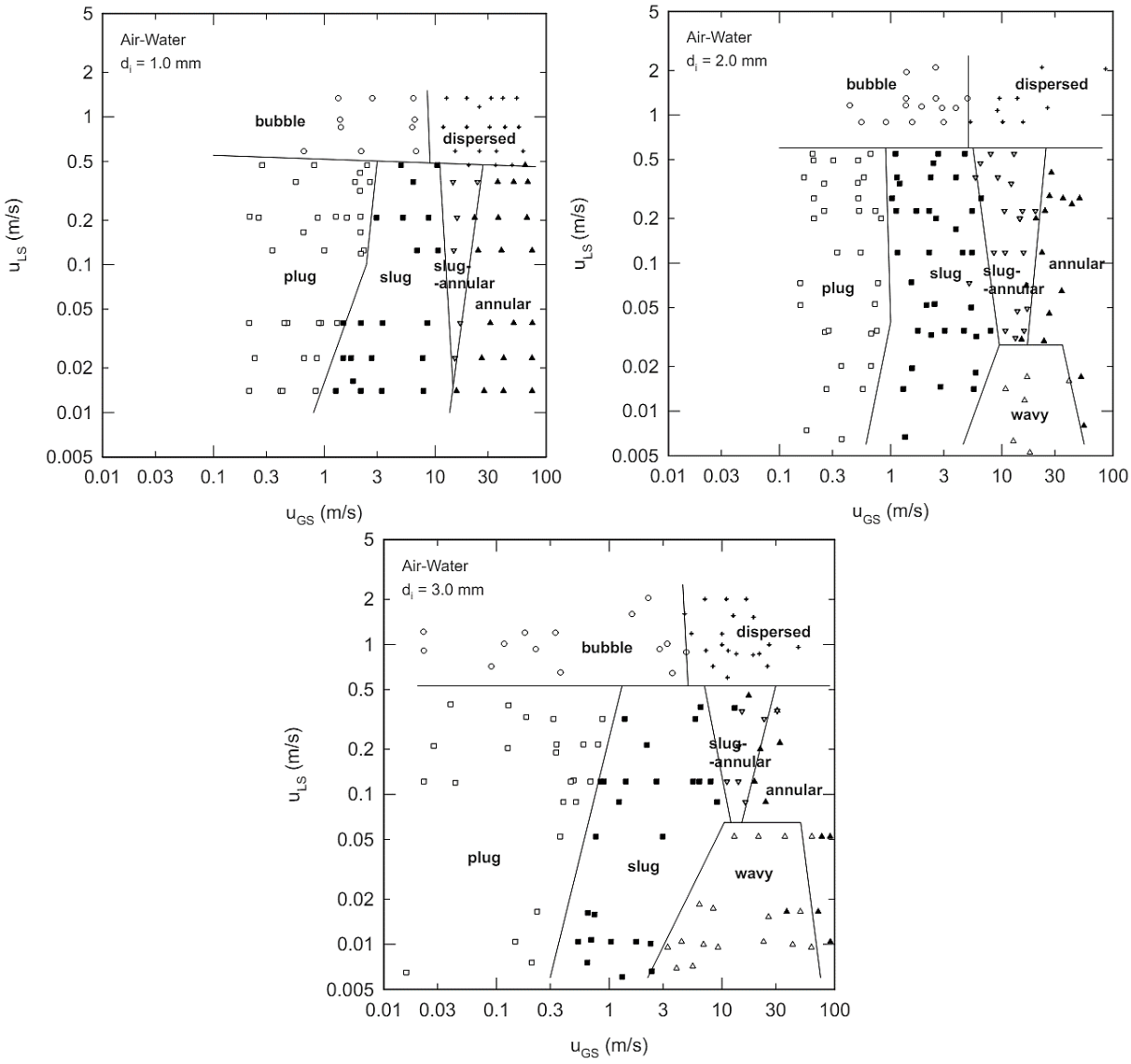


Figure I-4. Cartographie des régimes hydrodynamiques pour le système air-eau pour trois canaux à sections rondes de diamètres de 1, 2 et 3 mm. Le régime de Taylor correspond ici au « plug » (□). Figures tirées de Yang et Shieh (2001).

On constate sur ces cartographies, pour le système air-eau, que les zones de transition entre les différents régimes dépendent peu du diamètre de canal.

I.1.3.1.2 Film de lubrification

Dans les années 1960, deux caractéristiques de l'écoulement de Taylor ont été observées par Taylor (1961) et Bretherton (1961) : la présence d'un film de lubrification entre la bulle et la paroi du canal – considéré comme une zone stagnante dans la littérature (Aussillous et Quéré, 2000) –, et la présence de recirculations au sein des bouchons de liquide.

Comme dit précédemment, le film de lubrification joue un rôle très important dans l'hydrodynamique de ces écoulements, en améliorant le transfert de masse gaz-liquide. Plusieurs corrélations empiriques sont disponibles dans la littérature pour estimer son épaisseur (Irandoust et Andersson, 1989 ; Thulasidas et coll., 1997 ; Aussillous et Quéré, 2000 ; Kreutzer et coll., 2001). Depuis les travaux de Bretherton (1961), les travaux d'Aussilous et Quéré (2000) ont permis des progrès significatifs dans la prédiction de l'épaisseur du film de lubrification δ, notamment pour des liquides visqueux. La corrélation suivante a été proposée par les auteurs, qui ont l'établie pour des canaux circulaires, valable pour des liquides non visqueux comme pour des huiles de silicone de viscosité de 2,6 à 531 mPa.s :

$$\delta = \frac{\frac{d_c}{2} 1{,}34 Ca^{\frac{2}{3}}}{1 + 1{,}34 \cdot 2{,}5 Ca^{\frac{2}{3}}} \qquad avec\ 10^{-4} < Ca < 10^{0} \qquad (I.2)$$

Où le coefficient 1,34 est dérivé des travaux théoriques de Bretherton (1961), alors que le coefficient 2,5 est empirique. Cette corrélation sera utilisée dans la suite pour estimer l'épaisseur du film de lubrification.

I.1.3.1.3 Vitesse diphasique et vitesse des bulles

Comme défini précédemment, la somme des vitesses superficielles de gaz et de liquide est appelée vitesse diphasique u_{TP}.

$$u_{TP} = u_L + u_G \qquad (I.3)$$

Fairbrother et Stubbs (1935) ont réalisé des expériences pour déterminer le débit liquide dans un capillaire et ont été les premiers à observer la différence entre u_{TP} et la vitesse de bulle U_b. Cet écart est expliqué par la présence d'un film liquide autour de la bulle, ce qui diminue la section droite disponible à la bulle de gaz. Par conséquent, cette dernière se déplace un peu plus rapidement que le mouvement moyen des phases – U_b est environ 10% plus grande que u_{TP}. Les auteurs ont proposé une corrélation empirique à partir de leurs résultats expérimentaux :

$$W = \frac{U_b - u_{TP}}{U_b} = Ca^{1/2} \qquad avec\ 7{,}5.10^{-5} < Ca < 1{,}4.10^{-2} \qquad (I.4)$$

L'intérêt porté à la prédiction de la vitesse de bulle réside dans le fait qu'un grand nombre de paramètres en dépendent, tels que l'épaisseur de film, la distribution de temps de séjour et le coefficient de transfert de matière gaz-liquide.

Environ 25 ans plus tard, Taylor (1961) et Bretherton (1961) ont proposé d'autres corrélations permettant de mieux prédire le rapport W dans des capillaires ronds. Basé sur ces travaux, Liu et coll. (2005) ont développé une nouvelle corrélation permettant d'exprimer le rapport $\frac{u_{TP}}{U_b}$ à partir du nombre de capillaire pour des canaux ronds et carrés de différents diamètres (0,91 mm, 2 mm, 2,89 mm et 3 mm) et pour différents mélanges (air-eau, air-éthanol, air-mélange d'huile) :

$$\frac{u_{TP}}{u_b} = 1 - 0{,}61\mathrm{Ca}^{0{,}33} \qquad avec\ 2.10^{-4} < Ca < 3{,}9.10^{-1} \tag{I.5}$$

Cette corrélation sera utilisée dans la suite pour estimer la vitesse diphasique u_{TP} dans les canaux du monolithe, à partir de la vitesse des bulles mesurée par des techniques expérimentales qui seront développées et discutées dans les chapitres II et III.

I.1.3.1.4 Rétention et taux de gaz

Une autre caractéristique de l'écoulement de Taylor est la rétention de gaz β_G, donnant la proportion de gaz présente dans un canal i du monolithe, telle que calculée à partir des débits de gaz q_G et de liquide q_L alimentant le canal i, ou bien des vitesses superficielles u_G et u_L dans le canal i :

$$\beta_{G,i} = \frac{q_G}{q_L + q_G} = \frac{u_G}{u_L + u_G} \tag{I.6}$$

Cette grandeur peut aussi être évaluée pour l'ensemble du réacteur monolithe, en se basant sur les débits d'alimentation globaux.

En tenant compte de la présence du film de lubrification, un autre terme appelé taux de gaz (ou fraction volumique de gaz) ε_G est souvent utilisé pour calculer le ratio de gaz dans les canaux, rapporté au volume du canal ou d'une cellule unitaire – celle-ci étant définie comme le volume de canal contenant une bulle, un bouchon liquide et un film de lubrification. Dans ces travaux de thèse, nous allons considérer une bulle de géométrie cylindrique avec deux demies-sphères. La Figure I-5 ci-dessous montre un schéma de la cellule unitaire.

Nous pouvons déduire le taux de gaz ε_G à partir des égalités suivantes, qui expriment la vitesse superficielle de gaz u_G en utilisant soit U_b, soit u_{TP} :

$$u_G = \varepsilon_G U_b = \beta_G u_{TP} \tag{I.7}$$

Par analogie, le taux de liquide ε_L est défini par :

$$u_L = \varepsilon_L U_b = \beta_L u_{TP} \tag{I.8}$$

ou encore par :

$$\varepsilon_L = 1 - \varepsilon_G \tag{I.9}$$

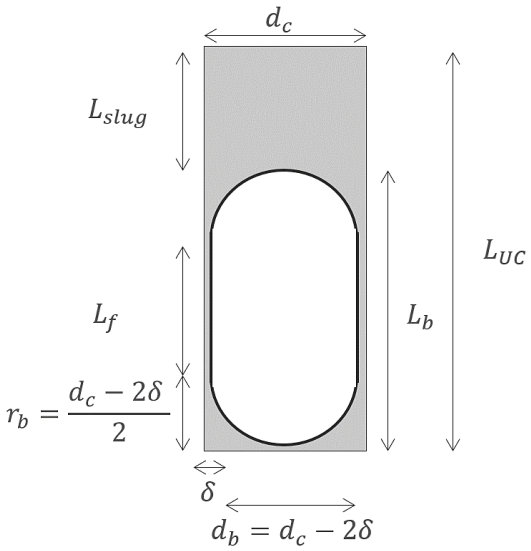


Figure I-5.Schéma de la géométrie d'une cellule unitaire considérée dans ce travail (en gris, le liquide, et en blanc, le gaz) et ses caractéristiques: les longueurs de la cellule unitaire L_{UC}, de bulle L_b, de bouchons (ou slugs de liquide) L_{slug}, du film de lubrification L_f, les diamètres de bulle d_b et du canal d_c, le rayon de bulle r_b et l'épaisseur du film δ.

Les vitesses superficielles de gaz et de liquide dans chaque canal d'un monolithe sont souvent inconnues, car la distribution des phases en amont du réacteur n'est pas connue. Mais certaines métrologies permettent de les mesurer ou de les estimer.

Dans ce travail, l'estimation de taux de gaz reposera sur des techniques expérimentales qui seront développées et discutées dans les chapitres II et III.

I.1.3.1.5 Fréquence de bulles

La fréquence de passage de bulles est une grandeur fréquemment utilisée dans la littérature pour caractériser les écoulements de Taylor, donnant le nombre de bulles traversant une section droite du canal, par unité de temps. Elle est définie par la relation suivante :

$$f_b = \frac{U_b}{L_{UC}} \qquad (I.10)$$

Cette caractéristique peut également être mesurée directement par une technique expérimentale, comme réalisé dans cette thèse et présenté aux chapitres II et III. L'équation I.10 montre que la fréquence de bulle peut aussi être utilisée pour déduire la longueur de la cellule unitaire L_{UC}, connaissant la vitesse de bulle, comme ce sera fait dans cette thèse.

I.1.3.1.6 Longueurs caractéristiques

Les longueurs des bulles et des bouchons liquides de l'écoulement de Taylor font aussi partie des grandeurs utilisées dans la littérature pour caractériser ce type d'écoulement, en particulier celle des bulles qui est souvent mesurée par des techniques expérimentales (voir paragraphe I.2.2). Plusieurs travaux de la littérature ont proposé des corrélations empiriques

pour exprimer les longueurs des bulles et des bouchons, comme l'ont indiqué Haase et coll. (2016).

En tenant compte de la géométrie idéale de bulle utilisée ici (voir Figure I.5), nous pouvons estimer la longueur du film de lubrification L_f à l'aide du taux de gaz ε_G, défini par le rapport des volumes de bulle V_b et de cellule unitaire V_{UC} (Haase et coll., 2016) :

$$\varepsilon_G = \frac{V_b}{V_{UC}} = \frac{V_{cylindre} + V_{demis-sphères}}{V_{UC}} = \frac{(d_c - 2\delta)^2 L_f + \frac{2}{3}(d_c - 2\delta)^3}{{d_c}^2 L_{UC}} \qquad (I.11)$$

On peut alors en déduire L_f en fonction des autres caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement – si elles sont connues –, comme ce sera le cas des travaux de cette thèse :

$$L_f = \frac{\varepsilon_G {d_c}^2 L_{UC} - \frac{2}{3}(d_c - 2\delta)^3}{(d_c - 2\delta)^2} \qquad (I.12)$$

Ainsi nous pouvons calculer les longueurs des bulles L_b et des bouchons liquides L_s :

$$L_b = L_f + d_b = L_f + (d_c - 2\delta) \qquad (I.13)$$

$$L_s = L_{UC} - L_b \qquad (I.14)$$

I.1.3.1.7 Perte de charge

On peut écrire le gradient de pression au sein d'un écoulement diphasique dans une conduite comme étant la somme de diverses contributions (Kreutzer et coll., 2005b ; Wen et Kenning, 2004 ; Kawahara et coll., 2002 ; Heiszwolf et coll., 2001) :

- La perte de pression par friction $\left.\frac{dP}{dz}\right|_f$, qui correspond à la perte d'énergie associée à la friction du fluide sur la paroi du tube. Le régime étant laminaire dans les canaux des monolithes, cette contribution est modélisée par l'équation de Hagen-Poiseuille, appliquée ici à l'écoulement de Taylor en fonction de la viscosité dynamique du liquide μ_L, du diamètre du canal d_c, de la vitesse des bulles U_b, et du taux de liquide ε_L, (Kreutzer et coll., 2005b) :

$$\left.\frac{dP}{dz}\right|_f = \varepsilon_L \frac{32\mu_L U_b}{{d_c}^2} = (1 - \varepsilon_G)\frac{16}{Re}\left(\frac{1}{2}\rho_L {U_b}^2\right)\frac{4}{d_c} \qquad (I.15)$$

- La perte de pression par effet gravitationnel, $\left.\frac{dP}{dz}\right|_g$, qui exprime la variation de pression due au changement de hauteur dans le canal. Cette contribution, en écoulement de Taylor, s'exprime avec la masse volumique de liquide ρ_L, l'accélération de la pesanteur g, et le taux de liquide ε_L (ou celui de gaz ε_G), à partir de l'équation suivante (Kreutzer et coll., 2005b) :

$$\left.\frac{dP}{dz}\right|_g = \varepsilon_L \rho_L g = (1-\varepsilon_G)\rho_L g \qquad (I.16)$$

- Le terme de « pression de Laplace » $\left.\frac{dP}{dz}\right|_L$, qui prend en compte la présence de bulles successives, et qui est proportionnel au nombre de bulles par unité de longueur de canal. Ce terme est lié à la perte d'énergie due aux interactions entre les phases, à la forme de la bulle et au film de lubrification. Il s'exprime à partir de la contribution par friction $\left.\frac{dP}{dz}\right|_f$, et des nombres Re et Ca, du diamètre du canal d_c, et de la longueur des bouchons liquides L_{slug} (Kreutzer et coll., 2005b) :

$$\left.\frac{dP}{dz}\right|_L = \left.\frac{dP}{dz}\right|_f \frac{4}{d_c}\left[0{,}17\frac{d_c}{L_{slug}}\left(\frac{Re}{Ca}\right)^{1/3}\right] \qquad (I.17)$$

Les pertes de charges totales $\left.\frac{dP}{dz}\right|_{tot}$ dans un canal du monolithe peuvent alors être estimées par l'équation suivante :

$$\left.\frac{dP}{dz}\right|_{tot} = (1-\varepsilon_G)\left[f_{app}\left(\frac{1}{2}\rho_L {U_b}^2\right)\frac{4}{d_c} + \rho_L g\right] \qquad (I.17)$$

avec un facteur de friction apparente f_{app} égal à :

$$f_{app} = \frac{16}{Re}\left[1 + 0{,}17\frac{d_c}{L_{slug}}\left(\frac{Re}{Ca}\right)^{1/3}\right] \qquad (I.18)$$

A noter que d'autres modèles de perte de charge en écoulement de Taylor existent, semi-empiriques également, comme le modèle d'écoulement homogène (Niño et coll., 2006), le modèle d'écoulement pseudo-homogène (Mewes et coll., 1999 ; Kreutzer et coll., 2005b), et le modèle d'écoulement à phases séparées (Lockhart et Martinelli, 1949). Les deux premiers modèles sont des adaptations très simples au cas diphasique de la perte de charge en écoulement monophasique ; le dernier modèle, très référencé dans la littérature, a été mis au point pour les écoulements en conduites centimétriques.

I.1.3.2 Transfert de masse

En écoulement de Taylor, on peut en général raisonnablement négliger la résistance au transfert côté gaz (Bourdon et coll. 2023).

Côté liquide, même si l'écoulement de Taylor a une structure très régulière et bien définie, le transfert de masse au sein de ce régime est complexe car plusieurs étapes de transfert se mêlent (Cybulski et Moulijn, 2006) ; les divers flux de transfert sont quantifiés *via* des coefficients d'échange. La modélisation du transfert de masse est simplifiée (Shao et coll., 2010 ; Yue et coll., 2007 ; Vandu et coll., 2005 ; Bercic et Pintar, 1997), en général, selon trois

étapes de transfert de masse en interaction, depuis la phase gazeuse, jusqu'à la phase liquide, voire jusqu'au catalyseur (quand il est présent sous forme de « washcoat » à la paroi du canal) :

1. Transfert de masse gaz-liquide : transfert du gaz entre les extrémités des bulles de gaz et les deux bouchons de liquide voisins ;
2. Transfert de masse liquide-solide : transfert du gaz dissous dans le bouchon liquide vers la zone de paroi ; et
3. Transfert de masse gaz-solide : transfert du gaz depuis l'interface des bulles au contact du film de lubrification, jusqu'à la paroi.

La démarche la plus courante en ingénierie des réacteurs consiste à analyser les transferts séparément et à les combiner selon le principes d'étapes en parallèle ou en série. Nous pouvons alors définir un coefficient volumétrique de transfert global pour la phase liquide, $k_L a|_{tot}$, sachant que les transfert gaz-liquide et liquide-solide se font en série, et que le transfert gaz-solide s'effectue en parallèle des deux autres (Durán Martínez, 2017 ; Kreutzer et coll., 2001 ; Irandoust et Andersson, 1988 ; Hatziantoniou et coll., 1986) par :

$$k_L a|_{tot} = k_{GS} a_{GS} + \left(\frac{1}{k_{GL} a_{GL}} + \frac{1}{k_{LS} a_{LS}}\right)^{-1} \qquad (I.19)$$

où k_{GS}, k_{GL} et k_{LS} sont respectivement les coefficients de transfert gaz-solide (au travers du film de lubrification), gaz-liquide et liquide-solide et a_{GS}, a_{GL} et a_{LS} sont respectivement les aires interfaciales gaz-solide, gaz-liquide et liquide-solide.

Les aires interfaciales sont calculées en évaluant les diverses surfaces d'échange entre phases et en les rapportant au volume d'une cellule unitaire ; on considère ici la géométrie d'une bulle cylindrique avec deux demies-sphères (voir Figure I-5), et on obtient les relations suivantes :

$$a_{GL} = \frac{4(d_c - 2\delta)^2}{{d_c}^2 L_{uc}} \quad , \quad a_{GS} = \frac{4(d_c - 2\delta) L_f}{{d_c}^2 L_{uc}} \quad , \quad a_{LS} = \frac{4 L_{slug}}{d_c L_{uc}} \qquad (I.20)$$

Il est à noter que dans le cas d'une réaction non catalytique, l'expression du coefficient global de transfert se simplifie en :

$$k_L a|_{tot} = k_{GL,film} a_{GS} + \left(\frac{1}{k_{GL} a_{GL}} + \frac{1}{k_{LL,film} a_{LS}}\right)^{-1} \qquad (I.21)$$

Voire, en négligeant l'échange de masse entre les bouchons de liquide et la zone de liquide stagnant en paroi (prolongation du film) :

$$k_L a|_{tot} = k_{GL,film} a_{GS} + k_{GL} a_{GL} \qquad (I.22)$$

Dans ce scénario, les coefficients de transfert de masse gaz-liquide $k_{GL,film}$et k_{LS} peuvent être explicités en utilisant les corrélations proposées par van Baten et Krishna (2004), issues de la théorie de la pénétration et fréquemment utilisées dans la littérature pour les

écoulements de Taylor. Ces auteurs ont étudié par simulation numérique le transfert d'un composé gazeux vers la phase liquide, sans réaction en paroi. Comme expliqué précédemment, ces auteurs ont considéré deux contributions de transfert à partir de la bulle : le transfert entre le bouchon liquide et les « caps » (extrémités sphériques) de la bulle, et le transfert entre le film de lubrification et la partie cylindrique de la bulle. On exprime alors les coefficients de transfert gaz-liquide $k_{GL,\,\mathrm{caps}}$ (nommé k_{GL} dans l'équation I.19) et $k_{GL,\,film}$ en fonction de la vitesse de bulles et des caractéristiques de l'écoulement (L_f, δ) :

$$k_{GL,\,\mathrm{caps}} = \frac{2\sqrt{2}}{\pi}\sqrt{\frac{DU_b}{d_c - 2\delta}} \qquad ; \qquad k_{GL,\,film} = 2\sqrt{\frac{DU_b}{\pi L_f}} \tag{I.23}$$

Pour le cas général incluant une réaction en paroi, le transfert de masse liquide-solide (entre bouchons et paroi) est largement étudié dans la littérature ; Haase et coll. (2016) ont rassemblé les corrélations dédiées au coefficient de transfert k_{LS}, dont celles de Hatziantoniou et Andersson (1982) (équation I.22) et de Bercic (2001) (équation I.23), qui ont été bâties *via* des expériences sur le principe de la dissolution d'une couche d'acide benzoïque préalablement déposée en paroi :

$$k_{LS}a_{GS} = \frac{4ShD}{d_c} \quad ,avec\ \ Sh = 3{,}51Re^{0{,}446}Sc^{0{,}441}\left(\frac{L_{UC}}{d_c}\right)^{-0{,}449}\left(\frac{L_{slug}}{d_c}\right)^{-0{,}087} \tag{I.24}$$

$$k_{LS}a_{GS} = \frac{0{,}069{u_{TP}}^{0{,}63}}{(\beta_G L_{UC} - 0{,}105\beta_G L_{UC})^{0{,}44}} \tag{I.25}$$

Kreutzer et coll. (2001) ont développé une corrélation pour k_{LS} par analogie avec le transfert de chaleur et sur la base de simulations numériques d'écoulements de Taylor, en couplant les effets de transfert sans et avec réaction à la paroi :

$$k_{LS} = \left[\frac{1}{\frac{20D}{d_c}\left[1 + 0{,}003\left(\frac{L_{UC} - L_f}{d_c.Re.Sc}\right)^{-0{,}7}\right]} + \frac{\delta}{D}\right] \tag{I.26}$$

Le transfert de masse gaz-solide, lui (qui inclue la contribution de $k_{GL,\,film}$ selon van Baten et Krishna), est souvent investigué pour une réaction à la paroi, où un réactif est issu de la phase gaz. Le modèle du film est souvent mobilisé ici car, dans le film de lubrification souvent considéré stagnant (Irandoust et Andersson, 1988), le gradient de concentration est *a priori* raide. Le coefficient de transfert k_{GS} est alors donné en fonction de la diffusivité des espèces D et de l'épaisseur du film δ :

$$k_{GS} = \frac{D}{\delta} \qquad (I.27)$$

D'autres corrélations sont proposées dans la littérature, différant selon leurs domaines d'application et les techniques utilisées pour les établir. N'étant pas toutes utiles pour ce travail de thèse, elles ne sont pas listées ici, mais elles sont répertoriées par exemple dans l'article de Bourdon et coll. (2024).

I.2 Maldistribution en écoulement gaz-liquide

Comme déjà discuté, les réacteurs monolithes offrent de nombreux avantages tels qu'une faible perte de charge et une meilleure efficacité des transferts de masse et de chaleur. Pour un bon fonctionnement de ces réacteurs, il est important de comprendre la distribution des phases, car elle peut affecter la performance des réactions.

Il est montré dans la littérature que la distribution des phases dans un réacteur monolithe n'est pas uniforme (Roy et coll., 2019 ; Meitzner et coll., 2017 ; Hamidipour et Larachi, 2010), la maldistribution pouvant être provoquée à l'injection du gaz ou du liquide. Une disparité des débits des phases dans les canaux induit celle des temps de séjour offerts à la réaction. De plus, un mauvais équilibre des taux de présence des phases dans les canaux influe sur l'aire interfaciale associée, et, par suite, sur l'efficacité du transfert de masse (Roy et coll., 2005), donc sur la vitesse de réaction. Cela peut aussi induire dans le réacteur la diminution de la sélectivité par rapport à l'objectif, la sous-utilisation de la surface de catalyseur dans le cas d'une réaction catalytique, mais aussi, dans des cas extrêmes, l'apparition de points chauds, l'emballement de réactions exothermiques (Roy et coll., 2005). A minima, la performance de la réaction sera moindre en présence de maldistribution, ce qui en fait un paramètre clé dans l'étude des réacteurs monolithes (Roy et coll., 2020).

Un exemple de maldistribution de phases est montré dans la Figure I-6, où on observe une hétérogénéité des rétentions des phases, ainsi que des tailles de bulles et de bouchons, entre les canaux.

Afin d'améliorer la distribution des phases dans les canaux du monolithe, un système de distribution adapté doit être employé en amont du réacteur, puisqu'aucune redistribution n'est possible en aval dans les canaux du réacteur.

Dans cette section seront abordés les types de distributeurs gaz-liquide les plus courants pour les réacteurs monolithes, les méthodes expérimentales les plus utilisées pour identifier la maldistribution, ainsi que les critères de caractérisation de celle-ci.

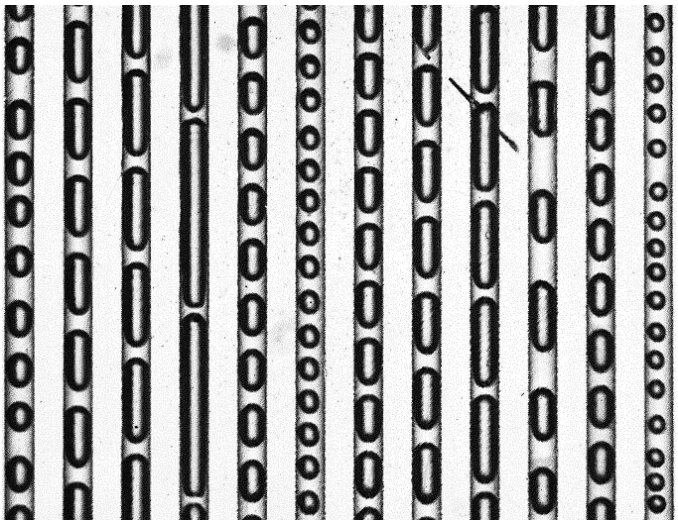


Figure I-6. Exemple d'une maldistribution de phases issue des expériences réalisées dans cette thèse, pour un monolithe à 12 canaux (voir Chapitre II).

I.2.1 Types de distributeurs utilisés

Pour surmonter la problématique d'alimentation des fluides dans les monolithes, plusieurs systèmes de distribution ont été conçus pour assurer la distribution gaz-liquide en amont des canaux des réacteurs. Ils seront décrits ici, parfois comparés ; les critères de maldistribution associés à ces comparaisons, tels qu'utilisés dans la littérature, sont généralement basés sur la mesure de caractéristiques des écoulements, tels que les débits de liquide et de gaz au sortir des divers canaux, ou les rétentions des phases dans les canaux. Ces critères seront détaillés dans une section ultérieure. Nous nous concentrerons ici sur les systèmes opérant à co-courant en écoulement descendant, comme c'est le cas dans notre étude.

Haase et coll. (2013) ont conçu et breveté un distributeur dit « injecteur à aiguilles », à l'échelle du laboratoire, dans lequel le gaz est introduit dans chaque canal par un capillaire fin (« aiguille ») ; les canaux sont alimentés en liquide de façon annulaire (Figure I-7 a) et les deux phases sont ainsi mélangées (voir Figure I-7 a). Ce distributeur, contenant jusqu'à 357 aiguilles de diamètre interne de 360 µm, a été exploité et amélioré lors de travaux ultérieurs pour de l'air et un mélange d'eau avec tensioactif, pour des vitesses superficielles de gaz de 0,05 à 3 m/s et de liquide de 0,05 à 0,3 m/s (Meitzner et coll., 2017 ; Schäfer et coll., 2016 ; Haase et coll., 2015). Pour des monolithes de 1 cm de diamètre (à 32 ou 357 canaux), le distributeur a été comparé à un distributeur classique du type « buse à pulvérisation » (ou buse aspergeante, ou « spray nozzle » en anglais), qui a conduit à une meilleure distribution des phases que le distributeur à aiguilles (Meitzner et coll., 2017 ; Schäfer et coll., 2016). Les schémas des distributeurs à « buse à pulvérisation » et « injecteur à aiguilles » sont représentés dans la Figure I-7.

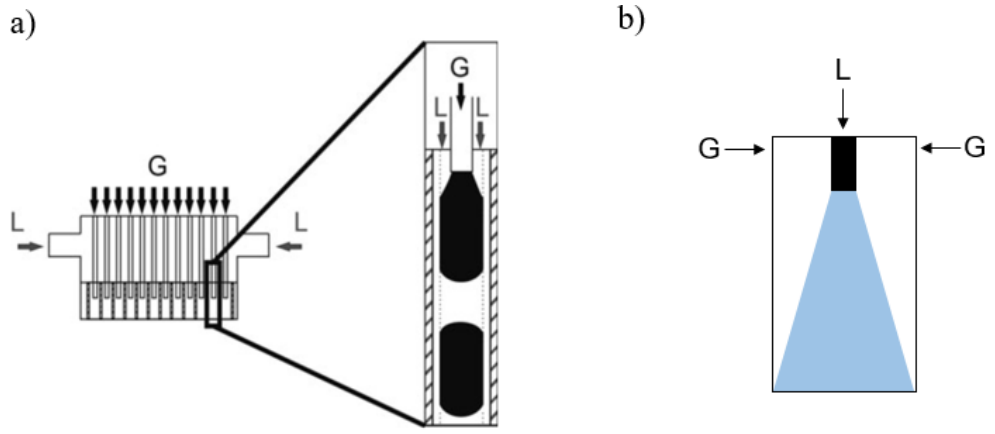


Figure I-7. Schéma des distributeurs : a) injecteur à aiguilles (figure tirée de Meitzner et coll. (2017) ; b) buse à pulvérisation.

Les distributeurs à « buse de pulvérisation » et à « pomme de douche » (ou « plateaux perforés ») sont largement utilisés dans la littérature. Zhou et coll. (2012) ont comparé les performances de trois types de distributeurs pour un réacteur monolithe de 0,048 m de diamètre et 0,152 m de long, et comportant une centaine de canaux ; ils ont travaillé avec de l'air et de l'eau selon des vitesses superficielles de liquide de 0,075 à 0,1 m/s et de gaz de 0,626 à 1,565 m/s. Les trois types de distributeur sont : distributeur à « pomme de douche » (Figure I-8 a), à « buse de pulvérisation » et à « faisceau de tubes » (Figure I-8 b). Ils ont observé que le distributeur en « faisceau de tubes » offrait la meilleure distribution, suivi du distributeur à « buse ». La « pomme de douche » ne donnait pas une distribution satisfaisante, présentant une maldistribution deux fois plus importante que les autres deux distributeurs.

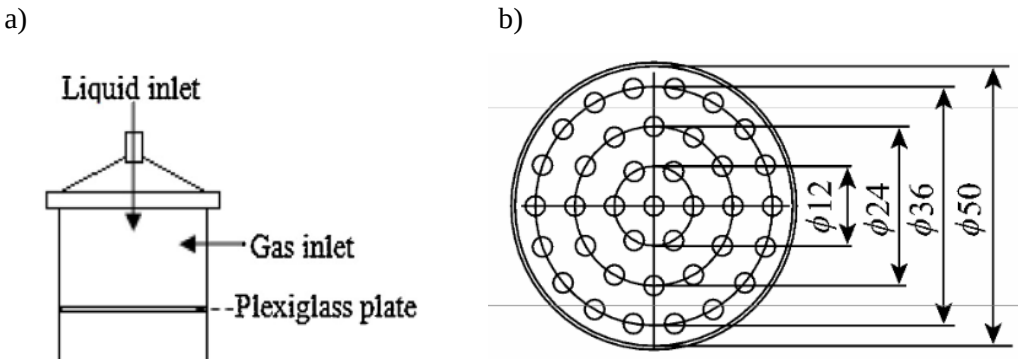


Figure I-8. Schémas de distributeurs. a) Pomme de douche (par plateau perforé), figure tirée de Lei et coll. (2020) ; b) Section droite de la géométrie du distributeur en « faisceau de tubes » utilisé dans les travaux de Zhou et coll. (2012) ; les espacements notés ϕ sont donnés en mm ; figure tirée de Zhou et coll. (2012).

Xu et coll. (2009) ont comparé les distributions des phases issues d'un distributeur de type « buse à pulvérisation » (Figure I-7 b) et de distributeurs garnis des billes de verre (Figure I-9 a et b), pour un mélange air-eau et pour des vitesses superficielles de gaz de 0,055 à 0,388 m/s et de liquide de 0,039 à 0,118 m/s. Les distributeurs ont été appliqués à deux réacteurs monolithes de section circulaire de 9,5 cm de diamètre et de 15 cm de longueur, dotés de 62 et de 15 canaux par cm², respectivement. Dans cette étude, la « buse » était moins efficace que le

lit des billes, car ce dernier présente une plus grande quantité de liquide dans la zone de distribution et des pertes de charge plus importantes, conduisant ainsi à une meilleure distribution des fluides.

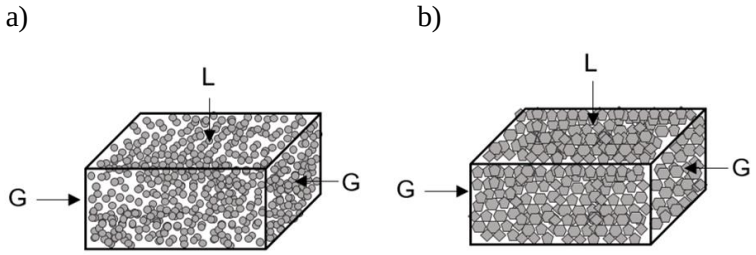


Figure I-9. Schémas des distributeurs : a) lit de billes ; b) lit de mousse.

Roy et Al-Dahhan (2005) ont également comparé trois distributeurs, de type « buse », « pomme de douche », et « lit de mousse » pour un mélange air-eau et pour des vitesses superficielles de gaz de 0,1 à 1 m/s et de liquide de 0,025 à 0,5 m/s. Ils ont trouvé que la buse donnait globalement une meilleure distribution des phases que les deux autres distributeurs, en particulier pour des vitesses de liquide modérées.

Heibel et coll. (2003) ont comparé trois systèmes industriels de type « buse aspergeante » (Spraying Systems, Unijet & Fulljet series, TG-SS 0.4, QG. SS-1, QG-SS-3) pour un monolithe circulaire de 0,045 m de diamètre et de 0,25 de long, comportant 44 canaux carrés. Les travaux ont été réalisés avec des systèmes air-eau et air-eau/saccharose pour des vitesses superficielles de gaz allant de 0,12 à 2,7 m/s et de liquide entre 0,01 et 0,04 m/s. Ils ont trouvé que la première buse (TG-SS 0.4) donnait les plus mauvaises distributions car le liquide s'écoulait préférentiellement par les côtés du distributeur, avec un taux de liquide faible au centre du monolithe. Bauer et coll. (2005) ont mis en place une « buse » avec un monolithe fonctionnant pour une gamme de vitesses des phases u_{TP} entre 0,05-0,55 m/s pour le système air-eau, trouvant, eux, des distributions quasiment uniformes pour toutes les expériences réalisées.

D'autres technologies, comme les distributeurs à jonction en T (Al-Rawashdeh et coll., 2014, 2012a et 2012b) ou les structures à bifurcations (de l'anglais « tree structures ») (Guo et coll., 2019 ; Tiwari et coll., 2019 ; Liu et coll., 2012 ; Yue et coll., 2010) sont aussi exploitées (Figure I-10), notamment pour des microréacteurs. Cependant, leur structure complexe peut entraver la mise en œuvre de ces systèmes lors de l'utilisation de monolithes pouvant comporter des centaines, voire des milliers de canaux.

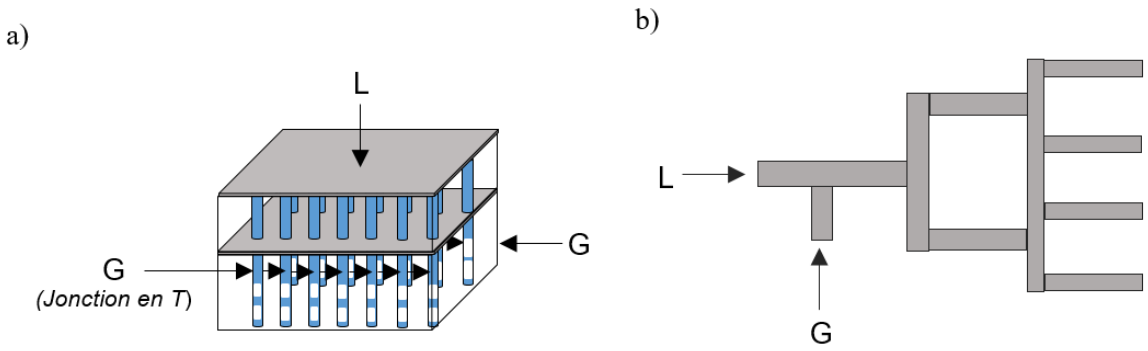


Figure I-10. Schémas des distributeurs : a) jonction en T ; b) structure à bifurcation.

Au final, de nombreux types de distributeurs de gaz et de liquide existent et ont été décrits dans la littérature. Les performances en termes de distribution des fluides sont contrastées, rapportées comme étant parfois bonnes et parfois mauvaises pour le même type de distributeur. Aucune technologie ne se distingue particulièrement. Le Tableau I-1 ci-dessous regroupe les études ici discutées sur la distribution des fluides. On constate que les distributeurs désignés comme étant les plus performants ne sont pas les mêmes, d’une étude à l’autre.

Tableau I-1. Aperçu d'études expérimentales de distribution des fluides en monolithe réalisées en réacteur monolithe, trouvées dans la littérature.

Géométrie du monolithe	Mélange	Conditions opératoires	Distributeurs utilisés	Classement	Référence
Section circulaire, de 0,01 m de diamètre et 0,10 de long, avec 32 ou 357 canaux	Air - solution eau/tensioactif	u_G = 0,05-3 m/s u_L = 0,05-0,3 m/s	Buse, injecteur à aiguilles	Buse > injecteur à aiguilles	Meitzner et coll. (2017), Schäfer et coll. (2016), Haase et coll. (2015)
Section circulaire, de 0,048 m de diamètre et 0,152 m de long, avec ~100 canaux	Air - eau	u_G = 0,626-1,565 m/s u_L = 0,075-0,1 m/s	Pomme de douche, buse, faisceau de tubes	Faisceau de tubes > buse > pomme de douche	Zhou et coll. (2012)
Section circulaire, de 0,095 m de diamètre et 0,15 m de long, avec 62 ou 15 canaux par cm²	Air - eau	u_G = 0,055-0,388 m/s u_L = 0,039-0,118 m/s	Buse, lit garnis des billes de verre	Lit garni de billes> buse	Xu et coll. (2009)
Section circulaire, de 0,05 m de diamètre et 0,5 m de long	Air - eau	u_G = 0,1-1 m/s u_L = 0,025-0,5 m/s	Buse, pomme de douche, lit de mousse	Buse > pomme de douche, lit de mousse	Roy et Al-Dahhan (2005)
Section circulaire, de 0,045 m de diamètre et 0,25 m de long, avec 44 canaux carrés	Air - eau, air-eau/saccharose	u_G = 0,12-2,7 m/s u_L = 0,01-0,04 m/s	Buses industrielles (TG-SS 0.4, QG. SS-1, QG-SS-3)	TG-SS 0.4 > QG. SS-1, QG-SS-3	Heibel et coll. (2003)
Section circulaire, de ~0,05 m de diamètre et ~0,15 m de long, avec 15,5 à 93 canaux par cm²	Air - eau	u_{TP} = 0,05-0,55 m/s	Buse	-	Bauer et coll. (2005)

I.2.2 Méthodes expérimentales pour identifier la maldistribution des fluides

Ce paragraphe présente un aperçu des techniques expérimentales utilisées dans la littérature pour caractériser la maldistribution des fluides, à l'aide des mesures de caractéristiques hydrodynamiques - telles que la vitesse des bulles ou des phases, la rétention de gaz ou de liquide, les longueurs des bulles ou des bouchons liquide.

I.2.2.1 Tomographie

La tomographie est connue pour sa nature non intrusive ; elle reconstitue la géométrie d'un objet en 3D (sous la forme des coupes d'images dans chaque direction spatiale) à partir d'images prises sous différents angles autour de l'objet (Roy et coll., 2019 ; Boyer et coll., 2002). Dans le cas d'un réacteur polyphasique, cette technique permet de mesurer la distribution des phases, *via* le taux de gaz ou de liquide, sans perturber l'écoulement.

Conditionnée par la densité du matériau à une énergie spécifique, la tomographie à rayons X ou à rayon gamma repose sur la mesure de l'atténuation des photons. Ainsi, à partir du taux de présence local des phases dans l'objet, la densité du matériau est mesurée dans chaque pixel d'une image, permet de construire l'image résultante. Cette technique est utilisée pour mesurer la distribution des taux de liquide dans des réacteurs monolithes (Roy et coll., 2019 ; Schubert et coll., 2016 ; Bauer et coll., 2005 ; Roy et Al-Dahhan, 2005).

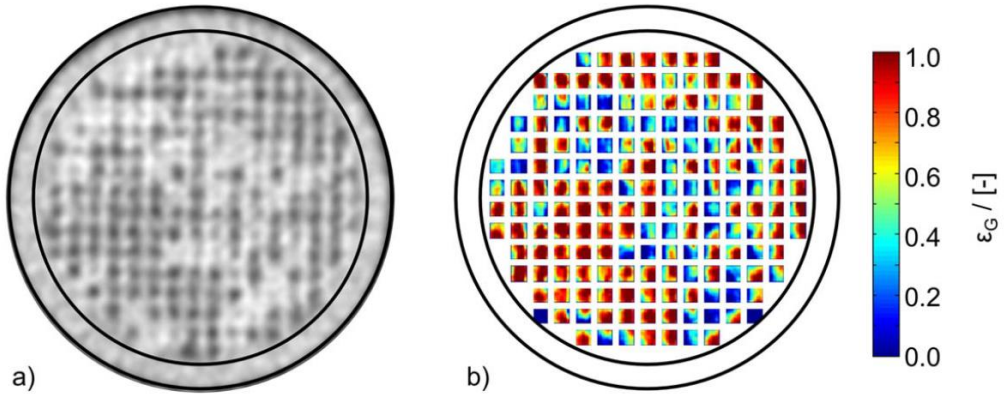


Figure I-11. Distribution de taux de gaz dans un réacteur monolithe à partir de la technique de tomographie aux rayon-X ultrarapide. a) image brute d'atténuation ; b) image traitée. Figures tirées de Schubert et coll. (2016).

Le prix de l'équipement et la puissance nécessaire freinent toutefois son usage. De plus, la résolution spatiale est limitée - de l'ordre de 1 mm pour la tomographie aux rayon-X et de 1 cm pour celle aux rayon gamma (Boyer et coll., 2002) - ce qui est insuffisant pour investiguer les réacteurs monolithes.

I.2.2.2 Résonance Magnétique Nucléaire (RMN)

Comme la tomographie, la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) est une technique non intrusive. Suite à une exposition à un rayonnement électromagnétique (souvent des radio-fréquences), des noyaux atomiques (souvent des protons ^{1}H) émettent un signal électromagnétique atténué, qui est mesurée par l'appareil (Gladden et coll., 2007 ; Boyer et coll., 2002). Dans le cas des réacteurs polyphasiques, l'atténuation du signal sera déterminée en fonction des phases présentes dans le réacteur.

Lorsque la RMN est appliquée au cas des réacteurs monolithes, sa réponse permet d'atteindre la distribution de taux de liquide, la longueur des bulles, ainsi que les vitesses de phases (Boyer et coll., 2002), avec une résolution spatiale de l'ordre de 30 à 200 μm (Mantle et coll., 2002). Gladden et coll. (2003), Heibel et coll. (2003) et Mantle et coll. (2002) ont utilisé la RMN pour évaluer la maldistribution du liquide dans des réacteurs monolithes à partir de la mesure du taux de liquide et des vitesses et des longueurs des bulles.

Le prix et la taille de l'équipement sont les principales limitations à l'usage de cette technique.

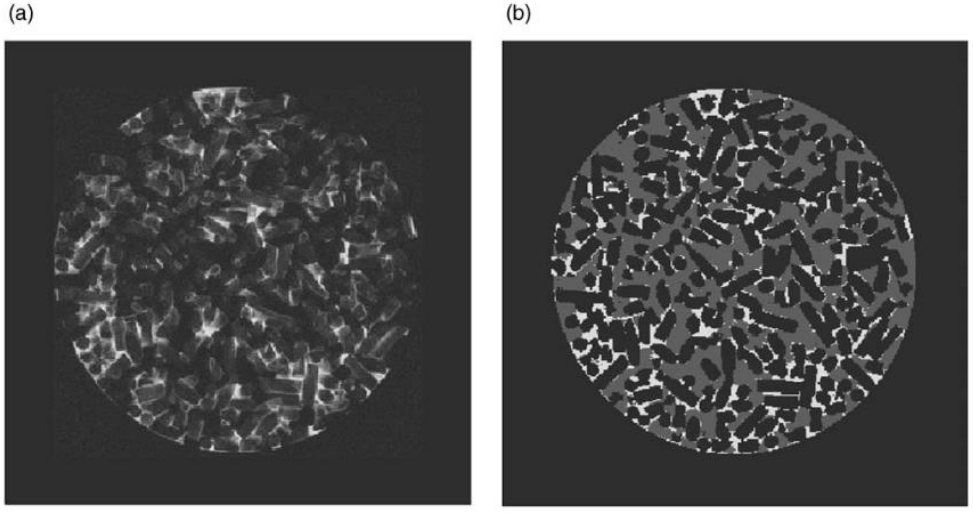


Figure I-12. Distribution de taux de gaz dans un réacteur à lit ruisselant à partir de la technique de RMN. a) image brute issue de RMN ; b) image traitée où sont visibles les phases solides (en noir), liquides (en blanc) et gaz (en gris). (Figures tirées de Gladden et coll. (2003).

I.2.2.3 Sonde à fibre optique ou sonde d'impédance

Dans le cas des sondes optiques, un faisceau de lumière infrarouge est guidé le long d'une fibre jusqu'à son extrémité, placée dans l'écoulement. Lorsqu'elle est en milieu liquide, la pointe, fabriquée en quartz ou en saphir, transmet le faisceau lumineux au milieu environnant;

mais elle le réfléchit lorsqu'elle est entourée de gaz. On récupère alors un signal de type créneau permettant d'identifier l'évolution dans le temps des phases présentes au point de mesure.

Les sondes d'impédance, constituées de fil métallique (inox, nickel, etc.) se comportant comme une électrode, ont un principe de fonctionnement très similaire à celui des sondes optiques, le signal lumineux étant remplacé par un signal électrique. A condition que les conductivités des phases soient significativement différentes, on peut comme précédemment identifier la phase en présence en mesurant la différence de tension entre la sonde et le support, ce dernier étant généralement mis à la terre (Boyer et coll., 2002).

Ces deux types de sondes sont utilisées avec une ou deux pointes, selon le type de données attendues : les sondes à une seule pointe donnent accès à la fraction de gaz et à la fréquence des bulles ; les sondes à double pointe permettent d'atteindre aussi la vitesse des bulles via le temps de vol entre les deux sondes, puis d'en déduire une taille moyenne locale de bulles et la surface interfaciale locale.

Cette technique est intrusive, la sonde étant placée dans le réacteur (en sortie de canal ou dans le canal, dans le cas des monolithes) afin de piquer un maximum de bulles, et peut ainsi perturber l'écoulement. Sa résolution spatiale et de l'ordre de 1 mm et sa résolution temporelle de 1 s. L'application de cette technique est limitée par l'épaisseur de la sonde qui doit être très petite devant la taille des bulles, ainsi que par la nature des liquides. En effet, dans le cas des liquides opaques, les sondes optiques ne sont pas utilisables, et dans le cas des liquides organiques, les sondes d'impédance ne fonctionnent pas car la différence de conductivité entre les phases est faible (Boyer et coll., 2002).

Chugh et coll. (2017) ont investigué la distribution des phases dans un réacteur monolithe de 0,076 m de diamètre, avec le système air-eau, à l'aide de 12 sondes optiques placées dans 4 canaux sur 3 positions axiales ; ils ont mesuré les taux de gaz, les vitesses de bulles et les fréquences de passage de bulles. Zhou et coll. (2012) ont, pour leur part, monté un système de 16 sondes à fibre optique à l'intérieur de canaux, placées en 4 positions axiales et 4 positions radiales, dans un réacteur monolithe de 4,8 cm de diamètre ayant une densité de 62 canaux par cm^2 ; ils ont étudié la maldistribution de phases issue de différents distributeurs gaz-liquide, pour un mélange air-eau.

Enfin, Dos Reis et Goldstein Jr. (2010) ont utilisé une sonde de capacitance pour identifier les régimes d'écoulements et le taux de gaz dans un tube horizontal. En utilisant la même approche, Rocha et Simões-Moreira (2008) ont pu identifier ces deux caractéristiques hydrodynamiques dans un tube vertical à l'aide d'un système de 8 sondes d'impédance.

I.2.2.4 Capteurs électroniques dits « wire-mesh » (mesure de conductivité, ou capacitance)

Les capteurs électroniques dits « Wire-Mesh » ont été développés au laboratoire Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR) en Allemagne ; ils sont basés sur un

arrangement matriciel d'électrodes qui donnent accès, à partir de la conductivité ou de la capacitance des fluides, aux caractéristiques d'un écoulement polyphasique dans une colonne. C'est une technique largement diffusée dans la littérature (Wiedemann et coll., 2023 ; Tompkins et coll., 2018 ; Velasco Peña et Rodriguez, 2015), permettant les mesures de taux de gaz et de taille des bulles (Prasser et coll., 2002).

La technologie fonctionne à une fréquence d'acquisition de données élevée (jusqu'à 10 kHz) et pour des conditions de pression et température élevées, allant jusqu'à 100 bar et 400°C. Si deux capteurs « Wire-Mesh » sont positionnés à deux positions différentes dans un tube, la vitesse des bulles peut être mesurée (Parsi et coll., 2015).

Les fils électriques du maillage peuvent avoir une faible épaisseur et le capteur pourrait ainsi atteindre l'échelle des milli-canaux dans les réacteurs monolithes. Cependant, à notre connaissance, aucun article ne mentionne son utilisation pour la caractérisation de maldistribution en écoulement de Taylor dans les monolithes. En effet, ce capteur est invasif, et induirait des problèmes d'étanchéité s'il était installé entre deux blocs monolithes. De plus, le maillage de fils métalliques, installé sur la section droite du réacteur, pourrait fractionner les bulles en bulles plus petites, déstructurant ainsi les écoulements de Taylor.

I.2.2.5 Techniques d'imagerie (PIV, ombroscopie)

La vélocimétrie par images de particules (en anglais : « PIV ») est une technique classique d'imagerie pour la détermination des champs de vitesses en écoulement. Un faisceau laser est utilisé pour éclairer en nappe une section fine du fluide contenant des particules utilisées comme un traceur ; des prises d'images sont réalisées selon une résolution temporelle élevée de façon à suivre le déplacement des particules, ce qui amène à la connaissance du champ de vitesse (Schon et coll., 2007).

Dans le cas des écoulements gaz-liquide, la PIV est utilisée pour déterminer la vitesse superficielle de liquide, la vitesse de bulles ou bien la longueur des bulles, ce qui permet d'évaluer une éventuelle maldistribution des phases. Ainsi, Tiwari et coll. (2019) ont utilisé cette technique pour évaluer la performance d'un distributeur gaz-liquide de type « structure à bifurcations » (voir Figure I-10 b) dans des canaux de 1 à 2 mm de diamètre.

L'ombroscopie, quant à elle, est une technique d'imagerie qui se base sur l'identification des contours ou des ombres des objets sur des images. Pour cela, une source de lumière (souvent un panneau de LED, fournissant un faisceau de rayons lumineux bien parallèles) éclaire l'écoulement, produisant des ombres qui permettent de distinguer les phases, en l'occurrence les contours des bulles pour un cas gaz-liquide. Comme pour la PIV, la prise d'images est réalisée avec une caméra à haute vitesse. La limitation de cette technique repose sur le fait que les écoulements doivent être observés à travers la paroi de l'appareil. Afin de bien identifier les phases dans l'écoulement, les parois et le liquide doivent ainsi être

transparents. En général, seuls les écoulements en proche paroi peuvent être visualisés, donc, dans le cas d'un monolithe, seules les rangées de canaux périphériques.

Dans le cas des écoulements de Taylor, un post-traitement des images brutes enregistrées est réalisé, afin de binariser les images et ainsi d'identifier toutes les bulles. Avec ces images, les caractéristiques hydrodynamiques des écoulements peuvent être estimées. Cette technique sera utilisée dans ces travaux de thèse et sera détaillée dans le Chapitre II.

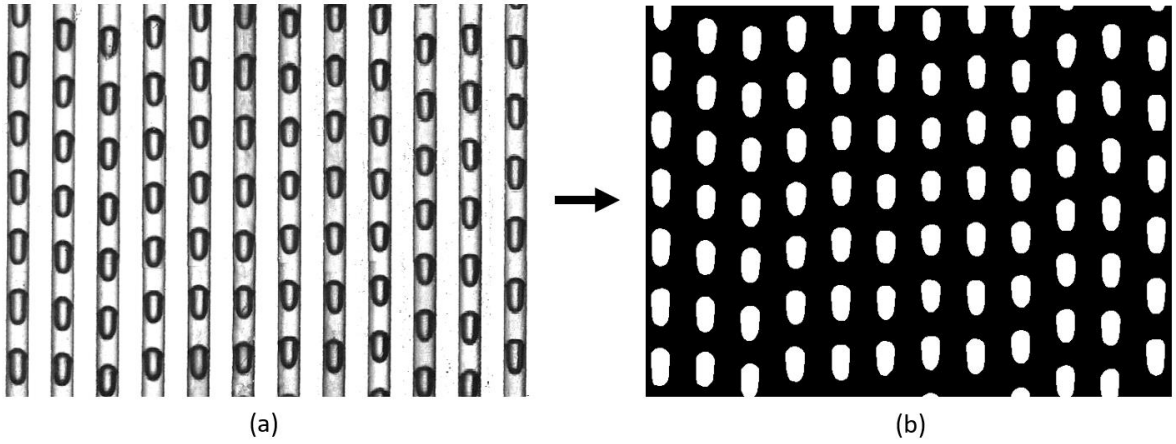


Figure I-13. Exemples d'écoulements de Taylor obtenus par ombroscopie sur une rangée de 12 canaux transparents : a) image brute; b) image traitée.

I.2.2.6 Gravimétrie

La gravimétrie est une technique classique pour l'étude des distributions des phases, basée sur la mesure de la masse de liquide au cours du temps, en sortie des canaux du monolithe. Les phases sont collectées en aval du réacteur, dans des réservoirs (des béchers, par exemple) à l'aide de capillaires collés aux canaux ou par l'ajout d'un séparateur gaz-liquide, puis les masses collectées sont pesées.

Cependant, la technique peut modifier les écoulements, puisque l'ajout d'un système de collecte conduit à l'augmentation des pertes de charges dans l'ensemble du dispositif expérimental, comme l'ont montré Meitzner et coll. (2017). En comparant cette technique aux résultats obtenus par tomographie aux rayons-X et par sondes à fibre optique, les auteurs ont obtenu des résultats de maldistribution différents avec la gravimétrie.

I.2.3 Qualification et critères de la maldistribution dans les réacteurs polyphasiques, dont le monolithe

La maldistribution des fluides à l'entrée des canaux de monolithes est fréquemment observée et étudiée dans la littérature, dans le but de trouver un système de distribution optimal, ne réduisant pas la performance des réacteurs chimiques. Nous avons déjà présenté quelques types de distributeurs, et les techniques de caractérisation des écoulements et donc de la maldistribution. Nous nous intéressons à présent à répertorier des critères mathématiques qui permettent de quantifier cette maldistribution.

Les critères envisagés dans la littérature s'appuient sur les caractéristiques hydrodynamiques – telles que la fréquence des bulles, le taux de gaz ou de liquide, le débit de gaz ou de liquide, les vitesses superficielles, la distribution de temps de séjour, etc. – mesurées avec les techniques présentées dans le paragraphe I.2.2.

Roy et coll. (2020, 2019) ont mené des expériences de tomographie à rayon gamma avec plusieurs systèmes gaz-liquide, en utilisant un test statistique « t » de Student sur les rétentions de liquide, basé sur la comparaison des valeurs obtenues sur des portions de la section étudiée, de positions et de tailles différentes. Ce test statistique a été appliqué par Roy et coll. (2004) sur un réacteur à garnissage structuré, puis (Roy et Al-Dahhan, 2005) à un réacteur monolithe de section circulaire de diamètre de 0,05 m et de longueur de 0,5 m, avec des canaux carrés (de dimension non précisée). Ils ont observé, à partir des profils de taux de liquide, que les bords du monolithe sont moins alimentés en liquide, et que la maldistribution des phases diminue avec l'augmentation de la vitesse superficielle de liquide, comme illustré dans la figure ci-dessous :

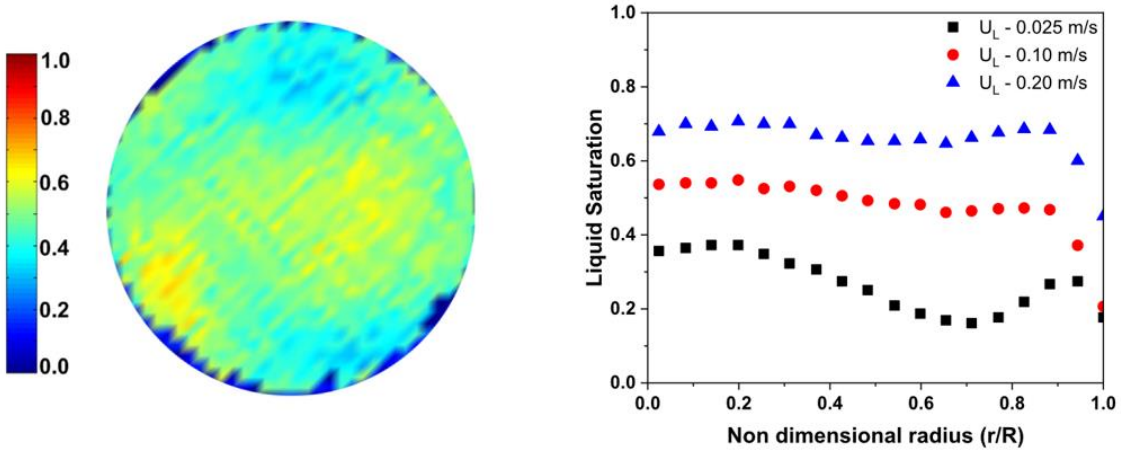


Figure I-14. Exemple de cartographie de rétention liquide (avec u_L = 0,1 m/s et u_G = 0,2 m/s) et de profil radial de rétention liquide (avec u_G = 0,2 m/s) dans un monolithe circulaire. Figures tirées de Roy et coll. (2019).

Ayant caractérisé la distribution du liquide dans le réacteur, Roy et coll. (2020) ont pu montrer que la maldistribution des fluides a un effet important sur la performance d'un réacteur monolithe. Dans le cas de l'hydrogénation de l'α-méthylstyrène pour la production de cumène, ils ont identifié que le rendement de la réaction (défini par le flux molaire de cumène produit par unité de masse de catalyseur) est plus élevé d'un facteur 4,7 pour une distribution uniforme

des fluides que pour une mauvaise distribution, même en doublant la quantité de catalyseur disponible par rapport au premier cas. Les auteurs ont également comparé le monolithe à un réacteur classique à lit ruisselant (« trickle bed reactor »), montrant que le monolithe conduit à une productivité jusqu'à 11,5 plus grande que celle du réacteur classique.

Meitzner et coll. (2017) ont quant à eux utilisé la mesure de rétention de liquide issue de trois techniques différentes (tomographie aux rayons-X, sondes à fibre optique, et gravimétrie) pour quantifier la maldistribution des phases dans un monolithe. Le critère de maldistribution, noté MDF, utilisé dans ces travaux est calculé à l'aide de la variance normée sur les N canaux du monolithe (équation I.27) des rétentions expérimentales de liquide $\beta_{L,i}$ dans les différents canaux, obtenues pour une distribution donnée, par rapport à la rétention moyenne $\beta_{L,moy}$ de la distribution uniforme équivalente.

$$MDF = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\left(\frac{\beta_{L,i} - \beta_{L,moy}}{\beta_{L,moy}}\right)^2 \qquad (I.28)$$

Les auteurs ont utilisé ce critère pour comparer un distributeur classique de type « buse aspergeante » par rapport à un distributeur innovant dit « injecteur à aiguilles ». Grâce à ce critère – qui doit être le plus faible possible –, ils ont trouvé que la maldistribution diminue avec l'augmentation des vitesses superficielles de gaz et de liquide, et ont pu comparer les distributions obtenues avec les deux distributeurs, comme illustré dans la figure ci-dessous :

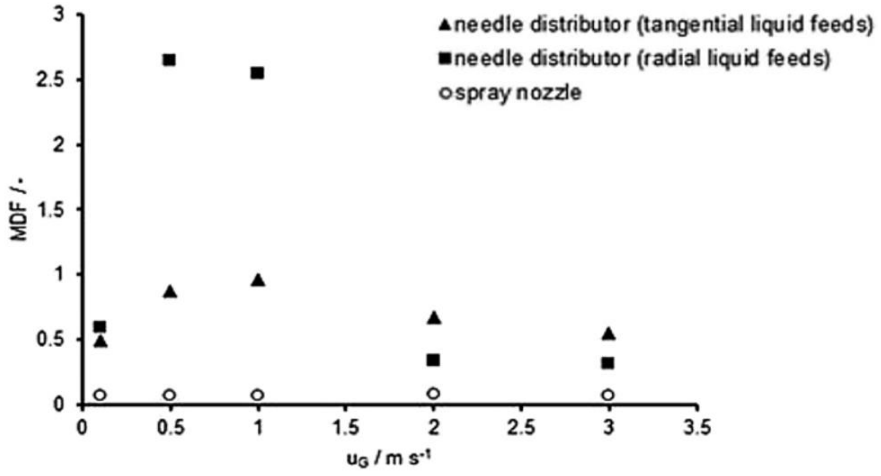


Figure I-15. Comparaison du critère de maldistribution MDF pour différents distributeurs gaz-liquide par la technique de mesure gravimétrique (issu de Meitzner et coll, 2017).

Ce critère, d'abord étudié par Hoek et coll. (1986) pour de colonnes à garnissage, a ensuite été appliqué dans de nombreux autres travaux sur la distribution des fluides en monolithe, disponibles dans la littérature (Zhou et coll., 2012 ; Xu et coll., 2011 ; Behl et Roy, 2007 ; Eggenschwiler et coll., 2009 ; Heibel et coll., 2003).

Schubert et coll. (2016) ont modélisé l'impact de la maldistribution des fluides, mesurée à l'aide de la tomographie à rayon-X ultra-rapide, sur la performance d'hydrogénation du glucose dans un réacteur monolithe. Les critères de maldistribution utilisés sont cette fois des histogrammes ou des cartographies, sur une section droite du réacteur, de la longueur des bulles et des bouchons liquides, des taux de gaz et des vitesses des phases ou des bulles, comme illustré dans la Figure I-16.

Avec un distributeur de type « buse », ils ont trouvé un niveau de maldistribution – *a priori* calculé par la variance ou l'écart-type des histogrammes - pouvant atteindre 40% sur la vitesse des bulles, ce qui réduit d'un facteur 6 la conversion de glucose par rapport à une distribution uniforme.

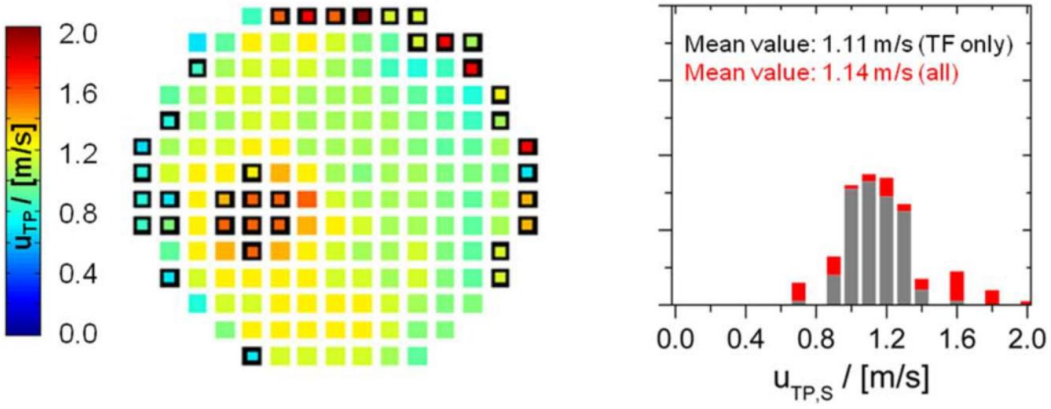


Figure I-16. Exemple de cartographie et d'histogramme des vitesses de phases u_{TP} des écoulements de Taylor dans un monolithe, utilisés comme des critères de maldistribution. Figures tirées de Schubert et coll. (2016).

Comme indiqué dans le paragraphe I.2.1, Zhou et coll. (2012) ont comparé trois types de distributeurs pour un réacteur monolithe alimenté par un mélange air-eau, en utilisant quatre sondes optiques réparties sur une section droite du réacteur, fournissant ainsi la rétention en liquide à chaque position X, $\beta_{L,X}$. Ils ont évalué le degré d'uniformité des phases, noté ici DU, en évaluant l'écart-type normé (équation I.28 ci-dessous) des quatre rétentions en liquide mesurées dans le monolithe par rapport à la rétention liquide moyenne β_L obtenue pour une distribution uniforme.

$$DU = \sqrt{\frac{1}{N}\sum_{X=1}^{N=4}\left(\frac{\beta_{L,X}-\beta_L}{\beta_L}\right)^2} \qquad (I.29)$$

Les expériences ont donc permis de comparer les qualités de distribution. Ces résultats sont montrés dans la figure ci-dessous pour différentes vitesses superficielles de gaz et de liquide.

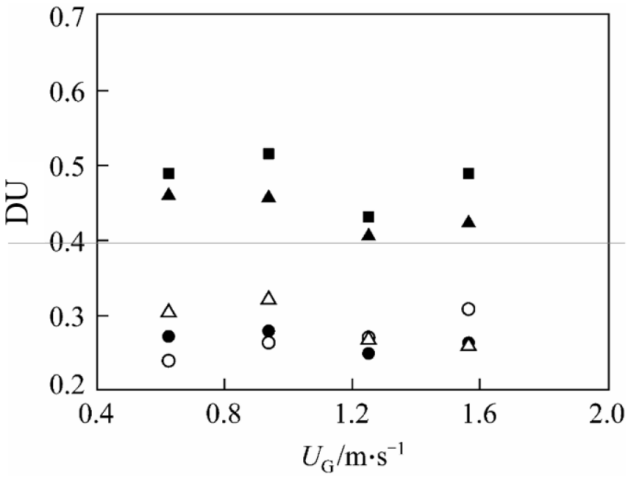


Figure I-17. Degré d'uniformité des trois types de distributeurs (■ pomme de douche, u_L =0,075 m/s ; ● faisceau de tubes, u_L =0,075 m/s, ○ u_L= 0,1 m/s ; ▲ buse, u_L 0,075 m/s, ⏢ u_L = 0,1 m/s). Figure tirée de Zhou et coll. (2012).

Liu et coll. (2012) ont évalué la distribution des fluides issue de différentes géométries de distributeurs de type « structure à bifurcation » à 16 canaux. Pour cela, ils ont utilisé le critère de maldistribution basé sur l'écart-type, calculé cette fois sur les vitesses de bulles dans les canaux. Un second critère a également été appliqué, mesurant la différence maximale des vitesses de bulles dans les canaux, par rapport à une distribution uniforme.

Les méthodologies d'évaluation de la distribution des fluides, qui ont été présentées ici pour des réacteurs polyphasiques, sont bien connues dans la littérature et essentielles à la compréhension de l'impact de la maldistribution des fluides sur l'hydrodynamique des écoulements de Taylor dans les monolithes, ainsi que sur la performance des réactions chimiques.

I.3 Distribution de temps de séjour et modèles phénoménologiques de l'hydrodynamique de l'écoulement de Taylor

Ce paragraphe a pour objectif de présenter les modèles phénoménologiques classiques permettant de caractériser l'hydrodynamique dans les réacteurs chimiques, et plus particulièrement, les modèles décrits dans la littérature comme applicables aux écoulements de Taylor en réacteur monolithe. Ces modèles seront complémentaires de l'approche de la distribution de temps de séjour.

I.3.1 Distribution de temps de séjour

La distribution de temps de séjour (ci-après : DTS) est un concept très utile pour caractériser l'hydrodynamique des réacteurs chimiques, soit pour identifier des dysfonctionnements (courts-circuits, zones mortes, …) soit en vue d'établir un modèle d'écoulement qui, couplé à la cinétique chimique, permet de déterminer les performances des réacteurs et, par suite, les paramètres à privilégier lors de leur conception (Fogler, 2011 ; Levenspiel, 1999).

Danckwerts (1953) a été le premier à introduire cette notion en proposant une approche systémique par bilan de population, associant à chaque molécule dans un réacteur un temps de séjour.

Soit E(t) la fonction de distribution des temps de séjour : par définition de E(t), E(t).dt représente la fraction du débit de sortie dont le temps de séjour dans le réacteur est compris entre t et t + dt. Comme la fonction E(t) est une fonction de distribution, cette dernière doit être normée, devant alors satisfaire la relation :

$$\int_0^\infty E(t)dt = 1 \qquad (I.30)$$

Afin de caractériser la fonction E(t) d'un procédé, la technique de traçage est utilisée : suite à une perturbation imposée en entrée du procédé au moyen d'une injection de traceur, la réponse du système est mesurée en sortie à l'aide d'un détecteur adapté. La fonction de transfert entre les signaux d'entrée et de sortie du système caractérise le degré de mélange et les caractéristiques de l'écoulement au sein du système.

Pour des installations pilote de petites tailles, une injection de type « impulsion », consistant à injecter la quantité de traceur pendant un temps très court (mathématiquement représentée par la fonction ou impulsion de Dirac) est souvent imposée. Dans ce cas, la fonction E(t) est définie de la façon suivante à partir du bilan matière sur le traceur :

$$E(t) = \frac{Q.C(t)}{N_0} = \frac{C(t)}{\int_0^\infty C(t)dt} \qquad (I.31)$$

où Q est le débit volumique ($m^3.s^{-1}$), C(t) est la concentration du traceur détectée en sortie au temps t ($mol.m^{-3}$), et N_0 est le nombre de moles de traceur injecté dans le réacteur (mol).

La fonction E(t) étant une distribution statistique, nous pouvons établir des moments d'ordre n afin de caractériser le degré de mélange du procédé ; les moments sont définis par :

$$\mu_n = \int_0^\infty t^n.E(t)dt \qquad (I.32)$$

Le moment d'ordre 0 donne la norme de la distribution (Equation I.1) ; il est utilisé expérimentalement pour vérifier que la totalité du traceur injecté a bien été détectée en sortie.

Le moment d'ordre 1 correspond au temps de séjour moyen $\overline{t_s}$ (s) :

$$\overline{t_s} = \mu_1 = \int_0^\infty t.E(t)dt \qquad (I.33)$$

Le temps de séjour moyen $\overline{t_s}$est souvent comparé au temps de passage τ des particules dans le réacteur :

$$\tau = \frac{V}{Q} \qquad (I.34)$$

avec V le volume du réacteur (m^3).

Un écart entre le temps de séjour moyen et le temps de passage permet d'identifier des situations où tout le volume du système n'est pas réellement accessible au fluide, comme des zones mortes (ou « stagnantes »), impliquant que le volume accessible au traceur est plus petit que le volume géométrique du réacteur ($\overline{t_s} < \tau$) (Bérard et coll., 2019 ; Villermaux, 1993).

Le moment centré d'ordre 2 est la variance de la courbe E(t) ; il caractérise l'étalement de la distribution autour de $\overline{t_s}$ et donc la déviation au comportement idéal du type piston.

$$\sigma^2 = \mu_2{}' = \int_0^\infty (t - \overline{t_s})^2 E(t)dt = \mu_2 - \overline{t_s}^{\,2} \qquad (I.35)$$

I.3.2 Méthodes expérimentales associées à la démarche de DTS

La méthode expérimentale de traçage utilisée pour la détermination de la DTS consiste à suivre les molécules de traceur à l'entrée et à la sortie du système au cours du temps, à l'aide d'un détecteur compatible avec le type de traceur utilisé et ayant une dynamique de réponse suffisante pour décrire les phénomènes. A noter que, pour perturber le moins possible les écoulements et être pertinent, le traceur doit être inerte et suivre parfaitement l'écoulement du fluide porteur (s'il s'agit de particules par exemple, leur vitesse de sédimentation doit être négligeable), et la technique de détection doit être non intrusive (Houzelot, 2013).

Le Tableau I-2 ci-dessous présente les principaux traceurs et techniques utilisés pour la méthode expérimentale de traçage.

Tableau I-2. Techniques de traçage et traceurs utilisés selon la phase d'écoulement caractérisé (Houzelot, 2013).

Phase	Traceur	Technique
Liquide	Traceur salin (phase aqueuse)	Mesure de conductivité (ou conductimétrie)
	Traceur coloré	Spectrophotométrie visible
	Liquide de nature différente (phase organique)	Réfractométrie, spectrophotométrie UV
Gaz	Gaz de nature différente du gaz porteur	Spectrophotométrie UV / visible / IR Spectrométrie de masse en ligne Catharomètre (TCD) Détecteur à ionisation de flamme (FID)
Solide	Traceur radioactif	Détection radioactive

Pour le traçage d'une phase liquide, la conductimétrie est la méthode la plus simple et la plus utilisée. Le liquide porteur est généralement de l'eau et le traceur est un électrolyte, comme l'hydroxyde de potassium, le chlorure de potassium ou le chlorure de sodium. La spectrophotométrie est aussi très employée avec des traceurs liquides colorés.

Le Tableau I-3 regroupe quelques exemples d'études expérimentales de DTS en phase liquide répertoriées dans la littérature pour des écoulements en phase liquide ou gaz-liquide en pilotes de laboratoire – où seule la phase liquide est tracée. On retrouve que les techniques utilisant le suivi de la concentration en traceur salin (NaCl ou KCl) par conductivité et le suivi d'un traceur coloré par spectrophotométrie sont les plus utilisées pour caractériser l'écoulement d'une phase liquide. L'analyse d'images, non répertorié par Houzelot (2013), est également utilisé comme technique d'analyse d'un traceur coloré par quelques auteurs (Guo et coll., 2018 ; Trachsel et coll., 2005). Ces deux dernières méthodes ont l'avantage de n'être pas intrusives.

Ce tableau montre également que la perturbation-type la plus utilisée est l'impulsion, l'injection « échelon » n'étant que très peu utilisée. Nous reviendrons dans le paragraphe suivant sur le type de modèle utilisé pour caractériser les Distributions de Temps de Séjour.

Tableau I-3. Aperçu d'études expérimentales de DTS en phase liquide (adapté de Bérard et coll., 2019) ; pour les modèles : PD=Piston-Dispersion, Piston-RPA=association de réacteurs Piston et de Réacteurs Parfaitement Agités, PDE=Piston-Dispersion-Echange, PE=Piston-Echange. (: réalisé en monolithe)*

Application (référence)	Technique de détection	Traceur	Type de perturbation	Modèle	Phases en présence
Réacteur à fluides en rotation (Wojewodka et coll., 2019)	Conductimétrie	Solution de NaCl	Impulsion	-	Liquide, gaz
Distribution de fluides dans un système multi-canal millimétrique (Guo et coll., 2018)*	Ombroscopie	Colorant (noir de charbon)	Impulsion	PD, Piston-RAC	Liquide
Réacteurs d'hydrolyse à vis horizontale (Sievers et coll., 2018)	Conductimétrie	Solution de NaCl	Impulsion	-	Gaz-liquide -solide (slurry)
Mélangeurs statiques Koflo and Kenics (Stec et Synowiec, 2017)	Spectrophoto-métrie UV/VIS	Colorant (Noir Ériochrome T)	Impulsion	-	Liquide
Réacteur avec boucle de réacteurs tubulaires (Wang et coll., 2017)	Conductimétrie	Solution de NaCl	Impulsion	PD	Liquide
Garnissage structuré catalytique modulaire pour la distillation (Li et coll., 2016)	Conductimétrie	Solution de NaCl	Impulsion	PD	Liquide, gaz
Contacteur tubulaire avec des mélangeurs statiques de type grille ondulée (Hweij et coll., 2015)	Conductimétrie	Solution de KCl	Impulsion	PD	Liquide
Micro-réacteur modulaire commercial (Georget et coll., 2013)	Conductimétrie	Solution de NaCl	Echelon	PD	Liquide
Réacteur hélicoïdal diphasique (Vashisth et coll., 2008)	Spectrophoto-métrie UV/VIS	Colorant (rouge congo)	Echelon	PD	Liquide, gaz
Réacteur monolithe (Heibel et coll., 2005)	Spectrophoto-métrie UV/VIS	Colorant (solution d'Ecoline®)	Impulsion	PD	Liquide
Système microfluidique (Trachsel et coll., 2005)	Ombroscopie	Traceur liquide fluorescent	Impulsion	PD	Liquide
Réacteur monolithe (Kreutzer et coll., 2005a)*	Spectrophoto-métrie VIS	Colorant (Ecoline® Blue)	Impulsion	PDE	Liquide, gaz
Réacteurs monolithe et lit fixe (Kulkarni et coll., 2005)*	Conductimétrie	Solution de KCl	Impulsion	PDE, PE	Liquide, gaz

I.3.3 Modèles hydrodynamiques classiques

Nous allons voir dans ce paragraphe les modèles hydrodynamiques couramment utilisés dans la littérature pour analyser les Distributions de Temps de Séjour, en commençant par quelques rappels concernant les plus simples, les modèles idéaux du Réacteur Piston (RP) et du Réacteur Parfaitement Agité (RPA), bien connus en génie des procédés et bases de différentes déclinaisons. Nous chercherons ensuite à identifier les modèles les plus adaptés pour modéliser l'écoulement de Taylor.

Dans la suite, les expressions des distributions E(t) seront exprimées pour des perturbations supposées de type impulsion parfaite (ou « Dirac »).

I.3.3.1 Modèles idéaux

La détermination de la DTS d'un réacteur permet de comparer simplement le degré de mélange dans l'écoulement en présence à ceux correspondant à des réacteurs idéaux (Heibel et coll., 2005) : mélange nul dans un Réacteur Piston et mélange infini dans un Réacteur Parfaitement Agité continu.

I.3.3.1.1 Modèle d'un Réacteur Piston (RP)

Dans le cas d'un réacteur idéal piston, toutes les molécules du fluide traversent le réacteur à la même vitesse et y séjournent le même temps. Il n'y a donc pas de distribution des temps de séjour : l'impulsion de traceur ressort inchangée du réacteur, décalée du temps de séjour $\overline{t_s}$; il s'agit d'un retard pur.

Si on considère une perturbation du type impulsion à l'entrée, représentée par la fonction de Dirac δ(t), la fonction E(t) est donnée par :

$$E(t) = \delta(t - \overline{t_s}) \qquad (I.36)$$

Le temps de séjour moyen correspond alors au temps de passage du fluide dans le réacteur et la variance est nulle :

$$\overline{t_s} = \tau \qquad (I.37)$$

$$\sigma^2 = 0 \qquad (I.38)$$

I.3.3.1.2 Modèle d'un Réacteur Parfaitement Agité (RPA)

Dans un réacteur idéal parfaitement agité continu, le fluide est maintenu uniforme (en concentration, température, etc) dans tout le volume par une agitation intense. On en déduit que, suite à une injection de type impulsion, la population la plus importante de traceur quitte le réacteur à l'âge zéro pour ensuite décroître de manière exponentielle.

La fonction E(t) peut être déduite à partir du bilan matière sur le traceur en régime transitoire :

$$Q.C_0 = Q.C(t) + V\frac{dC(t)}{dt} \qquad (I.39)$$

où C_0 est la concentration ($mol.m^{-3}$) dans la conduite d'alimentation au temps initial, c'est-à-dire au moment de l'injection du traceur. En résolvant ce bilan pour une entrée de type Dirac, la fonction E(t) obtenue est la suivante :

$$E(t) = \frac{C(t)}{C_0} = \frac{1}{\overline{t_s}} e^{(-\frac{t}{\overline{t_s}})} \qquad (I.40)$$

avec :

$$\overline{t_s} = \tau \qquad (I.41)$$

$$\sigma^2 = \overline{t_s}^2 = \tau^2 \qquad (I.42)$$

Ces modèles idéaux (Piston et Parfaitement Agité) ne permettent pas, à eux seuls, de représenter les écoulements réels, mais ils constituent la base de nombreux modèles.

I.3.3.2 Modèle des RPA en série (ou en cascade)

Pour représenter les réacteurs réels, ce modèle considère l'association de N RPA de volumes égaux en série, et alimentés par le même débit de fluide que le réacteur « réel » étudié. Les bilans de matière sur ces N réacteurs conduisent à un système de N équations différentielles couplées, et par suite à la fonction E(t) suivante :

$$E(t) = \frac{C(t)}{C_0} = \frac{N^N}{\overline{t_s}} \frac{t^{N-1}}{(N-1)!} e^{(-\frac{N.t}{\overline{t_s}})} \qquad (I.43)$$

Comme on associe des réacteurs de même volume, le temps de séjour moyen et la variance moyenne de l'ensemble sont égaux respectivement (selon le théorème de Van der Laan) à la somme des temps de séjour moyens $\overline{t_{s,i}}$ (ce qui revient à la somme des temps de passage τ_i) et à la somme des variances des N réacteurs :

$$\overline{t_s} = N\overline{t_{s,i}} = N\tau_i = \tau \qquad (I.44)$$

$$\sigma^2 = \frac{\overline{t_s}^2}{N} \qquad (I.45)$$

Ce modèle revient à celui du RPA unique lorsque N=1, et au modèle du RP lorsque N tend vers l'infini. Le nombre N est le seul paramètre à identifier dans ce modèle lorsqu'un réacteur est tracé et que sa réponse de traçage est analysée.

Ce modèle a été testé par Kulkarni et coll. (2005) lors de l'étude de la DTS d'un réacteur monolithe alimenté par du gaz et du liquide, mais les auteurs ont constaté que le modèle surestime les données expérimentales.

I.3.3.3 Modèle d'un réacteur piston avec dispersion axiale, ou modèle Piston-Dispersion (PD)

Ce modèle d'écoulement unidirectionnel, basé sur l'écoulement piston, intègre les transports convectif et dispersif, ce dernier étant modélisé par analogie à la loi de Fick. Cette représentation permet d'ajouter un degré de mélange dans le réacteur, ou dispersion axiale D_{ax}, représentant les écarts à l'écoulement idéal piston.

Le bilan matière sur le traceur en régime transitoire s'écrit alors sous la forme d'une équation différentielle partielle :

$$\frac{\partial C}{\partial t} - D_{ax}\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} + u\frac{\partial C}{\partial z} = 0 \qquad (I.46)$$

où z est la position dans le réacteur dans la direction étudiée et u est la vitesse moyenne de l'écoulement dans la direction z.

En mettant le bilan sous la forme normée avec $x = \frac{z}{L}$ et $\theta = \frac{t}{\overline{t_s}}$ – L étant la longueur du réacteur –, on fait apparaître le nombre de Péclet, défini par $Pe = \frac{uL}{D_{ax}}$. Ce nombre adimensionnel, représentant le rapport entre les vitesses de transport par convection et par dispersion, est le seul paramètre à identifier dans ce modèle :

$$\frac{\partial C}{\partial \theta} - \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial C}{\partial x} = 0 \qquad (I.47)$$

En passant cette équation dans le domaine Laplace, elle devient une équation de second ordre dans le domaine de fréquence s. La résolution de cette équation en terme de fonction de transfert G(s) dépend des conditions aux limites, correspondant aux points d'injection et de sortie du traceur :

- Fermé/fermé à la dispersion : l'injection du traceur se fait à l'entrée et sa mesure est faite à la sortie du réacteur. Il n'y a pas de dispersion à ces deux points. Ces conditions sont du type Neumann (égalité en termes de flux).
- Fermé/ouvert : à l'entrée l'injection du traceur s'effectue de façon classique, par contre la détection est réalisée avant la sortie du réacteur, donc en condition de dispersion axiale. Ces conditions sont du type Neumann à l'entrée et Dirichlet à la sortie (égalité point par point sur la section).
- Ouvert/fermé : l'injection du traceur s'effectue après l'entrée du réacteur – où il y a une dispersion axiale –, et la détection est réalisée à la sortie du réacteur. Ces conditions sont du type Dirichlet (entrée) et Neumann (sortie).
- Ouvert/ouvert : l'injection du traceur et la détection sont réalisées à deux positions dans le réacteur, soumises à une dispersion axiale. Ces conditions sont du type Dirichlet (en termes de concentrations données).

A partir de ces conditions, nous pouvons déduire la fonction de transfert G(s), le temps de séjour moyen et la variance donnés par le modèle. Les résultats sont reportés dans le Tableau I-4 ci-dessous :

Tableau I-4. Fonction de transfert G(s), temps de séjour moyen et variance du modèle piston dispersion en fonction des conditions aux limites.

Conditions aux limites	**Fonction de transfert G(s)**	$\frac{\bar{t}_s}{\tau}$	$\frac{\sigma^2}{\tau^2}$
Ouvert/ouvert	$\frac{4qe^{\left[\frac{Pe(1-q)}{2}\right]}}{(1+q)^2-(1+q)^2e^{[-qPe]}}$	$1+\frac{2}{Pe}$	$\frac{2}{Pe}+\frac{8}{Pe^2}$
Fermé/ouvert ou Ouvert/fermé	$\frac{2}{1+q}e^{\left[\frac{Pe(1-q)}{2}\right]}$	$1+\frac{1}{Pe}$	$\frac{2}{Pe}+\frac{3}{Pe^2}$
Fermé/fermé	$\frac{1}{q}e^{\left[\frac{Pe(1-q)}{2}\right]}$	1	$\frac{2}{Pe}-\frac{2}{Pe^2}(1-e^{-Pe})$

avec $q=\sqrt{1+\frac{4s}{Pe}}$.

La fonction E(θ), déterminée par transformée de Laplace inverse, n'est connue analytiquement que pour la condition « ouvert-ouvert » :

$$E(\theta)=\frac{1}{2}\sqrt{\frac{Pe}{\pi\theta}}e^{\left(-\frac{Pe(1-\theta)^2}{4\theta}\right)} \qquad (I.47)$$

avec θ, temps adimensionnel ($\theta=\frac{t}{\bar{t}_s}$).

Le modèle Piston-Dispersion (PD) rejoint le comportement d'un réacteur piston lorsque Pe→ ∞, et celui d'un réacteur parfaitement agité lorsque Pe →0.

Guo et coll. (2018) ont utilisé ce modèle pour décrire l'écoulement dans un monolithe de 16 canaux, alimenté en liquide, et ont obtenu des nombres de Péclet compris entre 168 et 317. Ce modèle a été validé par rapport aux courbes de DTS expérimentales avec un écart relatif quadratique (basé sur la somme du carré des erreurs) de 22%. Heibel et coll. (2005) ont également utilisé avec succès, par simulation directe des écoulement (CFD), le modèle « Convection – Diffusion » - où le coefficient de dispersion est pris égal au coefficient de diffusion -, pour prédire l'hydrodynamique de l'écoulement liquide dans un réacteur monolithe de 64 canaux de section carrée, alimenté en gaz et en liquide, en comparant les courbes DTS numériques normées aux courbes expérimentales obtenues par déconvolution des signaux d'entrée et de sortie par spectrophotométrie.

I.3.3.4 Modèle de deux RPA en série avec échange

Ce modèle est composé de deux RPA en série avec échange (on parle aussi de rétro-mélange) : on considère que le réacteur réel se comporte comme s'il était constitué de deux RPA en série avec une fraction du fluide R sortant du deuxième qui est renvoyée dans le premier RPA (Fogler, 2011). Le paramètre du modèle est ici la fraction R. Le schéma de fonctionnement est reporté sur la figure ci-dessous :

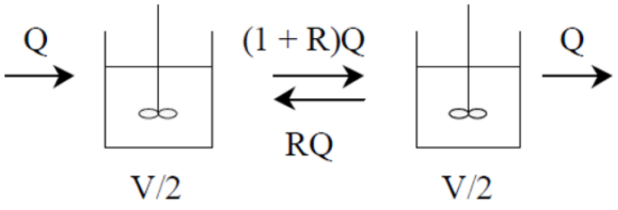


Figure I-18. Schéma du modèle des deux RPA avec échange.

Le débit du fluide circulant dans chaque RPA est (1+R)Q. Chaque RPA a donc un temps de séjour moyen égal à :

$$\tau_1 = \tau_2 = \frac{V}{2(1+R)Q} = \frac{\tau}{2(1+R)} \qquad (I.49)$$

La fonction E(θ) et la variance sont données par :

$$E(\theta) = \frac{1+R}{\sqrt{R(1+R)}}\left[e^{2\theta\left(\sqrt{R(1+R)}-1-R\right)} - e^{-2\theta\left(\sqrt{R(1+R)}+1+R\right)}\right] \qquad (I.50)$$

$$\sigma^2 = 1 - \frac{1}{2(1+R)} \qquad (I.51)$$

I.3.3.5 Modèle de J RPA avec rétro-mélange

Il s'agit d'une extension du modèle de RPA en série avec rétro-mélange - ou recirculation interne - (voir Figure I-18 en section I.3.3.4) comportant un nombre de réacteur supérieur à deux (Fogler, 2011). Deux paramètres caractérisent le modèle : le nombre J de réacteurs RPA et la fraction R du débit qui est recirculé dans chaque réacteur. Ce modèle peut s'appliquer aux colonnes à bulles qui comportent effectivement une recirculation interne, due à la présence des bulles en ascension libre.

La fonction E(θ) de ce modèle est donnée par l'équation I-51 ci-dessous. Lorsque R tend vers zéro, ce modèle est équivalent à celui de J RPA en série. Si R tend vers l'infini, alors la courbe E(θ) tend vers une exponentielle décroissante, celle d'un RPA.

$$E(\theta) = 2J\frac{\sqrt{(1+R)}^{J+1}}{R}\sum_{i=1}^{J}(-1)^{i+1}\sin^2\Psi_i\, e^{\left[-J\theta\left(1+\frac{2\left(1-\sqrt{(1+R)}\cos\Psi_i\right)}{R}\right)\right]} \qquad (I.52)$$

avec Ψ_i les solutions de l'équation transcendantale ci-dessous :

$$\Psi_i(J+1) + 2\,\mathrm{arctg}\frac{\sin\Psi_i}{\sqrt{(1+R)}-\cos\Psi_i} = i\pi \qquad (I.53)$$

La variance est calculée par :

$$\sigma^2 = \frac{J(1+2R) - 2R(1+R)\left[1-\left(\frac{R}{1+R}\right)^J\right]}{J^2} \qquad (I.54)$$

On ne développe pas ce modèle plus avant, ni celui du paragraphe I.3.3.4, car ils ne sont pas directement utilisés dans le cas spécifique de l'écoulement de Taylor. Mais certaines de leurs déclinaisons, présentées ci-après, sont adaptées à l'écoulement de Taylor.

I.3.4 Modèles hydrodynamiques de la phase liquide adaptés aux écoulements de Taylor

I.3.4.1 Modèle d'une association de RPA et de RP

Dans ce modèle développé par Thulasidas et coll. (1995), l'écoulement de Taylor est représenté par une succession de bouchons - ou slugs de liquide – se déplaçant dans le sens de l'écoulement général et considérés parfaitement mélangés – et ce jusqu'à la paroi, ce qui induit que le film au niveau du slug est à la même concentration que le reste du slug - ; ces bouchons

sont reliés l'un à l'autre uniquement par des films à contre-courant (films de lubrification autour des bulles) ayant un comportement « piston » (voir Figure I-19).

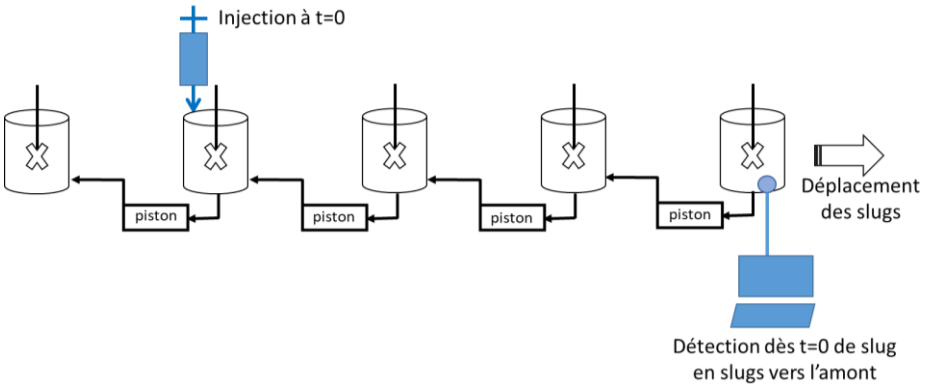


Figure I-19. Schéma du modèle hydrodynamique basé sur la représentation des bouchons parfaitement mélangés reliés par des films à comportement piston.

Si l'on effectuait un traçage pour une telle association fictive de réacteurs, le détecteur en sortie verrait passer tous les bouchons, et le traceur serait détecté quand le bouchon atteint la sortie du canal où l'injection a été faite. On peut déduire de ce modèle une expression explicite et discrète de la concentration en traceur dans les bouchons, C_N (équation I-54), en fonction du nombre des bouchons N et des temps de séjour moyens dans les films, t_p, et dans les bouchons, t_c. Ces paramètres sont déduits de la vitesse de bulle U_b et des longueurs de slug L_s et de bulle L_b, selon le modèle de transport de Thulasidas et coll. (1995).

$$C_N = \frac{C_0}{(N-1)!}\left[\frac{t-(N-1)t_p}{t_c}\right]^{N-1} e^{\left(-\frac{t-(N-1)t_p}{t_c}\right)}, \qquad t \geq (N-1)t_p \qquad (I.55)$$

I.3.4.2 Modèle d'un Réacteur Piston avec diffusion radiale

La modélisation de Thulasidas et coll. (1999) considère également deux régions distinctes de l'écoulement de Taylor, mais cette fois le film à la paroi est considéré présent tout le long du canal, donc même au niveau des bouchons. On a ainsi une région de bouchon liquide (« slug »), où on observe des boucles de recirculation, et une région de film à la paroi (voir Figure I-20). Les deux régions sont en contact le long d'une ligne de courant reliant le front et l'arrière de la bulle, où le transfert de matière ne se fait que par diffusion moléculaire radiale. Les deux régions sont considérées en écoulement « piston » dans la direction axiale, mais les gradients radiaux de concentration dans les deux parties, dus à la diffusion, sont pris en compte. Le modèle considère une succession de cycles, dont la durée correspond à une recirculation dans un slug, avec un échange diffusif entre les deux régions. Ce modèle prédit de façon satisfaisante les temps de séjour moyens obtenus lors d'expériences de traçage en écoulement de Taylor.

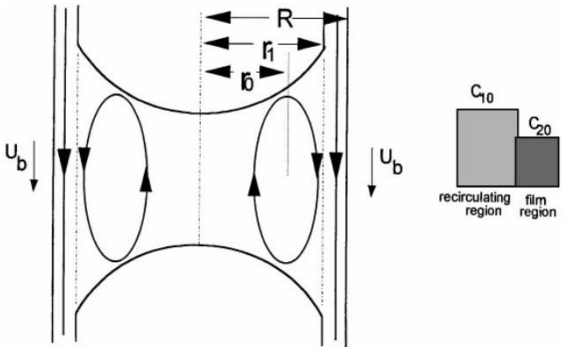


Figure I-20. Schéma de l'écoulement de Taylor, avec les régions de bouchon (avec recirculation) et de film. Figure tirée de Thulasidas et coll. (1999).

L'expression des concentrations moyennes dans les deux zones au cours du temps est obtenue sous forme de suites, exprimées avec des fonctions de Bessel (Thulasidas et coll., 1999). Ce modèle, peu pratique du fait de sa complexité mathématique, n'a pas été souvent réutilisé dans la littérature pour décrire l'écoulement de Taylor.

I.3.4.3 Modèle de Réacteurs Parfaitement Agités avec by-pass

Bercic et Pintar (1997) considèrent eux aussi deux zones : les bouchons et le film, mais ici une fraction du film se mélange avec le bouchon, considéré parfaitement mélangé, le reste du film allant en by-pass directement au film suivant. Le modèle appliqué ici correspond au modèle des RPA en série avec by-pass (Fogler, 1986), et est représenté sur la Figure I-21.

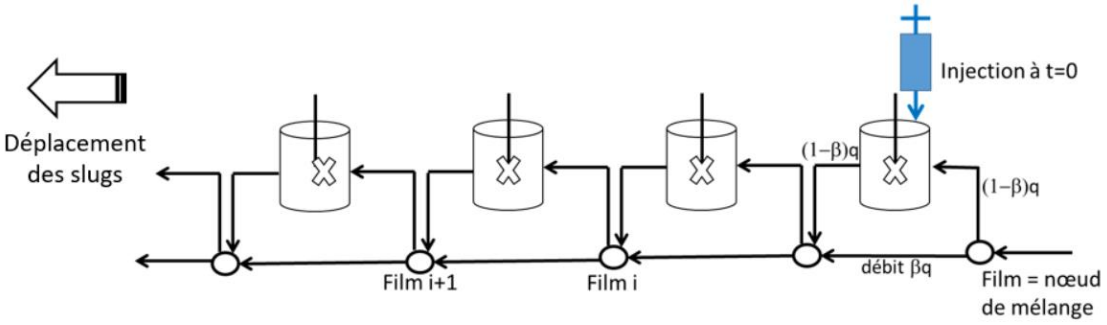


Figure I-21. Schéma du modèle des RPA en série avec by-pass, appliqué aux écoulements de Taylor

La concentration en traceur dans le i^{ème} bouchon, C_i, est calculée par le bilan suivant :

$$\frac{dC_i}{dt} = \frac{(1-\beta)q\left(C_i^{film} - C_i\right)}{V} \qquad (I.56)$$

où C_i^{film} est la concentration dans le i^{ème} film.

La concentration du film suivant – qui est aussi la concentration d'alimentation du prochain bouchon - est calculée par :

$$C_{i+1}^{film} = \beta C_i^{film} + (1-\beta) C_i \qquad (I.57)$$

(1-β) est la fraction du débit d'alimentation global qui se mélange avec le bouchon suivant, alors que la fraction β du débit by-passe ce bouchon et alimente le film suivant. La grandeur q est le débit volumique du système.

Ce modèle est donc explicite et discret. A noter que le film est vu ici comme un simple nœud de mélange (sans volume et instantanément mélangé) selon l'équation I.56, ce qui est discutable. La valeur de β peut être identifiée à l'aide d'expériences et par régression non-linéaire. Pour différentes tailles de cellule unitaire (3 à 18 cm), les auteurs (Bercic et Pintar, 1997) trouvent que β varie entre 0,5 et 0,7. Les courbes de DTS ainsi modélisées sont en bon accord avec les expériences en écoulement de Taylor. Ce modèle hydrodynamique est appliqué au cas de l'absorption du méthane, et au cas d'une réaction catalytique en paroi (hydrogénation d'ions nitrite).

I.3.4.4 Modèle d'écoulement Piston-Exchange (PE)

Ce modèle est à nouveau basé sur l'hypothèse que deux zones coexistent au sein de la phase liquide: une zone dynamique de fraction volumique ϕ, en écoulement « piston », et une zone statique (ou stagnante) de fraction volumique (1- ϕ) qui échange de la matière (du traceur, dans le cas de l'étude de la DTS) avec la zone dynamique. La zone statique est vue par le modèle PE comme un volume mort accessible au traceur. Sa concentration en traceur est notée $C_{st}(t,z)$. La concentration en traceur de la zone dynamique est notée $C_d(t,z)$, le traceur se déplaçant à une vitesse moyenne u dans cette zone. L'échange de matière entre les deux zones est décrit par une loi générique basée sur un coefficient volumétrique d'échange de masse, noté ka, et un potentiel d'échange entre les deux zones, $(C_d - C_{st})$. Kulkarni et coll. (2005) ont appliqué ce modèle au cas d'un réacteur monolithe.

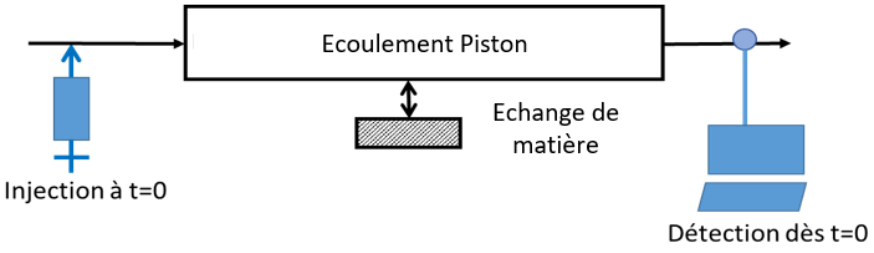


Figure I-22. Schéma du modèle PE.

Les équations différentielles décrivant ce modèle sont obtenues par le bilan matière sur le traceur dans les deux zones.

$$\frac{\partial C_d}{\partial t} = -u\frac{\partial C_d}{\partial z} - \frac{ka}{\phi}(C_d - C_{st}) \qquad (I.58)$$

$$\frac{\partial C_{st}}{\partial t} = \frac{ka}{1-\phi}(C_d - C_{st}) \qquad (I.59)$$

Ces équations sont résolues selon une condition initiale et selon une condition aux limites : à l'entrée du réacteur, la concentration C_d est décrite par la fonction d'impulsion de Dirac (de type Dirichlet).

$$C_{d,i}(t=0,x) = C_{st,i}(t=0,x) = 0 \qquad (I.60)$$

$$C_{d,i}(t,x=0) = \delta(0) \qquad (I.61)$$

Le temps de séjour moyen et la variance sont calculés à partir des expressions suivantes :

$$\mu_1 = \frac{\bar{t}}{\tau} = \frac{1}{1-\phi} \qquad (I.62)$$

$$\mu_2 = \frac{\sigma^2}{\bar{t}^2} = \frac{2(1-\phi)^2}{N} \qquad (I.63)$$

Pour le calcul du coefficient d'échange ka entre le bouchon liquide et le film, les auteurs utilisent le nombre de Sherwood donné par la corrélation de Hatzantoniou et coll. (1986) en fonction du nombre de Reynolds et de Schmidt, $Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D}$, de l'épaisseur du film δ et du diamètre du canal d_c :

$$Sh = 1{,}5.10^{-7} Re^{1{,}648} Sc^{0{,}177} \left(\frac{\delta}{d_c}\right)^{-2{,}338} \qquad (I.64)$$

L'épaisseur du film peut être calculée par la corrélation d'Irandoust et Andersson (1988) :

$$\delta = 0{,}18 d_c \left[1 - e^{\left[-3{,}1\left(\frac{\mu_L u}{\sigma}\right)^{0{,}54}\right]}\right] \qquad (I.65)$$

où u désigne ici u_{TP}, la vitesse diphasique en écoulement de Taylor (somme des vitesses superficielles des deux phases), μ_L la viscosité dynamique du liquide et σ la tension de surface.

I.3.4.5 Modèle d'écoulement Piston-Dispersion-Exchange (PDE)

Ce modèle est similaire au modèle PE, couplant cette fois un écoulement « piston avec dispersion » dans la zone dynamique et un échange de matière avec une zone stagnante dite « statique ». Dans cette dernière, la concentration en traceur est notée $C_{st}(t,z)$. La concentration en traceur de la zone dynamique est notée $C_d(t,z)$. L'échange de matière entre les deux zones est, comme précédemment, décrit *via* un coefficient d'échange de masse volumétrique, ka, et un potentiel d'échange entre les deux zones, (C_d - C_{st}).

Ce modèle a été d'abord développé par van Swaaij et coll. (1969) pour des colonnes à garnissage et des réacteurs à lit fixe et à lit ruisselant (« trickle bed »), afin de représenter l'hydrodynamique de la phase liquide dans ces technologies polyphasiques. Dans ce type de réacteurs, la zone dynamique représente la phase mobile, et la zone stagnante, les zones catalytiques poreuses. Le modèle PDE a été largement appliqué dans la littérature pour ce type de technologie (Saber et coll., 2012 ; Cao et coll., 2011 ; Márquez et coll., 2010 ; Iliuta et coll., 1999, 1996 ; Matsuura et coll., 1976).

Le modèle PDE est toutefois aussi utilisé pour modéliser les écoulements dans les réacteurs monolithes (Kulkarni et coll., 2005 ; Kreutzer et coll., 2005 ; Bakker et coll., 2005 ; de Lathouder et coll.,2004). Dans ce cas, la zone dynamique représente les bouchons liquides, et la zone statique représente le film de lubrification autour des bulles.

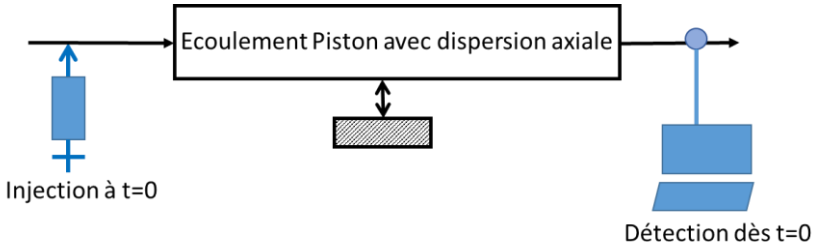


Figure I-23. Schéma du modèle PDE.

Le modèle est représenté par deux équations différentielles, dans l'espace et le temps, obtenues par bilan sur le traceur dans les deux zones :

$$\frac{\partial C_d}{\partial t} = D_{ax}\frac{\partial^2 C_d}{\partial z^2} - u\frac{\partial C_d}{\partial z} - \frac{ka}{\phi}(C_d - C_{st}) \qquad (I.66)$$

$$\frac{\partial C_{st}}{\partial t} = \frac{ka}{1-\phi}(C_d - C_{st}) \qquad (I.67)$$

Ces équations sont résolues sur la base d'une condition initiale et de conditions aux limites pertinentes ; ainsi, à l'entrée du réacteur, la concentration C_d est décrite par la fonction d'impulsion de Dirac (condition de type Dirichlet), et celle à la sortie est exprimée à l'aide d'un terme de dérivée nulle (condition de type Neumann).

$$C_{d,i}(t=0,x) = C_{st,i}(t=0,x) = 0 \qquad (I.68)$$

$$C_{d,i}(t,x=0) = \delta(0) \quad ; \frac{\partial C_{d,i}}{\partial z}(t,x=1) = 0 \qquad (I.69)$$

Le temps de séjour moyen et la variance peuvent être calculés par les expressions suivantes :

$$\mu_1 = \frac{\bar{t}}{\tau} = 1 + \frac{1}{P} \qquad (I.70)$$

$$\mu_2 = \frac{\sigma^2}{\bar{t}^2} = \frac{2}{P} + \frac{3}{P^2} + \frac{2(1-\phi)^2}{N}\left(\frac{1}{P} + 1\right) \qquad (I.71)$$

Ce modèle, utilisé dans notre étude, sera plus amplement détaillé dans le Chapitre V.

I.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit les réacteurs monolithes, leurs caractéristiques, et leurs intérêts pour les réactions gaz-liquide, ainsi que le verrou majeur de la maldistribution des fluides dans les canaux, entravant leur développement industriel. Pour lever ce verrou, il s'agit dans un premier temps de pouvoir mesurer et caractériser la maldistribution engendrée, puis de développer des distributeurs permettant de la limiter.

Les méthodes classiques de caractérisation des écoulements en réacteur monolithe ont ainsi été présentées, avec leurs intérêts et leurs limites. Il est toutefois difficile de trouver une méthode non intrusive, à haute résolution temporelle, permettant de caractériser, à moindre coût, l'écoulement dans tous les canaux simultanément. Nous serons donc amenés à développer notre propre outil de caractérisation, une technique innovante, à la croisée du « Wire Mesh sensor » et des sondes à impédance : une idée intéressante est l'utilisation de circuits imprimés, qui permettent d'avoir un organe de détection à la paroi des canaux, donc non intrusif, et aussi de pouvoir faire passer toutes les connectiques dans un plan fin entre deux monolithes. Les principaux critères utilisés pour évaluer l'importance de la maldistribution à partir des grandeurs hydrodynamiques mesurées ont été présentés ici et serviront de base à la caractérisation des maldistributions étudiées dans ce travail. Outre l'utilisation des écarts-types sur les grandeurs hydrodynamiques, nous prendrons également en compte le type de régime gaz-liquide dans les canaux. Les distributeurs conventionnels rencontrés dans la littérature ont également été décrits, afin de repérer les plus couramment utilisés ; l'un d'eux, le distributeur en « pomme de douche », servira de point de comparaison pour le distributeur « DistriGazLi » breveté au laboratoire.

Enfin, il est primordial de pouvoir estimer l'impact réel de la maldistribution sur la conversion chimique dans ces réacteurs monolithes. Pour cela, un modèle hydrodynamique est nécessaire. Nous avons donc décrit les méthodes de détermination expérimentale et les modélisations associées. Parmi les modèles présentés, ceux représentant au mieux les spécificités des écoulements de Taylor (succession de poches et de bouchons avec la présence d'un film liquide en paroi), et ne nécessitant pas des développements mathématiques complexes, sont les modèles d'association de Réacteurs Parfaitement Agités et de Réacteurs Pistons, et le modèle Piston-Dispersion-Echange. Ce dernier sera utilisé dans notre étude, parce qu'il a l'avantage de prendre en compte une zone stagnante, qui pourrait correspondre au film de lubrification de l'écoulement de Taylor. Ce modèle nous permettra d'étudier, pour une maldistribution donnée, comment progresse le traceur dans les canaux au sein du monolithe. En couplant le modèle avec du transfert gaz-liquide et une cinétique de réaction, on pourra aussi calculer l'impact de maldistribution sur l'avancement d'une réaction chimique en phase liquide à la sortie du réacteur.

Chapitre II. MATERIELS ET METHODES EXPERIMENTALES

Chapitre II. Materiels et méthodes experimentales 51

II.1 Dispositif expérimental 52

II.1.1 Pilote à 84 canaux alimentés 52

II.1.2 Pilote à 12 canaux alimentés 54

II.2 Description des distributeurs utilisés 55

II.3 Fabrication des pièces du pilote 59

II.3.1 Technique de stéréolithographie 59

II.3.2 Procédure de réalisation des pièces par stéréolithographie 60

II.3.3 Qualification des pièces par tomographie à rayon-X 61

II.4 Méthode de référence pour la mesure des caractéristiques hydrodynamiques sur une rangée de canaux : ombroscopie 63

II.4.1 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour qualifier l'écoulement diphasique 63

II.4.2 Validation des mesures réalisées par ombroscopie 65

II.4.2.1 Conditions opératoires 65

II.4.2.2 Estimation des incertitudes sur les mesures du traitement d'images 67

II.4.2.3 Reconstruction des débits globaux 68

II.5 Conclusion 70

Ce chapitre présente le dispositif expérimental mis en œuvre pour réaliser la caractérisation des écoulements diphasiques et leur distribution dans un réacteur monolithe de 84 canaux, ainsi que les protocoles opératoires associés. Afin d'évaluer l'impact de la distribution des fluides, deux distributeurs gaz-liquide, réalisés par impression 3D spécifiquement pour cette étude, sont testés. Afin d'identifier d'éventuels défauts d'impression, ils ont été analysés par tomographie à rayon-X. Leur géométrie et les résultats de la tomographie sont aussi présentés dans ce chapitre.

Pour caractériser les écoulements, deux techniques métrologiques sont utilisées : l'ombroscopie, utilisant une caméra à haute vitesse, et la conductimétrie, via un capteur résistif. Bien renseignée dans la littérature, l'ombroscopie est utilisée comme méthode de référence pour la seconde (conductimétrie), dont le capteur associé a été développé spécifiquement dans le cadre de cette thèse. Le traitement des données obtenues par ombroscopie en écoulement de Taylor et le calcul des divers paramètres hydrodynamiques associés, déjà illustrés par ailleurs dans la littérature, sont présentés dans ce chapitre, alors que le traitement des données associé au capteur résistif sera présenté dans le Chapitre III.

II.1 Dispositif expérimental

II.1.1 Pilote à 84 canaux alimentés

Le réacteur monolithe utilisé dans cette étude est composé de 84 canaux parallèles de 2 mm de diamètre, répartis en 7 rangées de 12 canaux. Le dispositif expérimental de base (Figure II-1) comporte deux blocs monolithes identiques de 0,15 m de long (12x7 canaux) montés en série (3). Comme on le verra au Chapitre IV (section IV.5), ces blocs assurent une perte de charge nécessaire à la stabilité des écoulements. Les blocs monolithes, fabriqués en résine acrylique transparente (DWS VITRA DL375, DWS Systems), ont été imprimés au laboratoire.

En amont, un distributeur gaz-liquide (1) permet d'assurer la distribution des fluides dans les canaux ; plusieurs géométries ont été testées pour ce distributeur, comme nous le verrons par la suite. Un capteur résistif (2), percé de 84 orifices alignés avec les canaux, peut être inséré entre deux brides pour caractériser les écoulements en différents endroits le long du dispositif. Chaque orifice du capteur est muni d'une paire d'électrodes circulaires, comme on le verra au Chapitre III. Par défaut, le capteur est positionné en sortie du distributeur, mais sa position peut être modifiée en fonction des besoins.

Le dispositif expérimental est alimenté en air et en eau. L'eau provient du réseau d'eau de ville ; son débit est réglé et mesuré à l'aide d'un débitmètre volumique à flotteur (5) Brooks® GT1024 (tube R-8M-25-4-FT, flotteur 8-RS-14 avec débit maximal de 410 L/h et incertitude de ±2%). L'alimentation de gaz provient du réseau d'air comprimé du bâtiment ; l'air est détendu à 1,5 bar abs, puis son débit est réglé et mesuré par un débitmètre volumique à flotteur (6). Selon la gamme opératoire souhaitée, on utilise soit le Brooks® Sho-Rate 1355G (tube R-2-15-D, flotteur en tantale avec débit maximal de 73 NL/h à 1 bar et 0°C et incertitude de ±5%),

soit le Brooks® Sho-Rate 1355G (tube R-6-15-AG, flotteur en verre avec débit maximal de 8,8 NL/min à 1 bar et 0°C et incertitude de ±5%).

Le protocole de manipulation est détaillé en Annexe A. Avant tout enregistrement des images ou des signaux du capteur résistif, les fluides sont introduits au préalable pendant au moins 5 minutes pour assurer que le régime permanent soit atteint.

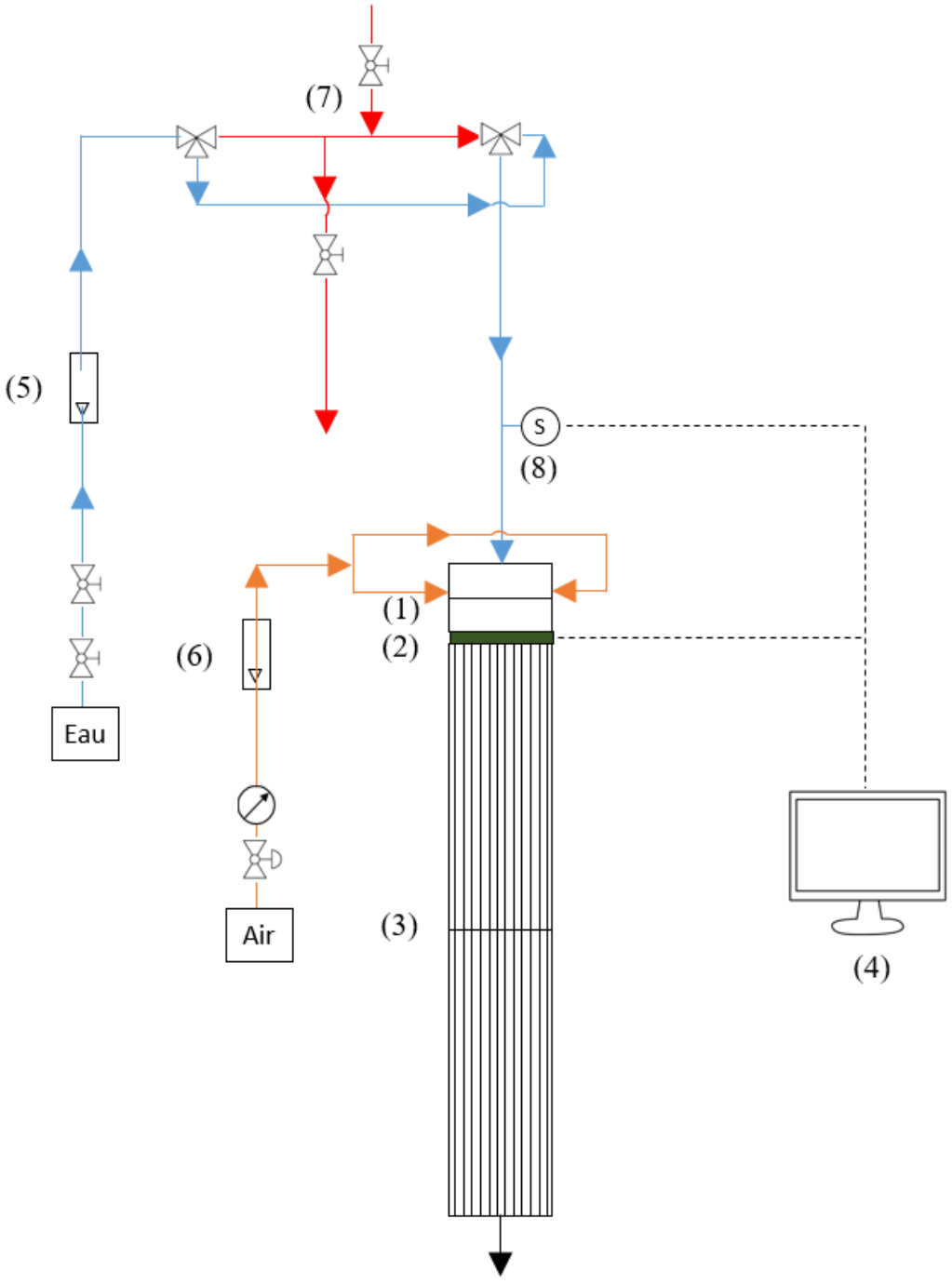


Figure II-1. Schéma du dispositif expérimental comportant 84 canaux alimentés en air et eau.

Dans le but d'étudier la distribution de temps de séjour (DTS) du réacteur, le pilote est également équipé d'un système d'injection de traceur composé de 2 vannes 3 voies et d'un système de remplissage / vidange de ce volume de traceur (7). Dans cette étude, on utilise un traceur salin (40 mL d'une solution d'hydroxyde de potassium à 0,04 mol/L). Le système d'injection permet, à travers un changement de position des deux vannes 3 voies, de faire circuler l'intégralité du courant liquide dans la boucle d'injection de la solution saline. Le suivi est alors réalisé à l'aide d'une sonde de conductivité (8) (Chauvin Arnoux Group, XCP4-S7), placée à l'entrée « liquide » du distributeur. Les expériences de traçage et leur interprétation seront décrites dans le Chapitre V.

II.1.2 Pilote à 12 canaux alimentés

Le dispositif expérimental ci-dessus a été adapté afin de pouvoir filmer une unique rangée de 12 canaux (sur les 84 canaux du pilote), permettant ainsi d'observer les distributions de fluides obtenues selon le distributeur utilisé (voir section II.2) et de valider par ombroscopie les mesures issues du capteur résistif (voir chapitre III).

Pour cela, le distributeur gaz-liquide utilisé est modifié pour limiter l'accès des fluides aux 12 canaux de la rangée centrale du réacteur monolithe. De plus, une barrette transparente mince, composée de 12 canaux parallèles (diamètre intérieur de 2 mm, longueur de 0,05 m), est insérée à l'endroit souhaité – en général entre le distributeur et le premier bloc monolithe - pour enregistrer avec la caméra les écoulements générés dans ces 12 canaux. Ce dispositif, appelé « barrette de visualisation », est réalisé en résine acrylique translucide (DWS VITRA DL375, 3D-Solutions).

La caméra utilisée pour la visualisation est une caméra à haute vitesse Phantom Miro M320 d'une résolution de 1980x1200 px². Elle est équipée d'un objectif asphérique IF Samyang de 85 mm f/1,4. L'échelle spatiale résultante est de 1 pixel pour 66,7 µm. Un panneau de LED (Phlox, 16x16 cm^2, source lumineuse continue) est également ajouté derrière le dispositif de visualisation, face à la caméra, afin d'éclairer les écoulements et d'obtenir un meilleur contraste entre les bulles et l'eau.

Sur ce pilote, le capteur résistif et la caméra démarrent simultanément – les deux outils étant synchronisés -. La caméra enregistre 15000 images pour une durée de 15 secondes, correspondant à une fréquence d'acquisition de 1 kHz. Le capteur résistif quant à lui enregistre la tension électrique des 84 paires d'électrodes pendant 60 secondes selon une fréquence d'échantillonnage globale de 20 kHz (soit 1,667 kHz pour chacun des 12 canaux filmés).

Le schéma du pilote ayant 12 canaux alimentés est illustré dans la Figure II-2 ci-dessous.

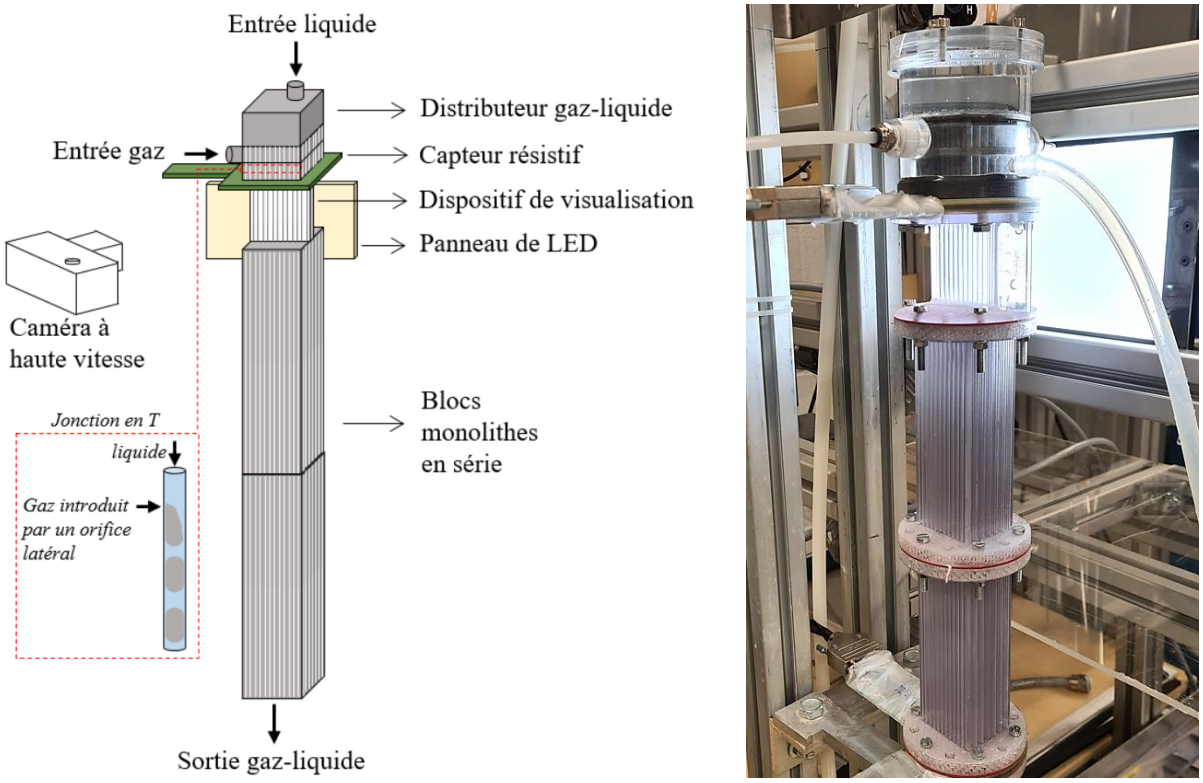


Figure II-2. Schéma (à gauche) et image (à droite) du dispositif expérimental modifié avec 12 canaux alimentés.

II.2 Description des distributeurs utilisés

Deux types de distributeur gaz-liquide sont utilisés pour cette étude. Le premier est un distributeur innovant, breveté avant ce travail de thèse, possèdant des injections en « T » (Billet et coll., FR 1908608, 2021), appelé « DistriGazLi ». Le second est un distributeur plus conventionnel du type « pomme de douche », amplement étudié dans la litérature (Zhou et coll., 2012 ; Roy et coll., 2005 ; Kreutzer et coll., 2003 ; Kreutzer et coll., 2001).

Le distributeur « DistriGazLi » (Figure II-3) est constitué de quatre chambres : de haut en bas, on trouve deux chambres pour l'alimentation du liquide et son introduction dans les canaux, suivies de deux chambres pour l'alimentation du gaz et son injection dans les canaux.

Le liquide est alimenté dans la première chambre liquide par une arrivée unique, en haut du distributeur. Suite à une étude réalisée par CFD préalablement à ces travaux, un plateau horizontal perforé de trous de 0,003 m est positionné en bas de cette chambre, afin de briser l'effet de jet du liquide et de minimiser ainsi les zones mortes dans la deuxième chambre liquide. Le liquide entre ensuite dans des capillaires verticaux de 0,002 m de diamètre, alignés avec les canaux du monolithe.

Le gaz arrive dans la chambre renfermant les canaux remplis de liquide, via deux entrées latérales (une de chaque côté). Il traverse alors un plateau horizontal perforé de trous de 0,003 m pour répartir le flux de gaz, puis se dirige vers la chambre d'injection du gaz où il pénètre

dans les canaux où circule de liquide via des orifices latéraux de 0,001 à 0,002 m de diamètre (selon les cas). Ces jonctions de type « T » positionnées sur les canaux créent ainsi l'écoulement diphasique.

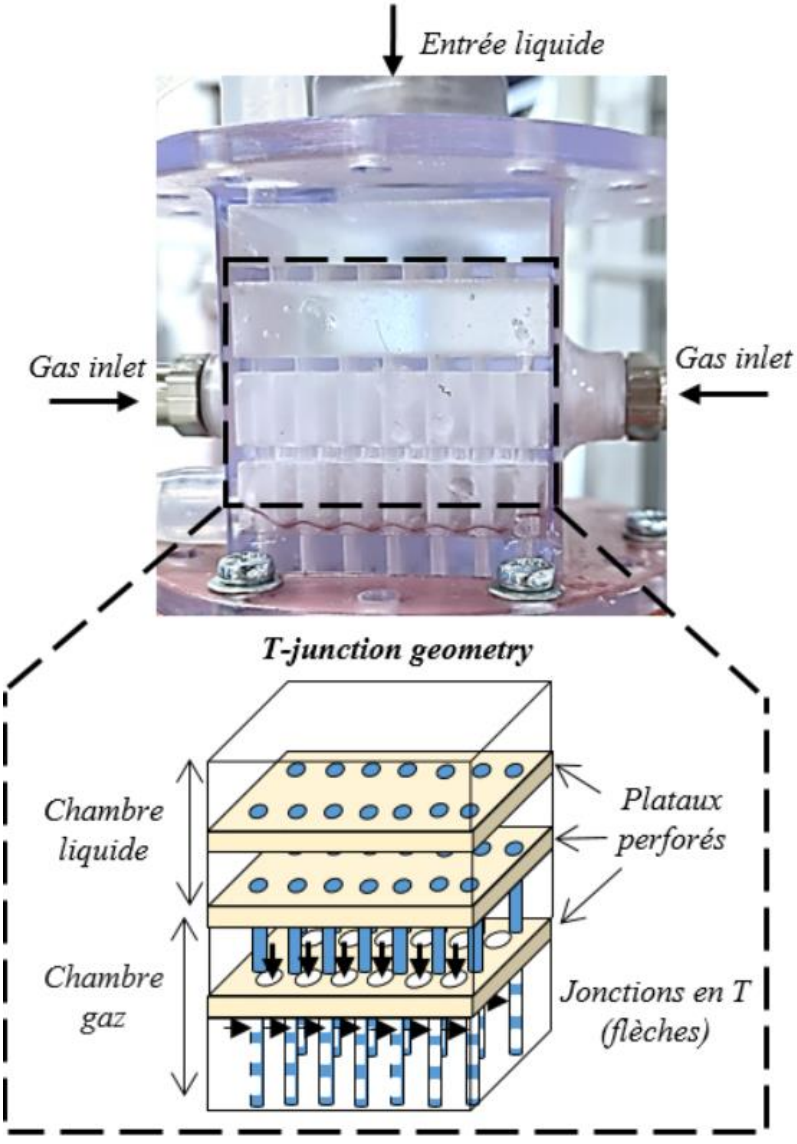


Figure II-3. Prototype et schéma du distributeur gaz-liquide « DistriGazLi ».

Le distributeur de type « pomme de douche » (Figure II-4) possède quant à lui trois chambres : une chambre liquide, une chambre gaz, et une chambre de mélange diphasique. Comme le distributeur précédent, celui-ci possède une alimentation unique de liquide et deux entrées latérales de gaz. Le liquide rentre par le haut et se distribue à travers de petits capillaires de 0,002 m de diamètre, jusqu'à arriver en pluie dans la chambre de mélange. Le gaz est quant à lui alimenté entre les capillaires, et traverse ensuite les trous d'un plateau horizontal perforé

d'orifices de 0,003 m de diamètre pour arriver dans la chambre de mélange. Les phases gaz et liquide sont ainsi mises en contact dans la chambre de mélange, et l'écoulement diphasique est distribué dans des canaux de 0,002 m de diamètre, connectés via une bride aux canaux du bloc monolithe.

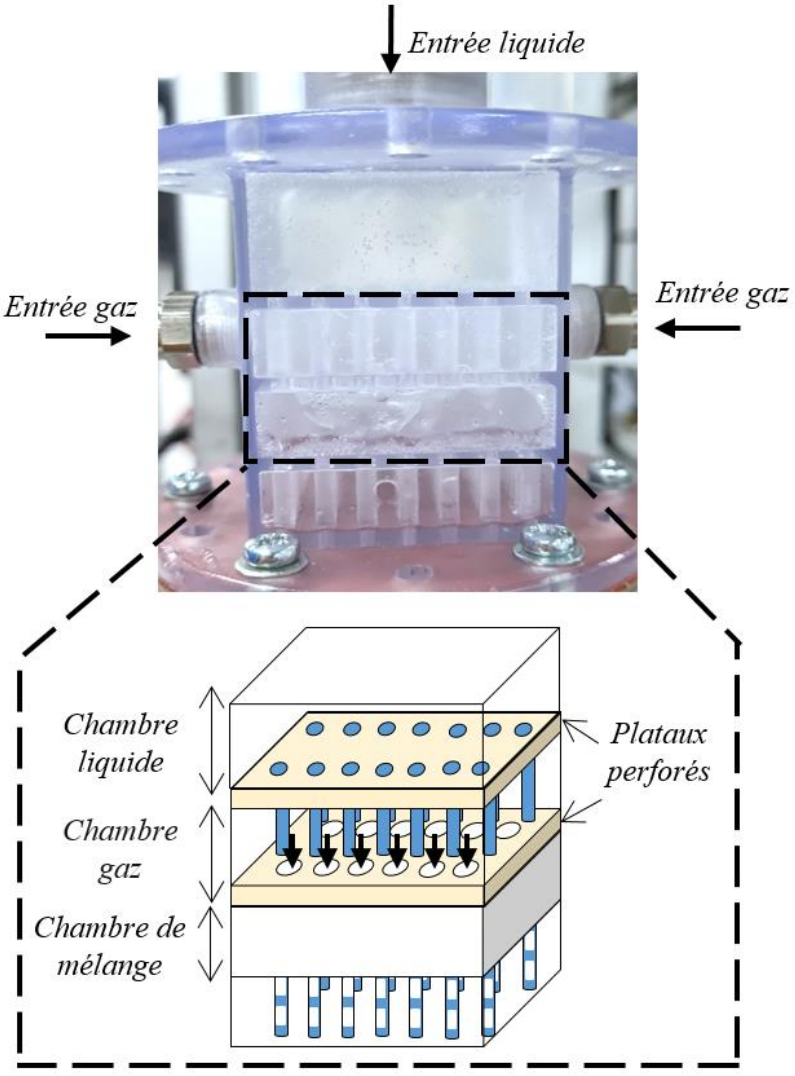


Figure II-4. Prototype et schéma du distributeur gaz-liquide « pomme de douche ».

Les distributeurs à 84 canaux ont été imprimés au laboratoire, en résine acrylique transparente (DWS VITRA DL375, DWS Systems).

Pour le pilote à 12 canaux, le distributeur « DistriGazLi » est modifié (c'est à dire ré-imprimé) en obstruant les canaux non utilisés. La rangée centrale de 12 canaux étudiée est amovible, permettant de la changer à façon, afin d'étudier l'impact de la géométrie et/ou du matériau et du mode d'impression (voir Chapitre IV). Ce troisième distributeur, dit « distributeur à barrette amovible », est illustré dans la figure ci-dessous (Figure II-5).

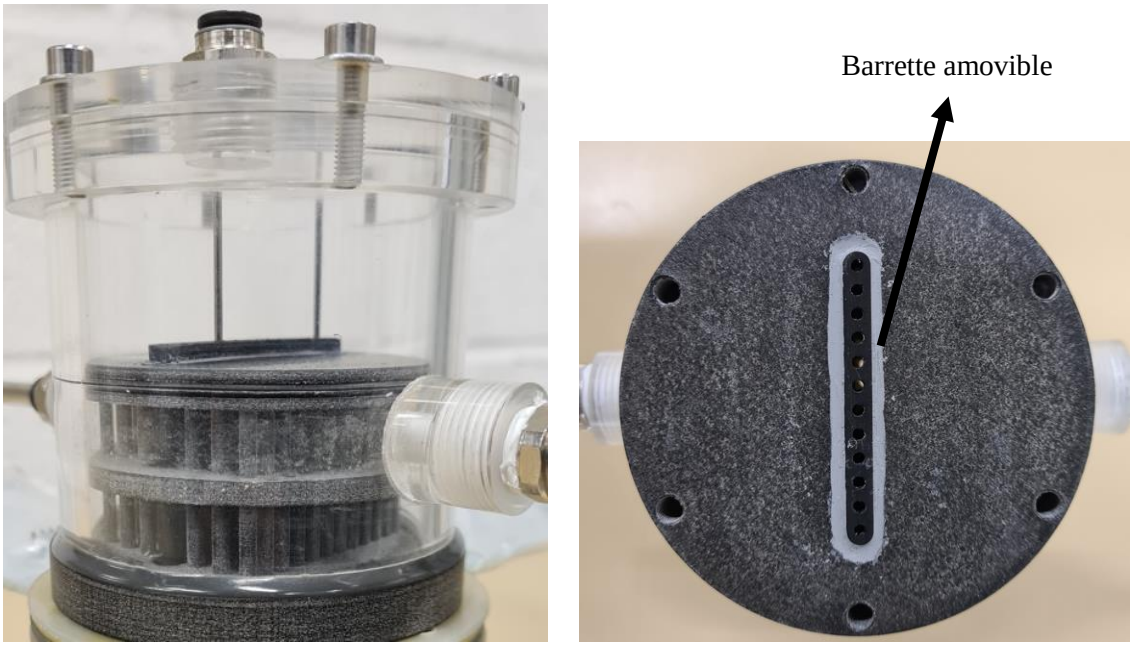


Figure II-5. Prototype du « distributeur à barrette amovible » possédant 12 canaux pouvant être alimentés (la barrette a été décalée pour la photo ; en fonctionnement, la barrette affleure avec le reste du distributeur), et vue du dessous du distributeur.

Le système de barrette amovible a ainsi permis d'étudier l'impact de trois matériaux différents sur la génération des écoulements de Taylor, pour différents diamètres d'orifices latéraux (voir Chapitre IV). Les barrettes ont été fabriquées en résine noire Invicta (DWS INVICTA DL380, DWS Systems), en résine acrylique transparente (DWS VITRA DL375, DWS Systems) et en résine PA12 (Sculpteo, HP® Multijet Fusion). Les deux premières ont été imprimées au laboratoire, et la dernière par la société Sculpteo. La Figure II-6 ci-dessous montre les trois matériaux des barrettes amovibles utilisées.



Figure II-6. Barrettes amovibles utilisées pour cette étude : Invicta (noire), Vitra (transparente) et PA12 (grise).

II.3 Fabrication des pièces du pilote

Comme indiqué précédemment, les distributeurs et le réacteur monolithe utilisés dans ces travaux de thèse ont été fabriqués par impression 3D - ou fabrication additive (FA) -.

Depuis les années 1990, la fabrication additive est utilisée pour fabriquer des objets par ajout de matière, couche par couche, à partir d'un modèle numérique de l'objet réalisé par Conception Assistée par Ordinateur (CAO). La technologie a déjà été déployée pour divers types de matériaux (métaux, polymères, céramiques, composites), permettant de fabriquer des géométries internes complexes - impossibles à élaborer par usinage -, puisqu'elle décompose la géométrie 3D en minces tranches 2D (Liu et coll., 2021). De plus, l'objet entier est fabriqué en une seule pièce, il n'est donc plus nécessaire de le scinder en plusieurs éléments à assembler comme cela se fait conventionnellement (Laverne et coll., 2016).

Différents procédés sont utilisés dans la FA, comme la photopolymérisation ou la stéréolithographie, la projection de matière, la fusion sur lit de poudre, l'extrusion de matière, le dépôt de matière sous énergie concentrée et la stratification de couches. La première technique est celle utilisée pour la production des différentes pièces du pilote de cette thèse, à l'exception de la barrette amovible en résine PA12, imprimée par fusion sur lit de poudre.

II.3.1 Technique de stéréolithographie

Dans le procédé de stéréolithographie, une plateforme mobile est plongée dans une cuve de résine liquide. Cette plateforme, positionnée au-dessus du niveau de la résine, supporte la pièce en cours de fabrication (Figure II-7).

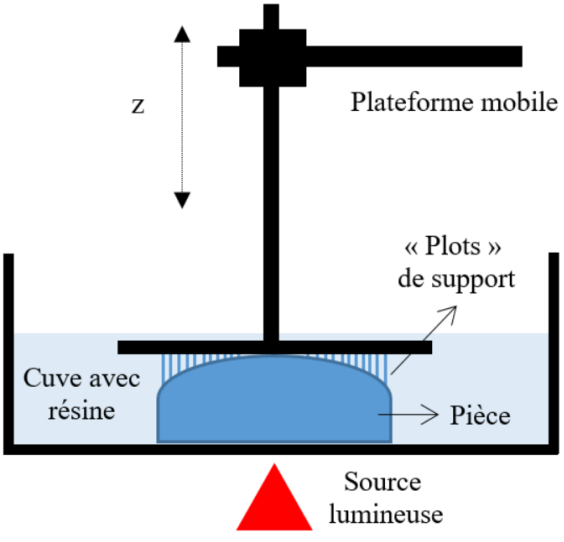


Figure II-7. Schéma du procédé de stéréolithographie (ou photopolymérisation).

Un laser fixe, muni d'un dispositif de contrôle du faisceau, est situé en dessous de la plateforme. Les couches constituant le modèle sont traitées une par une : la surface de résine liquide est photopolymérisée par le laser, en fonction de la forme de la tranche horizontale définie par le modèle 3D numérique. Sous l'effet de la lumière, le photo-initiateur contenu dans la résine se transforme en radical, ce qui amorce la polymérisation instantanée des monomères présents à proximité et donc la transformation de la matière liquide en matière solide. La plateforme remonte ensuite d'une hauteur h – correspondant à la résolution qui a été choisie pour la production de l'objet – et le processus se renouvelle pour chaque couche. Les couches solidifiées successivement se superposent pour produire la structure complète.

Comme identifié sur la Figure II-7, des « plots » supports peuvent être nécessaires pour assurer la stabilité de la pièce sous la plateforme, ce qui peut limiter les géométries possibles. Une fois terminée, la pièce fabriquée est sortie de la cuve, et subit une étape de post-traitement (Figure II-9) où les « plots » sont éliminés.

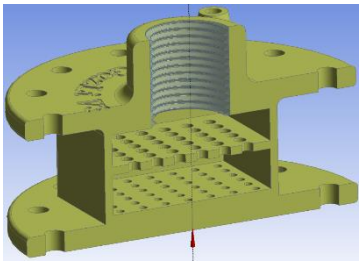
II.3.2 Procédure de réalisation des pièces par stéréolithographie

L'imprimante 3D utilisée dans cette étude pour réaliser la plupart des pièces par stéréolithographie (SLA) est le modèle DWS XFAB 3500 PD (DWS Systems), disposant d'une résolution de 50 µm (Figure II-8). Comme dit précédemment, elle a permis de réaliser au laboratoire toutes les pièces en résine noire (DWS INVICTA DL380, DWS Systems) et en résine acrylique transparente (DWS VITRA DL375, DWS Systems), ainsi que les blocs monolithiques en résine acrylique transparente.



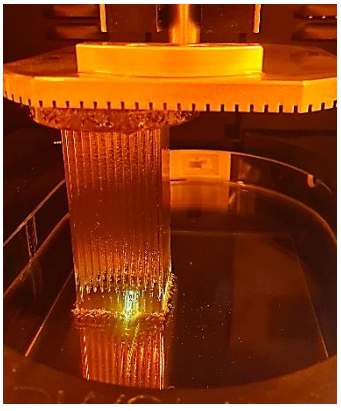
Figure II-8. Imprimante 3D (DWS XFAB 3500 PD, DWS Systems) utilisée pour la réalisation des pièces du pilote par stéréolithographie. : vue arrière et vue avant.

La procédure utilisée pour la réalisation des pièces comporte trois étapes illustrées en Figure II-9 : la conception, l'impression et le post-traitement.



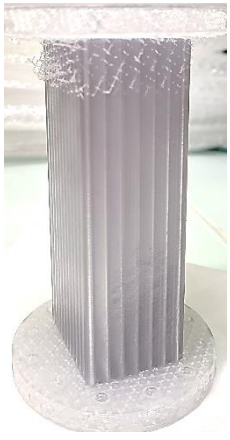
Conception CAO

- Créer les pièces sur Autodesk® Inventor
- Importer le fichier du dessin issu d'Inventor dans le logiciel de l'imprimante 3D (Nauta XFAB Plus)
- Ajouter des "plots" supports à la structure de la pièce, à l'aide du logiciel, pour la maintenir attachée au bras de support métallique de l'imprimante lors de l'impression
- Choisir le matériau qui sera utilisé pour l'impression
- Créer le fichier d'impression



Impression 3D

- En ouvrant l'imprimante, mettre en place le bac de stockage de résine, en vérifiant qu'il soit propre (pas de taches sur le fond) afin de ne pas faire échouer l'impression
- Verser les cartouches de résine dans le bac
- Sélectionner le fichier à imprimer sur l'écran, en vérifiant que les configurations d'impression soient en accord
- Lancer l'impression de la pièce



Post-traitement

- Enlever la pièce de la machine
- Enlever les supports à l'aide d'une spatule
- Déboucher les capillaires des pièces avec une tige métallique
- Rincer les pièces avec de l'isopropanol 99% afin d'enlever le résidu de résine qui ne s'est pas solidifié lors de l'impression, en utilisant un bain à ultrasons (2 fois pendant 10 min pour chaque pièce)
- Mettre la pièce dans une étuve à infrarouge pour la sécher complétement, pendant 30 min
- Pincer les bords de la pièce afin de redresser les surfaces planes des brides (souvent courbées après l'impression) et d'améliorer l'étanchéité entre les pièces dans le pilote.

Figure II-9. Organigramme de la procédure de réalisation d'une pièce par impression 3D.

II.3.3 Qualification des pièces par tomographie à rayon-X

Afin de caractériser les dispositifs imprimés par fabrication additive, notamment l'homogénéité du diamètre des capillaires sur toute leur longueur, les prototypes ont été

analysés à l'aide d'un tomographe à rayon-X, appartenant à la Fédération Toulousaine de Laboratoires de Recherche FERMaT et situé à l'Institut de Mécanique de Fluide de Toulouse (IMFT). L'appareil utilisé (EasyTom XL, RX Solutions) permet la réalisation d'expériences *in situ* avec des échantillons dont la taille peut faire jusqu'à 30 cm de hauteur et 15 à 20 cm de diamètre. Le tomographe possède deux sources à rayon-X, permettant d'atteindre des tailles de voxels jusqu'à 500 nm, selon la taille de l'échantillon.

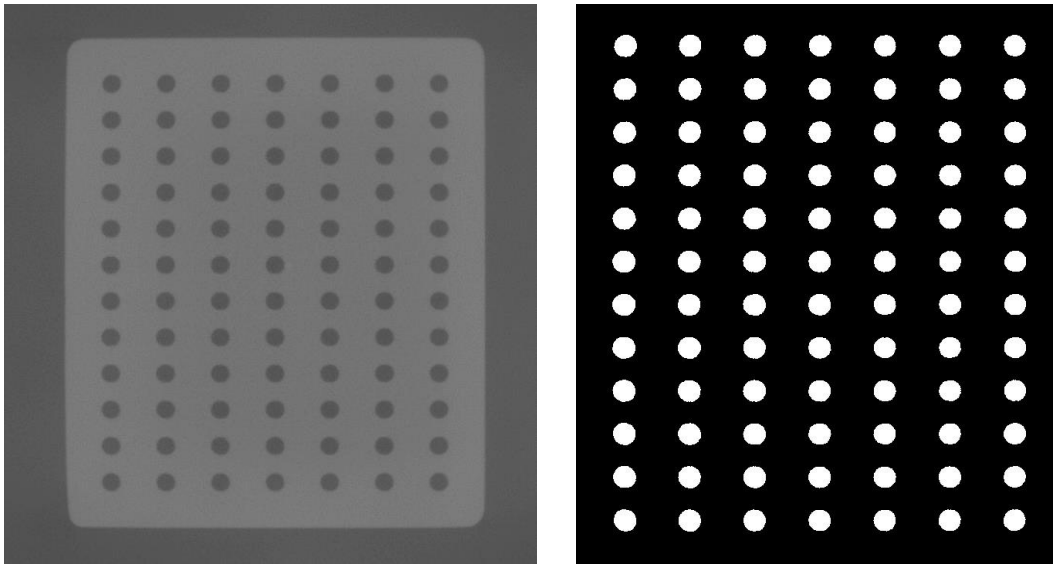


Figure II-10. Image de coupe du distributeur « Distrigazli » (section droite), obtenue par tomographie à rayon-X, et image binarisée pour l'analyse des diamètres de capillaire.

A l'issue de l'analyse, des images sont fournies, comme montré ci-dessus (Figure II-10), permettant la mesure du diamètre des canaux par traitement d'images (« TI ») à l'aide de la méthode de binarisation (voir section II.4). Les résultats pour les trois pièces analysées sont donnés dans le Tableau II-1 ci-dessous. Selon la pièce, les capillaires ont un diamètre moyen compris entre 1,99 et 2,05 mm (pour diamètre visé de 2 mm), avec un écart-type maximal de 0,02 mm. Ce résultat montre la précision satisfaisante de la technique d'impression utilisée au laboratoire.

Tableau II-1. Résultats des diamètres moyens des canaux des pièces, obtenus par le traitement des images issues de la tomographie des rayon-X.

Pièce	Matériau	Taille de voxel (pixel / mm)	Diamètre moyen (mm)	Ecart-type (mm)
Distributeur "DistriGazLi" à 84 canaux	Vitra	0,072	2,04	0,01
Distributeur "pomme de douche" à 84 canaux	Vitra	0,070	1,99	0,02
Barrette de visualisation à 12 canaux	Vitra	0,050	2,05	0,02

II.4 Méthode de référence pour la mesure des caractéristiques hydrodynamiques sur une rangée de canaux : ombroscopie

II.4.1 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour qualifier l'écoulement diphasique

Pour rappel, en utilisant le pilote à 12 canaux alimentés, 15000 images en niveaux de gris (de luminosité comprise entre 0 et 255) sont enregistrées à une fréquence d'acquisition de 1 kHz (pendant 15 secondes). Afin d'obtenir les caractéristiques hydrodynamiques à partir des images enregistrées, les boîtes à outils Traitement d'image et Traitement du signal de MATLAB® R2022b sont utilisées. Pour chacun des 12 canaux, la procédure de traitement des images successives d'écoulement commence par des étapes systématiques : soustraction de l'image de fond (ou « blanc ») représentant les canaux sans les bulles, seuillage du niveau de gris des pixels, binarisation et opérations morphologiques.

La soustraction de l'image de fond fait disparaître les bords des canaux et fait apparaître les contours des bulles en niveaux clairs (de luminosité élevée). Le principe de la binarisation consiste ensuite à définir un seuil de niveau de gris pour les pixels. La méthode affecte la valeur de « 1 » à un pixel si sa luminosité est supérieure au seuil (couleur blanche, pour le contour des bulles) ; dans le cas contraire, la valeur de « 0 » est affectée (couleur noire, pour le reste). Des opérations morphologiques permettent alors de fermer les contours des bulles délimitées et de remplir l'intérieur de ces objets avec des pixels égaux à « 1 ». A la fin, nous obtenons une image binarisée en noir et blanc, comme illustré dans la Figure II-11b.

Après l'étape de binarisation, on peut procéder au calcul de plusieurs caractéristiques de l'écoulement (taux de gaz, vitesse des bulles, fréquence de passage des bulles, longueur des bulles et débit volumique de liquide), comme décrit dans la littérature (Yang et coll., 2016 ; Butler et coll., 2018 ; Bourdon et coll., 2023).

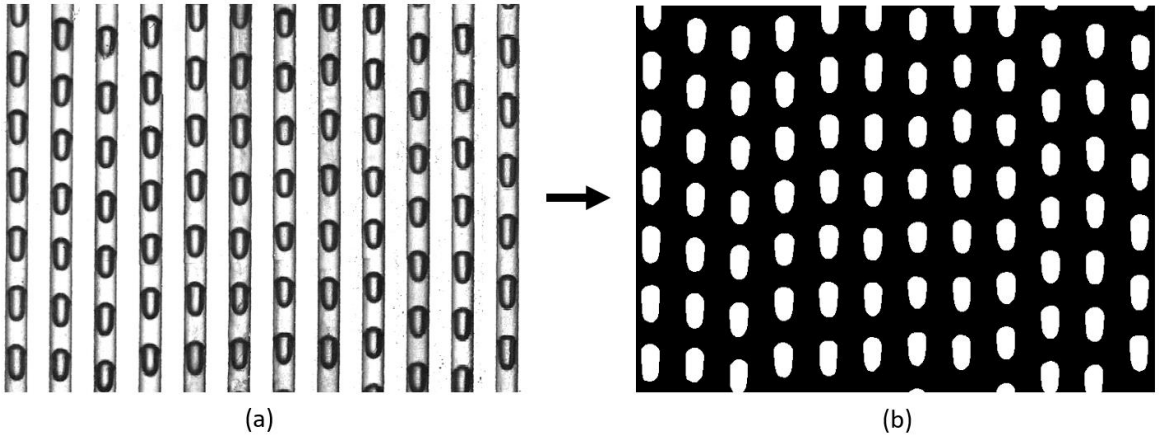


Figure II-11. Exemple d'écoulements diphasiques sur 12 canaux, obtenus à l'aide du dispositif de visualisation : a) image brute enregistrée par la caméra ; b) image de bulles binarisées et « remplies » après traitement d'image.

Le nombre de pixels décrivant la largeur d'un canal (2 mm) permet de connaître la valeur métrique d'un pixel. Dans ce travail, on a vérifié, en plaçant des graduations le long d'un canal, que cette valeur est la même dans les deux directions de l'image. Pour une bulle repérée par binarisation de l'image, le nombre de pixels du contour donne alors accès au périmètre de la bulle, et le nombre de pixels total à l'aire projetée. Chaque canal est traité séparément sur une image donnée : on l'isole à l'aide de « masques » dédiés (images de 0 et 1 figurant les différents canaux).

Sur la base d'une hypothèse d'axisymétrie de l'écoulement, le taux de gaz dans un canal d'une image est obtenu à partir du rapport entre la somme de N_b aires projetées des bulles dans ce canal (aire projetée d'une bulle j notée $A_{bulle,j}$) et l'aire projetée de ce canal (A_{canal}) :

$$\varepsilon_G = \frac{1}{A_{canal}} \sum_{j=1}^{N_b} A_{bulle,j} \qquad (II.1)$$

Le taux moyen de gaz ε_G dans le canal est alors calculé en moyennant la valeur de ce rapport sur l'ensemble des n images enregistrées.

Le taux de gaz ainsi évalué par le rapport des aires projetées a été comparées aux rapports des volumes, où le volume de bulle est obtenu via le théorème de Guldin; on constate un écart relatif moyen de 15% entre les deux calculs. Ces résultats sont donnés en Annexe A. Bien que moins rigoureux, le calcul des aires projetées a été retenu ici, car il est moins sensible aux erreurs d'identification des contours de bulles lorsque les bulles sont légèrement déformées – bulles ni rondes, ni composées d'un corps cylindrique avec deux demi-sphères.

La longueur moyenne des bulles est obtenue directement *via* une fonction géométrique issue de MATLAB « Regionprops », qui donne diverses dimensions et caractéristiques d'un objet. Ici, la dimension choisie pour représenter la longueur des bulles est l'option « BoundingBox », donnant la hauteur de la plus petite zone contenant l'objet.

Pour obtenir la vitesse moyenne des bulles (U_b), un algorithme de corrélation croisée est utilisé (fonction « xcorr » de MATLAB), calculant le déplacement le plus probable d'une bulle i ($\Delta d_{b,i}$) entre deux images successives, à partir de la comparaison des pixels de ces deux images consécutives (Butler et coll., 2018). La vitesse moyenne des bulles dans le canal est ensuite déduite de la fréquence d'acquisition d'images de la caméra, f_{ac}.

$$U_b = f_{ac} \sum_{i=1}^{n-1} \Delta d_{b,i} \qquad (II.2)$$

Dans l'objectif de déterminer la fréquence des bulles (f_b), une « sonde virtuelle » placée sur l'axe du canal à sa hauteur médiane, et mesurant par la valeur moyenne des pixels situés sur le diamètre du canal, est utilisée pour détecter la présence des bulles. La « sonde » prend donc des valeurs comprises entre 0 et 1 dans les images binarisées successives, ce qui fournit un signal temporel de type sinusoïdal. Ce signal est ensuite traité avec un algorithme de

transformée de Fourier rapide (fonction « fft » de MATLAB) pour calculer la fréquence des bulles, donnant la valeur la plus probable pour chaque canal (Rocha et Simões-Moreira, 2008 ; Dos Reis et Goldstein Jr., 2010).

L'organigramme général du script de traitement d'images (TI) est illustré en Figure II.12 ; il explicite les principales étapes de calcul. Le script complet de TI est donné en Annexe D. pour une expérience (une série de 15000 images), ce script tourne en environ 45 minutes.

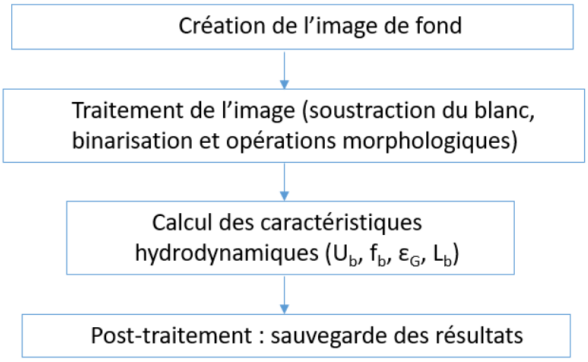


Figure II-12. Organigramme général du script de traitement d'images.

II.4.2 Validation des mesures réalisées par ombroscopie

II.4.2.1 Conditions opératoires

Pour cette campagne de validation, 12 expériences ont été réalisées, comme décrit dans le Tableau II-2, en utilisant de l'eau et de l'air à température ambiante et à pression atmosphérique. Pour explorer différentes conditions d'écoulement, plusieurs débits d'alimentation de liquide et de gaz ont été imposés à l'entrée du distributeur.

Les vitesses superficielles moyennes des fluides sont définies comme le rapport entre les débits d'alimentation, mesurés à température ambiante et sous pression atmosphérique, et la somme des sections droites des 12 canaux. Ces vitesses varient de 0,1 à 0,8 m/s et de 0,1 à 0,4 m/s, respectivement, pour l'air ($u_{G,moyenne}$) et l'eau du robinet ($u_{L,moyenne}$).

La Figure II-13 ci-dessous illustre la cartographie obtenue pour les conditions opératoires décrites dans le Tableau II-2. Des régimes d'écoulement de Taylor et à bulles sont observés. Ils sont distingués via la longueur moyenne des bulles : lorsque les bulles ont une longueur égale ou inférieure au diamètre du canal (2 mm), l'écoulement est considéré être en régime à bulles (expériences 7, 10 et 11). Le distributeur utilisé assurant une répartition des phases gaz-liquide assez uniforme, le régime d'écoulement est souvent identique dans les 12 canaux pour une condition de fonctionnement donnée.

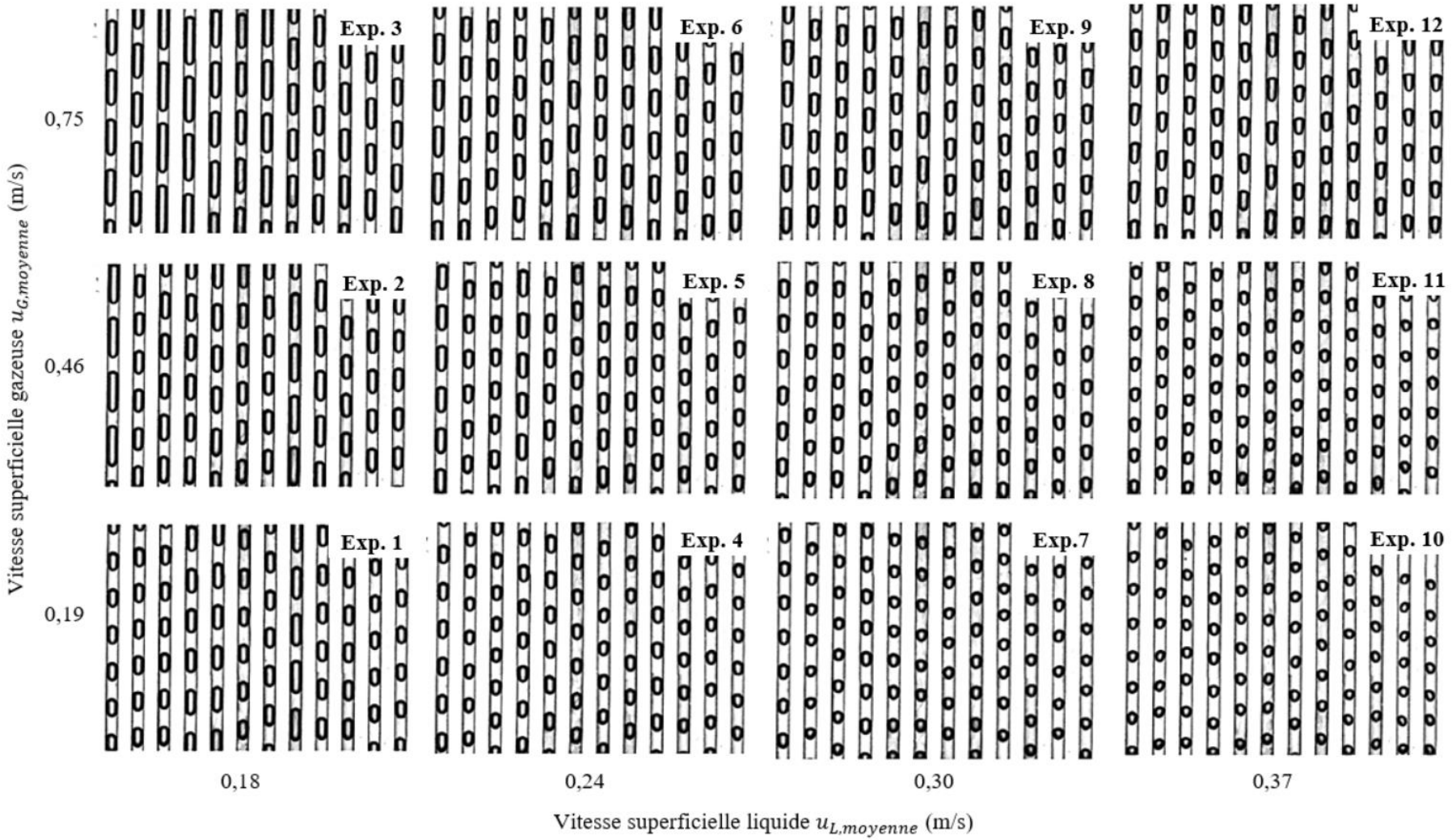


Figure II-13. Cartographie des écoulements obtenus en régime de Taylor et à bulles, pour les expériences du tableau II-2.

Tableau II-2. Expériences réalisées dans cette étude ; les régimes d'écoulement observés sur les images enregistrées sont appelés « ET » = écoulement de Taylor, ou « EB » = écoulement à bulles.

N° expérience	$u_{L,moyenne}$ (m/s)	$u_{G,moyenne}$ (m/s)	Régime d'écoulement
1	0,18	0,19	ET
2		0,46	ET
3		0,75	ET
4	0,24	0,19	ET
5		0,46	ET
6		0,75	ET
7	0,30	0,19	EB
8		0,46	ET
9		0,75	ET
10	0,37	0,19	EB
11		0,46	EB
12		0,75	ET

II.4.2.2 Estimation des incertitudes sur les mesures du traitement d'images

L'incertitude sur les dimensions des bulles est estimée à ±1 pixel sur l'image binarisée, ce qui représente donc ±66,7 µm d'après l'échelle spatiale mesurée. L'incertitude relative correspondante est maximale en régime à bulles, où elle peut ainsi atteindre 7% pour une bulle de 0,001 m de diamètre.

La vitesse de bulles étant déduite du déplacement des bulles et de la fréquence d'acquisition de 1 kHz (période de 1 milliseconde), son incertitude est également conditionnée par l'échelle spatiale. Si on considère ici la plus petite valeur de vitesse de bulles trouvée dans les expériences, de l'ordre de 0,25 m/s (soit un déplacement de 0,25 mm entre deux images consécutives utilisées pour la corrélation croisée), l'incertitude maximale intrinsèque à la technique de mesure – correspondant à une erreur de ±2 pixels – est de 54% pour la mesure de la vitesse d'une bulle. Pour les plus grandes vitesses, de l'ordre de 1 m/s, l'erreur relative sur la mesure de la vitesse d'une bulle est de ±13,3%. Cependant, les fréquences de bullage étant élevées dans nos expériences (comprises entre 50 et 125 Hz globalement), en 15 s d'enregistrement entre 750 et 1875 bulles – ayant toutes la même vitesse d'ensemble - sont capturées sur la série de 15000 images. Cet effet statistique réduit l'erreur de mesure ; une étude de convergence sur la mesure de la vitesse de bulle a été réalisée, et il fut constaté que l'analyse de 1000 images successives suffit pour que la moyenne des vitesses de bulle dans un canal atteigne une moyenne stable. Par ailleurs, le traitement de trois séquences d'images acquises pour un même canal et pour les mêmes conditions expérimentales montre un écart-type maximal de 10% sur la valeur de la vitesse de bulle (correspondant à des canaux de vitesse faible), et un écart-type moyen (moyenne des écarts-types obtenus dans les divers canaux et les différentes expériences) de 2%. A noter que dans ces écarts-types sont cumulées les erreurs dues à la mesure de vitesse par TI et à la reproduction des expériences.

Enfin, le taux de gaz est calculé à partir des aires projetées des bulles et celle du canal considéré (équation II.1) ; pour l'estimation de l'incertitude associée, on suppose que, dans un canal, toutes les bulles sont identiques (de mêmes dimensions, donc de même aire projetée. L'expression du taux de gaz se simplifie en :

$$\varepsilon_G \approx \frac{N_{b,moy}.A_{bulle}}{A_{canal}} \qquad (II.3)$$

où $N_{b,moy}$ est le nombre moyen de bulles dans le canal, sur chaque image.

L'incertitude intrinsèque sur ce paramètre, $\Delta\varepsilon_G$, est alors donnée par la loi de propagation des incertitudes (équation II.3), en considérant les incertitudes associées ΔA_{bulles} et ΔA_{canal} :

$$\frac{\Delta\varepsilon_G}{\varepsilon_G}(\%) = \frac{\Delta A_{bulles}}{A_{bulles}} + \frac{\Delta A_{canal}}{A_{canal}} \qquad (II.4)$$

On évalue les incertitudes ΔA_{bulles} et ΔA_{canal} via le périmètre de l'objet, multiplié par 1 pixel :

$$\frac{\Delta\varepsilon_G}{\varepsilon_G}(\%) = \frac{P_{bulle}}{A_{bulle}} + \frac{P_{canal}}{A_{canal}} \qquad (II.5)$$

Le canal faisant un diamètre de 30 px pour une longueur de 832 px, on obtient une incertitude de 6,9% sur le calcul de son aire projetée. En considérant de petites bulles de longueur totale de 2 mm (bulles sphériques), on évalue l'incertitude de mesure de leur aire projetée à 13,3% ; pour une grande bulle de longueur totale 8 mm et considérée comme constituée d'un corps cylindrique et de deux demies-sphères, on évalue l'incertitude à 8,5%. Au global, l'incertitude intrinsèque à la mesure du taux de gaz par traitement d'images varie donc entre 15,5% et 20%, selon la taille des bulles dans l'écoulement considéré. Ici à nouveau, le grand nombre de bulles traitées sur une séquence d'images réduit l'incertitude de mesure. Comme pour la vitesse de bulle, l'étude de convergence sur la valeur mesurée du taux de gaz a montré que l'analyse de 1000 images successives suffit pour atteindre une valeur moyenne stable. De plus, le traitement de trois séquences d'images acquises pour un même canal et pour les mêmes conditions expérimentales montre un écart-type maximal de 10% et un écart-type moyen de 2% sur la mesure du taux de gaz par TI.

II.4.2.3 Reconstruction des débits globaux

Pour valider la méthode de mesure de nos grandeurs hydrodynamiques par traitement d'image, les valeurs mesurées de U_b et ε_G obtenues pour tous les canaux sont combinées comme suit pour calculer le débit volumique de liquide q_L dans le canal considéré :

$$q_L = (u_{TP} - \varepsilon_G\, U_b)S_{canal} \approx\ U_b(1-\varepsilon_G)S_{canal} \qquad (II.6)$$

avec S_{canal} l'aire de la section transversale du canal, et u_{TP} la vitesse diphasique exprimée en fonction de U_b et du nombre capillaire Ca (Liu et coll., 2005) :

$$u_{TP} = U_b(1 - 0{,}61Ca^{0{,}33}) \qquad (II.7)$$

Pour toutes les expériences réalisées (voir Tableau II-2), le débit volumique global de liquide Q_L est alors reconstruit à partir de la somme des débits de liquide calculés q_L dans chacun des 12 canaux. La Figure II-14 montre le débit de liquide global reconstruit par rapport à celui mesuré à l'entrée du distributeur à l'aide du débitmètre à flotteur (lui-même validé par empotage).

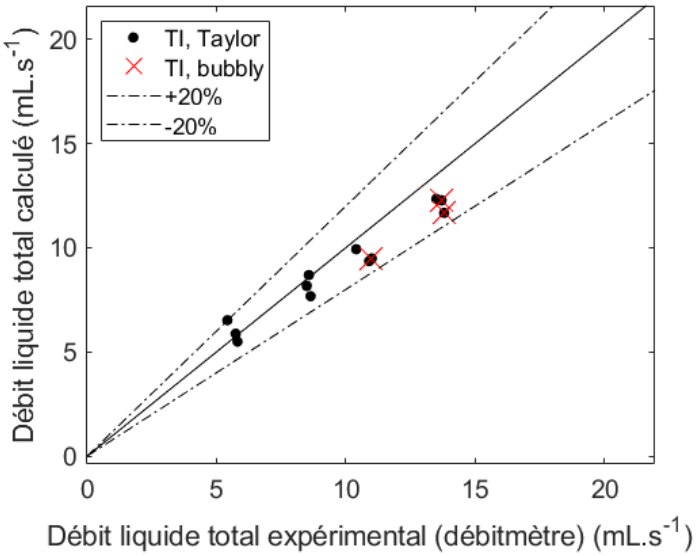


Figure II-14. Validation des mesures hydrodynamiques par traitement d'images : reconstitution des débits de liquide globaux à partir des débits individuels dans les 12 canaux, eux-mêmes calculés via les valeurs mesurées de U_b et ε_G.

Pour les expériences correspondant aux écoulements de Taylor, l'écart relatif entre les débits globaux de liquide expérimentaux et ceux calculés par ombroscopie est inférieur à 20%. Ces écarts pourraient être dus à (i) l'utilisation de la surface projetée pour le calcul de la rétention de gaz (les bulles peuvent ne pas être parfaitement axisymétriques), (ii) d'éventuels effets de réfraction affectant la forme apparente des bulles lors de l'étape de binarisation, et (iii) l'incertitude sur la mesure du débit global de liquide (2%). Compte-tenu de cet accord satisfaisant, les valeurs de traitement d'image seront considérées comme celles de référence dans la suite. Il est cependant à noter que l'équation II.7 est moins pertinente pour les écoulements à bulles, et par conséquent, les débits globaux calculés dans ce cas sont moins précis.

II.5 Conclusion

Ce chapitre a présenté les dispositifs expérimentaux qui ont été utilisés dans les travaux de thèse. Le pilote à 12 canaux servira à la validation du capteur résistif (voir Chapitre III), à l'étude sur l'amélioration du distributeur « DistriGazLi » (voir Chapitre IV), ainsi qu'aux manipulations de traçage et l'étude de DTS (voir Chapitre V). Le pilote a 84 canaux sera utilisé pour identifier l'impact du distributeur sur la maldistribution dans un monolithe (Chapitre IV).

Les trois types de distributeurs gaz-liquide (« DistriGazLi » et « pomme de douche » à 84 canaux, et distributeur « à barrette amovible » à 12 canaux) ont été présentés et analysés par tomographie en rayon-X, qui a montré la précision de l'impression 3D par stéréolithographie.

Enfin, le traitement d'images (TI), utilisé comme méthode de référence pour la mesure des grandeurs hydrodynamiques (taux de gaz, vitesse des bulles, fréquence de passage des bulles, longueur des bulles et débit volumique de liquide) pour la validation du capteur résistif, a été décrit et sa fiabilité qualifiée par la reconstruction des débits liquides sur les 12 canaux : comparée au débit liquide global mesuré par le débitmètre en flotteur, une incertitude de ±20% en régime d'écoulement de Taylor est observée.

Chapitre III. CAPTEUR RESISTIF MULTICANAUX

Chapitre III. Capteur résistif multicanaux 71

III.1 Introduction 73

III.2 Article : « Innovative fast-dynamic tool to characterize maldistribution in gas-liquid multi-channel reactors » 74

III.2.1 Introduction 74

III.2.2 Capteur résistif 75

III.2.2.1 Principe de mesure 75

III.2.2.2 Lien théorique entre le signal du capteur et l'hydrodynamiques des écoulements 76

III.2.2.2.1 Phénomènes impliqués sur le volume interrogé entre les électrodes 76

III.2.2.2.2 Modélisation du signal du capteur 77

III.2.2.3 Analyse du signal temporal théorique 77

III.2.3 Matériels et méthodes expérimentales 77

III.2.3.1 Dispositif expérimental et conditions opératoires 77

III.2.3.2 Ombroscopie : traitement d'images 79

III.2.3.3 Capteur résistif : formatage du signal brut 80

III.2.4 Stratégie pour extraire les caractéristiques gaz-liquide du signal du capteur ... 80

III.2.4.1 Identification de la fréquence de bulle 80

III.2.4.2 Mesure de taux de vide 80

III.2.4.2.1 Méthode de la dérivée 80

III.2.4.2.2 Méthode de l'intégrale 80

III.2.5 Mesure de vitesse de bulle 81

III.2.5.1.1 Méthode de la dérivée 81

III.2.5.1.2 Méthode de la tangente 82

III.2.6 Application et évaluation du traitement du signal aux données expérimentales 82

III.2.6.1 Résultats préliminaires 82

III.2.6.2 Investigation de l'hydrodynamique avec de différentes méthodes pour l'écoulement de Taylor 82

III.2.6.2.1 Fréquence de bulle 82

III.2.6.2.2 Vitesse de bulle 84

III.2.6.2.3 Taux de vide 84

III.2.6.2.4 Méthodologie optimale et validation *via* bilan matière 84

III.2.6.3 Investigation de l'hydrodynamique avec de différentes méthodes pour tous les écoulements considérés 84

III.2.7 Conclusion 86

III.3 Conclusion 88

III.1 Introduction

Ayant décrit le dispositif expérimental, nous nous attachons maintenant à comprendre le fonctionnement du capteur résistif et à mesurer, grâce à cet outil, les caractéristiques des écoulements qui le traversent, dans le but de pouvoir caractériser la distribution des fluides dans les canaux d'un réacteur monolithe. Cette étape est cruciale pour la suite de ce travail de thèse. Le capteur a été développé en collaboration avec l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, grâce à l'expertise dans le domaine du service Signaux et Images, et en particulier celles de nos collègues Hervé Ayroles et Sébastien Cazin.

Comme dit au chapitre précédent, le capteur comporte autant de paires d'électrodes annulaires que de canaux à investiguer, et chaque paire d'électrodes délivre un signal temporel de tension, à fréquence élevée (~1kHz). L'objectif est ici de corréler les caractéristiques de ce signal avec les grandeurs hydrodynamiques de l'écoulement qui passe au centre des électrodes annuaires. Pour cela, nous adopterons deux démarches complémentaires :

- D'une part, nous construirons mathématiquement le signal temporel qui est théoriquement délivré par une paire de telles électrodes et pour des écoulements de Taylor, en s'appuyant sur la résistivité des fluides et sur les caractéristiques de ces écoulements (fréquence de bulles, vitesse de bulles, tailles des bulles et des bouchons, …) ;
- D'autre part, nous acquerrons des signaux pour quelques canaux du monolithe, et nous visualiserons les écoulements dans ces canaux grâce à un dispositif transparent et à une caméra rapide ; les grandeurs hydrodynamiques des écoulements visualisés seront obtenues par traitement d'images et serviront de valeurs de référence pour consolider puis valider le modèle mathématique évoqué ci-dessus.

Ce travail a fait l'objet d'un article publié dans le journal Chemical Engineering & Processing : Process Intensification (Do Nascimento Arrais et coll., 2024). Il constitue le cœur de ce chapitre.

Chemical Engineering & Processing: Process Intensification 195 (2024) 109610

Contents lists available at ScienceDirect

Chemical Engineering and Processing - Process Intensification

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

Innovative fast-dynamic tool to characterize maldistribution in gas-liquid multi-channel reactors

Murilo Ricardo Do Nascimento Arrais [a], Hélène Chaumat [a], Audrey Devatine [a], Carine Julcour [a], Hervé Ayroles [b], Sébastien Cazin [b], Anne-Marie Billet [a,*]

[a] Laboratoire de Génie Chimique, CNRS, INPT, UPS, Université de Toulouse, 4 Allée Emile Monso, Toulouse 31432, France
[b] Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, CNRS, INPT, UPS, 2 Allée du Pr Camille Soula, Toulouse 31400, France

ARTICLE INFO

Keywords:
Monolith reactor
Taylor flow
Fluid mechanics
Signal and image processing
Measurement and metrics

ABSTRACT

In the field of structured reactors applied to multiphase reactions, the apparatus performance is related to the quality of the spatial distribution of fluids at the reactor inlet. This holds particularly true for monolith-type reactors since no flow redistribution is possible downstream in between the different parallel channels.

In order to characterize the gas-liquid flows and their distribution in all the channels, a resistive sensor consisting in a printed circuit board with several annular electrodes has been developed, which can be scanned with high temporal resolution, of up to 20,000 Hz. This technique allows investigating flow features, such as gas holdup, bubble velocity, and bubble frequency, which are assessed in this work by shadowgraphy for a 12-channel monolith fed by air and water.

Several treatment methods are evaluated, allowing the flow characteristics to be indirectly measured for Taylor flow regime conditions, with an accuracy of ±10% for bubble frequency and of ±20% for gas holdup and bubble velocity, with respect to the shadowgraphy. Thus, the innovative sensor can be used for industrial applications in order to distinguish the performance of gas-liquid distributors to provide uniform flow in multi-channel structured reactors.

1. Introduction

In the last decades, the need for heat and mass transfer enhancement within the chemical reactors has led to the development of many multi-channel and milli-structured devices. In particular, monolith-type or honeycomb-like reactors have hold attention for gas-liquid applications suffering from mass transfer limitation, as oxidation or hydrogenation reactions [1]. Indeed, this kind of technology includes thin parallel channels which, when operated under the Taylor flow regime – characterized by a series of lubricated bubbles separated by intensely-mixed liquid slugs – can lead to gas-liquid mass transfer coefficient k_La up to 1.6 s^{-1} [2] and to a plug flow behavior for the liquid phase, favoring reaction yield and selectivity. What is more, such technologies allow *in situ* heat control when some of the channels are dedicated to the cooling fluid circulation.

However, when considering the industrial use of such multi-channel structures, phase distribution into the channels stands as a major difficulty to face and solve, as radial flow exchange between the channels is blocked. If the distribution of gas and liquid into the channels is not uniform, mass transfer area and residence time differ among channels, and pseudo-dispersion (sometimes called backmixing) appears for the global reactor, hindering its performance [3]. Literature reports various attempts for gas-liquid feeding systems dedicated to multi-channel devices. For instance, Schubert et al. [4] mention T-fittings, tree structures, perforated plates, showerheads, and spray nozzles. Upstream from the milli-channels entrance or upstream from the distributor, static mixers as particle packings, monolith slices, or solid foams can also help by spreading the liquid over the reactor cross-section.

In these studies, authors use different experimental approaches to evaluate the distributor performance. The simplest methods involve liquid collectors at reactor exit [5], optical fibre sensors [6], or conductive needle sensors [7] set at channels outlet. More complex techniques, such as gamma-ray tomography or electrical capacitance imaging, were applied to the visualization of phase distribution inside monolith packings [8,9]. However, these techniques show a low spatiotemporal resolution, which prohibits the access to the flow dynamics. Magnetic resonance imaging is able to track bubbles and slugs

* Corresponding author.
E-mail address: annemarie.billet@toulouse-inp.fr (A.-M. Billet).

https://doi.org/10.1016/j.cep.2023.109610
Received 16 September 2023; Received in revised form 30 October 2023; Accepted 15 November 2023
Available online 17 November 2023
0255-2701/© 2023 Elsevier B.V. All rights reserved.

Notations

Acronyms

BF	bubbly flow
FFT	fast Fourier transform
IP	image processing
PVC	polyvinyl chloride
TF	Taylor flow

Roman letters

a	channel radius, m
b	local radius of bubble cross-section, m
f	frequency, Hz
k	amplification gain (-)
L	length, m
Q	flow rate, $m^3.s^{-1}$
r	radius, m
R	electrical resistance, Ω
s	voltage signal, V
S	cross-sectional area, m^2
t	time, s
u	superficial velocity, $m.s^{-1}$
U	velocity, $m.s^{-1}$
z	coordinate, m

Dimensionless number

Ca	capillary number, $Ca = \frac{\mu U_b}{\gamma}$

Greek letters

α	constant in Eq. (22) (-)
γ	surface tension, $N.m^{-1}$
δ	inter-electrodes spacing or cylinder length, m)m
ε	holdup, (-)
μ	dynamic viscosity, Pa.s
σ	electrical conductivity, $S.m^{-1}$
τ	travelling delay, s

Subscripts or superscripts

0	initial time
1	bubble cylindrical part between the two electrodes
2	water region between the two electrodes
a	air
b	bubble
c	bubble cylindrical part
ch	channel
elect	electrodes
f	final time
G	gas
L	liquid
max	maximum level
mean	mean
min	minimum level
S	liquid slug
shunt	shunt
total	total
TP	two-phase
UC	unity cell
w	water

travelling in channels for velocities up to 10 $m.s^{-1}$ [10,11]. However, to set spatial resolution to a sufficient level to measure bubbles and slugs length, the recording frequency has to be drastically lowered. To catch bubbles and slugs motion along with their dimensions, the shadowgraphy technique with a recording frequency above 1,000 fps can be the solution. Of course, this method limits the investigation to a few transparent channels at reactor periphery.

In the present work, an original sensor is designed and assessed to measure the dynamics and flow characteristics within several channels simultaneously, with a high spatiotemporal resolution. Such a tool, when coupled to an industrial multi-channel apparatus, can be of tremendous help to quantify the maldistribution for any operated gas and liquid flow rates. This sensor is adapted to gas-liquid systems showing non-negligible conductivity of the liquid phase. The prototype used for the present study is specifically adapted to the geometry of monolith blocks gathering 84 parallel channels of 2 mm of inner diameter. For each channel, the sensor records with high frequency the voltage, which is indirectly delivered from a small interrogation volume, in which the gas-liquid mixture flows through. In the following section, the electric and flow phenomena involved in one of the 84 interrogation volumes of the sensor are detailed and modelled. In Section 3, the sensor and its operating features are described, as well as the shadowgraphy system used to assess the sensor measurements. In Section 4, the modelling of characteristics and dynamics of the gas-liquid flow is presented. In Section 5, 12 channels out the 84 available ones are made accessible to a camera and investigated for various gas and liquid flow rates. For each experiment and each interrogated channel, the sensor signal analysis leads to the time evolution and to the average values of gas holdup, bubble velocity, and bubble frequency. These results are compared to those obtained by shadowgraphy and discussed, as for the sensor assessment, taking into account the flow regime in the channel.

2. The resistive sensor

2.1. Measurement principle

The sensor consists of two multilayer printed circuit boards with 84 drilled holes covered by 84 circular golden electrodes (2 mm diameter). The circuit boards are separated by a layer of polyvinyl chloride (PVC) with an inter-electrode spacing δ of 2 mm. The spacing has been chosen based on (i) the sensor acquisition frequency and the maximum bubble velocity of 1 $m.s^{-1}$ reached in channels, and on (ii) a preliminary modelling study of the spacing effect on the theoretical sensor signal, which becomes damped when the spacing is greater than 2 mm. The sensor holes are aligned with the monolith channels (Fig. 1a).

For each monolith channel, the electrical resistance R of the fluid volume present between the pair of electrodes is measured by imposing a triangular voltage to the electrodes and by measuring the resulting voltage, thanks to a "divisor bridge" circuit. This circuit includes a "shunt" resistance (called R_{shunt} here after) which is large as compared to R ($R_{shunt} \approx 10\ k\Omega$), and an amplification gain (named k). Note that the values for k and R_{shunt} may be different among the channels, i.e. depending on the considered pair of electrodes. The temporal signal delivered by a pair of electrodes can be expressed as:

$$s(t) = k\frac{R_{shunt}}{R_{shunt} + R(t)} \quad (1)$$

All pairs of electrodes are linked to a data board (Measurement Computing USB-1808X, with eight 18-bit analog input channels and maximum sampling rate of 200 $kSample.s^{-1}$ per channel) via an analogical multiplex transmitter. A script written in DELPHI 7 language allows managing the data board. This tool makes it also possible to select the channels to record, and to plot the time evolution of the measured voltages. Thanks to the multiplexing system, this device thus allows recording the temporal signals from all channels, with a global sampling

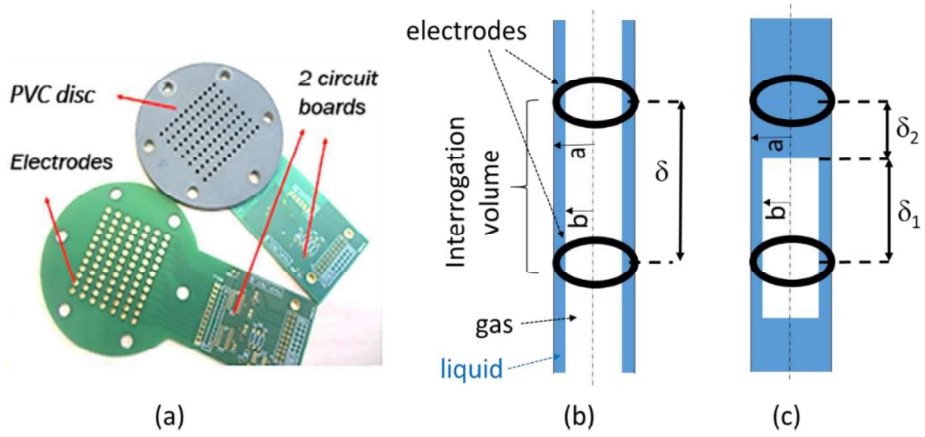


Fig. 1. Sensor and measurement principle. (a) Resistive sensor: constitutive elements; (b) Schematic representation of gas cylinder surrounded by a liquid film within the inter-electrodes spacing; (c) Schematic representation of short cylindrical gas bubble within the inter-electrodes spacing.

rate of up to 20,000 Hz. This system requires a complex wiring to accommodate all electronic circuits in such a small space while limiting interferences.

2.2. Theoretical link between the sensor signal and the flow hydrodynamics

In this section, physics as well as electrical principles are questioned to build the theoretical signal, which is expected to be delivered by the sensor for a Taylor flow. Building a theoretical signal allows to understand its features. The objective is to define a new methodology to deduce flow hydrodynamic parameters, as gas holdup and bubble velocity. An air-water system is considered.

2.2.1. Phenomena involved in the interrogation volume between the electrodes

When the volume between two parallel annular electrodes is filled with a fluid, the corresponding measured electrical resistance is given by [12]:

$$R = \frac{\delta}{\sigma S_{elect}} \tag{2}$$

where δ is the inter-electrodes spacing, S_{elect} is the cross-sectional area surrounded by each electrode, and σ is the electrical conductivity of the fluid.

If the interrogation volume between the two annular electrodes contains a gas chore (long cylindrical bubble) surrounded by a water lubrication film (Fig. 1b), as for Taylor flow, the model applies [13]:

$$R = \frac{\delta}{\pi\left(\sigma_a.b^2 + \sigma_w.\left(a^2 - b^2\right)\right)} \tag{3}$$

where a is the channel radius, b the bubble one, and σ_a and σ_w are the electrical conductivities of air and water, respectively.

As the electrical conductivity of air is very low ($\sigma_a \approx 10^{-15}$ S.m^{-1}), it comes:

$$R = \frac{\delta}{\pi\sigma_w.\left(a^2 - b^2\right)} \tag{4}$$

If the cylindrical bubble does not reach the two electrode planes (Fig. 1c), the interrogation volume can be divided in adjacent volumes, whose respective resistances are added:

$$R = \frac{\delta_1}{\pi\sigma_w.\left(a^2 - b^2\right)} + \frac{\delta_2}{\pi\sigma_w a^2} \tag{5}$$

where δ_1 is the length of the bubble cylindrical part laying between the two electrodes, and δ_2 is the length of the water region between the electrodes ($\delta_2 = \delta - \delta_1$).

Following this approach, the interrogation volume can be discretized in thin parallel slices of width dz. Considering a gas-liquid slug flow passing through the electrodes in the z direction, where z=0 is chosen at the position of the lower electrode (Fig. 2), the total electrical resistance R_{total} between the electrodes at any time instant can be then derived through:

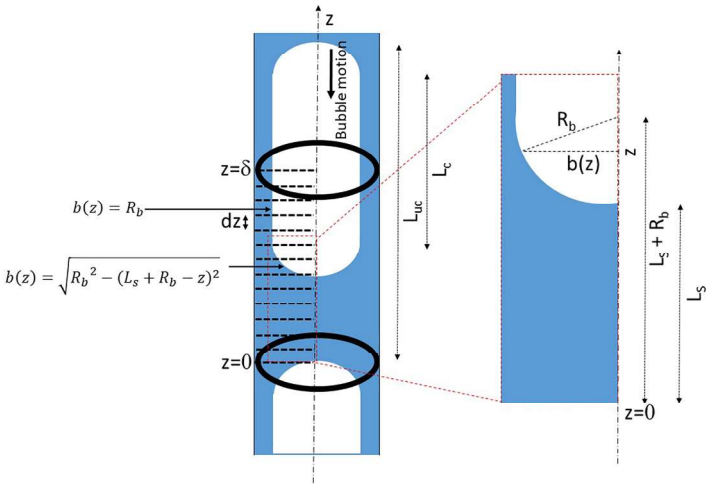


Fig. 2. Discretization of the interrogation volume between the two electrodes, and zoom on bubble nose to explicit b(z) expression.

$$R_{total} = \sum_{z=0}^{z=\delta} \left[\frac{dz}{\pi\sigma_w.\left(a^2 - b(z)^2\right)} \right] \quad (6)$$

where $b(z)$ is the local radius of the bubble cross-section at location z between the electrodes.

2.2.2. Modeling of the sensor signal for Taylor flows

For a Taylor flow with moderate Capillary number [2], i.e. $Ca < 10^{-3}$, where $Ca = \frac{\mu_L U_b}{\gamma_L}$ with dynamic viscosity of liquid phase μ_L, bubble velocity U_b and surface tension of liquid phase γ_L, the bubble shape is known and consists of a cylindrical body surrounded by two half-spheres of radius r_b. Thus, $b(z)$ can be expressed for any position z in the flow thanks to the Pythagoras' theorem. Let us consider a single unit cell of length L_{UC}, including a liquid slug and a bubble of respective lengths L_s and L_b ($L_{UC} = L_s + L_b$), and moving downwards in the interrogation volume. L_b is composed of the length of the cylindrical part (with lubrication film), L_c, and of two half-spheres of radius r_b. It is here arbitrary stated that, at the considered time instant t, a liquid slug starts at $z = 0$ between the electrodes (as represented in Fig. 2). Several scenarios can be distinguished to express $b(z)$:

$$\text{If } 0 < z < L_s, \text{ then } b(z) = 0 \quad (7)$$

$$\text{If } L_s < z \leq L_s + r_b, \text{then } b(z) = \sqrt{r_b^2 - (L_s + r_b - z)^2} \quad (8)$$

$$\text{If } L_s + r_b < z \leq L_s + r_b + L_c, \text{then } b(z) = r_b \quad (9)$$

$$\text{If } L_s + r_b + L_c < z \leq L_{UC}, \text{then } b(z) = \sqrt{r_b^2 - (z - r_b - L_c - L_s)^2} \quad (10)$$

Eqs. (7)–(10) can then used again for the next unit cell entering the interrogation volume (at later time t).

In the frame of the pair of electrodes, the latter are considered at fixed positions $z = 0$ and $z = \delta$, and the interrogation volume is discretized as a series of infinitesimal slices of width dz (typically, $dz < \frac{\delta}{100}$). As $b(z)$ is known for each slice Eqs. (7)–(10), the resistance R_{total} of the fluid medium laying between the two electrodes can be expressed thanks to Eq. (6).

At any time t ($t > 0$), knowing bubble and slug positions in the interrogation volume, and recalling the sensor signal expression (Eq. (1)), it comes:

$$s(t) = k \frac{R_{shunt}}{R_{shunt} + \sum_{z=0}^{z=\delta} \left[\frac{dz}{\pi\sigma_w.\left(a^2 - b(z)^2\right)} \right]} \quad (11)$$

Calling dt the sampling delay of the resistive sensor, dz corresponds to:

$$dz = U_b.dt \quad (12)$$

For any time delay dt, the resistance R_{total} (Eq. (6)) varies as the interrogation volume loses an elementary fluid slice (of corresponding width dz) on one side and gets a new fluid slice on the opposite side. From time step to time step, the theoretical response of sensor can then be calculated.

2.3. Analysis of theoretical temporal signals

Examples of contrasted Taylor flows are investigated here after. Fixed value is chosen for U_b (0.1 m.s^{-1}) and for bubble radius (0.7 mm), and various lengths (as compared to δ = 2 mm) are considered for bubbles and slugs (Fig. 3). The inter-electrodes distance and the channel length are discretized to calculate the total electrical resistance R_{total} at each time instant. Thus, the signal is derived and plotted versus t. On the time plots, signal and signal derivative start at the time instant equal to the inter-electrodes travelling delay τ ($\tau = \frac{\delta}{U_b}$).

It can be observed that, for long bubbles and long slugs (Fig. 3.a), the sensor signal reaches 2 plateaus: the upper one corresponds to an interrogation volume filled with water, the lower one corresponds to a long bubble passing through the electrodes. As Taylor flow is expected, with bubble size greater than channel diameter, an inter-electrodes spacing of 2 mm allows having a good representation of flow and a sufficient signal amplitude at once. If the bubbles or the slugs are shorter than the inter-electrodes spacing, then one of the plateaus cannot be reached (Fig. 3.b and c). In the case of tiny spherical bubbles (radius < 1 mm), the signal is almost flat (Fig. 3.d).

3. Experimental set-up and procedures

The designed sensor is now to be tested in real flow, in order to verify if the recorded signals are in accordance with the theoretical ones and to develop an adequate signal processing which allows the determination of flow parameters in each channel.

3.1. Experimental set up and conditions

The experimental setup (Fig. 4) consists of a T-junction based gas-liquid distributor [14] that gives a quite uniform distribution, followed by the resistive sensor, a 0.05 m long and thin transparent device consisting of 12 parallel channels (2 mm inner diameter), and two identical 0.15 m long monolith blocks (12×7 channels) in series. These blocks are arranged downstream to ensure a sufficient pressure drop, as necessary for the stability of flows. For this study, only 12 channels of the monolith are fed, allowing the assessment of flows by visualization through the thin transparent device.

Distributor, monolith blocks and visualization device have all been printed in the laboratory thanks to a stereolithography 3D-printer (DWS XFAB 3500 PD) with a 50-µm resolution. The gas-liquid distributor is made in black resin (DWS INVICTA DL380, 3D-Solutions). It contains T-junctions to create the gas-liquid flows. The monolith blocks and the visualization device are made in translucent acrylic resin (DWS VITRA DL375, 3D-Solutions).

A high-speed camera (Phantom Miro M320) with a resolution of 1980×1200 px^2 is used to record flows through the 12 channels of the visualization device. It is equipped with an 85 mm f/1.4 aspherical IF Samyang lens. A LED panel (Phlox, 16×16 cm^2, continuous light source) is settled behind the visualization device. The resulting spatial scale was 1 pixel = 66.7 µm.

To run an experiment, air and water are fed to the distributor, and the system is operated for at least 5 minutes to ensure that steady state is reached. Then, the resistive sensor and the camera are started simultaneously – as the two tools are synchronized. The camera records 15,000 images at a rate of 1,000 fps. The sensor records the voltage from the 12 pairs of electrodes during 60 seconds under a global sampling rate of 20,000 Hz (i.e. 1,667 Hz for each channel).

Global liquid and gas flow rates have been varied at the distributor inlet to examine different flow conditions, as for the theoretical signal. 12 experiments have been performed, as described in Table 1, mainly in the Taylor flow regime, but also in bubbly flow regime. Note that, as the distributor provides a fairly uniform distribution, the flow regime is often the same in the 12 channels for a given operating condition. In the channels, mean superficial velocities of air ($u_{G,mean}$) and tap water ($u_{L,mean}$) range from 0.1-0.8 m.s^{-1} and 0.1-0.4 m.s^{-1}, respectively, under room temperature and atmospheric pressure.

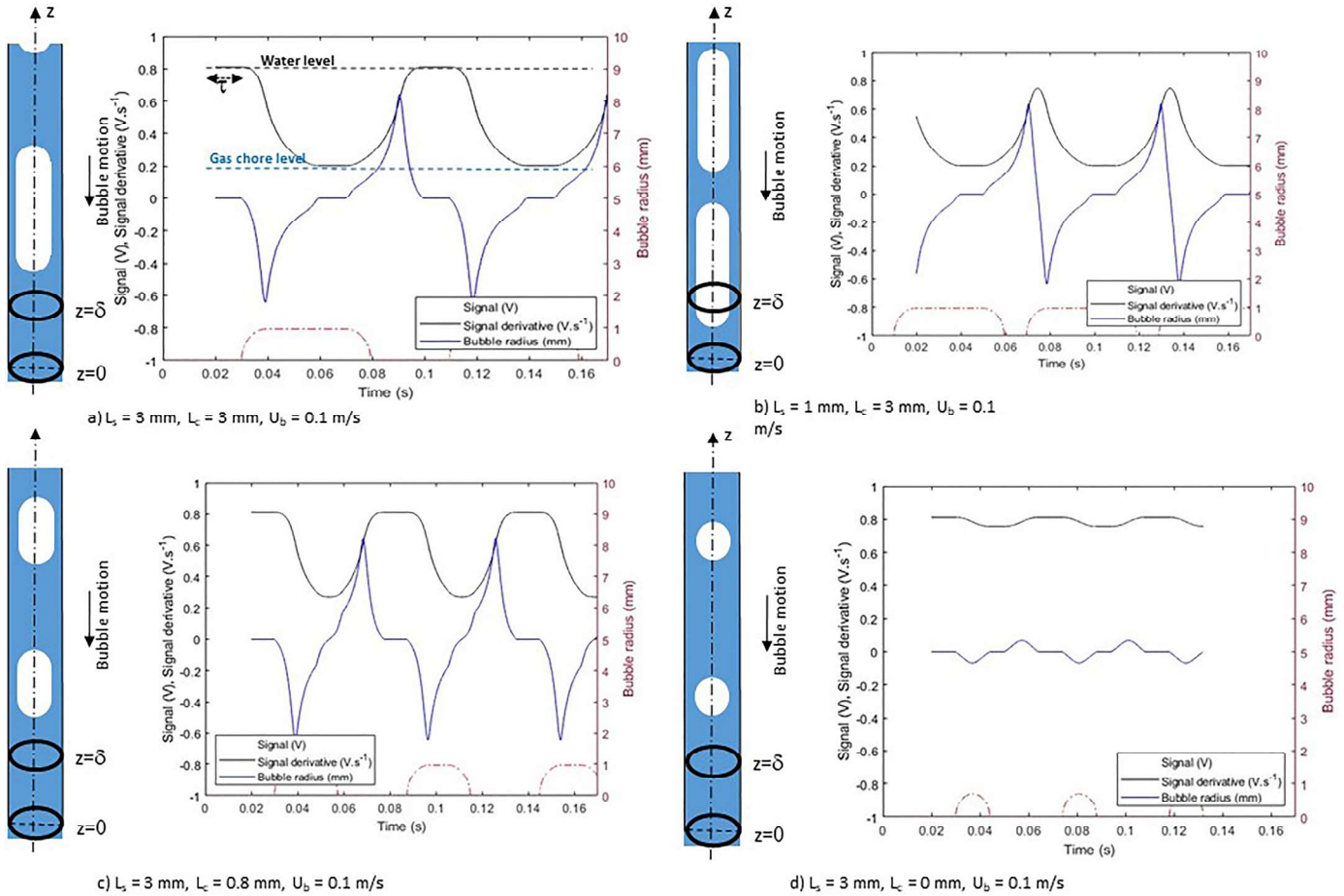


Fig. 3. Representation of the series of slugs and bubbles of various lengths (left), and plot of the corresponding modelled sensor signal and its derivative (right) for a = 1 mm and δ = 2 mm, U_b= 0.1 m.s^{-1}, and r_b= 0.7 mm; (a) long slugs and long bubbles with respect to the inter-electrodes spacing (L_s= 3 mm, L_c= 3 mm); (b) short slugs and long bubbles (L_s= 1 mm, L_c= 3 mm); (c) long slugs and short bubbles (L_s= 3 mm, L_c= 0.8 mm); (d) bubbly flow (L_s= 3 mm, L_c= 0 mm).

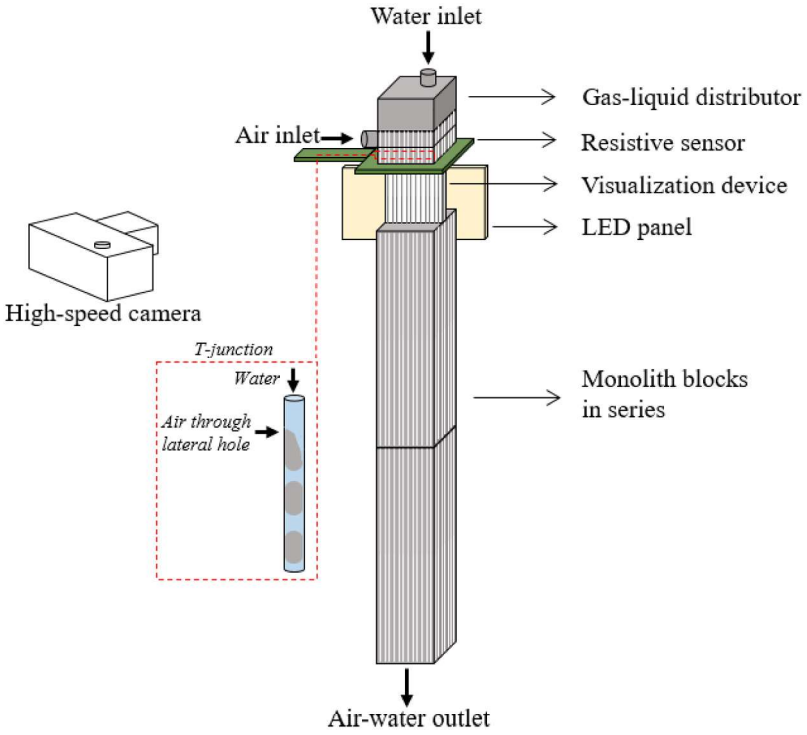


Fig. 4. Schematic of experimental 12-channel set-up.

Table 1
Experiments performed in this study; mean superficial fluid velocities $u_{L,mean}$ and $u_{G,\ mean}$ are defined as the global feed flow rates divided by the sum of the cross-sectional areas of the 12 channels; flow regimes observed on the recorded pictures are referred to as "TF" = Taylor flow, "BF" = bubbly flow.

N° exp.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
$u_{L,mean}$ (m/s)	0.18			0.24			0.30			0.37		
$u_{G,mean}$ (m/s)	0.19	0.46	0.75	0.19	0.46	0.75	0.19	0.46	0.75	0.19	0.46	0.75
Flow regime	TF	TF	TF	TF	TF	TF	BF	TF	TF	BF	BF	TF

3.2. Shadowgraphy: image processing

In order to obtain the hydrodynamic features from the recorded images, the Image Processing and the Signal Processing toolboxes of MATLAB® R2022b are used. For each of the 12 channels (Fig. 5), the procedure consists in steps of image processing (thresholding, binarization, filling and labelling of bubbles), and calculation of several features (gas holdup, bubble velocity, bubble frequency), as demonstrated in literature [15,16].

Gas holdup (ε_G) is calculated from the ratio of the projected surface area of bubbles in a channel and the projected surface area of the channel. To obtain the bubble velocity (U_b), a cross-correlation algorithm is used, which calculates the most probable shift of the bubbles from the comparison of two consecutive images [15]. Bubble velocity is then deduced from the camera frame rate. With the aim of determining the bubble frequency (f_b), a "virtual probe" consisting of a single pixel located in the center of the channel is used to monitor the occurrence of bubbles, by taking local pixel values (0 or 1) in the successive binarized images, resulting in a temporal square-wave signal. This square signal is then processed with a Fast Fourier Transform (FFT) algorithm to calculate bubble frequency, giving the most likely value for each channel [17,18].

To assess the image processing methodology, the measured values of U_b and ε_G are combined as follows to calculate the liquid flow rate Q_L in the considered channel:

$$Q_L \approx (1-\varepsilon_G) u_{TP} S_{ch} \tag{13}$$

with S_{ch} the channel cross-sectional area, and with the two-phase velocity u_{TP} expressed as a function of U_b and capillary number Ca [19]:

$$u_{TP} = U_b\left(1 - 0.61 Ca^{0.33}\right) \tag{14}$$

For all performed experiments (see Table 1), the overall liquid flow rate is reconstructed from the sum of calculated liquid flows in the 12 channels. Fig. 6 shows the calculated overall liquid flow rate versus the experimental overall liquid flow rate at distributor inlet according to the flowmeter.

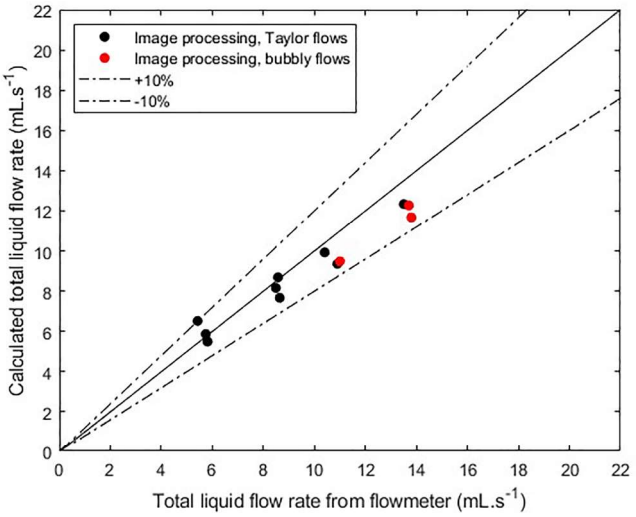


Fig. 6. Assessment of image processing: reconstructed overall liquid flow rates (from 12 channels) calculated via the measured values of U_b and ε_G; the experiments exhibiting bubbly flow in some channels are shown with red marks.

For the experiments corresponding to Taylor flows, the deviation between the theoretical liquid flow rates and the calculated ones is less than 10%. These discrepancies might be due to (i) the use of projected surface area for gas holdup calculation (bubbles may not be perfectly axisymmetric), and to (ii) possible refraction effects affecting the apparent bubble shape during binarisation step. The image processing values are then considered as the reference ones in the following. For bubbly flows, Eq. (14) is not relevant and in consequence, the calculated flow rates are less accurate.

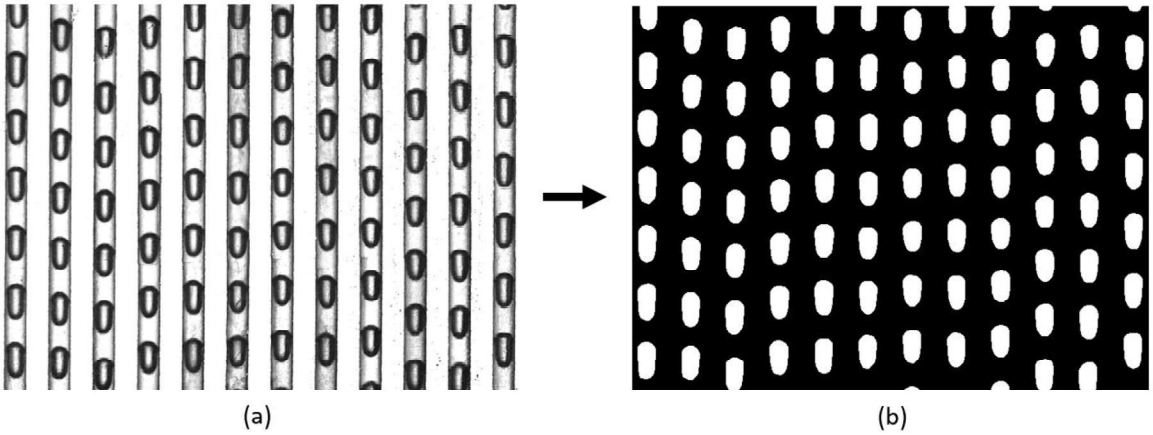


Fig. 5. Example of 12-channel gas-liquid flows from experiment n°8, visualized with the visualization device; (a) Raw image recorded by the camera; (b) Image of binarized and "filled" bubbles obtained after image processing.

3.3. Resistive sensor: raw signal formatting

As expected, the voltage signal delivered by the resistive sensor shows a sinusoidal pattern, due to the difference in conductivity of the fluids passing through the electrodes. Fig. 7 shows an example of sensor signal for a Taylor flow with large bubbles and slugs, which has a maximum voltage level, s_{max}, when the volume is filled with water and a minimum one, s_{min}, when the volume is filled with a bubble ("water lubricated air cylinder").

Note that, before treatment, the temporal voltage signal is filtered to avoid any misinterpretation due to electrical noise. Therefore, a low-pass filter is applied to clear signals from frequencies higher than the cutoff frequency. A frequency of 400 Hz is chosen for the latter, based on the highest bubble frequency (≈130 Hz) detected during all the experiments.

4. Strategy to extract the gas-liquid flow characteristics from the sensor signal

This section presents the measuring of hydrodynamics features from the sensor signal: first, the bubble frequency using a FFT algorithm; then, the gas hold-up with derivative and integral methods; and finally, the bubble velocity with derivative and slope methods.

4.1. Identification of bubble frequency

As done for the shadowgraphy technique, a FFT algorithm is used to calculate bubble frequency from the voltage signal, giving the most likely value. In this work, the bubble frequency is found to range between 48 and 130 Hz. It is recalled that the sampling rate of the camera and that of the resistive sensor are 1,000 fps and 1,667 Hz, respectively. Thus, they obey the Nyquist theorem, which states that the sampling rate must be at least twice the highest frequency of a signal to avoid its aliasing [20]. Thus, the method allows the dynamics of the observed phenomena to be satisfactorily captured.

4.2. Measurement of gas holdup

The theoretical time evolution of the sensor signal can be of various shapes and it is thus difficult to interpret if no image of the flow is available. In this part, two approaches are explored to calculate gas holdup in each channel.

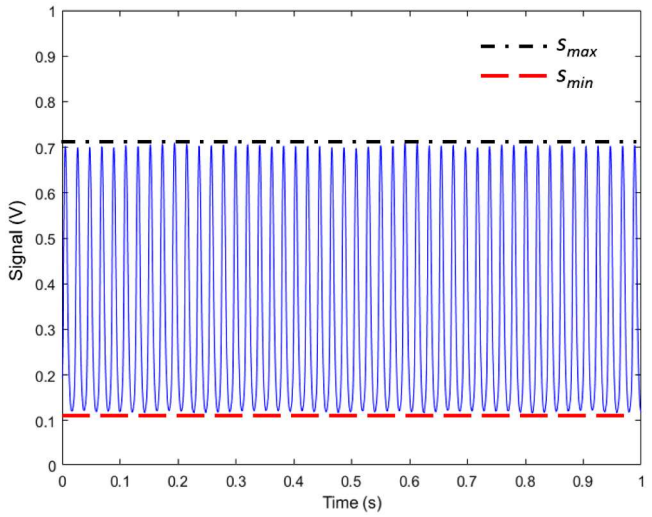


Fig. 7. Example of the time evolution of a filtered signal recorded for a channel under Taylor flow regime (experiment n°1). Levels of maximum and minimum voltage are put in evidence.

4.2.1. The "derivative method"

This approach is based on the observation that the signal always shows sharp slopes. The signal derivative is indeed closely linked to the derivative of the electrical resistance of the fluid volume laying between the electrodes:

$$\frac{ds(t)}{dt} = \frac{ds(t)}{dz}.\frac{dz}{dt} \tag{15}$$

Using Eqs. (11) and (12), Eq. (15) gives:

$$\frac{ds(t)}{dt} = \frac{-kR_{shunt}.\dfrac{dR(z)}{dz}}{\left\{R_{shunt} + \sum_{z=0}^{z=\delta}\left[\dfrac{dz}{\pi\sigma_w.\left(a^2 - b(z)^2\right)}\right]\right\}^2}.U_b \tag{16}$$

Or:

$$\frac{ds(t)}{dt} = \frac{-U_b}{kR_{shunt}}.s(t)^2.\frac{dR(z)}{dz} \tag{17}$$

Referring to Fig. 8.a, it is clear that $\frac{dR}{dz}$(z) reaches a maximal value (i.e. $\frac{ds}{dt}$ reaches a minimal one) when, in the interrogation volume between the electrodes, a « slice » of water exits the volume and a « slice » of the cylindrical bubble part enters it. This may occur for successive times t. However, among these time instants, $-\frac{ds}{dt}$ is maximal when $s(t)$ is the largest (see Eq. (17)). This particular instant corresponds to a gas cylinder entering the interrogation volume while a liquid « slice » is leaving at the other side (Fig. 8.a). In a similar way, one can demonstrate that $\frac{dR}{dz}$(z) is minimal (i.e. $\frac{ds}{dt}$ maximal) when a gas cylinder leaves the interrogation volume and a liquid « slice » enters it (Fig. 8.b). The time delay between these two specific instants corresponds, for the considered bubble, to a travelling distance of $L_c + \delta$. Therefore, knowing the value of bubbles velocity U_b, the measurement of the time delay between a local maximum of the signal derivative and the following local minimum allows the calculation of bubble length $(L_c + 2r_b)$. Note that r_b can be evaluated via the thickness of the lubrication film, the latter being linked to channel diameter and to the Capillary number [21].

In practice, once the signal differentiated, the relevant maxima and minima along time are selected. This can be observed in Fig. 3.a, b and c, where bubble position and signal derivative are plotted together. Minor extrema due to signal noise (see for example Fig. 11.b and c in Section 5.1) are left apart. The average value of all the measured time delays between maximum and minimum values of the signal derivative leads to bubble length and so to bubble average volume in the considered Taylor flow and, knowing the unit cell length L_{UC} (Eq. 18), to the average gas holdup ε_G :

$$L_{UC} = \frac{U_b}{f_b} \tag{18}$$

$$\varepsilon_G = \frac{\pi r_b^2 L_c + \frac{4}{3}\pi r_b^3}{\pi a^2 L_{UC}} \tag{19}$$

4.2.2. The "integral method"

Coming back to the theoretical expression of the signal delivered by the sensor at time instant t (Eq. (11)), simplifying assumptions can lead to another way to evaluate the gas holdup. If the bubbles are considered cylindrical, Eq. (11) turns into:

$$s(t) = k\frac{R_{shunt}}{R_{shunt} + \left[\frac{L_L(t)}{\pi\sigma_w a^2} + \frac{L_G(t)}{\pi\sigma_w\left(a^2 - r_b^2\right)}\right]} \tag{20}$$

where $L_L(t)$ and $L_G(t)$ are respectively the length of the liquid part and the length of the bubble present within the interrogation volume at instant time t.

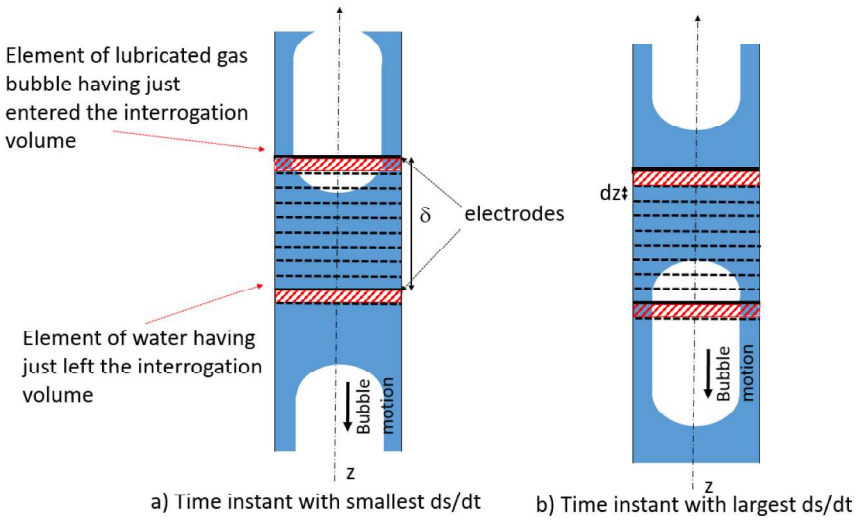


Fig. 8. Description of the specific scenario corresponding to extrema of the function $\frac{ds}{dz}$(t).

As a^2 is far larger than $(a^2 - r_b^2)$, it comes:

$$s(t) \approx k\frac{R_{shunt}}{R_{shunt} + \frac{L_G(t)}{\pi\sigma_w\left(a^2 - r_b^2\right)}} \tag{21}$$

And then:

$$s(t) \approx k\frac{1}{1 + \alpha L_G(t)} \tag{22}$$

where α is a constant: $\alpha = \frac{1}{\pi\sigma_w(a^2 - r_b^2)R_{shunt}}$.

As R_{shunt} is chosen to be larger than the highest resistance of the fluid interrogation volume (it was checked that $R_{shunt} > 10^2.\frac{1}{\pi\sigma_w(a^2 - r_b^2)}$), $\alpha L_G(t)$ is far smaller than 1. A development of $s(t)$ when $\alpha L_G(t)$ asympotically tends towards 0 gives:

$$s(t) \approx k(1 - \alpha L_G(t)) \tag{23}$$

So, under the suggested assumptions, $\left(1 - \frac{s(t)}{k}\right)$ can be considered as proportional to the length of the gas cylinder present within the interrogation volume, i.e. roughly proportional to the liquid volume present between the electrodes. This approach allows processing the sensor signal in the same way as the signals issued from needle probes to obtain the average liquid holdup in the studied gas-liquid flow. The signal has to be normalized (divided by its own magnitude) and integrated along time [17,18,22]:

$$\varepsilon_L \approx \frac{1}{\left(t_f - t_0\right)}.\int_{t_0}^{t_f}\frac{\left(s(t) - s_{min}\right)}{\left(s_{max} - s_{min}\right)}dt \tag{24}$$

where t_0 and t_f are the initial and final time instants of the record, respectively.

The average gas holdup for the considered flow can then easily be deduced, if the bubbles can be regarded as cylindrical and if the maximum and minimum values of the signal can be viewed as liquid and gas levels.

4.3. Measurement of bubble velocity

In this part, two approaches are also explored to calculate bubble velocity in each channel.

4.3.1. The "derivative method"

To obtain the gas holdup for the studied Taylor flow via the derivative method (Section 4.2.1), the bubble velocity U_b is needed Eqs. (16) and (17). From Eq. (17), it comes:

$$U_b = -kR_{shunt}\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right].\frac{1}{\frac{dR}{dz}(z)} \tag{25}$$

It is here recalled that the values for k and R_{shunt} are unknown and depend on the considered pair of electrodes.

Eq. (25) states that, for a considered channel (or a considered Taylor flow with bubble velocity U_b), $\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]$ and $\frac{dR}{dz}(z)$ are proportional and of opposite sign. Therefore, $\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]$ is minimum when $\frac{dR}{dz}(z)$ is maximum. This is expressed as:

$$U_b = -kR_{shunt}\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]_{min}.\frac{1}{\left[\frac{dR}{dz}\right]_{max}} \tag{26}$$

The maximum value of $\frac{dR}{dz}$ corresponds to a time instant when a "slice" of liquid is replaced by a "slice" of gas bubble within the interrogation volume (as expressed in Section 4.2.1), and can thus be expressed as:

$$\left[\frac{dR}{dz}\right]_{max} = \frac{-\frac{dz}{\pi\sigma_w a^2} + \frac{dz}{\pi\sigma_w\left(a^2 - r_b^2\right)}}{dz} = \frac{r_b^2}{\pi\sigma_w a^2\left(a^2 - r_b^2\right)} \tag{27}$$

What is more, k and R_{shunt} constants can be related to the minimal and maximal levels of the sensor signal – i.e. to the signal levels corresponding to the interrogation volume filled by a long bubble or by water, respectively - thanks to Eq. (11):

$$s_{min} = k\frac{R_{shunt}}{R_{shunt} + \frac{\delta}{\pi\sigma_w\left(a^2 - r_b^2\right)}} \tag{28}$$

$$s_{max} = k\frac{R_{shunt}}{R_{shunt} + \frac{\delta}{\pi\sigma_w a^2}} \tag{29}$$

Combining Eqs. (27)–(29) gives:

$$\left[\frac{dR}{dz}\right]_{max} = \frac{kR_{shunt}}{\delta}\left(\frac{1}{s_{min}} - \frac{1}{s_{max}}\right) \tag{30}$$

Finally, Eqs. (26) and (30) can be combined into:

$$U_b = \frac{\delta \left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]_{\min}}{\left(\frac{1}{s_{\max}} - \frac{1}{s_{\min}}\right)} \quad (31)$$

In practice, minimum and maximum values are checked for the data vectors $s(t)$ and $\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]$, taking care to eliminate pseudo-extrema due to data noise (Fig. 9).

For each identified minimum value of vector $\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]$, U_b is calculated. An average value of U_b is then derived for the investigated Taylor flow. In this method, the major drawback lays in the calculation of the data vector $\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]$: signal noise is amplified by the division and multiplication operations.

4.3.2. The "slope method"

It is interesting to notice that, for Taylor flows showing bubbles and slugs with length similar to or larger than the inter-electrodes spacing δ (2mm in this study), the sensor signal reaches its minimum level when the interrogation volume contains a bubble, and it reaches its maximum level when the electrode inter-space is filled with water. On this basis, the time-delay of signal variation between its minimum and maximum values corresponds roughly to the time needed by a bubble to leave the interrogation volume (Fig. 10), i.e. to travel over a distance δ. So, dividing δ by the average of the measured time delay may give a relevant approximation for U_b. In practice, signal rising slopes identification allows catching the relevant time instants and calculating the needed time delays.

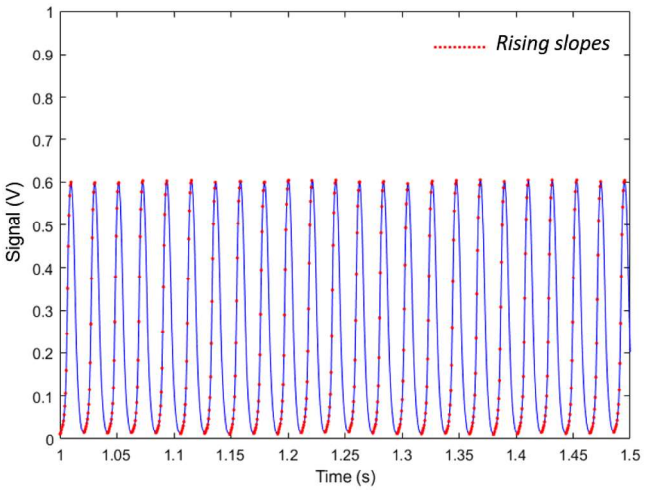


Fig. 10. Example of voltage signal and of associated rising slopes for a channel under Taylor flow (experiment n°1), that are used to identify the travelling time delays and thus to calculate bubble velocity with the "slope method".

5. Application of the signal processing to experimental data and assessment

5.1. Preliminary results

The recorded images of the performed experiments show that Taylor flow prevails in most of the channels. Fig. 11.a–c show examples of these flows as well as the corresponding recorded signals and their derivatives. The signals delivered by the sensor show patterns similar to those obtained by modelling (Fig. 2). However, in many cases, bubbles and slugs are not long enough to induce plateaus at high and low levels of the signal. Long bubbles inducing low-level plateaus can be observed for experiment n°3 on Fig. 11.b. Bubbly flow occurs sometimes (Fig. 11.c). In such cases, the sensor signal has a reduced magnitude (as expected from Section 2.3) and is less stable over time, preventing a correct identification of peaks or slopes for the signal and its derivative. However, this specific pattern of the signal allows detecting the bubbly flows before signal processing, even if no image of the flow is available.

5.2. Hydrodynamics investigation with the different methods for Taylor flows

We now compare the results obtained with the resistive sensor, using the different treatment methods, to the reference values issued from image processing. This is performed for various operating conditions, to determine the most accurate and robust treatment method. In the first hand, only Taylor flows are considered (all experiments except n°7, 10 and 11), since it is the hydrodynamics regime for which the sensor and the associated treatments have been developed. 108 experimental data (12 channels x 9 experiments) are used. Then, its application to other flow conditions is checked.

5.2.1. Bubble frequency

First, the bubble frequency is studied using the FFT method. Measurements delivered from the resistive sensor are compared to those from the image processing for all channels and for all the experiments,

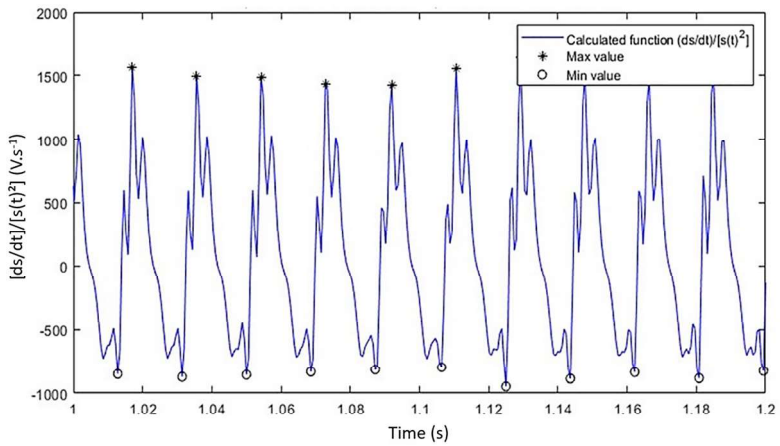


Fig. 9. Example of calculated function $\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]$ and extrema identification (experiment n°1, channel 5).

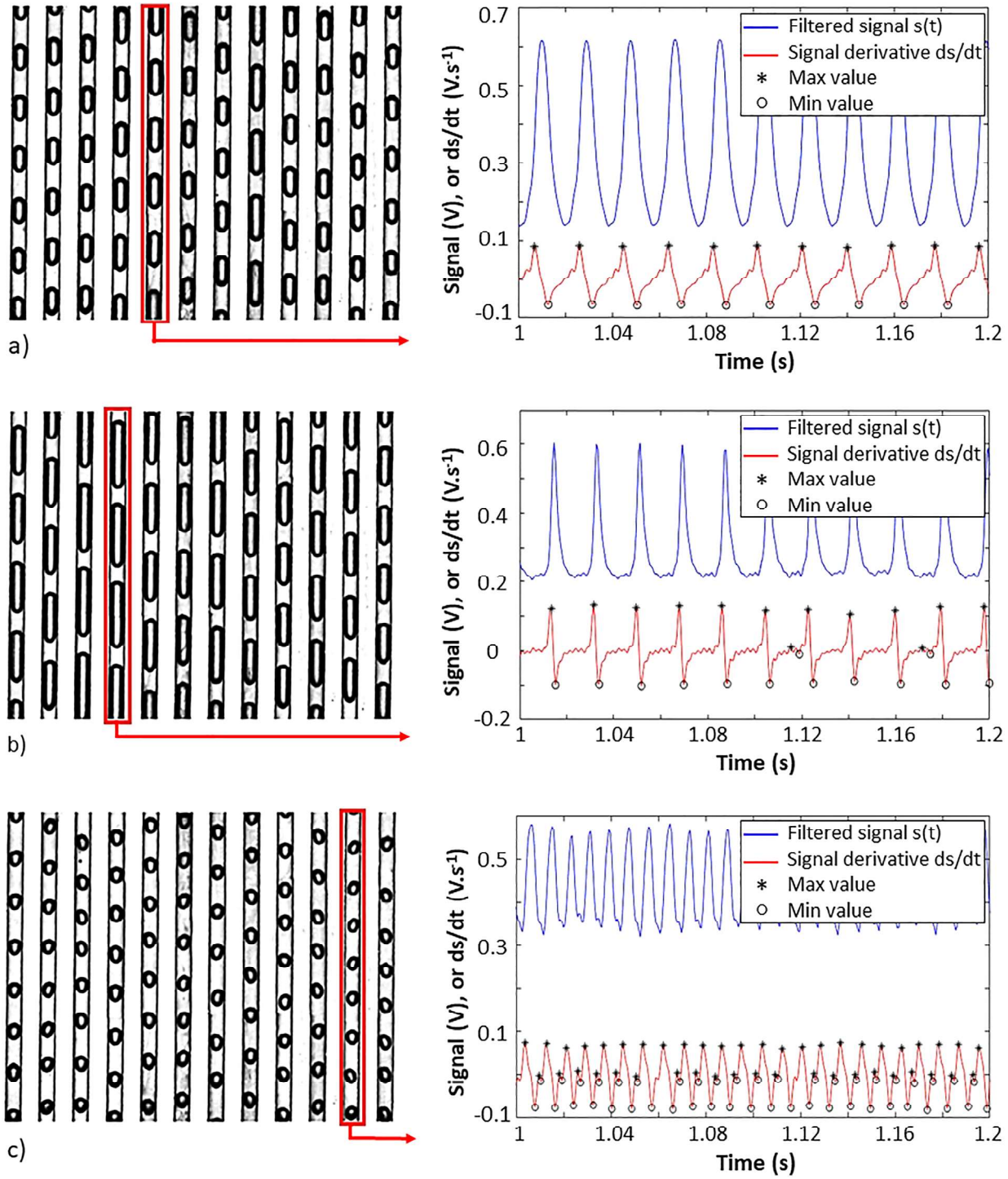


Fig. 11. Examples of images of the gas-liquid flows in the 12 parallel channels, and plot of some signals and signal derivatives versus time: (a) Experiment n°1 (Taylor flows); (b) experiment n°3 (Taylor flows with long bubbles); (c) Experiment n°10 (bubbly flows).

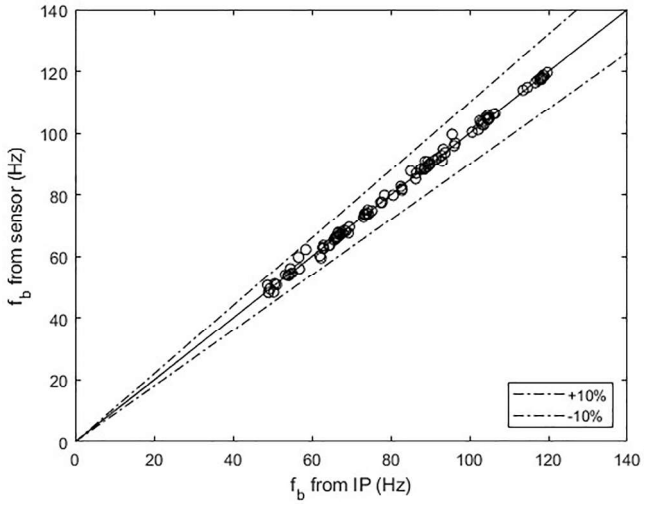


Fig. 12. Values of bubble frequency measured from the resistive sensor plotted versus the values of bubble frequency from image processing (« IP »).

except those showing bubbly flow. Fig. 12 shows that the feature is well estimated for all conditions under Taylor flow within an accuracy of ±10%.

5.2.2. Bubble velocity

Here the derivative and the slope methods are examined. The bubble velocity obtained with these two methods for all channels and for the Taylor flow experiments are compared on a parity curve (Fig. 13) to the ones issued from image processing.

Fig. 13 shows that the slope method estimates the bubble velocity with an accuracy of ±20%; whereas the derivative method gives scattered values. As a matter of fact, the derivative method is based on the calculation of $\left[\frac{\frac{ds}{dt}(t)}{s(t)^2}\right]$, which unfavourably amplifies the temporal fluctuations of the raw signal. The slope method is then recommended to evaluate the bubble velocity value within ±20%.

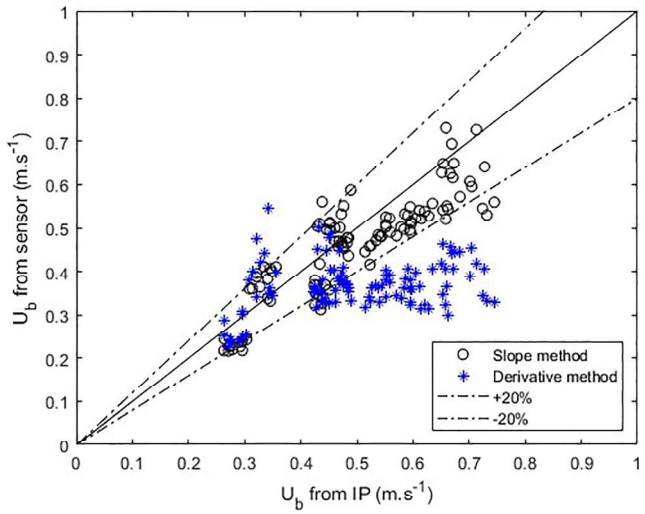


Fig. 13. Values of bubble velocity as measured from the resistive sensor plotted versus the values of bubble velocity measured from image processing (« IP »); experiments under Taylor flow regime.

5.2.3. Gas holdup

The derivative and integral methods are now compared in terms of gas holdup (Fig. 14) and plotted versus the reference values issued from image processing. For the derivative method, the calculation of the gas holdup requests the knowledge of bubble velocity. The latter is processed from the slope method, as this method has been proved more accurate for bubble velocity measurement than the derivative method. However, both methods may be used for bubble velocity, as the results of gas holdup are not sensitive to the bubble velocity accuracy (Fig. 14. b).

Fig. 14.a shows that the derivative method leads to an estimation of gas holdup with an accuracy of ±20 % in most cases, except for short bubbles (as for experiment n°4) or short slugs (channel 8 in experiment n°1), i.e. cases where $L_c + 2r_b < \delta$ or $L_s < \delta$. For gas holdup evaluation, the derivative method is indeed less sensitive to the random fluctuations of the raw signal because it requests the calculation of the signal derivative only. On the contrary, the signal amplitude is widely impacted when high bubble frequency and small length for slugs and bubbles are involved, so the s_{min} and s_{max} values needed for the integral method are difficult to determine precisely. The derivative method is then recommended to determine the gas holdup.

5.2.4. Optimal methodology and assessment via mass balance

To assess the recommended data processing methods associated to the use of the resistive sensor, values of U_b and ε_G are combined to obtain the liquid flow rate in each channel (as done in Section 3.2 for the IP method), and to calculate the overall liquid flow rate. The latter is compared with the liquid flow rate displayed by the flowmeter. Fig. 15 shows that, when the slope method and the derivative method (the latter being based on U_b values issued from the slope method) are used, a satisfying agreement – as much as for the image processing reference method – is found between displayed and calculated overall liquid flow rates. Such an agreement is not reached when the slope and integral methods are combined, nor when the derivative method is used exclusively.

5.3. Hydrodynamics investigation with the different methods for all considered flows

In this section, the developed processing methods are tested for all flow regimes. Typically, experiments n° 7, 10 and 11 are included, whereas they show the bubbly regime in the 12 channels – all 144 experimental data are then used. Fig. 16 shows bubble frequency measurements for all conditions: the FFT method is able to estimate this parameter regardless of the flow regime.

Fig. 17.a shows the parity plot of bubble velocity values: the processing methods clearly fail in measuring the bubble velocity for bubbly flow regime, because the bubbles are very small in regard with inter-electrodes spacing and thus provide a damped signal (Fig. 11.c), whose slopes and derivatives cannot be accurately calculated. Fig. 17.b shows the gas holdup as measured for various flow regimes: the bubbly regime (experiments 7, 10 and 11), but also the Taylor flow regime with bubbles as small as the inter-electrodes spacing (experiment n°4), and Taylor flow with short slugs (channel 8 in experiment n°1). Here again, the limits of the developed processing methods associated with the resistive sensor are obvious.

Consequently, the reconstructed overall liquid flow rate, when applied to bubbly flows (Fig. 18), leads to larger uncertainty than for Taylor ones.

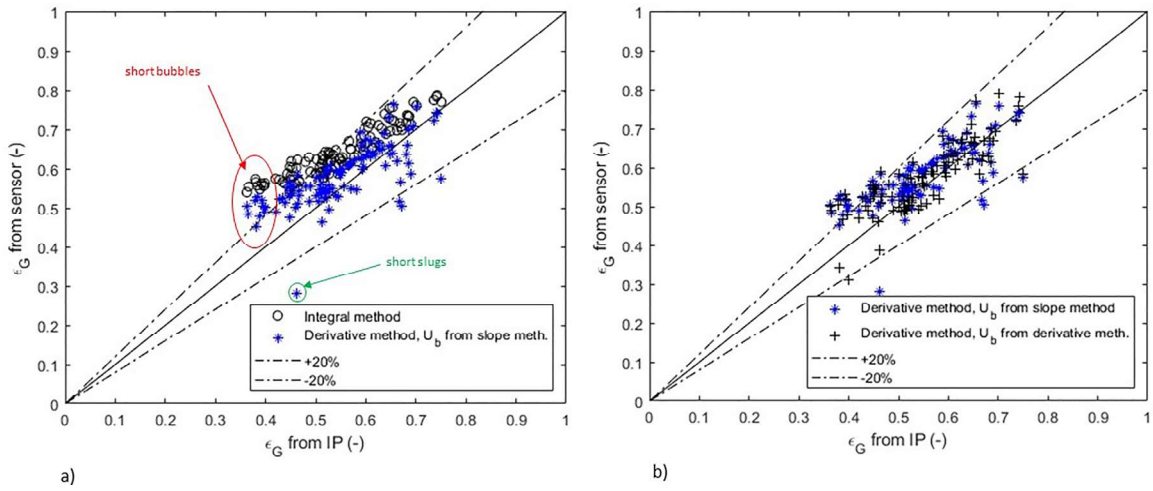


Fig. 14. Values of channel gas holdup as measured from the resistive sensor plotted versus the values of gas holdup measured from image processing (« IP »). a) Integral method and derivative method based on bubble velocity values issued from the slope method, b) Derivative method: impact of the bubble velocity values on the calculated holdup values.

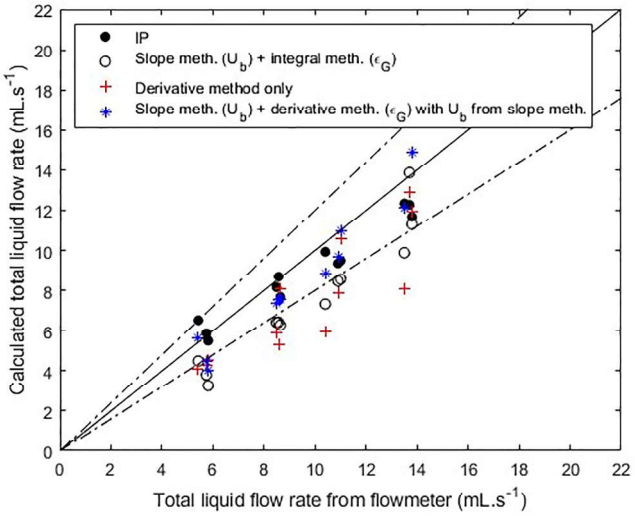


Fig. 15. Plot of the reconstructed overall liquid flow rate in the distributor (thanks to the slope and derivative methods) versus the displayed flow rate at flowmeter, for Taylor flows.

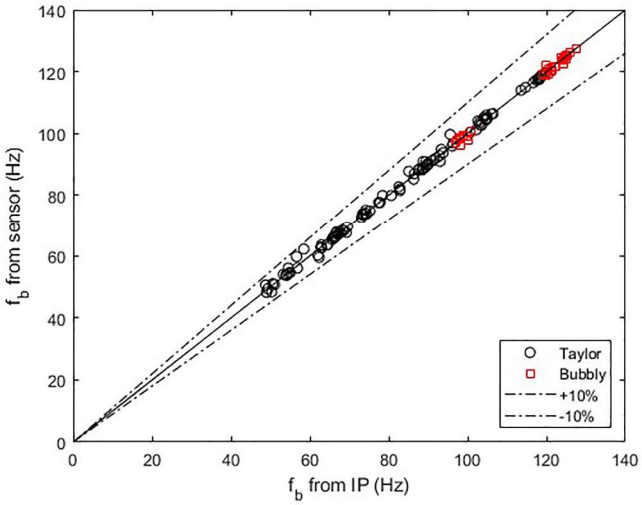


Fig. 16. Bubble frequency measurements for all observed flow regimes.

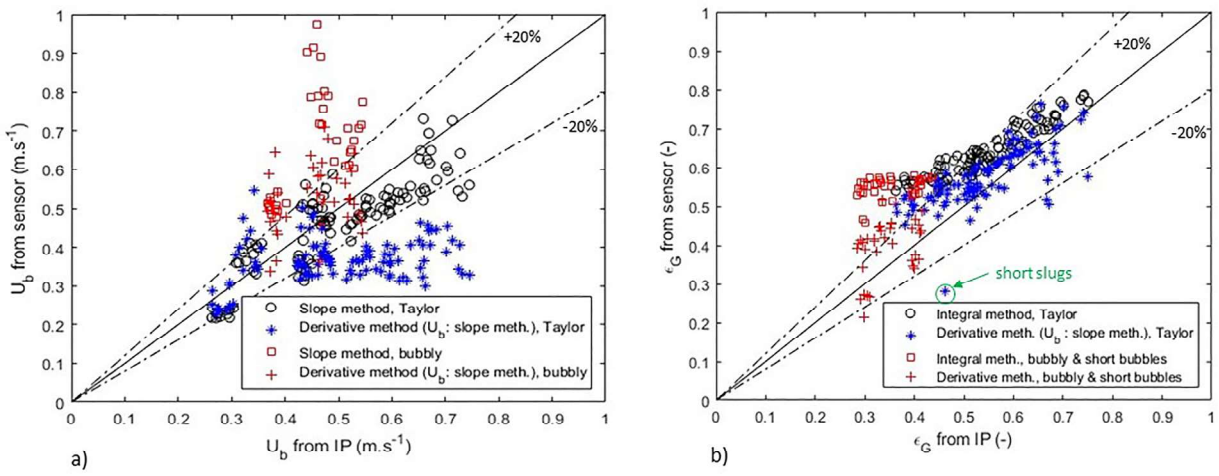


Fig. 17. Measurements for all observed flow regimes for: (a) Bubble velocity; (b) Gas holdup.

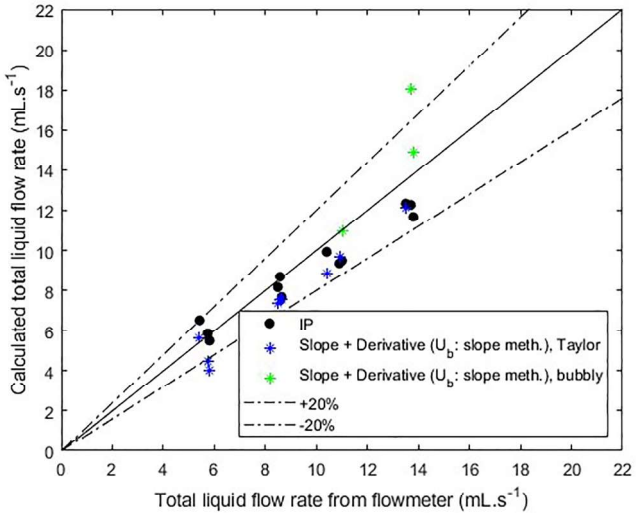


Fig. 18. Plot of the reconstructed overall liquid flow rate in the distributor (thanks to the slope and derivative methods) versus the displayed flow rate at flowmeter, for all types of flow regimes (bubbly flows: experiments 7, 10 and 11).

6. Conclusion

The signal from a resistive sensor consisting of a circuit printed board prototype has been processed to obtain the characteristics of gas-liquid flows in all the millimeter-sized channels of a monolith reactor simultaneously at high frequency (> 1,500 Hz). Comparison with image processing for a reduced number of channels from a transparent device has made it possible to evaluate several treatment methods using the characteristics of the signal and its derivative (min/max values, slope, Fast Fourier Transform). In Taylor flow regime conditions, bubble frequency, velocity and gas holdup can be evaluated with an accuracy of ±20% (or better) with respect to the reference method, when selecting appropriate methods: the "derivative method" for gas holdup, the "slope method" for bubble velocity, and FFT method for bubble frequency. These methods have been described above in details. Damped signal from bubbly flow renders all methods inaccurate except for bubble frequency, but allows easy detection of such flow regime. Flow regime recognition is therefore another expected outcome of the resistive sensor, which can be worked out with the help of statistical analysis or artificial intelligence. As such, the developed tool can be used to discriminate the performance of gas-liquid distributors for providing uniform flow in multi-channel structures.

CRediT authorship contribution statement

Murilo Ricardo Do Nascimento Arrais: Conceptualization, Data curation, Formal analysis, Investigation, Methodology, Software, Writing – original draft. **Hélène Chaumat:** Conceptualization, Data curation, Formal analysis, Investigation, Methodology, Supervision, Validation, Writing – original draft, Writing – review & editing. **Audrey Devatine:** Conceptualization, Data curation, Formal analysis, Investigation, Methodology, Supervision, Validation, Writing – review & editing. **Carine Julcour:** Conceptualization, Data curation, Formal analysis, Investigation, Methodology, Supervision, Validation, Writing – review & editing. **Hervé Ayroles:** Conceptualization, Data curation, Formal analysis, Investigation, Methodology. **Sébastien Cazin:** Conceptualization, Data curation, Formal analysis, Investigation, Methodology, Supervision, Validation, Writing – review & editing. **Anne-Marie Billet:** Conceptualization, Data curation, Formal analysis, Investigation, Methodology, Software, Supervision, Validation, Writing – original draft, Writing – review & editing.

Declaration of Competing Interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Data availability

Data will be made available on request.

Acknowledgments

The authors warmly thank the FERMaT research federation for the high-speed camera, the French Ministry of Education and Research for financial support, and their colleagues Emmanuel Cid, Alain Pontier for the help and advice, as well as Frederic Da Costa for the discussions and for the design and production of various objects by 3D-printing.

References

[1] S. Haase, T. Bauer, G. Hilpmann, M. Lange, M.M. Ayubi, R. Abiev, Simultaneous detection of hydrodynamics, mass transfer and reaction rates in a three-phase micro-reactor, Theor. Found. Chem. Eng. 54 (1) (2020) 48–63, https://doi.org/10.1134/S0040579520010091.

[2] S. Haase, D.Y. Murzin, T. Salmi, Review on hydrodynamics and mass transfer in minichannel wall reactors with gas-liquid Taylor flow, Chem. Eng. Res. Des. 113 (2016) 304–329, https://doi.org/10.1016/j.cherd.2016.06.017.
[3] M.T. Kreutzer, J.J.W. Bakker, F. Kapteijn, J.A. Moulijn, P.J.T. Verheijen, Scaling-up multiphase monolith reactors: linking residence time distribution and feed maldistribution, Ind. Eng. Chem. Res. 44 (14) (2005) 4898–4913, https://doi.org/10.1021/ie0492350.
[4] M. Schubert, Kost, R.S. Lange, T. Salmi, S. Haase, U. Hampel, Maldistribution susceptibility of monolith reactors: case study of glucose hydrogenation performance, AIChE J. 62 (12) (2016) 4346–4364, https://doi.org/10.1002/aic.15334.
[5] M. Behl, S. Roy, Experimental investigation of gas–liquid distribution in monolith reactors, Chem. Eng. Sci. 62 (2007) 7463–7470, https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.08.032.
[6] Y. Zhou, M.P. Dudukovic, M.H. Al-Dahhan, H. Liu, Multiphase hydrodynamics and distribution characteristics in a monolith bed measured by optical fiber probe, AIChE J. 60 (2) (2014) 740–748, https://doi.org/10.1002/aic.14269.
[7] S. Roy, T. Bauer, M. Al-Dahhan, P. Lehner, T. Turek, Monoliths as multiphase reactors: a review, AIChE J. 50 (11) (2004) 2918–2938, https://doi.org/10.1002/aic.10268.
[8] M.H. Al-Dahhan, A. Kemoun, A.R. Cartolano, S. Roy, R. Dobson, J. Williams, Measuring gas-liquid distribution in a pilot scale monolith reactor via an Industrial Tomography Scanner (ITS), Chem. Eng. J. 130 (2–3) (2007) 147–152, https://doi.org/10.1016/j.cej.2006.06.022.
[9] M. Hamidipour, F. Larachi, Dynamics of filtration in monolith reactors using electrical capacitance tomography, Chem. Eng. Sci. 65 (1) (2010) 504–510, https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.06.040.
[10] L.F. Gladden, L.D. Anadon, C.P. Dunckley, M.D. Mantle, A.J. Sederman, Insights into gas-liquid-solid reactors obtained by magnetic resonance imaging, Chem. Eng. Sci. 62 (24) (2007) 6969–6977, https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.08.084.
[11] A.J. Sederman, J.J. Heras, M.D. Mantle, L.F. Gladden, MRI strategies for characterising two-phase flow in parallel channel ceramic monoliths, Catal. Today 128 (1–2) (2007) 3–12, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2007.04.012.
[12] Q.Y. Fu, L.Y. Yang, Y.Y. Qu, Measurement of annular liquid film thickness in an open-end swirl injector, Aerosp. Sci. Technol. 15 (2) (2011) 117–124, https://doi.org/10.1016/j.ast.2010.06.006.
[13] J.P. Pérez, R. Carles, R. Fleckinger, Électromagnétisme - Fondements et Applications, 4th edition, Dunod, Malakoff, 2020.
[14] Billet, A.M., Da Costa, F., Coghe, I., Chaumat, H., Devatine, A., Julcour C., WO2021019176 - Dispositif de formation et de distribution d'un écoulement fluidique diphasique. PCT/FR2020/051378 (2021).
[15] C. Butler, B. Lalanne, K. Sandmann, E. Cid, A.M. Billet, Mass transfer in Taylor flow: transfer rate modelling from measurements at the slug and film scale, Int. J. Multiphase Flow 105 (2018) 185–201, https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2018.04.005.
[16] E. Bourdon, C. Julcour, A.M. Billet, D. Rouzineau, C. Volpi, R. Cadours, Experimental and numerical investigation of gas-side mass transfer in Taylor flow, Sep. Purif. Technol. 315 (2023), 123599, https://doi.org/10.1016/j.seppur.2023.123599.
[17] M.S Rocha, J.R. Simões-Moreira, Void fraction measurement and signal analysis from multiple-electrode impedance sensors, Heat Transf. Eng. 29 (11) (2008) 924–935, https://doi.org/10.1080/01457630802186015.
[18] E. Dos Reis, L. Goldstein Jr, Characterization of slug flows in horizontal piping by signal analysis from a capacitive probe, Flow Meas. Instrum. 21 (3) (2010) 347–355, https://doi.org/10.1080/01457630802186015.
[19] H. Liu, C.O Vandu, R. Krishna, Hydrodynamics of Taylor flow in vertical capillaries: flow regimes, bubble rise velocity, liquid slug length, and pressure drop, Ind. Eng. Chem. Res. 44 (2005) 4884–4897, https://doi.org/10.1021/ie049307n.
[20] M.J. Cunningham, G.L. Bibby, Electrical Measurement, in: Electrical Engineer's Reference Book, Newnes, Oxford, 2003 (Sixteenth Edition). Edited by Laughton, M. A., Warne, D.J., 11.1-11.43, 10.1016/B978-075064637-6/50011-3.
[21] P. Aussillous, D. Quéré, Quick deposition of a fluid on the wall of a tube, Phys. Fluids 12 (10) (2000) 2367–2371, https://doi.org/10.1063/1.1289396.
[22] H. Chaumat, A.M. Billet-Duquenne, F. Augier, C. Mathieu, H. Delmas, On the reliability of an optical fibre probe in bubble column under industrial relevant operating conditions, Exp. Therm Fluid Sci. 31 (6) (2007) 495–504, https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2006.04.018.

III.3 Conclusion

Il est donc désormais possible de mesurer, à l'aide du capteur résistif développé dans cette thèse, la fréquence de bulles, la vitesse de bulles et le taux de gaz dans les canaux d'un réacteur monolithe. De ces grandeurs pourront en être déduites d'autres, sur la base d'hypothèses sur la forme des bulles et/ou de corrélations de la littérature, comme la longueur de la cellule unitaire, les longueurs des bulles et des bouchons, l'épaisseur des films de lubrification. On pourra également en déduire les coefficients de transfert entre gaz et liquide, quand cela sera nécessaire. Cet outil est donc potentiellement très performant. A notre connaissance, il n'existe pas aujourd'hui un autre dispositif non intrusif, aussi simple et aussi dynamique, permettant de caractériser la distribution des fluides dans un réacteur structuré en fins canaux parallèles. Même le « wire mesh sensor » développé en Allemagne (Kipping et coll., 2016) est partiellement intrusif et n'offre pas une résolution spatiale suffisante pour atteindre la valeur du taux de gaz dans tous les canaux.

Cependant, notre capteur résistif est loin d'être parfait. Tout d'abord, il doit être adapté à chaque réacteur monolithe à investiguer, en termes de diamètre global, de nombres de canaux – donc de nombres de paires d'électrodes –, et de positionnement de ces paires d'électrodes. Ensuite, il ne fonctionne, dans sa version actuelle, que pour des phases liquides de conductivité significative devant celle de l'air – donc d'au moins 10^{-13} $S.m^{-1}$. Enfin, il mesure dans les divers canaux la fréquence de bulle avec une précision de ±10%, la vitesse de bulles et le taux de gaz avec une précision de ±20%, et ce seulement pour des régimes d'écoulement de type Taylor. Cependant, ces incertitudes sont aussi liées à celles de la technique de référence, l'ombroscopie, et au traitement d'images associé ; on peut trouver en Annexe A certains graphes de l'article mettant en évidence l'incertitude de l'ombroscopie et du traitement d'images, au moyen de barres d'erreur.

Dans l'avenir, il conviendra donc d'améliorer la précision des mesures, et d'apprendre à reconnaître le régime d'écoulement dans un canal sur la base des caractéristiques du signal temporel délivré par la paire d'électrodes correspondante. En ce sens, de premiers tests utilisant les outils d'intelligence artificielle sont encourageants. Un traitement de données spécifique pourra alors être développé pour les écoulements à très petites bulles (régime « bubbly »).

Par ailleurs, en vue de l'utilisation de cet outil dans l'industrie, une version du capteur utilisant une autre propriété des fluides que la résistivité devra être mise au jour. Au stade actuel de nos discussions avec les collègues de l'IMFT, un capteur capacitif pourrait être envisagé.

Chapitre IV. ETUDE DE LA MALDISTRIBUTION ET COMPARAISON DES DISTRIBUTEURS

Chapitre IV. Etude de la maldistribution et comparaison des distributeurs 89

IV.1 Critères de maldistribution pour les écoulements de Taylor 91

IV.2 Influence du matériau du distributeur sur les écoulements distribués dans 12 canaux 94

IV.2.1 Caractérisation des matériaux 94

IV.2.2 Conditions opératoires testées 98

IV.2.3 Structure des écoulements à l'aide des images 98

IV.2.4 Structure des écoulements à l'aide du capteur 100

IV.2.5 Critères de maldistribution 104

IV.3 Influence de la géométrie du distributeur sur les écoulements distribués dans 12 canaux 108

IV.3.1 Configurations et conditions opératoires testées 108

IV.3.2 Structure des écoulements à l'aide des images des écoulements 108

IV.3.3 Structure des écoulements à l'aide du capteur 109

IV.3.4 Résultats sur les critères de maldistribution 113

IV.4 Configuration à privilégier pour « DistriGazLi » en vue d'obtenir des écoulements de Taylor 115

IV.5 Impact de la perte de charge globale sur la qualité de distribution, pour le distributeur « DistriGazLi » 116

IV.5.1 Modification du pilote 116

IV.5.2 Influence de la longueur du réacteur sur la qualité de la distribution au sortir du distributeur 118

IV.5.3 Influence de la perte de charge totale dans le réacteur sur la qualité de la distribution au sortir du distributeur 121

IV.6 Evolution spatiale des écoulements issus du « DistriGazLi »..... 124

IV.6.1 Modification du pilote..... 124

IV.6.2 Résultats sur les critères de maldistribution..... 126

IV.7 Comparaison des distributeurs à 84 canaux..... 129

IV.7.1 Configurations et conditions opératoires testées..... 129

IV.7.2 Résultats sur les critères de maldistribution..... 130

IV.7.2.1 Analyse des distributions obtenues avec les deux distributeurs..... 131

IV.7.2.2 Introduction d'un nouveau critère de maldistribution..... 138

IV.8 Conclusion..... 139

Nous nous intéressons maintenant à l'analyse de la distribution gaz-liquide issue des distributeurs utilisés dans nos travaux. Nous cherchons, d'une part, à caractériser la distribution des phases issue du distributeur innovant « DistriGazLi », en vue d'améliorer si possible sa géométrie, et d'autre part, à comparer sa performance à celle d'un distributeur conventionnel du type « plateau perforé », appelé également dans ce travail « distributeur à pomme de douche ». Nous allons utiliser ici les mesures provenant du capteur résistif, ce dernier présentant l'avantage d'être une technique non intrusive et de pouvoir caractériser tous les canaux du réacteur simultanément. Nous rappelons que ce capteur a été validé précédemment pour les écoulements en régime de Taylor, mais que, dans le cas des écoulements à petites bulles, seule la mesure de fréquence de bulles reste fiable.

Dans le but d'améliorer le distributeur « DistriGazLi », nous étudierons d'abord l'influence de 2 paramètres sur la distribution et la structure des écoulements diphasiques : l'état de surface des distributeurs - qui dépend du type de résine, de la méthode d'impression additive utilisée et du post-traitement - et le diamètre d'orifices latéraux d'injection du gaz (injections en « T » : voir schéma zoomé de la Figure II-3). Afin d'identifier la structure des écoulements et de mieux qualifier l'impact des paramètres d'étude, nous utiliserons encore une fois le pilote à 12 canaux (voir Figure II-2), donnant accès, en plus des données du capteur, aux images des écoulements. Une fois que la configuration optimale aura été choisie, une étude sur l'évolution des écoulements diphasiques le long du réacteur sera aussi menée afin de savoir si notre distributeur et/ou les blocs monolithes induisent des instabilités.

Dans un second temps, nous utiliserons le pilote complet, comportant un distributeur et un réacteur monolithe à 84 canaux, pour comparer la performance des 2 types de distributeurs sur la répartition des phases. Dans ce cas, seules les données du capteur résistif seront accessibles.

Afin de pouvoir quantifier et comparer le niveau de maldistribution des distributeurs gaz-liquide testés, des critères seront discutés et choisis, basés sur ce qui est souvent utilisé dans la littérature, et sur la nature des informations issues de notre capteur.

IV.1 Critères de maldistribution pour les écoulements de Taylor

Comme nous l'avons vu au chapitre I, plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour évaluer l'homogénéité de la répartition des phases dans un réacteur, en utilisant des caractéristiques d'écoulement telles que la fréquence des bulles, le taux de gaz ou de liquide, le débit de gaz ou de liquide, les vitesses superficielles, etc. La plus fréquente est basée sur le calcul de l'écart-type.

Pour cette étude, la maldistribution est quantifiée à l'aide des informations issues du capteur, à savoir : la fréquence de passage des bulles f_b, la vitesse des bulles U_b et le taux de gaz ε_G. L'écart-type normé de ces paramètres pour un nombre de canaux N_C est utilisé en première intention comme critère quantitatif de la répartition de phases (équation IV.1). Le critère de fréquence est l'indicateur principal, vu la robustesse de cette mesure pour les

écoulements étudiés ici (écoulements à bulles et écoulements de Taylor). Ceux concernant la vitesse de bulles et le taux de gaz (conduisant à une incertitude de ±20% pour les écoulements de Taylor) sont indiqués en complément. Le débit liquide n'est pas utilisé comme critère puisqu'il est calculé à partir de la vitesse diphasique et du taux de liquide, ce qui le rend redondant.

$$\sigma_X = 100\% \sqrt{\frac{1}{N_C - 1} \sum_{i=1}^{N_C} \frac{(X_i - \bar{X})^2}{\bar{X}}} \Bigg|_{X = f_b,\ U_b,\ \varepsilon_G} \qquad (IV.1)$$

Si ces critères permettent de qualifier la répartition des fluides dans les canaux en écoulement de Taylor, ils peuvent être insuffisants dans le cas le plus général, puisque certains canaux peuvent ne contenir qu'une seule phase (écoulements monophasiques), un écoulement stratifié ou un écoulement à petites bulles. Ces écoulements n'étant pas souhaités dans nos dispositifs, la distinction des écoulements comme critère qualitatif est ainsi proposée, en estimant la proportion de canaux non exploitables par rapport à tous les canaux du réacteur (N_c = 12 ou 84, selon le pilote utilisé), comme suit :

$$\tau_{distrib} = \frac{N_{C,\,inexploitables}}{N_C} \qquad (IV.2)$$

Afin de distinguer le type d'écoulement, deux paramètres sont observés à partir du signal brut filtré (avant tout autre traitement) de tension du capteur : l'amplitude du signal (moyennes de valeurs maximales – moyennes de valeurs minimales) et la tension maximale moyenne. Pour un écoulement de Taylor, la réponse dynamique du capteur montre un signal sinusoïdal dont l'amplitude est toujours supérieure à 0,1 V (Figure IV-1 a).

Pour un écoulement monophasique (gaz ou liquide) ou à petites bulles (bulles de diamètre plus faible que celui du canal), le signal correspondant est presque plat (Figure IV-1 b et c) ; il présente toujours une forme sinusoïdale, avec une amplitude réduite à moins de 0,05 V. En complément, la valeur moyenne de tension permet de distinguer les 3 cas : monophasique liquide, monophasique gaz et écoulement diphasique « déstructuré » (i.e. stratifié ou à petites bulles).

Pour un écoulement monophasique liquide, la tension maximale est supérieure à 0,8 V, et sa valeur moyenne est élevée également. Dans ce cas, la valeur de la tension maximale correspond d'ailleurs au niveau de signal associé à la conductivité de l'eau, et aux valeurs du gain k et de la résistance shunt R_{shunt} du canal considéré. Pour un écoulement monophasique gazeux (conductivité de l'air de l'ordre de 10^{-15} S/m), le signal a une valeur moyenne de tension d'environ 0,02 V. Cette valeur n'est pas nulle car les canaux et les électrodes du capteur sont mouillés. Enfin, pour un écoulement à petites bulles ou stratifié, le signal a un niveau moyen qui peut prendre des valeurs variées, entre les 2 précédentes.

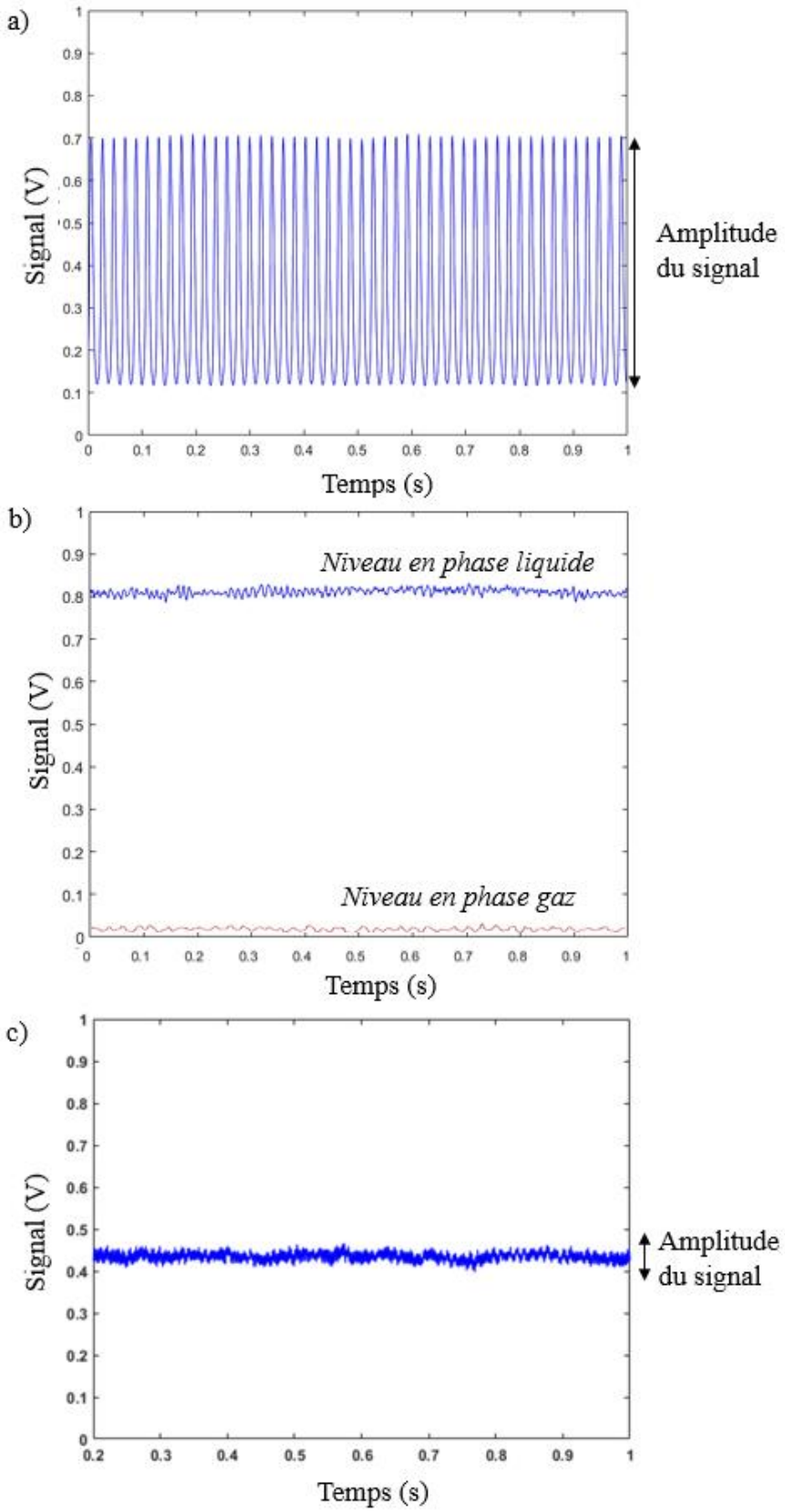


Figure IV-1. Signal de tension filtré délivré par le capteur résistif pour : a) un écoulement diphasique de Taylor ; b) un écoulement monophasique liquide ou gazeux ; c) un écoulement diphasique à bulles, non exploitable quantitativement dû à une faible amplitude du signal.

Ainsi, le type d'écoulement est identifié grâce aux amplitudes et aux moyennes des tensions issues du capteur, suivant les valeurs données dans le Tableau IV-1 ci-dessous :

Tableau IV-1. Conditions pour classer les écoulements en monophasique ou diphasique.

Information	**Type d'écoulement**			
	Monophasique gaz	**Monophasique liquide**	**Diphasique « déstructuré »**	**Diphasique de Taylor**
Amplitude du signal (V)	<= 0,05	<= 0,05	<= 0,05	> 0,05
Tension moyenne (V)	< 0,05	>= 0,8	0,05 < s_{moy} < 0,8	

Avec les critères quantitatifs ($\sigma_X \; et \; \tau_{distrib}$), la maldistribution des phases dans les canaux pourra être évaluée en tenant compte du type d'écoulement des phases, comme on le verra plus loin.

IV.2 Influence du matériau du distributeur sur les écoulements distribués dans 12 canaux

IV.2.1 Caractérisation des matériaux

Afin de caractériser et améliorer la distribution des phases créées par le distributeur innovant « DistriGazLi » comportant des injections en « T », l'état de surface des distributeurs sera étudié ici. Il dépend du type de résine, du type d'impression utilisé et du post-traitement. Vu son système simple de barrette amovible, le distributeur avec 12 canaux est utilisé, permettant l'utilisation de barrettes fabriquées à partir de différentes résines : Invicta, Vitra et PA12 (voir Figure IV-2). Les deux premières ont été obtenues par photopolymérisation avec l'imprimante du laboratoire (DWS Systems, DWS XFAB 3500 PD) et la dernière a été imprimée par la technique de fusion ou frittage de poudre, par une entreprise extérieure (Sculpteo, HP® Multijet Fusion).

Ces matériaux ont été préalablement caractérisés par des mesures de mouillabilité et de rugosité afin de mieux comprendre l'effet de chaque matériau dans les injecteurs en « T ». Pour cela, pour les distributeurs réalisés en interne (Invicta et Vitra), des plaques planes ont été réalisées dans le même matériau et pour des conditions d'impression identiques à celles des distributeurs (sens d'impression vertical, même post-traitement).



Figure IV-2. Barrettes amovibles utilisées pour cette étude, réalisées dans trois matériaux différents : Invicta (noire), Vitra (transparente) et PA12 (grise).

La mouillabilité, représentant la capacité d'un produit à mouiller une surface, est déterminée grâce à la mesure d'angles de contact. De façon générale, l'angle de contact est l'angle de raccordement qui se forme entre une surface solide et un liquide lorsqu'une goutte de liquide est mise en contact avec cette surface. Cette analyse peut être réalisée de manière statique ou de manière dynamique, c'est-à-dire lorsque la goutte est immobile (matériau placé horizontalement) ou en mouvement (matériau incliné), respectivement.

Dans le cas de l'angle de contact statique, la zone mouillée est délimitée par la ligne de contact entre les trois phases en présence (air, liquide, solide) appelé ligne triple. Au niveau de cette ligne triple s'appliquent trois forces, les tensions de surface du liquide avec le gaz, du solide avec le gaz et du solide avec le liquide. La Figure IV-3 montre un exemple de mesure de l'angle de contact sur une goutte.

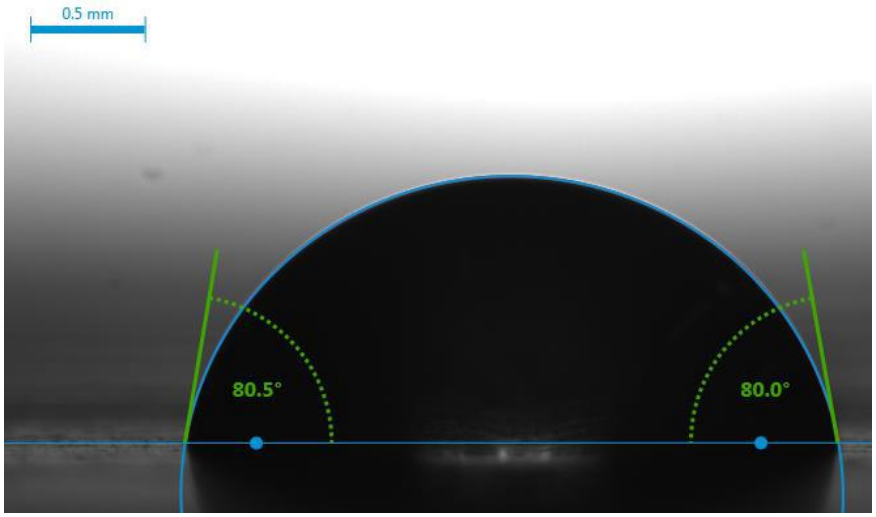


Figure IV-3. Exemple de mesure sur une goutte. En bleu apparait la ligne de base et le contour de la goutte approximé par une ellipse. En vert apparaît le résultat de la mesure. Le contour détecté est normalement affiché en rouge, mais il est ici entièrement recouvert par le contour obtenu par approximation.

En déposant un liquide sur une surface solide, le tout dans une phase gazeuse, ici l'air ambiant, on peut observer deux cas de figure :

- Le liquide se répartit de manière à former un film sur l'intégralité du solide, on parle de mouillage parfait, l'angle de contact θ devient nul.

- Le liquide forme une goutte sur la surface du solide, et cette goutte va former un angle θ avec le solide, qui, sur une surface de matériau régulière, sera égal de tous côtés. Si l'angle de contact avec l'eau est inférieur à 90°, on parle de surface hydrophile ; si l'angle de contact avec l'eau est supérieur à 90°, on parle de surface hydrophobe. Certaines surfaces ayant des rugosités particulières peuvent présenter des angles de contact avec l'eau supérieurs à 150°, on parle de surfaces superhydrophobes.

Les mesures d'angles de contact statiques et dynamiques ont été réalisées au laboratoire, à l'aide d'un tensiomètre Krüss DSA100 (Figure IV-4).



Figure IV-4. Tensiomètre (Krüss DSA100) utilisé pour les mesures d'angles de contact.

Néanmoins seuls les angles statiques seront présentés ici (voir Tableau IV-2), les mesures d'angles dynamiques, réalisées sur un trop faible nombre de gouttes, étant trop imprécises pour être interprétées. Pour la résine PA12, pour laquelle nous ne disposons pas de plaques planes obtenues dans les mêmes conditions, la mesure a été réalisée sur une partie plane du distributeur, afin d'avoir un ordre de grandeur, mais cette valeur est moins représentative de l'état de surface dans les canaux que celles obtenues pour les autres matériaux.

La rugosité quant à elle concerne les micro-irrégularités ou défauts géométriques sur la surface du matériau. Cinq types d'appareils peuvent être utilisés pour la mesurer : un profilomètre de surface de type stylet, un microscope interférométrique en lumière blanche, un microscope électronique à balayage, un microscope à force atomique et un microscope à effet tunnel. Les deux premiers sont généralement utilisés pour des mesures d'aspérités, ce qui est notre cas, tandis que les autres peuvent être utilisés pour évaluer des défauts de surface jusqu'au nanomètre (Bahrami et coll., 2006).

Les mesures de rugosité ont ici été réalisées au laboratoire CIRIMAT de Toulouse avec un microscope interférométrique et confocal de marque Sensofar (modèle S-Neox) pour les résines Invicta et Vitra. Cette mesure étant impossible sur le distributeur en PA12, car nous ne disposons pas d'un échantillon plan, la valeur indiquée dans le Tableau IV-2 est issue de la bibliographie.

La rugosité peut être considérée comme l'écart de hauteur de la surface par rapport à la topographie nominale. La référence ou ligne médiane est établie en trouvant la ligne droite, ou l'arc de cercle dans le cas de composants ronds, à partir de laquelle l'écart carré moyen est minimum. La rugosité moyenne arithmétique, notée R_a, est la moyenne arithmétique des valeurs absolues des écarts de hauteur de profil mesurés par rapport au niveau de référence. La valeur R_a indique la rugosité moyenne de la surface sur la zone de mesure. La rugosité quadratique R_q pour sa part est la racine carrée de la moyenne des écarts au carré (Bahrami et coll., 2006). Dans le cas d'une rugosité isotrope, ayant des aspérités isotropes aléatoirement réparties sur la surface, on aurait :

$$R_q \approx \sqrt{\frac{\pi}{2}}.R_a \qquad (IV.3)$$

Le critère R_{sk} caractérise quant à lui l'asymétrie du profil ; il renseigne sur la morphologie de l'état de surface. Une valeur positive de R_{sk} correspond à une surface présentant des pics et protubérances dépassant au-dessus de la surface, et donc une distribution décalée vers les points les plus bas, alors qu'une valeur négative correspond à une surface en plateau avec des rayures ou des pores profonds, et une distribution décalée vers les points les plus hauts.

Les résultats de nos mesures sont montrés dans le Tableau IV-2 ci-dessous :

*Tableau IV-2. Mesures de mouillabilité par l'eau et de rugosité des matériaux testés (*Rosso et coll., 2020).*

Mesure	**PA12**	**Invicta**	**Vitra**
Angle de contact statique (°)	73,9	65,1 ± 4,7	73,7 ± 2,0
Rugosité arithmétique R_a (µm)	~11*	0,97± 0,32	0,99 ± 0,18
Rugosité quadratique R_q (µm)		1,22 ± 0,40	1,24 ± 0,20
R_{sk}		0,30 ± 0,22	0,13 ± 0,09

Nous constatons que les trois matériaux conduisent à des angles de contact moyens compris entre 65 et 74° avec l'eau, ce qui leur confère un caractère hydrophile (angle inférieur à 90°). Pour la rugosité, les mesures montrent que les résines Invicta et Vitra, réalisées sur la même machine dans des conditions similaires, ont des rugosités similaires, de l'ordre de 1 µm, et isotropes (R_q/R_a entre 1,25 et 1,26). La valeur relevée dans la littérature pour la PA12 fabriquée par le frittage de poudre est de l'ordre de 11 µm d'après Rosso et coll. (2020), soit environ 10 fois plus importante que celle des deux autres résines. Même si cette valeur n'a pu être confirmée, on peut sentir, rien qu'au toucher, que cette barrette est en effet plus rugueuse que les deux autres.

IV.2.2 Conditions opératoires testées

Pour cette campagne, 4 expériences ont été réalisées pour chacun des matériaux constituant les barrettes de distribution des fluides (Tableau IV-3). Chaque expérience a été répétées trois fois. Les débits d'alimentation de liquide et de gaz à l'entrée du distributeur ont été modifiés de façon à avoir des écoulements bien distincts. Dans les canaux, les vitesses superficielles moyennes de l'air ($u_{G,moy}$) et de l'eau ($u_{L,moy}$) varient de 0,39 à 0,66 m/s et de 0,18 à 0,31 m/s, respectivement, à température ambiante et sous pression atmosphérique. La fraction de gaz moyenne $\beta_{G,moy}$ est déduite des vitesses superficielles et varie de 56% à 79%. Le dispositif expérimental est monté avec 2 blocs monolithes (Figure II-2).

Tableau IV-3. Expériences réalisées pour l'étude de l'effet du matériau.

N° expérience	**1**	**2**	**3**	**4**
$u_{L,moy}$ (m/s)	0,31	0,18	0,24	0,18
$u_{G,moy}$ (m/s)	0,39	0,39	0,66	0,66
$u_{UP,moy}$ (m/s)	0,70	0,57	0,90	0,84
$\beta_{G,moy}$ (-)	56%	68%	73%	79%

IV.2.3 Structure des écoulements à l'aide des images

Dans un premier temps, nous analysons la distribution gaz-liquide dans les 12 canaux d'un point de vue qualitatif, en nous appuyant sur les images enregistrées. La cartographie obtenue pour les 3 matériaux est illustrée dans la Figure IV-5. Tout d'abord nous observons que le type de résine utilisé a un effet sur la formation des bulles dans l'orifice latéral (injection en « T ») de la barrette de distribution, puisque le motif défini par la longueur de bulle et la longueur de bouchon (appelé ci-après : « pattern ») dans l'écoulement est différent pour chaque résine sous la même condition opératoire de vitesses de gaz et de liquide :

- Les expériences réalisées avec la résine Invicta donnent lieu à des tailles de bulles variables selon la condition opératoire choisie, mais celles des bouchons restent similaires pour toutes les conditions étudiées. Dans ces conditions, des écoulements en régime à bulles et en régime similaire à celui de Taylor (avec de petits bouchons) sont observés. En outre, la répartition des phases sur les 12 canaux est bonne pour chaque condition, ce qui peut être expliqué par le fait que ce matériau est le plus mouillant (angle de contact statique plus petit que celui des résines Vitra et PA12).
- Concernant la résine Vitra, nous observons que la plupart des écoulements dans les canaux sont en régime à bulles, indépendamment des conditions opératoires, ce qui ne permet pas la mesure des caractéristiques hydrodynamiques par notre capteur pour cette étude. Contrairement à la résine Invicta, la distribution des phases n'est pas uniforme ici, avec une variation des tailles des bulles et des bouchons, notamment entre les canaux du centre et ceux des extrémités.

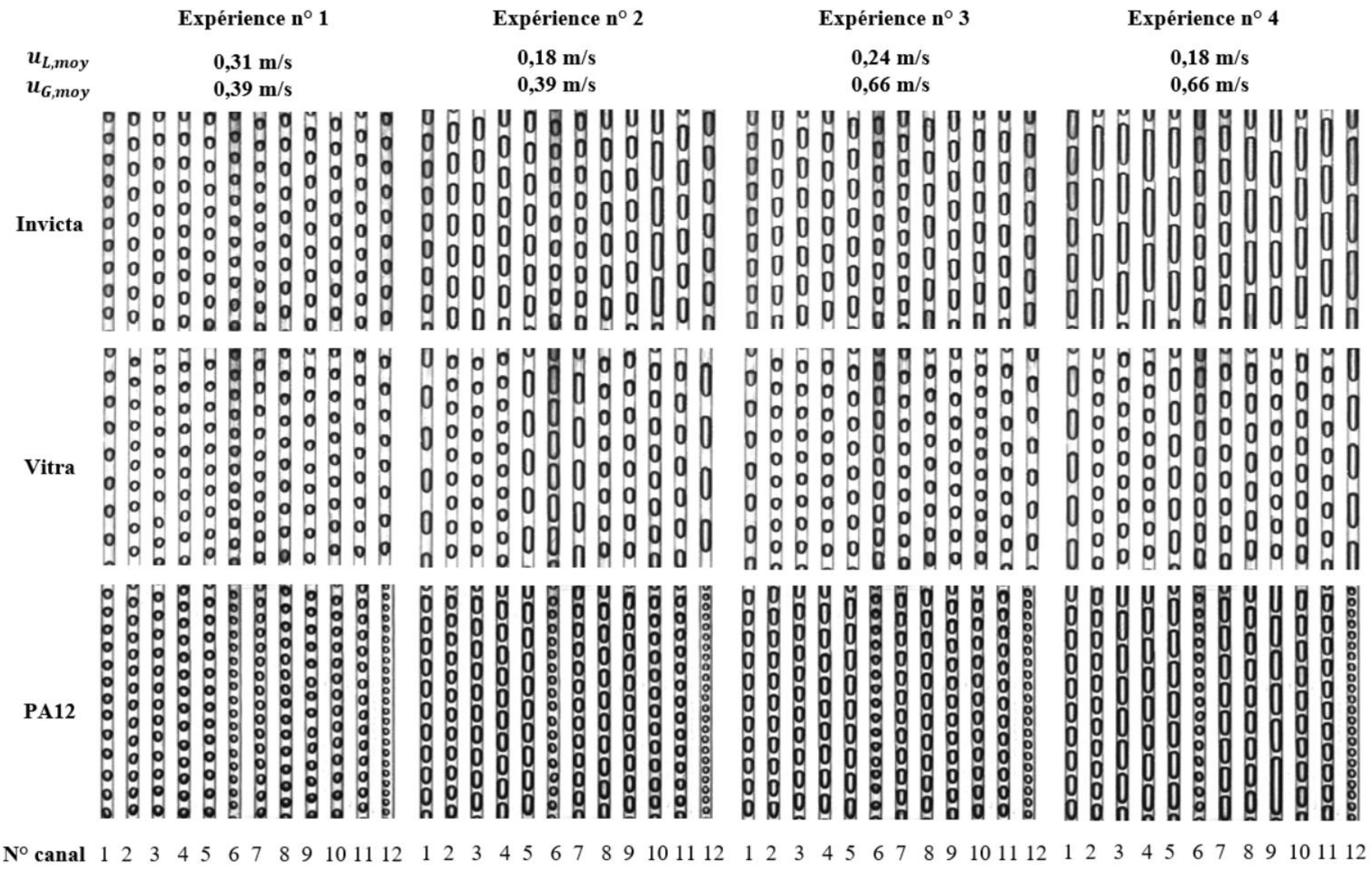


Figure IV-5. Cartographie des écoulements obtenus pour les 3 matériaux utilisés (Invicta, Vitra et PA12) en fonction des 4 conditions opératoires testées.

- Les expériences réalisées avec la résine PA12 présentent des bulles de petite longueur, très resserrées. L'effet de la variation des vitesses superficielles de gaz et de liquide n'est pas clairement observé, avec un « pattern » similaire par canal. Comme pour la résine Vitra, le type d'écoulement obtenu ne correspond pas au régime de Taylor.

Les différents « patterns » observés ici peuvent être expliqués par le type de fabrication utilisé pour les distributeurs. Les distributeurs en Invicta et Vitra ont été fabriqués avec la même imprimante et soumis au même post-traitement d'impression, ce qui leur confère une rugosité similaire et pourrait expliquer la similarité des caractéristiques d'écoulement (bulles assez espacées). La différence des rugosités entre ces matériaux et la résine PA12 pourrait induire des cisaillements spécifiques lors de l'entrée latérale du gaz dans les canaux de la barrette, et expliquer ainsi la présence de petits bouchons liquide et de plus petites bulles très resserrées.

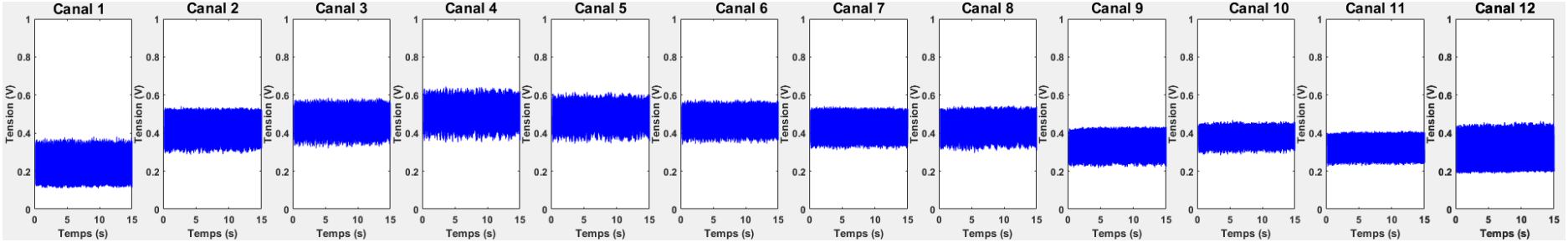
Les résines PA12 et Vitra présentent le même ordre de grandeur de mouillabilité (angles de contact statique d'environ 74°), alors que l'Invicta présente une mouillabilité un peu plus élevée (angle de contact statique d'environ 65°). Ce paramètre pourrait expliquer la présence de bulles lubrifiées plus longues, créées au point d'injection, avec l'Invicta.

IV.2.4 Structure des écoulements à l'aide du capteur

La structure des écoulements peut aussi être observée à l'aide de l'évolution dans le temps des signaux de tension délivrés par le capteur résistif, comme montré dans la Figure IV-6. Nous observons que les écoulements en régime de Taylor, dont les bulles et les bouchons font à peu près la même taille, sont caractérisés par des amplitudes de signal de 0,1-0,25 V, comme c'est le cas pour tous les canaux de l'Invicta (voir Figure IV-6 a). Lorsque les bulles et les bouchons ont des longueurs plus importantes, comme, par exemple, les canaux 1 et 12 de la Vitra (voir Figure IV-6 b), l'amplitude du signal peut atteindre 0,2 V ou plus. En revanche, les écoulements à bulles ou ceux présentant des bulles très resserrées ont une amplitude entre 0,05 et 0,1 V, comme illustré par les écoulements issus de la PA12 (voir Figure IV-6 c).

A l'aide des signaux du capteur, nous pouvons donc connaître qualitativement le niveau de répartition des phases d'une expérience donnée. De plus, ils permettent de calculer les paramètres hydrodynamiques associés, puis les critères de maldistribution, qui seront analysés dans le paragraphe suivant.

a) Résine Invicta



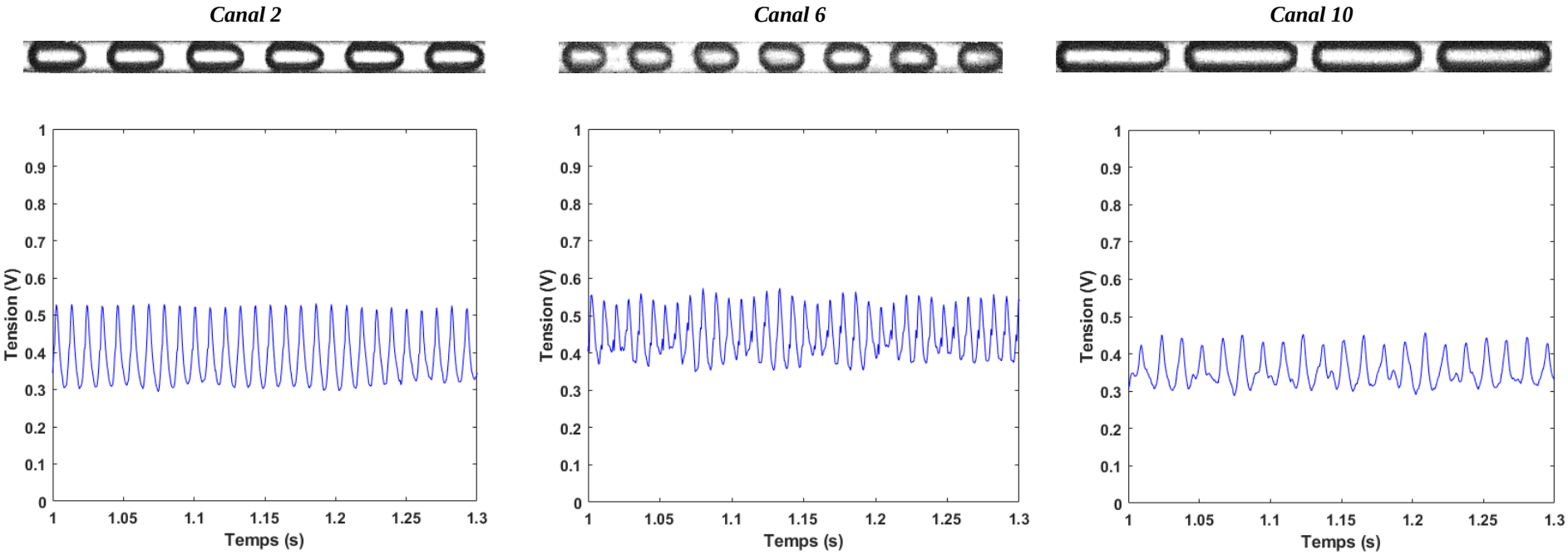


Figure IV-6.Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°2.

b) Résine Vitra

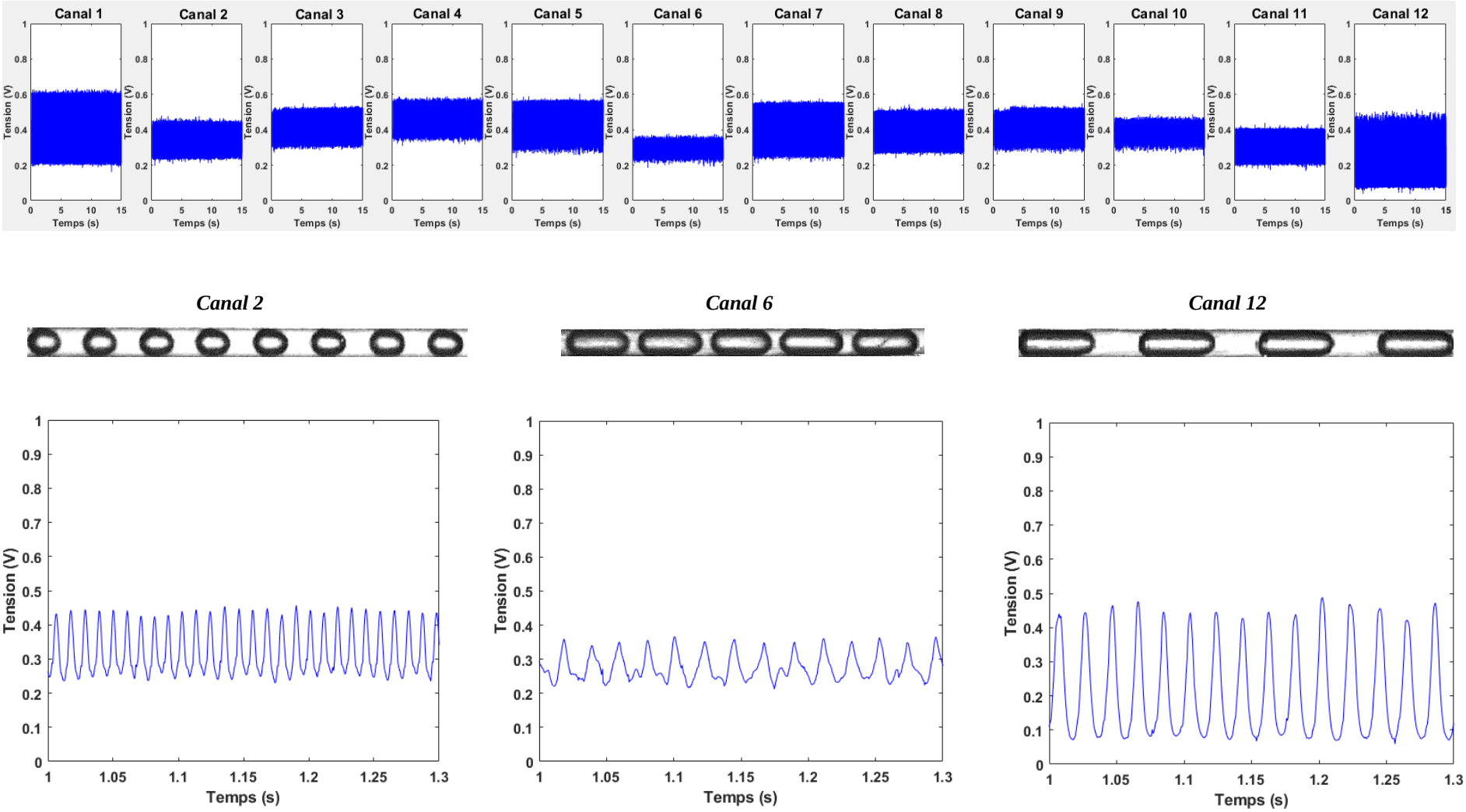
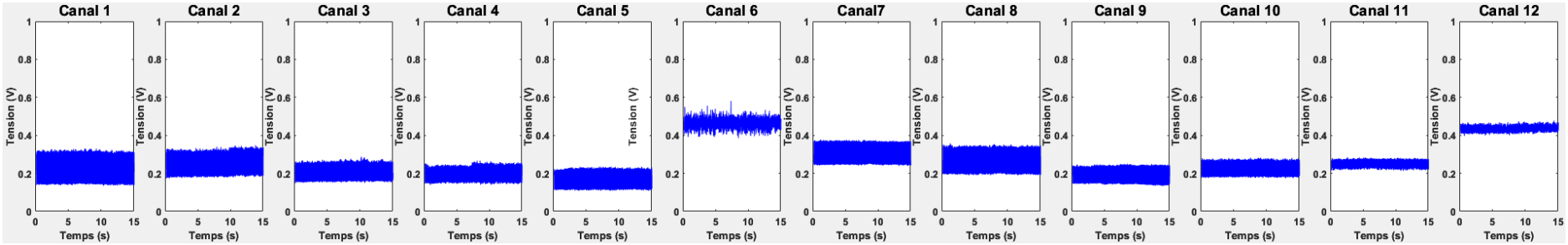


Figure IV-6. Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°2.

c) Résine PA12



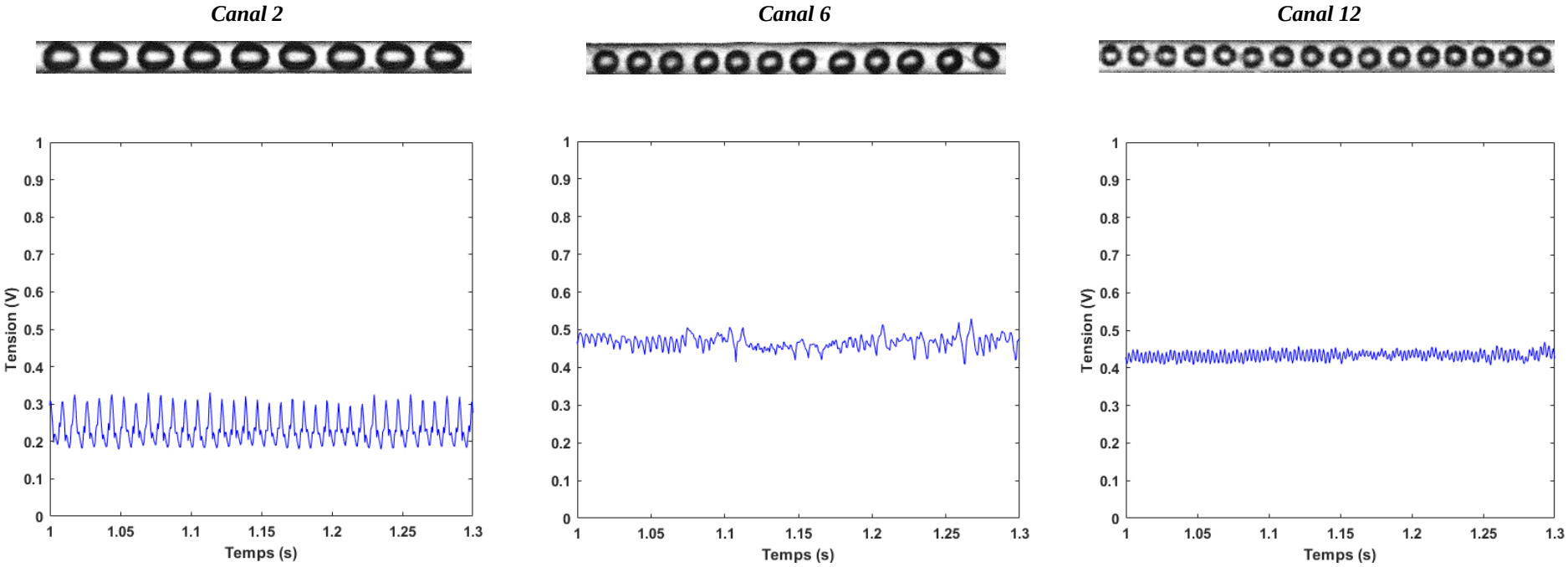


Figure IV-6. Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°2.

IV.2.5 Critères de maldistribution

Nous nous intéressons dans la suite à comparer d'un point de vue quantitatif la répartition des phases dans les canaux pour les 3 matériaux, en comparant les critères de maldistribution. Tout d'abord, nous analysons les ordres de grandeur des mesures hydrodynamiques pour les différentes résines.

a) Caractéristiques hydrodynamiques des écoulements

Pour l'exemple présenté en Figure IV-7 (expérience n°2), nous trouvons une gamme de fréquence de passage de bulles entre 62 et 398 Hz dans chaque canal pour la résine PA12, avec certaines valeurs très éloignées de la valeur moyenne (canaux 6 et 12). Au contraire, les résines Invicta et Vitra donnent des fréquences plus proches entre elles, plus homogènes et plus faibles que celles de la PA12, de 77-160 Hz et de 50-143 Hz respectivement. Comme vu précédemment, cette fréquence de bulles plus élevée pour la PA12 peut être imputée à une plus forte rugosité du matériau.

Nous présentons également en Figure IV-7 les distributions (entre les différents canaux) de vitesse de bulles et de taux de gaz pour l'expérience 2. A noter que chaque valeur est la moyenne des mesures de trois expériences identiques, ce qui est à l'origine des barres d'erreur sur la figure. On constate une légère différence entre les gammes de taux de gaz, de 0,32-0,46 pour la PA12 par rapport à l'Invicta et la Vitra, de 0,42-0,56 et 0,46-0,54 respectivement. Cependant, pour la résine PA12, 2 canaux (11 et 12) présentent de très petites bulles. De ce fait, les signaux de tension correspondants ont une amplitude de tension moyenne inférieure à 0,05 V (voir Figure IV-1), et ces signaux sont très bruités. Ils ne permettent donc pas l'évaluation du taux de gaz, ni de la vitesse de bulle, par la méthode de traitement présentée au chapitre 3 et les valeurs calculées sont donc erronées. Pour ce type d'écoulement, on peut néanmoins s'attendre à des valeurs élevées de taux de vide sur les canaux 11 et 12, ce qui permettrait de retrouver un taux de vide moyen similaire à celui des autres matériaux dans les mêmes conditions de débits.

La gamme de vitesse de bulles est similaire pour les résines Invicta et Vitra, de 0,40-0,60 m/s et 0,34-0,57 m/s, respectivement, contre 0,49-1,0 m/s pour la PA12, la valeur la plus élevée n'étant toutefois obtenue que dans un des canaux. Par ailleurs, la vitesse de bulle n'a pas pu être mesurée pour les canaux 11 et 12 de la résine PA12, du fait d'un signal non exploitable comme dit précédemment, et sa valeur a été mise arbitrairement à 0.

Les tendances globales de ces résultats semblent cohérentes si l'on raisonne sur le débit de gaz (qui est identique pour les 3 barrettes), en rappelant que :

$$Q_G = f_b \cdot V_b = \varepsilon_G \cdot U_b \cdot S_{canal} \qquad (IV.4)$$

où V_b est le volume de bulles.

Ainsi, les fréquences de passage de bulles plus élevées (pour la résine PA12) impliquent des bulles plus courtes, donc (à mêmes longueurs de bouchons) des taux de gaz plus faibles, et enfin, sur la base de la relation ci-dessus, des vitesses de bulle plus élevées.

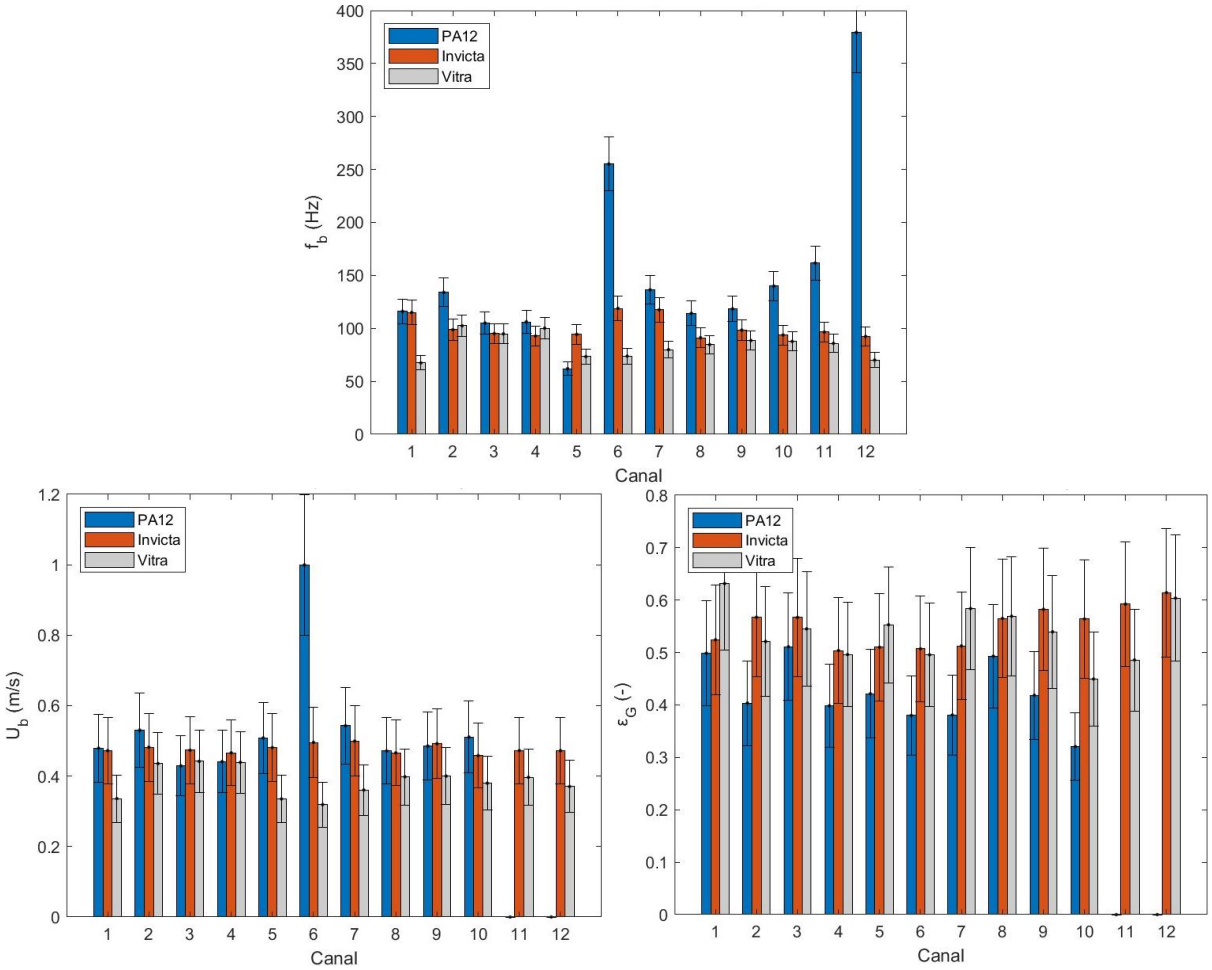


Figure IV-7. Distribution entre canaux de la fréquence de passage de bulles, de la vitesse de bulles et de taux de gaz pour les résines PA12, Invicta et Vitra dans les conditions de l'expérience n° 2. Les barres d'erreur correspondent à la précision de mesure selon le capteur résistif : ±10% pour f_b et ±20% pour U_b et ε_G.

Les données pour les autres conditions opératoires sont en Annexes B.

b) Critères de maldistribution

Les distributions sont maintenant analysées à l'aide des critères de maldistribution définis précédemment, c'est-à-dire des écarts-types normés des différentes grandeurs hydrodynamiques.

Ainsi, la Figure IV-8 illustre l'écart-type normé de fréquence des bulles sur 12 canaux en fonction de la valeur moyenne de fréquence. Nous constatons que la résine Invicta présente les écarts-types les plus faibles –9-10% – pour des fréquences moyennes comprises entre 93 et 137 Hz. Pour une gamme similaire de fréquences moyennes, de 73 à 125 Hz, la résine Vitra donne des distributions des phases moins uniformes, avec des écarts-types normés compris entre 13 et 28%. Enfin, pour la résine PA12, en tenant compte des canaux en régime à bulles resserrées, nous trouvons un degré de maldistribution plus élevé avec des écart-types de 39-56% pour des fréquences moyennes entre 137 et 198 Hz. Pour une fréquence d'environ 140 Hz, la maldistribution du dernier matériau est augmentée d'un facteur 5 par rapport à celle de la résine Invicta.

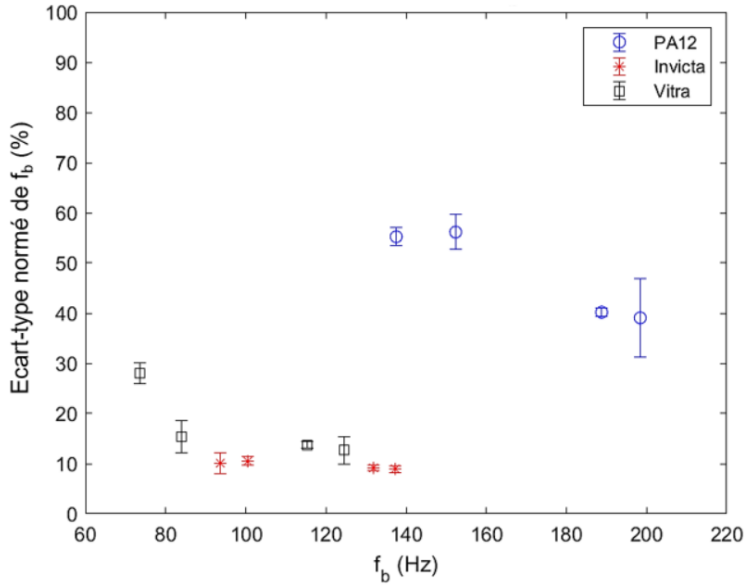


Figure IV-8. Ecart-type normé de la fréquence de passage des bulles f_b calculé pour 12 canaux, pour les 4 expériences réalisées. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience.

Le même comportement est observé pour les critères de maldistribution de vitesse des bulles et de taux de gaz dans la Figure IV-9. La résine Invicta présente des écarts-types normés de taux de gaz ε_G de 6-8%, contre 5-20% pour la résine Vitra et 13-35% pour la résine PA12. Concernant la vitesse U_b, la maldistribution issue de la résine Invicta est de 3-17%, contre 12-19% et 13-39% pour la résine Vitra et la résine PA12, respectivement. Il est à noter que le nombre de canaux présentant des signaux exploitables (en termes de fréquence, vitesse ou taux de gaz) n'est pas le même selon les matériaux. Les écarts-types présentés n'étant pas basés sur le même nombre d'informations, cela explique probablement pourquoi les écarts-types normés obtenus avec la résine PA12 se démarquent moins de ceux des autres résines, au contraire de ce qui a été vu pour la fréquence de bulle.

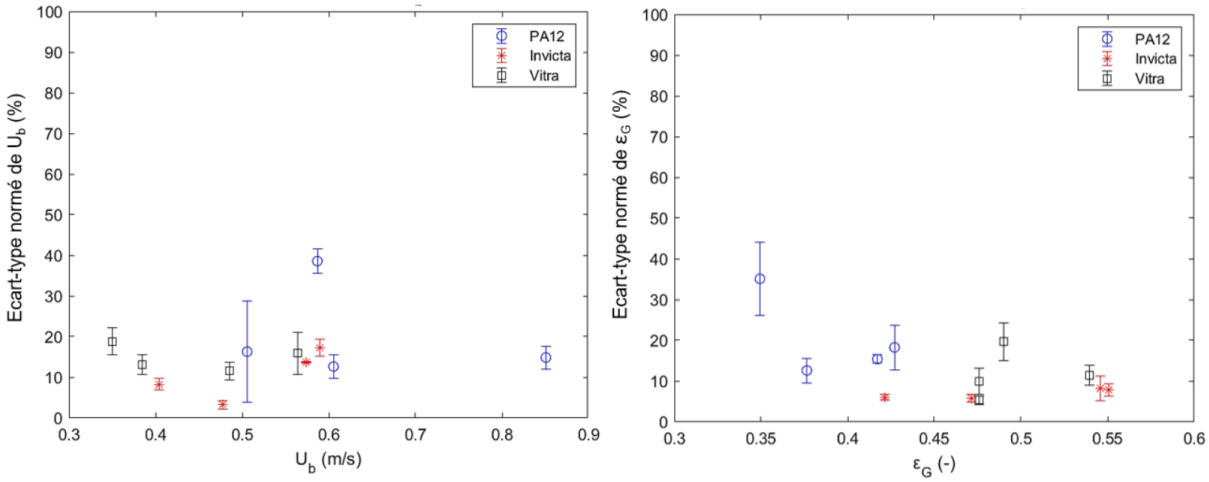


Figure IV-9. Ecarts-types normés de vitesse des bulles U_b et taux de gaz ε_G calculés pour 12 canaux, pour les 4 expériences réalisées. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience.

Nous observons de plus que les barres d'erreur sont plus grandes pour les résines PA12 et Vitra, indiquant que les expériences sont moins répétables avec ces matériaux, ou du moins qu'ils produisent des qualités variables de la distribution lorsque l'expérience est répétée. Ceci pourrait s'expliquer par une instabilité temporelle de l'écoulement, due à la coalescence occasionnelle des petites bulles rapprochées du régime à bulles, pour ces deux premiers matériaux, alors que la barrette en résine Invicta, plus mouillante, donne naissance à des écoulements typiques du régime de Taylor, plus stables dans le temps. Nous reviendrons sur ce point au paragraphe IV.6.

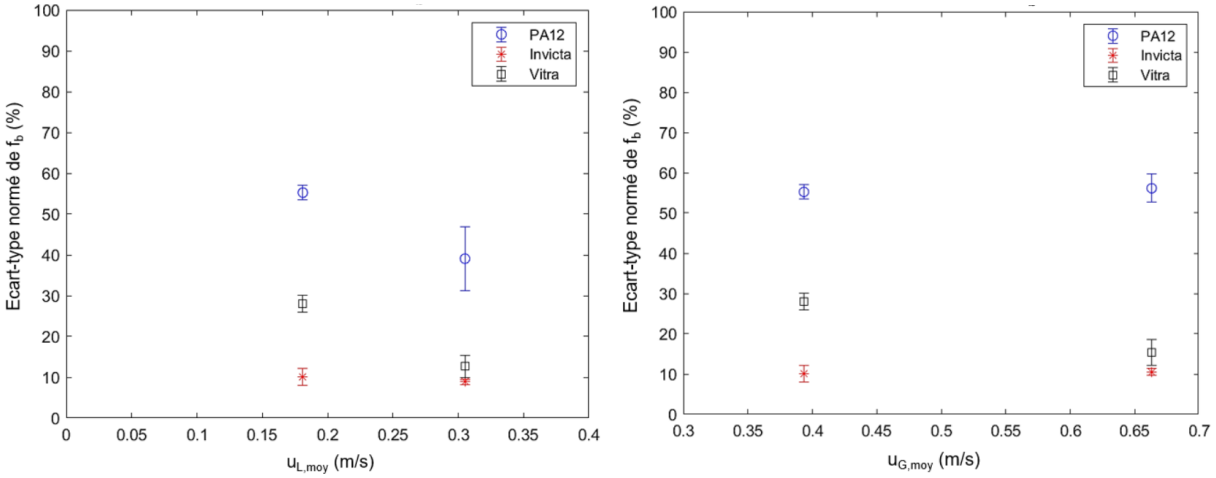


Figure IV-10. Effet des vitesses superficielles de liquide et gaz sur l'écart-type normé de fréquence des bulles : expériences 1 et 2 avec $u_{G,moy}$ = 0,39 m/s (à gauche) ; expériences 2 et 4 avec $u_{L,moy}$ = 0,18 m/s (à droite). Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience.

La Figure IV-10 montre l'effet des vitesses superficielles liquide et gazeuse sur la maldistribution des phases. Ici l'écart-type normé de fréquence de passage des bulles est tracé en fonction des vitesses superficielles des fluides. Pour $u_{G,moy}$ constante et égale à 0,39 m/s, nous constatons que la maldistribution est atténuée par l'augmentation de $u_{L,moy}$, (de 0,18 à 0,31 m/s ici), comme rapporté par Devatine et coll. (2017). Nous avons ainsi une diminution absolue de l'écart-type de 16% et 15%, respectivement pour les distributeurs en Vitra et PA12, alors qu'il est presque invariant pour la résine Invicta (diminution d'environ 1%), sa valeur restant plus faible que celle des deux autres.

La maldistribution semble moins affectée par l'augmentation de la vitesse de gaz $u_{G,moy}$: celle-ci augmente de 0,39 à 0,66 m/s, avec des écarts-types quasi-invariants pour la résine Invicta (autour de 12%) et pour la résine PA12 (autour de 55%). La résine Vitra présente cependant une réduction de l'écart-type normé de 13% (en absolu) pour cette augmentation de $u_{G,moy}$. Si ce résultat, obtenu pour deux valeurs seulement de $u_{G,moy}$, est significatif, il pourrait s'expliquer par le fait d'avoir moins de canaux en régime à bulles à forte vitesse $u_{G,moy}$ (expérience 4) qu'à faible vitesse (expérience 2). Ceci n'est pas observé pour la résine PA12, car elle présente le même nombre de canaux en régime à bulles pour les deux vitesses (voir Figure IV-5). On peut ainsi conclure que la distribution est peu affectée par la vitesse gazeuse dans la gamme étudiée, tant qu'elle ne modifie pas les régimes d'écoulement.

En tenant compte des résultats présentés, nous concluons alors que le matériau du distributeur conduisant aux critères de maldistribution les plus petits est la résine Invicta, avec

des écarts-types inférieurs à 10% pour la fréquence de bulles et taux de gaz et inférieurs à 20% pour la vitesse de bulles, en prenant en compte tous les canaux dans le calcul, ceux-ci étant tous en écoulement de Taylor.

IV.3 Influence de la géométrie du distributeur sur les écoulements distribués dans 12 canaux

IV.3.1 Configurations et conditions opératoires testées

Après avoir trouvé le matériau optimal dans l'étude précédente, la résine Invicta (noire), nous cherchons maintenant à évaluer, pour le distributeur innovant, l'effet du diamètre d'orifices latéraux d'injection du gaz dans les canaux verticaux de la barrette (injection en « T » : voir schéma zoomé de la Figure II-2) sur la distribution des phases dans les 12 canaux. A cet effet, 3 distributeurs en résine Invicta sont testés, possédant respectivement des diamètres d'orifice latéral de 0,001 m, 0,0015 m et 0,002 m. Le dispositif expérimental est monté avec 2 blocs monolithes (voir Figure II-2).

Le Tableau IV-4 récapitule les 3 expériences réalisées pour cette étude, avec des vitesses superficielles moyennes de l'air ($u_{G,moy}$) et de l'eau ($u_{L,moy}$) variant de 0,39 à 0,66 m/s et de 0,18 à 0,31 m/s, respectivement, à température ambiante et sous pression atmosphérique. Ici aussi, chaque expérience a été répétée trois fois.

Tableau IV-4.Expériences réalisées pour l'étude de l'effet du diamètre d'orifices latéraux d'injection de gaz.

N° expérience	**1**	**2**	**3**
$u_{L,moy}$ (m/s)	0,31	0,18	0,24
$u_{G,moy}$ (m/s)	0,39	0,39	0,66
$u_{UP,moy}$ (m/s)	0,70	0,57	0,90
$\beta_{G,moy}$ (-)	56%	68%	73%

IV.3.2 Structure des écoulements à l'aide des images des écoulements

Comme précédemment, nous analysons d'abord la structure des écoulements gaz-liquide et leur distribution dans les 12 canaux, pour les 3 diamètres d'orifice testés, à l'aide des images. La cartographie obtenue est présentée dans la Figure IV-11. Comme attendu, nous observons globalement l'augmentation de la longueur de la cellule unitaire, et donc de celles de la bulle et du bouchon liquide, avec l'agrandissement du diamètre d'orifices latéraux.

Comme discuté dans le paragraphe précédent, le distributeur de plus petit diamètre d'orifice (0,001 m) donne une bonne répartition des phases, et avec une longueur de cellule unitaire peu variable, se rapprochant du régime Taylor. Le deuxième distributeur quant à lui permet d'avoir des écoulements de Taylor, présentant une augmentation des longueurs de bulle et bouchon liquide grâce au diamètre d'orifice de 0,0015 m. Cette configuration donne aussi une bonne distribution des phases, avec quelques canaux préférentiels comme, par exemple, les canaux 1 et 5 montrant des bulles un peu plus grosses. Enfin, le distributeur de plus grand diamètre d'orifice (0,002 m) présente une mauvaise distribution, donnant des bulles et des

bouchons de tailles très variables selon le canal, et même au sein d'un même canal, comme pour l'ensemble des canaux de l'expérience n° 1, le canal 11 de l'expérience n° 2, et les canaux 1, 4, 7 et 12 de l'expérience n° 3.

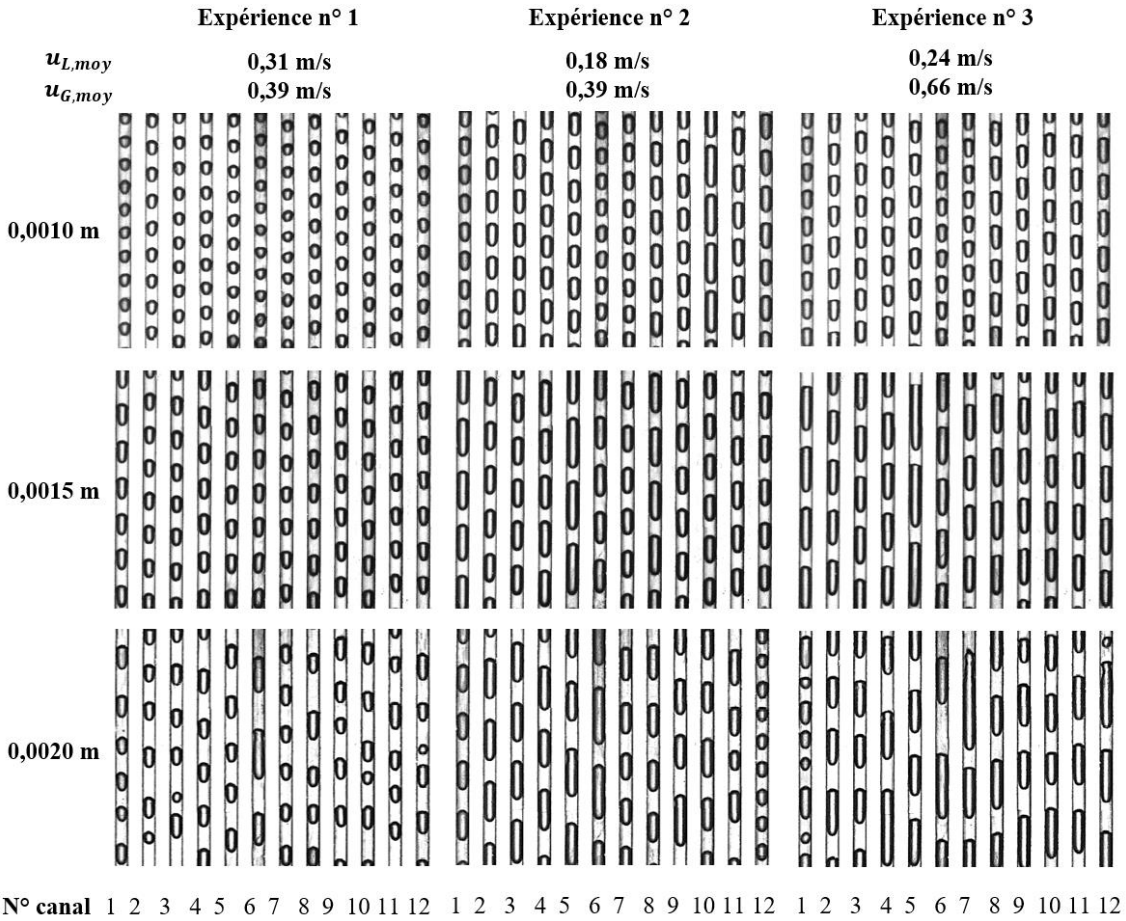


Figure IV-11. Cartographie des écoulements obtenus pour les 3 diamètres d'orifices latéraux utilisés (0,001 m, 0,0015 m, 0,002 m) en fonction des 3 conditions opératoires testées.

IV.3.3 Structure des écoulements à l'aide du capteur

La variabilité des écoulements dans un canal au cours du temps peut être vérifiée grâce aux signaux de tension dans la Figure. La barrette avec les orifices larges de 0,002 m crée des instabilités dans les canaux, car l'orifice découpe profondément la paroi du canal (de diamètre 0,002 m également), jusqu'à son plan vertical médian. Les variations de longueur de bulles le long de l'écoulement, observées dans l'expérience n° 3 à l'aide des images, sont aussi signalées par la variation de l'amplitude du signal, créant des valeurs de tension extrêmes par moments, donnant au signal un aspect « échevelé » autour de sa valeur moyenne (voir Figure c). Les distributeurs de diamètres d'orifice plus petits, de 0,001 et 0,0015 m, donnent une meilleure distribution des phases, traduite par l'amplitude des signaux : une amplitude d'environ 0,1 V, correspondant aux longueurs de cellules unitaires plus petites (voir Figure a), est observée pour le cas de l'orifice de 0,001 m, tandis que l'amplitude du signal double dans le cas de l'orifice de 0,0015 m car les bulles sont plus longues, espacées par des bouchons liquides plus grands que ceux issus du plus petit orifice (Figure b).

a) d = 0,001 m

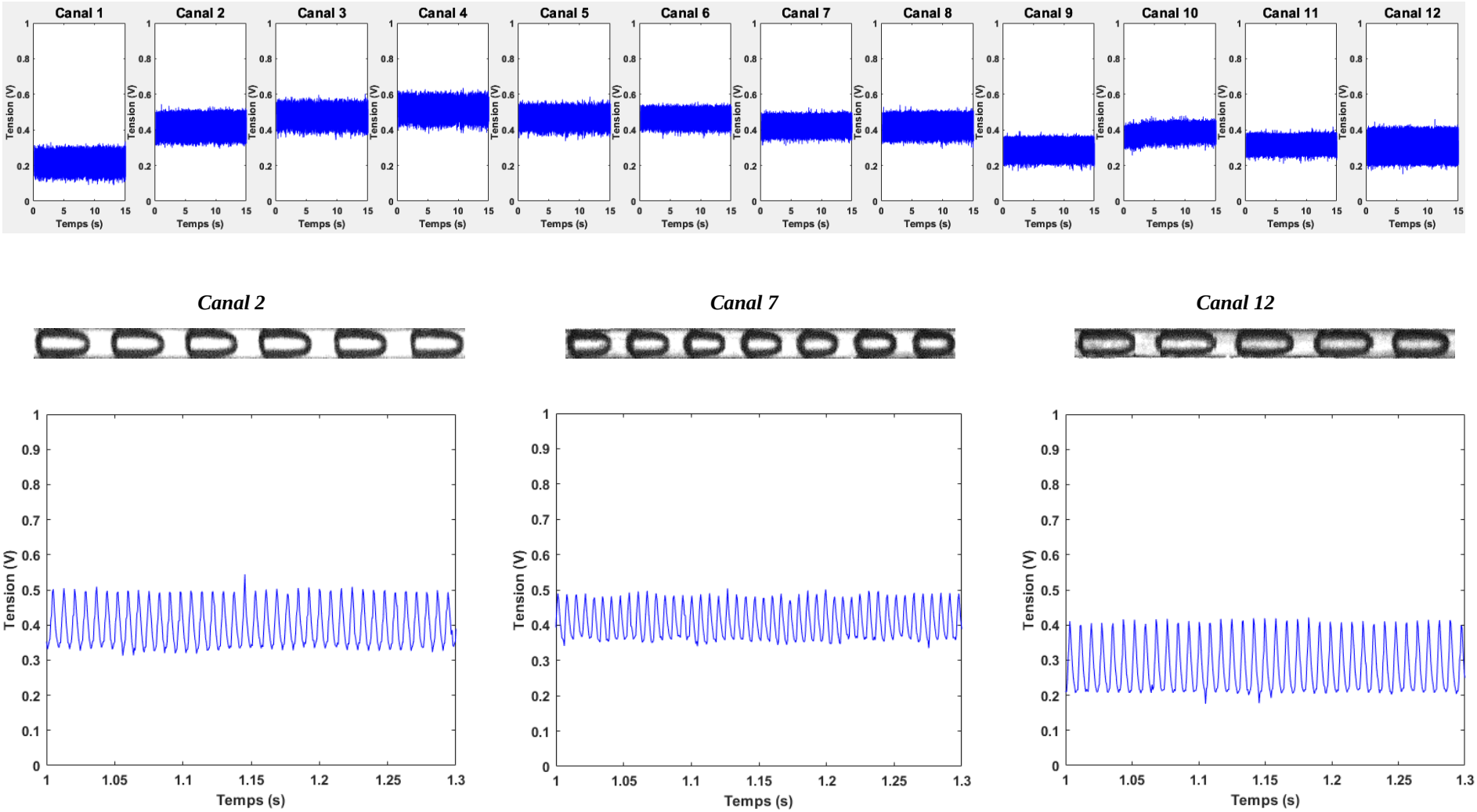
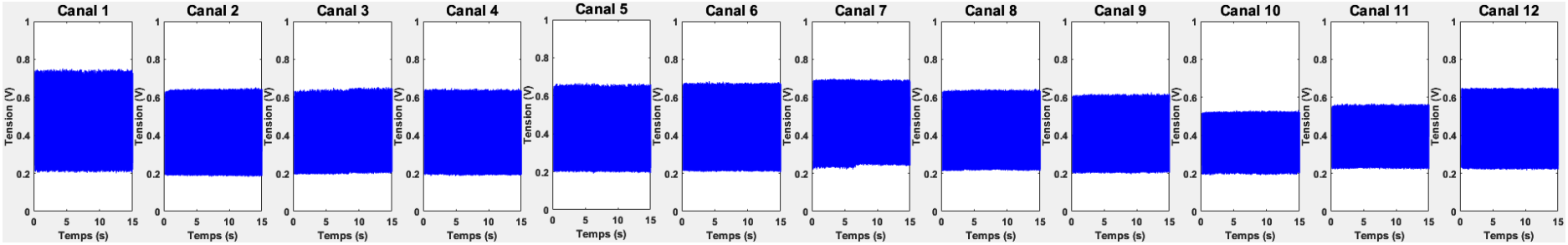


Figure IV-12. Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°3, obtenus avec 3 diamètres différents d'orifices latéraux d'injection du gaz.

b) d = 0,0015 m



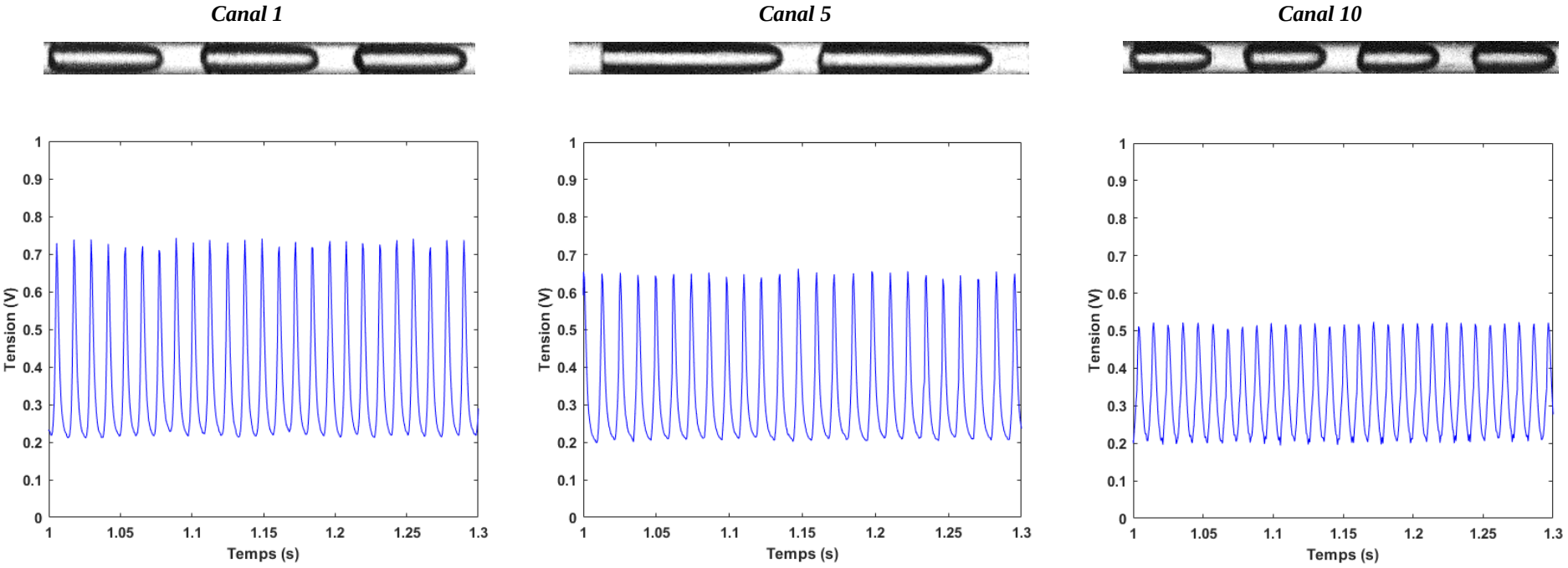


Figure IV-12. Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°3, obtenus avec 3 diamètres différents d'orifices latéraux d'injection du gaz.

c) d = 0,002 m

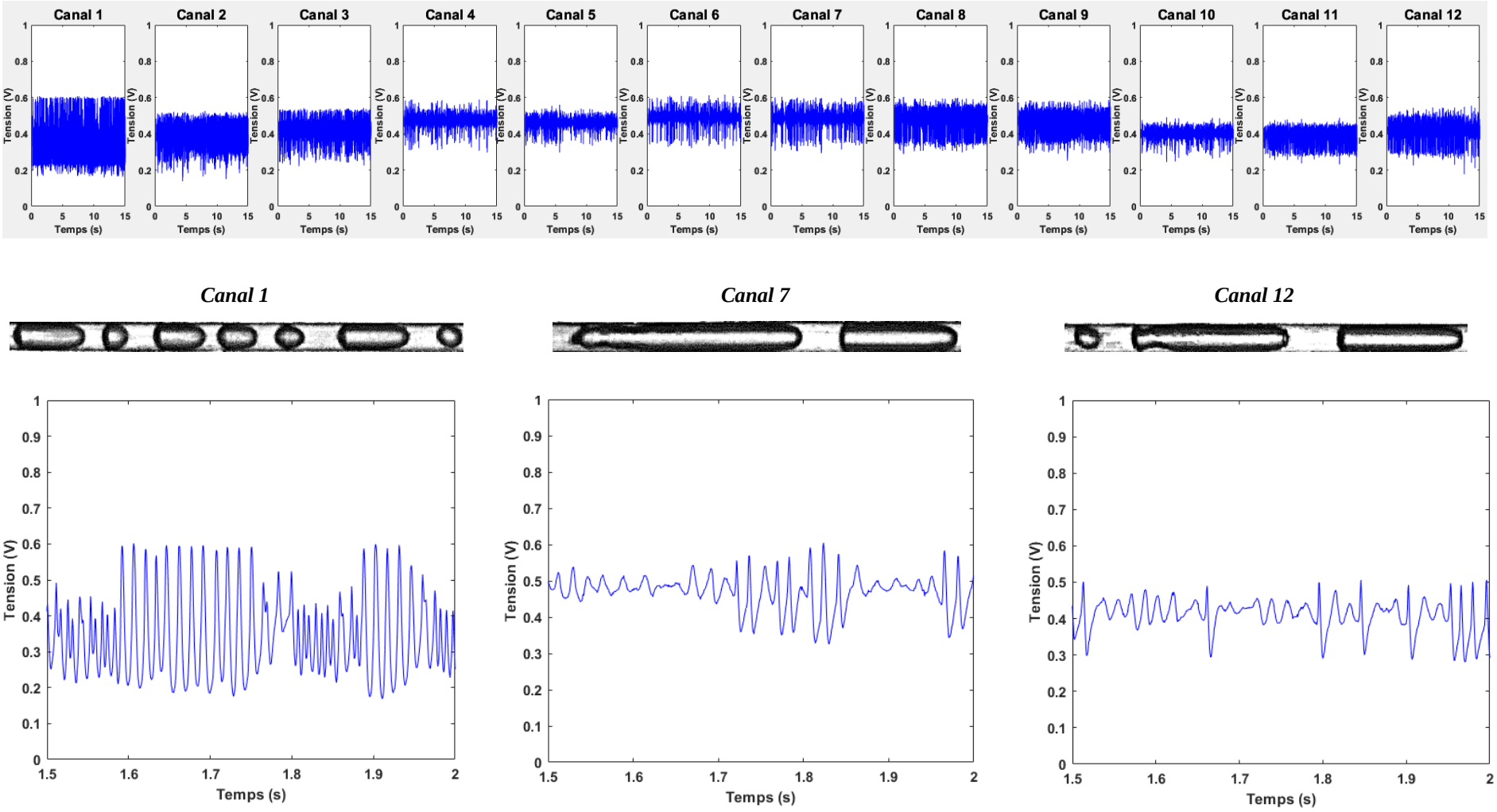


Figure IV-12. Signaux temporels de tension électrique délivrés par le capteur résistif pour l'expérience n°3, obtenus avec 3 diamètres différents d'orifices latéraux d'injection du gaz.

IV.3.4 Résultats sur les critères de maldistribution

Les 3 caractéristiques hydrodynamiques obtenues avec le capteur pour les différents diamètres d'orifice sont analysées ici pour illustrer la distribution des phases dans les 12 canaux, puis les critères de maldistribution définis en section IV.1 sont calculés.

a) Caractéristiques hydrodynamiques des écoulements

Comme attendu et observé dans la cartographie, la fréquence de passage de bulles augmente avec la réduction du diamètre d'orifices latéraux. Pour l'ensemble des trois conditions testées, nous trouvons, pour le plus petit diamètre (0,001 m), une gamme de fréquence de passage de bulles de 77-160 Hz ; pour celui de 0,0015 m, les fréquences sont de 50-106 Hz, et de 39-109 Hz pour 0,002 m, ce qui représente une réduction de la valeur moyenne des fréquences de 29% et de 46%, respectivement, par rapport au premier cas. Ce comportement est observé dans la Figure IV-13, donnant un exemple (expérience 3) de distributions de la fréquence de bullage, vitesse de bulle et taux de gaz. Les gammes de fréquence de passage de bulle, pour cette expérience, sont comprises dans les gammes indiquées ci-dessus.

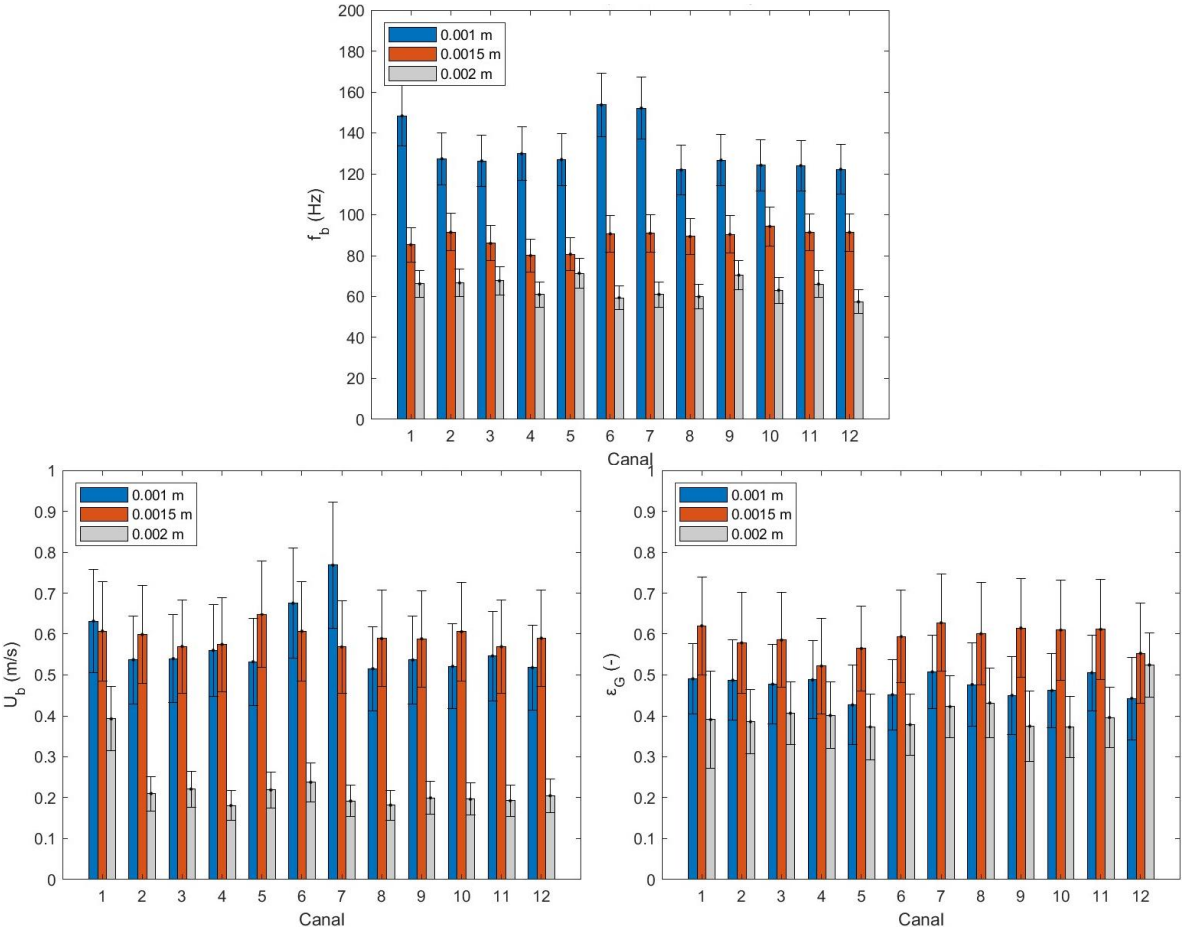


Figure IV-13. Distribution entre canaux de la fréquence de passage de bulles, de la vitesse de bulles et de taux de gaz pour des diamètres d'orifice de 0,001m, 0,0015 m et 0,002 m dans les conditions de l'expérience n° 3. Les barres d'erreur correspondent à la précision des mesures issues du capteur résistif – 10% pour f_b et 20% pour U_b et ε_G.

La gamme de vitesse de bulles est similaire pour les 2 premiers diamètres d'orifice (0,34-0,82 m/s et 0,34-0,71 m/s), et elle est diminuée de moitié en moyenne pour le plus grand diamètre d'orifice, avec des valeurs comprises entre 0,05 et 0,48 m/s. Enfin, le taux de gaz semble varier dans une plage plus importante en augmentant le diamètre d'orifice : 0,39-0,60 pour un diamètre de 0,001 m, 0,45-0,73 pour 0,0015 m et 0,12-0,61 pour 0,002 m, et ce pour l'ensemble des trois conditions testées. Toutefois, en regardant de plus près les résultats obtenus avec l'orifice de 0,002 m, cela est dû au seul canal n°1 qui donne lieu à un taux de gaz étonnamment élevé. En écartant le canal 1, les taux de gaz dans les canaux sont compris entre 0,35 et 0,40, donc plus faibles que pour les orifices étroits. Ainsi avec l'orifice de 0,002, m on a des fréquences faibles (donc de grosses bulles) et des vitesses de bulles faibles : pour avoir des taux de vide faibles, cela nécessite d'avoir des bouchons de plus grandes tailles, ce qui est bien vérifié visuellement.

Les résultats des autres conditions opératoires sont en Annexes B.

b) Critères de maldistribution

On s'intéresse à présent aux écarts-types moyens normés des grandeurs hydrodynamiques. Lorsqu'on trace ces écarts-types en fonction des valeurs moyennes des grandeurs mesurées (fréquence et vitesse des bulles, taux de gaz) correspondantes (Figure IV-14), on retrouve les tendances de la Figure IV-13 : pour chacune des expériences réalisées, les orifices de 0,002 m donnent des fréquences et des vitesses de bulles plus faibles.

Nous observons une augmentation du niveau de maldistribution, à l'aide des écarts-types de fréquence de bulles, avec la diminution des fréquences moyennes dans les canaux. Le diamètre de 0,0015 m donne les écarts-types les plus petits de 3-9%, comme montré en Figure IV-14. Les tendances sur les graphes de vitesse de bulle et de taux de gaz montrent également que l'orifice de 0,0015 m donne globalement lieu à des valeurs modérées des écarts-types normés.

A partir des résultats obtenus concernant les critères de maldistribution et en considérant la formation d'écoulements de Taylor avec des bulles plus espacées pour le diamètre de 0,0015 m par rapport à celui de 0,001 m, nous concluons que cette taille d'orifice intermédiaire fournit la meilleure configuration pour le distributeur « DistriGazLi ».

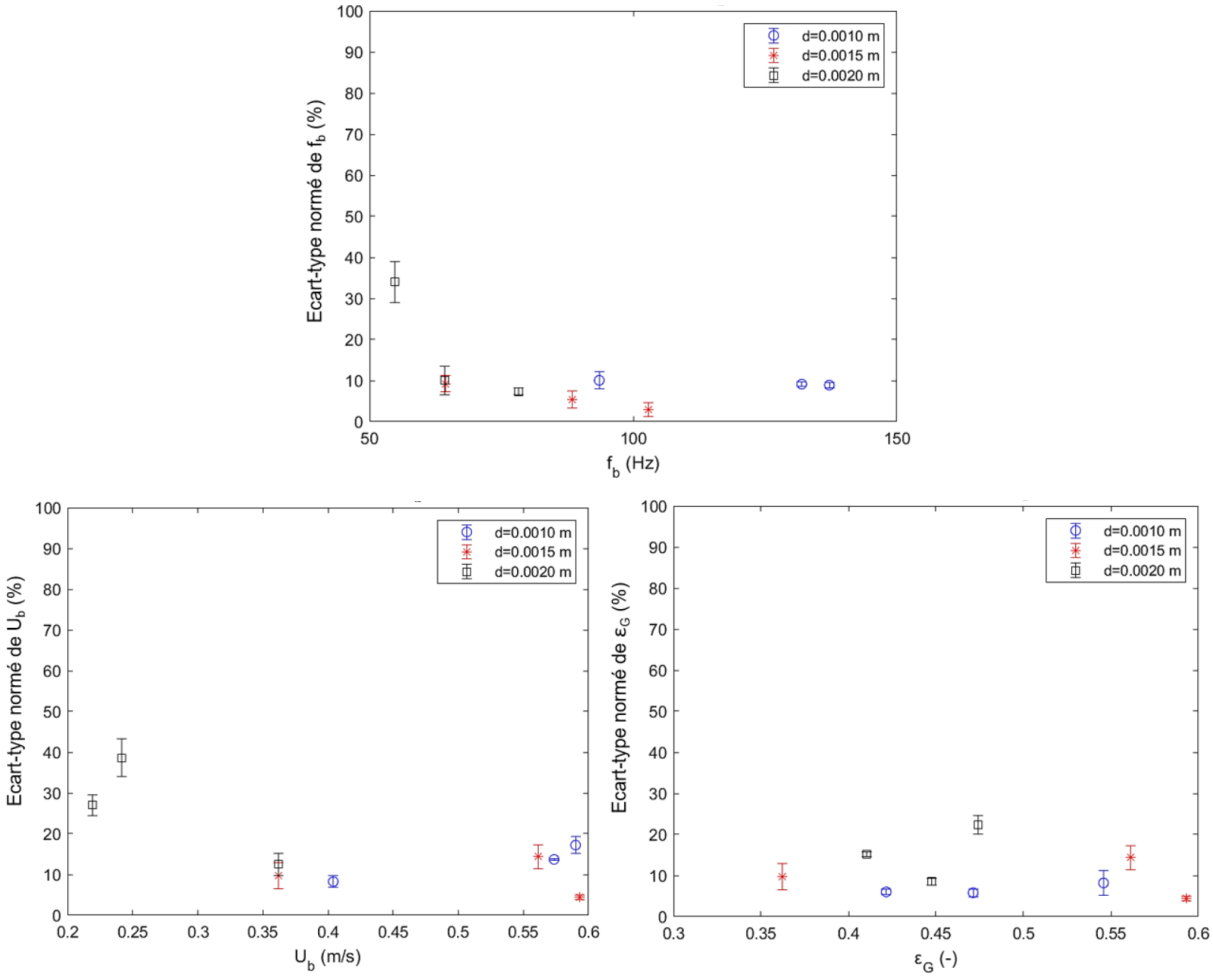


Figure IV-14. Ecarts-types normés de fréquence de passage des bulles f_b, vitesse des bulles U_b et taux de gaz ε_G calculés sur 12 canaux, pour les 3 expériences réalisées. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience.

IV.4 Configuration à privilégier pour « DistriGazLi » en vue d'obtenir des écoulements de Taylor

Au vu des résultats obtenus concernant les effets de l'état de surface du matériau et de la taille des orifices latéraux sur la répartition des phases gaz et liquide dans les 12 canaux, la configuration du distributeur innovant à privilégier est celle d'une pièce en résine Invicta avec des orifices latéraux de 0,0015 m de diamètre, car elle présente *a priori* le moins d'écoulements monophasiques ou à petites bulles, et le plus faible degré de maldistribution parmi les configurations testées.

Ce distributeur optimal n'a malheureusement pas pu être testé dans sa version à 84 canaux dans le temps de la thèse, pour comparaison au distributeur à pomme de douche (voir section IV.7).

IV.5 Impact de la perte de charge globale sur la qualité de distribution, pour le distributeur « DistriGazLi »

Après avoir trouvé une configuration à privilégier pour le distributeur innovant (matériau en résine Invicta avec des orifices de 0,0015 m), nous cherchons à évaluer l'effet de la perte de charge dans le réacteur sur la qualité de la distribution des écoulements diphasiques créée par le distributeur. Pour mettre en œuvre cette étude, nous testerons différentes longueurs de canaux dans le pilote.

IV.5.1 Modification du pilote

Afin de réaliser cette étude, le pilote à 12 canaux présenté dans le Chapitre II est adapté. Nous avons ainsi utilisé 3 configurations différentes du pilote, chacune possédant une longueur totale d'appareil, L, différente (voir Figure IV-15) :

a) Configuration 1 : montage comportant uniquement le dispositif de visualisation (L = 5 cm) ;

b) Configuration 2 : montage comportant le dispositif de visualisation et 1 bloc monolithe (L = 20 cm) ;

c) Configuration 3 : montage comportant le dispositif de visualisation et 2 blocs monolithes (L = 35 cm).

Les écoulements provenant de ces 3 montages peuvent alors être comparés, afin d'évaluer l'impact de la perte de charge et de la longueur du réacteur sur la stabilité et donc la maldistribution des fluides dans les 12 canaux. Les schémas des trois configurations du dispositif expérimental sont montrés sur la Figure IV-15.

Pour cette étude, la distribution des fluides utilise la barrette en résine Invicta avec des orifices latéraux de 0,0015 m. Le Tableau IV-5 donne les conditions utilisées qui correspondent à des vitesses superficielles moyennes d'air ($u_{G,moy}$) et d'eau ($u_{L,moy}$) variant respectivement de 0,20 à 0,80 m/s et de 0,18 à 0,31 m/s, à température ambiante et sous pression atmosphérique. Les trois expériences réalisées ont été choisies pour illustrer des rapports contrastés entre débit d'air et débit d'eau.

Tableau IV-5. Expériences réalisées pour l'étude de l'évolution spatiale des écoulements (barrette en Invicta, avec un diamètre d'orifice de 0,0015 m).

N° expérience	**1**	**2**	**3**
$u_{L,moy}$ (m/s)	0,18	0,24	0,31
$u_{G,moy}$ (m/s)	0,80	0,49	0,20
$u_{TP,moy}$ (m/s)	0,98	0,73	0,51
$\beta_{G,moy}$ (-)	82%	67%	39%

a)

b)

c)

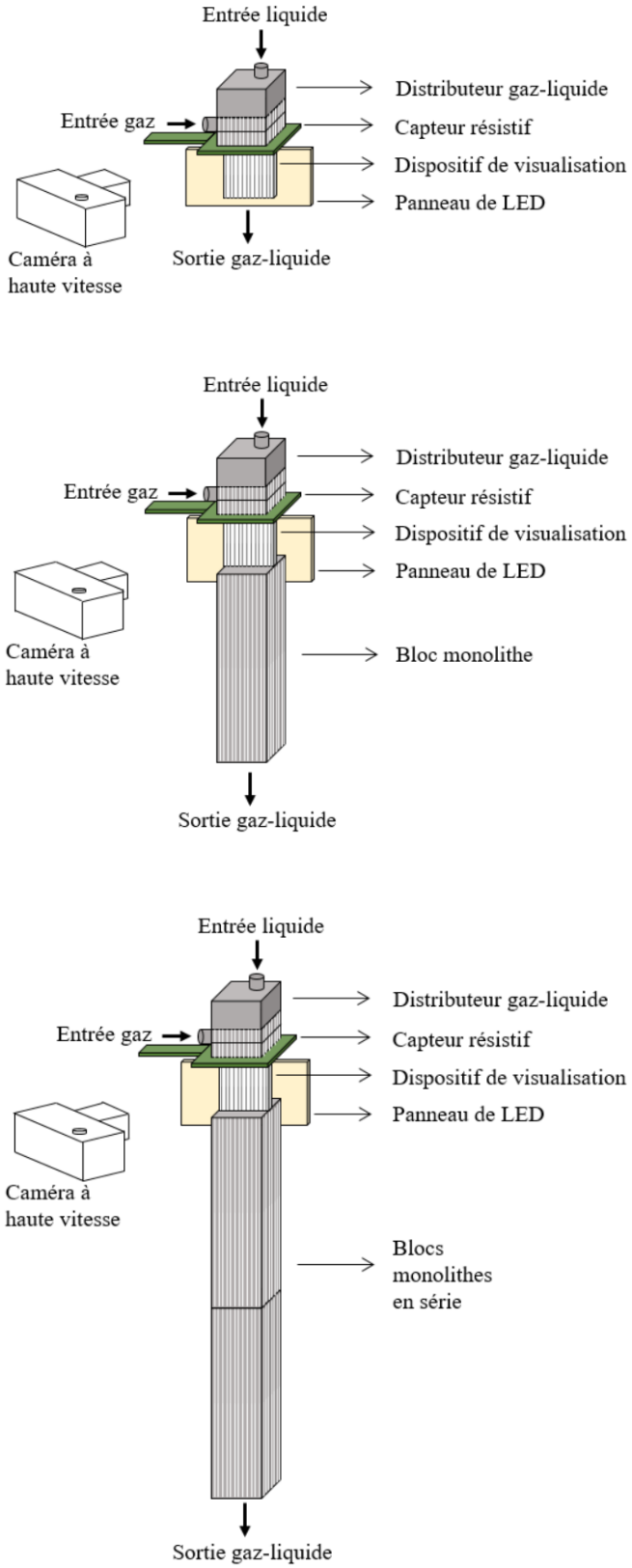


Figure IV-15. Schémas du dispositif expérimental modifié (12 canaux) permettant l'observation des écoulements après le distributeur pour différentes longueurs de canaux : a) configuration 1 (5 cm) ; b) configuration 2 (20 cm) ; c) configuration 3 (35 cm)

IV.5.2 Influence de la longueur du réacteur sur la qualité de la distribution au sortir du distributeur

Nous étudions ici l'effet de la longueur des canaux sur la qualité de la distribution créée. La distribution des phases dans les 12 canaux sera analysée dans un premier temps par observation directe des structures d'écoulements au sortir du distributeur, puis *via* la comparaison des valeurs des paramètres hydrodynamiques mesurées par le capteur résistif, pour différentes longueurs totales d'appareil.

a) Visualisation des écoulements à différentes positions en aval du distributeur

La cartographie des écoulements au sortir du distributeur est illustrée dans la Figure IV-16 ci-dessous :

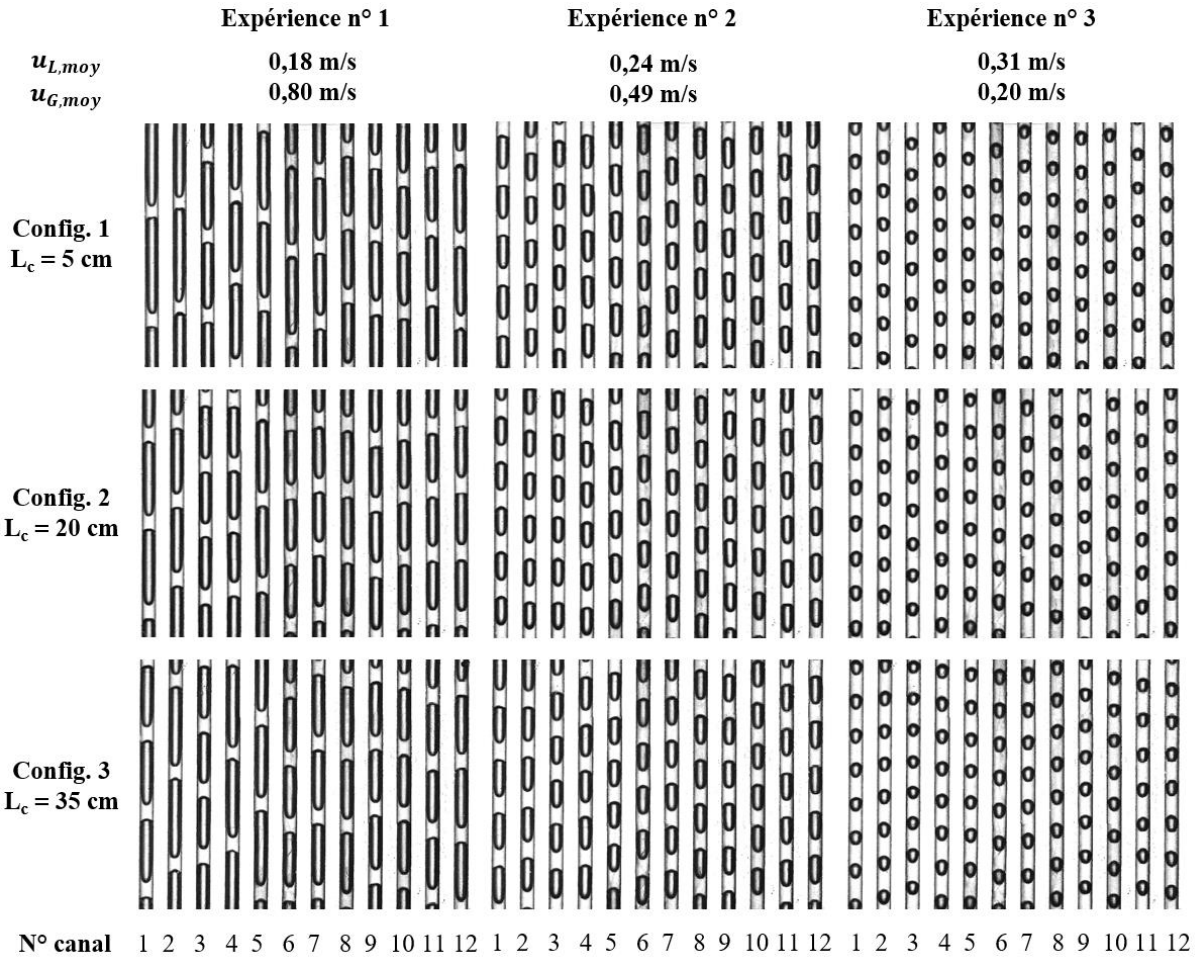


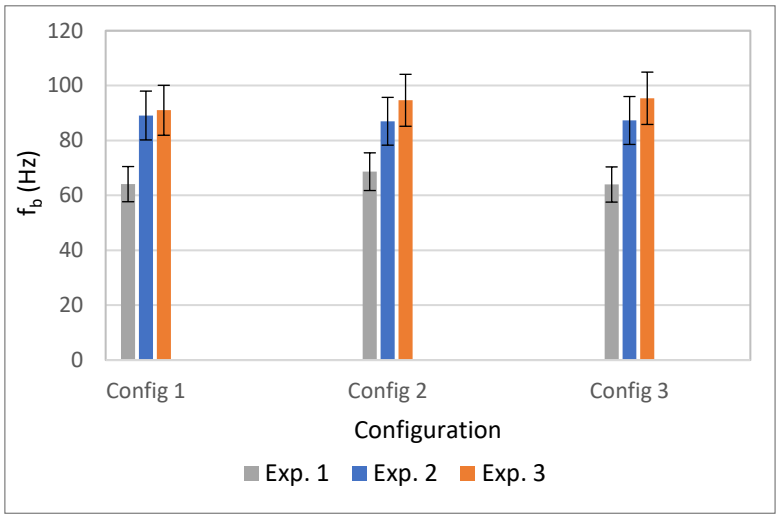
Figure IV-16. Cartographie des écoulements obtenus pour 3 configurations du capteur résistif, pour les 3 expériences réalisées.

Sur la base de ces images, nous n'observons pas, *a priori,* d'influence de la longueur totale du réacteur sur la structure des écoulements au sortir du distributeur. Nous allons alors évaluer les caractéristiques hydrodynamiques et les critères de maldistribution associés.

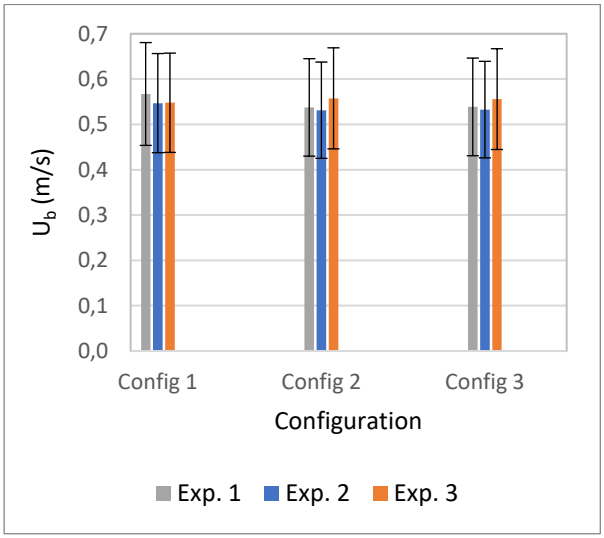
b) Caractérisation des distributions au sortir du distributeur, pour différentes longueurs d'appareil

Tout d'abord, les grandeurs hydrodynamiques moyennes sont représentées pour les trois expériences et pour les trois longueurs totales d'appareil, sur la Figure IV-17.

a)



b)



c)

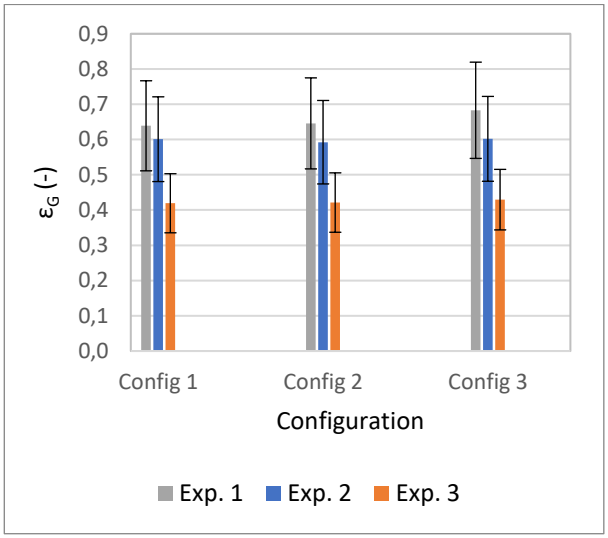


Figure IV-17. Valeurs moyennées sur 12 canaux des caractéristiques hydrodynamiques des écoulements générés lors des trois conditions de débits de gaz et de liquide, et pour trois longueurs totales de monolithe. a) Fréquence de bulle ; b) vitesse de bulle ; c) taux de gaz.

On constate que, pour chaque expérience (chaque couple de débits de gaz et de liquide), les paramètres moyens des écoulements obtenus avec différentes longueurs de monolithe sont très proches (écarts relatifs inférieurs à 10%).

Les écarts-types de ces grandeurs sont représentés en Figure IV-18 :

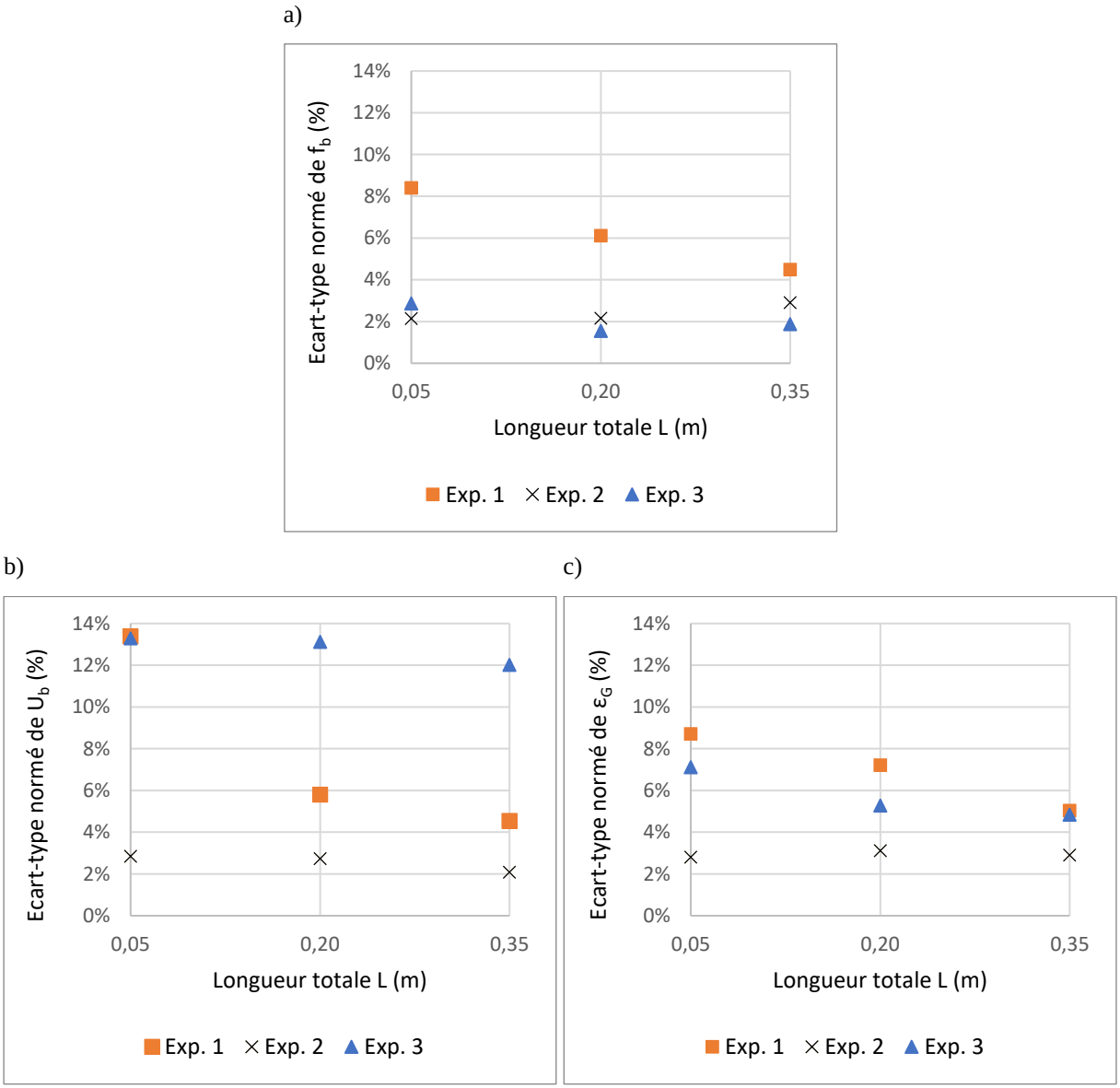


Figure IV-18. Ecarts-types sur 12 canaux des caractéristiques hydrodynamiques pour les écoulements générés lors des trois conditions de débits de gaz et de liquide, et pour trois longueurs totales de monolithe. a) Fréquence de bulle ; b) vitesse de bulle ; c) taux de gaz.

On constate que les écarts-types des grandeurs hydrodynamiques, entre les 12 canaux de l'installation, diminuent avec la longueur totale de l'appareil ; ce comportement est particulièrement marqué pour la vitesse de bulle et le taux de gaz, et pour l'expérience 1, qui correspond au taux de gaz le plus élevé (donc à la fréquence de bulle la plus faible). Les écarts-types en fréquence de bulle sont plus modérés, surtout pour les expériences 2 et 3 où les valeurs (comprises entre 2% et 3%) ne montrent pas de tendances significatives.

IV.5.3 Influence de la perte de charge totale dans le réacteur sur la qualité de la distribution au sortir du distributeur

Pour préciser les constats précédents, nous calculons la perte de charge sur le réacteur pour les trois configurations considérées et les trois expériences analysées. Les calculs de perte de charge sont basés sur le modèle utilisé par Kreutzer et coll. (2005b), tel qu'explicité au chapitre 1 en section I.1.3.1.7, et rappelé ici :

$$\left.\frac{dP}{dz}\right|_{tot} = (1-\varepsilon_G)\left[f_{app}\left(\frac{1}{2}\rho_L {U_b}^2\right)\frac{4}{d_c} + \rho_L g\right] \qquad (I.17)$$

avec un facteur de friction apparente f_{app} égal à :

$$f_{app} = \frac{16}{Re}\left[1 + \mathbf{0,17}\frac{\boldsymbol{d_c}}{\boldsymbol{L_{slug}}}\left(\frac{\boldsymbol{Re}}{\boldsymbol{Ca}}\right)^{\mathbf{1/3}}\right] \qquad (I.18)$$

Dans l'expression du facteur de friction f_{app} ci-dessus, le terme en gras traduit la pression de Laplace, c'est-à-dire l'impact de la courbure des bulles au sein de l'écoulement. A l'occasion de cette étude, nous allons investiguer l'importance du terme de Laplace dans le calcul de la perte de charge, en traçant la perte de charge dans le réacteur, calculée avec et sans terme de Laplace (Figure IV-19), pour différentes longueurs d'appareil.

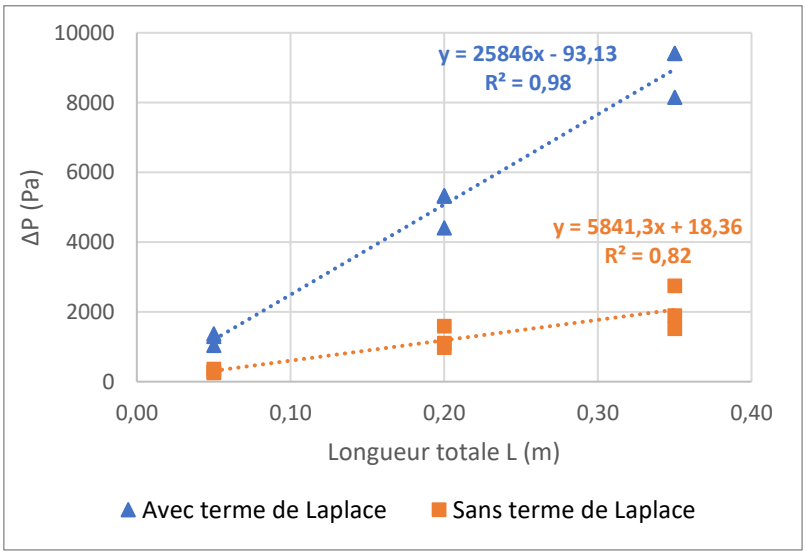


Figure IV-19. Perte de charge dans le réacteur en fonction de la longueur totale de l'appareil, calculée avec le modèle présenté par Kreutzer et coll. (2005b), avec et sans prise en compte du terme de pression de Laplace.

La perte de charge dépend naturellement linéairement de la longueur de l'appareil. Ses valeurs sont comprises entre 2 et 10 mbar, dépendamment de la longueur totale. Les trois expériences donnent lieu à des valeurs de perte de charge très semblables, comme nous allons

le détailler ci-après. Le terme de Laplace représente 80 à 90% de ces valeurs (selon les cas), et est donc très significatif.

La Figure IV-20 montre l'influence des caractéristiques hydrodynamiques des écoulements, moyennées sur 12 canaux, sur la perte de charge linéique dans l'appareil (calculée avec le terme de Laplace). On retrouve les tendances attendues : augmentation de la perte de charge linéique avec le taux de liquide (c'est-à-dire avec $(1-\varepsilon_G)$), et avec f_b. L'impact de la vitesse de bulle sur la perte de charge linéique n'est pas visible ici (Figure IV-20 c) car les valeurs de vitesses de bulle moyennes obtenues pour les trois conditions de débits explorées sont très proches : elles sont comprises entre 0,53 et 0,57 $m.s^{-1}$.

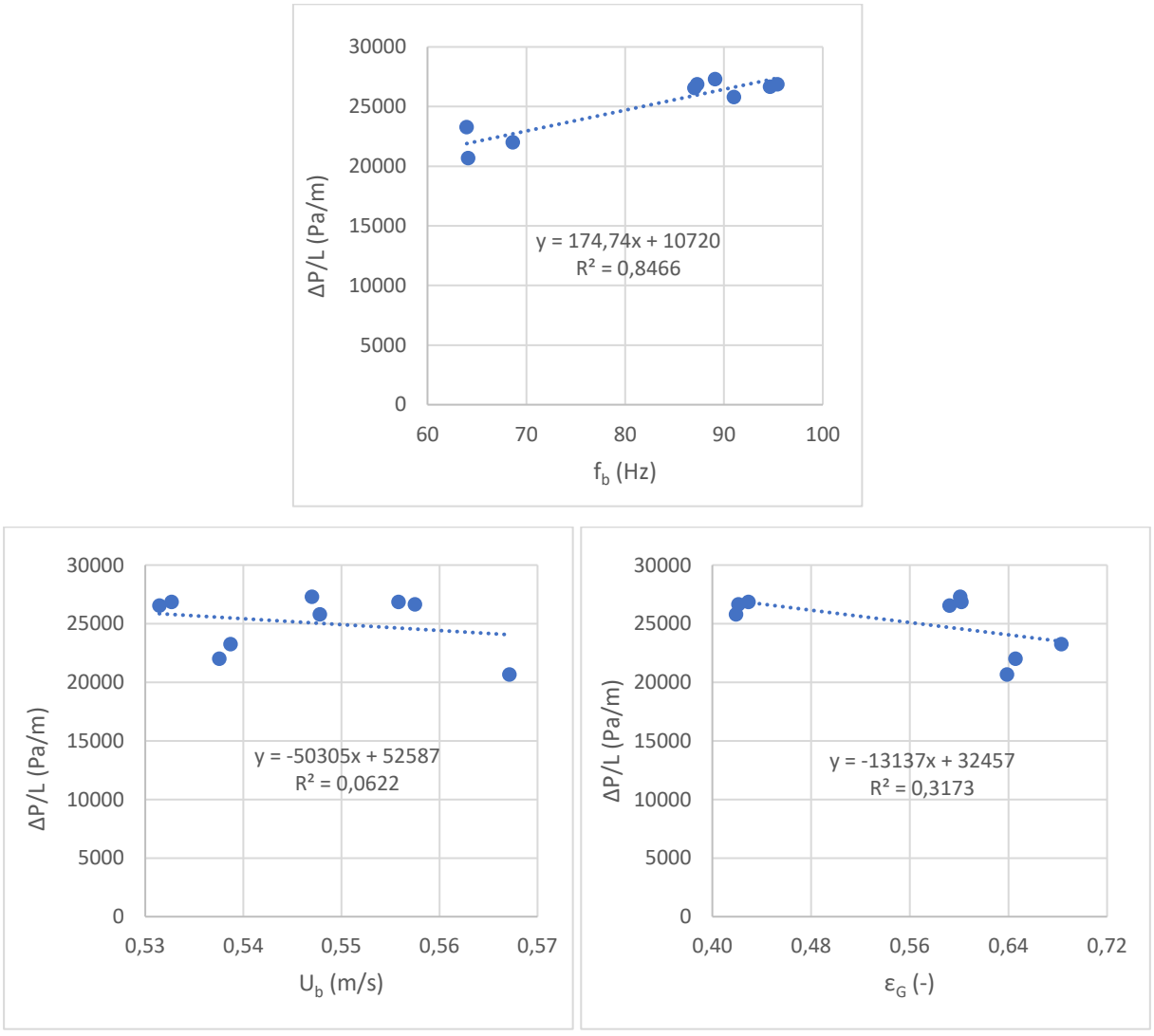
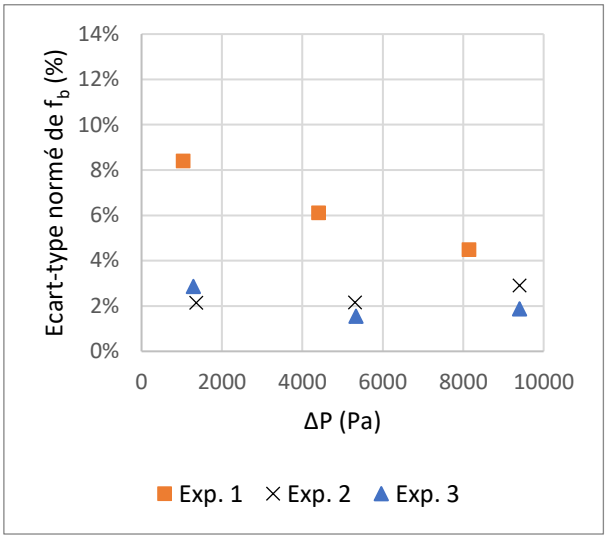


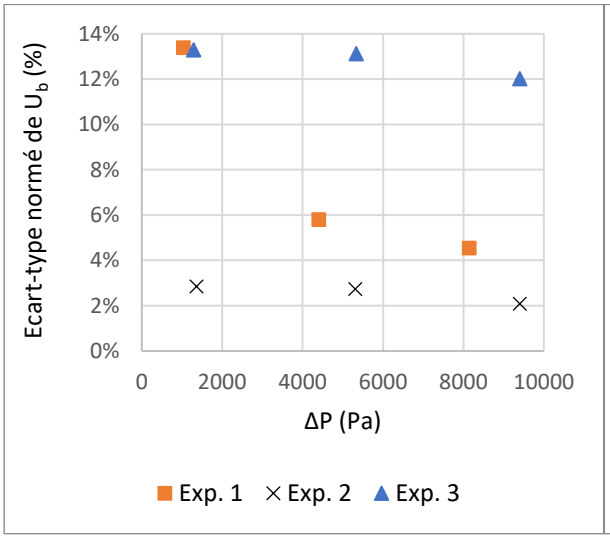
Figure IV-20. Perte de charge linéique dans le réacteur, calculée avec le modèle présenté par Kreutzer et coll. (2005b), tracée en fonction des caractéristiques hydrodynamiques (moyennées sur 12 canaux) pour les trois conditions expérimentales et les 3 longueurs d'appareil.

Enfin, les valeurs des écarts-types normés sur les grandeurs hydrodynamiques sont tracés en fonction de la perte de charge linéique (Figure IV-21).

a)



b)



c)

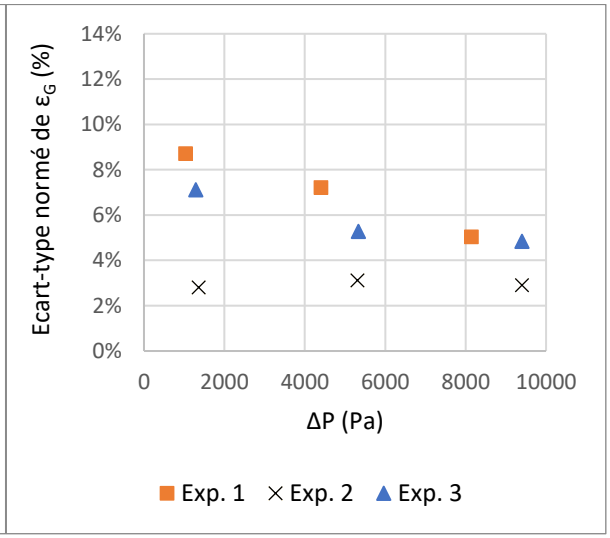


Figure IV-21.Ecarts-types sur les caractéristiques hydrodynamiques (sur 12 canaux) en fonction de la perte de charge globale dans le réacteur, pour les trois conditions expérimentales.

Compte tenu de la proportionnalité de la perte de charge globale dans le réacteur avec la longueur de ce dernier, on retrouve naturellement les tendances constatées en Figure IV-18. On confirme ici que la perte de charge entre le distributeur et la sortie du réacteur a un impact positif sur la qualité de la distribution des fluides dans les canaux, et ce d'autant plus que le débit de gaz global est élevé dans l'appareil.

IV.6 Evolution spatiale des écoulements issus du « DistriGazLi »

Après avoir trouvé une configuration à privilégier pour le distributeur innovant (matériau en résine Invicta avec d'orifice de 0,0015 m), nous nous intéressons à évaluer la stabilité des écoulements diphasiques le long du réacteur afin de mettre en évidence d'éventuelles limitations.

IV.6.1 Modification du pilote

Le pilote à 12 canaux présenté dans le Chapitre II est ici adapté afin de réaliser cette étude. Ainsi, un second jeu de barrette de visualisation, capteur et panneau de LED est ajouté au montage afin de suivre l'évolution des écoulements à une autre position : soit après le premier bloc monolithe de 0,15 m de long, soit en aval du second bloc monolithe. Ces écoulements peuvent alors être comparés à ceux qui sont enregistrés après le distributeur. Les nouveaux schémas du dispositif expérimental sont montrés sur la Figure IV-22.

Etant donné que les écoulements sont en régime permanent, les images correspondant à des positions différentes dans le pilote peuvent être enregistrées à des instants différents. Ainsi, la position verticale de la caméra peut être modifiée lors de la manipulation (via le réglage de hauteur de son trépied) pour enregistrer d'abord les images obtenues en aval du distributeur, puis celles prises en aval du premier ou du second bloc monolithe.

Pour cette étude, la distribution des fluides utilise la barrette en résine Invicta avec des orifices latéraux de 0,0015 m. Le Tableau IV-6 donne les conditions utilisées qui correspondent à des vitesses superficielles moyennes de l'air ($u_{G,moy}$) et de l'eau ($u_{L,moy}$) variant respectivement de 0,20 à 0,80 m/s et de 0,18 à 0,31 m/s, à température ambiante et sous pression atmosphérique.

Tableau IV-6. Expériences réalisées pour l'étude de la stabilité des écoulements le long des canaux (barrette en Invicta, avec un diamètre d'orifice de 0,0015 m).

N° expérience	**1**	**2**	**3**
$u_{L,moy}$ (m/s)	0,18	0,24	0,31
$u_{G,moy}$ (m/s)	0,80	0,49	0,20
$u_{TP,moy}$ (m/s)	0,98	0,73	0,51
$\beta_{G,moy}$ (-)	82%	67%	39%

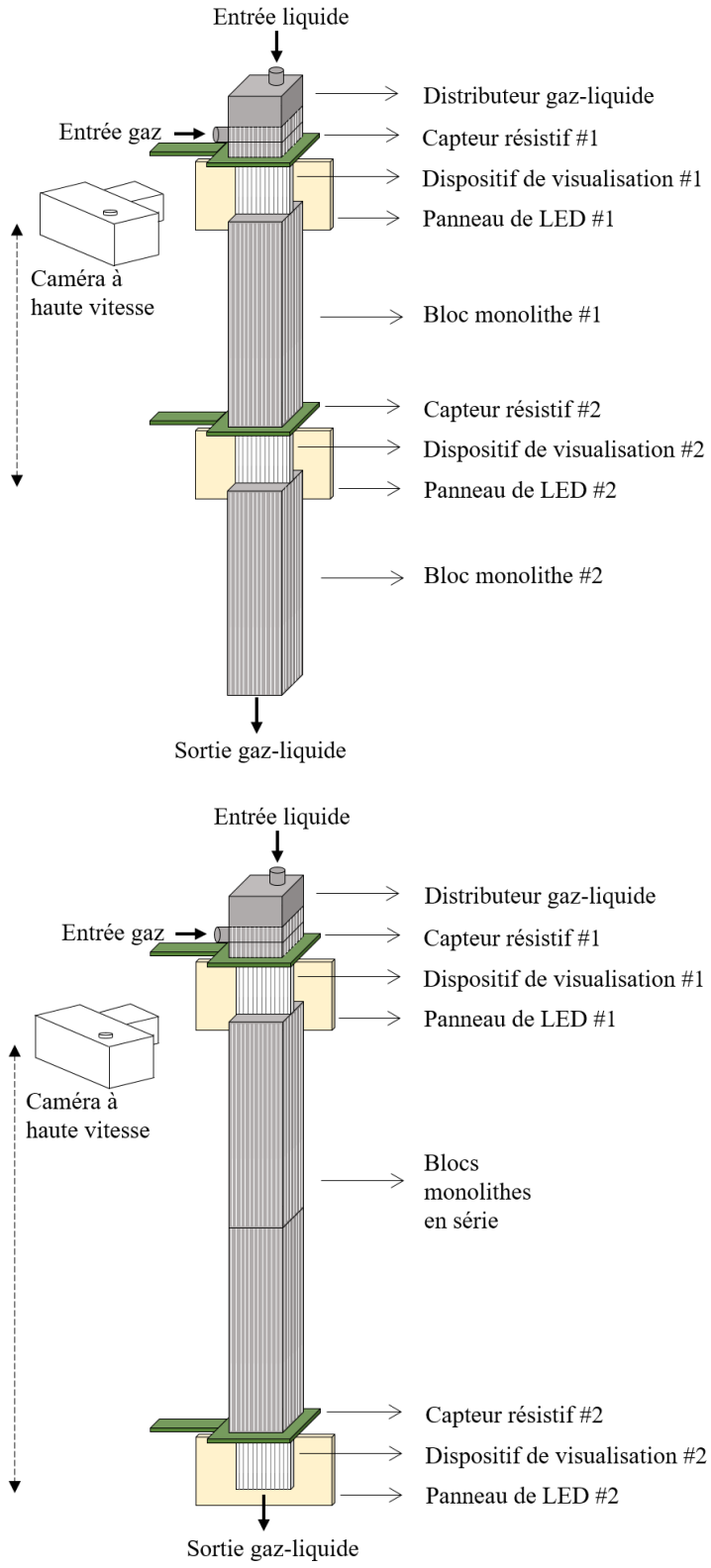


Figure IV-22. Schémas du dispositif expérimental modifié (12 canaux) permettant l'observation des écoulements soit après le distributeur et le premier bloc monolithe, soit après le distributeur et le second bloc monolithe.

IV.6.2 Résultats sur les critères de maldistribution

Nous étudions ici la stabilité des écoulements le long des canaux, afin de savoir si la qualité de la distribution des phases, créée par le distributeur, est modifiée à la traversée de blocs monolithes. Dans un premier temps, la variation spatiale des écoulements le long des 12 canaux sera analysée via l'observation directe des structures d'écoulements, puis via l'évolution des valeurs des paramètres hydrodynamiques issus du capteur le long du réacteur.

a) Visualisation des écoulements à différentes positions en aval du distributeur

La cartographie des écoulements est illustrée dans la Figure IV-23 ci-dessous :

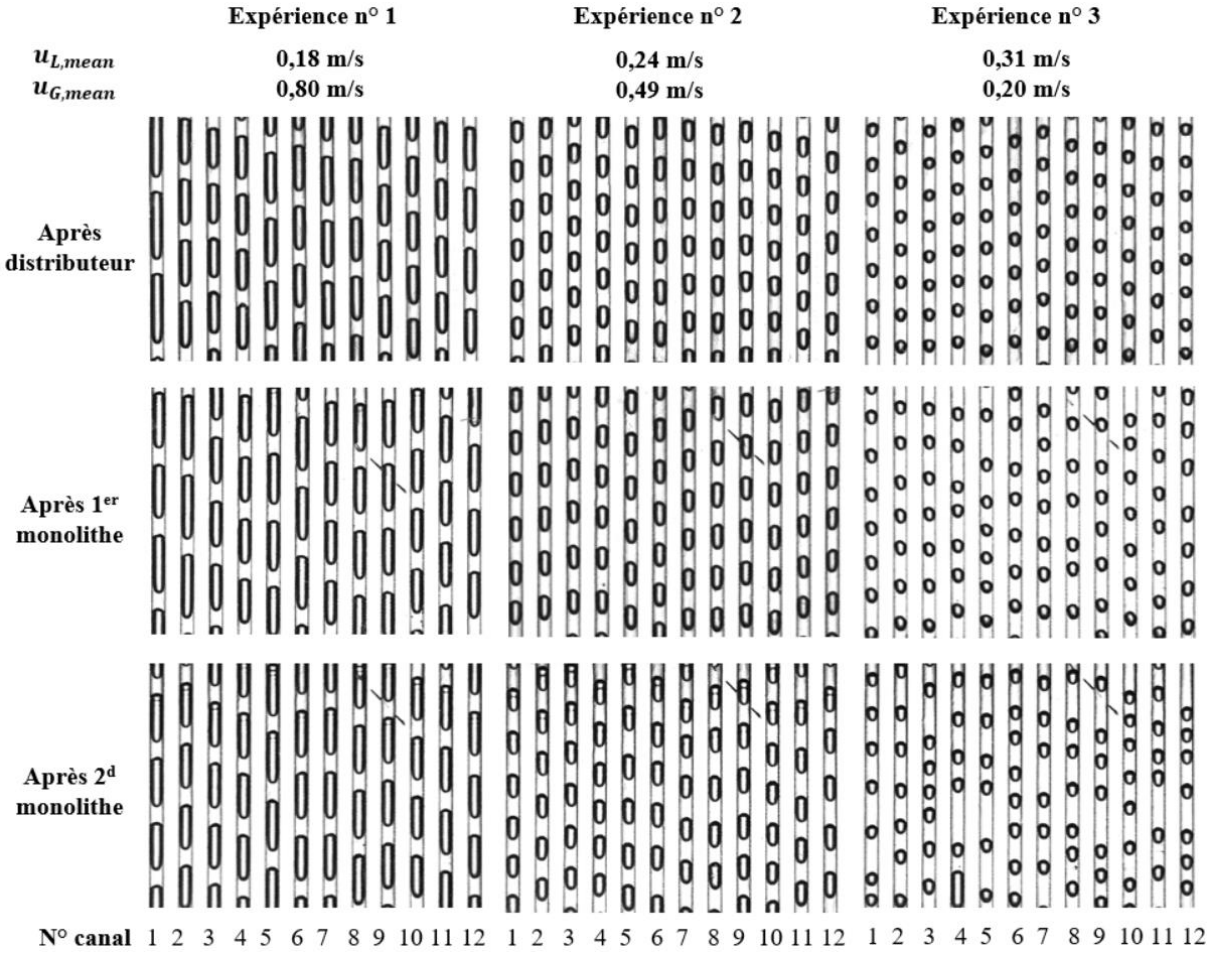


Figure IV-23. Cartographie des écoulements obtenus pour 3 positions du capteur résistif, pour les 3 expériences réalisées.

La première rangée d'images représente les écoulements à la position 1, juste après le distributeur à 0,40 m de la sortie du pilote qui est à pression atmosphérique, la deuxième à la position 2 en sortie du premier bloc monolithe (à 0,20 m de la sortie du pilote) et enfin la troisième à la position 3, en sortie du second bloc (à 0,05 m de la sortie).

Les 3 expériences réalisées permettent d'identifier des régimes d'écoulement à bulles et de Taylor avec des tailles de poches variées. Les expériences n° 1 et 2, en écoulement de Taylor, ont des fractions de gaz $\beta_{G,moy}$ supérieures à 50% et des vitesses totales u_{TP} supérieures à 0,7 m/s ; elles présentent des écoulements stables, qui ne sont pas déstructurés en aval du distributeur, comme indiqué par Bakker et coll. (2005) pour ce type d'écoulement.

En revanche, pour la troisième expérience, les écoulements à bulles se modifient le long du réacteur, avec une augmentation de la longueur moyenne des cellules unitaires et notamment de la taille des bouchons liquides. La structure de ces écoulements se déstabilise et varie fortement d'un canal à l'autre pour la dernière position de la fenêtre d'observation. Nous remarquons également l'apparition de bulles plus longues en raison de la coalescence de bulles très proches, comme par exemple dans le canal 4 de l'expérience n° 3, après le 2ème bloc monolithe.

b) Evolution spatiale des caractéristiques hydrodynamiques des écoulements (capteur)

Nous évaluons maintenant l'évolution des mesures de fréquence, de vitesse des bulles et de taux de gaz, issues du capteur, montrées dans la Figure IV-24.

Comme attendu, ces paramètres varient très peu entre les positions 1 et 2 pour les expériences n° 1 et 2. La fréquence de passage de bulles ne varie pas entre la sortie du distributeur (position 1) et la sortie du premier monolithe (position 2), tandis qu'elle diminue jusqu'à 6% en sortie du pilote (position 3). Pour l'expérience n°3, la fréquence est toujours invariante entre les 2 premières positions, mais elle varie de 8% en aval du pilote par rapport à la position 1. Ces valeurs complètent les constats qualitatifs faits sur la base des images.

La variation de longueur des cellules unitaires observée pour l'expérience n°3 a un effet plus marqué encore sur la vitesse de bulles et le taux de gaz. La vitesse de bulles mesurée dans les positions 2 et 3 diminue jusqu'à 15% par rapport à la position 1, alors que le taux de gaz est réduit jusqu'à 20%. Ce comportement pourrait être lié aux films de lubrification très courts dans les écoulements à bulles, provoquant une potentielle communication des bouchons liquides entre les bulles, favorisant le rapprochement et la coalescence des bulles. De ce fait, les écoulements à bulles seraient moins stables le long des canaux.

Au contraire, les écoulements de Taylor ont des films de lubrification suffisamment longs, ce qui assure leur stabilité le long du monolithe. Ainsi, pour les expériences 1 et 2, les variations des paramètres hydrodynamiques sont légères, conduisant à une diminution de la vitesse de bulles et du taux de gaz ne dépassant pas 7%, lorsque l'on compare les positions 2 et 3 par rapport à la première.

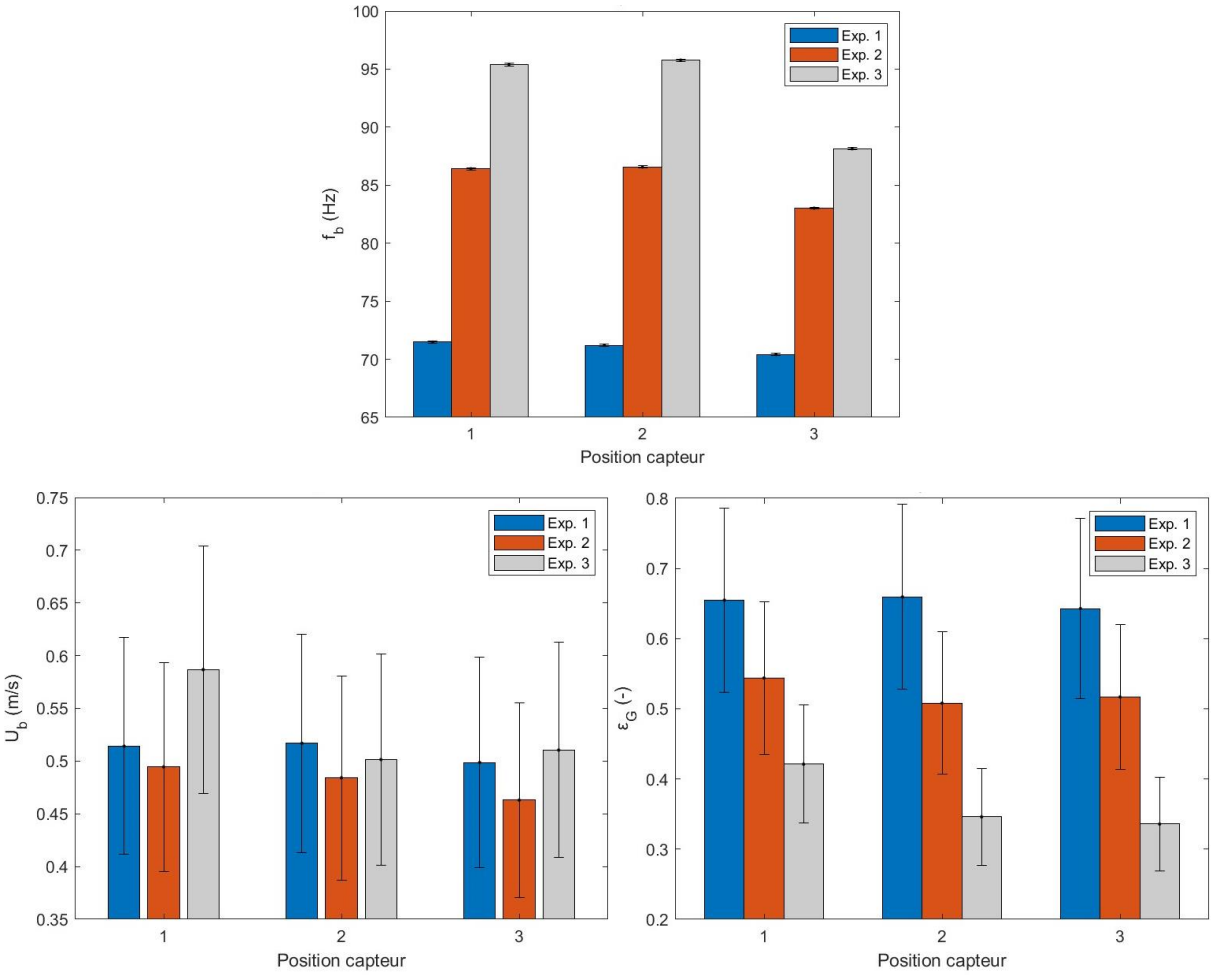


Figure IV-24. Evolution des paramètres hydrodynamiques en fonction de la position du capteur dans le pilote : 1 – après le distributeur, 2 – après le 1er monolithe, 3 – après le 2e monolithe. Les barres d'erreur correspondent à la précision des mesures issues du capteur résistif – 10% pour f_b et 20% pour U_b et ε_G.

c) Caractérisation de la maldistribution

Concernant les critères de maldistribution, les écarts-types normés des fréquences de bulles sont très faibles, inférieurs à 0,5% pour toutes les conditions étudiées ici ; ils ne sont pas montrés. Les autres critères (vitesse de bulles et taux de gaz), montrés sur la Figure IV-25, nous aident à mieux comprendre l'effet de la longueur du réacteur sur le degré de maldistribution : la distribution des phases perd progressivement, mais modérément, de l'homogénéité le long du réacteur pour les expériences 1 et 2 pour lesquelles les bulles sont longues et les écoulements stables. En revanche, pour les écoulements à bulles (expérience n° 3), comme attendu, les écart-types normés sont élevés (jusqu'à 70%) et la perte d'homogénéité de la distribution des phases est très marquée : les écarts-types de vitesse en sortie des monolithes sont doublés par rapport à celui de la sortie du distributeur, passant de 26% à 63%, tandis que ceux de taux de gaz sont 3 ou 4 fois plus importants que l'écart-type de la première position (augmentation de 16% à 71%).

Avec ces résultats, le « DistriGazLi » est bien validé pour les écoulements en régime de Taylor, ne présentant pas de restructuration des écoulements le long du réacteur. En revanche,

pour les écoulements à petites bulles (ou régime à bulles) (expérience n° 3), la stabilité des écoulements le long du réacteur est médiocre, et les écoulements dans les divers canaux, mal distribués dès l'entrée, voient leur hétérogénéité augmenter le long des canaux.

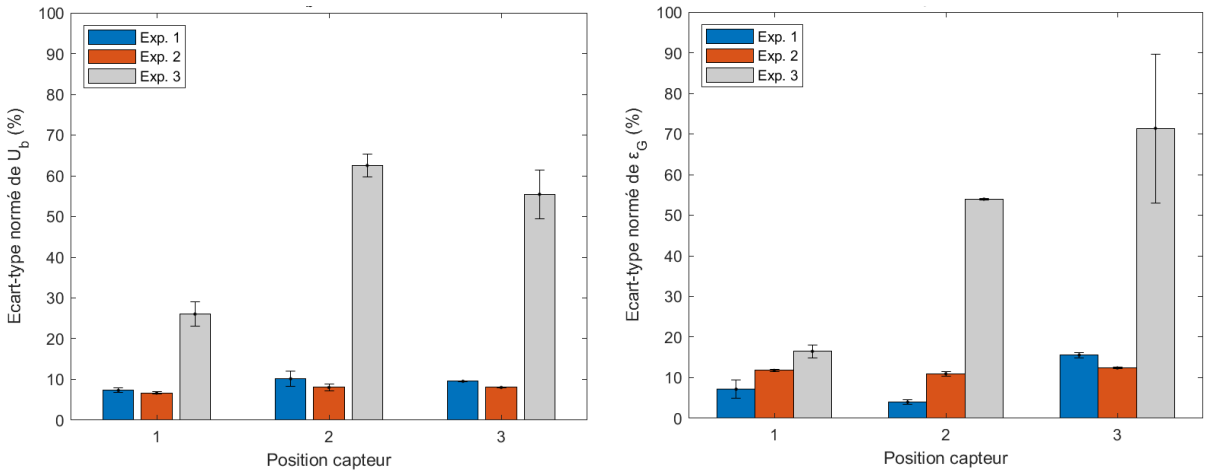


Figure IV-25. Ecarts-types normés de vitesse des bulles U_b et de taux de gaz ε_G calculés pour 12 canaux, en fonction de la position du capteur dans le pilote : 1 – après le distributeur, 2 – après le 1er monolithe, 3 – après le 2e monolithe. Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience.

IV.7 Comparaison des distributeurs à 84 canaux

IV.7.1 Configurations et conditions opératoires testées

Suite à l'étude visant à améliorer le distributeur innovant, nous cherchons désormais à le comparer à un distributeur conventionnel de l'industrie, le plateau perforé, appelé ci-après « pomme de douche » (voir Chapitre II), en utilisant le pilote complet avec alimentation des 84 canaux du réacteur monolithe. Dans ce cas, nous n'aurons pas accès aux images des écoulements. L'objectif est de quantifier le degré de maldistribution des phases pour les 2 types de distributeur, et ce à l'aide du capteur résistif. En raison d'une contrainte de temps liée à l'impression 3D des pièces au laboratoire, les distributeurs testés sont fabriqués en résine Vitra, avec le distributeur « DistriGazLi » d'orifices latéraux de 0,001 m de diamètre. Par conséquent, ce distributeur n'est pas dans sa configuration optimale. Il est à noter également que les canaux de la rangée centrale (rangée de 12 canaux n°4, sur la Figure IV-26) des blocs monolithes placés en aval ont dû être repercés et ont alors un diamètre légèrement différent des autres (2 mm contre 1,8 mm pour les autres canaux).

Pour cette étude, 35 expériences ont été réalisées (chacune répétées six fois) à température ambiante et sous pression atmosphérique avec des vitesses superficielles moyennes d'air ($u_{G,moy}$) et d'eau ($u_{L,moy}$) variant de 0,07 à 0,62 m/s et de 0,05 à 0,18 m/s, respectivement. Les conditions opératoires sont données dans le Tableau IV-7.

Tableau IV-7. Expériences réalisées pour la comparaison des distributeurs avec alimentation de 84 canaux ; $u_{G,moy}$ et $u_{L,moy}$ sont les vitesses superficielles dans un canal pour une distribution uniforme ; $\beta_{G,moy}$ est déduit des valeurs des vitesses superficielles moyennes.

N° expérience	$u_{L,moy}$ (m/s)	$u_{G,moy}$ (m/s)	$\beta_{G,moy}$ (-)
1	0,17	0,16	47%
2		0,07	28%
3	0,16	0,62	79%
4		0,47	74%
5		0,31	66%
6		0,16	49%
7		0,07	30%
8	0,14	0,62	81%
9		0,47	76%
10		0,31	68%
11		0,16	52%
12		0,07	32%
13	0,13	0,62	83%
14		0,47	79%
15		0,31	71%
16		0,16	55%
17		0,07	35%
18	0,11	0,62	85%
19		0,47	81%
20		0,31	74%
21		0,16	58%
22		0,07	38%
23	0,09	0,62	87%
24		0,47	83%
25		0,31	77%
26		0,16	62%
27		0,07	42%
28	0,08	0,62	89%
29		0,47	86%
30		0,31	80%
31		0,16	67%
32	0,06	0,62	91%
33		0,47	88%
34		0,31	83%
35	0,05	0,62	93%

IV.7.2 Résultats sur les critères de maldistribution

Dans l'étude de l'influence du matériau du distributeur sur les écoulements diphasiques, nous avons trouvé que la résine Vitra génère des écoulements en régime à bulles pour de nombreuses conditions de vitesses superficielles. Sachant que la fréquence de bulles est bien prédite pour ce type de régime par rapport aux mesures de vitesse de bulles et taux de gaz, nous n'allons utiliser dans la suite que ce paramètre, la fréquence des bulles, pour estimer le degré de maldistribution des distributeurs.

IV.7.2.1 Analyse des distributions obtenues avec les deux distributeurs

Tout d'abord nous nous intéressons à la gamme de fréquences de bulle pour les 2 distributeurs étudiés. Le distributeur innovant donne des fréquences de 17-260 Hz, contre 10-85 Hz pour la « pomme de douche ». La

Figure IV-26 et la Figure IV-27 ci-dessous illustrent des exemples de distribution de fréquences dans les 84 canaux du réacteur, pour les 2 distributeurs.

Pour le « DistriGazLi », si l'on fait abstraction de la rangée n°4 (aux diamètres de canaux légèrement agrandis), il semble que la fréquence de bulles soit relativement uniforme sur les canaux. A faible vitesse de liquide $u_{L,moy}$, les fréquences de bulle sont plus élevées au centre du monolithe, indiquant que ces canaux reçoivent plus de débit (gaz et/ou liquide) que les canaux périphériques, et/ou que les bulles y sont plus courtes et plus nombreuses.

La « pomme de douche » quant à elle donne une distribution de fréquence plus aléatoire, avec des variations importantes entre les canaux.

La différence de géométrie des 2 distributeurs affecte la gamme des fréquences observées et leur distribution dans les canaux. Le distributeur « DistriGazLi » permet aux phases gaz et liquide de mieux accéder à tous les canaux grâce à une meilleure répartition de la perte de charges due aux injections latérales en « T », tandis que la chambre de mélange diphasique de la « pomme de douche » induit la formation d'une grande poche d'air entourée d'un film liquide, telle que visible sur la photographie de la Figure IV-28. Cette poche perturbe la répartition des fluides dans les canaux de ce type de distributeur, où les 2 fluides sont en compétition pour alimenter les canaux.

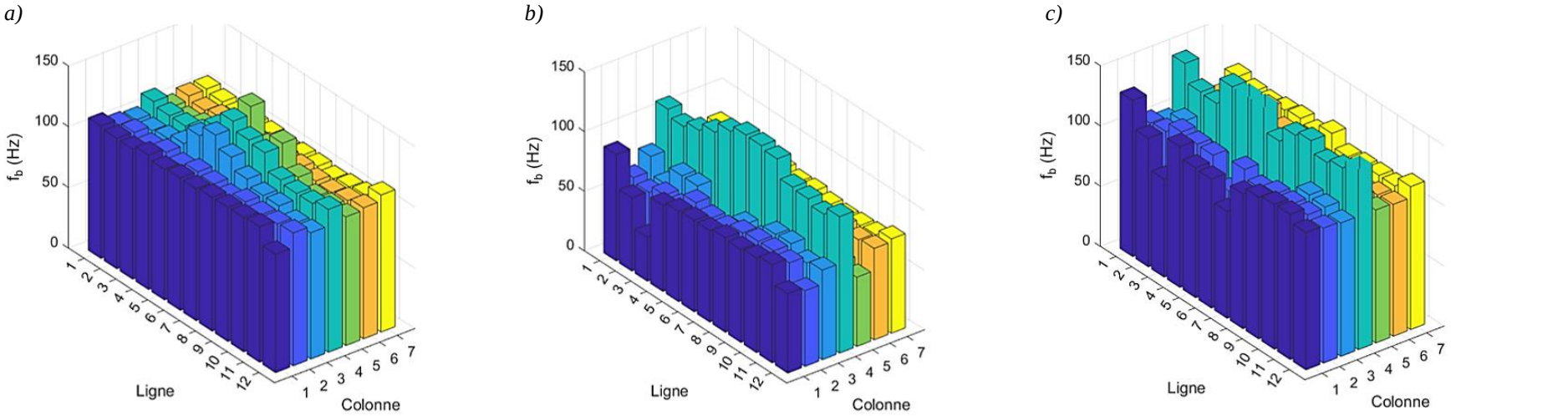


Figure IV-26. Exemples de distribution spatiale de fréquence de bulles dans les 84 canaux du distributeur « DistriGazLi » : a) expérience n° 7 ($u_{L,moy}$ = 0,08 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,47 m/s), b) expérience n° 24 ($u_{L,moy}$ = 0,14 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,07 m/s), c) expérience n° 30 ($u_{L,moy}$ = 0,16 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,16 m/s).

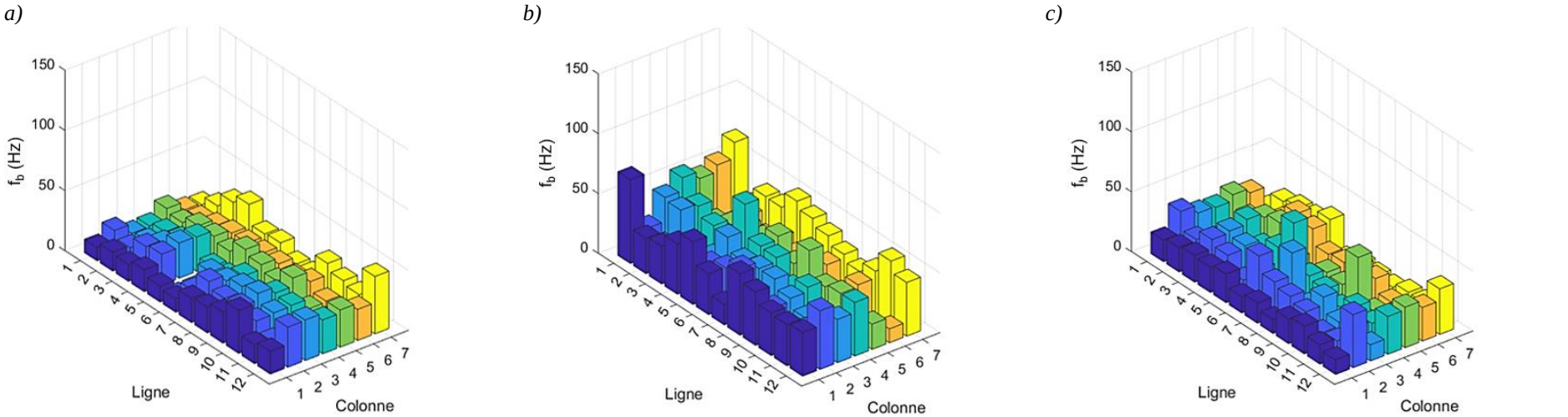


Figure IV-27. Exemples de distribution spatiale de fréquence de bulles f_b dans les 84 canaux du distributeur « pomme de douche » : a) expérience n° 7 ($u_{L,moy}$ = 0,08 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,47 m/s), b) expérience n° 24 ($u_{L,moy}$ = 0,14 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,07 m/s), c) expérience n° 30 ($u_{L,moy}$ = 0,16 m/s, $u_{G,moy}$ = 0,16 m/s).

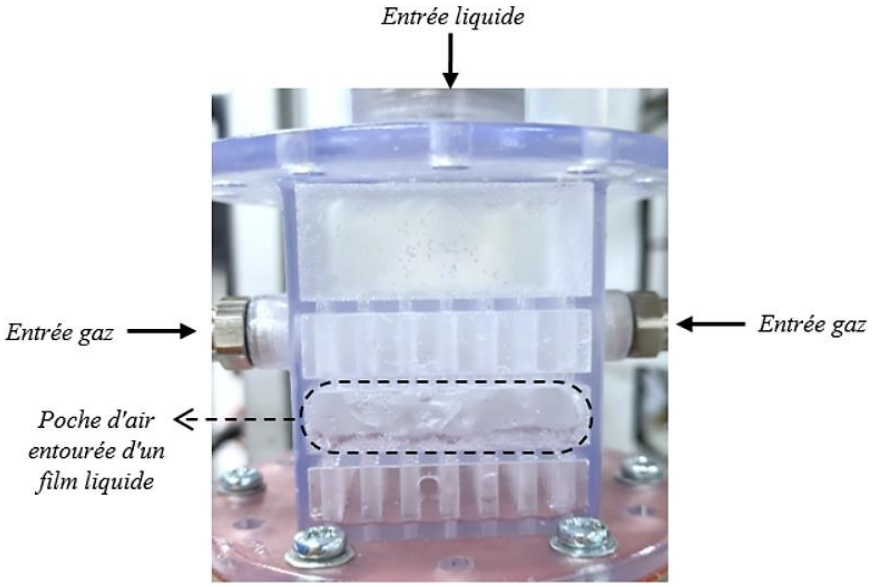


Figure IV-28. Photo du prototype du distributeur « pomme de douche » prise lors d'une expérience, où une poche d'air entourée d'un film liquide est formée dans la chambre de mélange diphasique.

De ce fait, plusieurs canaux de la « pomme de douche » sont en écoulement monophasique ($f_b < 30$ Hz) ou présentent une stratification des phases dans la direction verticale (Figure IV-29 b), alors que « DistriGazLi » fonctionne en régime à bulles ou de Taylor pour les mêmes conditions de débits globaux à l'entrée des distributeurs. Une comparaison visuelle entre les deux est donnée sur la Figure IV-29, où les écoulements sont observés dans les canaux transparents situés sur les faces externes du monolithe.

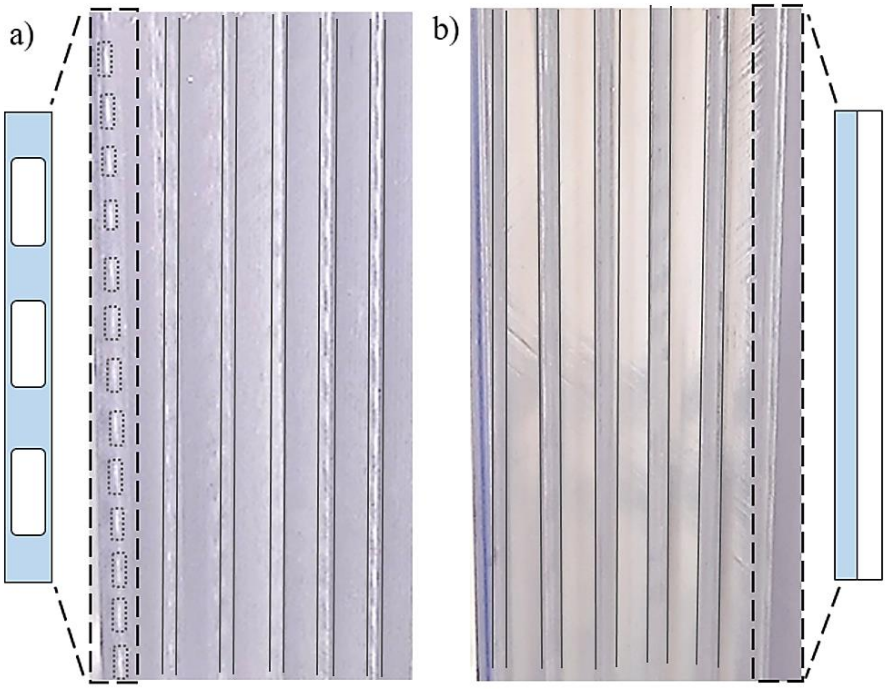


Figure IV-29. Ecoulements gaz-liquide observés sur les canaux transparents du monolithe provenant des distributeurs : a) « DistriGazLi » avec écoulements poche-bouchons (à gauche) ; b) pomme de douche en régime stratifié (à droite).

Nous nous intéressons maintenant à comparer le degré de maldistribution des 2 distributeurs étudiés en analysant les écarts-types normés par la valeur moyenne. La Figure IV-30 illustre ainsi l'écart-type normé de fréquence des bulles sur 84 canaux pour les 2 distributeurs. « DistriGazLi » présente un écart-type moyen de fréquence de bulles de 19% (et une valeur maximum de 30%) contre 61% (et une valeur maximum de 70%) pour la « pomme de douche », soit une réduction d'un facteur 3 sur les écarts-types moyens de fréquence.

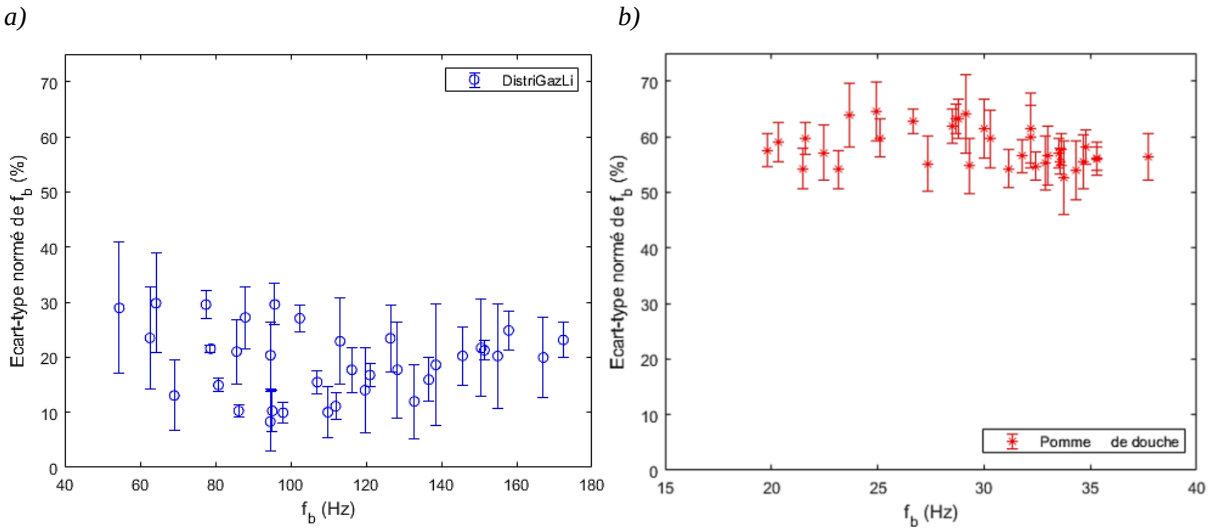


Figure IV-30. Comparaison des écarts-types normés de fréquence de bulles f_b, calculés sur 84 canaux pour les 35 expériences réalisées : a) distributeur « DistriGazLi » ; b) distributeur en « pomme de douche ». Les barres d'erreur correspondent aux écarts-types sur la grandeur représentée, calculée sur la base de 3 réplicas de l'expérience.

Nous pouvons également analyser l'effet des vitesses superficielles liquide et gazeuse sur l'écart-type des fréquences, montré respectivement dans la Figure IV-31 et la Figure IV-32 ci-dessous. Pour le distributeur innovant comme pour la « pomme de douche », la tendance est que l'écart-type de fréquence augmente avec la vitesse superficielle du liquide (dans la gamme de $u_{L,moy}$ de 0,08 – 0,15 m/s) pour presque toutes les conditions de vitesse superficielle de gaz. Sur la base des expériences dans 12 canaux, nous avions observé au contraire une diminution de l'écart-type de fréquence avec la vitesse de liquide, mais sur la base de 2 valeurs uniquement (Figure IV-10).

Par contre, nous n'observons pas de tendance monotone entre les écarts-types de fréquence et la vitesse superficielle de gaz, comme dans le cas des 12 canaux.

a) b)

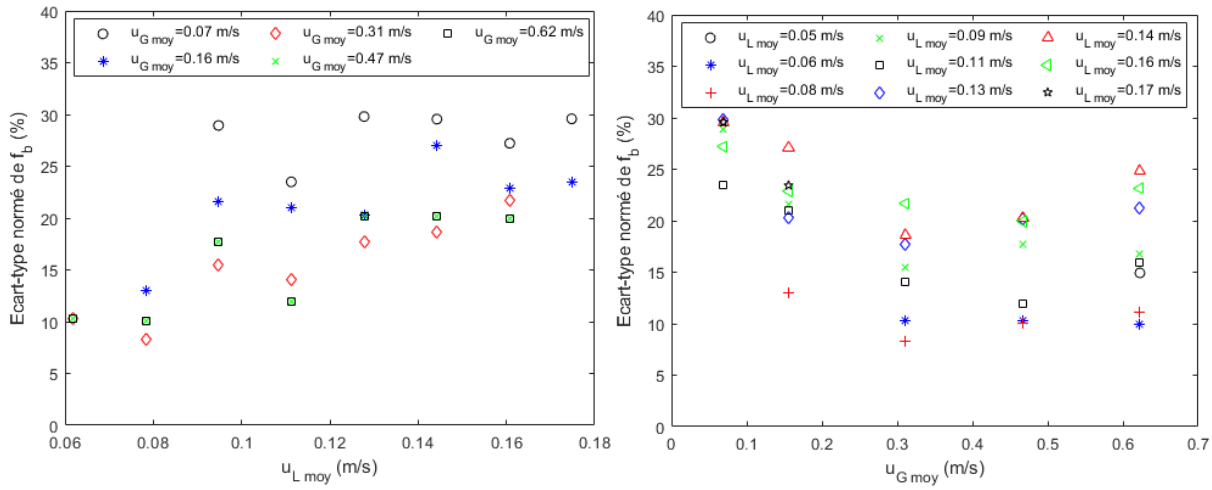


Figure IV-31. Ecart-type normé de fréquence de bulles en fonction des vitesses superficielles a) de liquide et b) de gaz pour le distributeur « DistriGazLi ».

a) b)

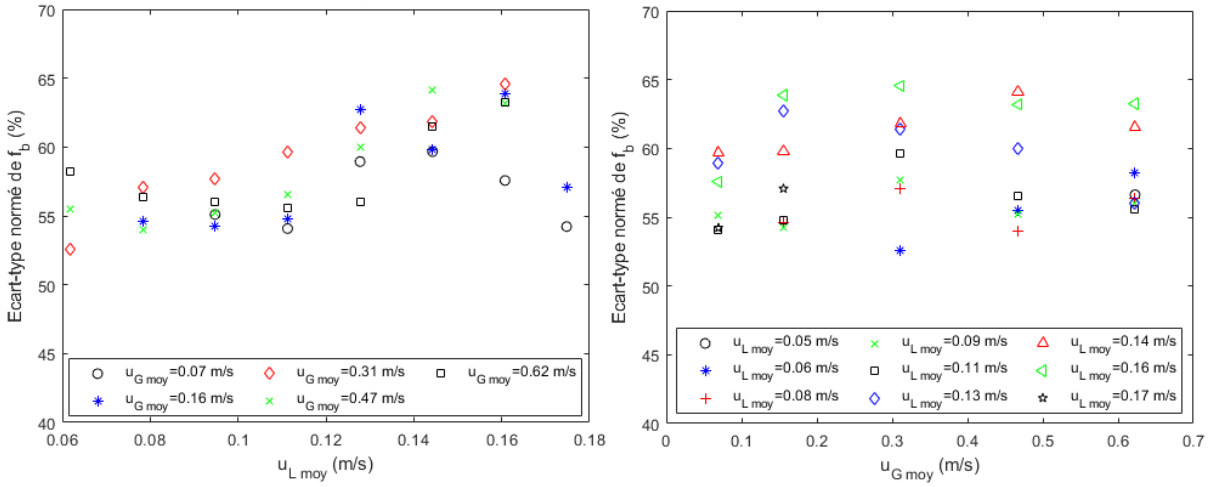


Figure IV-32. Ecart-type normé de fréquence de bulles en fonction des vitesses superficielles a) de liquide et b) de gaz pour le distributeur en « pomme de douche ».

Ces résultats sont rassemblés dans la figure ci-dessous, donnant l'écart-type des fréquences en fonction des vitesses superficielles de gaz et liquide au même temps.

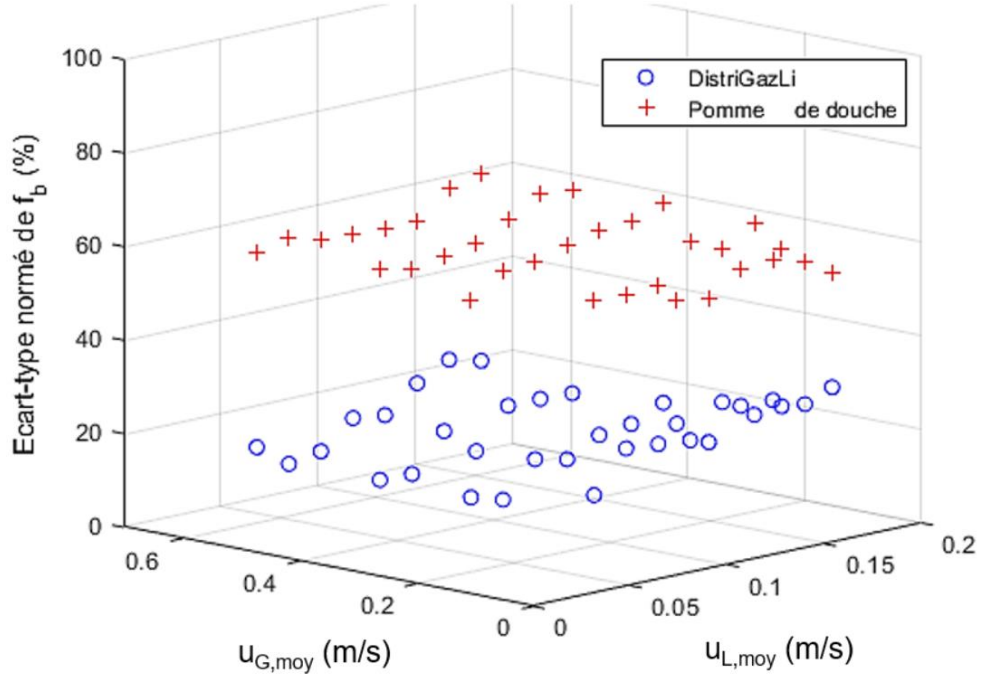


Figure IV-33. Comparaison de l'écart-type normé de fréquence de bulles en fonction des vitesses superficielles de fluides, pour les 2 distributeurs testés. Pour plus de lisibilité les barres d'erreur ont été enlevées.

En outre, le degré de maldistribution est affecté par la présence de canaux en écoulement monophasique ou stratifié dans la configuration à 84 canaux, ces types d'écoulement, observés en Figure IV-29 b pour le distributeur en « pomme de douche », donnant obligatoirement lieu à des fréquences de bulles très faibles. De ce fait, nous pouvons utiliser le second critère de maldistribution, $\tau_{distrib}$ (équation IV.2), qui tient compte du nombre de canaux en écoulement dégradé (monophasique, stratifié ou à très petites bulles), non exploitables par le capteur. Ainsi, nous pouvons distinguer la maldistribution issue des canaux en écoulement diphasique de Taylor de celle issue des canaux ayant un écoulement dégradé, sur la base de la fréquence moyenne de bulle (f_b < 30 Hz pour ces derniers). De plus, le niveau moyen du signal de tension issu du capteur permet de classifier ces écoulements dégradés selon qu'ils comportent une majorité de gaz ou une majorité de liquide (voir Tableau IV-1).

Le distributeur innovant donne une valeur moyenne de $\tau_{distrib}$ de 2% sur les 84 canaux, soit 2 canaux en écoulement dégradé. Elle est deux fois moins élevée que pour la « pomme de douche » ($\tau_{distrib}$= 5% en moyenne). La différence d'occurrence des écoulements dégradés entre les deux distributeurs peut également être illustrée par des histogrammes comptabilisant les écoulements dégradés (monophasiques, stratifiés, ou comportant de très petits bulles), comme montré en Figure IV-34 ; dans cette figure les écoulements à très petites bulles sont assimilés à un écoulement « dégradé liquide ».

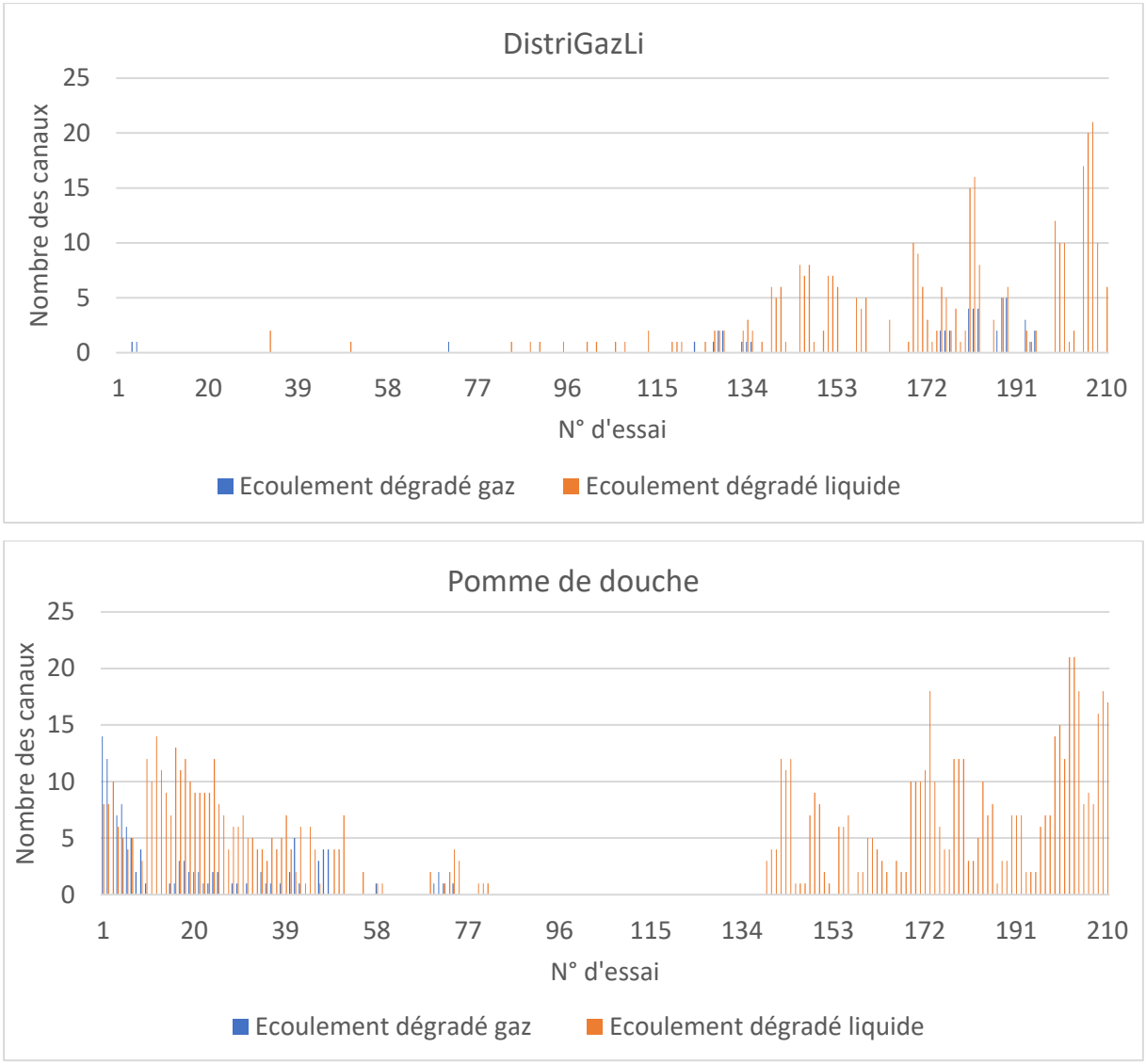


Figure IV-34. Histogrammes du nombre des canaux comportant des écoulements dégradés gaz et liquide en fonction du n° d'essai (nombre total d'essais = nombre d'expériences (35) x nombre de répétabilités (6)), pour les distributeurs « DistriGazLi » et « pomme de douche ».

Nous remarquons que pour « DistriGazLi » le nombre d'écoulements en écoulement dégradé liquide est important. Il s'avère que ces occurrences correspondent aux expériences avec un débit de liquide important, correspondant à des canaux lors des expériences n°1, 2, 5 et 7 ($u_{L,moy}$ entre 0,16 et 0,17 m/s). En revanche, la « pomme de douche » présente une occurrence très élevée d'essais en écoulements dégradés liquide lorsque le débit de liquide est élevé (expériences n°1, 2, 5, 6, 7, 11 et 12, $u_{L,moy}$ entre 0,14 et 0,17 m/s), mais aussi lorsqu'il est faible (expériences n° 28 à 35, $u_{L,moy}$ entre 0,05 et 0,08 m/s). Le nombre des canaux en écoulements dégradés gaz est aussi important lorsque le débit de liquide est maximal (expériences n°1 et 2, $u_{L,moy}$ entre 0,16 et 0,17 m/s).

IV.7.2.2 Introduction d'un nouveau critère de maldistribution

Nous proposons de combiner les 2 critères de maldistribution évalués jusqu'ici pour tenir compte de la nature de l'écoulement, Taylor diphasique ou dégradé, ainsi que de la distribution de fréquence au sein des canaux sous écoulement gaz-liquide. Le facteur combiné de maldistribution proposé est donné dans l'équation IV.5 :

$$X_{distrib} = \sigma_{f_b} \cdot (\tau_{distrib} + 1) \qquad (IV.5)$$

Ce facteur revient donc à laisser inchangé l'écart-type sur les fréquences quand tous les canaux sont en écoulement de Taylor, et à le multiplier par une valeur comprise entre 1 et 2 (selon l'importance du nombre de canaux en écoulement dégradé) lorsque des écoulements dégradés sont présents parmi les canaux.

Les résultats obtenus avec ce facteur sont présentés dans la Figure IV-35, comparant les 2 distributeurs. « DistriGazLi » donne un facteur moyen de 0,20 (valeur maximale de 0,32), contre 0,61 (valeur maximale de 0,70) pour la « pomme de douche », permettant ainsi de conclure que le distributeur développé au LGC donne sans conteste une meilleure distribution des phases gaz et liquide pour le monolithe à 84 canaux, malgré l'utilisation d'une configuration non totalement optimisée de ce distributeur - du point de vue du matériau le constituant, ici résine Vitra (optimal : résine Invicta), et du diamètre des orifices latéraux d'injection du gaz, ici 0,001 m (optimal : 0,0015 m).

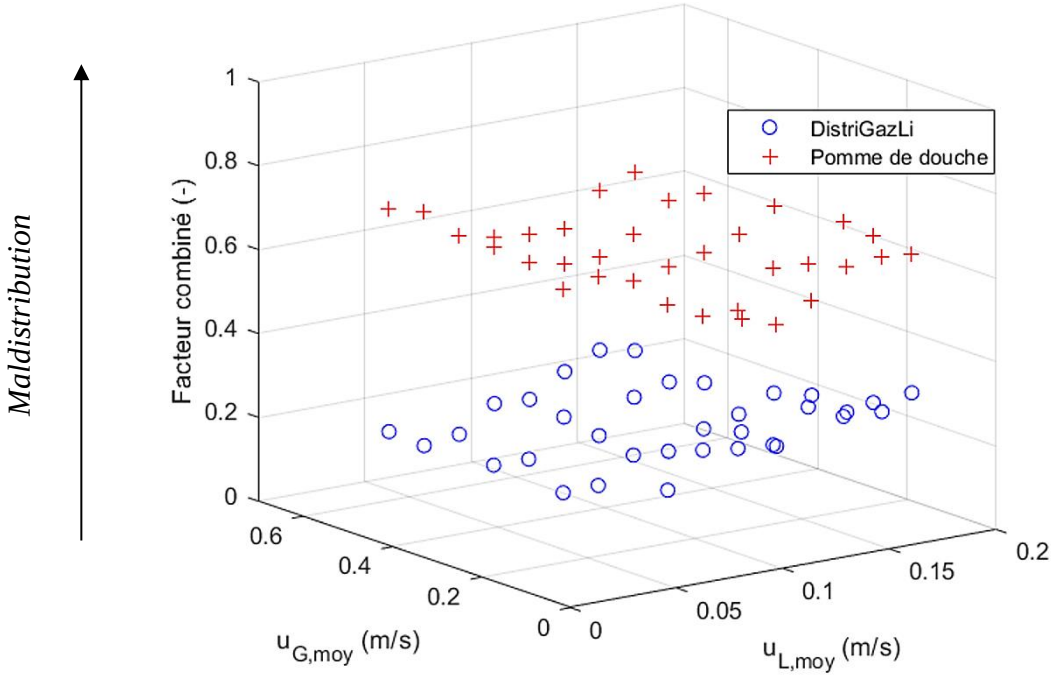


Figure IV-35. Comparaison du critère combiné de maldistribution en fonction des vitesses superficielles des fluides, pour les 2 distributeurs testés.

IV.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié le niveau de maldistribution produit par des distributeurs gaz-liquide, traditionnel et innovant, à l'aide de critères de maldistribution quantitatifs basés sur les écarts-types des paramètres hydrodynamiques clés (fréquence de bulles, vitesse de bulles et taux de gaz) et sur la proportion de canaux à écoulement dégradé (monophasique gaz ou liquide, stratifié ou à petites bulles), qui est un critère complémentaire.

En se basant sur ces critères, nous avons identifié comment améliorer la configuration du distributeur innovant « DistriGazLi », en investiguant, à l'aide d'une barrette amovible à 12 canaux, l'effet de la mouillabilité et de l'état de surface du matériau constituant le dispositif de formation de l'écoulement diphasique, puis celle de la géométrie de cette jonction en T. Nous avons ainsi comparé 3 types de résines d'impression 3D : PA12 (fusion de poudre), Vitra et Invicta (résines pour la stéréolithographie) ; cette dernière, la plus hydrophile, donne le plus faible niveau de maldistribution. Ensuite, l'impact de l'orifice latéral d'injection du gaz a également été analysé, en comparant les résultats obtenus pour des diamètres de 0,001 m, 0,0015 m et 0,002 m et des barrettes fabriquées en résine Invicta. Nous avons constaté que la maldistribution des phases était importante pour le plus grand diamètre, tandis que le plus petit diamètre donnait des bulles très proches et des écarts-types parfois élevés sur les grandeurs hydrodynamiques mesurées en aval. Pour cette étude, le diamètre de 0,0015 m a montré des écoulements de Taylor réguliers, ainsi qu'un faible niveau de maldistribution.

Des expériences dédiées réalisées avec trois longueurs totales de monolithes différentes ont montré que la perte de charge globale entre la sortie du distributeur et la sortie du réacteur a un effet positif sur la qualité de la distribution, et ce d'autant plus que le taux de gaz moyen est élevé dans les canaux. Une étude sur la stabilité des écoulements issus du distributeur « DistriGazLi » en configuration optimale a également été menée, en comparant le niveau de maldistribution en 3 positions dans le monolithe : les écoulements en régime de Taylor ne sont que très peu modifiés par rapport à leur sortie du distributeur, tandis que ceux en régime à bulles (et à vitesses modérées) voient leur homogénéité se dégrader assez fortement, avec notamment des phénomènes de coalescence des bulles.

Enfin, nous avons pu comparer la performance du distributeur innovant « DistriGazLi » à un distributeur classique du type « pomme de douche » pour le pilote à 84 canaux. Les critères sur l'écart-type de la fréquence de bulles et sur la nature de l'écoulement ont été combinés afin de mieux représenter la répartition des phases dans les canaux. Nous avons montré que le distributeur innovant donne un facteur de maldistribution moyen de 20% contre 61% pour la « pomme de douche ». Nous pouvons donc conclure à une meilleure répartition des phases pour ce nouveau distributeur, et ce d'autant plus qu'il n'a pas été ici testé dans sa version optimale.

Chapitre V. DEVELOPPEMENT D'UN MODELE PHENOMENOLOGIQUE POUR UN REACTEUR MONOLITHE EN ECOULEMENT DE TAYLOR AVEC MALDISTRIBUTION

Chapitre V. Développement d'un modèle phénoménologique pour un réacteur monolithe en écoulement de Taylor avec maldistribution 141

V.1 Démarche d'identification d'un modèle hydrodynamique pour un réacteur monolithe 144

V.2 Matériels et méthodes de la campagne de DTS expérimentale 146

V.2.1 Description de la configuration du pilote et du système d'injection du traceur 146

V.2.2 Protocole de traçage et campagne d'expériences 147

V.3 Résultats et analyse des signaux de traçage des canaux 150

V.3.1 Courbes temporelles de traçage 150

V.3.2 Analyse des courbes de traçage 155

V.3.3 Suite de la démarche 158

V.4 Modèle hydrodynamique Piston-Dispersion-Echange pour l'écoulement de Taylor 158

V.4.1 Mise en place du modèle Piston-Dispersion-Echange 158

V.4.2 Description de la méthode numérique utilisée pour modéliser le transport d'espèces en écoulement de Taylor sur la base du modèle hydrodynamique PDE 161

V.4.3 Analyse de sensibilité des courbes DTS aux paramètres du modèle en canal unique 161

V.4.4 Lien « physique » entre les caractéristiques de l'écoulement de Taylor et les paramètres du modèle choisi : Dax, *k.a et ϕ, puis* PePDE *et N 166*

V.4.4.1 Coefficient de dispersion axiale 166

V.4.4.2 Coefficient d'échange entre les zones dynamique et stagnante 168

V.4.4.3 Fraction volumique liquide de la zone dynamique 169

V.4.4.4 Nombre de Péclet PePDE 170

V.4.4.5 Nombre adimensionnel d'échange entre zones : N 170

V.4.4.6 Synthèse : impact des caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement de Taylor sur les paramètres du modèle PDE 171

V.4.5 Cas du réacteur monolithe : association des canaux en parallèle 171

V.5 Influence de la maldistribution sur la DTS du monolithe : étude *via* le modèle PDE 172

V.5.1 Démarche de la modélisation de l'hydrodynamique globale d'un réacteur monolithe soumis à une maldistribution 172

V.5.1.1 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour des distributions de phases théoriques 172

V.5.1.2 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour des distributions des phases expérimentales 174

V.5.1.3 Démarche de modélisation développée 175

V.5.2 Maldistributions artificielles des phases : étude de l'impact sur le degré de mélange apparent du monolithe 176

V.5.2.1 Distribution basée sur la variation des vitesses de bulles U_b 178

V.5.2.2 Distributions basées sur la variation des taux de gaz ε_G 181

V.5.3 Maldistributions expérimentales des phases : étude de l'impact sur le degré de mélange apparent du monolithe 184

V.5.3.1 Effet des paramètres hydrodynamiques expérimentaux, en supposant une distribution uniforme 186

V.5.3.2 Effet couplé des distributions sur U_b et ε_G 189

V.5.4 Synthèse, recommandations 194

V.6 Couplage du modèle hydrodynamique d'un monolithe complet avec une réaction chimique en phase liquide 195

V.6.1 Modèle PDE avec terme source de réaction, et méthode de résolution 195

V.6.1.1 Couplage du modèle PDE avec le terme source de réaction chimique et le terme de transfert de masse gaz-liquide : 195

V.6.1.2 Modélisation du transfert de masse gaz-liquide pour l'absorption réactive d'un gaz A dans un liquide B en excès (cas 3 et 4). 196

V.6.1.3 Calcul du rendement global sur le réacteur 198

V.6.1.4 Maldistributions étudiées, performance du réacteur et choix des grandeurs fixes du problème : 199

V.6.2 Maldistributions artificielles des phases : étude de l'impact sur la performance du monolithe 200

V.6.2.1 Cas 1 : réaction sans transfert de masse 201

V.6.2.2 Cas 2 : transfert de masse sans réaction 203

V.6.2.3 Cas 3 : réaction avec transfert de masse sans pré-saturation de gaz dans la phase liquide 206

V.6.2.4 Cas 4 : réaction avec transfert de masse avec une pré-saturation de gaz dans la phase liquide 210

V.6.2.5 Synthèse de l'impact de maldistributions théoriques sur la performance chimique du monolithe de 12 canaux 213

V.6.3 Perspectives : étude de l'impact de maldistributions expérimentales des phases sur la performance du monolithe 214

V.7 Conclusion 215

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, dans le domaine des réacteurs monolithes d'éventuels défauts à l'injection des fluides peuvent induire une mauvaise distribution des phases dans les canaux, ce qui cause des temps de séjour inégaux entre les canaux pour chacune des phases en présence, induisant une pseudo-dispersion, ou autrement dit du « mélange », au sein du réacteur. La performance de l'appareil, comme le taux de conversion, voire la sélectivité de la réaction chimique mise en jeu, peut alors être affectée par le degré de maldistribution dans les canaux. De ce fait, il est crucial de prendre en compte cette information lors de la conception de réacteurs structurés multiphasiques, ou lors du choix de leurs conditions de fonctionnement.

La réaction chimique ayant lieu dans la phase liquide, on cherchera dans ce chapitre à établir un modèle d'écoulement pour le liquide dans un monolithe, qui pourra être couplé aux phénomènes de transfert gaz-liquide et de réaction chimique, pour ainsi établir un modèle phénoménologique complet du réacteur. Un tel modèle permettra donc *in fine* d'évaluer l'effet de la distribution des phases dans les canaux sur la performance d'un réacteur monolithe.

Ce chapitre vise à établir un modèle phénoménologique complet pour un réacteur monolithe. Dans un premier temps, nous expliquerons la stratégie envisagée. Puis nous chercherons à identifier un modèle pertinent d'écoulement de la phase liquide, qui soit en accord avec l'hydrodynamique dans les canaux du dispositif expérimental utilisé. Pour cela, nous nous appuierons sur des courbes de traçage réalisées expérimentalement.

Ensuite, l'hydrodynamique du réacteur complet sera modélisée par combinaison des modèles hydrodynamiques de tous les canaux. Le degré de mélange apparent du réacteur sera évalué pour différents états de maldistribution et une étude de sensibilité à la distribution des vitesses de bulles puis à celle des rétentions gazeuses sera menée. Enfin, on montrera comment la performance du réacteur peut être prédite grâce au couplage du modèle hydrodynamique avec le transfert de masse entre phases, et/ou avec une réaction chimique de cinétique donnée.

L'objectif de cette étude est donc d'estimer l'effet de la maldistribution sur la performance d'une réaction chimique menée en réacteur de type monolithe, de manière à identifier les caractéristiques les plus impactantes de la distribution des phases, et les défauts d'injection à éviter absolument lors de la conception des réacteurs monolithes.

V.1 Démarche d'identification d'un modèle hydrodynamique pour un réacteur monolithe

La démarche envisagée dans ce travail pour la mise au point d'un modèle phénoménologique d'écoulement de la phase liquide dans un réacteur monolithe complet consiste à identifier un modèle d'écoulement pour chaque canal du monolithe, puis à considérer le mélange, en sortie de monolithe, des courants liquides issus des divers canaux. Cette démarche s'appuie ici sur le concept de Distribution des Temps de Séjour (ci-après « DTS ») présenté au chapitre 1, et sur la méthodologie de traçage de l'appareil.

L'utilisation industrielle des réacteurs monolithes nécessite la présence en sortie d'un dispositif permettant de récupérer, puis de séparer, les débits de liquide et de gaz des canaux. Il

s'agit en général d'un collecteur équipé d'une sortie en partie basse pour évacuer le liquide, et d'une sortie en hauteur pour évacuer le gaz. L'écoulement de la phase liquide dans ce dispositif présente bien sûr un degré de mélange spécifique, décrit par une fonction spécifique de distribution de séjour.

De même, en amont du réacteur, la traversée du distributeur par la phase liquide comporte un degré de mélange (ou fonction DTS spécifique), dont il faudra tenir compte.

Lors d'une étude expérimentale des temps de séjour de l'ensemble {distributeur + monolithe + collecteur en sortie}, le traceur est *a priori* injecté dans la canalisation d'alimentation de la chambre de liquide du distributeur, suit son chemin au sein du distributeur et des canaux du monolithe, et est détecté en sortie du collecteur. Dans ce cas, la distribution des temps de séjour obtenue est une combinaison de celles des trois zones de l'appareil.

La distribution des temps de séjour dans le distributeur peut être obtenue en comparant les signaux obtenus en entrée de la chambre liquide et en sortie du distributeur. Faute de temps, elle n'a pas été étudiée.

Pour obtenir la distribution de temps de séjour spécifique de chaque canal du monolithe, la stratégie envisagée est de détecter le passage d'un traceur salin en utilisant les capteurs résistifs utilisés préalablement pour la caractérisation des écoulements. Pour cela, on place un capteur de part et d'autre de blocs monolithes montés en série. On peut ainsi obtenir pour chaque canal deux courbes temporelles de traçage, que l'on peut déconvoluer entre elles pour en extraire la fonction DTS spécifique, s'affranchissant de la façon dont le traceur entre dans les canaux en sortie du distributeur, c'est-à-dire en s'affranchissant de l'impact que l'imperfection du signal d'entrée aurait pu avoir sur la détermination des fonctions DTS. Nous étudierons donc la distribution des temps de séjour du bloc monolithe seul, en faisant l'hypothèse que le traceur est injecté au même instant à l'entrée de tous les canaux, et que le mélange des courants issus des canaux est instantané en sortie du monolithe. La distribution des temps de séjour étudiée tiendra donc uniquement compte de la pseudo-dispersion induite par la diversité des écoulements dans les canaux.

Dans notre étude, aucun réservoir n'est placé en sortie des canaux, afin d'éviter que le volume important de ce collecteur ne masque les effets du distributeur et du monolithe.

Un modèle phénoménologique pertinent pour les écoulements de type Taylor (mais qui sera également valable *a priori* pour ceux de type « bubbly » ou à bulles), sera choisi parmi les modèles décrits au chapitre I. Sur la base des fonctions DTS identifiées expérimentalement dans notre pilote, l'idée est d'identifier, pour chaque canal et chaque condition expérimentale, les valeurs des paramètres du modèle (par exemple Pe et K, pour le modèle Piston – Echange), et de mesurer par ailleurs les caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement correspondant - typiquement u_{TP}, ε_G, et f_b (toutes les autres grandeurs pouvant en être déduites). Idéalement, on pourra utiliser l'ensemble de cette base de données pour établir une corrélation entre les paramètres constitutifs du modèle et les caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement gaz-liquide en canal, ouvrant la possibilité pour la suite de disposer d'un modèle d'écoulement pour tout canal en écoulement de type Taylor dont les caractéristiques hydrodynamiques seraient connues, sans avoir à effectuer d'expérience de traçage.

V.2 Matériels et méthodes de la campagne de DTS expérimentale

La configuration spécifique du pilote pour cette étude de traçage, ainsi que le protocole expérimental et la description des essais réalisés, sont décrits dans ce qui suit. Le traceur choisi est un traceur salin qui peut être détecté par un conductimètre en entrée du pilote et par les capteurs résistifs, utilisés préalablement pour la caractérisation des écoulements, dans le monolithe. Pour cette campagne expérimentale, le traceur utilisé est une solution aqueuse de potasse (KOH).

A la lumière de la comparaison des distributeurs et de l'étude de l'impact du matériau et de taille de diamètre réalisés dans le Chapitre IV, nous avons utilisé la version optimale (voir Chapitre IV, section IV.4) du distributeur de type « DistriGazLi » équipé d'une barrette en résine Invicta avec des orifices de 1,5 mm pour l'alimentation en gaz des 12 canaux (voir Figure II-5).

V.2.1 Description de la configuration du pilote et du système d'injection du traceur

Le pilote a été adapté pour pouvoir injecter le traceur dans la canalisation d'alimentation en liquide du distributeur (voir Chapitre II section II.1.1), et le détecter à l'aide des capteurs résistifs placés de part et d'autre de deux blocs monolithes ; à noter que la hauteur du pilote ne permettait pas de mettre plus de deux blocs monolithes en série. La configuration spécifique du pilote est représentée sur le schéma de la figure V.1.

On peut voir qu'une boucle a été mise en place pour l'injection de la solution de traçage, boucle constituée d'un volume contenant le traceur et d'un jeu de vannes permettant au débit d'alimentation en liquide de passer (ou non) par la zone contenant le traceur. En aval de cette boucle d'injection, une sonde de conductivité permet si besoin de comptabiliser la quantité de traceur injectée, de déterminer le moment de son passage et le type d'impulsion réalisé.

Enfin, pour caractériser la distribution des temps de séjour dans le monolithe, les capteurs résistifs sont placés en aval du distributeur et sont espacés au maximum l'un de l'autre pour maximiser le temps de passage de l'écoulement liquide entre eux, et ainsi faciliter la déconvolution ultérieure des signaux de traçage. Pour se faire, deux blocs monolithes ainsi que la fenêtre transparente de visualisation des écoulements dans les 12 canaux ont été insérés entre les deux capteurs, pour une distance totale de 35 cm. D'après l'ordre de grandeur des vitesses de phases u_{TP} dans nos canaux (> 0,35 $m.s^{-1}$), les fluides parcourent cette distance entre les 2 capteurs résistifs en moins d'1 seconde. Ce délai est grand devant la période d'acquisition (inférieure à 10^{-3} s), mais, pour un canal donné, les signaux induits par le passage de la solution saline à travers les électrodes des capteurs risquent de se superposer (si leur variance est de l'ordre de 1 s^2).

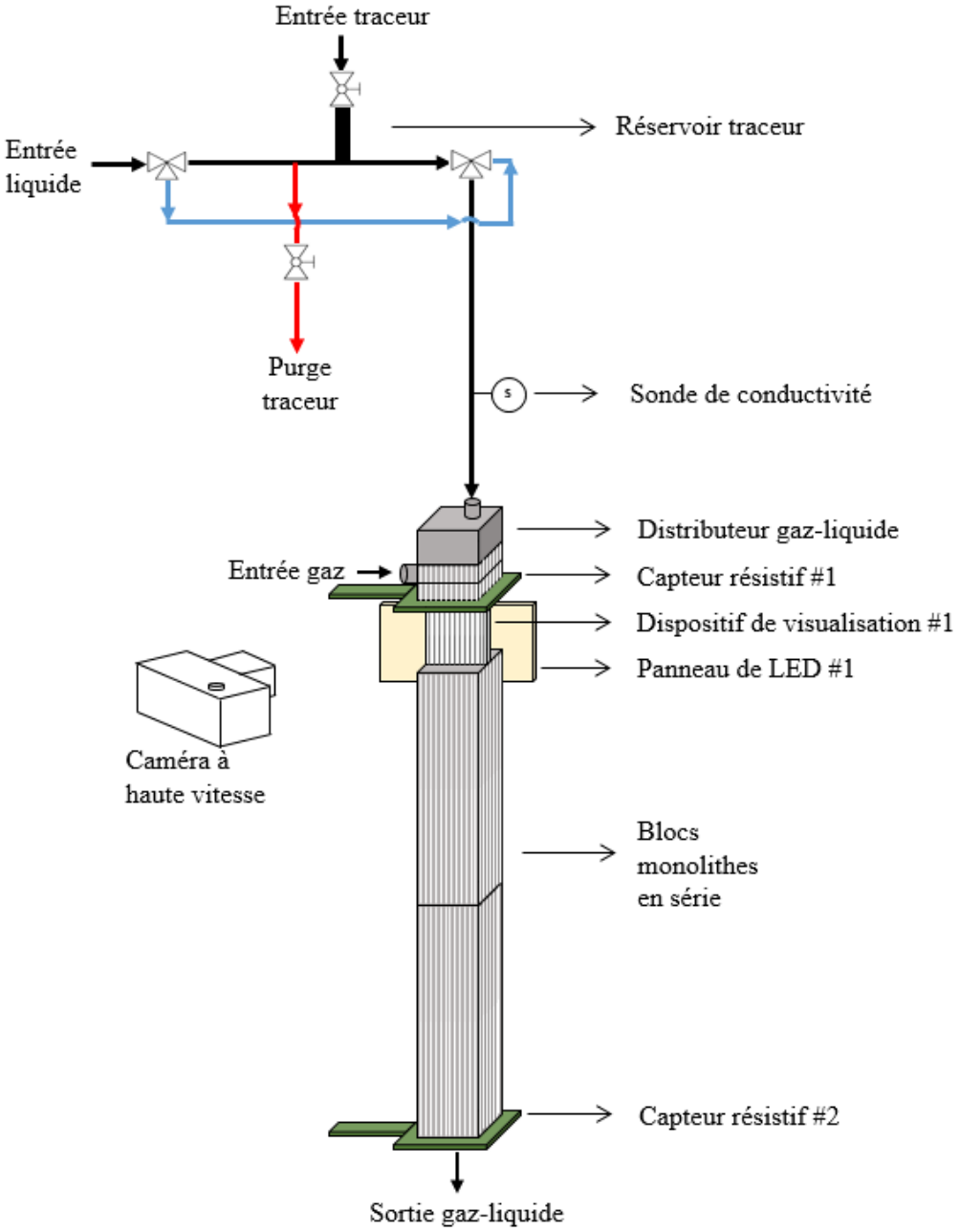


Figure V-1. Schéma du dispositif expérimental utilisé pour l'étude DTS.

V.2.2 Protocole de traçage et campagne d'expériences

Pour chaque expérience, 40 mL d'une solution de potasse, préparée à la concentration de 0,04 mol/L, sont injectés via la boucle d'injection. Cette concentration a été ajustée pour permettre une bonne détection du traceur à la fois par le conductimètre amont et par les capteurs résistifs. Le protocole expérimental est présenté sous forme d'organigramme en Figure V-2.

Une campagne de 12 expériences a été réalisée pour des couples de débits d'alimentation en gaz en liquide contrastés. Les conditions de ces expériences sont précisées dans le tableau V-1 ci-dessous.

Les écoulements obtenus, filmés par la caméra rapide, montrent, selon les débits globaux de gaz et de liquide utilisés, des écoulements de type Taylor et de type « bubbly » (bulles de diamètre proche de celui du canal), comme on peut le voir en Figure V-3. A noter que, une fois encore pour le distributeur « DistriGazLi », chacune des 12 expériences présente une bonne homogénéité des écoulements générés dans les 12 canaux.

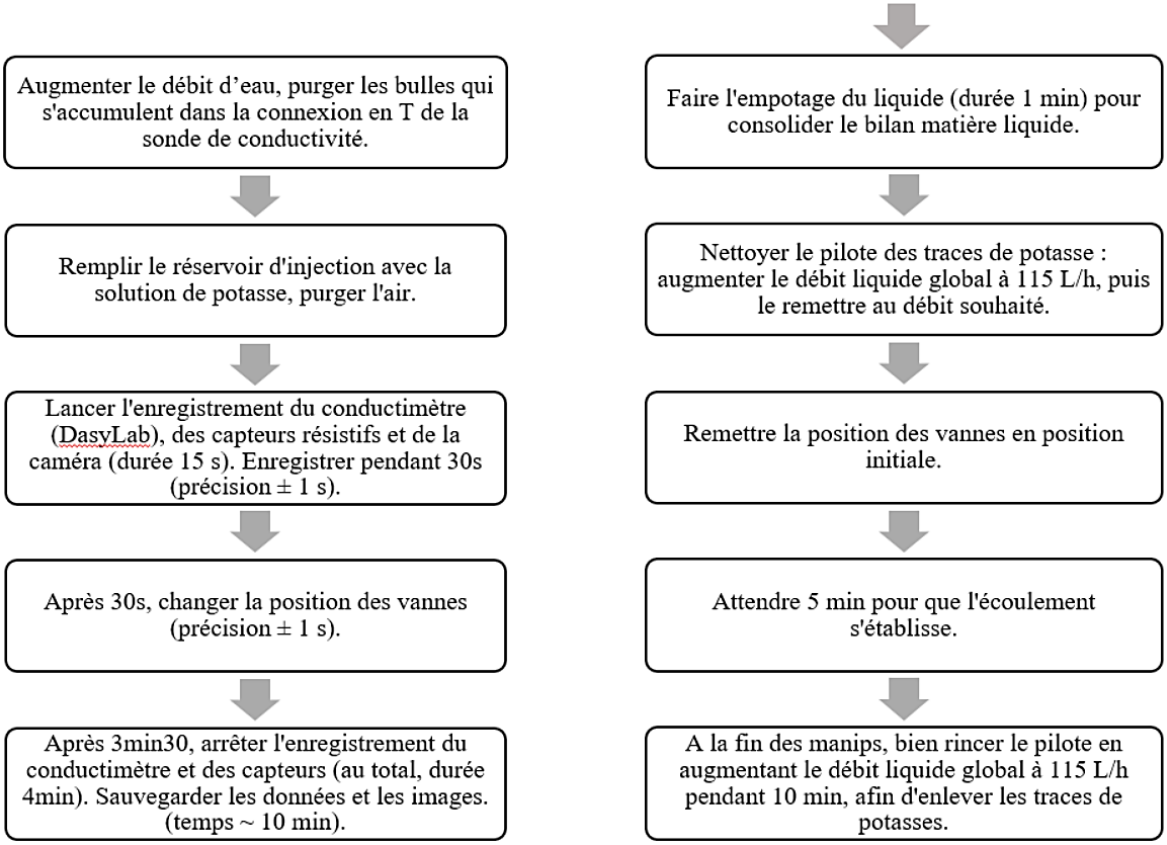


Figure V-2. Protocole des expériences de traçage.

Tableau V-1. Expériences réalisées dans la campagne expérimentale de traçage.

N° expérience	Q_L (m^3/s)	Q_G (m^3/s)	$u_{L,moy}$ (m/s)	$u_{G,moy}$ (m/s)	Régime observé
1	6,9E-06	6,5E-06	0,18	0,17	Taylor
2	6,9E-06	1,5E-05	0,18	0,41	Taylor
3	6,9E-06	2,4E-05	0,18	0,65	Taylor
4	9,2E-06	6,5E-06	0,24	0,17	Taylor
5	9,2E-06	1,5E-05	0,24	0,41	Taylor
6	9,2E-06	2,4E-05	0,24	0,65	Taylor
7	1,2E-05	6,5E-06	0,31	0,17	A bulles
8	1,2E-05	1,5E-05	0,31	0,41	Taylor
9	1,2E-05	2,4E-05	0,31	0,65	Taylor
10	1,4E-05	6,5E-06	0,37	0,17	A bulles
11	1,4E-05	1,5E-05	0,37	0,41	A bulles
12	1,4E-05	2,4E-05	0,37	0,65	Taylor

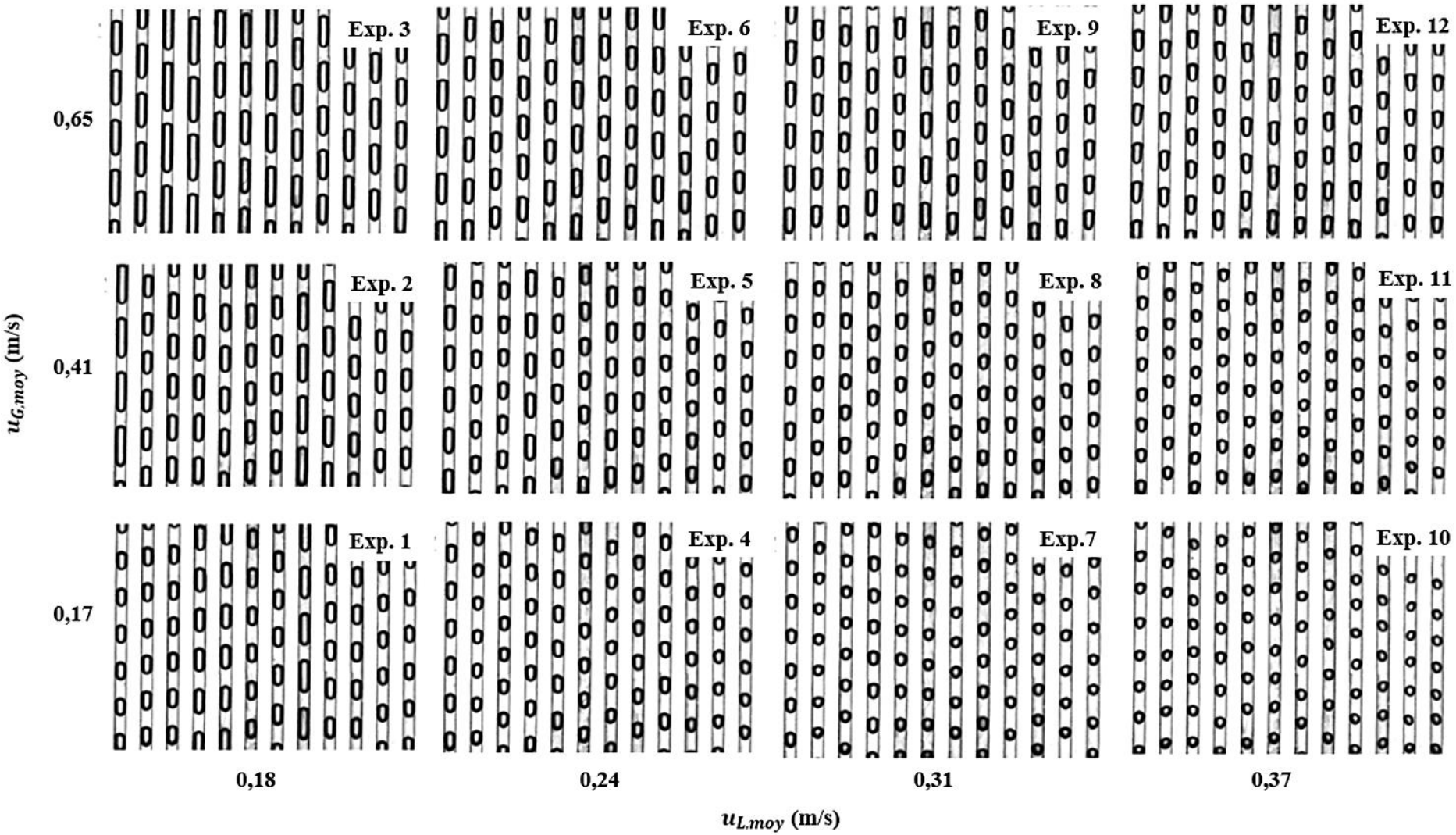


Figure V-3. Ecoulements correspondant aux expériences de traçage.

Les caractéristiques des écoulements obtenus, en termes de fréquence de passage de bulles (f_b), de vitesse de phases (u_{TP}), de taux de gaz (ε_G), et de longueurs de bulles (L_b), ont été mesurées pour chaque canal à l'aide du traitement des images (selon la méthode décrite aux chapitres II et III) prises par le dispositif de visualisation placé après le capteur 1 (voir Figure V-1). Ces valeurs sont reportées en Annexe C. Au global, les plages de valeurs obtenues pour f_b, u_{TP}, ε_G, et L_b, sont [47 ; 376 Hz], [0,26 ; 0,82 m/s], [0,28 ; 0,86] et [0,001 ; 0,012 m], respectivement. Ces plages de conditions sont conformes aux plages de valeurs étudiées au chapitre III pour mettre le capteur résistif au point et les deux dispositifs de mesure sont en bonne cohérence. A titre d'exemple, les vitesses de phases u_{TP} mesurées par traitement d'image d'une part, et via le premier capteur résistif d'autre part, sont moyennées sur les 12 canaux pour chaque expérience. Ces moyennes sont confrontées sur le diagramme de parité de la Figure V-4 : un assez bon accord est constaté, l'ensemble des mesures étant compris dans le faisceau (-20% ; +20%).

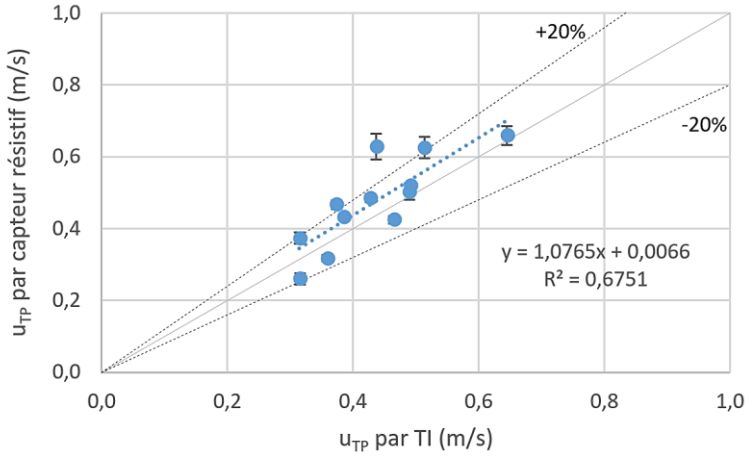


Figure V-4. Mesure de vitesse d'ensemble des écoulements de la campagne DTS : vérification de la cohérence entre les 2 méthodes de mesure.

V.3 Résultats et analyse des signaux de traçage des canaux

V.3.1 Courbes temporelles de traçage

Après l'injection du traceur dans le courant d'alimentation en liquide du distributeur, la solution saline est mélangée et distribuée à l'entrée des différents canaux. Ceux-ci ne reçoivent pas le traceur aux mêmes moments. Le traceur passe par le premier capteur résistif, puis par le second. On peut vérifier que les tensions délivrées par ces capteurs au moment du passage du traceur salin sont nettement plus élevées que celles correspondant à l'écoulement de Taylor en air et eau, et sont donc aisément distinguables du reste du signal correspondant (Figure V-5).

A ce stade, la méthodologie DTS passe souvent par une étape de quantification de la quantité de traceur injectée et de celle qui est détectée par le (ou les) capteur(s) : comme dit au chapitre 1, les courbes temporelles correspondantes sont intégrées et les intégrales (moment d'ordre 0) sont comparées. Cela permet de s'assurer, en particulier, que le(s) capteur(s) placé(s) en aval de l'alimentation du réacteur perçoivent bien tout le traceur injecté, et qu'ainsi la

distribution des temps de séjour observée est fiable car complète. Cette étape aurait nécessité un étalonnage de chacune des 12 paires d'électrodes utilisées avec des solutions de potasse de différentes concentrations, et ce pour chaque capteur, afin d'établir un lien quantitatif entre le signal acquis aux bornes de ces électrodes et la concentration en potasse qui les traverse. Pour cela, il aurait fallu mettre au point un dispositif spécifique, permettant de contrôler l'alimentation en liquide de chaque canal, séparément. Cette information n'étant pas critique, cela n'a pas été réalisé, faute de temps.

L'allure des signaux bruts obtenus, montrés en Figure V-5, est similaire à celle des courbes de traçage des écoulements de Taylor obtenues dans la littérature, qu'elles soient issues d'expériences ou de modèles mathématiques (voir Chapitre I section I.1) : une montée raide, une redescente plus douce avec une « traînée ». On remarque également que ces signaux sont très bruités, du fait du passage des bulles entre les électrodes.

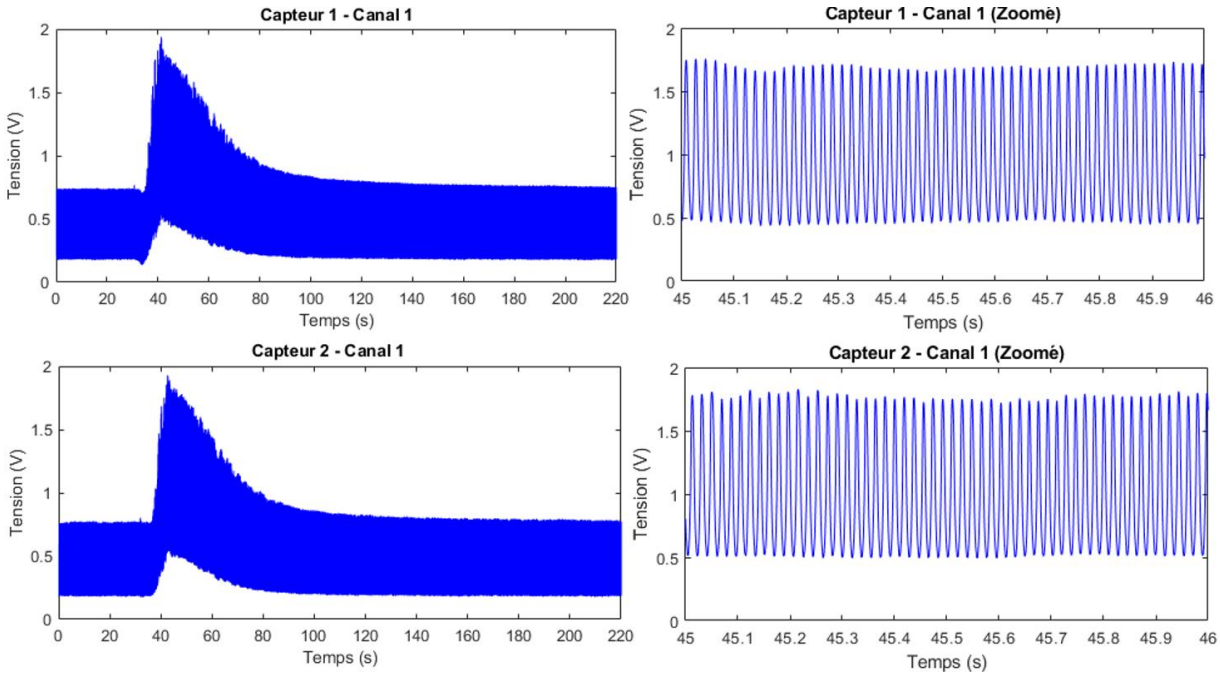


Figure V-5. Zoom sur des signaux bruts de traçage du canal 1, obtenus avec les 2 capteurs résistifs, pour l'expérience n° 1.

Les signaux sont alors filtrés à l'aide de Matlab pour supprimer les fréquences supérieures à 10 Hz ; on leur soustrait également la tension moyenne correspondant à l'écoulement de Taylor en eau (sans traceur). Les signaux ainsi traités sont montrés en Figure V-6 pour les exemples des expériences 1, 5 et 11.

a)

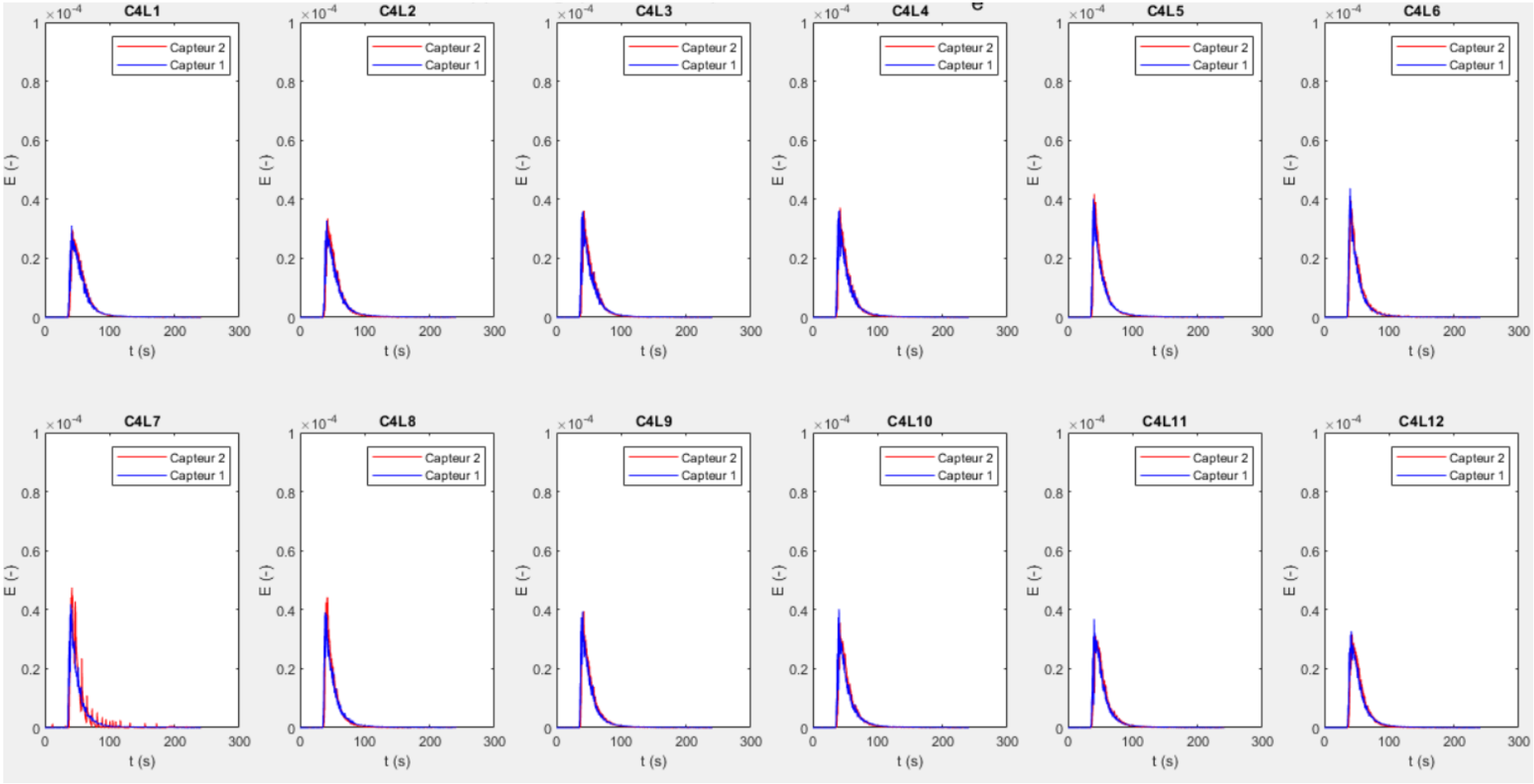


Figure V-6. Signaux temporels de traçage, après application d'un filtre passe-bas (10 Hz) ; a) expérience n° 1 ; b) expérience n° 5 ; c) expérience 11.

b)

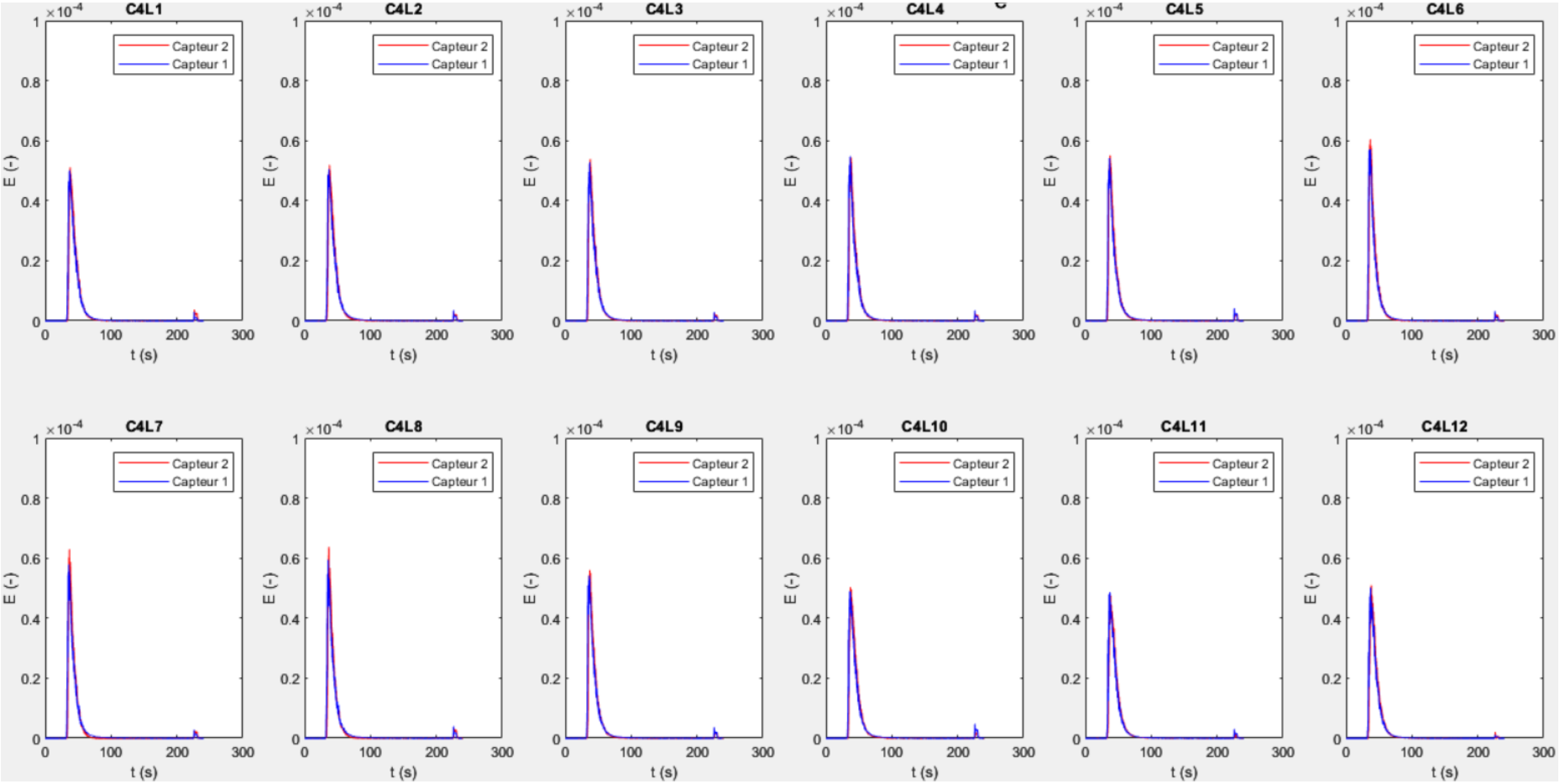


Figure V-6. Signaux temporels de traçage, après application d'un filtre passe-bas (10 Hz) ; a) expérience n° 1 ; b) expérience n° 5 ; c) expérience 11.

c)

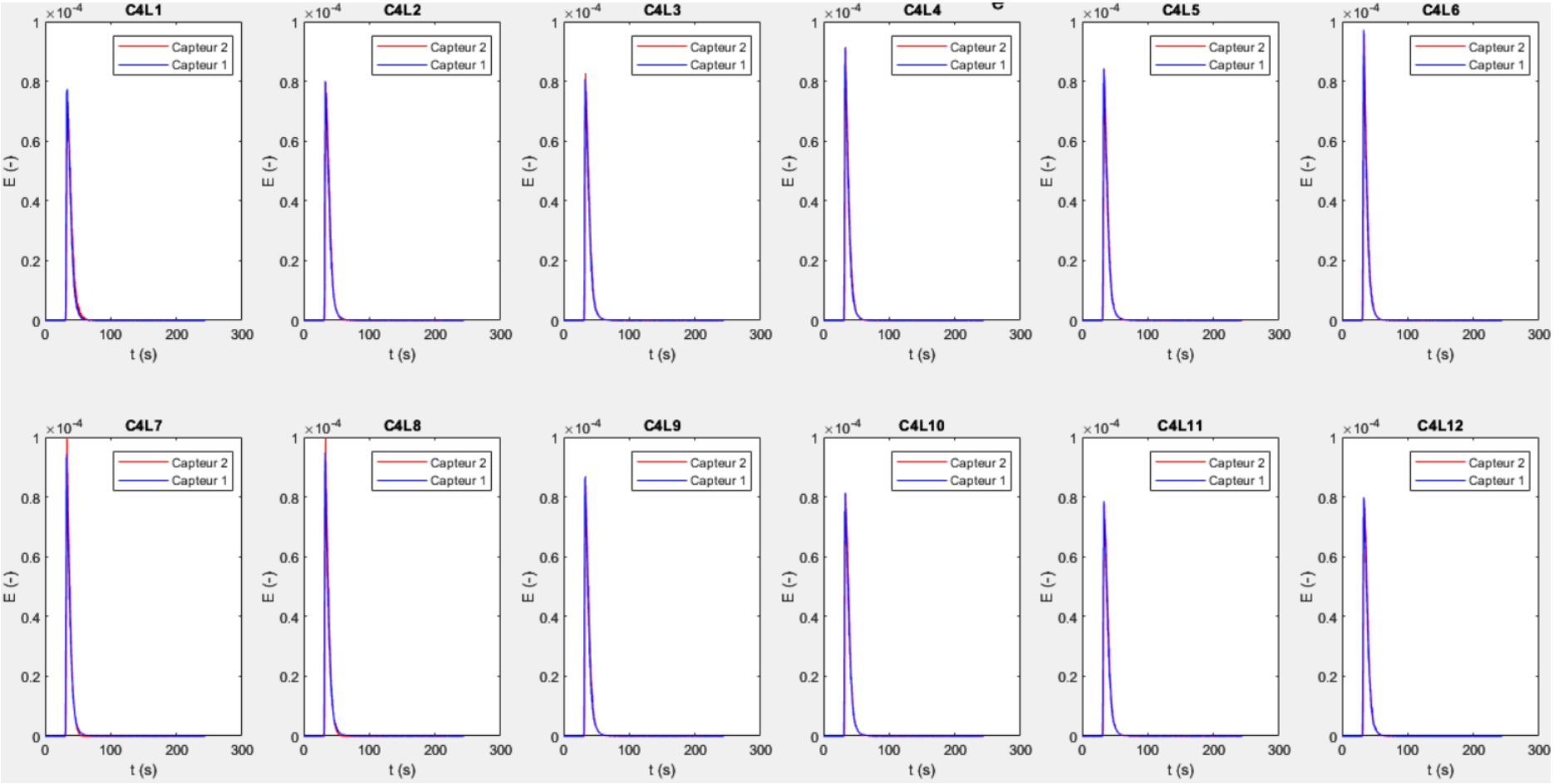


Figure V-6. Signaux temporels de traçage, après application d'un filtre passe-bas (10 Hz) ; a) expérience n° 1 ; b) expérience n° 5 ; c) expérience 11.

De la Figure V-6 a à la Figure V-6 c, les débits globaux (gaz + liquide) alimentant le distributeur augmentent - autrement dit : la vitesse u_{TP} moyenne de circulation dans les canaux augmente. En revanche, pour les 3 expériences concernées, on peut vérifier sur la Figure V-3 que les écoulements sont très semblables : écoulements de Taylor avec des tailles de bulles et de bouchons similaires. On peut observer sur la Figure V-6 que la forme des signaux temporels de traçage évolue, montrant une variance qui diminue lorsque la vitesse de l'écoulement augmente, ce qui, comme on le verra en section V.4.3, correspond essentiellement à l'augmentation du nombre de Péclet avec la vitesse globale de l'écoulement, les autres caractéristiques de ces trois écoulements étant similaires par ailleurs.

A noter que le bruit des signaux, lié en partie à la présence de bulles, n'a pas pu être totalement supprimé, malgré l'utilisation de différents filtres. On peut remarquer aussi que, pour chaque canal interrogé, les signaux de traçage temporels des capteurs 1 et 2 sont presque identiques. Cela indique que la structure des écoulements n'évolue pas significativement lors du parcours d'un capteur à l'autre : la base de l'écoulement est de type « piston ». Toutefois, les deux signaux sont très proches dans le temps et se superposent presque, ce qui signifie que, comme nous le craignions, la déconvolution ne sera pas possible entre les 2 signaux temporels issus d'un même canal.

V.3.2 Analyse des courbes de traçage

Le bruit des signaux et le très court temps de passage entre les deux capteurs ne permettant pas d'appliquer, pour tous les canaux interrogés et quelle que soit l'expérience, une déconvolution entre les deux signaux, nous nous sommes orientés vers une approche plus simple, basée sur le théorème de Van der Laan (Houzelot, 2013), développé pour les systèmes dynamiques linéaires. Considérons un signal d'entrée combiné à la fonction de transfert d'un système linéaire, et le signal de sortie résultant. Le théorème de Van der Laan dit que le moment d'ordre n de la fonction de transfert est égal à la différence des moments d'ordre n des signaux d'entrée et de sortie du système.

Pour obtenir les moments d'ordre 1 (temps de séjour moyen) et d'ordre 2 (variance) des signaux temporels de traçage issus des capteurs résistifs, nous avons appliqué à chacun des signaux le traitement numérique suivant, classique dans la démarche DTS :

L'intégrale du signal temporel, nommée I, est calculée numériquement, par la méthode des trapèzes. Le signal temporel est normé par son intégrale I, conduisant à la fonction de distribution des temps de séjour E(t).

Le temps moyen du signal normé, ou moment d'ordre 1, est calculé numériquement, selon la méthode des trapèzes avec un nombre d'éléments N et un pas de temps Δt, par :

$$\bar{t} = \mu_1 = \int_0^\infty t.E(t)dt = \int_0^\infty f_1 dt = \left\{ \frac{[f_1(t=0) + \lim_{\infty} f_1(t)]}{2} + \sum_{k=1}^{N-1} f_1(t_k) \right\} \Delta t \qquad (V.1)$$

La variance du signal normé est calculée numériquement, selon la méthode des trapèzes, par :

$$\sigma^2 = \mu_2{}' = \int_0^\infty (t - \bar{t_s})^2 E(t) dt = \int_0^\infty f_2 dt = \left\{ \frac{[f_2(t=0) + \lim_{\infty} f_2(t)]}{2} + \sum_{k=1}^{N-1} f_2(t_k) \right\} \Delta t \quad (V.2)$$

On peut alors, pour chaque expérience et chaque canal, calculer le temps de séjour moyen et la variance de la fonction DTS correspondante par soustraction des moments des 2 signaux temporels normés issus des capteurs résistifs :

$$\bar{t} = \overline{t_{capteur\ 2}} - \overline{t_{capteur\ 1}} \quad (V.3)$$

$$\sigma^2 = \sigma^2_{capteur\ 2} - \sigma^2_{capteur\ 1} \quad (V.4)$$

Cette méthode a fonctionné pour quelques conditions, mais des temps de séjour moyens très faibles (inférieurs à 1 s) ont été obtenus dans beaucoup de cas, voire parfois des valeurs négatives, montrant que l'incertitude induite par la méthode d'obtention de ces moments (intégration numérique d'un signal bruité) est supérieure à l'ordre de grandeur des valeurs recherchées.

Compte tenu de la ressemblance des allures des signaux des deux capteurs, il a alors été tenté d'utiliser la corrélation croisée des signaux des capteurs, pour identifier le décalage temporel le plus probable entre eux. Ainsi, pour un même canal et une même expérience, nommons $s_1(t)$ le signal temporel issu du premier capteur résistif, et $s_2(t)$ celui délivré par le deuxième capteur. La corrélation croisée des signaux s'écrit :

$$R(\tau) = \int_{t_i}^{t_f} s_1(t).s_2(t-\tau).dt \quad (V.5)$$

où t_i et t_f sont les temps initiaux et finaux de la plage d'enregistrement des signaux.

On cherche ici la valeur de τ qui maximise la fonction R. Si le maximum de la fonction R est bien net, cette valeur de τ correspond au décalage temporel statistique moyen entre les deux signaux.

Les corrélations croisées ont été appliquées avec la routine xcorr de MATLAB® R2022b. Cette méthode a permis d'obtenir des temps de passage acceptables entre les 2 capteurs résistifs (voir Figure V-7), compris entre 0,8 et 1,2 s, et cohérents avec la distance entre les capteurs et avec, pour chaque canal considéré, la vitesse d'écoulement mesurée correspondante. En revanche, nous ne disposons pas de méthode pour déterminer les variances des signaux.

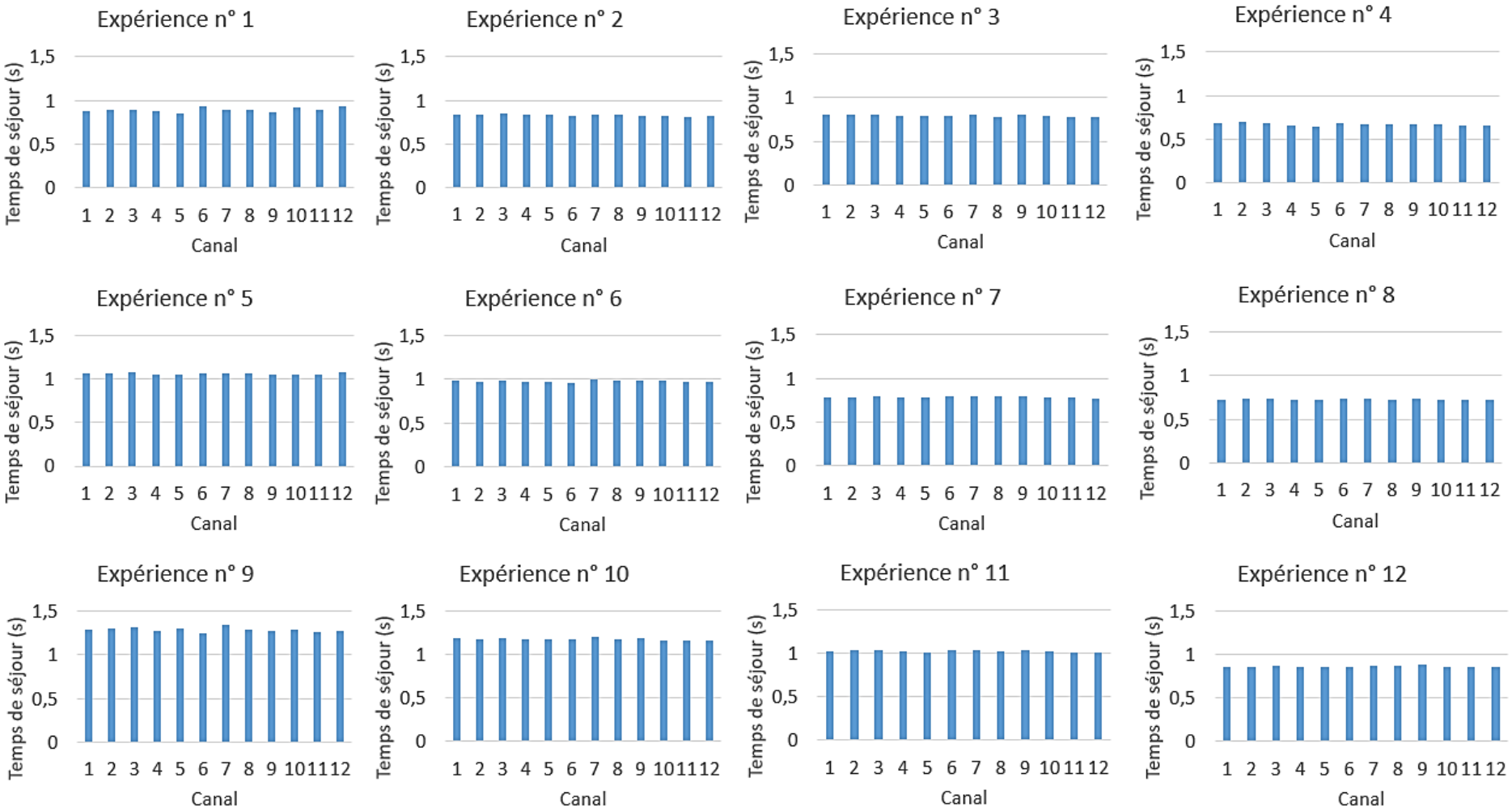


Figure V-7. Temps de passage de l'écoulement entre les 2 capteurs résistifs, obtenus par corrélation croisée des signaux temporels, pour chacun des 12 canaux et chacune des 12 conditions expérimentales testées.

V.3.3 Suite de la démarche

Il ressort de cette étude expérimentale qu'il est possible d'obtenir des signaux de traçage exploitables à l'aide de nos capteurs résistifs – pour 84 canaux simultanément, si besoin–, et ce avec une bonne résolution temporelle.

Cependant, du fait de la proximité des capteurs résistifs au sein de notre pilote, il n'a pas été possible d'accéder aux fonctions DTS de nos écoulements, en utilisant les capteurs résistifs. Il ne sera donc pas possible de comparer ces fonctions aux modèles hydrodynamiques phénoménologiques développés pour les écoulements de Taylor et décrits dans la littérature, donc impossible d'identifier, parmi ces modèles, les plus pertinents vis-à-vis des écoulements obtenus dans notre étude. Enfin, pour le modèle choisi, nous ne pourrons pas en corréler les paramètres aux caractéristiques de nos écoulements.

A défaut, nous utiliserons le modèle phénoménologique le plus souvent appliqué aux écoulements de Taylor dans la littérature (voir chapitre I), à savoir le modèle Piston-Dispersion-Echange (nommé ci-après « modèle PDE »). A noter que les courbes DTS associées à ce modèle ont la même allure que nos signaux de traçage, ce qui laisse penser que le signal de traçage reçu à l'entrée de nos canaux - en termes de courbe temporelle en concentration du traceur – impacte peu la forme des signaux observés en aval.

Pour de futures campagnes de traçages de nos monolithes, il faudra augmenter considérablement, si possible, la longueur des monolithes entre les capteurs résistifs, car les vitesses d'écoulement – ou les débits d'alimentation des fluides – ne peuvent pas être réduites, sous peine de ne plus obtenir d'écoulement de Taylor dans les canaux, comme en témoignent les cartographies d'existence des régimes d'écoulement en capillaire de la littérature (voir chapitre I).

V.4 Modèle hydrodynamique Piston-Dispersion-Echange pour l'écoulement de Taylor

V.4.1 Mise en place du modèle Piston-Dispersion-Echange

Pour évaluer la DTS des canaux d'un réacteur monolithe fonctionnant en régime de Taylor, le comportement hydrodynamique de la phase liquide peut être représenté par le modèle Piston-Dispersion-Echange (PDE), comme suggéré dans des travaux précédents (Kreutzer et coll., 2005a ; Kulkarni et coll., 2005).

Pour rappel, ce modèle est basé sur l'hypothèse que deux zones co-existent au sein de la phase liquide, dans le canal : une zone dynamique, et une zone stagnante, vue par le modèle PDE comme un volume mort. Cette représentation est schématisée en Figure V-8 a.

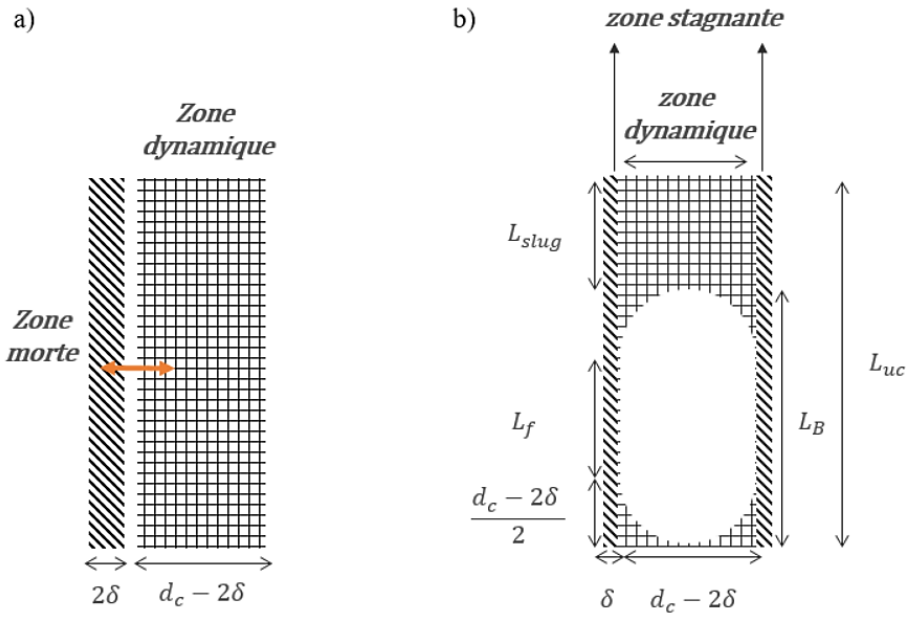


Figure V-8. a) Schéma d'un écoulement monophasique liquide en canal avec zone dynamique et zone morte, tel que pris en compte par le modèle PDE ; b) Schéma de la géométrie considérée dans ce travail pour appliquer le modèle PDE à un écoulement de Taylor : dans la cellule unitaire, la zone quadrillée représente la zone liquide dynamique, la zone hachurée représente la zone liquide stagnante.

Le modèle PDE peut être appliqué à un écoulement de Taylor : la zone dynamique pourrait représenter la zone parcourue par les bouchons liquides en mouvement, et la zone stagnante pourrait représenter le film de lubrification liquide placé entre les bulles et la paroi du canal (Figure V-8 b).

Le modèle PDE combine (i) le modèle d'écoulement piston à dispersion axiale où un coefficient de dispersion $D_{ax,i}$ est considéré pour chaque canal i, et (ii) l'échange de masse entre les deux zones, où le coefficient d'échange de masse volumétrique est nommé $k_i a_i$, a_i étant l'aire d'échange entre les deux zones. La fraction volumique de la zone dynamique au sein de la phase liquide est nommée ϕ_i ($0 \leq \phi_i \leq 1$) et, celle de la zone stagnante $(1 - \phi_i)$. Le modèle est ainsi représenté par ces trois paramètres ($D_{ax,i}$, $k_i a_i$, ϕ_i).

Pour traduire l'opération de traçage de l'écoulement avec ce modèle : on appellera $C_{d,i}$ la concentration du traceur dans la zone dynamique, et $C_{st,i}$ sa concentration dans la zone stagnante. En supposant que les bouchons liquides se déplacent à la vitesse des bulles $U_{b,i}$ dans un canal donné, des équations de bilan de masse (par unité de volume de liquide) sont établies pour le traceur dans les zones dynamique (équation V.6) et stagnante (équation V.7) pour chaque canal i du réacteur. Des équations différentielles dans l'espace et le temps sont obtenues :

$$\frac{\partial C_{d,i}}{\partial t} = D_{ax,i}\frac{\partial^2 C_{d,i}}{\partial z^2} - U_{b,i}\frac{\partial C_{d,i}}{\partial z} - \frac{k_i a_i}{\phi_i}\left(C_{d,i} - C_{st,i}\right) \qquad (V.6)$$

$$\frac{\partial C_{st,i}}{\partial t} = \frac{k_i a_i}{1 - \phi_i}\left(C_{d,i} - C_{st,i}\right) \qquad (V.7)$$

Ces équations sont résolues sur la base d'une condition initiale et de conditions aux limites pertinentes : à l'entrée du canal, les concentrations d'entrée sont définies point par point par la fonction d'impulsion de Dirac (condition de type Dirichlet), et celles de sortie sont exprimées à l'aide d'un terme de dérivée nulle (condition de type Neumann). En effet, en prenant en compte la structure du distributeur DistriGazLi, et en particulier l'existence de sa chambre de liquide, on peut assimiler l'entrée du traceur dans les canaux en conditions « ouverte » ; en sortie des canaux, si un autre bloc monolithe est présent, il s'agit de condition « fermée » (voir Chapitre I).

$$C_{d,i}(t=0,x) = C_{st,i}(t=0,x) = 0 \qquad (V.8)$$

$$C_{d,i}(t,x=0) = \delta(0) \qquad (V.9)$$

$$\frac{\partial C_{d,i}}{\partial z}(t,x=1) = 0 \qquad (V.10)$$

Une fois les équations différentielles intégrées de façon couplée (méthode numérique explicitée en section V.4.2), l'évolution spatiale des concentrations en traceur, $C_{d,i}$ et $C_{st,i}$, peut être tracée le long du canal pour chaque canal i, et à tout instant t. De même, en sortie du canal, l'évolution temporelle de ces concentrations peut être représentée (Figure V-9). Celle de $C_{d,i}$ constitue une courbe de traçage, et la fonction DTS spécifique, $E_i(t)$, peut être obtenue en divisant cette courbe temporelle par sa propre intégrale. Cette courbe montre l'allure classique des distributions de temps de séjour obtenues avec le modèle PDE : le pic correspond au transport rapide du traceur par la zone dynamique, et la traînée de la courbe correspond au traceur qui a été transféré à la zone statique tout au long du canal, puis qui a été transféré en retour à la zone dynamique, avant de sortir du canal.

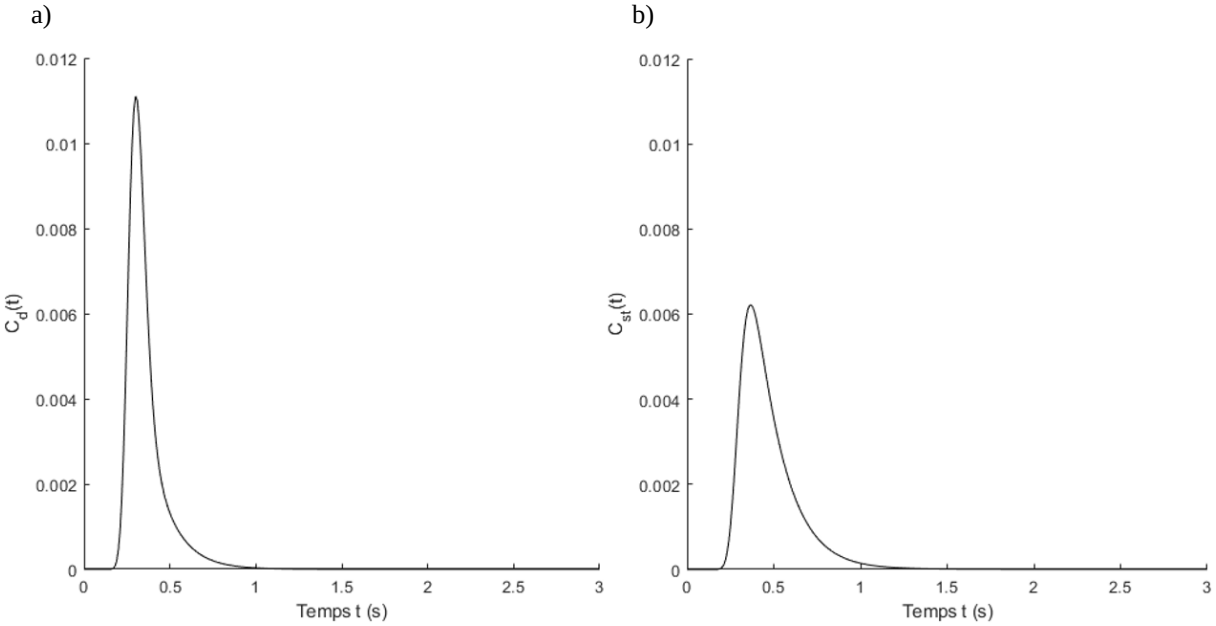


Figure V-9.Exemple de tracé des évolutions temporelles des concentrations en traceur en sortie de canal, en réponse à un signal de type Dirac à l'entrée (L_C = 0,15 m ; $D_{ax,i}$= 5.10^{-3} m^2/s; $U_{b,i}$= 1,12 m/s; ϕ_i= 0,87; $k_i a_i$= 1,25 s^{-1}) ; a) concentration $C_{d,i}$: zone dynamique de l'écoulement liquide ; b) concentration $C_{st,i}$: zone statique de l'écoulement liquide

En mettant les équations sous forme adimensionnelle, nous pouvons alors identifier le nombre de Péclet $Pe_{PDE,i}$ et le facteur d'échange N_i définis ci-dessous :

$$\frac{\partial C_{d,i}}{\partial \theta} = \frac{1}{\phi_i Pe_{PDE,i}} \frac{\partial^2 C_{d,i}}{\partial x^2} - \frac{1}{\phi_i} \frac{\partial C_{d,i}}{\partial x} - \frac{N_i}{\phi_i} \left(C_{d,i} - C_{st,i}\right) \qquad (V.11)$$

$$\frac{\partial C_{st,i}}{\partial \theta} = \frac{N_i}{1-\phi_i} \left(C_{d,i} - C_{st,i}\right) \qquad (V.12)$$

$$\theta = \frac{t U_{b,i} \phi_i}{L} \quad ; \quad x = \frac{z}{L} \quad ; \quad N_i = \frac{k_i a_i L}{U_{b,i} \phi_i} \quad ; \quad Pe_{PDE,i} = \frac{U_{b,i} L}{D_{ax,i}} \qquad (V.13)$$

avec L, longueur de la zone dynamique.

Ici, il faut souligner que le nombre de Péclet $Pe_{PDE,i}$ n'est pas identique au nombre de Péclet Pe_i qu'on obtiendrait en analysant la courbe à l'aide du modèle Piston-Dispersion. Dans l'exemple de la figure V-9 a, $Pe_{PDE,i}$ vaut 1,7 alors que Pe_i vaudrait 3,7. L'un tend vers l'autre en absence de zone statique (ϕ_i grand et N_i faible). Nous reviendrons sur ce point au §V.4.4.

V.4.2 Description de la méthode numérique utilisée pour modéliser le transport d'espèces en écoulement de Taylor sur la base du modèle hydrodynamique PDE

Pour une expérience donnée, une fois les paramètres du modèle PDE estimés pour les 12 canaux investigués, on peut expliciter les équations différentielles dimensionnelles de bilan (définis en section V.4.1) traduisant la conservation d'un traceur dans les zones dynamiques et statiques de l'écoulement. La résolution numérique des 12 couples d'équations différentielles est réalisée sur MATLAB® R2022b, canal par canal, à l'aide de la fonction « pdepe » dédiée aux équations différentielles partielles paraboliques et elliptiques unidimensionnelles (1D).

Cette fonction fait appel à 3 sous-programmes (ou fonctions) donnant chacun : les équations différentielles du modèle mathématique ; les conditions aux limites, où la fonction Dirac est définie par une fonction type « créneau » (0 ou 1) égale à 1 lorsque le temps est inférieur au pas de temps ; et la condition initiale. La résolution numérique est discrétisée dans l'espace et dans le temps pour un maillage contenant [100, 5000] éléments (espace, temps), et avec des pas d'espace de 0,0035 m et de temps de 0,01 s. Ce pas de temps a été trouvé comme optimal suite à une analyse de sensibilité préalablement réalisée ayant des valeurs de pas comprises entre 0,1 et 1.10^{-5} s.

V.4.3 Analyse de sensibilité des courbes DTS aux paramètres du modèle en canal unique

Avant d'étudier l'effet de la maldistribution des phases sur le degré de mélange apparent dans un monolithe, nous nous intéressons à la sensibilité de la courbe DTS, pour un canal unique, aux 3 paramètres normés du modèle PDE (voir V.4) : le nombre de Péclet Pe_{PDE}, le facteur d'échange N et la fraction volumique liquide de la zone dynamique ϕ. L'ordre de grandeur des paramètres est de 50 à 200 pour Pe_{PDE}, de 0,1 à 3,5 pour N et de 0,86 pour ϕ

d'après les travaux de Kreutzer et coll. (2005a). Pour l'étude de sensibilité, nous avons considéré 3 valeurs pour chaque paramètre du modèle :

- Nombre de Péclet, Pe_{PDE} (-) : 10 ; 50 et 100
- Facteur d'échange, N (-) : 0,01 ; 0,1 et 1
- Fraction volumique liquide de la zone dynamique, ϕ (-) : 0,9 ; 0,75 ; et 0,5

Il a été vérifié que ces choix de valeurs sont cohérents avec les ordres de grandeur des paramètres qu'on obtiendra en section V.5 lors de l'étude de maldistributions expérimentales : les expériences reportées dans le tableau V-9 indiquent $20 < Pe_{PDE} < 70$, $0,3 < N < 0,62$, et $\phi \approx 0,9$. On a alors, dans le tableau V-2, choisi 27 combinaisons de paramètres, chacune d'elles donnant lieu à la modélisation d'un traçage par le modèle PDE.

Tableau V-2. Combinaisons de valeurs utilisées pour l'analyse de sensibilité aux paramètres du modèle.

N° de condition	Combinaisons de valeurs		
	Pe_{PDE} (-)	N (-)	ϕ (-)
1	10	0,01	0,9
2	10	0,01	0,75
3	10	0,01	0,5
4	10	0,1	0,9
5	10	0,1	0,75
6	10	0,1	0,5
7	10	1	0,9
8	10	1	0,75
9	10	1	0,5
10	50	0,01	0,9
11	50	0,01	0,75
12	50	0,01	0,5
13	50	0,1	0,9
14	50	0,1	0,75
15	50	0,1	0,5
16	50	1	0,9
17	50	1	0,75
18	50	1	0,5
19	100	0,01	0,9
20	100	0,01	0,75
21	100	0,01	0,5
22	100	0,1	0,9
23	100	0,1	0,75
24	100	0,1	0,5
25	100	1	0,9
26	100	1	0,75
27	100	1	0,5

Pour chaque cas du tableau V-2, on procède à l'intégration numérique couplée des équations adimensionnelles du modèle PDE en réponse à une injection impulsionnelle de traceur en entrée de canal. On représente en Figure V-10 l'évolution de la concentration en traceur en sortie du canal en fonction du temps adimensionnel θ, pour la zone dynamique de l'écoulement (les graphes sous forme dimensionnelle sont fournis en Annexe C).

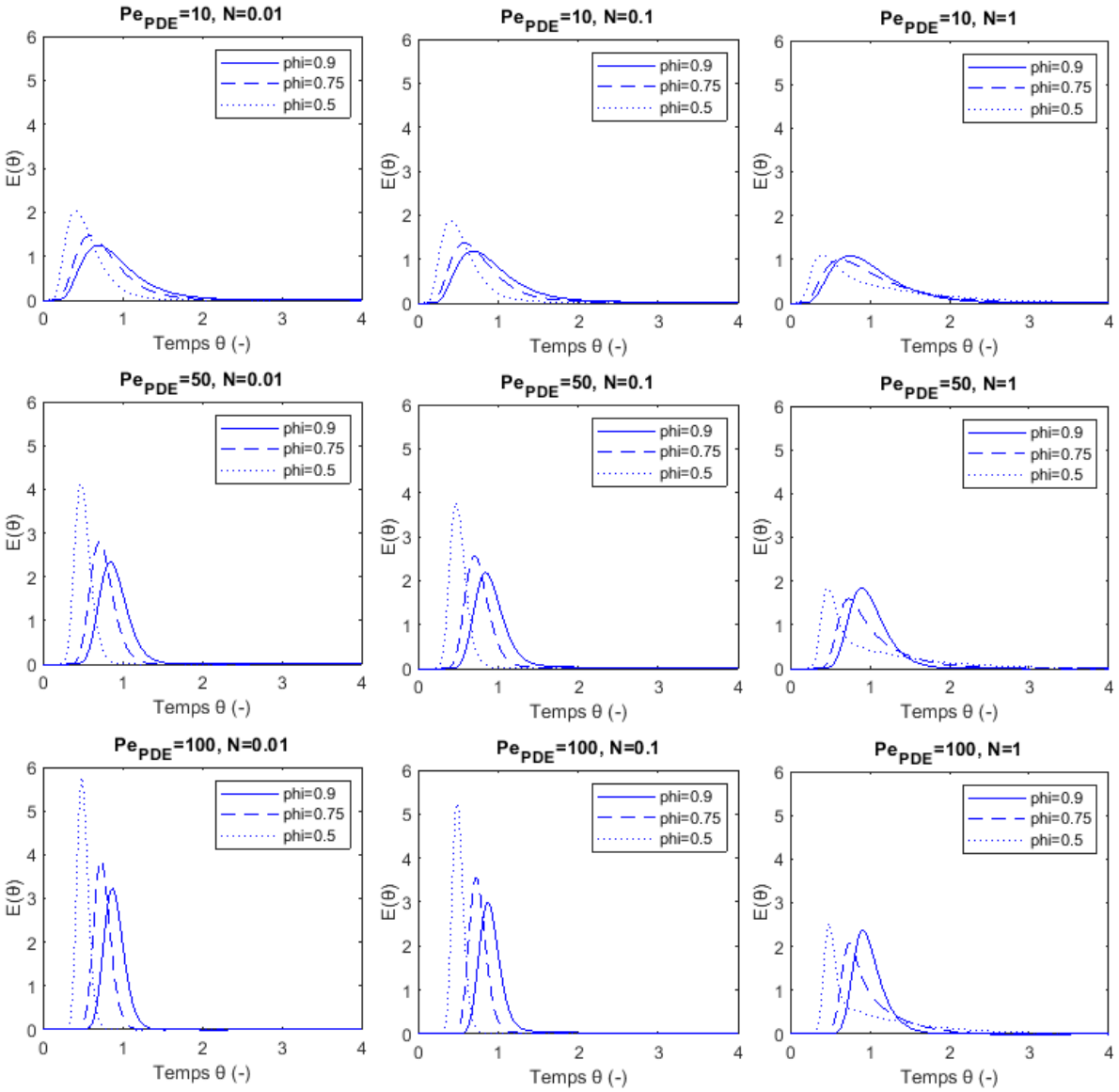


Figure V-10. Courbes DTS non dimensionnelles obtenues pour diverses valeurs de Pe_{PDE}, N et ϕ.

Les différents graphes de la Figure V-10 montrent un effet marqué de la fraction volumique de la zone dynamique ϕ sur la forme des courbe DTS : on observe que, lorsque ϕ diminue – c'est-à-dire quand le volume occupé par la zone statique augmente – , le pic de traceur est plus étroit et la « traînée » (à droite du pic) s'accentue et s'étend aux « temps » longs. En effet, le traceur passe de la zone dynamique à la zone statique au fur et à mesure du parcours de l'écoulement le long du canal ; or, lorsque la zone statique occupe un plus grand volume au

sein de l'écoulement, la concentration moyenne du traceur, à chaque position axiale dans le canal, est moindre dans la zone statique, ce qui augmente le flux de traceur échangé entre les deux zones : il y a donc moins de traceur dans la zone dynamique en sortie de canal aux temps courts (le pic de la courbe est plus étroit).

Ensuite, une fois le traceur évacué de la zone dynamique, la zone statique, qui agit comme une zone de réservoir-tampon, restitue le reste du traceur. Plus la zone statique est volumineuse, plus elle peut « stocker » du traceur et le restituer à la zone dynamique. Ainsi, pour un même coefficient d'échange N, cette restitution prendra d'autant plus de « temps » que ϕ est faible. Pour un terme d'échange N élevé, cette inertie de restitution est particulièrement visible (voir le cas Pe_{PDE} = 10, N = 0,01 et ϕ = 0,5 en Figure V-10). La modification de la forme de la courbe DTS quand ϕ diminue implique alors que la variance de la courbe est significativement impactée par ce paramètre. En Figure V-11, on montre les variances (adimensionnelles) de ces courbes. Ainsi, quand ϕ diminue de 0,9 à 0,5 - c'est-à-dire quand la fraction de volume occupée par la zone statique passe de 10% à 50% - la variance est multipliée par un facteur d'environ 9 pour le cas Pe_{PDE}=10 et N=0,01, comme pour le cas Pe_{PDE}=50 et N=0,1, ainsi qu'on peut le voir sur la Figure V-11 ci-dessous.

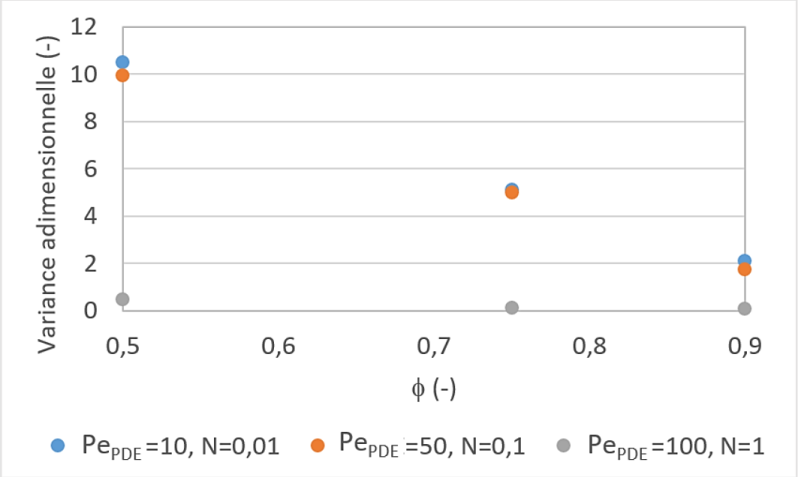


Figure V-11. Effet de ϕ sur la variance des courbes adimensionnelles du modèle PDE, à Pe_{PDE} et N fixés pour les simulations N° 1, 2, 3, 10, 11, 12, 25, 26 et 27.

L'impact du nombre de Péclet Pe_{PDE} est bien visible également sur la Figure V-10 : son augmentation rend le pic des courbes plus étroit, rendant l'allure des courbes DTS moins dissymétrique et proche de celle d'un écoulement de type « piston ». Ce constat fait écho à celui fait en Figure V-6 (courbes de traçage expérimentales), qui sont d'autant plus étroites que la vitesse d'écoulement est élevée ; ce parallèle est cependant à faire avec précaution puisque la forme de nos signaux expérimentaux dépend aussi du type d'injection du traceur à l'entrée des canaux.

Toutefois, on voit en Figure V-12 qu'à ϕ et N fixés, la variance des courbes est peu modifiée par l'effet de mélange dans la zone dynamique ; pour ϕ=0,9, les valeurs de variance ne sont pas lisibles sur le graphique, mais la variance diminue tout de même – comme attendu – un peu (d'un facteur 1,7) quand Pe_{PDE} passe de 10 à 100. Par ailleurs, la variance augmente

légèrement quand la zone statique est très représentée, du fait de l'augmentation du potentiel d'échange de traceur entre les deux zones lorsque le mélange dans la zone dynamique est moindre. Le degré de mélange dans la zone dynamique – c'est-à-dire dans la succession des bouchons de liquide de l'écoulement – a donc peu d'impact sur la variance des courbes de traçage adimensionnelles.

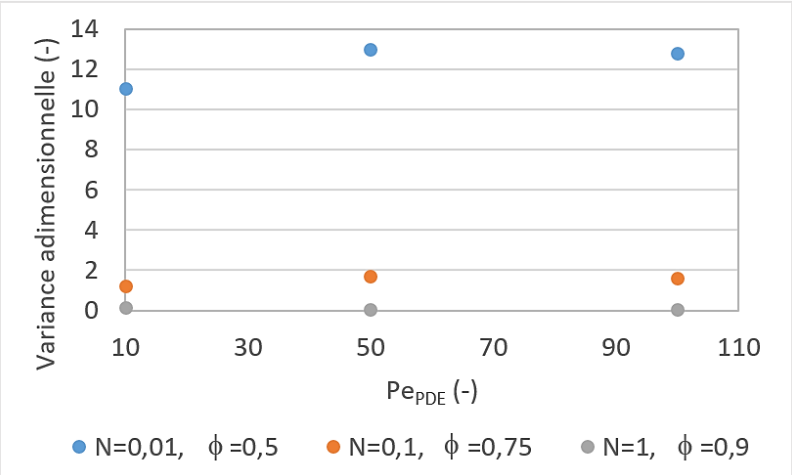


Figure V-12. Effet de Pe_{PDE} sur la variance des courbes du modèle PDE, à N et ϕ fixés pour les simulations N° 3, 5, 7, 12, 14, 16, 21, 23 et 25.

En revanche, on observe sur la Figure V-13 que l'augmentation du facteur d'échange N fait chuter la variance des courbes du modèle PDE, d'un facteur au moins 15, pour les valeurs testées (Figure V-13). Pour rappel, ce nombre adimensionnel est construit à partir du coefficient d'échange de masse $k.a$ entre les zones dynamique et statique, rapporté à la vitesse de l'écoulement et à la rétention de la zone dynamique. A ϕ et Pe_{PDE} fixés, son augmentation permet un échange plus important mais aussi plus rapide du traceur entre les zones dynamique et statique, ce qui accélère la sortie d'une partie du traceur et réduit dans la courbe de traçage l'importance relative du pic de traceur issu de la zone dynamique, et diminue son poids dans le calcul de la variance.

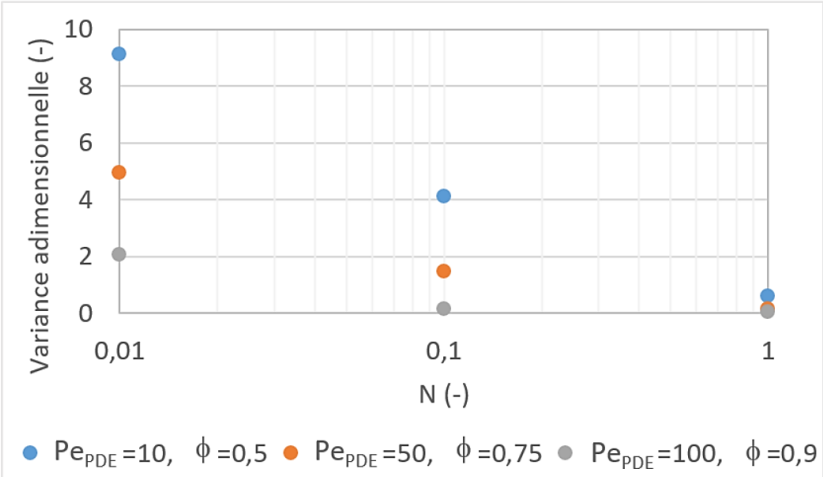


Figure V-13. Effet de N sur la variance des courbes non dimensionnelles issues du modèle PDE, à Pe_{PDE} et ϕ fixés pour les simulations N° 3, 6, 9, 11, 14, 17, 19, 22, 25.

En conclusion, cette analyse de sensibilité nous montre que la variance des courbes adimensionnelles – autrement dit le degré de mélange dans l'ensemble des deux zones de l'écoulement – dépend peu du paramètre Pe_{PDE} mais est fortement impacté par le volume relatif de la zone statique et par le mélange entre les zones.

Les résultats sur les autres conditions (triplets de valeurs de ϕ, N, et Pe_{PDE}) sont donnés en Annexe C.

V.4.4 Lien « physique » entre les caractéristiques de l'écoulement de Taylor et les paramètres du modèle choisi : D_{ax}, k.a et ϕ, puis Pe_{PDE} et N

Nous n'avons pas pu exploiter les courbes expérimentales de traçages obtenues avec notre pilote de monolithe. Nous allons alors, dans ce qui suit, estimer les ordres de grandeur des paramètres du modèle PDE en les reliant à des grandeurs physiques, à l'aide de corrélations de la littérature ou de considérations géométriques.

V.4.4.1 Coefficient de dispersion axiale

Pour une même courbe de traçage, analysée via les modèles Piston-Dispersion et PDE, les nombres de Péclet ne sont pas les mêmes, du fait de l'existence de la zone d'échange qui, dans le modèle PDE, prend en charge une partie de la variance de la courbe. Les coefficients de dispersion axiale ne sont donc pas les mêmes non plus pour les deux modèles, *a priori*. Mais on a vu en section précédente que le paramètre Pe_{PDE} impacte assez peu le degré de mélange global dans l'écoulement de Taylor. Par ailleurs, on imagine intuitivement que la dispersion axiale (ou rétro-mélange axial) au sein la succession de bouchons de liquide agités est en effet toujours assez similaire, influencée uniquement par la longueur des bouchons, voire par la vitesse de recirculation en leur sein. Nous décidons d'estimer un ordre de grandeur pour le coefficient de dispersion axiale du modèle PDE que nous conserverons fixe, pour la suite. Nous nous basons sur les valeurs du coefficient de dispersion axiale du modèle Piston-Dispersion en écoulement de Taylor, en gardant en tête que celles-ci sont globalement plus faibles que celles utilisées pour le modèle PDE, comme on l'a vu précédemment : les variances des courbes DTS sont diminuées par l'effet d'échange entre les deux zones de l'écoulement. Pour trouver l'ordre de grandeur de la dispersion axiale en écoulement de Taylor, nous suivons deux voies.

D'abord, nous utilisons les courbes expérimentales de E(t) obtenues pour une des expériences de traçage réalisées interprétable (expérience n° 7 : u_{TP} = 0,37 m/s, ε_G = 0,35, Ca = $4{,}4.10^{-3}$). Après avoir normé les courbes de traçage de chaque capteur, nous avons calculé les moments d'ordre 1 et 2 pour chaque courbe, comme expliqué au paragraphe V.3.2. En supposant que notre procédé peut être assimilé à un système linéaire, nous utilisons le théorème de Van der Laan pour déduire le temps de séjour $\bar{t}$ (équation V.3) et la variance σ^2 (équation V.4) de la fonction DTS permettant de passer d'une courbe de traçage à l'autre, entre les 2 positions de mesure. Nous avons trouvé pour le canal 1 un temps de séjour moyen de 1,06 s et une variance de 0,22 s².

Le temps de passage τ, déduit de la vitesse u_{TP} (calculée par traitement des images) et de la longueur L entre les 2 capteurs de 0,35 m, est égal à 0,94 s (selon l'équation V.14 ci-dessous) ; il peut être considéré égal au temps de séjour $\bar{t}$ puisque l'écart entre les deux valeurs (12%) est inférieur à l'incertitude expérimentale sur la mesure de la vitesse de bulle.

$$\tau = \frac{L}{u_{TP}} \qquad (V.14)$$

Le nombre de Péclet Pe est calculé ici classiquement via le moment d'ordre 2 du modèle Piston-Dispersion, sur la base du temps de passage et de la variance, les conditions d'entrée-sortie des canaux étant considérées de type « ouvert-fermé ». On obtient une valeur de Pe de 21,3. Le coefficient de dispersion axiale D_{ax} correspondant est égal à $5{,}6.10^{-3}$ m²/s.

D'autre part, Thulasidas et coll. (1999) ont estimé expérimentalement et par modélisation (modèle de dispersion axiale dans un canal) les coefficients de dispersion axiale pour des écoulements de Taylor dans un capillaire circulaire de diamètre 0,002 m (comme dans notre cas), en fonction du nombre Capillaire. Ils ont trouvé des coefficients D_{ax} allant de 1.10^{-4} à 1.10^{-2} m²/s pour un nombre Capillaire variant de 3.10^{-4} à 5.10^{-3}. En comparant notre résultat à la Figure V-14 ci-dessous, tirée de Thulasidas et coll. (1999), nous constatons une bonne cohérence avec les valeurs expérimentales et théoriques trouvées par ces auteurs pour ce nombre Capillaire ($4{,}4.10^{-3}$). Se basant ainsi sur ce résultat, nous pourrions décider, pour la suite, d'utiliser ce graphe pour estimer le coefficient de dispersion axiale D_{ax} d'un canal en écoulement en calculant le nombre Capillaire de cet écoulement. Mais pour les expériences réalisées dans ce chapitre, le nombre Capillaire varie entre 4,4 et 12.10^{-3}, ce qui induit d'après la figure V-14, que $D_{ax,i}$ varie entre 1.10^{-3} m²/s et plus de $1{,}2.10^{-2}$ m²/s : nos valeurs expérimentales dépassant les conditions d'étude de la figure V-14. Nous retenons donc, pour l'estimation de la dispersion axiale de la zone dynamique du modèle PDE, l'ordre de grandeur des coefficients de dispersion axiale D_{ax} les plus élevés de la figure V-14, soit environ 5.10^{-3} m²/s. Pour la suite, nous utiliserons pour calculer la valeur de $D_{ax,PDE} = 5.10^{-3}$ m²/s.

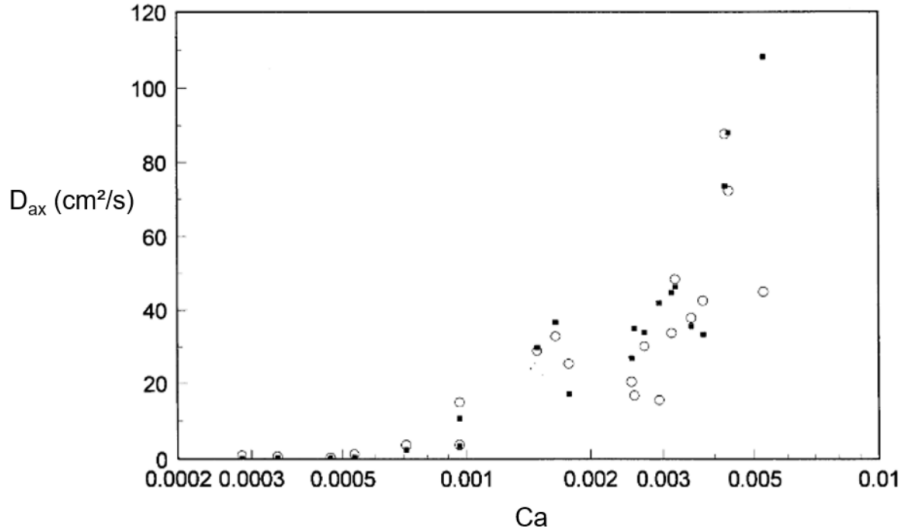


Figure V-14. Coefficients de dispersion axiale pour l'écoulement liquide d'un train de bulles dans des capillaires circulaires de 2 mm de diamètre, en fonction du nombre Capillaire. ○ expérimental, ■ théorie (Tiré de Thulasidas et coll., 1999).

V.4.4.2 Coefficient d'échange entre les zones dynamique et stagnante

Pour un canal donné, si l'on adopte la représentation de la Figure V-8 b, où les zones dynamique et statique de l'écoulement liquide sont respectivement le volume où se déplacent les bouchons et le film stagnant en paroi (considéré d'épaisseur constante tout le long du canal), alors le coefficient d'échange entre les deux zones, k, peut être calculé en utilisant une corrélation développée en écoulement de Taylor pour l'échange de masse (ou de chaleur) entre les bouchons et le film quasi-stagnant en paroi. Plusieurs travaux abordent cette question, comme ceux de Incropera et DeWitt (2002), Winterbottom et coll. (2003), ou encore ceux de Kreutzer et coll. (2001). Nous avons utilisé la corrélation de Kreutzer et coll. (2001), développée par analogie avec le transfert de chaleur et sur la base de simulations numériques d'écoulements de Taylor, car elle a été établie pour des plages de vitesses superficielles de gaz et de liquide similaires à celles de notre étude.

$$k = \frac{Sh \cdot D_{traceur}}{d_c} = \frac{20 D_{traceur}}{d_c}\left[1 + 0{,}003\left(\frac{L_{UC} - L_f}{d_c . Re . Sc}\right)^{-0{,}7}\right] \qquad (V.14)$$

Ici, pour simplifier, nous considérons une bulle de géométrie cylindrique avec deux demi-sphères (voir Figure V-8) : les longueurs L_{UC} et L_f sont celles de la cellule unitaire et de la partie cylindrique de la bulle dans le canal considéré, respectivement, d_c est le diamètre du canal, $D_{traceur}$ est la diffusivité moléculaire du traceur dans le liquide (ici $1{,}8.10^{-9}$ m²/s : ordre de grandeur pour les traceurs salins dans l'eau (Bhatia et coll., 1968)), Re est le nombre de Reynolds dans le canal, défini comme $Re = \frac{\rho_L d_c U_{b.}}{\mu_L}$, et Sc est le nombre de Schmidt défini comme $Sc = \frac{\mu_L}{\rho_L D_{traceur}}$, où μ_L est la viscosité dynamique du liquide et ρ_L sa densité. L'équation exprimant k implique *a priori* que ce coefficient augmente avec la vitesse de bulle, et diminue avec la taille des bouchons, donc augmente avec le taux de gaz.

L'aire de contact entre les deux zones, a, pour un canal donné, est définie par le rapport entre l'aire superficielle de contact bouchon-film et le volume de liquide dans une cellule unitaire. Pour estimer ces grandeurs, on calcule δ, l'épaisseur du film liquide associée, selon la corrélation établie par Aussillous et Quéré (2000) :

$$\delta = \frac{\frac{d_c}{2} 1{,}34 Ca^{\frac{2}{3}}}{1 + 1.34 \cdot 2{,}5 Ca^{\frac{2}{3}}} \qquad (V.15)$$

où Ca est le nombre capillaire égal $Ca = \frac{\mu_L U_b}{\sigma}$, avec σ est la tension superficielle.

En tenant compte de la géométrie simplifiée (bulle cylindrique), on peut exprimer l'aire de contact entre les zones par l'équation suivante :

$$a = \left[\frac{4(d_c - 2\delta)\left(L_{UC} - L_f\right)}{{d_c}^2 L_{UC}(1 - \varepsilon_G)}\right] \qquad (V.16)$$

où ε_G est la rétention du gaz dans le canal.

Vu que $L_{UC}(1-\varepsilon_G)$ est très proche de la longueur des bouchons, l'aire de contact entre les zones dynamique et statique (par unité de volume de liquide) est donc globalement proche de $\frac{4}{d_c}$, ce qui est logique ; elle est également légèrement décroissante avec la vitesse de bulle, via l'épaisseur du film liquide en paroi.

Dans ces relations, les grandeurs L_{UC}, L_f, ε_G et U_b peuvent être évaluées à l'aide des grandeurs mesurées par capteur résistif ou par traitement d'images, ou plus généralement à l'aide des débits individuels de gaz et de liquide dans les canaux, comme nous le verrons en section V.5.1.

Pour nos expériences, les valeurs ainsi calculées pour le coefficient k varient entre $2{,}4.10^{-4}$ et $5{,}5.10^{-4}$ m.s^{-1}, et celles de l'aire de contact a entre $1{,}9.10^{3}$ et $2{,}8.10^{3}$ m^2/m^3.

En combinant k et a, et en utilisant l'approximation suivant pour la longueur du bouchon :

$$L_s = L_{UC} - L_f \approx L_{UC}(1-\varepsilon_G) = \frac{U_b}{f_b}(1-\varepsilon_G) \qquad (V.17)$$

Il vient :

$$k.a \approx \frac{20 D_{traceur}}{d_c}\left[1 + 0{,}003\left(\frac{(1-\epsilon_G)}{f_b\left(\frac{\rho_L.d_c^2}{\mu_L}\right)Sc}\right)^{-0{,}7}\right]\left[\frac{4(d_c-2\delta)}{{d_c}^2}\right] \qquad (V.18)$$

On remarque ici que le coefficient $k.a$ ne dépend de U_b que via l'épaisseur des films de lubrification. On remarque également que $(1-\epsilon_G)$ – c'est-à-dire ϵ_L– et $1/f_B$, jouent des rôles identiques.

Pour nos expériences, les valeurs calculées pour le coefficient d'échange entre zones $k.a$ varient entre 0,63 et 1,18 s^{-1}.

V.4.4.3 Fraction volumique liquide de la zone dynamique

Le troisième paramètre du modèle PDE, la fraction volumique liquide de la zone dynamique, notée ϕ, est calculé pour un canal donné par le rapport du volume de la zone dynamique dans la cellule unitaire sur le volume total de liquide dans la cellule unitaire (voir Figure V.8).

$$\phi = \frac{(d_c-2\delta)^2}{{d_c}^2} \qquad (V.19)$$

On en déduit que ϕ est essentiellement impacté par la vitesse de bulle, à travers l'épaisseur du film de liquide stagnant en paroi δ (voir équation V.15) : quand celui-ci s'épaissit

(donc quand la vitesse de bulle augmente), ϕ diminue ; la zone statique occupe une fraction plus importante de l'écoulement.

Comme précédemment, la grandeur nécessaire au calcul de cette relation, U_b, peut être mesurée par le capteur résistif (voir chapitre 3) ou par le traitement d'images, ou à l'aide des débits individuels de gaz et de liquide dans les canaux, comme nous le verrons en section V.5.1.

Pour nos expériences, les valeurs calculées pour ϕ sont comprises entre 0,89 et 0,94.

V.4.4.4 Nombre de Péclet Pe_{PDE}

Ayant adopté un ordre de grandeur unique pour le coefficient de dispersion D_{ax} dans le modèle PDE, le nombre de Péclet associé, défini en section V.4.1 par $Pe_{PDE,i} = \frac{U_{b,i}L}{D_{ax,i}}$, est ici directement proportionnel à la vitesse U_b.

V.4.4.5 Nombre adimensionnel d'échange entre zones : N

Pour un canal donné, le nombre N a été défini en section V.4.1 par : N= $\frac{k.a.L}{U_{b.}\emptyset}$. Compte tenu des expressions établies précédemment pour k, a, et ϕ il vient :

$$N = \frac{20D_{traceur}L}{U_b d_c \phi}\left[1 + 0{,}003\left(\frac{L_{UC} - L_f}{d_c ReSc}\right)^{-0{,}7}\right].\left[\frac{4\left(L_{UC} - L_f\right)}{(d_c - 2\delta)L_{UC}(1 - \varepsilon_G)}\right] \qquad (V.20)$$

Soit :

$$N \approx \frac{20D_{traceur}L}{U_b d_c \phi}\left[1 + 0{,}003\left(\frac{L_{UC} - L_f}{d_c ReSc}\right)^{-0{,}7}\right].\left[\frac{4(d_c - 2\delta)}{{d_c}^2}\right] \qquad (V.21)$$

En utilisant l'équation V.17 :

$$N \approx \frac{20D_{traceur}L}{U_b d_c \phi}\left[1 + 0{,}003\left(\frac{1 - \varepsilon_G}{f_b.\frac{\rho_L.d_c^2}{\mu_L}.Sc}\right)^{-0{,}7}\right].\left[\frac{4(d_c - 2\delta)}{{d_c}^2}\right] \qquad (V.22)$$

Ainsi, au global, N varie selon ${U_b}^{-1}$, et éventuellement en $\left(\frac{1-\varepsilon_{G,i}}{f_{b,i}}\right)^{-0{,}7}$ (selon le poids devant 1 du terme $0{,}003\left(\frac{1-\varepsilon_G}{f_b.\frac{\rho_L.d_c^2}{\mu_L}.Sc}\right)^{-0{,}7}$). Pour nos expériences, les nombres N obtenus sont compris entre 0,49 et 0,91.

V.4.4.6 Synthèse : impact des caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement de Taylor sur les paramètres du modèle PDE

Il ressort de l'analyse menée ci-dessus que, pour un écoulement de Taylor dont les caractéristiques hydrodynamiques auraient été mesurées (par exemple par le capteur résistif), la vitesse de bulle, le taux de gaz et la fréquence de bulle, à eux seuls, permettent de calculer les paramètres du modèle PDE.

En effet, ayant fixé la valeur de D_{ax} pour l'étude, Pe_{PDE} est directement proportionnel à U_b. ϕ dépend également de U_b, via l'épaisseur δ des films de lubrification. N varie selon ${U_B}^{-1}$ et éventuellement selon $(\frac{1-\varepsilon_G}{f_B})^{-0,7}$, donc il diminue avec la vitesse des bulles et augmente potentiellement avec le taux de gaz. Il est intéressant pour la suite de noter que le paramètre dimensionnel d'échange entre zones $k.a$ varie, lui, seulement avec ${f_B}^{0.7}(1-\epsilon_G)^{-0,7}$ et dépend peu de U_B (seulement via l'épaisseur des films). Au final, le taux de gaz n'impacte que le terme d'échange entre zones.

V.4.5 Cas du réacteur monolithe : association des canaux en parallèle

La courbe de DTS globale E_m peut ensuite être calculée pour l'ensemble du réacteur monolithe en combinant pour les n canaux les courbes DTS $E_i(t)$ pondérées par les débits individuels de liquide q_i du canal considéré, conformément au bilan de matière sur le traceur :

$$E_m(t) = \frac{\sum_{i=1}^{n} q_i C_{d,i}(t)}{\int_0^\infty \sum_{i=1}^{n} q_i\, C_{d,i}(t)dt} = \frac{\sum_{i=1}^{n} q_i C_{d,i}(t)}{\sum_{i=1}^{n} \int_0^\infty q_i C_{d,i}(t)dt} = \frac{\sum_{i=1}^{n} q_i C_{d,i}(t)}{\sum_{i=1}^{n} q_i \int_0^\infty C_{d,i}(t)dt} \qquad (V.23)$$

Comme on suppose que chaque canal i reçoit à son entrée la même quantité de traceur (selon un signal Dirac), toutes les intégrales $\int_0^\infty C_{d,i}(t)dt$ sont égales. Il vient :

$$E_m(t) = \frac{\sum_{i=1}^{n} q_i E_i(t)}{\sum_{i=1}^{n} q_i} \qquad (V.24)$$

Le temps de séjour moyen $\overline{t_m}$ et la variance σ_m^2 du réacteur monolithe complet sont ainsi déduits selon les définitions des moments :

$$\overline{t_m} = \int_0^\infty t.E_m(t)dt \qquad (V.25)$$

$$\sigma_m^2 = \int_0^\infty (t-\overline{t_m})^2 E_m(t)dt \qquad (V.26)$$

V.5 Influence de la maldistribution sur la DTS du monolithe : étude *via* le modèle PDE

Sachant désormais modéliser l'écoulement liquide dans les canaux via le modèle PDE et relier les paramètres du modèle aux caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement, nous allons considérer diverses distributions de gaz et de liquide dans les 12 canaux de notre monolithe. Dans un premier temps, nous en déduirons le degré de mélange apparent global au sein de l'appareil, puis nous étudierons l'impact des caractéristiques de maldistribution sur ce degré de mélange apparent.

Dans un second temps (§ V.6), nous considérerons des phénomènes de transfert gaz-liquide et de réaction dans les canaux, en écrivant à l'aide du modèle PDE les équations de conservation d'un gaz transférable et/ou réactif dans les zones dynamiques et stagnantes des canaux. Nous pourrons alors calculer un taux de transfert et/ou un taux de conversion en sortie du réacteur monolithe, et analyser l'impact de la maldistribution sur ces performances.

V.5.1 Démarche de la modélisation de l'hydrodynamique globale d'un réacteur monolithe soumis à une maldistribution

Pour cette étude, nous utiliserons deux types de distribution du gaz et du liquide pour notre ensemble de 12 canaux :

- des distributions construites artificiellement, que nous appellerons « distributions théoriques » dans la suite, et qui nous permettront d'étudier de façon distincte l'impact de la variation, de canal en canal, de la vitesse de l'écoulement, et l'impact de celle du taux de gaz ;
- des distributions expérimentales, obtenues avec le pilote décrit en section V.2.

V.5.1.1 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour des distributions de phases théoriques

Pour l'analyse d'une distribution théorique sur 12 canaux de longueur 0,35 m, nous fixons arbitrairement les débits globaux d'alimentation de gaz $Q_{G,tot}$ et liquide à $Q_{L,tot}$ à 1.10^{-5} m^3/s à l'alimentation du distributeur, ce qui correspond à $u_{TP} = 0{,}53$ $m.s^{-1}$ dans chaque canal en moyenne, et nous fixons la taille de bulles à 0,004 m ; ces valeurs correspondent à U_b moyen de 0,61 m/s et à ε_G moyen de 0,44. Les conditions choisies ici sont représentatives de celles des expériences réalisées (tableau V-1). Ensuite, afin de produire un certain niveau de maldistribution, nous calculons des débits individuels de liquide $q_{L,i}$ et de gaz $q_{G,i}$ en appliquant au débit moyen des coefficients de distribution compris entre 0 et 1, et dont la somme (sur les 12 canaux) est égale à 1. A partir des débits individuels dans les canaux ainsi calculés, $q_{L,i}$ et $q_{G,i}$, nous évaluons l'écart-type sur la variable $u_{TP,i}$ à $\varepsilon_{G,i}$ constant, ou bien l'écart-type sur la variable $\varepsilon_{G,i}$ à $u_{TP,i}$ constant. Nous testerons des écarts-types plus ou moins importants sur ces deux variables.

A noter qu'on n'étudiera pas l'écart-type sur la longueur de bulle : celle-ci, à $\varepsilon_{G,i}$ et $u_{TP,i}$ constants, impacte la longueur de la cellule unitaire, donc la fréquence de bulle ; or on a vu en section V.4.4 que $(1-\epsilon_G)$ – c'est-à-dire ϵ_L – et $1/f_B$ jouent des rôles identiques sur la variation du coefficient k. a, et que ϕ est essentiellement impactée par la vitesse de bulle. Etudier l'impact d'un écart-type de longueur de bulle serait donc redondant avec l'étude de l'impact de l'écart-type en taux de gaz.

A partir des valeurs de $u_{TP,i}$ et $\varepsilon_{G,i,}$, nous pouvons estimer toutes les autres caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement nécessaires au calcul des paramètres du modèle PDE, comme indiqué dans le tableau V-3 ci-dessous.

Tableau V-3. Paramètres hydrodynamiques déduits des débits des phases par canal et de la longueur de bulles.

Paramètre hydrodynamique (par canal i)	**Equation**
Vitesse gaz-liquide $u_{TP,i}$	$u_{TP,i} = 4\frac{q_{L,i}+q_{G,i}}{\pi {d_c}^2}$
Vitesse des bulles $U_{b,i}$	$\frac{u_{TP,i}}{U_b,i} = 1 - 0{,}61\left(\frac{\mu_L U_{b,i}}{\sigma}\right)^{0{,}33}$ $(Liu\ et\ coll.,2005)$
Rétention gazeuse $\beta_{G,i}$	$\beta_{G,i} = \frac{q_{G,i}}{q_{L,i}+q_{G,i}}$
Taux de gaz $\varepsilon_{G,i}$	$\varepsilon_{G,i} = \frac{\beta_{G,i} u_{TP,i}}{U_b,i}$
Epaisseur du film de lubrification δ_i	$\delta_i = \frac{\frac{d_c}{2}1{,}34\left(\frac{\mu_L U_{b,i}}{\sigma}\right)^{\frac{2}{3}}}{1+1.34\cdot 2{,}5\left(\frac{\mu_L U_{b,i}}{\sigma}\right)^{\frac{2}{3}}}$ (Aussillous et Quéré, 2000)
Longueur de film $L_{f,i}$	$L_{f,i} = L_{b,i} - (d_c - 2\delta_i)$
Longueur de cellule unitaire $L_{UC,i}$	$L_{UC,i} = \frac{(d_c-2\delta_i)^2 L_{f,i} + \frac{2}{3}(d_c-2\delta_i)^3}{\varepsilon_{G,i}{d_c}^2}$
Fréquence de passage de bulles $f_{b,i}$	$f_{b,i} = \frac{U_b,i}{L_{UC},i}$

Avec d_c = 0,002 m, μ_L = 1.10^{-3} Pa.s, ρ_L.= 1000 kg/m^3, σ = 7,3.10^{-2} N/m et D = 1,8.10^{-9} m²/s.

V.5.1.2 Calcul des paramètres hydrodynamiques pour des distributions des phases expérimentales

Dans le cas de l'étude d'une distribution des phases issue des expériences, la méthode de calcul des paramètres est modifiée puisque nous utilisons des grandeurs estimées à l'aide du traitement des images. Nous avons alors la connaissance directe des valeurs de la vitesse de bulles $U_{b,i}$, de la fréquence de passage de bulles $f_{B,i}$, du taux de gaz $\varepsilon_{G,i}$ et de la longueur de bulles $L_{b,i}$ pour chacun des 12 canaux.

A partir de ces données issues du traitement d'images, nous déduisons les autres grandeurs hydrodynamiques nécessaires au calcul des paramètres du modèle PDE, comme indiqué dans le tableau V-4 ci-dessous.

Tableau V-4. Paramètres hydrodynamiques déduits pour une distribution expérimentale.

Paramètre hydrodynamique (par canal i)	**Equation**
Vitesse gaz-liquide $u_{TP,i}$	$\frac{u_{TP,i}}{U_{b,i}} = 1 - 0{,}61\left(\frac{\mu U_{b,i}}{\sigma}\right)^{0{,}33}$ $(Liu\ et\ coll., 2005)$
Débit liquide $q_{L,i}$	$q_{L,i} = (u_{TP,i} - \varepsilon_{G,i}U_{b,i})\frac{\pi {d_c}^2}{4}$, soit : $q_{L,i} \approx U_{b,i}(1-\varepsilon_{G,i})\frac{\pi {d_c}^2}{4}$
Débit de gaz $q_{G,i}$	$q_{G,i} = U_{b,i}\varepsilon_{G,i}\frac{\pi {d_c}^2}{4}$
Rétention gazeuse $\beta_{G,i}$	$\beta_{G,i} = \frac{q_{G,i}}{q_{L,i} + q_{G,i}}$
Epaisseur du film de lubrification δ_i	$\delta_i = \frac{\frac{d_c}{2}1{,}34\left(\frac{\mu_L U_{b,i}}{\sigma}\right)^{\frac{2}{3}}}{1 + 1.34 \cdot 2{,}5\left(\frac{\mu_L U_{b,i}}{\sigma}\right)^{\frac{2}{3}}}$ (Aussillous et Quéré, 2000)
Longueur de film $L_{f,i}$	$L_{f,i} = L_{b,i} - (d_c - 2\delta_i)$
Longueur de cellule unitaire $L_{UC,i}$	$L_{UC,i} = \frac{(d_c - 2\delta_i)^2 L_{f,i} + \frac{2}{3}(d_c - 2\delta_i)^3}{\varepsilon_{G,i}{d_c}^2}$

Avec d_c égal à 0,002 m, μ_L à 1.10^{-3} Pa.s, ρ_L à 1000 kg/m^3, σ de $7{,}3.10^{-2}$ N/m et D à $1.8.10^{-9}$ m²/s.

A noter que la longueur de cellule unitaire peut également être calculée par la relation :

$$L_{UC,i} = \frac{U_{b,i}}{f_{b,i}} \qquad (V.26)$$

Dans nos calculs, il a été vérifié que les deux relations donnent les mêmes valeurs de $L_{UC,i}$, à ±10% d'écart.

V.5.1.3 Démarche de modélisation développée

Une fois tous les paramètres hydrodynamiques calculés, les paramètres $D_{ax,i}$, $k_i a_i$ et ϕ_i du modèle PDE sont calculés comme indiqué en section V.4.4. On remarque d'ailleurs ici que les débits individuels de phases dans les canaux, $q_{G,i}$ et $q_{L,i}$, ou bien les valeurs de $u_{TP,i}$ et de $\varepsilon_{G,i}$, suffisent à l'évaluation des paramètres du modèle PDE : la connaissance de la fréquence de passage de bulles n'est pas nécessaire.

Les profils spatiaux et temporels de concentrations du traceur dans chaque canal sont alors obtenus par intégration numérique des équations du modèle PDE, pour une longueur de réacteur L de 0,35 m, en utilisant une impulsion de type Dirac pour modéliser la perturbation d'entrée, et pour les conditions aux limites et initiale déjà mentionnées.

La courbe DTS de chaque canal est déduite de la courbe de concentration dynamique calculée en sortie de canal. En utilisant la définition des moments d'ordre 1 et 2 sur la courbe DTS (voir V.3.2), nous calculons le temps de séjour moyen et la variance par canal. La courbe DTS globale sur le réacteur, $E_m(t)$, est calculée par combinaison des courbes DTS des canaux en les pondérant par les débits individuels de liquide dans les canaux. Enfin, les deux premiers moments de $E_m(t)$, $\overline{t_m}$ et σ_m^2, sont calculés, comme expliqué dans le paragraphe V.4.5.

La dernière étape de cette démarche consiste en l'estimation du degré de mélange apparent du monolithe à l'aide des valeurs globales de $\overline{t_m}$ et σ_m^2 du monolithe (à noter que le temps de passage τ_m est également connu, grâce aux débits globaux de gaz et de liquide). Le degré de mélange apparent sur le réacteur est estimé selon deux modèles conventionnels de DTS des réacteurs :

- Soit par le nombre de Péclet, noté Pe, calculé avec le moment d'ordre 2 du modèle Piston-Dispersion aux conditions ouvert-fermé (voir Chapitre I),

$$\frac{\sigma_m^2}{{\tau_m}^2} = \frac{2}{Pe} + \frac{3}{Pe^2} \qquad (V.27)$$

avec :

$$\tau_m = 4\frac{Q_L + Q_G}{\pi {d_c}^2} \qquad (V.28)$$

- Soit par N_{RPA} le nombre de Réacteurs Parfaitement Agités (ci-après : RPA) en série pour lequel le moment d'ordre 2 s'exprime par :

$$N_{RPA} = \frac{\overline{t_m}^2}{{\sigma_m}^2} \qquad (V.29)$$

L'organigramme présenté ci-dessous (Figure V-15) résume la démarche de calcul développée pour l'analyse de l'effet de la maldistribution des phases sur le degré de mélange apparent des écoulements de Taylor dans un réacteur monolithe :

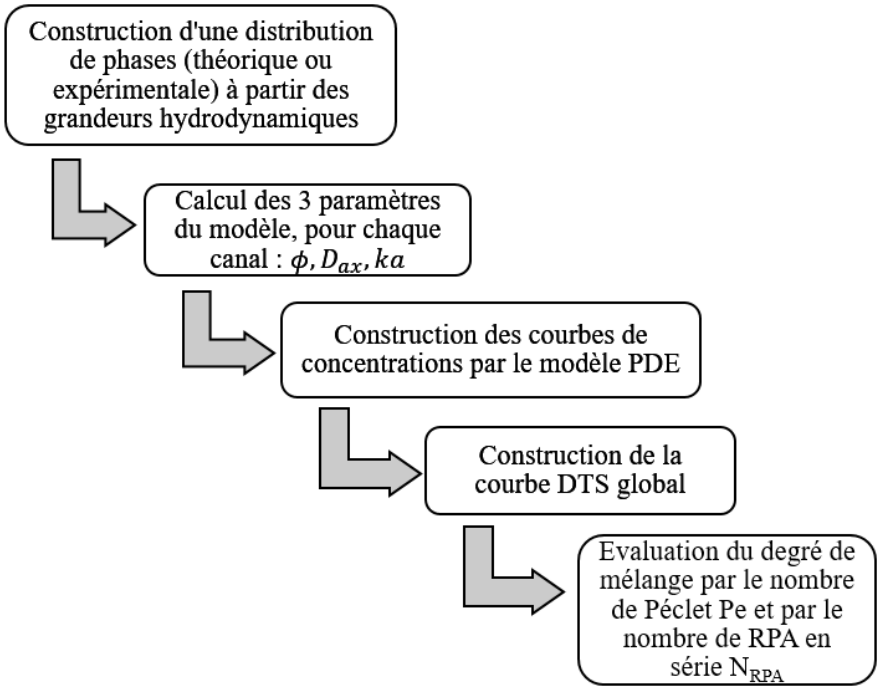


Figure V-15.Organigramme de la démarche de calcul appliquée pour étudier l'effet de la maldistribution des phases sur le degré de mélange apparent d'un réacteur monolithe.

V.5.2 Maldistributions artificielles des phases : étude de l'impact sur le degré de mélange apparent du monolithe

Comme évoqué précédemment, nous avons créé des distributions artificielles de gaz et de liquide autour d'un même point de fonctionnement moyen : u_{TP} moyen de 0,53 m/s, et β_G moyen de 50% ; cela correspond à U_b moyen de 0,61 m/s, et ε_G moyen de 0,44. Quatre premières distributions ont été bâties avec $\varepsilon_{G,i}$ quasiment constant et avec des écarts-types plus ou moins grands sur $U_{b,i}$; de la même façon quatre distributions ont été construites à $U_{b,i}$ fixée (voir Tableau V-5 ci-dessous) mais $\varepsilon_{G,i}$ variable. Dans la pratique, pour bâtir chacune de ces distributions, on a pris soin de conserver les débits globaux d'alimentation en gaz et en liquide ; ces débits globaux sont divisés par 12, et on applique 12 coefficients de pondérations au débit individuel de liquide. Ensuite, on en déduit les débits individuels de gaz, soit en conservant la valeur de u_{TP} pour les 12 canaux, soit en conservant la valeur de la rétention β_G dans les 12 canaux. Ces distributions artificielles sur 12 canaux sont représentées schématiquement en Figure V-16 ci-dessous.

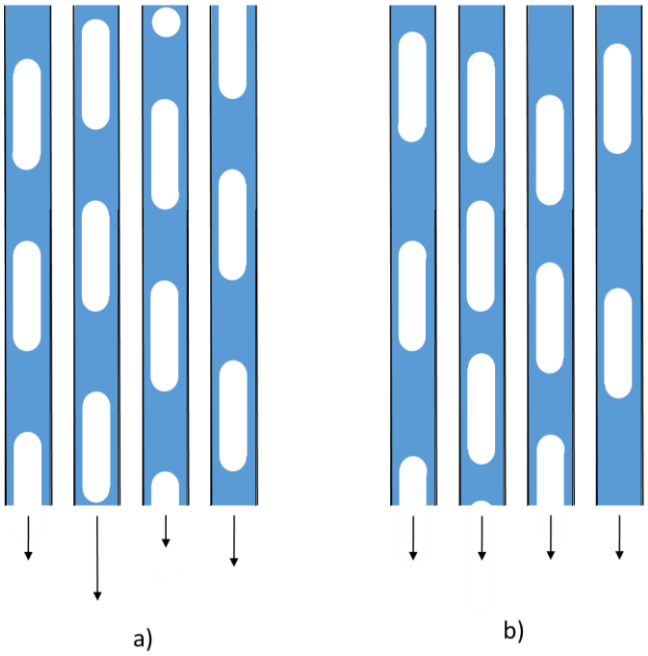


Figure V-16. Schéma des distributions artificielles générées (représentation de 4 canaux seulement), à taille de bulle fixée ; a) maldistribution en vitesse de bulle, avec taux de gaz constant ; b) maldistribution en taux de gaz, avec vitesse de bulle constante.

Ainsi, l'impact de la distribution des $U_{b,i}$ et celui de la distribution des $\varepsilon_{G,i}$ sur la pseudo-dispersion globale dans le monolithe vont pouvoir être observés séparément.

Tableau V-5. Conditions utilisées pour l'étude de la maldistribution de U_b et ε_G sur le monolithe de 12 canaux.

N° simulation	Distribution	u_{TP} (m/s)		β_G (-)		U_b (m/s)		ε_G (-)	
		Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type
Cas 1	Unif.	0,53	0%	0,50	0%	0,61	0%	0,44	0%
Cas 2	Distrib. en U_b	0,53	9%	0,50	0%	0,61	10%	0,44	0%
Cas 3		0,53	19%	0,50	0%	0,61	21%	0,44	1%
Cas 4		0,53	33%	0,50	0%	0,61	36%	0,44	2%
Cas 5		0,53	52%	0,50	0%	0,61	55%	0,44	3%
Cas 6	Distrib. en ε_G	0,53	0%	0,50	9%	0,61	0%	0,44	10%
Cas 7		0,53	0%	0,50	20%	0,61	0%	0,44	20%
Cas 8		0,53	0%	0,50	35%	0,61	0%	0,44	35%
Cas 9		0,53	0%	0,50	52%	0,61	0%	0,44	52%

On note que les écarts-types sur les vitesse de bulles impliquent des écarts-types sur les valeurs de $\varepsilon_{G,i}$ (mais très modérés : < 3%), puisque, lors de la construction de ces distributions, la conservation de la valeur des $\beta_{G,i}$, combinée à la variation des $U_{b,i}$, impacte légèrement les taux de gaz $\varepsilon_{G,i}$.

V.5.2.1 Distribution basée sur la variation des vitesses de bulles U_b

Les 5 premières distributions (cas 1 à 5) sont schématisées par des histogrammes des débits individuels par canal en Figure V-17. On voit que, pour ces 5 cas, chaque canal reçoit un débit cumulé $\{q_{G,i} + q_{L,i}\}$ différent, mais selon la même proportion volumique entre les deux phases. Les paramètres correspondants pour le modèle PDE sont calculés et les plages de valeurs de ces paramètres sont données dans le tableau V-6 ci-dessous. Les valeurs par canal sont données en Annexe C.

Tableau V-6. Paramètres du modèle PDE pour 5 cas de maldistribution théorique de U_b sur le monolithe de 12 canaux.

N° simulation	**U_b (m/s)**		**ε_G (-)**	$D_{ax,i}$	$k_i a_i$	ϕ_i
	Moyenne	**Ecart-type**	**Moyenne**			
Cas 1	0,61	0%	0,44	0,005	0,86	0,906
Cas 2	0,61	10%	0,44	0,005	0,81-0,91	0,90-0,91
Cas 3	0,61	21%	0,44	0,005	0,69-1,00	0,89-0,92
Cas 4	0,61	36%	0,44	0,005	0,59-1,10	0,88-0,93
Cas 5	0,61	55%	0,44	0,005	0,41-1,20	0,87-0,95

Pour chacune des 5 distributions, les fonctions DTS de chaque canal sont alors tracées sur un même graphique, en Figure V-18 ; sur ce graphique est également tracée, en pointillés noirs, la fonction DTS du réacteur global. Lorsque l'écart-type sur les valeurs de vitesse de bulle est élevé (cas 4 et 5), les courbes DTS des canaux sont très différentes en termes de valeur maximale et d'étalement : ceci peut s'expliquer par l'impact fort de $U_{b,i}$ sur la valeur du coefficient d'échange $k_i a_i$ et, dans une moindre mesure, sur ϕ_i dans le modèle PDE, comme on peut le voir dans le tableau V-6.



Figure V-17. Distribution des débits de liquide et de gaz dans les canaux pour les cas n° 1 à 5.

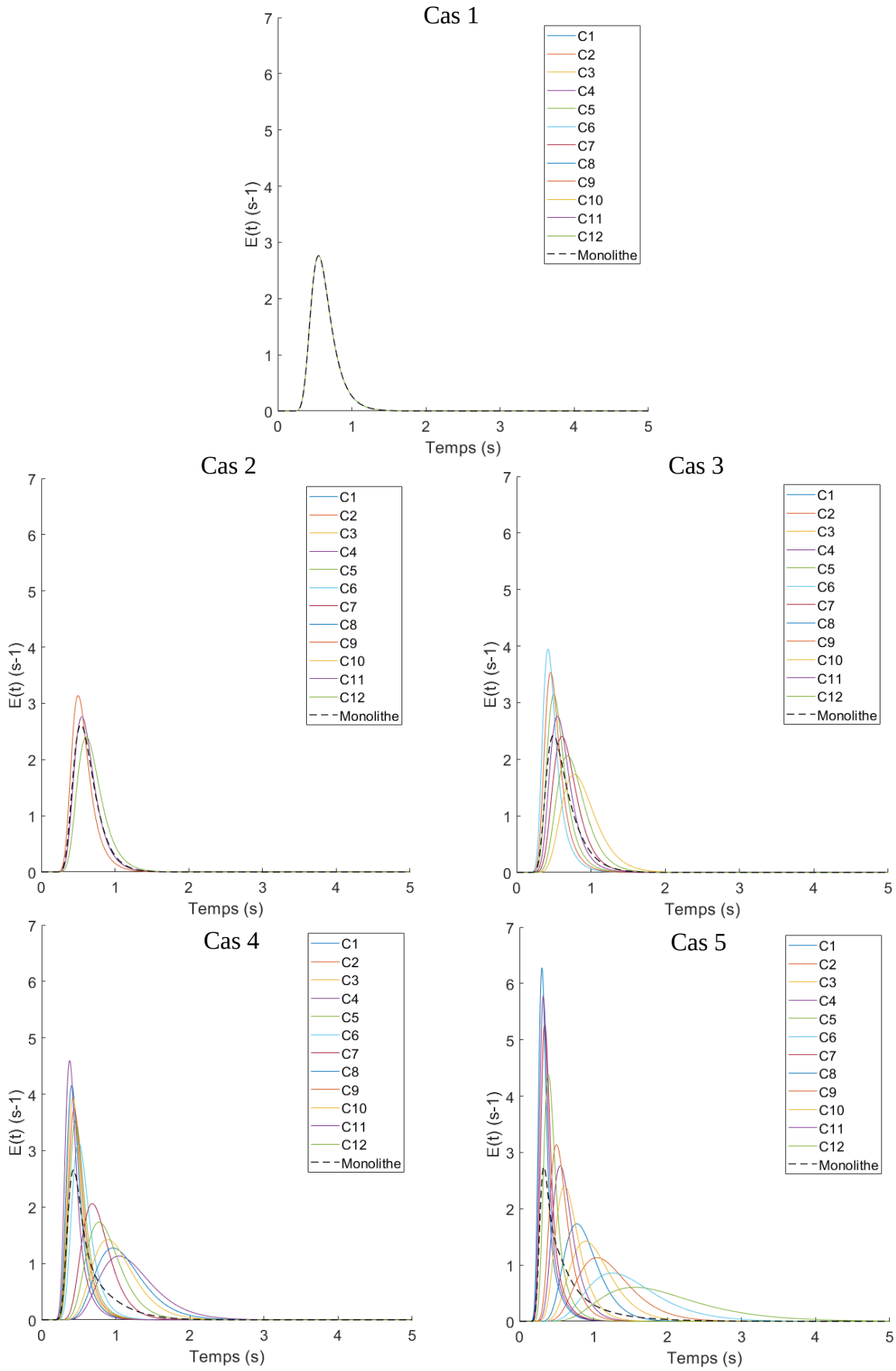


Figure V-18. Courbes DTS des 12 canaux et courbe DTS du monolithe pour les cas n° 1 à 5.

On représente alors (Figure V-19) la variation du nombre de Péclet Pe et du nombre de RPA en série (N_{RPA}) correspondant à la courbe DTS du monolithe global. On trouve des valeurs globales de Peclet plus faibles que celles de Pe_{PDE} dans les divers canaux. Ceci est dû à la « pseudo-dispersion » dans le monolithe complet. On remarque également que pour le cas 5, ces grandeurs décroissent jusqu'à des valeurs de 5, indiquant un niveau de mélange global important. Celui-ci augmente considérablement avec la diversification des vitesses de bulle dans la distribution.

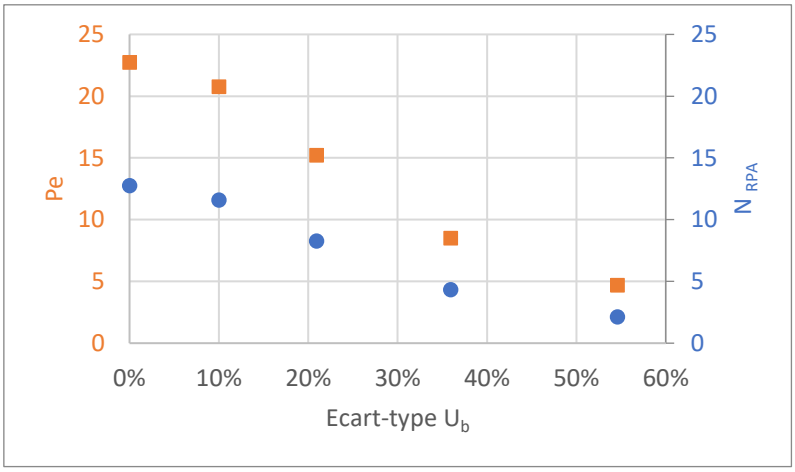


Figure V-19. Nombre de Péclet Pe et nombre N_{RPA} de RPA en série calculés pour le monolithe global, en fonction du niveau de maldistribution (écart-type) sur la vitesse de bulles U_b dans les 12 canaux.

V.5.2.2 Distributions basées sur la variation des taux de gaz ε_G

Les 4 dernières distributions (cas 6 à 9) sont schématisées par des histogrammes des débits individuels par canal en Figure V-20. On voit que, pour ces 4 cas, chaque canal reçoit un débit cumulé $\{q_{G,i} + q_{L,i}\}$ identique au cas 1, mais selon des proportions volumiques différentes entre les deux phases. Les paramètres correspondants pour le modèle PDE sont calculés et les plages de valeurs de ces paramètres sont données dans le tableau V-7 ci-dessous (les valeurs par canal sont données en Annexe C). On remarque que, les valeurs de $U_{b,i}$ étant uniformes sur les canaux, celles de ϕ_i le sont aussi.

Tableau V-7. Paramètres du modèle PDE pour 5 cas de maldistribution théorique de U_b sur le monolithe de 12 canaux.

N° simulation	U_b (m/s)	ε_G (-)		$D_{ax,i}$	$k_i a_i$	ϕ_i
	Moyenne	Moyenne	Ecart-type			
Cas 1	0,61	0,44	0%	0,005	0,86	0,91
Cas 6	0,61	0,44	10%	0,005	0,76-0,98	0,91
Cas 7	0,61	0,44	20%	0,005	0,57-1,30	0,91
Cas 8	0,61	0,44	35%	0,005	0,46-1,50	0,91
Cas 9	0,61	0,44	52%	0,005	0,42-2,40	0,91



Figure V-20. Distribution des débits de liquide et de gaz dans les canaux pour les cas n° 1 et 6 à 9.

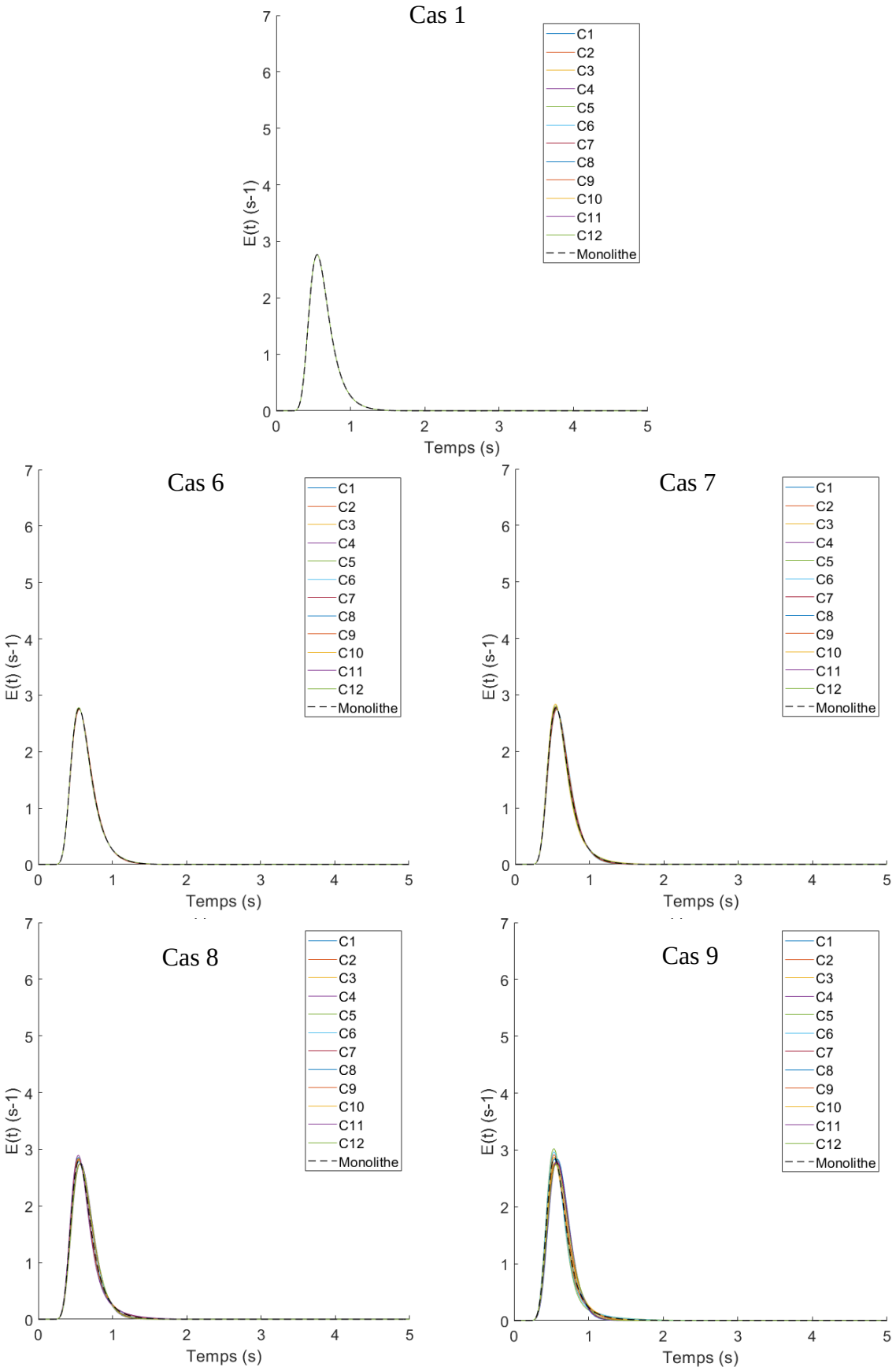


Figure V-21. Courbes DTS des 12 canaux et courbe DTS du monolithe pour les cas n° 1 et 6 à 9.

Les courbes DTS issues des distributions à $U_{b,i}$ uniforme (Figure V-21) présentent un profil très similaire à celui d'une distribution uniforme, contrairement à ce qui a été observé dans le paragraphe précédent pour les maldistributions en vitesse de bulles. Pourtant, les valeurs du paramètre $k_i a_i$ sont ici aussi très diverses, car fortement impactées par le taux de gaz. Dans le cas précédent (maldistributions en vitesses de bulle), c'était donc l'impact de la diversité des temps de séjour dans les canaux, et également (potentiellement) l'impact de la vitesse sur ϕ_i, qui étaient à l'origine de la diversité des courbes.

Les courbes DTS des canaux étant similaires, le degré de mélange apparent global (sur le monolithe) de ces distributions n'est pas très significatif : Pe > 18 et N_{RPA} > 10, comme montré dans la Figure V-22. Par ailleurs, ces grandeurs varient peu tant que l'écart-type sur le taux de gaz est inférieur à 33%.

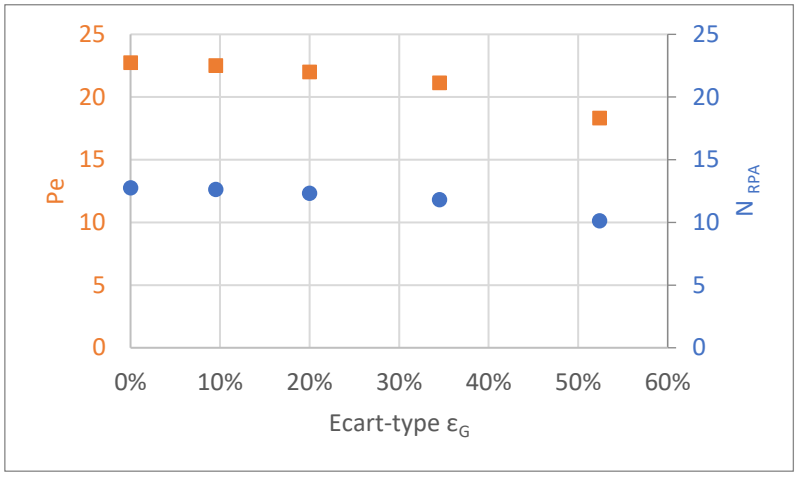


Figure V-22. Nombre de Péclet Pe et nombre N_{RPA} de RPA en série calculés en fonction du niveau de maldistribution (écart-type) sur le taux de gaz ε_G dans les 12 canaux.

Le degré de mélange apparent dans le réacteur monolithe est donc plus affecté par une mauvaise distribution sur la vitesse de bulles dans les canaux que par une maldistribution sur le taux de gaz ; en effet, la maldistribution des vitesses de bulles induit une diversité des valeurs de temps de séjour et de rétention de phase liquide dynamique ϕ, sources de mélange global pour le monolithe.

V.5.3 Maldistributions expérimentales des phases : étude de l'impact sur le degré de mélange apparent du monolithe

Dans cette section, les distributions des fluides étudiées sont issues d'expériences ; les grandeurs U_b et ε_G présentent donc toutes les deux, simultanément, des écarts-types non négligeables.

La cartographie des expériences issues de la campagne DTS sera ici complétée par l'ajout de deux expériences qui ont été réalisées (sans traçage) avec la barrette en PA12. En effet, vu que les expériences de la campagne DTS ont été réalisées avec la barrette en résine Invicta comportant des trous latéraux de 1,5 mm, la plupart des écoulements obtenus montrent des écoulements de Taylor et une bonne distribution des fluides (écarts-types sur U_b et ε_G inférieurs à 10%). Les deux expériences supplémentaires présentent, elles, des régimes d'écoulement divers parmi les 12 canaux, et une maldistribution plus marquée sur les grandeurs hydrodynamiques, avec des écarts-types de l'ordre de 20% pour la vitesse de bulles et pour le taux de gaz.

Le tableau V-8 ci-dessous indique les 14 conditions de débits totaux de gaz et de liquide utilisées dans cette étude et la Figure V-23 montre la cartographie des écoulements, complétée avec les deux expériences (n°13 et 14) réalisées avec la barrette PA12. Les valeurs des grandeurs hydrodynamiques pour les 12 canaux de chacune de ces 14 expériences sont disponibles en Annexe C.

Tableau V-8. Conditions utilisées pour l'étude de l'impact de maldistributions expérimentales sur le mélange global dans un monolithe : débits totaux de gaz Q_G et de liquide Q_L, vitesses superficielles moyennes et régime d'écoulement global observé. (barrette en PA).*

N° expérience	Q_L (m^3/s)	Q_G (m^3/s)	$u_{L,moy}$ (m/s)	$u_{G,moy}$ (m/s)	Régime
1	6,9E-06	6,5E-06	0,18	0,17	Taylor
2	6,9E-06	1,5E-05	0,18	0,41	Taylor
3	6,9E-06	2,4E-05	0,18	0,65	Taylor
4	9,2E-06	6,5E-06	0,24	0,17	Taylor
5	9,2E-06	1,5E-05	0,24	0,41	Taylor
6	9,2E-06	2,4E-05	0,24	0,65	Taylor
7	1,2E-05	6,5E-06	0,31	0,17	A bulles
8	1,2E-05	1,5E-05	0,31	0,41	Taylor
9	1,2E-05	2,4E-05	0,31	0,65	Taylor
10	1,4E-05	6,5E-06	0,37	0,17	A bulles
11	1,4E-05	1,5E-05	0,37	0,41	A bulles
12	1,4E-05	2,4E-05	0,37	0,65	Taylor
13*	6,9E-06	1,2E-05	0,18	0,31	Divers
14*	1,4E-05	1,9E-05	0,37	0,50	Divers

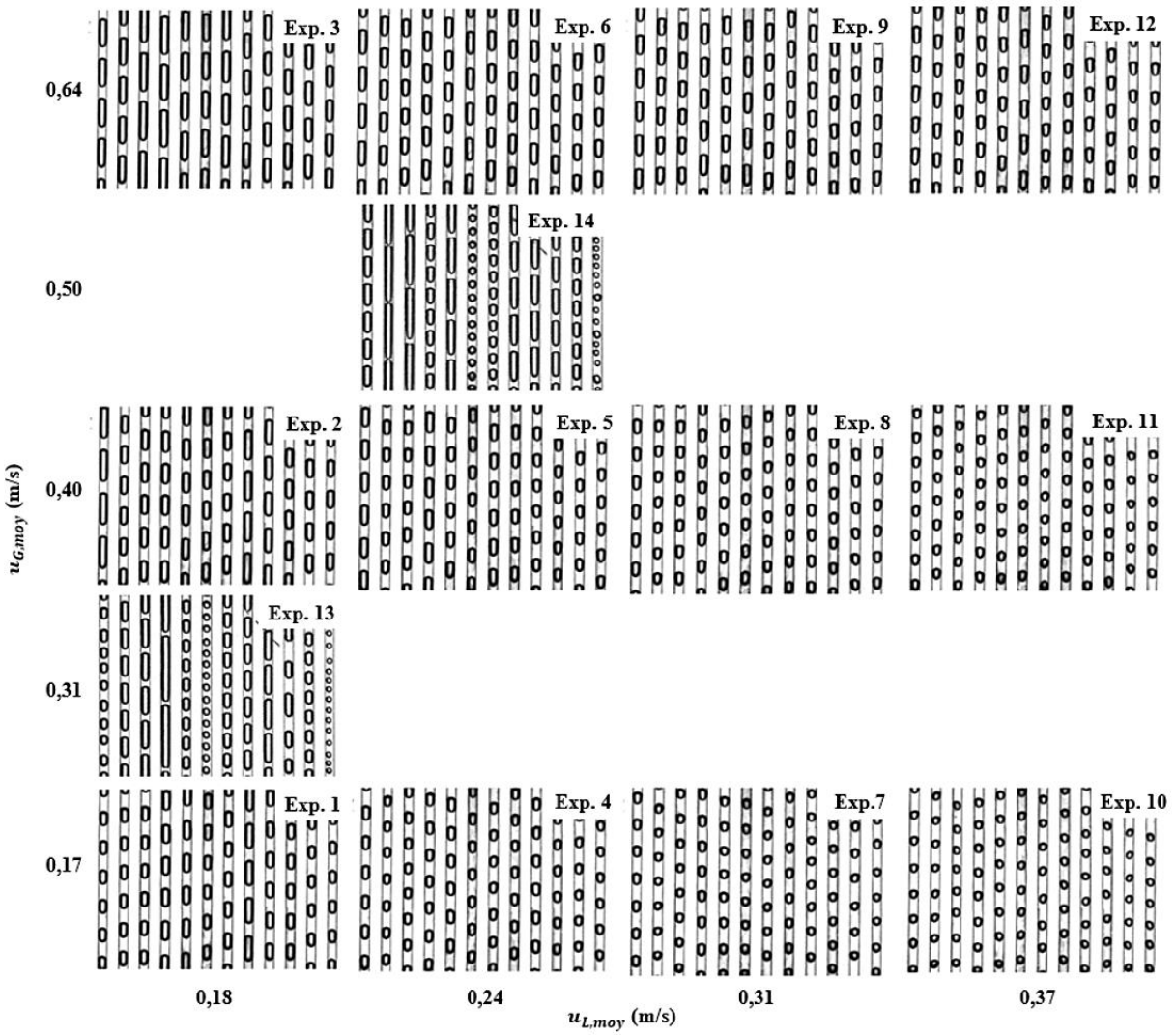


Figure V-23. Cartographie des écoulements utilisés pour l'étude de l'impact de la maldistribution (expérimentale) sur le degré de mélange apparent, avec l'ajout des expériences 13 et 14 par rapport à la campagne des expériences de traçage (barrette en PA12).

V.5.3.1 Effet des paramètres hydrodynamiques expérimentaux, en supposant une distribution uniforme

Avant d'évaluer l'effet de maldistribution des phases, issues des expériences réalisées, sur le degré de mélange global dans le monolithe, nous nous intéressons à classifier ces données expérimentales à travers les valeurs moyennes de leurs caractéristiques hydrodynamiques (U_b, ε_G, f_b, L_b), en s'affranchissant de leur maldistribution : ces valeurs sont moyennées sur les 12 canaux, puis les autres grandeurs (δ, u_{TP}, L_f, L_{uc}, …) sont calculées à l'aide des expressions décrites dans le tableau V-4, enfin les paramètres du modèle PDE sont déduits comme indiqué en section V.4.4. On peut alors tracer les courbes de DTS associées et en extraire les deux premiers moments pour calculer le nombre de Péclet global et le nombre équivalent de réacteurs parfaitement mélangés en série (pour le monolithe de 12 canaux). On notera dans la suite Pe_u et $N_{RPA,u}$ ces 2 grandeurs, issues de distributions uniformes. A noter que Pe_u et $N_{RPA,u}$ sont en fait ici ceux de l'écoulement moyen unique considéré pour chacun des 12 canaux (distribution

uniforme). Ainsi nous allons dans un premier temps évaluer l'effet des débits de liquide et de gaz sur le degré de mélange apparent pour des distributions théoriques uniformes, tout en conservant la cohérence – en ordres de grandeurs – avec les écoulements expérimentaux. Dans un second temps nous prendrons en compte la distribution réelle des écoulements.

Le tableau V-9 ci-dessous regroupe les valeurs des mesures hydrodynamiques (moyennes pour chaque distribution), utilisées pour cette étude, et les paramètres du modèle PDE correspondants.

Tableau V-9.Valeurs des mesures hydrodynamiques appliquées aux diverses expériences pour créer les distributions uniformes associées.

N° expérience	U_b (m/s)	ε_G (-)	L_b (m)	f_b (Hz)	Pe_{PDE}	N	ϕ	ka (s^{-1})
1	0,31	0,49	0,004	52	20-23	0,7-0,9	0,9	0,6-0,7
2	0,50	0,64	0,006	65	34-37	0,7-0,8	0,9	0,9-1,1
3	0,64	0,69	0,009	63	41-49	0,5-0,7	0,9	0,9-1,1
4	0,37	0,39	0,000	73	24-28	0,7-0,8	0,9	0,7-0,8
5	0,54	0,55	0,004	87	36-43	0,7-0,8	0,9	1,0-1,1
6	0,68	0,59	0,006	87	43-58	0,5-0,7	0,9	0,9-1,1
7	0,43	0,34	0,002	95	29-32	0,7-0,8	0,9	0,8-1,0
8	0,52	0,45	0,003	104	34-40	0,7-0,8	0,9	1,0-1,1
9	0,76	0,59	0,006	96	48-62	0,5-0,7	0,9	1,0-1,2
10	0,52	0,30	0,002	122	35-38	0,7-0,8	0,9	1,0-1,1
11	0,60	0,40	0,003	124	40-44	0,6-0,7	0,9	1,0-1,1
12	0,79	0,52	0,005	117	53-59	0,5-0,6	0,9	1,0-1,2
13	0,47	0,56	0,004	114	24-47	0,3-1,2	0,9	0,6-1,4
14	0,74	0,71	0,005	160	37-67	0,9-1,4	0,9	1,6-2,4

Ces distributions uniformes, une fois leurs caractéristiques hydrodynamiques calculées et les paramètres des modèles PDE correspondants évalués, donnent lieu à des courbes DTS de formes variées (disponibles en Annexe C). La Figure V-24 ci-dessous montre deux exemples, correspondant aux distributions uniformes associées aux expériences 1 et 12 : la première courbe DTS montre une variance plus élevée que la seconde.

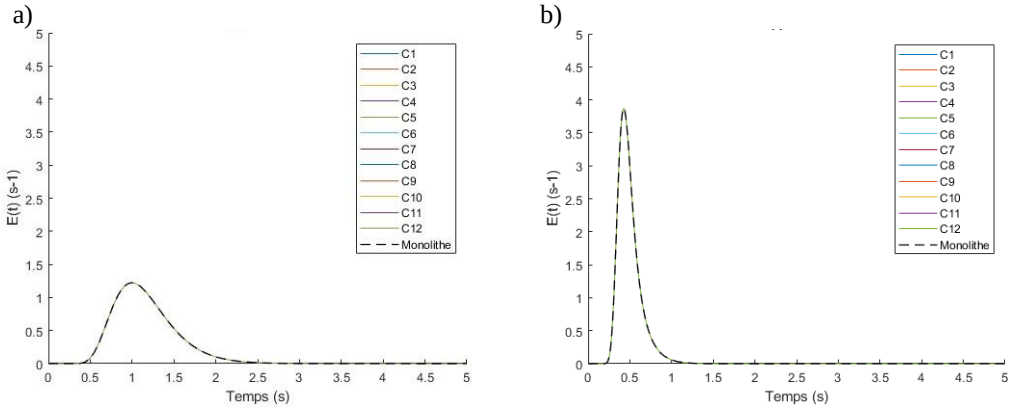


Figure V-24. Exemples de courbes DTS associées aux distributions uniformes construites sur la base des distributions expérimentales dans 12 canaux. a) Expérience 1 ; b) Expérience 12.

La sensibilité du nombre de Péclet Pe_u et du nombre $N_{RPA,u}$ aux vitesses de bulles et aux taux de gaz est donnée dans les graphes ci-dessous (Figures V-25 et V-26). Toutes les courbes DTS correspondantes sont disponibles en Annexe C.

On constate des valeurs assez étalées de Pe_u et $N_{RPA,u}$, et, comme attendu, leur dépendance à la vitesse de bulle pour ces écoulements, quel qu'en soit le régime. L'effet du taux de gaz est moins net, donnant un nuage des points.

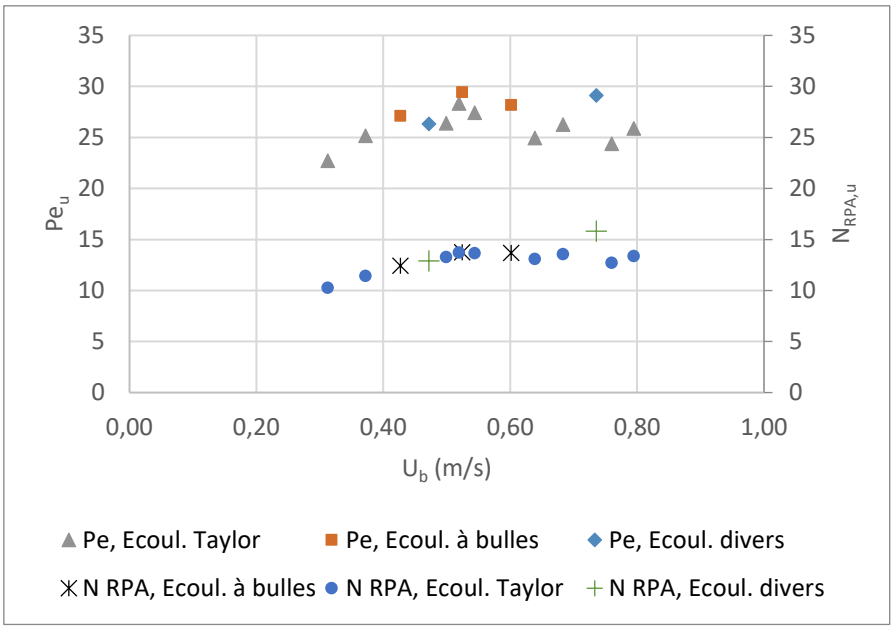


Figure V-25. Impact de la vitesse de bulles sur Pe_u et $N_{RPA,u}$ (en distribution uniforme dans 12 canaux).

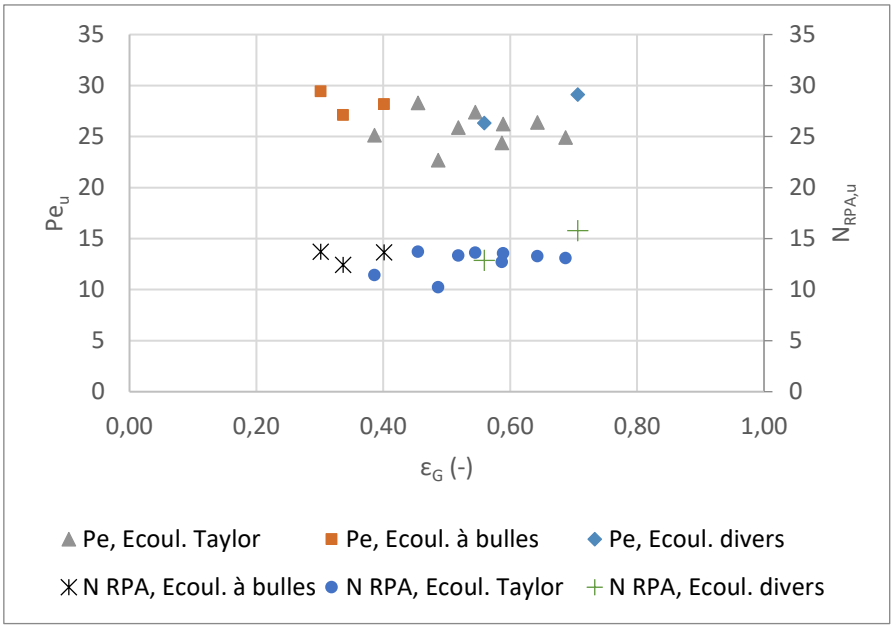


Figure V-26. Impact du taux de gaz sur Pe_u et $N_{RPA,u}$ (en distribution uniforme dans 12 canaux).

V.5.3.2 Effet couplé des distributions sur U_b et ε_G

Nous considérons maintenant les distributions expérimentales réelles dans les canaux, c'est-à-dire la variation des débits individuels de gaz et de liquide dans chacun des canaux, et les caractéristiques hydrodynamiques associés au canal, mesurées par traitement d'images. Nous allons ainsi étudier l'effet des maldistributions couplées en vitesse de bulles et en taux de gaz. Pour les 14 expériences analysées ici, l'écart-type normé sur la vitesse de bulles dans les 12 canaux varie entre 3% et 20%, et celui sur le taux de gaz est entre 3% et 22%, comme montré dans le tableau V-10 ci-dessous. On observe que les deux catégories d'écarts-types (celui sur U_b et celui sur ε_G) sont corrélés : lorsque l'un est élevé, l'autre l'est aussi, et réciproquement. Pour les expériences montrant 12 canaux en écoulement à petites bulles (n° 10 et 11), on remarque que les écarts-types sont faibles (~3%), pouvant suggérer une meilleure maîtrise de la distribution des fluides pour ce type d'écoulement.

Tableau V-10. Niveaux de maldistribution en termes de vitesse de bulles et de taux de gaz pour les expériences étudiées, et valeurs moyennes des paramètres associés pour le modèle PDE (avec D_{ax} constant et égal à 5.10^{-3} m^2/s).

	U_b (m/s)		**ε_G (-)**	
N° expérience	**Moyenne**	**Ecart-type**	**Moyenne**	**Ecart-type**
1	0,31	5%	0,49	7%
2	0,50	3%	0,64	7%
3	0,64	6%	0,69	6%
4	0,37	4%	0,39	5%
5	0,54	4%	0,55	8%
6	0,68	10%	0,59	10%
7	0,43	3%	0,34	5%
8	0,52	5%	0,45	4%
9	0,76	9%	0,59	10%
10	0,52	3%	0,30	3%
11	0,60	3%	0,40	3%
12	0,79	4%	0,52	3%
13	0,47	19%	0,56	22%
14	0,74	20%	0,71	19%

La sensibilité du nombre de Péclet global et du nombre N_{RPA} (pour le monolithe de 12 canaux) aux niveaux de maldistribution sur la vitesse de bulles et sur le taux de gaz est étudiée via les graphes ci-dessous. Les courbes DTS correspondantes sont données en Annexe C.

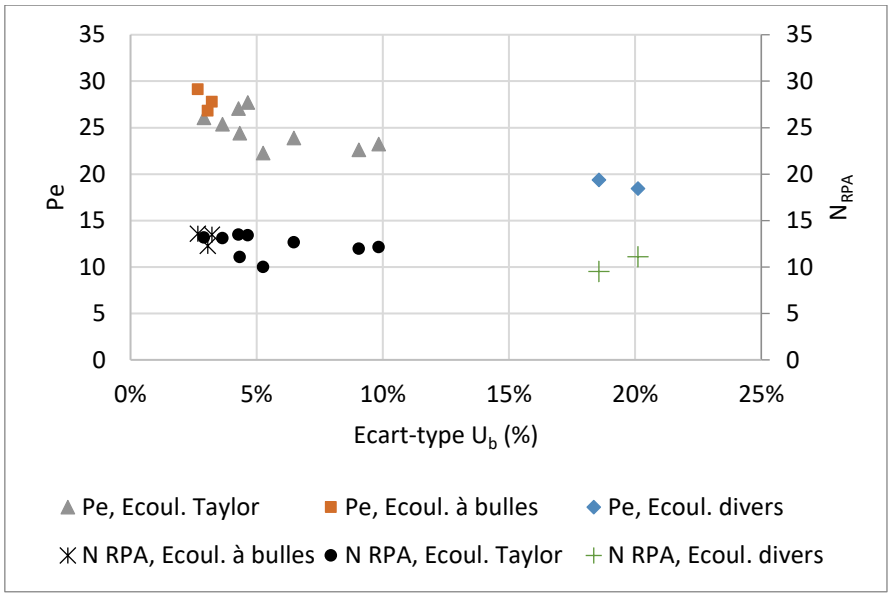


Figure V-27. Impact sur et Pe et N_{RPA} de la distribution de la vitesse de bulles, en distribution expérimentale dans 12 canaux.

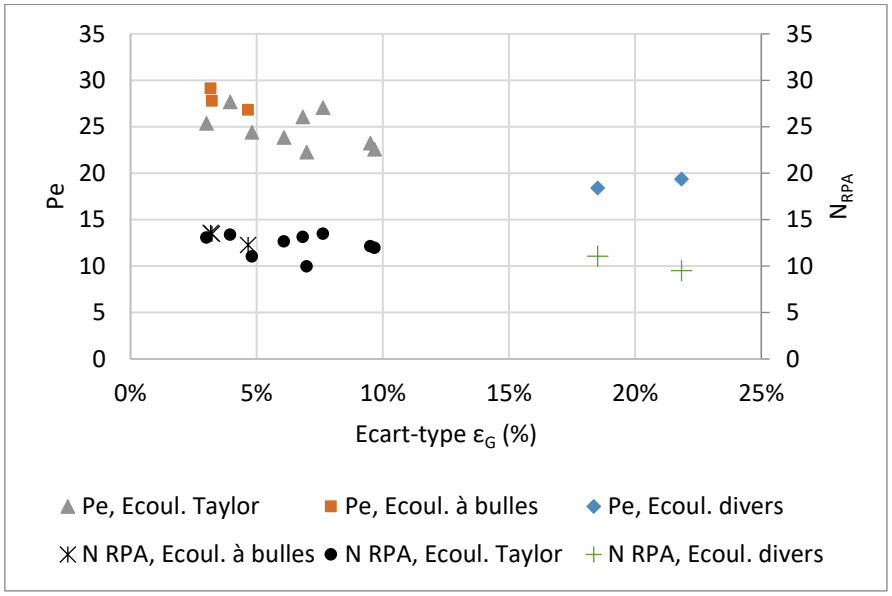


Figure V-28. Impact sur et Pe et N_{RPA} de la distribution du taux de gaz, en distribution expérimentale dans 12 canaux.

Les maldistributions étant des combinaisons des écarts-types sur U_b et sur le taux de gaz, les tendances sont moins nettes sur ces graphes, mêmes si Pe et N_{RPA} diminuent globalement avec l'augmentation de la maldistribution. Nous allons alors analyser ces résultats en leur retranchant les variations de Pe et N_{RPA} dues aux différences des valeurs moyennes de la vitesse de bulle et du taux de gaz : on calcule Pe et N_{RPA} pour les distributions homogènes construites à partir des mêmes conditions hydrodynamiques, paramètres que nous nommerons Pe_u et $N_{RPA,u}$. Nous calculons ensuite les écarts absolus $|Pe - Pe_u|$ et $|N_{RPA} - N_{RPA,u}|$, que nous nommerons ΔPe et ΔN_{RPA}.

Les graphes ci-dessous donnent les valeurs de ΔPe et ΔN_{RPA} avec les valeurs correspondantes en distributions uniformes. Cet écart absolu augmente avec les niveaux de maldistribution sur la vitesse de bulles et sur le taux de gaz, comme montré dans les graphes ci-dessous :

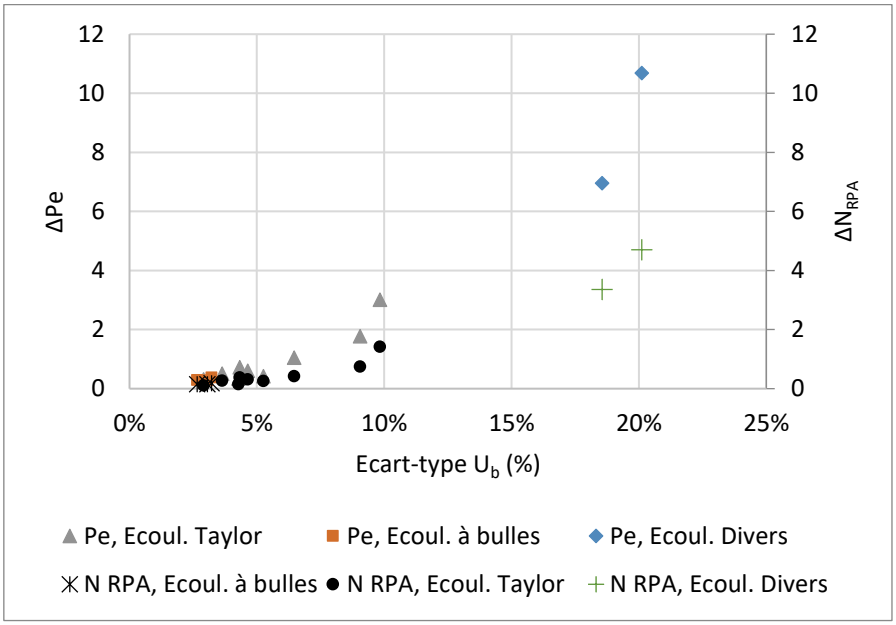


Figure V-29. Impact sur ΔPe et ΔN_{RPA} de la distribution de la vitesse de bulles, en distribution expérimentale dans 12 canaux.

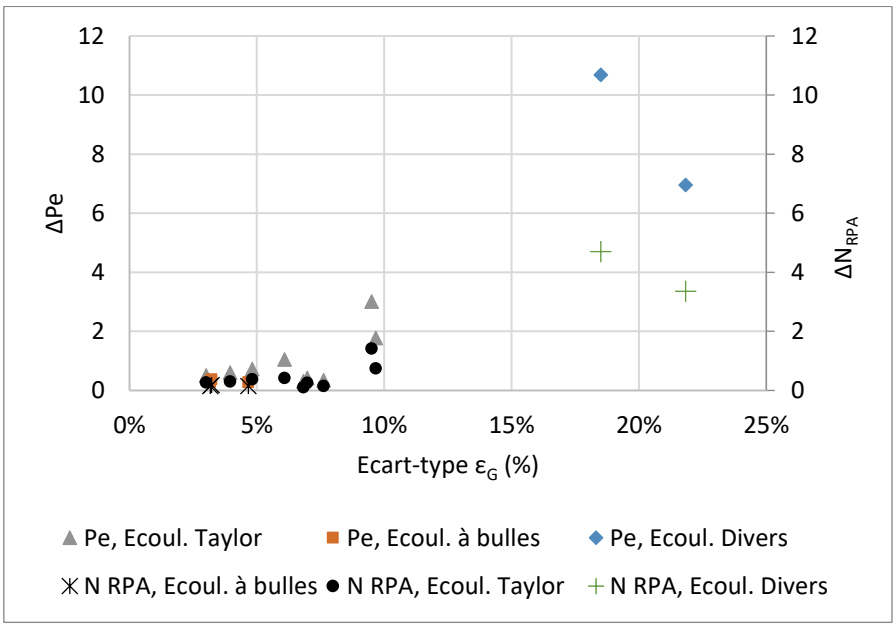


Figure V-30. Impact sur ΔPe et ΔN_{RPA} de la distribution du taux de gaz, en distribution expérimentale dans 12 canaux.

Les tendances sont alors plus nettes : pour les écoulements de Taylor en particulier, on voit que ΔPe et ΔN_{RPA} augmentent de façon monotone avec les écarts-types sur U_b et ε_G. L'effet

de la maldistribution dans les canaux sur le degré global de mélange dans le monolithe est donc mis en évidence ici. Il peut également être représenté par des écarts absolus sur la variables D_{ax} (c'est-à-dire $\Delta D_{ax} = D_{ax} - D_{ax,u}$) et sur la variance des courbes DTS du monolithe (c'est-à-dire $\Delta\sigma^2 = \sigma^2 - \sigma^2_u$). Ces graphes étant très ressemblants, on trace uniquement ci-dessous la variation de ΔD_{ax} avec les écarts-types en U_b et ε_G. Les graphiques ci-dessous montrent des dépendances de ΔD_{ax} avec les écarts-types plus nettes encore que celles de ΔPe et ΔN_{RPA} : les courbes sont mieux corrélées (voir Figures V.31 et V.32).

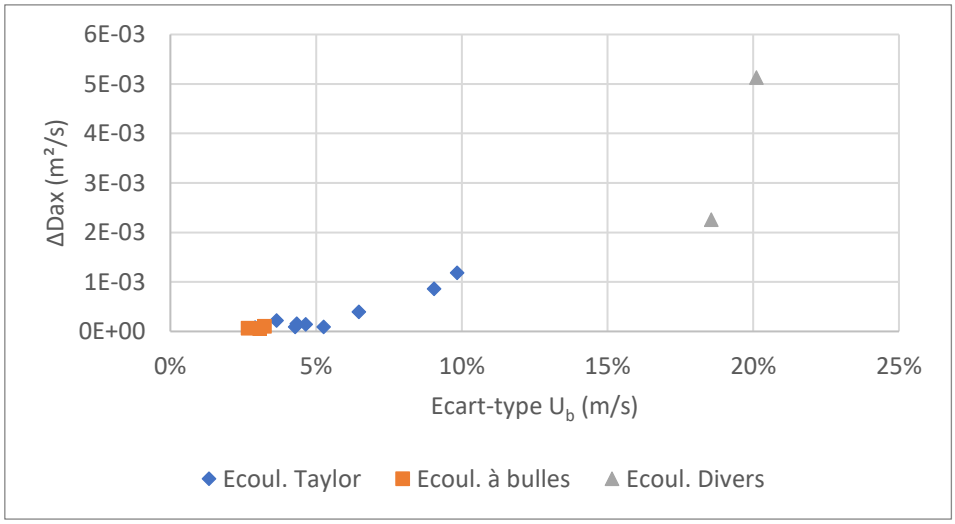


Figure V-31. Impact sur ΔD_{ax} de la distribution de la vitesse de bulles, en distribution expérimentale dans 12 canaux.

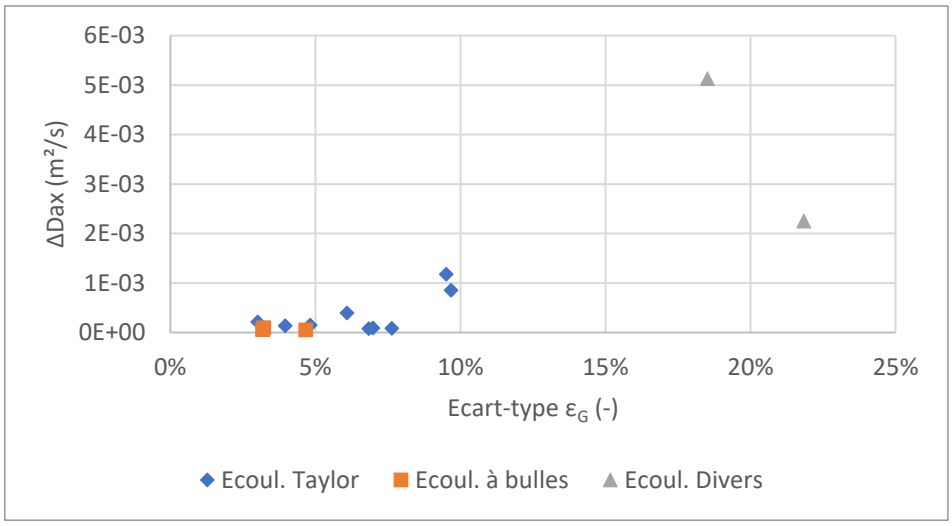
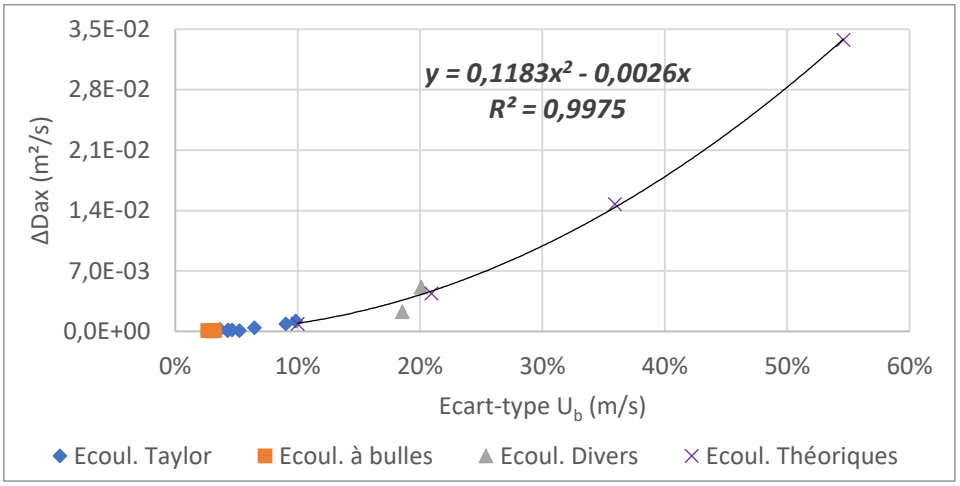


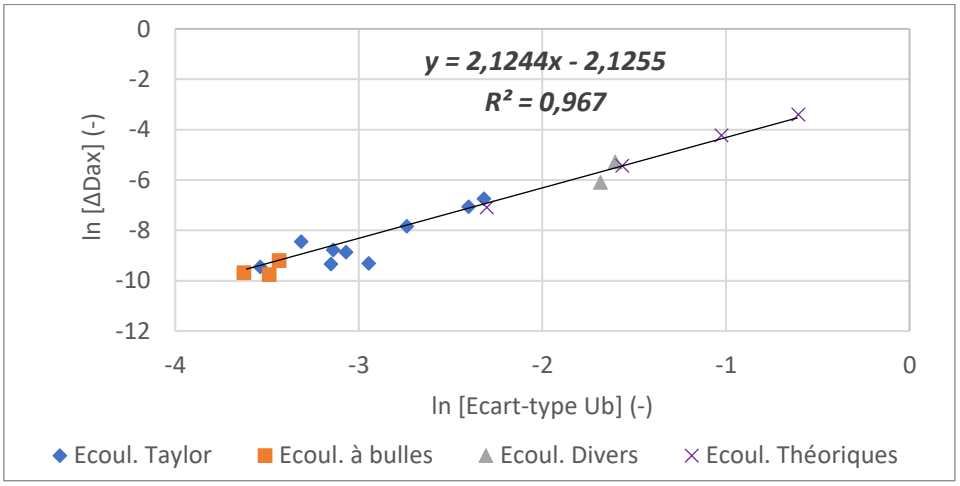
Figure V-32. Impact sur ΔD_{ax} de la distribution du taux de gaz, en distribution expérimentale dans 12 canaux.

La pseudo-dispersion axiale induite par la maldistribution, ΔD_{ax} (à ajouter à celle de la distribution uniforme correspondante), est multipliée par un facteur 50 sur la plage explorée des valeurs d'écarts-types en U_b. ΔD_{ax} varie de façon presque identique avec l'écart-type sur U_b et avec celui sur ε_G – ces deux écarts-types étant eux-mêmes similaires entre eux, pour les 14 maldistributions étudiées –. On ajoute sur ces graphes les valeurs de ΔD_{ax} issues des 9 distributions artificielles étudiées en section V.5.2.

a)



b)



c)

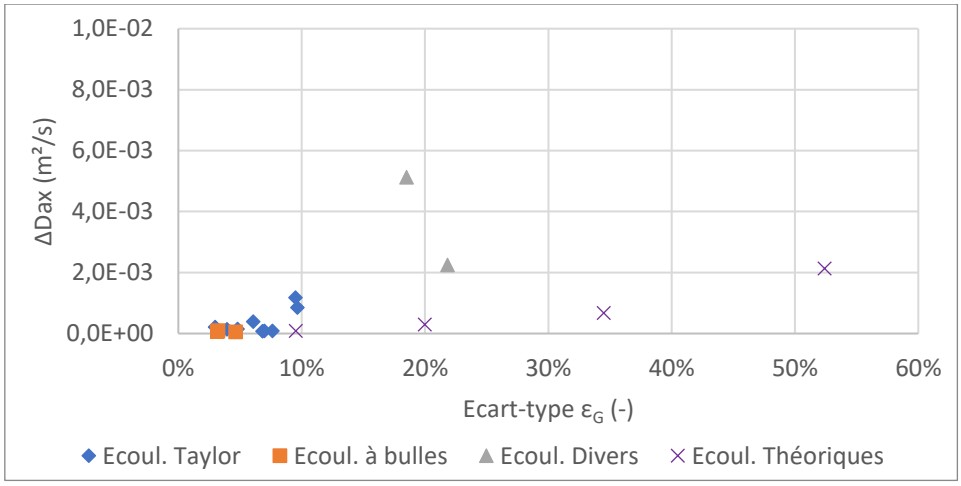


Figure V-33. Impact sur ΔD_{ax} a) de la distribution des vitesses de bulle, avec courbe de tendance quadratique ; b) de la distribution des vitesses de bulle, avec courbe de tendance exponentielle ; et c) de la distribution du taux de gaz, en distributions expérimentales et théoriques dans 12 canaux.

L'ensemble des distributions – artificielles et expérimentales – s'accordent à montrer une dépendance de type quadratique de ΔD_{ax} avec l'écart-type en U_b (Figure V-33 a) plutôt que de type exponentiel (Figure V-33 b); en revanche, pour les distributions expérimentales l'impact des écarts-types en ε_G est entaché de l'impact fort des écarts-types en U_b, et les 2 populations de maldistributions ne s'accordent pas (Figure V-33 c).

On peut proposer, sur la base de la Figure V-33 a et sur l'ensemble des distributions testées, un modèle simple pour prédire D_{ax}, connaissant $D_{ax,u}$ (lui-même atteignable *via* les mesures de U_b et ε_G et via le modèle PDE, comme expliqué en section V.5.1) et connaissant la maldistribution (ou écart-type) en U_b, notée ici σ_{U_b} :

$$D_{ax} = D_{ax,u} + 0{,}1183{\sigma_{U_b}}^2 - 0{,}0026\sigma_{U_b} \qquad (\text{en } m^2.s^{-1}) \qquad (V.30)$$

Cette corrélation empirique de prédiction de la pseudo-dispersion axiale globale en monolithe est valable pour des maldistributions avec un écart-type en vitesse de bulle inférieur à 40%, et *a priori* valable pour des maldistributions présentant des écoulements à petites bulles et/ou des écoulements de Taylor.

V.5.4 Synthèse, recommandations

Dans cette section consacrée à l'impact de la maldistribution des fluides sur le degré global de mélange d'un réacteur monolithe, les distributions artificielles des fluides ont permis de constater que le degré de mélange apparent dans le réacteur est plus affecté par une mauvaise distribution sur la vitesse de bulles dans les canaux que par une maldistribution sur le taux de gaz. En particulier, la maldistribution des vitesses de bulles induit une diversité des valeurs de temps de séjour et de rétention de phase liquide dynamique ϕ, et est la plus grande source de mélange global pour le monolithe. Pour les maldistributions expérimentales, les écarts-types en vitesse de bulle et en taux de gaz ne varient pas indépendamment l'un de l'autre, la pseudo-dispersion varie de façon presque identique avec l'écart-type sur U_b et avec celui sur ε_G.

Il faudrait donc porter particulièrement d'attention, lors de la mise en œuvre d'une technologie de distribution des fluides, à ce que tous les canaux soient alimentés avec les mêmes débits individuels $q_{Li} + q_{G,i}$; cela n'est pas aisé, et exige sans doute une très bonne homogénéité de la pression à l'entrée des canaux, et des pertes de charges identiques en aval des canaux également.

Par ailleurs, la corrélation empirique de prédiction de la pseudo-dispersion axiale globale en monolithe qui a été proposée repose sur 14 expériences réalisées en monolithe de 12 canaux, alimentés avec de l'air et de l'eau. Cette corrélation sera bien sûr à comparer avec d'autres résultats expérimentaux, obtenus avec d'autres natures de phase liquide et des monolithes comportant des canaux de dimensions différentes, pour confirmation.

V.6 Couplage du modèle hydrodynamique d'un monolithe complet avec une réaction chimique en phase liquide

L'impact de la maldistribution sur le comportement hydrodynamique de notre monolithe de 12 canaux a été étudié. Nous allons maintenant coupler l'hydrodynamique de ce monolithe – en tenant compte de la pseudo-dispersion induite par la maldistribution – avec une réaction chimique, pour étudier l'impact de la maldistribution sur la performance chimique du réacteur (considéré en régime permanent).

Nous envisageons la réaction fictive suivante :

$$A_{(gaz)} + B_{(Liq)} \Rightarrow C_{(Liq)} \qquad (V.31)$$

Par souci de simplicité et en guise de première approche, nous n'avons étudié ici que le cas d'une réaction de cinétique d'ordre apparent 1 (c'est-à-dire d'ordre 2 au global mais avec le réactif B en excès) :

$$R = kC_A C_B = k_r\, C_A \qquad (V.32)$$

V.6.1 Modèle PDE avec terme source de réaction, et méthode de résolution

Nous avons considéré 4 cas d'étude pour le couplage du modèle PDE avec une réaction :

1. Cas d'une réaction en phase liquide, sans transfert de masse entre les phases gaz et liquide (mais en présence de bulles et le liquide étant saturé en A avant son entrée dans le canal). Dans ce cas les deux réactifs sont alimentés via la phase liquide ;
2. Cas d'une phase liquide s'enrichissant par transfert de masse gaz-liquide, sans réaction ; dans ce cas, la phase liquide entre dans le canal avec une concentration nulle en A ;
3. Cas d'une réaction en phase liquide avec transfert d'un des réactifs de la phase gaz vers la phase liquide, et sans pré-saturation de gaz dans la phase liquide ;
4. Cas d'une réaction en phase liquide avec transfert d'un des réactifs de la phase gaz vers la phase liquide, et avec pré-saturation de gaz dans la phase liquide.

La démarche va être explicitée pour le cas général d'une réaction avec transfert (cas 3 et 4).

V.6.1.1 Couplage du modèle PDE avec le terme source de réaction chimique et le terme de transfert de masse gaz-liquide :

Le couplage entre hydrodynamique et réaction chimique est fait ici, en régime permanent, dans le but de calculer la concentration du réactif gazeux A (réactif clé) qui est transféré à la phase liquide, puis qui réagit avec le réactif en phase liquide B.

Pour tout canal du réacteur, les hypothèses mises en jeu sont :

- Régime permanent ;

- Pression et température uniformes le long du canal ;
- Ecoulement de la phase liquide dans les canaux de type Piston-Dispersion-Echange ;
- Gaz toujours disponible le long du canal (le rétrécissement des bulles est négligé) ;
- Réactif liquide B en large excès par rapport au réactif gazeux A ;
- Monolithe de longueur 1 m.

Le choix d'une longueur totale de réacteur de 1 m, et non de 0,35 m comme dans notre pilote, est fait pour permettre des résultats quantitativement significatifs en termes de conversion du réactif.

Le bilan de matière pour le réactif clé est écrit pour chaque zone de la phase liquide (dynamique et stagnante), en régime permanent, en faisant apparaître les termes sources de transfert gaz-liquide et de réaction :

$$D_{ax,d}\frac{\partial^2 C_{A,d,i}}{\partial z^2} - U_{b,i}\frac{\partial C_{A,d,i}}{\partial z} - \frac{k_i a_i}{\phi_i}\left(C_{A,d,i} - C_{A,st,i}\right) + \frac{E k_{L,d,i} a_{d,i}}{\phi_i}\left(C_A^* - C_{A,d,i}\right) - k_r\, C_{A,d,i} = 0 \quad (V.33)$$

$$\frac{k_i a_i}{1-\phi_i}\left(C_{A,d,i} - C_{A,st,i}\right) + \frac{E k_{L,st,i} a_{st,i}}{1-\phi_i}\left(C_A^* - C_{A,st,i}\right) - k_r\, C_{A,st,i} = 0 \quad (V.34)$$

où $k_{L,d,i}$ est le coefficient de transfert entre le gaz et la zone dynamique de l'écoulement liquide et $k_{L,st,i}$ celui liant le gaz et la phase statique (par référence au modèle PDE), $a_{d,i}$ et $a_{st,i}$ sont les aires interfaciales correspondantes par unité de volume de liquide, et E le facteur d'accélération du transfert (dû à la réaction).

Ces équations sont résolues avec MATLAB® R2022b par appel à la routine ode15s, et sur la base des conditions aux limites suivantes :

- à l'entrée du canal, on a une condition de type Dirichlet pour la concentration du réactif A : cette concentration d'entrée vaut 0 (cas 3) ou bien est proche de la concentration à saturation C* en A (cas 4) ;
- à la sortie du canal, on a une condition de type Neumann, exprimée à l'aide d'un terme de dérivée nulle sur la concentration en A.

$$C_{A,d,i}(x=0) = 0 \qquad ou \qquad C_{A,d,i}(x=0) = 99\% C^* \quad (V.35)$$

$$\frac{\partial C_{A,d,i}}{\partial z}(x=1) = 0 \quad (V.36)$$

V.6.1.2 Modélisation du transfert de masse gaz-liquide pour l'absorption réactive d'un gaz A dans un liquide B en excès (cas 3 et 4).

La densité volumétrique de flux molaire propre à chaque zone (dynamique, statique), $N_{zone}.a_{zone}$ (mol/m^3/s), est calculée en fonction de la constante de transfert gaz liquide $k_{L,zone}$, de l'aire interfaciale d'échange correspondante à la zone étudiée, a_{zone} et de la force motrice. Celle-

ci est donnée par le gradient de concentration entre la concentration à saturation dans la phase liquide à l'interface et la concentration au cœur du liquide de la zone étudiée.

$$N_{zone} a_{zone} = k_{L,\,zone} a_{zone} (C^* - C_{zone}) \qquad (V.37)$$

Le coefficient de transfert de masse gaz-liquide est calculé en utilisant les corrélations proposées par van Baten et Krishna (2004), issues de la théorie de la pénétration et fréquemment utilisées dans la littérature pour les écoulements de Taylor (voir chapitre I), et en considérant une forme idéale pour la bulle (corps cylindrique, et deux demies-sphères aux extrémités). Le transfert entre le gaz et la zone dynamique du liquide a lieu entre le bouchon liquide et les « caps » (extrémités sphériques) de la bulle, et le transfert entre le gaz et la zone statique du liquide a lieu entre le film de lubrification et la partie cylindrique de la bulle. Les constantes de transfert gaz-liquide $k_{L,zone}$ sont alors calculées en fonction de la vitesse de bulles et des caractéristiques de l'écoulement (L_f, δ) :

$$k_{L,\,d} = \frac{2\sqrt{2}}{\pi} \sqrt{\frac{D_m U_b}{d_c - 2\delta}} \qquad ; \qquad k_{L,\,st} = 2\sqrt{\frac{D_m U_b}{\pi L_f}} \qquad (V.38)$$

avec D_m la diffusivité moléculaire du gaz dans le liquide, ici de l'air dans l'eau, égale à 2.10^{-9} m²/s (Cussler, 1997).

L'aire interfaciale (par unité de volume de phase liquide) pour chaque zone, a_{zone}, est calculée par le rapport de la surface d'échange gaz-liquide sur le volume de liquide présent dans la cellule unitaire. Elle est exprimée en fonction du taux de gaz ε_G et des caractéristiques de l'écoulement (L_f, L_{UC}, δ).

$$a_{\,d} = \frac{4(d_c - 2\delta)^2}{{d_c}^2 L_{uc}(1 - \varepsilon_G)} \qquad ; \qquad a_{\,st} = \frac{4(d_c - 2\delta) L_f}{{d_c}^2 L_{uc}(1 - \varepsilon_G)} \qquad (V.39)$$

On note donc que, à longueur de bulle donnée, les coefficients de transfert augmentent avec U_b et que $k_{L,\,st}$ est une fonction décroissante de la taille de bulle (via L_f). Les aires interfaciales volumétriques, elles, sont des fonctions croissantes du taux de gaz, et diminuent modérément avec la vitesse de bulle (via l'épaisseur de lubrification). Au global, à taille de bulle fixée, les coefficients $k_{L,\,zone} a_{zone}$ augmentent avec $\sqrt{U_b}$ et avec $\frac{1}{1-\varepsilon_G}$.

Le facteur d'accélération E est défini par le rapport entre le flux de matière transféré avec réaction chimique et le flux transféré sans réaction chimique. Ce facteur est calculé par bilan de matière sur A dans la couche de gradient massique autour de la bulle en ne prenant en compte que le transport par diffusion, et par intégration de ce bilan et évaluation du flux transféré. Le facteur E est alors corrélé au nombre de Hatta, qui chiffre la compétition entre la vitesse de réaction et la vitesse de diffusion à l'intérieur de la couche de gradient massique. Ainsi, selon Froment et coll. (2011), pour une réaction d'ordre 1 par rapport à A on a :

$$E = \frac{1 - \frac{f}{\cosh Ha}}{1 - f} \frac{Ha}{\tanh Ha} \quad avec \quad f = \frac{C_{A,d}(z)}{C_A^*} \quad et \quad Ha = \frac{\sqrt{k_r D_m}}{k_{L,d}} \qquad (V.40)$$

A noter que E varie le long du canal, puisqu'il est lié à la concentration locale en A.

Par résolution de ce système d'équations algébro-différentielles, la concentration du réactif peut alors être calculée en sortie de tous les canaux.

V.6.1.3 Calcul du rendement global sur le réacteur

Connaissant, en sortie de chaque canal i, la concentration en réactif A, $C_{AS,i}$, et le débit de liquide $q_{L,i}$, on peut calculer la concentration globale en réactif A en sortie du réacteur, issue d'une « *mixing cup* » :

$$C_{A,mixing\ cup} = \frac{\sum_1^{N_{canaux}} q_{L,i} C_{AS,i}}{\sum_1^{N_{canaux}} q_{L,i}} \qquad (V.41)$$

Cette concentration conduit au rendement du réacteur dans le cas d'une réaction sans transfert de masse. Cependant, dans les cas d'étude avec transfert gaz-liquide, elle est le résultat combiné des contributions de la réaction chimique et du transfert de masse. En particulier, lorsque la phase liquide n'est pas pré-saturée en composé A, et que la réaction est très lente ou absente, la concentration « *mixing cup* » traduit l'efficacité du transfert de masse à alimenter en A la phase liquide.

Pour traduire la performance du réacteur, nous calculons plutôt le flux molaire de A converti au global dans l'appareil. Ce flux molaire de conversion, nommé F_C, peut être calculé, pour chaque canal i et pour chaque zone (dynamique et statique) de la phase liquide, par intégration le long du canal du terme de réaction :

$$F_{C,dyn,i} = \int_{z=0}^{z=L} k_r\, C_{A,d,i}\, \epsilon_{L,i}\, \phi_i S_C dz \qquad (V.42)$$

$$F_{C,st,i} = \int_{z=0}^{z=L} k_r\, C_{A,st,i}\, \epsilon_{L,i}\, (1 - \phi_i) S_C dz \qquad (V.43)$$

Ces flux, exprimés en moles de A converties dans le canal par unité de temps, tiennent intrinsèquement compte du débit de liquide circulant dans la zone liquide dynamique du canal, puisque les valeurs de concentration en A sont obtenues *via* l'équation de bilan qui tient compte de la vitesse de circulation des bouchons de liquide, donc de leur temps de séjour dans le canal. Autrement dit : pour un cas de réaction sans transfert, la décroissance de $C_{A,d,i}$ entre l'entrée et la sortie d'un canal à U_b faible sera plus marquée que celle d'un canal à vitesse U_b élevée ; ou encore : à une cote axiale z donnée dans le réacteur monolithe, $C_{A,d,i}$ sera plus faible dans un canal à U_b faible - et par suite le flux molaire de conversion en A sera plus élevé - que dans un canal à U_b élevée.

Dans les canaux, ce sont les zones dynamiques des écoulements liquides qui sont directement alimentées en entrée de canal, et qui seront recueillies en sortie du monolithe. Ainsi, à l'échelle du réacteur, le flux molaire total de A converti par unité de temps, nommé $F_{C,tot}$ est donné par :

$$F_{C,tot} = \sum_{i=1}^{12} F_{C,dyn,i} \qquad (V.44)$$

V.6.1.4 Maldistributions étudiées, performance du réacteur et choix des grandeurs fixes du problème :

Comme pour l'étude hydrodynamique du réacteur global, nous allons ici utiliser des maldistributions construites artificiellement, ou « maldistributions théoriques », et des maldistributions issues d'expériences.

L'impact d'une mauvaise répartition de phases sur la performance du réacteur sera quantifié par l'écart relatif entre le flux converti en maldistribution et le flux converti selon une distribution uniforme de débits globaux (gaz et liquide) équivalents. Dans ce qui suit, on appellera « performance » cet écart relatif :

$$Performance = \frac{F_{C,tot,maldistribution} - F_{C,tot,distribution\ uniforme}}{F_{C,tot,distribution\ uniforme}} \qquad (V.45)$$

Cette performance chimique globale du réacteur sera calculée pour toutes les maldistributions envisagées.

Les constantes fixes nécessaires aux calculs associés au problème ont été choisies et sont détaillées ci-après :

- Pour la valeur de la constante cinétique, on se base sur la valeur de $k_{L,d,i}a_{d,i}$ calculée pour le cas de référence de distribution théorique uniforme (distribution n°1, tableau V-5) : $k_r = 0{,}63\ s^{-1}$. Pour les cas 2 et 3 de réaction avec transfert de masse, la constante cinétique est modulée autour de cette valeur, afin que la réaction soit aussi rapide, 10 fois plus rapide ($k_r = 6{,}3\ s^{-1}$), ou 10 fois plus lente ($k_r = 0{,}063\ s^{-1}$) que le transfert. Ainsi, dans tout ce qui suit, une « réaction lente » signifiera « réaction de dynamique lente devant celle du transfert gaz-liquide ». A noter que, pour une maldistribution donnée, k_r a la même valeur pour tous les canaux. On notera également que, dans tous les cas d'étude qui suivent, la valeur de E calculée est très proche de 1 (valeur maximale : 1,2), sauf pour le cas d'une réaction rapide avec transfert et pré-saturation de A (cas 3), donnant E égal à 2,2.
- Dans le cas d'une réaction sans transfert de masse (cas 1) ou avec transfert et pré-saturation de A (cas 3), et pour l'étude des maldistributions artificielles et expérimentales, nous avons considéré une concentration initiale de A dans la phase liquide ${C_{A0}}^{Liq}$ de 1,2 mol/m^3.

- Pour les cas avec transfert, la concentration à saturation en A dans le liquide, C*, est égale à 0,7 mol/m^3.

V.6.2 Maldistributions artificielles des phases : étude de l'impact sur la performance du monolithe

La performance du réacteur en terme de flux molaire de conversion de A sera étudiée pour des distributions artificielles de gaz et de liquide définies autour d'un même point de fonctionnement moyen, déjà utilisé en section V.5.2 : débit global d'alimentation en gaz $Q_G = 1.10^{-5}$ m^3.s^{-1}, débit global d'alimentation en liquide $Q_L = 1.10^{-5}$ m^3.s^{-1}, et, plus précisément, U_b moyen de 0,61 m/s, et ε_G moyen de 0,44 . On rappelle que la longueur de bulle a été prise fixe et égale à 0,004 m : notons que la variation de la longueur de bulle, à taux de vide et vitesse de bulle fixés, impacte ici directement l'aire interfaciale (par unité de volume de liquide) entre les bulles et les bouchons ($k_{L,d}a_d$), et dans une bien moindre mesure $k_{L,st}a_{st}$. On considère donc que son impact sera sensiblement le même que celui de la variation du taux de gaz, et on n'étudiera pas ce paramètre.

Ainsi, à nouveau, l'impact de U_b et celui de ε_G sur la « performance » du monolithe vont pouvoir être observés séparément. Pour chaque distribution, les valeurs calculées des coefficients de transfert gaz-liquide des deux zones, et leurs écarts-types dans la distribution, sont indiquées dans le tableau V-11 ci-dessous. On indique également dans le tableau les valeurs moyennes de ϕ_i – qui sont très proches : moins de 1% d'écart entre les différentes conditions et leurs écarts-types pour chaque distribution, qui sont très faibles également (<3%).

Tableau V-11. Conditions utilisées pour l'étude de la maldistribution de U_b et ε_G sur la performance chimique d'un monolithe de 12 canaux.

N°	Distrib.	$U_{b,i}$ (m/s)		$\varepsilon_{G,i}$ (-)		$k_{L,d,i}a_{d,i}$ (s^{-1})		$k_{L,st,i}a_{st,i}$ (s^{-1})		ϕ_i (-)	
		Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type
1	Unif.	0,61	0%	0,44	0%	0,62	0%	0,82	0%	0,91	0%
2	en U_b	0,61	10%	0,44	0%	0,62	4%	0,82	9%	0,91	1%
3		0,61	21%	0,44	1%	0,62	9%	0,82	20%	0,91	1%
4		0,61	36%	0,44	2%	0,61	17%	0,81	34%	0,91	2%
5		0,61	55%	0,44	3%	0,60	25%	0,79	52%	0,91	3%
6	en ε_G	0,61	0%	0,44	10%	0,63	17%	0,83	17%	0,91	0%
7		0,61	0%	0,44	20%	0,66	34%	0,86	34%	0,91	0%
8		0,61	0%	0,44	35%	0,74	63%	0,97	63%	0,91	0%
9		0,61	0%	0,44	52%	0,96	99%	1,26	99%	0,91	0%

On observe dans le tableau V-11 que, au sein d'une même distribution, les variations de U_b et de ε_G impactent les valeurs des coefficients de transfert gaz-liquide pour les différents canaux, induisant des valeurs moyennes différentes et des écarts-types non négligeables sur ces

valeurs. L'écart-type sur ε_G est particulièrement impactant sur les moyennes et les écarts-types de $k_{L,d,i}a_{d,i}$ et $k_{L,st,i}a_{st,i}$; en effet, les aires interfaciales $a_{d,i}$ et $a_{st,i}$, exprimées par unité de volume de liquide, sont inversement proportionnelles à (1- ε_G) (équation V-39). Par exemple, on voit que la valeur moyenne de $k_{L,d,i}a_{d,i}$ passe de 0,63 à 0,96 s^{-1}, et que son écart-type augmente proportionnellement à celui en taux de gaz, atteignant 99%.

Mais la maldistribution la plus marquée en U_b (distribution n°5) induit tout de même 25% et 52% d'écart-type sur les coefficients $k_{L,d,i}a_{d,i}$ et $k_{L,st,i}a_{st,i}$, respectivement, via l'impact de U_b dans l'expression de $k_{L,d,i}$ et $k_{L,st,i}$, et (plus indirectement : *via* l'épaisseur des films de lubrification) dans celles de $a_{d,i}$ et $a_{st,i}$.

Au final, à k_r fixé, et pour une distribution donnée, l'importance relative du flux de transfert vis-à-vis du flux de A consommé par la réaction sera donc variable de canal en canal.

V.6.2.1 Cas 1 : réaction sans transfert de masse

Dans le cas d'une réaction chimique en phase liquide sans transfert de masse (mais en présence de bulles), et pour les 9 maldistributions artificielles envisagées, on trace à titre indicatif les flux molaires de conversion de A sommés pour les 12 canaux du réacteur, en phase dynamique et en phase statique (Figure V-34). On constate que la conversion de A est toujours environ 10 fois plus faible dans la zone statique que dans la zone dynamique. Ceci est sans aucun doute lié à la valeur élevée de ϕ, laissant peu de volume à la zone statique, et peut être amplifié par le fait que la zone statique n'a pas le temps de s'enrichir beaucoup en A dissous via le terme d'échange avec la zone dynamique, et ne convertit donc pas beaucoup de A. On voit également que les flux convertis en zone dynamique dans le réacteur varient d'environ 10% pour les maldistributions en U_b (n°2 à 5), alors que les maldistribution en taux de gaz (n°6 à 9) montrent entre elles des flux de A convertis similaires.

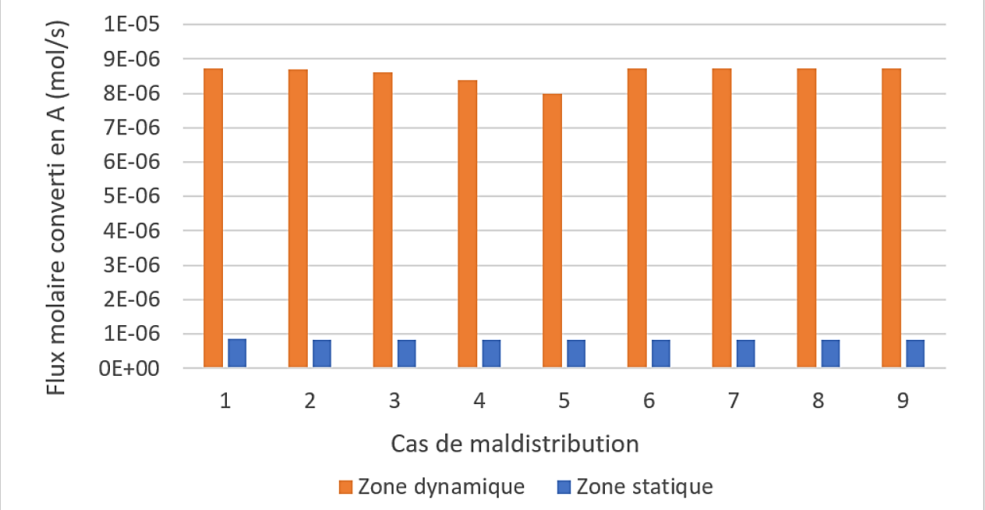


Figure V-34. Valeurs de flux molaires convertis en A dans tous les canaux, en zone dynamique et en zone statique de la phase liquide, pour la maldistribution théorique n°5.

Pour les distributions théoriques non uniformes n° 5 et 9 - celles dont les maldistributions sont les plus marquées en U_b et en ε_G, respectivement -, nous traçons ci-dessous (Figure V-35), à titre d'exemples, l'évolution de la concentration en A le long des 12 canaux. L'évolution spatiale de la concentration dans les canaux identiques de la distribution uniforme (n°1) est tracée en pointillés noirs sur ces graphiques. A noter qu'elle s'inscrit logiquement au milieu des faisceaux des profils axiaux des maldistributions.

Pour la distribution théorique n°5 (Figure V-35 a), on constate comme attendu que les différences en U_b dans les canaux impliquent des différences d'avancement de la réaction : plus U_b est faible, plus le temps de séjour dans le canal est élevé, et donc (i) plus la concentration en A est faible au sortir du canal (cas du canal C5 par exemple, de vitesse U_b = 0,174 m.s^{-1}), et (ii) plus sa décroissance le long du canal est raide. Pour ces profils décroissants, d'allure proche de la fonction $\alpha \cdot \exp(-\frac{k_r}{U_b} z)$ (solution analytique pour l'écoulement « piston » et pour une réaction d'ordre 1), l'intégrale de ces courbes est d'autant plus faible que U_b est faible. L'allure en $\alpha \cdot \exp(-\beta \frac{z}{U_b})$ implique que ces intégrales diminuent plus vite que U_b ne diminue (la pente de la fonction "exp" étant supérieure à 1) ; autrement dit :

$$\left[F_{C,dyn}(U_b + \Delta U_b) - F_{C,dyn}(U_b)\right] < \left[F_{C,dyn}(U_b) - F_{C,dyn}(U_b - \Delta U_b)\right] \qquad (V.46)$$

a) b)

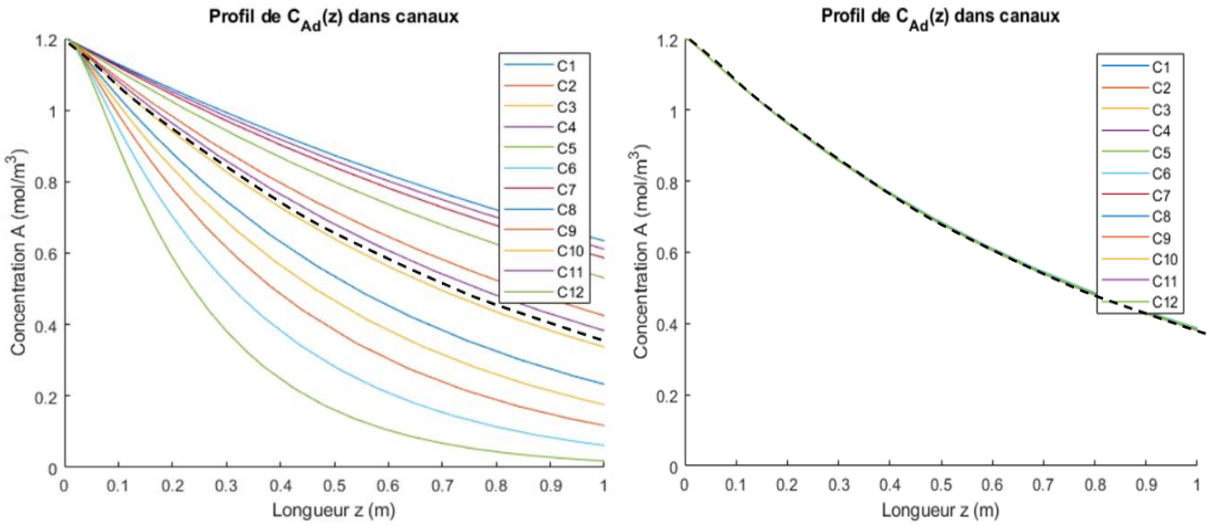


Figure V-35. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide pour (a) la distribution théorique en U_b n° 5, et (b) la distribution théorique en ε_G n° 9, pour les 12 canaux du monolithe, et pour le cas d'une réaction sans transfert de masse. En pointillés noirs sur les graphes : distribution uniforme (n° 1).

Ces profils à décroissance rapide (valeurs de U_b plus faibles que la valeur moyenne) sont éloignés de la courbe correspondant à la distribution uniforme équivalente, alors que ceux de vitesse U_b plus élevée que la moyenne, au-dessus de la courbe de référence, sont rapprochés. La moyenne des intégrales sous les courbes est inférieure à l'intégrale de la courbe de référence (distribution uniforme). On trouve ici l'impact d'une maldistribution en vitesse de l'écoulement

dynamique sur la conversion en A : dans cette distribution, les canaux de vitesses faibles ont plus de poids que les autres sur le flux converti global, le faisant chuter vis-à-vis de la distribution uniforme de vitesse moyenne. Ceci est confirmé sur la Figure V-36a ci-dessous : la performance chimique globale du réacteur, telle que définie en équation V-45 par référence au flux converti dans le réacteur en distribution uniforme, est tracée en fonction de la valeur de l'écart-type en vitesse. Dans ce cas de réaction sans transfert, la pseudo-dispersion, comme pour l'étude hydrodynamique, a un impact négatif sur la performance, induisant jusqu'à 8% de baisse dans le cas de la distribution n°5.

a) b)

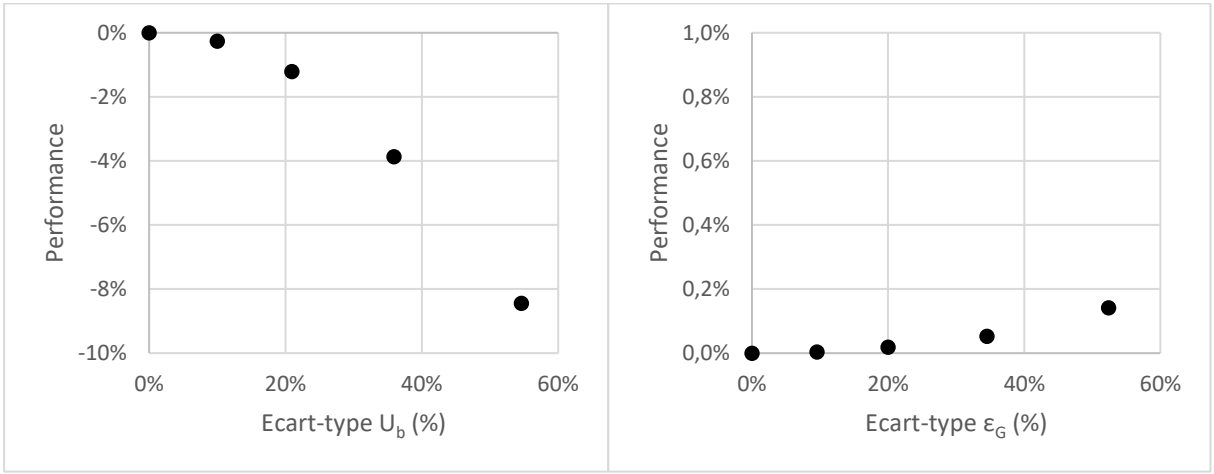


Figure V-36. Performance du réacteur en terme de flux converti en réactif A en zone dynamique de la phase liquide, par référence au cas d'une distribution uniforme de vitesse moyenne de bulle et de taux de gaz moyen identique, et pour le cas d'une réaction sans transfert de masse ; a) distributions théoriques n° 1 à 5 ; b) distributions théoriques n° 1 et n°6 à 9.

Concernant la maldistribution en taux de gaz, la phase dynamique liquide se déplace selon la même vitesse U_b dans tous les canaux ; en revanche les débits liquides individuels alimentant les canaux sont différents, puisque le taux de gaz – donc la longueur des bouchons de liquide – sont différents. Les temps de séjour sont donc les mêmes pour tous les bouchons dans tous les canaux, et égaux à celui de la distribution uniforme de référence. Tous les profils axiaux de concentration en A sont identiques (Figure V-35 b), et les écarts entre les flux convertis sont très faibles (inférieurs à 0,15%, voir Figure V-36 b) et probablement dus à la précision numérique des calculs. Ceci est en cohérence avec les résultats de l'étude hydrodynamique, qui avait montré que l'écart-type en taux de gaz impacte le degré de mélange apparent du monolithe tout en conservant des valeurs élevées de Pe.

V.6.2.2 Cas 2 : transfert de masse sans réaction

A contrario, on considère ici le cas d'un écoulement liquide dépourvu de A dissous et alimentant les canaux, de concert avec un débit de gaz riche en A ; dans chaque canal, le

transfert de masse gaz-liquide va enrichir la phase liquide en A tout au long de son parcours. Les profils axiaux de concentration sont donc croissants (Figure V-35).

a) b)

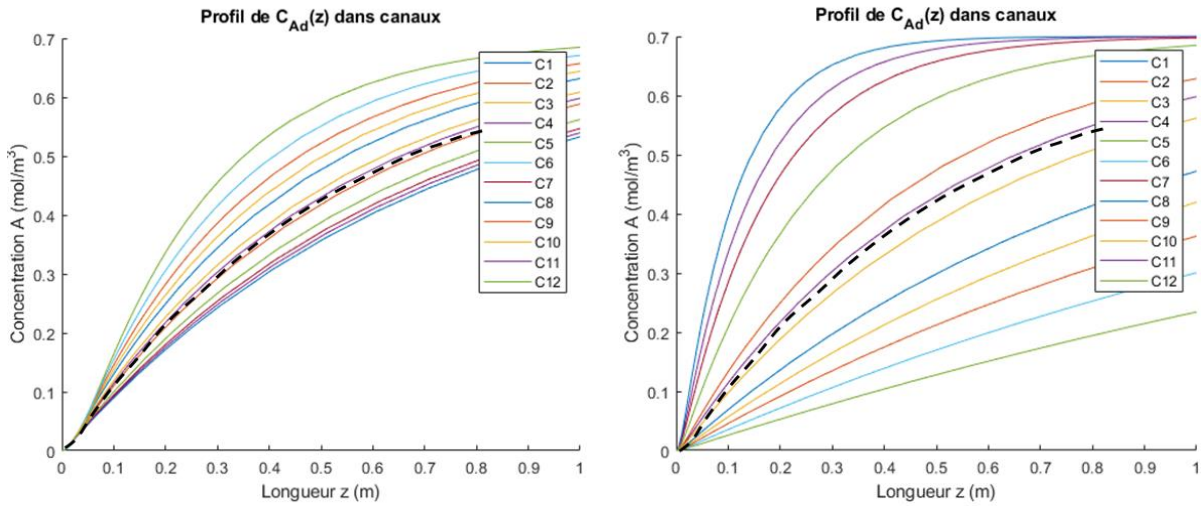


Figure V-37. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide en transfert gaz-liquide et sans réaction chimique. a) distribution en U_b n° 5 ; b) distribution en ε_G n° 9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1).

Les canaux de vitesse U_b faible offrent un temps long au transfert de masse, et les profils correspondant sont donc placés au-dessus des autres, comme vu sur la Figure V-37 a, pour la distribution n°5 avec un fort écart-type en U_b. L'allure de ces profils est proche de celle de la fonction $\alpha\left[1-\exp(-k_L a\frac{z}{U_b})\right]$ (solution analytique du transfert gaz-liquide en écoulement « piston »). Par analogie au raisonnement fait précédemment, on comprend que l'intégrale de ces courbes croît avec U_b, mais plus vite que U_b ne croît : ce comportement pourrait donc donner plus de poids aux canaux « lents » dans le flux de A transféré au global dans le monolithe. Cependant, les courbes les plus hautes s'approchent de la valeur de saturation en A, en sortie de canal. De plus, le coefficient de transfert augmente avec $\sqrt{U_b}$ (section V.6.1.1). Ainsi, la maldistribution en U_b a au global un impact légèrement négatif sur la performance du contacteur (jusqu'à -3% pour les cas considérés), évaluée ici à l'aide de la « mixing cup » concentration, comme on peut le voir en Figure V-38a.

Les profils axiaux en concentration dans les canaux sont également impactés par la maldistribution en taux de gaz (Figure V-37 b). Ici les temps de séjour de chaque bouchon dans chaque canal sont égaux, mais les canaux de plus fort ε_G comportent des bouchons courts et possèdent des valeurs élevées du coefficient $k_{L,d,i}a_{d,i}$. Ces bouchons s'enrichissent donc très rapidement en A dissous, comme on peut le voir en Figure V-37 b (canal n°8 par exemple : ε_G=0,79 et $k_{L,d,i}a_{d,i}$=2,97 s^{-1}). Ces canaux contribuent peu au débit liquide global ; or les débits $q_{L,i}$ diminuent proportionnellement à l'augmentation de $\varepsilon_{G,i}$, tandis que $k_{L,d,i}a_{d,i}$ augmente selon $\frac{1}{(1-\varepsilon_{G,i})}$ (voir section V.6.1). Autrement dit, plus le taux de gaz est élevé dans un canal, plus le terme d'échange entre zones statique et dynamique est élevé mais plus son débit liquide est faible. Au global alors, les profils correspondant aux valeurs élevées de ε_G devraient contribuer

moins que les autres à la quantité totale transférée ; de plus, les courts bouchons associés se saturent en A avant la sortie de ces canaux (Figure V-37 b), réduisant drastiquement la quantité de A qui y est transférée. Ainsi, les écarts-types en taux de gaz sont néfastes à la performance globale de transfert, comme on peut le voir en Figure V-38b avec une variation de la « mixing cup » concentration atteignant -24% pour l'écart-type le plus marqué en taux de gaz.

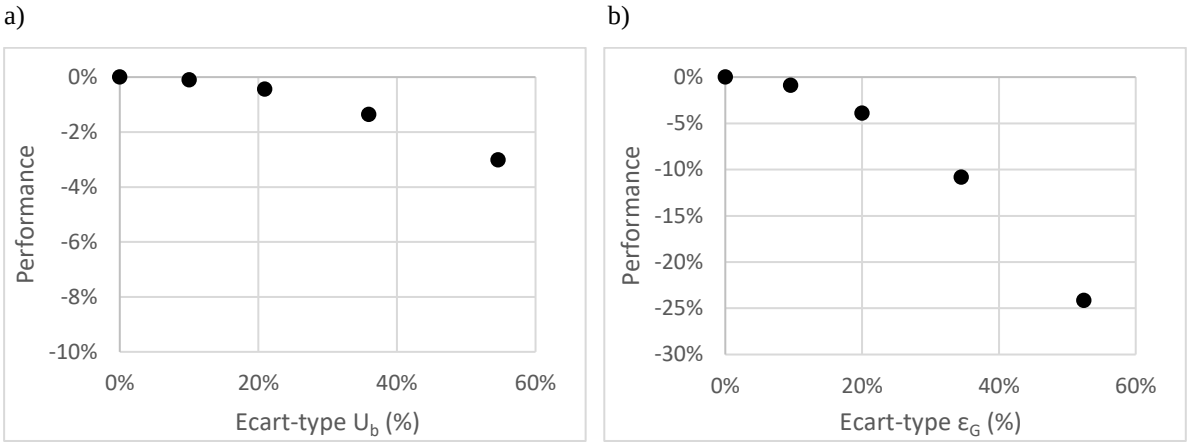


Figure V-38. Performance du réacteur en termes d'écart relatif de la concentration « mixing cup » de sortie, par référence au cas d'une distribution uniforme de vitesse moyenne de bulle et de taux de gaz moyen identique, et pour le cas du transfert de masse sans réaction ; a) distributions théoriques en U_b (n° 1 à 5) ; b) distributions théoriques en ε_G (n°6 à 9).

Enfin, les valeurs absolues des concentration « mixing cup » sont observées ; elles sont tracées en Figure V-39 en fonction du coefficient de transfert moyen $k_{L,d}a_d$ de la distribution (valeurs disponibles en tableau V-11). Ces valeurs sont proches de la valeur maximale possible en A dissous (C*=0,7 mol.m^{-3}). Le point rouge sur le graphe marque le cas de la distribution uniforme. A droite de ce point, les valeurs de concentration « mixing cup » décroissent avec les valeurs de $k_{L,d}a_d$, car ces points correspondent aux cas de maldistribution en taux de gaz, où la saturation du liquide apparaît dans d'autant plus de canaux que $k_{L,d}a_d$ est élevé. A gauche du point rouge, les valeurs de concentration « mixing cup » sont proches mais augmentent avec les valeurs de $k_{L,d}a_d$: il s'agit des distributions en U_b, pour lesquelles les grands écarts-types correspondent aux plus faibles valeurs de $k_{L,d}a_d$. La tendance observée est donc en cohérence avec le graphe V-36 a ci-dessus.

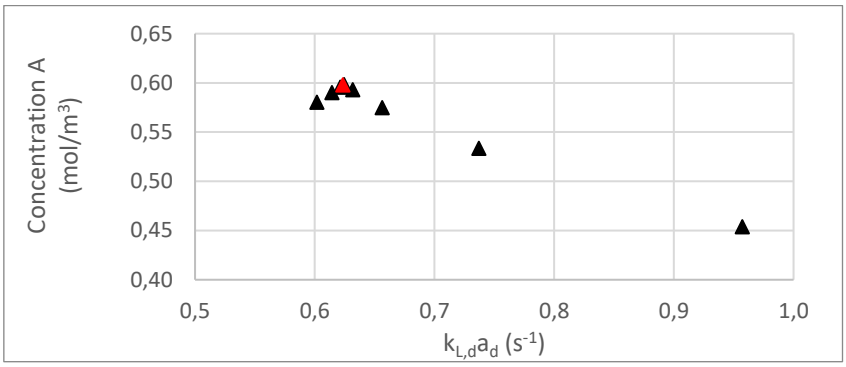


Figure V-39. Concentration « mixing cup » en réactif A du monolithe de 12 canaux pour les 9 distributions théoriques étudiées ; cas du transfert de masse sans réaction.

V.6.2.3 Cas 3 : réaction avec transfert de masse sans pré-saturation de gaz dans la phase liquide

Ici, le réactif A n'est pas présent en phase liquide à l'entrée des canaux, mais il transfère progressivement du gaz vers le liquide où il alimente la réaction. Les profils axiaux de concentration en A le long des canaux sont croissants (Figure V-40 c) ; les courbes qui croissent le plus rapidement selon z sont celles qui contribuent le plus au flux de conversion de A.

Dans le cas d'une réaction lente, la maldistribution en U_b (Figure V-40 a) permet aux canaux de grand temps de séjour de s'enrichir bien plus rapidement en A que les autres - la pente des profils axiaux est plus raide -, comme dans le cas du transfert sans réaction, et ceci est favorable à la valeur de la vitesse de réaction. Or, ces courbes obtenues à faible temps de séjour se situent très au-dessus de celle de la distribution uniforme équivalente, alors que les courbes situées en dessous en sont plus rapprochées. Cela se traduit, au global, par un meilleur flux de conversion en A que pour la distribution uniforme (Figure V-42) - comme dans le cas de la réaction sans transfert. La maldistribution en taux de gaz diversifie pour sa part fortement les profils axiaux en concentration (Figure V-40 b), en saturant en A les canaux de plus grand taux de gaz (petits bouchons), ce qui limite la conversion. Cette maldistribution est néfaste à la performance chimique globale. A noter aussi que, la réaction étant lente, le flux global de conversion en A sera faible pour toutes les distributions testées (~4.10^{-7} mol.s^{-1}, soit environ 50 fois inférieur au flux converti par la réaction rapide, d'après la Figure V-41).

a) b)

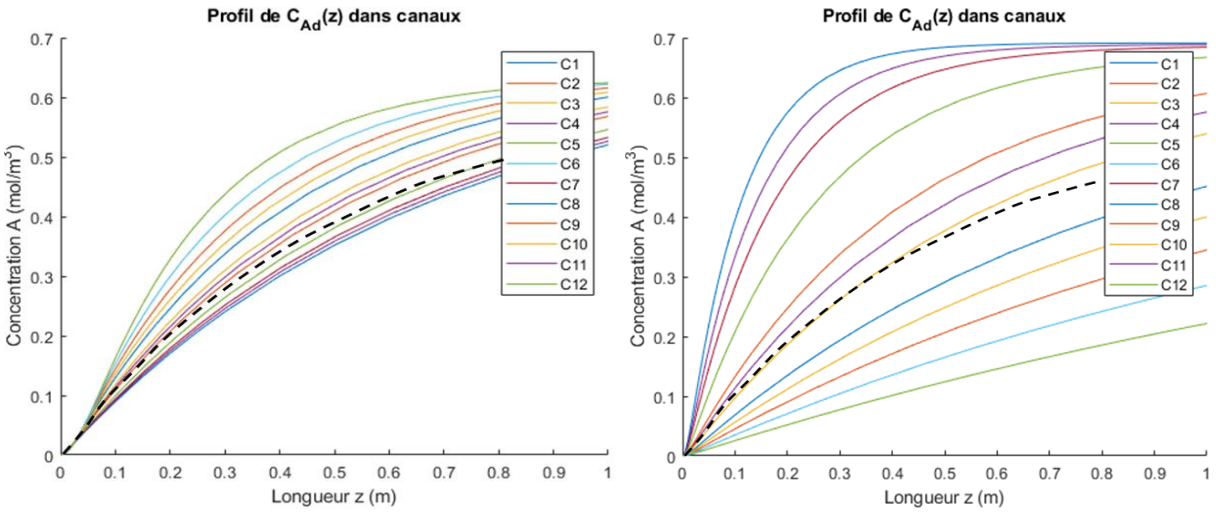


Figure V-40. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide non pré-saturé en A, et pour le cas k_r=0,063 s^{-1} (réaction lente devant le transfert gaz-liquide). a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1).

Dans le cas d'une réaction de dynamique équivalente à celle du transfert ou d'une réaction rapide, l'écart-type en U_b ne peut plus favoriser l'enrichissement du liquide en A, car on voit que la réaction et le transfert de masse atteignent un équilibre dans le canal, ou même que la réaction est limitée par le transfert (Figure V-41 a et V-42 a). La moyenne des intégrales sous les courbes est dans ce cas inférieure à l'intégrale de la courbe de référence (distribution uniforme). Ainsi, l'effet néfaste de la pseudo-dispersion en U_b sur la conversion dans le liquide

- tel que constaté dans le cas de la réaction sans transfert -, et l'effet néfaste de la maldistribution en ε_G sur le transfert de masse - tel que constaté dans le cas du transfert sans réaction – se conjuguent. La maldistribution en taux de gaz, quant à elle (Figure V-41 b et V-42 b), montre que la concentration dans les canaux à ε_G élevé atteint un plateau, de valeur d'autant plus basse que la réaction est rapide et que le taux de gaz (donc le coefficient de transfert gaz-liquide) dans le canal est modéré (canal n°5 de la distribution n°9, par exemple). Ceci impacte négativement le flux global de conversion en A.

a) b)

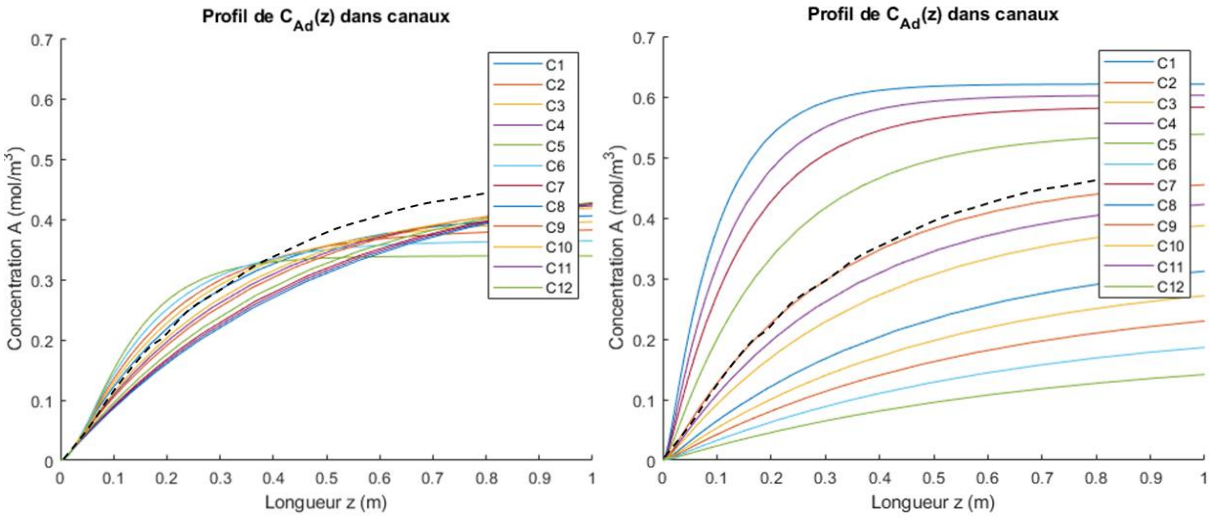


Figure V-41. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide non pré-saturé en A, et pour le cas k_r=0,63 s^{-1} (réaction et transfert gaz-liquide de dynamiques équivalentes). a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs sur les graphes : distribution uniforme (n° 1).

a) b)

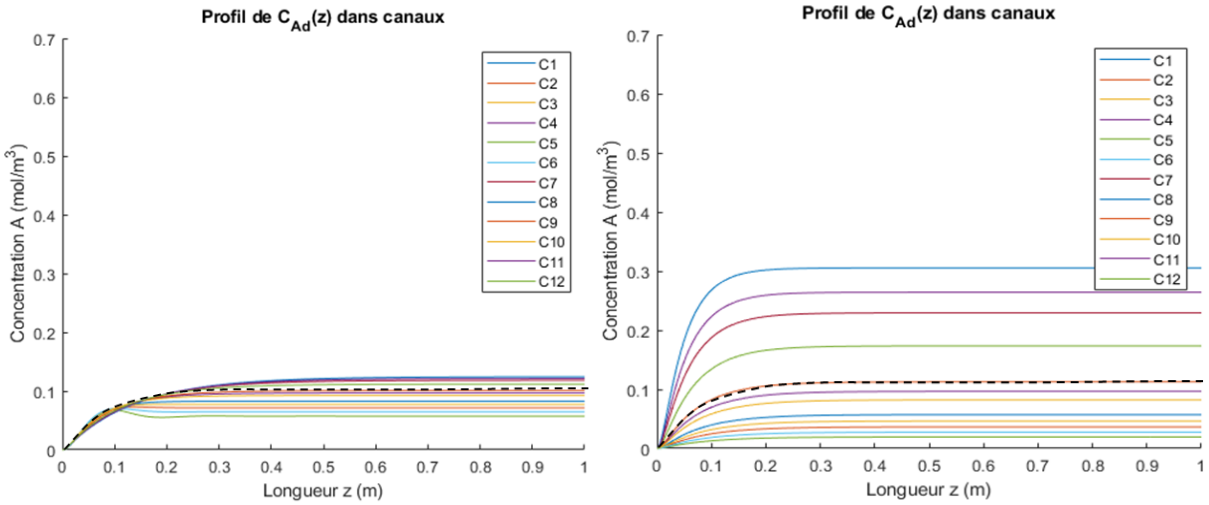


Figure V-42. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques dans le cas du liquide non pré-saturé en A, et pour le cas k_r=6,3 s^{-1} (réaction rapide devant le transfert gaz-liquide). a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1).

Pour la réaction rapide cependant (Figure V-42 b), les profils de concentration se trouvent majoritairement au-dessus de la courbe de référence, laissant attendre un effet positif de la conversion globale en A ; cependant, ces courbes correspondent aux canaux de taux de gaz élevé (canal 8, typiquement), donc peu contribuant en termes de débit liquide (pondération des concentrations en A par $\varepsilon_{L,i}$ dans le calcul de $F_{C,dyn,i}$ (équation V-42)). En effet, on peut voir en Figure V-45 que l'impact de la maldistribution en taux de gaz est ici (cas du liquide non pré-saturé) systématiquement néfaste à la conversion globale en A.

On calcule alors les flux globaux de conversion en A sur le réacteur de 12 canaux, pour les maldistributions testées, et on les trace sur la Figure V-43 ci-dessous en fonction du coefficient de transfert moyen $k_{L,d}a_d$ de la distribution (valeurs disponibles en tableau V-11). On constate que la réaction rapide donne logiquement les plus grands flux de conversion (jusqu'à $1{,}08.10^{-5}$ mol.s^{-1}). La distribution uniforme (représentée par un marqueur rouge) correspond au meilleur flux de conversion. On commente ici la courbe du cas de réaction rapide, sur laquelle les phénomènes sont les plus visibles :

- à gauche du point rouge, les points correspondent aux maldistributions en U_b ; ceux de plus faibles $k_{L,d}a_d$ moyens correspondent aux distributions d'écart-type les plus marqués en U_b. Le flux converti augmente avec $k_{L,d}a_d$ car la réaction est de mieux en mieux alimentée par le transfert. L'effet modéré de U_b sur les coefficients $k_{L,zone}$, à ε_G constant, donc à 'a_{zone}' relativement constantes, est également visible.
- A droite du point rouge, les points correspondent aux maldistributions en taux de gaz. On constate que le flux de conversion diminue un peu quand $k_{L,d}a_d$ augmente beaucoup : pour ces valeurs élevées de transfert, la phase liquide est mieux alimentée en A dissous, mais elle circule dans les canaux correspondants avec un débit faible. Ces deux effets sont conjugués.

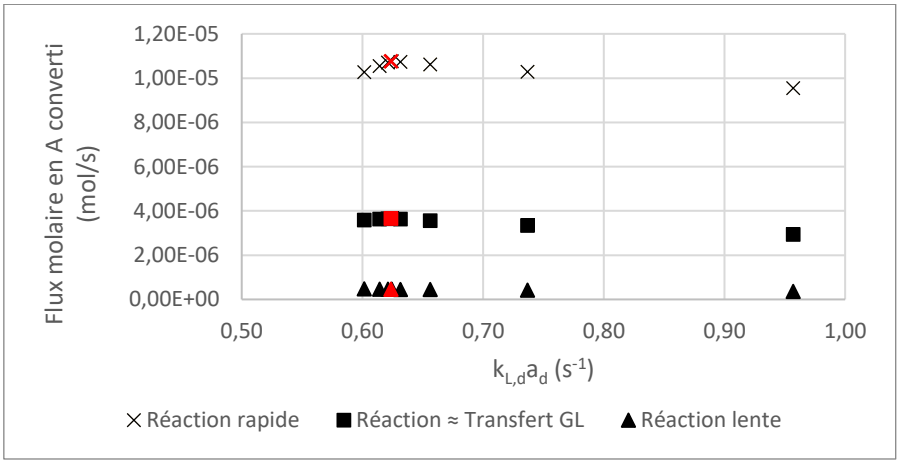


Figure V-43. Rendement global en réactif A du monolithe de 12 canaux pour les 9 distributions théoriques étudiées ; cas de la réaction lente, modérée et rapide.

Lorsqu'on trace la performance chimique globale du réacteur en fonction de l'écart-type en U_b, on retrouve son effet néfaste (Figure V-44) : la performance chutant d'environ 5% dans le cas de la réaction rapide et de l'écart-type le plus élevé en U_b.

Cependant, dans le cas d'une vitesse de réaction lente devant le transfert de masse, l'enrichissement par transfert de masse des canaux à long temps de séjour est l'effet prépondérant et la performance chimique est alors meilleure en maldistribution qu'en distribution uniforme, d'autant que les distributions à écart-type élevé en U_b bénéficient également de coefficients de transfert $k_{L,d}a_d$ un peu meilleurs (voir tableau V-11). Ceci est cohérent avec les graphes de l'évolution de la concentration le long des canaux, commentés plus haut.

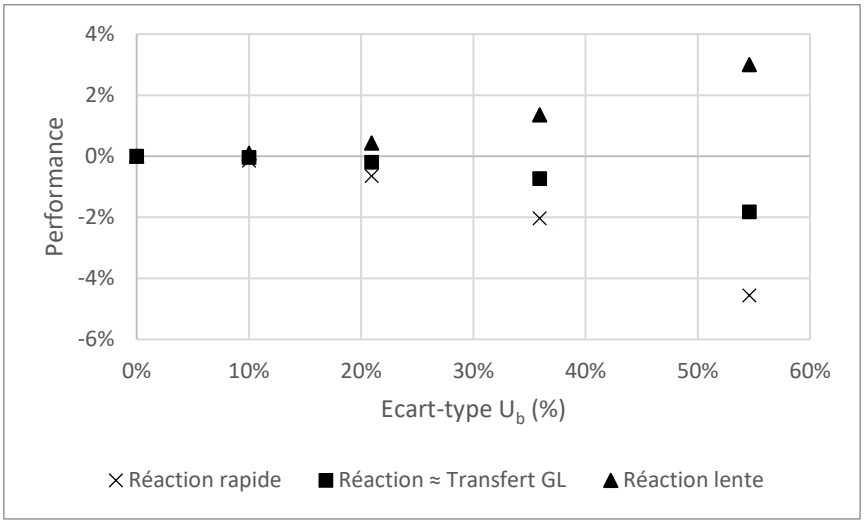


Figure V-44. Impact de la maldistribution de vitesse de bulle sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide non pré-saturée.

La maldistribution en taux de gaz est toujours néfaste à la performance chimique globale (Figure V-45), quelle que soit la vitesse de la réaction, mais cet effet est d'autant plus marqué que la réaction est lente, puisque dans ce cas, pour les plus grandes valeurs de ε_G et de $k_{L,d}a_d$, la phase liquide atteint la saturation en A, limitant particulièrement fortement le flux de conversion (jusqu'à -20% de performance chimique).

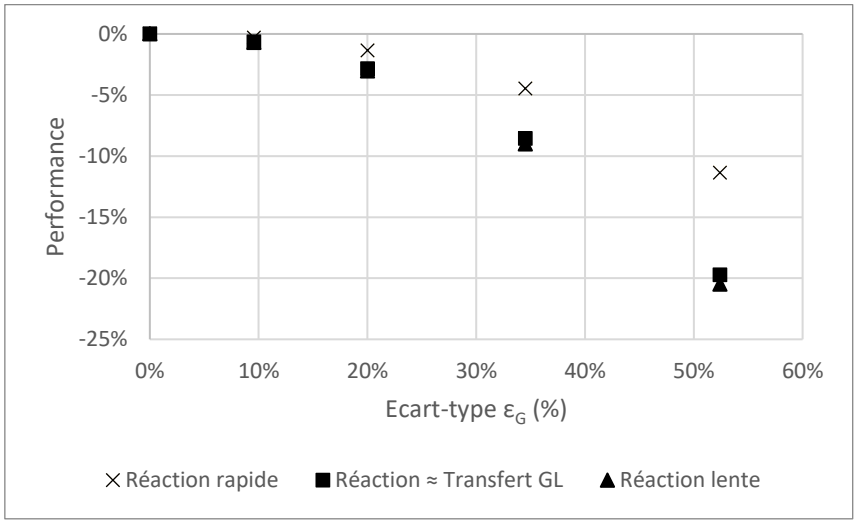


Figure V-45. Impact de la maldistribution de taux de gaz sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide non pré-saturée.

V.6.2.4 Cas 4 : réaction avec transfert de masse avec une pré-saturation de gaz dans la phase liquide

Dans ce nouveau cas de figure, la phase liquide entre dans les canaux en étant pré-saturée en réactif A. Ici, on attend donc des profils axiaux de concentration en A le long des canaux d'allure décroissante.

Ces profils sont visibles en Figures V-46, V-47 et V-48. D'une façon générale, les pentes des profils augmentent avec la vitesse de la réaction. Pour une réaction lente devant le transfert (Figure V-46), ces profils sont presque plats, et proches du profil de référence, laissant attendre un faible impact des maldistributions en U_b et en taux de gaz. Pour la réaction rapide (Figure V-48) ou la réaction modérément lente (Figure V-47), on constate sur les courbes liées à la maldistribution en U_b que la concentration de la phase liquide, comme précédemment, atteint un plateau traduisant l'égalité des flux de réaction et de transfert.

Dans le cas de la réaction rapide, cet équilibre est atteint tôt dans le canal, à ε_G fixé (Figure V-48 a), et les profils montrent des valeurs basses de la concentration après l'entrée du liquide dans le canal. Les plateaux finaux de ces profils sont placés majoritairement au-dessus de celui de la distribution uniforme, promettant dans ce cas de réaction rapide un impact favorable de la maldistribution en vitesse U_b. A noter que les canaux 2,5 et 6 montrent, en Figure V-48 a, une oscillation de la concentration avant d'atteindre l'équilibre entre les flux ; il a été vérifié que ceci est dû à un effet numérique lié aux vitesses Ub les plus faibles (<0,3 m/s).

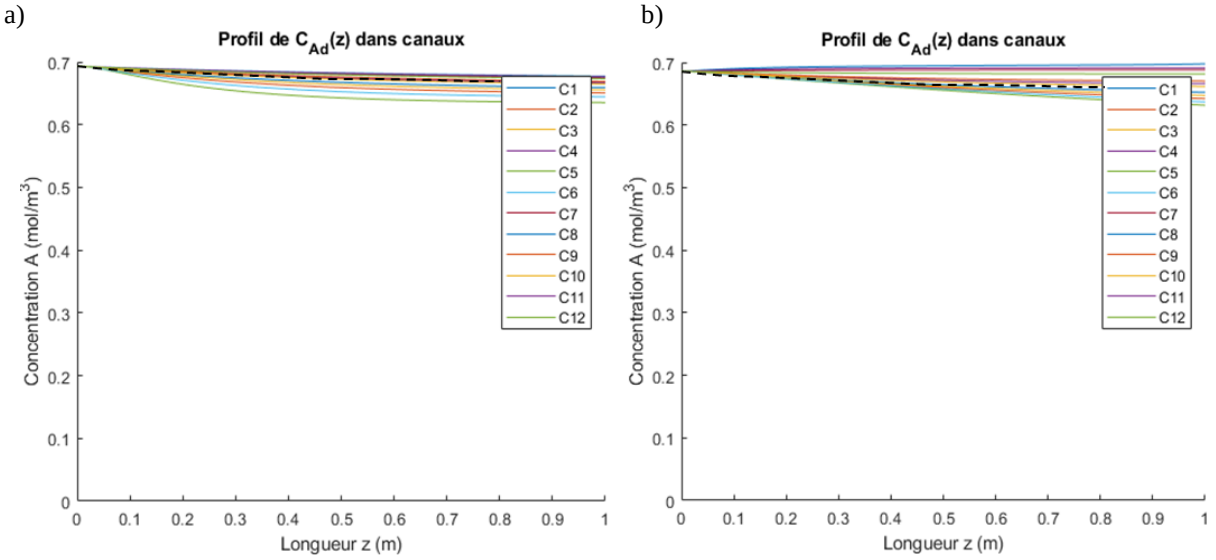


Figure V-46. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques et pour le cas k_r=0,063 s^{-1} (réaction lente devant le transfert gaz-liquide), et liquide pré-saturé. a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1).

La maldistribution en taux de gaz, pour les réactions rapides (Figure V-48 b) ou modérément lentes (Figure V-47 b), place les valeurs des profils de concentration majoritairement au-dessus de celui de la distribution de référence. Les courbes les plus hautes correspondent aux taux de gaz les plus élevés, donc aux canaux les moins contribuants au débit

de liquide global – donc à la conversion globale. On peut ainsi voir en Figure V-52 que l'impact de la maldistribution en taux de gaz est ici aussi négatif, quelle que soit la vitesse de la réaction.

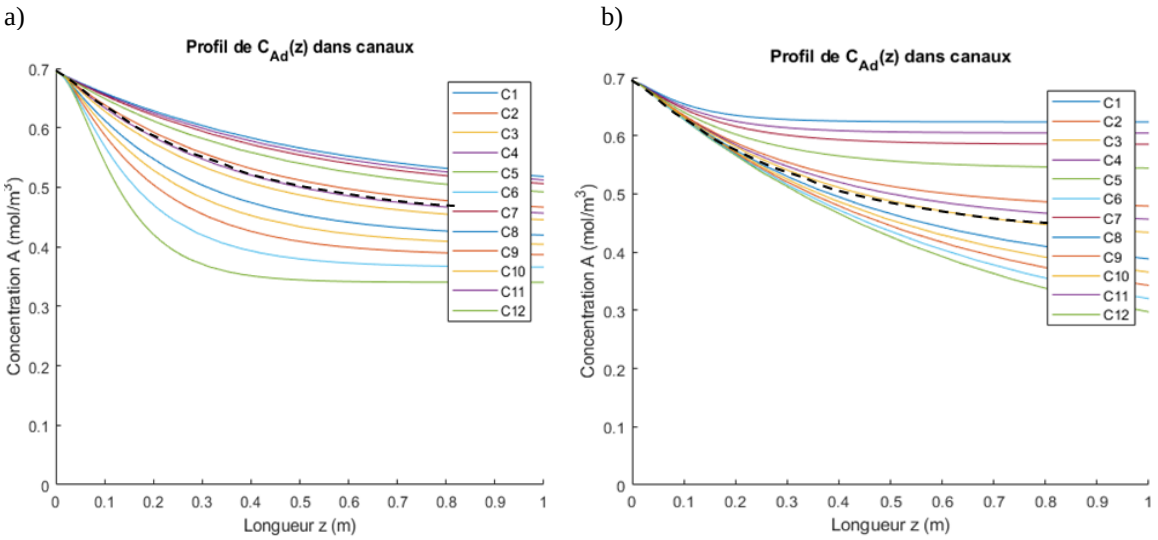


Figure V-47. Profils spatiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques et pour le cas k_r=0,63 s^{-1} (réaction de dynamique équivalente à celle du transfert gaz-liquide), et liquide pré-saturé. a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1).

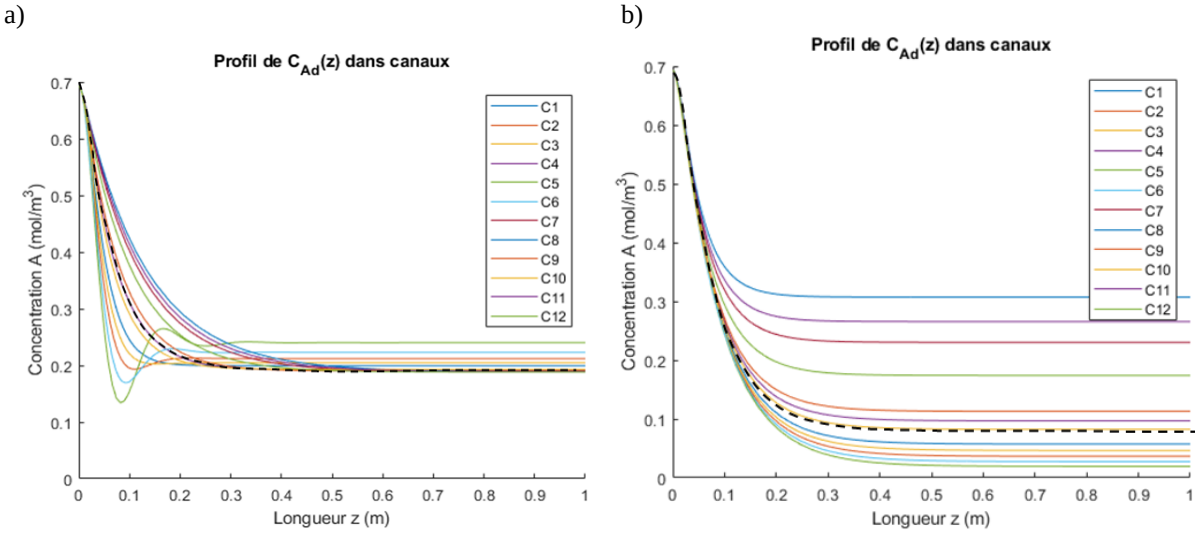


Figure V-48. Profils axiaux de concentration en A en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques et pour le cas k_r=6,3 s^{-1} (réaction rapide devant le transfert gaz-liquide), et liquide pré-saturé. a) distribution en U_b n°5 ; b) distribution en ε_G n°9. En pointillés noirs : distribution uniforme (n° 1).

On notera, pour ces cas de réactions rapides ou modérément lentes, que le facteur d'accélération E est supérieur à 1 en entrée de canal (ce qui n'était pas le cas pour les situations précédentes) et diminue avec z, comme montré en Figure V-49.

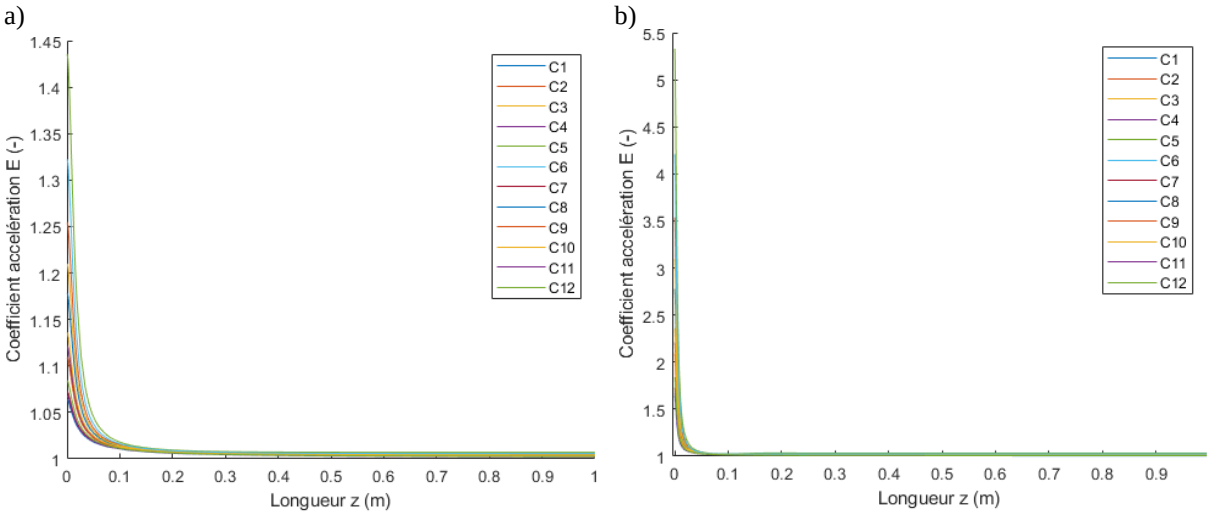


Figure V-49. Profils axiaux du facteur d'accélération E en phase liquide dans les 12 canaux du monolithe pour les distributions théoriques avec maldistribution en U_b, et pour les cas : a) k_r=0,63 s^{-1} ; b) k_r=6,3 s^{-1}

Les flux de conversion sont à présent tracés en fonction du coefficient de transfert moyen de la zone dynamique, pour les différentes distributions testées (Figure V-50). Sur ce graphique, les marqueurs en rouge correspondent à la distribution uniforme (cas n°1). A gauche du point rouge, les points correspondent aux maldistributions en U_b ; le flux converti augmente légèrement avec $k_{L,d}a_d$ car la réaction est mieux alimentée par le transfert. A droite du point de la distribution uniforme, les flux diminuent systématiquement quand $k_{L,d}a_d$ augmente, cette diminution reste toutefois modérée (inférieure ou égale à 6%), et limitée au cas de la réaction rapide. Ce phénomène, peu marqué, n'est plus imputable ici à un phénomène de saturation progressive du liquide en A, mais plutôt aux effets conjugués et non totalement équilibrés des débits liquides individuels des canaux, proportionnels à $(1-\varepsilon_{G,i})$, et de $k_{L,d,i}a_{d,i}, qui$ varie selon $\frac{1}{(1-\varepsilon_{G,i})}$.

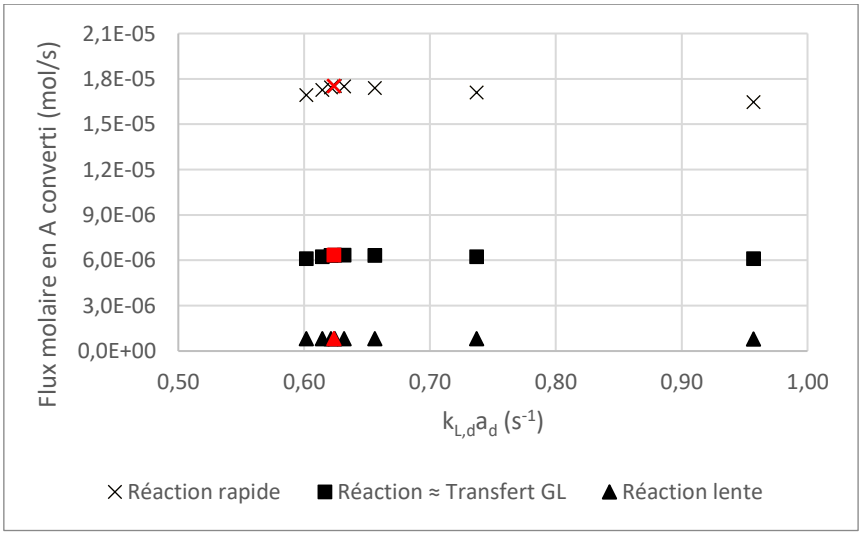


Figure V-50. Rendement global du monolithe de 12 canaux pour les 9 distributions théoriques étudiées ; cas de la réaction lente, modérée et rapide.

Au global, pour une réaction rapide, modérément rapide ou lente devant le transfert, la performance du réacteur (Figure V-51) est défavorisée (jusqu'à -4%) par la maldistribution en U_b.

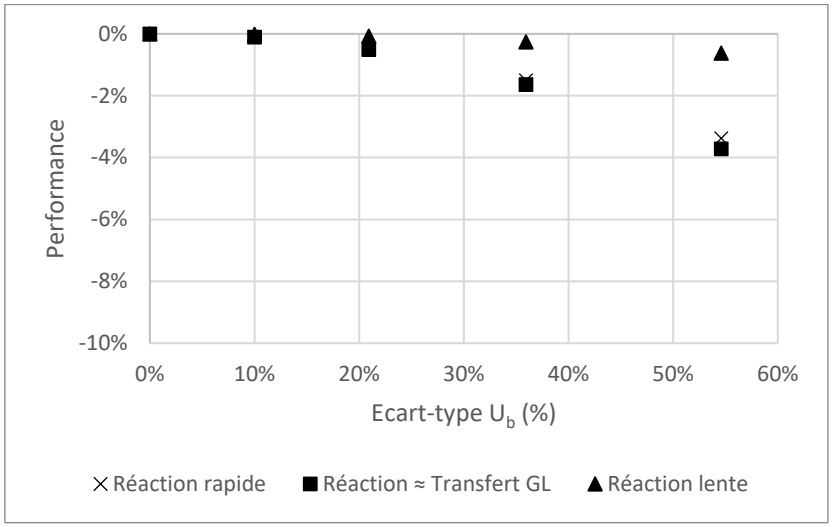


Figure V-51. Impact de la maldistribution en vitesse de bulles sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide pré-saturée.

L'effet négatif, sur la performance globale, de la maldistribution en taux de gaz est confirmée ici (Figure V-52), avec une baisse pouvant atteindre -6% pour la réaction rapide avec un écart-type élevé en taux de gaz : dans ce cas, l'effet de la diminution de débit liquide (*via* ε_L), devant l'augmentation du coefficient de transfert de masse, est prépondérant.

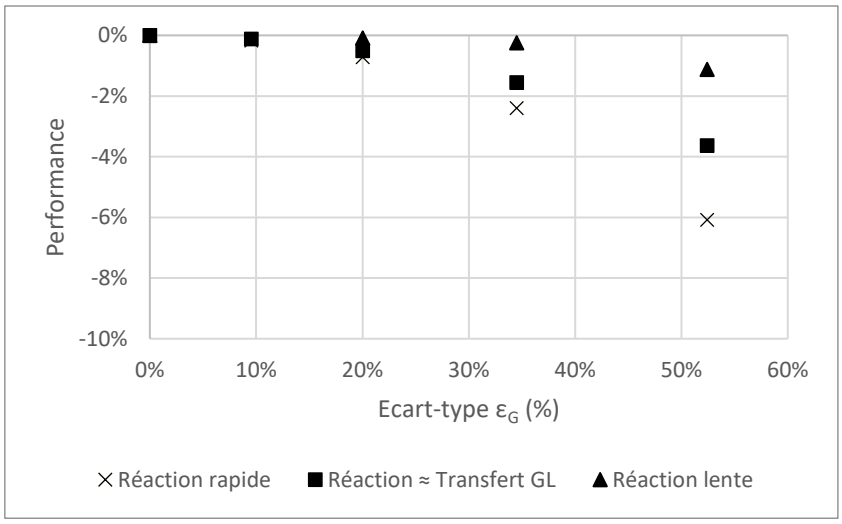


Figure V-52. Impact de la maldistribution en taux de gaz sur la performance chimique globale du réacteur ; cas de la phase liquide pré-saturée.

V.6.2.5 Synthèse de l'impact de maldistributions théoriques sur la performance chimique du monolithe de 12 canaux

Les maldistributions en vitesse de bulles et en taux de vide sont globalement néfastes au flux global de conversion dans le réacteur monolithe. Dans les cas de transfert sans réaction,

ou de réaction et transfert couplés pour des canaux non présaturés en réactif gazeux, la performance du réacteur est faiblement sensible à l'écart-type sur les vitesses de bulle mais très sensible à celui du taux de gaz (chute de performance pouvant atteindre -20% dans les cas testés). Un effet positif de l'écart-type en U_b a cependant été constaté dans des cas particuliers : liquide non pré-saturé en réactif gazeux et réaction très lente devant le transfert de masse, et liquide pré-saturé en réactif gazeux avec réaction très rapide devant le transfert de masse. Dans ce type de situations, les canaux à temps de séjour élevé donnent une meilleure conversion en A par rapport à la distribution uniforme équivalente, et ceci est exceptionnellement prépondérant devant l'effet néfaste de la pseudo-dispersion de l'écoulement global. Cet effet positif sur la performance globale est cependant modéré, de 3 à 4% seulement, pour le cas étudié, et peut être artificiellement amplifié par le fait que nos maldistributions marquées en U_b bénéficient de coefficients de transfert gaz-liquide un peu plus élevés que les autres distributions.

Dans le cas d'un liquide pré-saturé en réactif gazeux, l'impact des maldistributions en vitesse et en taux de gaz est modéré, ne descendant pas en dessous de -6% pour les cas testés dans cette étude.

V.6.3 Perspectives : étude de l'impact de maldistributions expérimentales des phases sur la performance du monolithe

L'étape suivante est d'étudier la performance du réacteur pour les 14 distributions expérimentales analysées précédemment et décrites dans le Tableau V-9. Pour chacun des canaux de chacune de ces distributions, les grandeurs nécessaires à la modélisation de l'évolution de la concentration en réactif A ont été calculées, selon la même méthode qu'en section précédente. Le Tableau V-12 ci-dessous indique, pour chacune des 14 distributions, les valeurs moyennes et les écarts-types pour les grandeurs les plus significatives. Les distributions n° 13 et 14, qui montraient déjà les écarts-types les plus élevés en vitesse de bulle et en taux de gaz, offrent également des écarts-types élevés sur les coefficients de transfert gaz-liquide : ~31% pour la distribution n°13, ~15% pour la distribution n°14 (zone dynamique). Néanmoins, les écarts-types maximaux des différentes grandeurs sont au moins deux fois moins élevés que ceux des distributions théoriques étudiées précédemment.

Cependant, ces distributions correspondent cette fois à des débits globaux de gaz et de liquide différents. La performance chimique globale du monolithe résulte donc des effets couplés des valeurs moyennes de U_b et du taux de gaz, et de leurs écarts-types.

De plus, certains des écoulements obtenus *via* ces expériences sont en régime de petites bulles : il s'agit en particulier des expériences 10 et 11, comme on le voit sur la cartographie d'images, en section V-3. Ce type d'écoulement peut être convenablement décrit par le modèle PDE, car la quasi-absence de zone statique dans la phase liquide (ϕ=1) est acceptable – mathématiquement parlant – par le modèle. Mais l'écriture des bilans différentiels en A doit être modifiée ; plus précisément, le bilan sur la phase statique est peut-être à supprimer, et les expressions des coefficients d'échange et des aires interfaciales ne sont plus les mêmes.

Tableau V-12. Conditions utilisées et grandeurs calculées pour l'étude des maldistributions expérimentales sur la performance chimique d'un monolithe de 12 canaux.

N° expérience	U_b (m/s)		ε_G (-)		$k_{L,d,i}a_{d,i}$ (s^{-1})		$k_{L,st,i}a_{st,i}$ (s^{-1})	
	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type	Moy.	Ecart-type
1	0,31	5%	0,49	7%	0,58	7%	0,71	11%
2	0,50	3%	0,64	7%	0,80	9%	1,51	17%
3	0,64	6%	0,69	6%	0,76	9%	1,82	17%
4	0,37	4%	0,39	5%	0,62	5%	0,52	6%
5	0,54	4%	0,55	8%	0,82	7%	1,18	15%
6	0,68	10%	0,59	10%	0,75	9%	1,42	20%
7	0,43	3%	0,34	5%	0,73	5%	0,35	11%
8	0,52	5%	0,45	4%	0,85	5%	0,84	8%
9	0,76	9%	0,59	10%	0,81	7%	1,51	19%
10	0,52	3%	0,30	3%	0,83	4%	0,12	31%
11	0,60	3%	0,40	3%	0,84	3%	0,71	7%
12	0,79	4%	0,52	3%	0,83	5%	1,26	6%
13	0,47	19%	0,56	22%	1,00	31%	1,21	52%
14	0,74	20%	0,71	19%	1,99	15%	3,03	52%

En conséquence, cette étude demandera une méthodologie spécifique pour s'affranchir de l'effet des grandeurs hydrodynamiques moyennes sur la performance du réacteur et adapter le formalisme du bilan en réactif A dans un canal. Ce travail fait partie des perspectives de la thèse.

V.7 Conclusion

Dans ce chapitre, l'impact de la maldistribution sur le degré global de mélange dans un réacteur monolithe a été étudié *via* l'approche DTS. Il n'a malheureusement pas été possible d'obtenir de traçages quantitativement exploitables de notre maquette de monolithe, même s'il a été prouvé que les capteurs résistifs peuvent y donner accès, sous réserve d'assurer un temps de passage suffisant des écoulements entre les 2 capteurs pour pouvoir déconvoluer convenablement les signaux issus des 2 capteurs, pour chaque canal interrogé.

Grâce au modèle PDE, très adapté au type de courbe DTS observée en écoulement de Taylor, nous avons pu construire des fonctions DTS pour nos canaux, en déduisant les paramètres du modèle PDE des grandeurs hydrodynamiques mesurées pour les écoulements investigués. La démarche a cependant utilisé une valeur fixe pour la dispersion axiale associée au modèle PDE (5.10^{-3} $m^2.s^{-1}$), par analogie d'ordre de grandeur avec celle du modèle Piston-Dispersion ; c'est un point qu'il faudra revisiter dans l'avenir, par traçage expérimental d'écoulements de Taylor et identification des paramètres associés pour le modèle PDE.

Par combinaison de ces fonctions DTS, la DTS globale du monolithe a pu être construite à son tour. Cette méthode nous a permis d'étudier l'impact de la maldistribution – en termes d'écarts-types sur la vitesse de bulles et sur le taux de gaz – sur le temps de séjour moyen et la variance de la DTS du réacteur, donc sur son degré de mélange apparent. La maldistribution en vitesse de bulle est particulièrement pénalisante. Ainsi, pour des maldistributions construites artificiellement, on a pu voir qu'une distribution avec un écart type en U_b de 53 % induit une augmentation de variance de 580 % par rapport à celle d'une distribution uniforme. Dans ce cas, l'ensemble du réacteur présente une pseudo-dispersion importante de 0,04 m²/s. Pour des maldistributions expérimentales, la pseudo-dispersion axiale induite par la maldistribution, qui est à ajouter à celle de la distribution uniforme correspondante, et nommée ΔD_{ax}, est multipliée par un facteur 50 sur la plage explorée des valeurs d'écarts-types en U_b. ΔD_{ax} varie exponentiellement avec l'écart-type en U_b ; une corrélation prédictive est proposée pour ΔD_{ax}, pour des écarts-types en U_b allant jusqu'à 40%, qu'il conviendra de confronter à d'autres résultats expérimentaux.

Selon une démarche similaire, l'impact de la maldistribution sur la performance chimique globale d'un monolithe – en termes de flux de réactif-clé converti dans l'appareil – a été étudiée également. Les distributions des fluides construites artificiellement pour l'étude hydrodynamique ont été à nouveau utilisées. Une réaction chimique de premier ordre entre un réactif issu de la phase gaz et un réactif présent en large excès dans la phase liquide a été considérée. Son couplage à l'hydrodynamique, pour les valeurs de constante cinétique et de concentrations d'entrée et de saturation choisies dans cette étude, a montré que la maldistribution en vitesse de bulles sur les différents canaux, nettement pénalisante pour une réaction ne mobilisant pas de réactif issu d'une phase gazeuse (-10% de performance dans cette étude), l'est beaucoup moins quand la réaction est couplée au transfert (chute maximale de performance : -6%). En revanche l'effet prépondérant de la maldistribution en taux de gaz a été démontré dans le cas où la phase liquide n'est pas pré-saturée en réactif dissous. En effet, celui-ci impacte directement le flux de transfert dans les différents canaux mais aussi leur débit de liquide, donc leur contribution à la conversion globale. Cet effet prend le pas sur celui de la pseudo-dispersion globale du réacteur induite par la maldistribution en vitesse de bulle. Ainsi, il a été observé que le flux global de conversion en réactif-clé sur le réacteur peut être réduit de 20%, par rapport à une distribution uniforme, pour un écart-type de 50% sur le taux de gaz, une réaction lente, et un liquide ne comportant pas de A dissous à l'alimentation.

A noter que pour les distributions expérimentales, l'étude de l'impact de la maldistribution sur la performance chimique globale serait plus complexe, puisque ces distributions correspondent à des débits globaux variés des deux phases, induisant un effet couplé des valeurs moyennes et des écarts-types de la vitesse de bulle et du taux de gaz sur la performance chimique. Cette étude sera menée après la présente thèse.

CONCLUSION GENERALE

A l'issue de ce travail de thèse, nous commençons par en rappeler l'objectif initial : faciliter, à l'ère de la fabrication additive, l'utilisation industrielle des réacteurs intensifiés milli-structurés fonctionnant en gaz-liquide, en contribuant à mieux maîtriser la distribution des fluides dans ces appareils. Le cas d'exemple des réacteurs monolithes en régime d'écoulement de Taylor a été développé ici, leur application aux réactions gaz-liquide étant très prometteuse. Les questions soulevées au début de ce manuscrit étaient :

- Comment caractériser la maldistribution du gaz et du liquide dans un réacteur monolithe ?
- Parmi les caractéristiques d'un système de distribution des fluides, quelles sont celles qui jouent le plus fortement sur la distribution du gaz et du liquide?
- Comment la maldistribution impacte-t-elle les performances du réacteur monolithe, en termes de degré de mélange apparent et d'avancement d'une réaction ?

Pour y répondre, nous avons mis en place une stratégie par étapes.

Tout d'abord, nous nous sommes intéressés à un capteur original, développé en collaboration avec l'Institut de Mécanique des Fluides, capable de délivrer simultanément autant de signaux de tension que de canaux dans un monolithe, et ce à haute résolution temporelle. Nous avons mis au point une méthode de traitement de ces signaux, permettant d'en déduire les caractéristiques hydrodynamiques clés des écoulements de Taylor. Cette méthode a été confrontée pour une rangée de 12 canaux à une méthode de mesure de référence, l'ombroscopie avec caméra rapide, et il s'avère qu'en écoulement de Taylor le capteur mesure la fréquence de passage de bulle à ±10% près, et la vitesse des bulles, comme le taux de gaz, à ±20% près.

Cet outil permet désormais d'analyser avec une bonne dynamique de réponse la distribution des fluides issue d'un distributeur donné. Grâce à lui, nous avons pu investiguer les écoulements dans 12 ou 84 canaux d'un réacteur monolithe fabriqué en résine époxy par stéréolithographie, et qualifier la distribution des fluides issue d'un distributeur conventionnel – dans lequel les fluides se mélangent dans une même chambre avant d'entrer dans les canaux – et d'un distributeur breveté au Laboratoire de Génie Chimique, nommé DistriGazLi. Pour cela, nous avons mis au point un pilote qui permet d'assembler un distributeur, et des blocs monolithes et, lors des études sur une rangée de 12 canaux, un système de visualisation des écoulements. Les expériences ont été menées en conditions ambiantes, et avec de l'air et de l'eau selon des débits variables d'alimentation globale en gaz et en liquide. Ce dispositif, associé au choix de critères quantitatifs de maldistribution, adaptés à notre système, a permis d'étudier l'impact, sur la qualité de la distribution des fluides, de paramètres physiques ou géométriques : la nature du matériau du distributeur et son état de surface, la dimension des orifices d'injection du gaz dans les canaux internes du distributeur innovant DistriGazLi, la perte de charge en aval du distributeur, la restructuration des écoulements (par coalescence de bulles ou de bouchons) lors de leur passage d'un bloc monolithe à l'autre. Ainsi, il a été prouvé que, pour le distributeur DistriGazLi comportant des canaux de 2 mm de diamètre interne, les

meilleures distributions des fluides sont obtenues pour une des résines époxy testée, la résine Invicta (DWS DL380 Invicta, DWS Systems), et des orifices d'injection de 1,5 mm. Il a été confirmé que la perte de charge en aval du distributeur équilibre l'alimentation des canaux par le distributeur. Enfin, il a été montré que la structure des écoulements de Taylor est stable le long de nos canaux – ce qui n'est pas le cas pour les écoulements à petites bulles -.

La confrontation d'un distributeur conventionnel à chambre de mélange au distributeur innovant DistriGazLi a permis de montrer que ce dernier est nettement plus performant, produisant en moyenne moins de régimes d'écoulement autres que celui de Taylor, et délivrant des écarts-types en fréquence de bulles inférieurs à 30% dans les conditions de débits explorées.

Ces études devront permettre, à la suite de cette thèse, de produire une version encore plus performante du distributeur DistriGazLi, et de la confronter à d'autres types de distributeurs.

Le point d'étape suivant était d'étudier l'impact de la maldistribution sur la conversion chimique au sein d'un réacteur. Pour cela, un modèle hydrodynamique était nécessaire, afin de décrire le transport des espèces dans la phase liquide au sein de l'appareil. Nous avons d'abord envisagé de bâtir ce modèle à l'aide (i) d'une étude de notre maquette de réacteur par la méthodologie du traçage et de la Distribution des Temps de Séjour, et (ii) de l'identification des paramètres d'un modèle DTS de la littérature sur la base des courbes temporelles de réponse obtenues. Nous avons acquis la preuve que l'utilisation de deux capteurs résistifs permet de recueillir des données expérimentales de traçage ; cependant, notre maquette de réacteur monolithe n'a pas permis de distancier suffisamment les deux capteurs pour pouvoir déconvoluer leurs signaux. Le signal d'entrée en traceur reçu par les canaux étant également difficilement accessible à la mesure, l'étude DTS expérimentale s'est arrêtée là.

Afin de décrire sans traçages expérimentaux nos écoulements de Taylor, nous avons cherché dans la littérature un modèle hydrodynamique phénoménologique bien adapté aux écoulements de Taylor, et avons retenu le modèle Piston-Dispersion-Echange (ou PDE). Ce modèle est basé sur l'existence d'une zone statique et d'une zone dynamique dans l'écoulement liquide au sein du canal, et nécessite l'utilisation de trois paramètres pour en décrire l'hydrodynamique. La mesure de deux caractéristiques clés de l'écoulement dans un canal – vitesse de bulle et taux de gaz – permet d'estimer les paramètres du modèle PDE associés à cet écoulement. Alors, grâce au modèle PDE, nous avons étudié la pseudo-dispersion globale induite dans le réacteur monolithe par la maldistribution à son entrée. Nous avons pour cela utilisé des distributions des fluides sur 12 canaux, certaines construites artificiellement, et d'autres issues de nos expériences. Nous avons constaté l'effet pénalisant majeur de l'écart-type en vitesse de bulles sur cette dispersion induite (ou « pseudo-dispersion »), et nous avons proposé une corrélation empirique permettant de calculer la pseudo-dispersion dans notre réacteur monolithe de 12 canaux pour une maldistribution donnée, connaissant la dispersion axiale de la distribution uniforme de mêmes débits globaux, et l'écart-type en vitesse de bulle de la maldistribution considérée.

Grâce au modèle PDE, le transport d'espèces réactives en phase liquide peut être décrit dans chaque canal du monolithe, puis la conversion totale dans le réacteur peut être calculée. Nous avons appliqué cette démarche pour le cas d'une réaction d'ordre 1 vis-à-vis d'un réactif

gazeux transférable (l'autre réactif étant considéré en large excès dans la phase liquide). En couplant cette réaction à des maldistributions créées artificiellement, nous avons pu montrer, pour des valeurs de constante cinétique, de concentrations d'entrée et de concentration à saturation choisies, que la maldistribution en vitesse de bulles impacte nettement la conversion globale du réacteur quand les deux réactifs sont présents en phase liquide (réaction sans transfert : -10% de performance dans cette étude), mais l'impacte moins quand la réaction est couplée au transfert (chute maximale de performance : -6%). En revanche l'effet prépondérant de la maldistribution en taux de gaz a été démontré dans le cas, *a priori* le plus fréquent dans l'industrie, où la phase liquide n'est pas pré-saturée en réactif dissous. Il a été observé que la réduction de performance chimique du réacteur peut atteindre 20%, par rapport à une distribution uniforme, pour un écart-type de 50% sur le taux de gaz, une réaction lente vis-à-vis du transfert, et un liquide ne comportant pas de A dissous à l'alimentation.

Suite aux questions posées au début de la thèse, des réponses, ou des éléments de réponses, ont donc été apportés. Néanmoins, quelques aspects n'ont pas pu être abordés, quelques hypothèses simplificatrices ont dû être formulées, et quelques tentatives ont échoué. Nous les listons ci-dessous, en proposant des pistes pour contourner ces écueils et aller plus loin.

Concernant le capteur résistif, plusieurs pistes de progression sont à envisager. Tout d'abord, la précision de la mesure de la vitesse de bulle et du taux de gaz en écoulement de Taylor est à améliorer ; la distance entre les deux électrodes d'un orifice de canal pourrait être optimisée, et la fréquence d'acquisition augmentée encore si possible. De plus, pour les écoulements comportant des bulles de plus petit diamètre que le canal – appelés « écoulements à bulles » ou écoulements « bubbly » –, les performances du capteur se dégradent ; et pour les autres régimes d'écoulement (écoulements à film liquide, ou monophasique liquide, ou monophasique gaz), nous ne savons pas, à ce jour, exploiter quantitativement les signaux du capteur. Ce point est à développer. Dans le but de reconnaître les régimes d'écoulement sur la base des signaux de tension délivrés par le capteur, une approche par Machine Learning est actuellement en cours ; ainsi, une fois le régime d'écoulement identifié par le capteur pour un canal, un traitement de signal adapté à ce régime pourra être appliqué.

Une autre difficulté existe pour ce capteur : il doit être conçu puis construit spécifiquement pour chaque réacteur milli-structuré à étudier, en tenant compte du nombre de canaux, de leur espacement, de leur diamètre interne. Mais ce capteur, une fois en place sur un réacteur industriel, peut devenir un outil appréciable de suivi et de contrôle en temps réel de la qualité de la distribution des fluides.

Enfin, le capteur résistif n'est utilisable que pour un système gaz-liquide offrant des conductivités contrastées. Pour qu'il soit applicable à tout système, une version capacitive de l'outil est envisagée, que nous souhaitons développer avec l'aide du service Signaux et Images de l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse.

Concernant la démarche suivie dans ce travail de thèse, l'une des simplifications les plus critiquables est sans doute la valeur fixe de D_{ax} dans les calculs liés au modèle PDE. Il conviendra, dans la suite, de trouver une approche pour identifier ce coefficient et le relier aux grandeurs hydrodynamiques de l'écoulement de Taylor. L'augmentation du nombre de blocs

monolithes placés entre deux capteurs résistifs pourra donner accès à des traçages expérimentaux exploitables. Par ailleurs, nous avons l'idée de simuler par CFD la phase liquide dans les écoulements de Taylor – en représentant par exemple les bulles par des objets de même forme avec glissement parfait sur leur surface -, et d'effectuer des traçages numériques ; on pourrait ainsi produire autant de données que nécessaires (en termes de U_b, ε_G, etc.) pour identifier numériquement les trois paramètres du modèle PDE.

Ensuite, la corrélation proposée dans ce travail pour l'estimation de la pseudo-dispersion ΔD_{ax} due à la maldispersion au sein d'un monolithe, est liée aux géométries, fluides et débits de l'étude et devra être confrontée à d'autres réacteurs milli-structurés, d'autres fluides, d'autres débits de phases…

Le chapitre 4 ayant permis de dégager un type de résine (Invicta) et des diamètres d'orifice d'injection (1,5 mm) à privilégier pour notre distributeur innovant DistriGazLi, il conviendra de réaliser un prototype de ce distributeur avec ces caractéristiques, et de le tester pour vérifier la qualité des distributions délivrées. A plus long terme, pour se rapprocher des conditions industrielles, il faudra tester des distributeurs imprimés en métal par fusion de poudre (aluminium ou inox, par exemple), et étudier l'impact de ces matériaux et des états de surfaces associés sur la distribution des fluides.

Enfin, le couplage de la maldistribution à une réaction mettant en jeu un réactif gazeux et un réactif liquide a été abordé dans cette thèse selon une stratégie qui a porté ses fruits, mais uniquement pour une réaction d'ordre 1 et des maldistributions construites artificiellement. Il faudra généraliser la démarche à d'autres lois cinétiques et à des maldistributions expérimentales, pour valider ou compléter les conclusions faites au chapitre 5. L'objectif sera en particulier de corréler quantitativement l'écart-type en taux de gaz à la performance chimique globale du réacteur. Idéalement, on essaiera de réaliser des expériences avec réaction chimique.

RÉFÉRENCES

Albrand P., Julcour C., Billet A-M. (2021). Sunflower Hydrogenation in Taylor Flow Conditions: Experiments and Computational Fluid Dynamics Modeling Using a Moving Mesh Approach. Industrial and Engineering Chemistry Research, 60(46), 16701–16719, https://doi.org/10.1021/acs.iecr.1c02801

Al-Dahhan, M.H., Kemoun, A., Cartolano, A.R., Roy, S., Dobson, R., Williams, J. (2007). Measuring gas-liquid distribution in a pilot scale monolith reactor via an Industrial Tomography Scanner (ITS). Chem. Eng. J. 130(2–3), 147–152, https://doi.org/10.1016/j.cej.2006.06.022

Al-Rawashdeh M., Fluitsma LJM., Nijhuis TA., Rebrov EV., Hessel V., Schouten JC. (2012a). Design criteria for a barrier-based gas-liquid flow distributor for parallel microchannels. Chemical Engineering Journal, 181-182, 549-556, https://doi.org/10.1016/j.cej.2011.11.086

Al-Rawashdeh M., Yu F., Nijhuis TA., Rebrov EV., Hessel V., Schouten JC., (2012b). Numbered-up gas-liquid micro/milli channels reactor with modular flow distributor. Chemical Engineering Journal, 207-208, 645–655, https://doi.org/10.1016/j.cej.2012.07.028

Al-Rawashdeh M., Yue FY., Patil NG., Nijhuis TA., Hessel V., Schouten JC., Rebrov EV., (2014). Designing flow and temperature uniformities in parallel microchannels reactor. AIChE Journal, 60(5), 1941–1952, https://doi.org/10.1002/aic.14443

Aussillous, P., Quéré, D. (2000). Quick deposition of a fluid on the wall of a tube. Physics of Fluids, 12(10), 2367-2371, https://doi.org/10.1063/1.1289396

Bahrami, M., Yovanovich, M., Culham, J.R. (2006). Pressure Drop of Fully Developed, Laminar Flow in Rough Microtubes. Journal of Fluids Engineering 128(3), 632-637, https://doi.org/10.1115/1.2175171

Bakker, J.J.W., Kreutzer, M.T., de Lathouder, K., Kapteijn, F., Moulijn, J.A., Wallin, S.A. (2005). Hydrodynamic properties of a novel 'open wall' monolith reactor. Catalysis Today, 105(3–4), 385-390, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2005.06.027

Bauer, T., Roy, S., Lange, R., Al-Dahhan, M. (2005). Liquid saturation and gas–liquid distribution in multiphase monolithic reactors. Chemical Engineering Science, 60 (11), 3101–3106, https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.12.041

Behl, M., Roy, S. (2007). Experimental investigation of gas–liquid distribution in monolith reactors. Chemical Engineering Science, 62(24), 7463–7470, https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.08.032

Bérard, A., Blais, B., Patience, G.S. (2020). Experimental methods in chemical engineering: Residence time distribution—RTD. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 98(4), 848-867, https://doi.org/10.1002/cjce.23711

Bercic, G. (2001). Influence of operating conditions on the observed reaction rate in the single channel monolith reactor. Catalysis Today, 69 (1-9), 147–152, https://doi.org/10.1016/S0920-5861(01)00390-X

Bercic, G., Pintar, A. (1997). The role of gas bubbles and liquid slug lengths on mass transport in the Taylor flow through capillaries. Chemical Engineering Science, 52(21-22), 3709-3719, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(97)00217-0

Bhatia, R. N., Gubbins, K. E., Walker, R. D (1968). Mutual diffusion in concentrated aqueous potassium hydroxide solutions. Transactions of the Faraday Society, 64, 2091-2099, https://doi.org/10.1039/TF9686402091

Billet, A.M., Da Costa, F., Coghe, I., Chaumat, H., Devatine, A., Julcour, C. Device for forming and distributing a two-phase fluid flow. FR 1908608, PCT/FR2020/051378, WO2021019176.

Bolivar, J.M., Nidetzky, B. (2013). Multiphase biotransformations in microstructured reactors: opportunities for biocatalytic process intensification and smart flow processing. Green Processing and Synthesis, 2(6), 541–559, https://doi.org/10.1515/gps-2013-0091

Bourdon, E., Billet, A.-M., Rouzineau, D., Volpi, C., Cadours, R., Julcour, C. (2024). Experimental investigation of mass transfer efficiency in reactive Taylor flow for CO2 absorption. Chemical Engineering Science, 295, 120108, https://doi.org/10.1016/j.ces.2024.120108

Bourdon, E., Julcour C., Billet A.-M., Rouzineau, D., Volpi, C., Cadours, R. (2023). Experimental and numerical investigation of gas-side mass transfer in Taylor flow. Separation and Purification Technology, 315, 123599, https://doi.org/10.1016/j.seppur.2023.123599

Boyer, C., Billet, A-M., Wild, G. (2002). Measuring techniques in gas–liquid and gas–liquid–solid reactors. Chemical Engineering Science, 57(16), 3185-3215, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(02)00193-8

Bretherton, F.P. (1961). The motion of long bubbles in tubes. Journal of Fluid Mechanics, 10(2), 166–188, https://doi.org/10.1017/S0022112061000160

Butler, C., Lalanne, B., Sandmann, K., Cid, E., Billet, A.-M. (2018). Mass transfer in Taylor flow: Transfer rate modelling from measurements at the slug and film scale. International Journal of Multiphase Flow, 105, 185-201, https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2018.04.005.

Cao, Y., Li, P., Zhou, J., Sui, Z., Zhou, X. (2011). Hydrodynamics and mass transfer in carbon-nanofiber/graphite-felt composite under two-phase flow conditions. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 50(10), 1108-1114, https://doi.org/10.1016/j.cep.2011.05.019

Chaumat, H., Billet-Duquenne, A.M., Augier, F., Mathieu, C., Delmas, H. (2007). On the reliability of an optical fibre probe in bubble column under industrial relevant operating conditions. Experimental Thermal and Fluid Science, 31(6), 495-504, https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2006.04.018

Chen, W., Malhotra, A., Yu, K., Zheng, W., Plaza-Gonzalez, P.J., Catala-Civera, J.M., Santamaria, J., Vlachos, D.G. 2021). Intensified microwave-assisted heterogeneous catalytic reactors for sustainable chemical manufacturing. Chemical Engineering Journal, 420, 130476, https://doi.org/10.1016/j.cej.2021.130476

Chugh, D., Roy, S., Shao, J. and Al-Dahhan, M.H. (2017). Experimental investigation of gas-liquid flow in monolith channels using monofiber optical probes. AIChE Journal, 63(1), 327-336, https://doi.org/10.1002/aic.15586

Cunningham, M.J., Bibby, G.L. (2003). 11 - Electrical Measurement, in: Electrical Engineer's Reference Book (Sixteenth Edition). Edited by Laughton, M.A., Warne, D.J., 11-1-11-43. Oxford: Newnes, https://doi.org/10.1016/B978-075064637-6/50011-3

Cussler, E. L. (1997). Diffusion: Mass Transfer in Fluid Systems (2nd ed.). New York: Cambridge University Press.

Cybulski, A., Moulijn, JA. (2006), Structured catalysts and reactors, 2nd edition, Taylor & Francis Group, Boca Raton, https://doi.org/10.1201/9781420028003

Danckwerts, P.V. (1953). Continuous flow systems, distribution of residence times. Chemical Engineering Science, 2(1), 1–13, https://doi.org/10.1016/0009-2509(53)80001-1

de Lathouder, K.M., Bakker, J., Kreutzer, M;T., Kapteijn, F., Moulijn, J.A., Wallin, S.A. (2004). Structured reactors for enzyme immobilization: advantages of tuning the wall morphology. Chemical Engineering Science, 59(22–23), 5027-5033, https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.07.047

Devatine, A., Chaumat, H., Guillaume, S., Tati Tchibouanga, B., Durán Martínez, F., Julcour-Lebigue, C., Billet, A.-M. (2017). Hydrodynamic study of a monolith-type reactor for intensification of gas-liquid applications. Chemical Engineering and Processing 122. 277-287, https://doi.org/10.1016/j.cep.2017.10.015

Dos Reis, E., Goldstein Jr., L. (2010). Characterization of slug flows in horizontal piping by signal analysis from a capacitive probe. Flow Measurement and Instrumentation, 21(3), 347-355, https://doi.org/10.1016/j.flowmeasinst.2010.04.006

Durán Martínez, F.-L. (2017), Réacteur-échangeur de type monolithe - stratégie de modélisation et description des phénomènes à l'échelle d'un canal catalytique unique, thèse de doctorat. http://www.theses.fr/s175472.

Edvinsson-Albers, R., Cybulski, A., Kreutzer, MT., Kapteijn, F., Moulijn, JA. (2006). Modelling and design of monolith reactors for three-phase processes. In Cybulski, A., Moulijn, JA., Structured catalysts and reactors, 2nd edition, 435-477. https://doi.org/10.1201/9781420028003

Eggenschwiler, P.D., Tsinoglou, D.N., Seyfert, J., Bach, C., Vogt, U., Gorbar, M. (2009). Ceramic foam substrates for automotive catalyst applications: fluid mechanic analysis. Experiments in Fluids, 47, 209–222, https://doi.org/10.1007/s00348-009-0653-2

Fairbrother, F., Stubbs, A.E. (1935). Studies in electro-endosmosis. Part VI. The "bubble-tube" method of measurement. Journal of the Chemical Society, 527–529, https://doi.org/10.1039/JR9350000527

Fogler, H.S. (1986), Elements of Chemical Reaction Engineering. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey.

Fogler, H.S. (2011), Essentials of Chemical Reaction Engineering, first ed., Pearson Education Inc.,

Boston.
Frietzsche, G., Krause, P., 1974. Device for the Purification of Waste Gases of Internal Combustion Engines. US3854888 (A).
Froment, G., Bishoff, K.B., De Wilde, J. Chemical reactor analysis and design (3rd edition), John Wiley & Sons, Inc., 2011.
Fu, Q-f., Yang, L-j., Qu, Y-y. (2011). Measurement of annular liquid film thickness in an open-end swirl injector. Aerospace Science and Technology, 15(2), 117-124, https://doi.org/10.1016/j.ast.2010.06.006
Ganapathy, H., Shooshtari, A., Dessiatoun, S., Alshehhi, M., Ohadi, M. (2014). Fluid flow and mass transfer characteristics of enhanced CO2 capture in a minichannel reactor. Applied Energy, 119, 43–56, https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2013.12.047
Gascon J., van Ommen J.R., Moulijn J.A., Kapteijn F. (2015). Structuring catalyst and reactor-an inviting avenue to process intensification. Catalysis Science & Technology, 5(1), 807–817, https://doi.org/10.1039/C4CY01406E
Georget, E., Sauvageat, J., Burbidge, A., Mathys, A. (2013). Residence time distributions in a modular micro reaction system. Journal of Food Engineering, 116(4), 910-919, https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2013.01.041
Gladden, L.F., Anadon, L .D., Dunckley, C.P., Mantle, M.D., Sederman, A.J. (2007). Insights into gas-liquid-solid reactors obtained by magnetic resonance imaging. Chem. Eng. Sci., 62(24), 6969–6977, https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.08.084
Gladden, L.F., Lim, M.H.M., Mantle, M.D., Sederman, A.J., Stitt, E.H. (2003). MRI visualisation of two-phase flow in structured supports and trickle-bed reactors. Catalysis Today, 79-80, 203-210, https://doi.org/10.1016/S0920-5861(03)00006-3
Gole, V.L, Gogate, P.R. (2012). A review on intensification of synthesis of biodiesel from sustainable feed stock using sonochemical reactors. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 53, 1-9, https://doi.org/10.1016/j.cep.2011.12.008
Govender, S, Friedrich, H.B. (2017). Monoliths: A Review of the Basics, Preparation Methods and Their Relevance to Oxidation. Catalysts, 7(2), 62, https://doi.org/10.3390/catal7020062
Guo, R., Fu, T., Zhu, C., Yin, Y., Ma, Y. (2019). Hydrodynamics and mass transfer of gas-liquid flow in a tree-shaped parallel microchannel with T-type bifurcations. Chemical Engineering Journal, 373, 1203–1211, https://doi.org/10.1016/j.cej.2019.05.124
Guo, X., Fan, Y., Luo, L. (2018). Residence time distribution on flow characterisation of multichannel systems: Modelling and experimentation Experimental Thermal and Fluid Science, 99, 407-419, https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2018.08.016
Gupta, R., Fletcher, D.F., Haynes, B.S., 2009. On the CFD modelling of Taylor flow in microchannels. Chemical Engineering Science, 64(12), 2941−2950, https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.03.018
Haakana, T., Kolehmainen, E., Turunen, I., Mikkola, J.-P., Salmi, T. (2004). The development of monolith reactors: general strategy with a case study. Chemical Engineering Science 59(22-23), 5629–5635, https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.07.112
Haase S., Bauer T., Lange R., (2015). Numbering-up of mini- and microchannel contactors and reactors. Chimica Oggi Chemistry Today, 33(2), 16–21.
Haase, S., Bauer, T., Hilpmann, G., Lange, M., Ayubi, M-M., Abiev, R., 2020. Simultaneous detection of hydrodynamics, mass transfer and reaction rates in a three-phase micro-reactor. Theoretical Foundations of Chemical Engineering, 54(1), 48–63, https://doi.org/10.1134/S0040579520010091
Haase, S., Bauer, T., Lange, R. (2013), Technische Universität Dresden, DE102012010959 A1.
Haase, S., Murzin, D.Y., Salmi, T. (2016). Review on hydrodynamics and mass transfer in minichannel wall reactors with gas-liquid Taylor flow. Chemical Engineering Research and Design, 113, 304-329, https://doi.org/10.1016/j.cherd.2016.06.017
Hamidipour, M., Larachi, F. (2010). Dynamics of filtration in monolith reactors using electrical capacitance tomography. Chemical Engineering Science, 65(1), 504–510. https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.06.040
Hatziantoniou, V., Andersson, B. (1982). Solid-liquid mass-transfer in segmented gas-liquid flowthrough a capillary. Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, 21 (4), 451-456, https://doi.org/10.1021/i100008a024

Hatziantoniou, V., Andersson, B. (1984). The segmented two-phase flow monolithic catalyst reactor. An alternative for liquid phase hydrogenations. Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals, 23(1), 82–88, https://doi.org/10.1021/i100013a015

Hatziantoniou, V., Andersson, B., Schoon, N.H. (1986). Mass transfer and selectivity in liquid-phase hydrogenation of nitro compounds in a monolithic catalyst reactor with segmented gas-liquid flow. Industrial & Engineering Chemistry Product Research and Development, 25(4), 964–970, https://doi.org/10.1021/i200035a021

Heibel, A.K., Lebens, P.J.M., Middelhoff, J.W., Kapteijn, F. and Moulijn, J. (2005), Liquid residence time distribution in the film flow monolith reactor. AIChE Journal, 51(1), 122-133, https://doi.org/10.1002/aic.10288

Heibel, A.K., Vergeldt, F.J., Van As, H., Kapteijn, F., Moulijn, J., Boger, T. (2003). Gas and liquid distribution in the monolith film flow reactor. AIChE Journal, 49(12), 3007–3017. https://doi.org/10.1002/aic.690491203

Heiszwolf JJ., Engelvaart LB., van den Eijnden MG., Kreutzer MT., Kapteijn F., Moulijn JA. (2001). Hydrodynamic aspects of the monolith loop reactor. Chemical Engineering Science, 56(3), 805–812, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(00)00292-X

Heiszwolf, J.J., Kreutzer, M.T., van den Eijnden, M.G., Kapteijn, F., Moulijn, J.A. (2001). Gas–liquid mass transfer of aqueous Taylor flow in monoliths. Catalysis Today, 69(1-4), 51-55, https://doi.org/10.1016/S0920-5861(01)00354-6

Hessel, V., Angeli, P., Gavriilidis, A., Löwe, H. (2005). Gas−Liquid and Gas−Liquid−Solid Microstructured Reactors: Contacting Principles and Applications. Industrial & Engineering Chemistry Research, 44(25), 9750-9769, https://doi.org/10.1021/ie0503139

Hoek, P.J., Wesselingh, J.A., Zuiderwerg, F.J. (1986). Small scale and large scale liquid maldistribution in packed columns. Chemical Engineering Research and Design, 64, 431–449.

Holmen, A. Venvik, H.J. Myrstad, R. Zhu, J. Chen, D. (2013). Monolithic, microchannel and carbon nanofibers/carbon felt reactors for syngas conversion by Fischer-Tropsch synthesis. Catalysis Today, 216, 150–157, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2013.06.006

Horvath, C., Solomon, B.A., Engasser, H.-M. (1973). Measurement of radial transport in slug flow using enzyme tubes. Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals 12 (4), 431–439, https://doi.org/10.1021/i160048a006

Houzelot, J-L. (2013). Distribution des temps de séjour et efficacité des réacteurs chimiques. Opérations unitaires, Génie de la réaction chimique (J4014). https://doi.org/10.51257/a-v1-j4014

Hweij, K.A., Azizi, F. (2015). Hydrodynamics and residence time distribution of liquid flow in tubular reactors equipped with screen-type static mixers. Chemical Engineering Journal, 279, 948-963, https://doi.org/10.1016/j.cej.2015.05.100

Iliuta, I., Larachi, F., Grandjean, B.P.A. (1999). Residence time, mass transfer and back-mixing of the liquid in trickle flow reactors containing porous particles. Chemical Engineering Science, 54(18), 4099-4109, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(99)00120-7

Iliuta, I., Thyrion, F.C., Muntean, O., Giot, M. (1996). Residence time distribution of the liquid in gas-liquid cocurrent upflow fixed-bed reactors. Chemical Engineering Science, 51(20), 4579-4593, https://doi.org/10.1016/0009-2509(96)00303-X

Incropera, F. P., DeWitt, D.P. (2002). Fundamentals of Heat and Mass Transfer, 5th ed. John Wiley & Sons, New Jersey, USA.

Irandoust, S., Andersson, B., (1989). Liquid film in Taylor flow through a capillary. Industrial & Engineering Chemistry Research, 28(11), 1684–1688, https://doi.org/10.1021/ie00095a018

Irandoust, S., Andersson. B. (1988). Mass transfer and liquid-phase reactions in a segmented twophase flow monolith catalytic reactor. Chemical Engineering Science, 43(8), 1983-1988, https://doi.org/10.1016/0009-2509(88)87072-6

Kapteijn, F., Nijhuis, T.A., Heiszwolf, J.J., Moulijn, J.A. (2001). New Non-Traditional Multiphase Catalytic Reactors Based on Monolithic Structures. Catalysis Today, 66(2– 4), 133-144, https://doi.org/10.1016/S0920-5861(00)00614-3

Kawahara, A., Chung, P.M.-Y., Kawaji, M. (2002). Investigation of two-phase flow pattern, void fraction and pressure drop in a microchannel. International Journal of Multiphase Flow, 28(9), 1411−1435, https://doi.org/10.1016/S0301-9322(02)00037-X

Kipping, R., Brito, R., Scheicher, E., Hampe, U. (2016). Developments for the application of the Wire-Mesh Sensor in industries. International Journal of Multiphase Flow (85), 86–95, https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2016.05.017

Knochen, J., Güttel, R., Knobloch, C., Turek, T. (2010). Fischer–Tropsch synthesis in millistructured fixed-bed reactors: experimental study and scale-up considerations. Chemical Engineering and Processing - Process Intensification, 49(9), 958–964, https://doi.org/10.1016/j.cep.2010.04.013

Kolb, G., Hessel, V. (2004). Micro-structured reactors for gas phase reactions, Chemical Engineering Journal, 98(1-2), 1–38, https://doi.org/10.1016/j.cej.2003.10.005

Kreutzer M.T., Bakker J.W., Kapteijn F., Moulijn J.A., Verheijen, P.J.T. (2005a), Scaling-up Multiphase Monolith Reactors: Linking Residence Time Distribution and Feed Maldistribution,. Industrial & Engineering Chemistry Research, 44(14), 4898-4913, https://doi.org/10.1021/ie0492350

Kreutzer, M. T., Du, P., Heiszwolf, J. J., Kapteijn, F., Moulijn, J. A. (2001). Mass transfer characteristics of three-phase monolith reactors. Chemical Engineering Science 56(21-22): 6015-6023, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(01)00271-8

Kreutzer, M.T., Du, P., Heiszwolf, J.J., Kapteijn, F., Moulijn, J.A. (2001). Mass transfer characteristics of three phase monolith reactors. Chemical Engineering Science 56 (22), 6015–6023, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(01)00271-8.

Kreutzer, M.T., Kapteijn, F., Moulijn, J.A., Heiszwolf, J.J. (2005c). Multiphase monolith reactors: chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels. Chemical Engineering Science, 60(22), 5895–5916, https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.03.022

Kreutzer, M.T., Kapteijn, F., Moulijn, J.A., Kleijn, C.R., Heiszwolf, J.J (2005b). Inertial and interfacial effects on pressure drop of Taylor flow in capillaries. AIChE Journal, 51(9), 2428-2440, https://doi.org/10.1002/aic.10495

Kulkarni, R., Natividad, R., Wood, J., Stitt, E.H., Winterbottom, J.M. (2005). A comparative study of residence time distribution and selectivity in a monolith CDC reactor and a trickle bed reactor. Catalysis Today, 105(3-4), 455–463, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2005.06.024

Laverne, F., Segonds, F., Dubois, P. (2016). Fabrication additive - Principes généraux. Techniques de l'ingénieur - Génie industriel Conception et Production, BM 7017v2, https://doi.org/10.51257/a-v2-bm7017.

Lei Z., Zhang Q., Liu N., Dai C., Chen B. (2020). Experimental and modeling study on the hydrodynamics in multiphase monolith modules with different distributors. Chemical Engineering and Processing - Process Intensification, 153, 107920, https://doi.org/10.1016/j.cep.2020.107920

Levenspiel, O. (1999), Chemical Reaction Engineering, third ed., Wiley, New York.

Li, J., Ding, H., Xiang, W., Tao, M., Liu, C. (2016). Hydraulic performance of Winpak-C modular catalytic structured packing. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 94(3), 556-564, https://doi.org/10.1002/cjce.22398

Liu, G., Zhang, X., Chen, W., He, Y., Cheng, L., Huo, M., Yin, J., Hao, F., Chen, S., Wang, P., Yi, S., Wan, L., Mao, Z., Chen, Z., Wang, X., Cao, Z., Lu, J. (2021). Additive manufacturing of structural materials. Materials Science and Engineering: R: Reports 145, 100596, https://doi.org/10.1016/j.mser.2020.100596.

Liu, H., Li, P., Van Lew, J., Juarez-Robles, D. (2012). Experimental study of the flow distribution uniformity in flow distributors having novel flow channel bifurcation structures. Experimental Thermal and Fluid Science, 37, 142-153, https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2011.10.015

Liu, H., Vandu, C.O., Krishna, R. (2005). Hydrodynamics of Taylor Flow in Vertical Capillaries: Flow Regimes, Bubble Rise Velocity, Liquid Slug Length, and Pressure Drop. Industrial & Engineering Chemistry Research, 44(14), 4884-4897, https://doi.org/10.1021/ie049307n

Lockhart, R.W., Martinelli, R.C. (1949). Proposed correlation of data for isothermal two-phase, twocomponent flow in pipes. Chemical Engineering Progress, 45, 39–48.

Mantle, A.J., Sederman, A.J., Gladden, L.F., Raymahasay, S., Winterbottom, J.M, Stitt, E.H. (2002). Dynamic MRI visualization of two-phase flow in a ceramic monolith. AIChE Journal, 48(4), 909-912, https://doi.org/10.1002/aic.690480425

Márquez, N., Musterd, M., Castaño, P., Berger, R., Moulijn, J.A., Makkee, M., Kreutzer, M.T. (2010). Volatile tracer dispersion in multi-phase packed beds. Chemical Engineering Science, 65(13), 3972-3985, https://doi.org/10.1016/j.ces.2010.03.031

Marwan, H., Winterbottom, J.M. (2004). The selective hydrogenation of butyne-1,4-diol by supported palladiums: a comparative study on slurry, fixed bed, and monolith downflow bubble column reactors. Catalysis Today 97(3), 325–330, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2004.07.003

Matsuura, A., Akehata, T., Shirai, T. (1976). Axial dispersion of liquid in concurrent gas-liquid downflow in packed beds. Journal of Chemical Engineering of Japan, 9(4), 294-301. https://doi.org/10.1252/jcej.9.294

Meitzner, C., Hilpmann, G., Schäfer, T., Haase, S., Lange, M., Hampel, U. (2017). Homogeneous gas-liquid distribution for monolithic structures via a needle distributor. Chemical Engineering Technology, 40(11), 1953-2156, https://doi.org/10.1002/ceat.201700125

Mewes, D., Loser, T., Millies, M. (1999). Modelling of two-phase flow in packings and monoliths. Chemical Engineering Science, 54(21), 4729–4747, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(99)00190-6

Mong, G.R., Chong, C.T., Chong, W.W.F., Ng, J-H., Ong, H.C., Ashokkumar, V., Manh-Vu Tran, M-V., Karmakar, S., Goh, B.H.G., Yasin, M.F. (2022). Progress and challenges in sustainable pyrolysis technology: Reactors, feedstocks and products. Fuel, 324, 124777, https://doi.org/10.1016/j.fuel.2022.124777

Natividad R., Cruz-Olivares J., Fishwick R.P., Wood J., Winterbottom J.M. (2007). Scaling-out selective hydrogenation reactions: from single capillary reactor to monolith. Fuel, 86(9), 1304–1312, https://doi.org/10.1016/j.fuel.2006.12.005

Natividad, R., Kulkarni, R., Nuithitikul, K., Raymahasay, S., Wood, J., Winterbottom, J.M. (2004). Analysis of the performance of single capillary and multiple capillary (monolith) reactors for the multiphase Pd-catalyzed hydrogenation of 2-butyne-1,4-diol. Chemical Engineering Science 59(22-23), 5431–5438, https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.09.011

Niño, V.G., Jassim, E.W., Hrnjak, P.S., Newell, T.A. (2006). Flow-Regime-Based Model for Pressure Drop Predictions in Microchannels. HVAC&R Research, 12(1), 17–34, https://doi.org/10.1080/10789669.2006.10391165

Pangarkar, K., Schildhauer, T.J., Ommen, J.R., Nijenhuis, J., Kapteijn, F., Moulijn, J.A., (2008). Structured packings for multiphase catalytic reactors. Industrial & Engineering Chemistry Research, 47(10), 3720–3751, https://doi.org/10.1021/ie800067r

Parsi, M., Vieira, R.E., Torres, C.F., Kesana, N.R., McLaury, B.S., Shirazi, S.A., Schleicher, E., Hampel, U. (2015). Experimental investigation of interfacial structures within churn flow using a dual wire-mesh sensor. International Journal of Multiphase Flow, 73, 155–170, https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2015.03.019

Pérez, J-P., Carles, R., Fleckinger, R. (2020). Électromagnétisme - Fondements et applications (4th edition). Malakoff: Dunod.

Prasser, H-M., Krepper, E., Lucas, D. (2002). Evolution of the two-phase flow in a vertical tube—decomposition of gas fraction profiles according to bubble size classes using wire-mesh sensors. International Journal of Thermal Sciences, 41(1), 17–28, https://doi.org/10.1016/S1290-0729(01)01300-X

Quan, X., Shi, H., Zhang, Y., Wang, J., Qian, Y. (2003). Biodegradation of 2,4-dichlorophenol in an air-lift honeycomb-like ceramic reactor. Process Biochemistry 38(11), 1545–1551, https://doi.org/10.1016/S0032-9592(03)00046-3

Rocha, M.S., Simões-Moreira, J.R. (2008). Void Fraction Measurement and Signal Analysis from Multiple-Electrode Impedance Sensors. Heat Transfer Engineering, 29(11), 924-935, https://doi.org/10.1080/01457630802186015

Rosso, S., Meneghello, R., Biasetto, L., Grigolato, L., Concheri, G., Savio, G. (2020). In-depth comparison of polyamide 12 parts manufactured by Multi Jet Fusion and Selective Laser Sintering. Additive Manufacturing 36, 101713, https://doi.org/10.1016/j.addma.2020.101713

Roy, S., Al-Dahhan, M. (2005). Flow distribution characteristics of a gas–liquid monolith reactor. Catalysis Today 105(3–4), 396-400, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2005.06.062

Roy, S., Bauer, T., Al-Dahhan, M., Lehner, P., Turek, T. (2004). Monoliths as multiphase Reactors: a review. AIChE Journal, 50(11), 2918-2938, https://doi.org/10.1002/aic.10268

Roy, S., Kamalanathan, P., Al-Dahhan, M. (2019). Integration of phase distribution from gamma-ray tomography technique with monolith reactor scale modeling. Chemical Engineering Science, 200,

27-37, https://doi.org/10.1016/j.ces.2018.12.053
Roy, S., Kamalanathan, P., Lehner, P., Turek, T., Al-Dahhan, M. (2020). Effect of phase maldistribution on performance of two-phase catalytic monolith reactor and its comparison with trickle bed reactor. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 98(1), 294–307, https://doi.org/10.1002/cjce.23617
Saber, M., Huu, T.T., Pham-Huu, C., Edouard, D. (2012). Residence time distribution, axial liquid dispersion and dynamic–static liquid mass transfer in trickle flow reactor containing β-SiC open-cell foams. Chemical Engineering Journal, 185–186, 294-299, https://doi.org/10.1016/j.cej.2012.01.045
Schäfer, T., Meitzner, S., Lange, M., Hampel, U. (2016). A study of two-phase flow in monoliths using ultrafast single-slice X-ray computed tomography. International Journal of Multiphase Flow, 86, 56-66, https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2016.07.008
Schon, J-P., Fournel, T., Fournier, C. (2007). Mesures de caractéristiques d'écoulement par imagerie numérique. Mesures physiques, R2162 V1, https://doi.org/10.51257/a-v1-r2162
Schubert, M., Kost, S., Lange, R., Salmi, T., Haase, S., Hampel, U. (2016). Maldistribution susceptibility of monolith reactors: Case study of glucose hydrogenation performance. AIChE Journal 62(12), 4346-4364, https://doi.org/10.1002/aic.15334
Schutt, B.D., Serrano, B., Cerro, R.L., Abraham, M.A. (2002). Production of chemicals from cellulose and biomass-derived compounds through catalytic sub-critical water oxidation in a monolith reactor. Biomass & Bioenergy 22(5), 365–375, https://doi.org/10.1016/S0961-9534(02)00010-7
Sederman, A.J., Heras, J.J., Mantle, M.D., Gladden, L.F. (2007). MRI strategies for characterising two-phase flow in parallel channel ceramic monoliths. Catalysis Today, 128(1–2), 3–12, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2007.04.012
Sepasgozar, S.M.E., Shi, A., Yang, L., Shirowzhan, S., Edwards, D.J (2020). Additive Manufacturing Applications for Industry 4.0: A Systematic Critical Review, Buildings, 10(12), 231, https://doi.org/10.3390/buildings10120231
Shao, N., Gavriilidis, A., Angeli, P. (2009). Flow regimes for adiabatic gas-liquid flow in microchannels. Chemical Engineering Science, 64(11), 2749–2761, https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.01.067
Shao, N., Gavriilidis, A., Angeli, P. (2010). Mass transfer during Taylor flow in microchannels with and without chemical reaction. Chemical Engineering Journal, 160(3), 873−881, https://doi.org/10.1016/j.cej.2010.02.049
Sievers, D.A., Stickel, J.J. (2018). Modeling residence-time distribution in horizontal screw hydrolysis reactors. Chemical Engineering Science, 175, 396-404, https://doi.org/10.1016/j.ces.2017.10.012
Sobieszuk, P., Aubin, J., Pohorecki, R. (2012). Hydrodynamics and Mass Transfer in Gas-Liquid Flows in Microreactors. Chemical Engineering & Technology, 35(8), 1346−1358, https://doi.org/10.1002/ceat.201100643
Stec, M., Synowiec, P.M. (2017). Study of fluid dynamic conditions in the selected static mixers part II - determination of the residence time distribution. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 95(12), 2410-2422, https://doi.org/10.1002/cjce.22879
Taylor, G.I. (1961). Deposition of a viscous fluid on the wall of a tube. Journal of Fluid Mechanics, 10(2), 161-165, https://doi.org/10.1017/S0022112061000159
Thulasidas, T.C., Abraham, M.A., and Cerro, R.L. (1997). Flow patterns in liquid slugs during bubble-train flow inside capillaries. Chemical Engineering Science, 52(17), 2947-2962, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(97)00114-0
Thulasidas, T.C., Abraham, M.A., Cerro, R.L. (1995). Bubble-train flow in capillaries of circular and square cross section. Chemical Engineering Science, 50(2), 183-199, https://doi.org/10.1016/0009-2509(94)00225-G
Thulasidas, T.C., Abraham, M.A., Cerro, R.L. (1999). Dispersion during bubble-train flow in capillaries. Chemical Engineering Science, 54(1), 61-76, https://doi.org/10.1016/S0009-2509(98)00240-1
Thulasidas, T.C., Cerro, R.L., Abraham, M.A. (1995). The monolith froth reactor: residence time modelling and analysis, Transactions IChemE, 73, 314-319.
Tiwari, A., Maheshwari, A., Rajesh, V.M., Singh, K.B. (2019). Experimental characterization of gas-liquid flows in splitting distributor for parallel micro-channels. Chemical Engineering Journal, 377, 120602, https://doi.org/10.1016/j.cej.2018.12.062
Tompkins, C., Prasser, H-Mi., Corradini, M. (2018). Wire-mesh sensors: A review of methods and uncertainty in multiphase flows relative to other measurement techniques. Nuclear Engineering and

Design, 337, 205–220, https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2018.06.005
Trachsel, F., Günther, A., Khan, S., Jensen, K. F. (2005). Measurement of residence time distribution in microfluidic systems. Chemical Engineering Science, 60(21), 5729-5737, https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.04.039
Tsaoulidis, D., Angeli, P. (2014). Effect of channel size on mass transfer during liquid-liquid plug flow in small scale extractors. Chemical Engineering Journal, 262, 785-793, https://doi.org/10.1016/j.cej.2014.10.012
van Baten, J.M., Krishna, R. (2004). CFD simulations of mass transfer from Taylor bubbles rising in circular capillaries. Chemical Engineering Science, 59(12), 2535–2545. https://doi.org/10.1016/j.ces.2004.03.010
van Swaaij, W.P.M., Charpentier, J.C., Villermaux, J. (1969). Residence time distribution in the liquid phase of trickle flow in packed columns. Chemical Engineering Science, 24(7), 1083-1095, https://doi.org/10.1016/0009-2509(69)80080-1
Vandu, C.O., Ellenberger, J., Krishna, R., (2005). Hydrodynamics and mass transfer in an upflow monolith loop reactor. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 44(3), 363–374, https://doi.org/10.1016/j.cep.2004.05.011
Vashisth, S., Nigam, K. D. P. (2008). Liquid-Phase Residence Time Distribution for Two-Phase Flow in Coiled Flow Inverter. Industrial & Engineering Chemistry Research, 47 (10), 3630-3638, https://doi.org/10.1021/ie070447h
Velasco Peña, H.F., Rodriguez, O.M.H. (2015). Applications of wire-mesh sensors in multiphase flows. Flow Measurement and Instrumentation, 45, 255–273, https://doi.org/10.1016/j.flowmeasinst.2015.06.024
Villermaux, J. (1993). Génie de la Réaction Chimique. Conception et fonctionnement des réacteurs, 2 édition. Tec □□Doc Lavoisier, Paris.
Visconti, C.G., Tronconi, E., Groppi, G., Lietti, L., Iovane, M., Rossini, S., Zennaro, R. (2011). Monolithic catalysts with high thermal conductivity for the Fischer-Tropsch synthesis in tubular reactors. Chemical Engineering Journal, 171(3), 1294–1307, https://doi.org/10.1016/j.cej.2011.05.014
Wang, X., Tian, B., Wang, C., Wu, J. (2017). Mathematical modelling of residence time distribution in tubular loop reactors. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 95(6), 1101-1108, https://doi.org/10.1002/cjce.22736
Wen, D.S., Kenning, D.B.R. (2004). Two-phase pressure drop of water during flow boiling in a vertical narrow channel. Experimental Thermal and Fluid Science, 28(2-3), 131–138, https://doi.org/10.1016/S0894-1777(03)00031-1
Wiedemann, P., de Assis Dias, F., Trepte, M., Schleicher, E., Hampel, U. (2023). Towards Real-Time Analysis of Gas-Liquid Pipe Flow: A Wire-Mesh Sensor for Industrial Applications. Sensors, 23(8), 4067, https://doi.org/10.3390/s23084067
Winterbottom M., Marwan H., Natividad R. (2003). Selectivity, hydrodynamics and solvent effects in a monolith cocurrent downflow contactor (CDC) reactor. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 81(3–4), 838–845, https://doi.org/10.1002/cjce.5450810367
Winterbottom, J.M., Marwan, H., Stitt, E.H., Natividad, R. (2003). The palladium catalysed hydrogenation of 2-butyne-1,4-diol in a monolith bubble column reactor. Catalysis Today, 79–80, 391–399, https://doi.org/10.1016/S0920-5861(03)00069-5
Wojewodka, P., Aranowski, R., Jungnickel, C. (2019). Residence time distribution in rapid multiphase reactors. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 69, 370-378, https://doi.org/10.1016/j.jiec.2018.09.037
Xu, M., Huang, H., Zhan, X., Liu, H., Ji, S., Li, C. (2009). Pressure drop and liquid hold-up in multiphase monolithic reactor with different distributors. Catalysis Today, 147, 132–137, https://doi.org/10.1016/j.cattod.2009.07.025
Xu, M., Liu, H., Li, C., Zhou, Y., Ji, S. (2011). Connection between liquid distribution and gas-liquid mass transfer in monolithic bed. Chinese Journal of Chemical Engineering, 19(5), 738–746, https://doi.org/10.1016/S1004-9541(11)60051-7
Yang, C.-Y., Shieh, C.-C. (2001). Flow pattern of air–water and two-phase r-134a in small circular tubes. International Journal of Multiphase Flow, 27(7), 1163–1177, https://doi.org/10.1016/S0301-

9322(00)00070-7
Yang, L., Dietrich, N., Loubière, K., Gourdon, C., Hébrard, G. (2016). Visualization and characterization of gas–liquid mass transfer around a Taylor bubble right after the formation stage in microreactors. Chemical Engineering Science 143, 364-368, https://doi.org/10.1016/j.ces.2016.01.013.
Yue, J., Boichot, R., Luo, L., Gonthier, Y., Chen, G., Yuan, Q. (2010). Flow distribution and mass transfer in a parallel microchannel contactor integrated with constructal distributors. AIChE Journal, 56(2), 298317, https://doi.org/10.1002/aic.11991
Yue, J., Chen, G., Yuan, Q., Luo, L., Gonthier, Y. (2007). Hydrodynamics and mass transfer characteristics in gas–liquid flow through a rectangular microchannel. Chemical Engineering Science, 62(7), 2096–2108, https://doi.org/10.1016/j.ces.2006.12.057
Zhou, Y., Al-Dahhan, M., Dudukovic, M., Liu, H. (2012). Effect of Distributor Design on Gas-Liquid Distribution in Monolithic Bed at High Gas/Liquid Ratios. Chinese Journal of Chemical Engineering, 20(4), 693-700, https://doi.org/10.1016/S1004-9541(11)60237-1
Zhou, Y., Al-Dahhan, M., Dudukovic, M., Liu, H. (2012). Effect of distributor design on gas-liquid distribution in monolithic bed at high gas/liquid ratios. Chinese Journal of Chemical Engineering 20, 693–700. https://doi.org/10.1016/S1004-9541(11)60237-1.
Zhou, Y., Al-Dahhan, M., Dudukovic, M., Liu, H. (2012). Effect of Distributor Design on Gas-Liquid Distribution in Monolithic Bed at High Gas/Liquid Ratios. Chinese Journal of Chemical Engineering 20(4), https://doi.org/10.1016/S1004-9541(11)60237-1
Zhou, Y., Dudukovic, M.P., Al-Dahhan, M.H., Liu, H. (2014). Multiphase Hydrodynamics and Distribution Characteristics in a Monolith Bed Measured by Optical Fiber Probe. AIChE Journal, 60(2), 740-748, https://doi.org/10.1002/aic.14269
Zhou, Y., Zhang, Q., Liu, H., Lei, Z. (2012). Measurements and characterization of bubble dynamics in capillary two-phase flows by a micro double-tip conductivity probe. Flow Measurement and Instrumentation, 24, 36-42, https://doi.org/10.1016/j.flowmeasinst.2012.03.001

ANNEXES

A. Annexes concernant les techniques de mesure (chapitres II et III)

Tableau A-1. Protocole de manipulation avec TI et capteur résistif.

Etapes		***Commentaires :***
1	Brancher le câble multiprise sur le tableau électrique et allumer ordinateur, boîtiers, capteur, balance, etc. Brancher le câble de la caméra.	
2	Allumer la multiprise blanche derrière le PC. Allumer l'ordinateur.	
3	Sur l'ordinateur : ouvrir le logiciel du capteur résistif (Matrice CONDUCT V1)	**Logiciel Capteur (Matrice CONDUCT V1) :** Ouvrir logiciel => Sélectionner Board 2 (menu défilant) => Start (lancer enregistrement) => Stop (arrêter au bout de 1 min) => Sauvegarder.
4	Sur l'ordinateur : ouvrir le logiciel de la caméra. Vérifier la configuration de prise de vues : 15000 images et 1000 Hz.	**Logiciel Caméra (PCC 2.8) :** Ouvrir logiciel => Sélectionner Menu live => Sélectionner caméra « 20513 »
5	Ouvrir des vannes d'arrivée d'eau et d'air	
6	Ouvrir le débitmètre gaz à la graduation max (graduation 150 mm) - mettre assez de pression de gaz pour empêcher le liquide de rentrer dans les chambres de gaz.	
7	Ajuster la pression gaz au manomètre (à 1 **bar rel-> 2 bar absolu**) au débit maximum - mettre assez de pression de gaz pour empêcher le liquide de rentrer dans les chambres de gaz.	
8	Mesurer la température de l'air.	
9	Ouvrir la purge liquide (tuyau connecté à la chambre liquide)	
10	Ouvrir le débitmètre liquide au max (graduation 60 mm) - d'abord la vanne bleue à côté du débitmètre, puis le débitmètre. Une fois la chambre liquide complètement remplie, laisser purger les bulles à travers la purge liquide.	Lecture au plateau orange le plus large
11	Puis boucher la purge, et en même temps diminuer le débit liquide à la graduation 40 mm	
12	Ajuster la pression de gaz au manomètre (à **1,5 bar absolu**).	Lecture au milieu du ménisque ; entre 0,089 et 8 ; laisser à 3 avant de passer au débit liquide
13	Imposer sur les débitmètres les conditions souhaitées (**d'abord gaz - du plus haut débit au plus bas -, puis liquide - du plus bas au plus haut**). Cet ordre est ainsi réalisé afin d'éviter une augmentation brusque de pression et donc des fuites.	**Pour passer d'un débit gaz petit à un plus haut**, il faut d'abord augmenter la pression du manomètre vers 1 bar, puis régler le débitmètre au débit souhaité et à pression 0,5 bar. On fait dans cet ordre afin d'éviter une variation brusque sur le manomètre à 0 bar (pas d'air => chambre gaz noyée avec d'eau).

14	Attendre **5 min** pour que le régime permanent d'écoulement soit atteint.	
15	Vérifier si tout va bien dans le distributeur (pas de bulles dans les chambres liquide, pas de liquide dans les chambres gaz, pas des fuites au niveau des joints et brides).	
16	Dans le logiciel du capteur (Matrice CONDUCT V1), sélectionner colonne C3 (pour mieux visualiser l'échelle du graphe tension f(t)).	
17	Lancer l'enregistrement du capteur et de la caméra en même temps : dans le logiciel de la caméra, cliquer sur "Capture" ; dans le logiciel du capteur, cliquer sur "Start". Faire cela le plus rapidement possible. Au bout de 15 s, la caméra a fini l'enregistrement des images.	
18	Au bout de **1 min**, cliquer sur "Stop" pour arrêter le capteur et sauvegarder les données dans un fichier sous le nom "**L**XXX**G**XXX_**essai**X.dat" (exemple : **L040G150_essai1.dat**.)	**Logiciel Capteur (Matrice CONDUCT V1) :** Stop (arrêter au bout de 1 min) => Sauvegarder.
19	Dans le logiciel de la caméra, passer au menu "XXX" et sélectionner les images de 1 à 15000 avec les flèches. Ensuite, cliquer sur "Sauvegarder". Choisir type du fichier "Windows BPM 8 bits". Enregistrer les images sous le nom "LXXXGXXX+5" (exemple : **L040G150+5**) - le +5 sert à compter les images de 1 à 99999 (5 chiffres).	
20	En attendant l'enregistrement des images (~5 min), faire l'empotage d'eau pendant 1 min, et puis la pesée. Noter la masse pesée.	
21	Faire le reste des essais pour la même condition (étapes 16-20).	
22	Ensuite, répéter les étapes 13-20 pour d'autres conditions.	

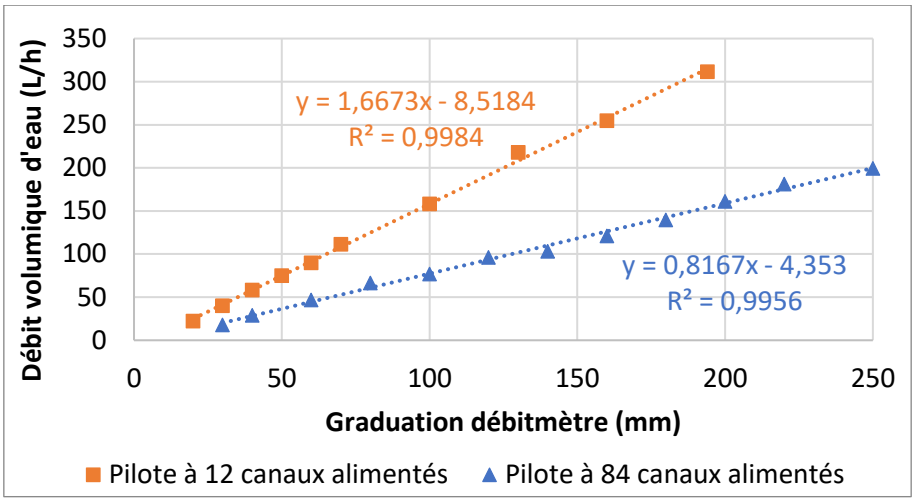


Figure A-1. Courbe d'étalonnage du débitmètre à flotteur liquide Brooks® GT1024 ; mesures de débit volumique d'eau obtenues à température ambiante et pression atmosphérique.

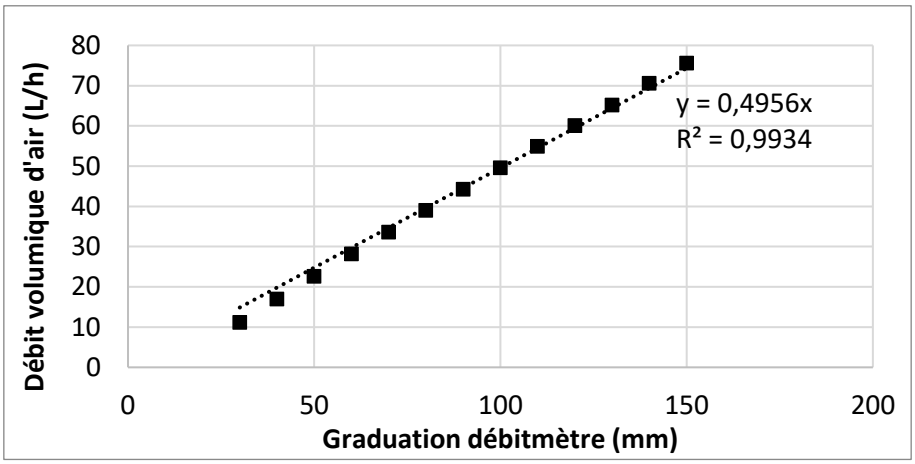


Figure A-2. Courbe d'étalonnage du débitmètre à flotteur Brooks® Sho-Rate 1355G (tube R-2-15-D) ; mesures de débit volumique d'air obtenues à température ambiante et pression atmosphérique.

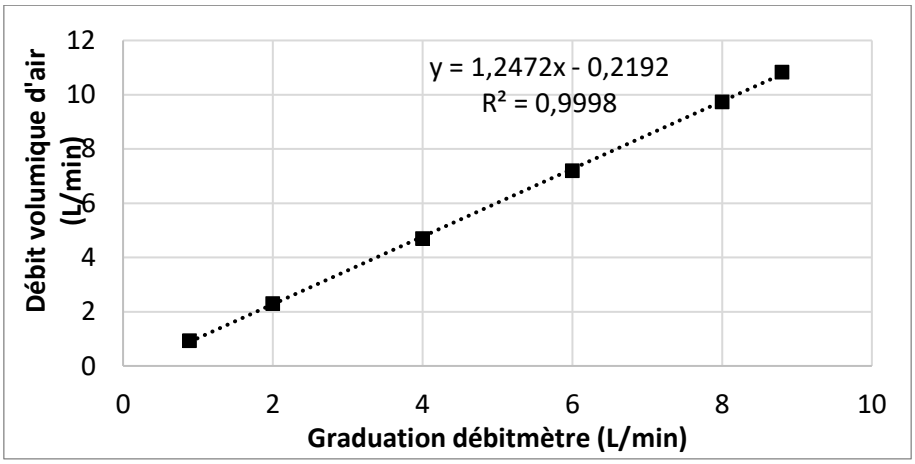


Figure A-3. Courbe d'étalonnage du débitmètre à flotteur Brooks® Sho-Rate 1355G (tube R-6-15-AG) ; mesures de débit volumique d'air obtenues à température ambiante et pression atmosphérique.

Caractéristiques hydrodynamiques mesurées par ombroscopie (traitement d'images) pour la validation de cette technique, ainsi que celle du capteur résistif (voir Chapitre III)

Tableau A-2. Mesures de vitesse des bulles U_b pour expériences en 12 canaux, obtenues par traitement d'images.

N° exp. / Canal	Vitesse des bulles U_b (m/s)													
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Moyenne	Ecart-type
1	0,31	0,30	0,29	0,29	0,31	0,33	0,30	0,33	0,32	0,33	0,33	0,34	0,32	0,02
2	0,51	0,50	0,48	0,52	0,49	0,49	0,48	0,50	0,48	0,48	0,48	0,50	0,49	0,01
3	0,71	0,69	0,60	0,66	0,66	0,62	0,62	0,63	0,60	0,60	0,59	0,62	0,63	0,04
4	0,38	0,35	0,36	0,34	0,37	0,39	0,36	0,39	0,37	0,38	0,39	0,40	0,37	0,02
5	0,61	0,55	0,52	0,53	0,54	0,55	0,53	0,55	0,54	0,54	0,54	0,55	0,55	0,02
6	0,76	0,72	0,63	0,69	0,85	0,67	0,64	0,68	0,64	0,63	0,63	0,67	0,69	0,07
7	0,43	0,42	0,42	0,41	0,42	0,43	0,42	0,43	0,42	0,43	0,43	0,45	0,43	0,01
8	0,56	0,51	0,49	0,49	0,51	0,53	0,50	0,54	0,51	0,51	0,52	0,54	0,52	0,02
9	0,84	0,70	0,77	0,72	0,87	0,76	0,69	0,76	0,70	0,68	0,68	0,73	0,74	0,06
10	0,53	0,53	0,51	0,50	0,53	0,52	0,53	0,54	0,52	0,54	0,53	0,55	0,53	0,01
11	0,62	0,60	0,57	0,56	0,59	0,61	0,59	0,62	0,59	0,60	0,61	0,62	0,60	0,02
12	0,79	0,78	0,76	0,75	0,85	0,81	0,76	0,82	0,78	0,77	0,78	0,83	0,79	0,03

Tableau A-3. Mesures de taux de vide ε_G pour expériences en 12 canaux, obtenues par traitement d'images.

N° exp. / Canal	Taux de vide ε_G (-)													
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Moyenne	Ecart-type
1	0,53	0,53	0,51	0,53	0,49	0,45	0,50	0,46	0,48	0,46	0,45	0,45	0,49	0,03
2	0,68	0,69	0,66	0,74	0,65	0,60	0,65	0,61	0,63	0,61	0,60	0,60	0,64	0,04
3	0,74	0,75	0,68	0,74	0,70	0,65	0,70	0,65	0,69	0,65	0,63	0,64	0,68	0,04
4	0,40	0,42	0,40	0,43	0,39	0,38	0,39	0,38	0,40	0,38	0,37	0,36	0,39	0,02
5	0,60	0,62	0,55	0,59	0,54	0,52	0,55	0,53	0,55	0,52	0,51	0,51	0,55	0,04
6	0,67	0,69	0,59	0,67	0,67	0,57	0,59	0,59	0,60	0,57	0,55	0,57	0,61	0,05
7	0,36	0,35	0,34	0,35	0,33	0,33	0,34	0,33	0,35	0,32	0,32	0,32	0,34	0,01
8	0,49	0,47	0,46	0,47	0,45	0,45	0,46	0,44	0,46	0,45	0,44	0,43	0,46	0,02
9	0,66	0,58	0,63	0,61	0,64	0,57	0,55	0,61	0,58	0,54	0,54	0,52	0,59	0,04
10	0,30	0,29	0,30	0,31	0,30	0,30	0,30	0,31	0,31	0,29	0,29	0,28	0,30	0,01
11	0,43	0,40	0,40	0,41	0,41	0,40	0,39	0,41	0,41	0,40	0,41	0,40	0,41	0,01
12	0,53	0,51	0,51	0,53	0,56	0,51	0,50	0,53	0,52	0,51	0,52	0,51	0,52	0,01

Tableau A-4. Mesures de fréquence des bulles f_b pour expériences en 12 canaux, obtenues par traitement d'images.

N° exp. / Canal	Fréquence des bulles f_b (Hz)													
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Moyenne	Ecart-type
1	49	49	49	50	51	55	51	53	54	55	54	54	52	2
2	66	62	63	55	63	68	66	67	67	70	68	67	65	4
3	62	57	65	57	78	67	63	64	66	67	67	66	65	6
4	73	69	73	69	74	74	73	74	74	77	74	75	73	2
5	87	78	88	83	86	90	89	88	89	91	90	88	87	4
6	83	78	90	81	83	92	89	85	91	94	93	89	87	5
7	95	95	97	93	96	96	95	97	95	98	94	96	96	1
8	105	105	105	104	103	105	105	105	104	106	103	104	104	1
9	89	96	88	93	93	96	101	96	102	106	105	103	97	6
10	120	121	119	122	122	121	121	121	120	125	119	124	121	2
11	121	124	126	124	122	124	125	124	125	128	125	125	124	2
12	114	117	118	118	119	115	118	118	117	120	118	119	117	2

Tableau A-5. Mesures de longueur des bulles L_b pour expériences en 12 canaux, obtenues par traitement d'images.

N° exp. / Canal	Longueur des bulles L_b (m)													
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Moyenne	Ecart-type
1	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,000
2	0,006	0,007	0,006	0,009	0,006	0,006	0,006	0,006	0,006	0,005	0,006	0,006	0,006	0,001
3	0,010	0,011	0,008	0,011	0,010	0,008	0,009	0,009	0,008	0,008	0,008	0,008	0,009	0,001
4	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,000
5	0,005	0,005	0,004	0,005	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,004	0,000
6	0,008	0,008	0,005	0,007	0,009	0,006	0,006	0,006	0,005	0,005	0,005	0,006	0,006	0,001
7	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,000
8	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,000
9	0,008	0,005	0,007	0,006	0,008	0,006	0,005	0,006	0,005	0,005	0,005	0,005	0,006	0,001
10	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,002	0,000
11	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,003	0,000
12	0,005	0,005	0,004	0,004	0,005	0,005	0,004	0,005	0,005	0,004	0,004	0,005	0,005	0,000

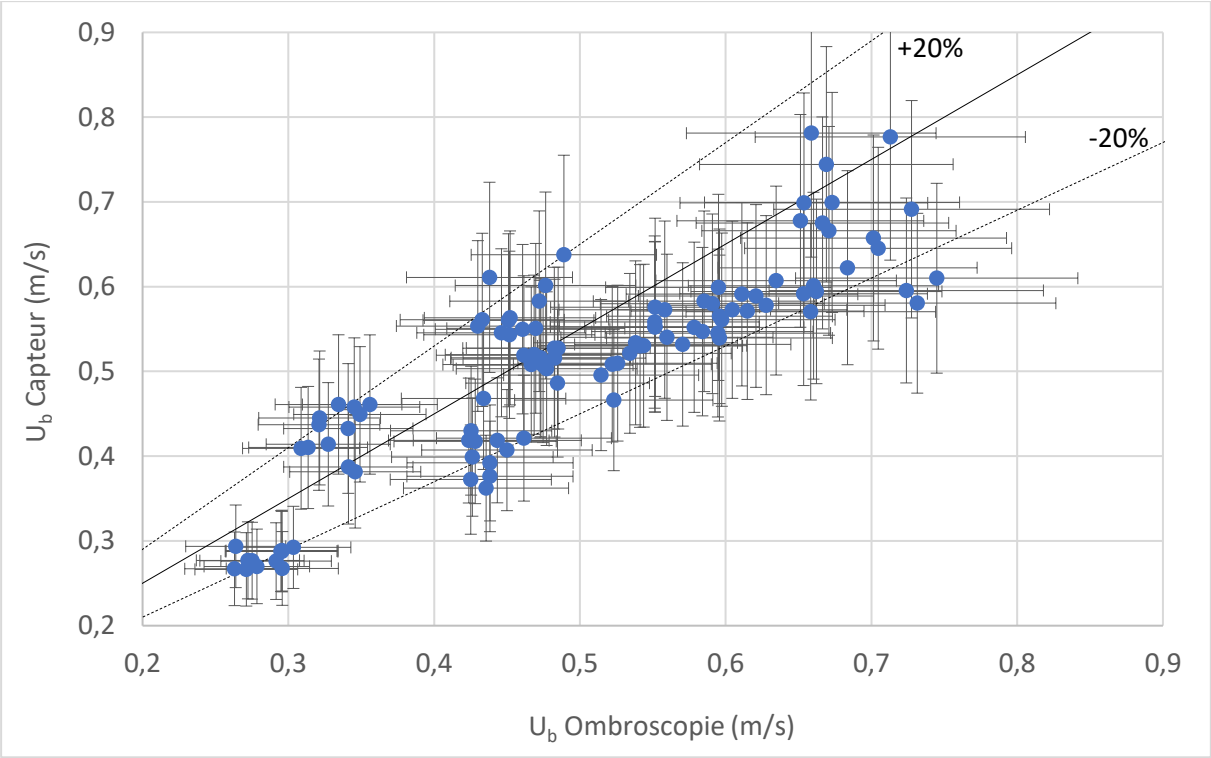


Figure A-4. Validation du capteur résistif : comparaison des mesures de vitesse de bulle par ombroscopie et capteur résistif ; les barres d'erreur correspondent à l'incertitude maximale sur les mesures issues du capteur résistif, de 20%, et à l'incertitude minimale sur les mesures par ombroscopie, de 13,3%.

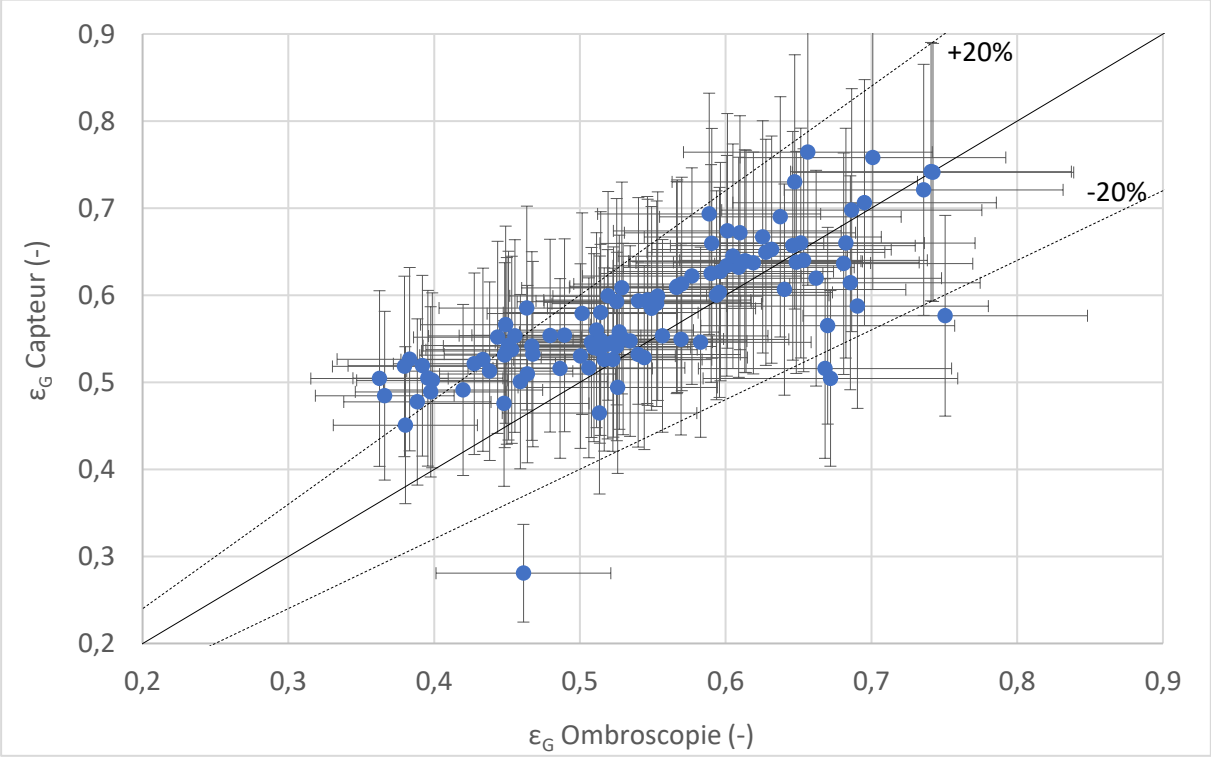


Figure A-5. Validation du capteur résistif : comparaison des mesures de taux de vide par ombroscopie et capteur résistif ; les barres d'erreur correspondent à l'incertitude des mesures issues de l'ombroscopie et du capteur résistif de 15% et de 20%, respectivement.

Comparaison des calculs surfacique et volumique de taux de vide par ombroscopie (traitement d'images)

Tableau A-6. Mesures de taux de vide ε_G via les calculs surfacique (aires projetées) et volumique (théorème de Guldin), obtenues par traitement d'images.

Schéma de la cellule unitaire	Rapport surfacique (aires projetées)		Rapport volumique (théorème de Guldin)		Rapport V/S
	Moyenne (-)	Ecart type (-)	Moyenne (-)	Ecart type (-)	
	0,49	0,09	0,56	0,10	**1,13**
	0,43	0,06	0,49	0,08	**1,13**
	0,57	0,03	0,64	0,02	**1,14**
	0,46	0,07	0,52	0,09	**1,14**
	0,48	0,11	0,55	0,14	**1,14**
	0,36	0,02	0,41	0,03	**1,13**
	0,60	0,06	0,69	0,04	**1,16**
	0,55	0,01	0,64	0,03	**1,16**
	0,55	0,13	0,62	0,12	**1,13**
	0,57	0,09	0,63	0,08	**1,12**
	0,28	0,03	0,32	0,04	**1,11**

B. Annexes du Chapitre IV

Influence du matériau du distributeur sur l'écoulement à 12 canaux

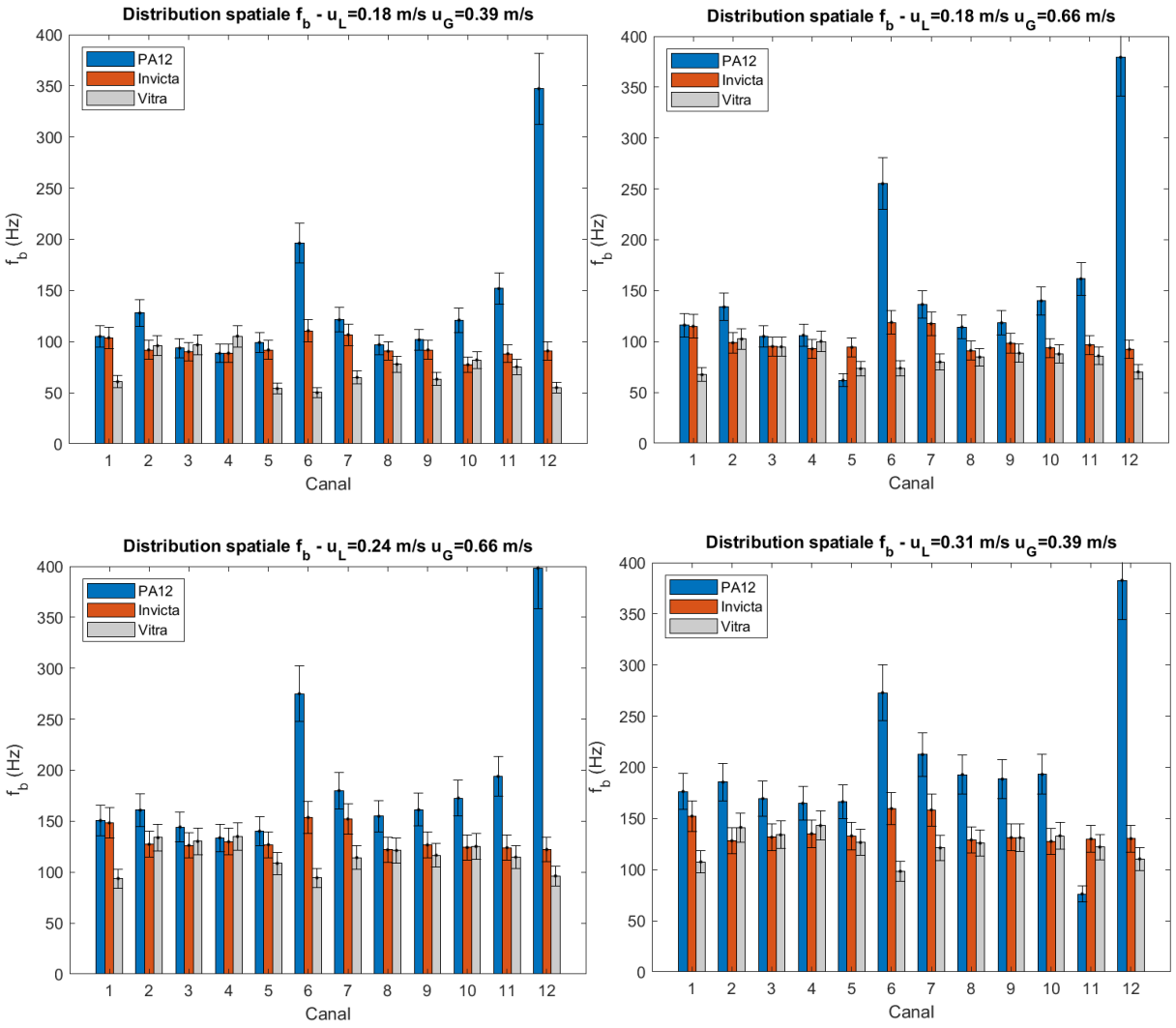


Figure B-1. Distribution spatiale de fréquence de passage de bulles pour les résines PA12, Invicta et Vitra dans les 4 conditions opératoires testées. Les barres d'erreur correspondent à la précision du capteur résistif de 10% pour f_b.

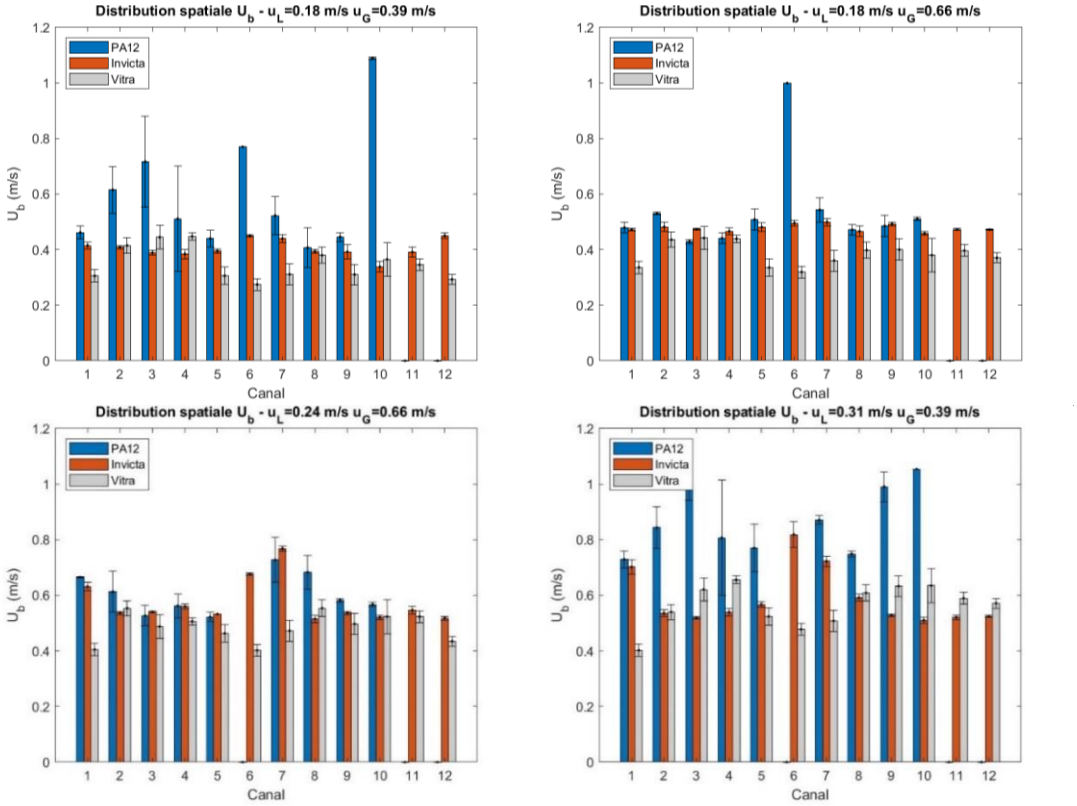


Figure B-2. Distribution spatiale de vitesse de bulles pour les résines PA12, Invicta et Vitra dans les 4 conditions opératoires testées. Les barres d'erreur correspondent à la précision du capteur résistif de 20% pour U_b.

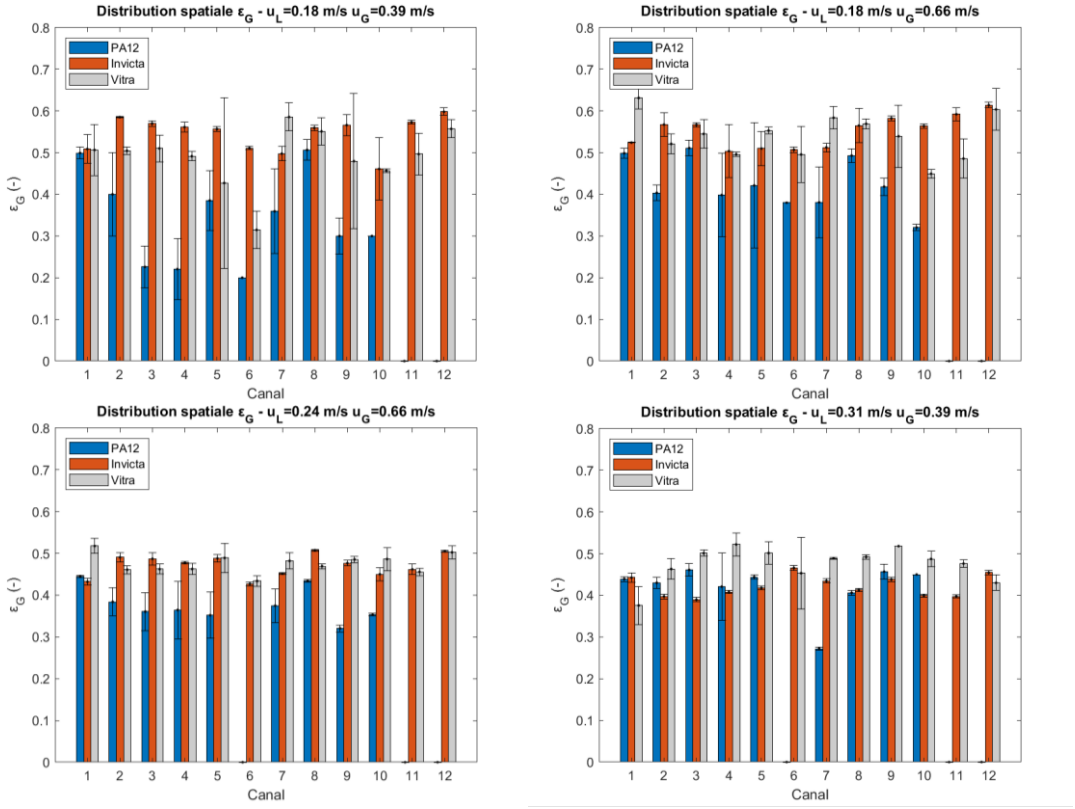


Figure B-3. Distribution spatiale de taux de gaz pour les résines PA12, Invicta et Vitra dans les 4 conditions opératoires testées. Les barres d'erreur correspondent à la précision du capteur résistif de 20% pour ε_G.

Influence de la géométrie du distributeur (diamètre d'orifice des jonctions en T) sur l'écoulement à 12 canaux

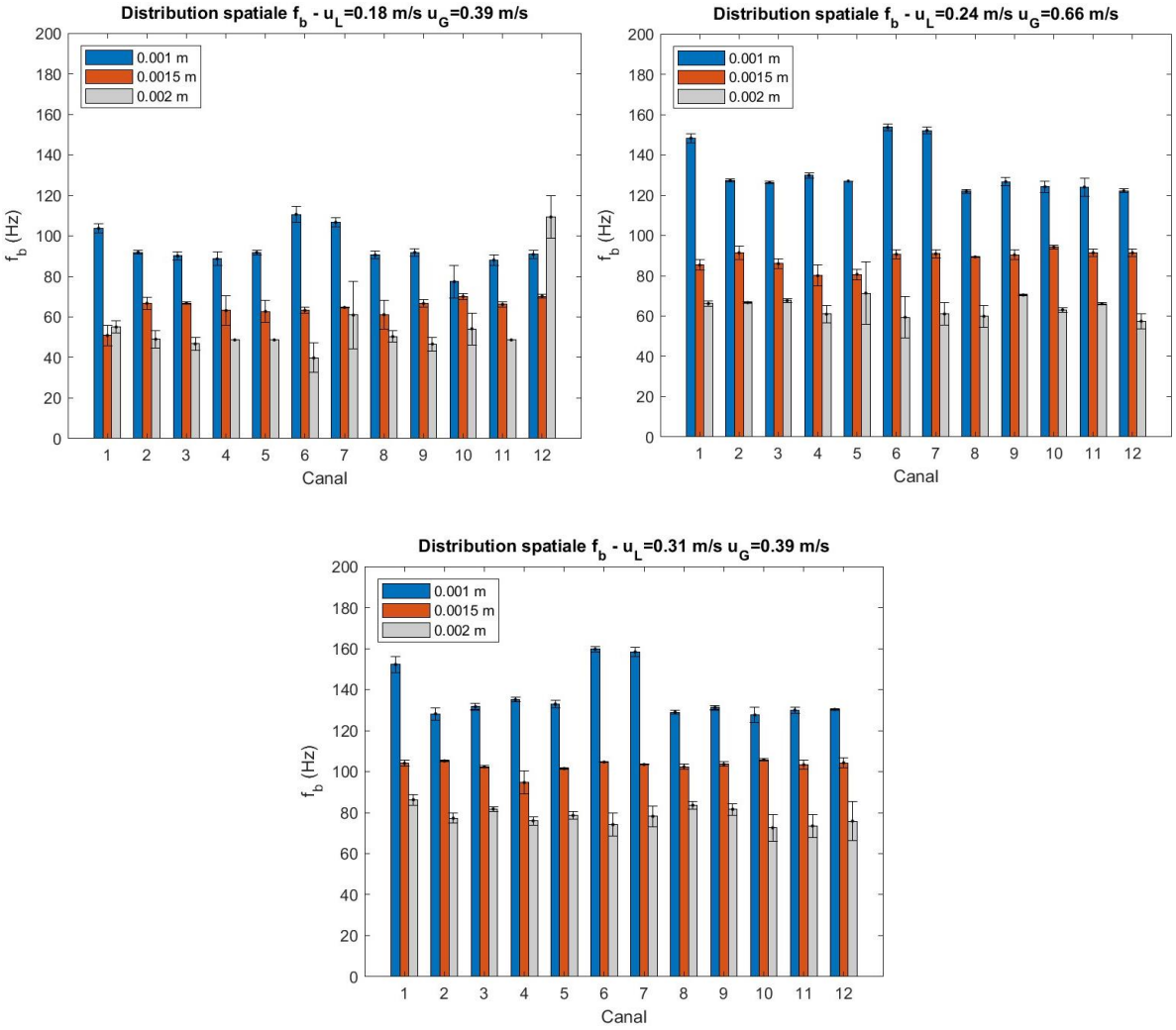


Figure B-4. Distribution spatiale de fréquence de passage de bulles pour les 3 diamètres d'orifice dans les 3 conditions opératoires testées. Les barres d'erreur correspondent à la précision du capteur résistif de 10% pour f_b.

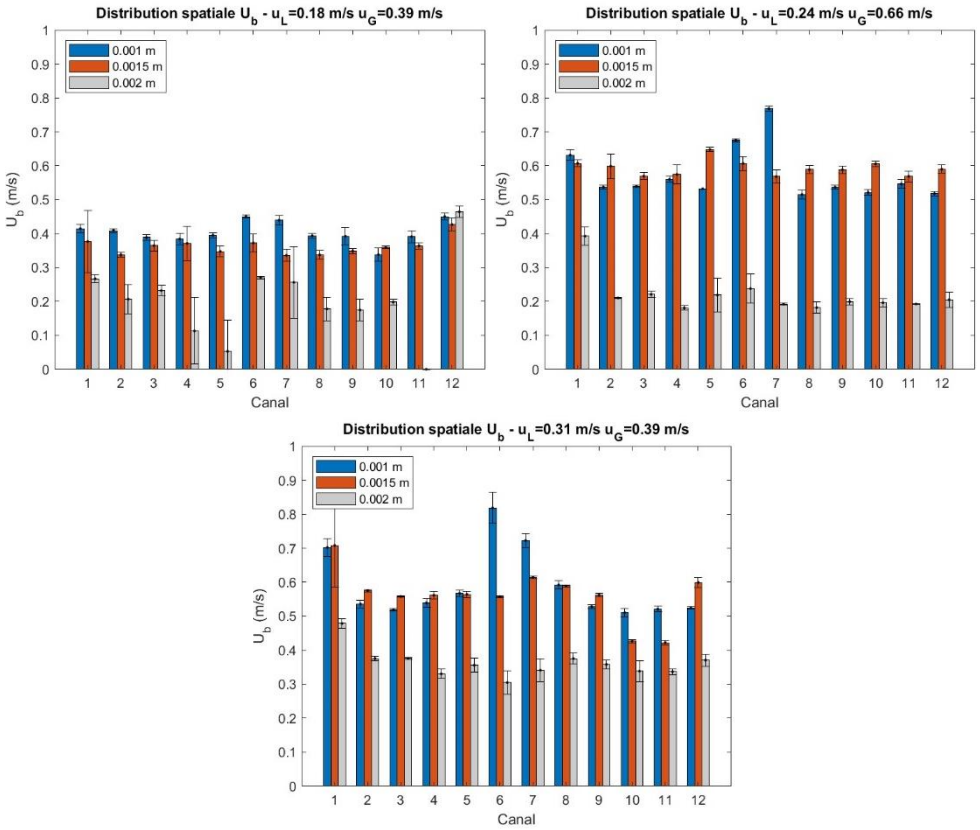


Figure B-5. Distribution spatiale de taux de gaz les 3 diamètres d'orifice dans les 3 conditions opératoires testées. Les barres d'erreur correspondent à la précision du capteur résistif de 20% pour U_b.

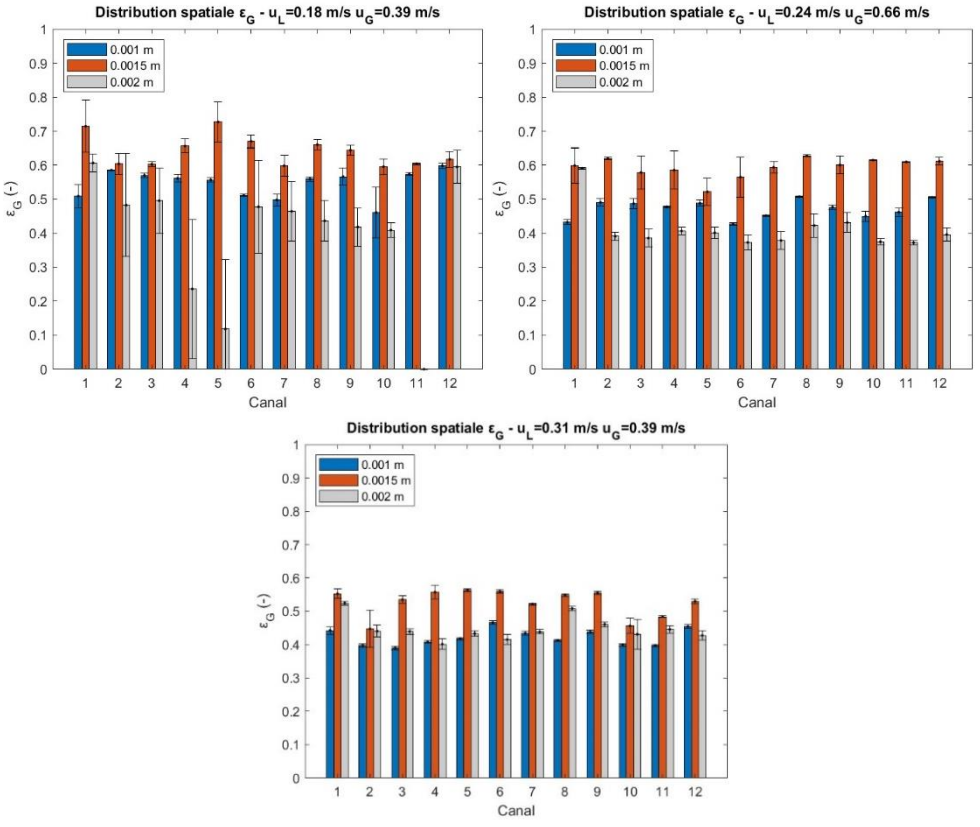


Figure B-6. Distribution spatiale de vitesse de bulles les 3 diamètres d'orifice dans les 3 conditions opératoires testées. Les barres d'erreur correspondent à la précision du capteur résistif de 20% pour ε_G.

C. Annexes du Chapitre V

Tableau C-1. Résultats des temps de séjour moyen et variance pour les simulations réalisées dans l'analyse de sensibilité aux paramètres du modèle.

N° simulation	Conditions			Résultats	
	Pe_{PDE} (-)	N (-)	ϕ (-)	Temps de séjour moyen (s)	Variance (s^2)
1	10	0,01	0,9	2,53	13,34
2	10	0,01	0,75	2,75	38,48
3	10	0,01	0,5	3,09	87,31
4	10	0,1	0,9	2,49	2,33
5	10	0,1	0,75	3,01	11,21
6	10	0,1	0,5	4,63	88,33
7	10	1	0,9	2,48	1,09
8	10	1	0,75	3,08	2,99
9	10	1	0,5	4,75	13,65
10	50	0,01	0,9	0,49	0,42
11	50	0,01	0,75	0,54	1,45
12	50	0,01	0,5	0,57	3,23
13	50	0,1	0,9	0,49	0,06
14	50	0,1	0,75	0,59	0,41
15	50	0,1	0,5	0,93	4,07
16	50	1	0,9	0,50	0,01
17	50	1	0,75	0,60	0,06
18	50	1	0,5	1,00	1,55
19	100	0,01	0,9	0,25	0,13
20	100	0,01	0,75	0,27	0,36
21	100	0,01	0,5	0,28	0,80
22	100	0,1	0,9	0,25	0,01
23	100	0,1	0,75	0,30	0,10
24	100	0,1	0,5	0,46	1,01
25	100	1	0,9	0,25	0,00
26	100	1	0,75	0,30	0,01
27	100	1	0,5	0,44	0,09

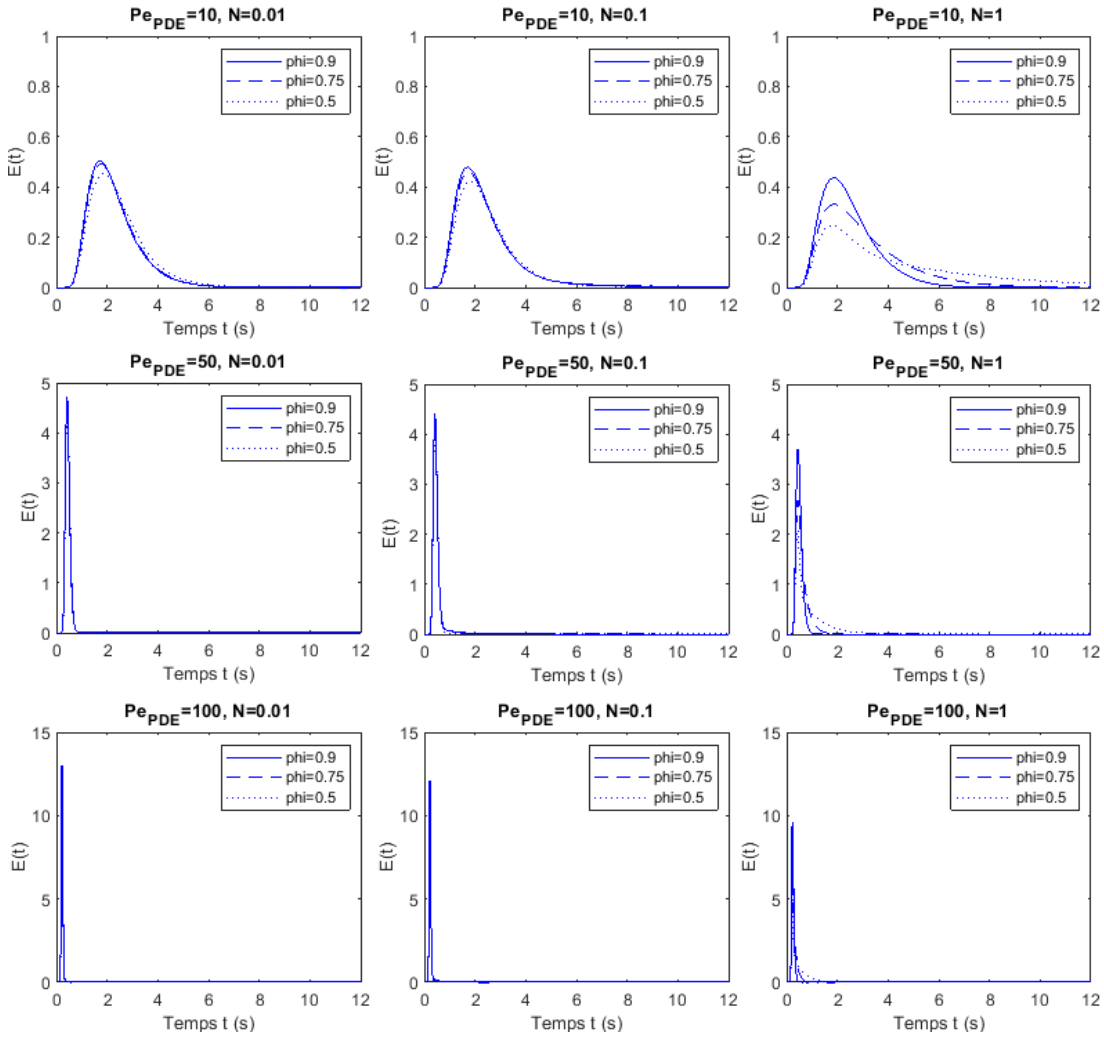


Figure C-1. Courbes DTS sous forme dimensionnelle, produites dans l'étude de la sensibilité du modèle PDE aux paramètres Pe_{PDE}, N et ϕ.

Tableau C-2. Vitesses de bulles U_b (m/s) mesurées par le traitement d'images pour les expériences réalisées en traçage de sel, utilisées pour l'étude des distributions de phases sur le degré de mélange.

	N° expérience													
Canal	**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**	**11**	**12**	**13**	**14**
1	0,30	0,52	0,69	0,38	0,61	0,76	0,44	0,57	0,83	0,53	0,63	0,79	0,35	0,66
2	0,28	0,51	0,70	0,36	0,55	0,75	0,41	0,51	0,73	0,52	0,60	0,78	0,45	0,91
3	0,30	0,50	0,59	0,36	0,52	0,62	0,42	0,49	0,86	0,51	0,57	0,78	0,48	0,96
4	0,31	0,52	0,70	0,34	0,53	0,70	0,41	0,49	0,77	0,50	0,57	0,76	0,67	0,59
5	0,31	0,50	0,68	0,36	0,54	0,84	0,42	0,51	0,88	0,52	0,60	0,84	0,39	0,88
6	0,33	0,50	0,62	0,39	0,55	0,67	0,43	0,54	0,74	0,52	0,61	0,83	0,48	0,60
7	0,29	0,48	0,62	0,36	0,53	0,64	0,42	0,50	0,70	0,53	0,60	0,76	0,40	0,53
8	0,32	0,50	0,64	0,39	0,55	0,68	0,43	0,54	0,79	0,53	0,62	0,82	0,48	0,85
9	0,32	0,48	0,60	0,37	0,54	0,63	0,42	0,51	0,69	0,52	0,59	0,78	0,58	0,84
10	0,33	0,48	0,60	0,38	0,53	0,63	0,43	0,52	0,69	0,54	0,60	0,77	0,45	0,78
11	0,33	0,49	0,60	0,39	0,54	0,62	0,44	0,53	0,69	0,54	0,61	0,78	0,42	0,61
12	0,34	0,51	0,62	0,40	0,55	0,67	0,46	0,54	0,74	0,55	0,62	0,83	0,53	0,63

Tableau C-3. Vitesses des phases u_{TP} (m/s) déduit du traitement d'images pour les expériences réalisées en traçage de sel, utilisées pour l'étude des distributions de phases sur le degré de mélange.

	N° expérience													
Canal	**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**	**11**	**12**	**13**	**14**
1	0,27	0,46	0,60	0,34	0,53	0,66	0,39	0,50	0,72	0,46	0,55	0,69	0,31	0,58
2	0,26	0,45	0,61	0,32	0,48	0,65	0,37	0,45	0,63	0,46	0,52	0,68	0,40	0,78
3	0,27	0,44	0,52	0,32	0,46	0,54	0,37	0,43	0,74	0,45	0,50	0,67	0,42	0,82
4	0,28	0,46	0,61	0,31	0,47	0,61	0,37	0,43	0,67	0,44	0,50	0,66	0,58	0,52
5	0,28	0,44	0,59	0,32	0,47	0,72	0,37	0,45	0,76	0,46	0,53	0,73	0,35	0,75
6	0,29	0,44	0,54	0,34	0,48	0,58	0,38	0,47	0,64	0,45	0,53	0,71	0,43	0,52
7	0,26	0,43	0,54	0,32	0,46	0,56	0,37	0,44	0,61	0,46	0,52	0,66	0,35	0,47
8	0,29	0,44	0,56	0,35	0,48	0,59	0,38	0,47	0,69	0,47	0,54	0,71	0,42	0,73
9	0,29	0,43	0,53	0,33	0,47	0,55	0,37	0,45	0,60	0,46	0,52	0,67	0,51	0,72
10	0,29	0,43	0,53	0,34	0,47	0,55	0,38	0,45	0,60	0,48	0,53	0,67	0,40	0,67
11	0,29	0,43	0,52	0,35	0,47	0,54	0,39	0,46	0,60	0,47	0,53	0,68	0,37	0,53
12	0,30	0,45	0,55	0,35	0,48	0,58	0,40	0,48	0,64	0,48	0,54	0,72	0,47	0,55

.

Tableau C-4. Taux de gaz ε_G mesurées par le traitement d'images pour les expériences réalisées en traçage de sel, utilisées pour l'étude des distributions de phases sur le degré de mélange.

	N° expérience													
Canal	**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**	**11**	**12**	**13**	**14**
1	0,55	0,67	0,71	0,39	0,60	0,64	0,35	0,50	0,63	0,31	0,43	0,52	0,45	0,74
2	0,55	0,69	0,76	0,39	0,61	0,68	0,36	0,47	0,58	0,30	0,40	0,51	0,58	0,86
3	0,47	0,69	0,67	0,39	0,53	0,57	0,33	0,46	0,68	0,31	0,39	0,52	0,67	0,85
4	0,48	0,73	0,76	0,43	0,62	0,68	0,36	0,47	0,64	0,31	0,41	0,53	0,62	0,66
5	0,48	0,64	0,71	0,40	0,53	0,65	0,33	0,45	0,66	0,30	0,41	0,56	0,51	0,79
6	0,45	0,61	0,66	0,38	0,51	0,53	0,33	0,44	0,54	0,30	0,39	0,51	0,43	0,53
7	0,52	0,64	0,70	0,38	0,55	0,55	0,33	0,46	0,55	0,30	0,39	0,50	0,64	0,63
8	0,47	0,61	0,65	0,38	0,52	0,58	0,33	0,44	0,62	0,31	0,41	0,53	0,65	0,78
9	0,49	0,63	0,69	0,39	0,55	0,58	0,35	0,45	0,57	0,32	0,40	0,52	0,76	0,78
10	0,46	0,60	0,66	0,38	0,52	0,55	0,32	0,45	0,53	0,30	0,39	0,51	0,50	0,78
11	0,45	0,59	0,64	0,36	0,50	0,52	0,32	0,44	0,53	0,29	0,40	0,52	0,58	0,66

Tableau C-5. Fréquence de passage de bulles f_b (s^{-1}) mesurées par le traitement d'images pour les expériences réalisées en traçage de sel, utilisées pour l'étude des distributions de phases sur le degré de mélange.

	N° expérience													
Canal	**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**	**11**	**12**	**13**	**14**
1	47	68	65	72	85	81	96	105	92	121	120	114	102	128
2	48	60	55	72	79	76	94	103	94	123	121	118	89	102
3	53	57	66	73	87	92	95	105	78	120	126	118	77	104
4	54	55	54	69	78	76	89	104	87	122	124	118	69	148
5	52	65	57	72	88	84	95	100	91	121	123	119	121	117
6	54	68	68	75	91	94	96	105	101	121	128	113	206	242
7	49	66	63	73	89	87	95	105	99	121	125	118	100	172
8	52	67	65	73	88	81	96	105	88	123	124	118	94	125
9	53	67	67	75	90	94	96	105	104	119	124	117	76	123
10	54	70	67	77	92	94	99	107	107	126	127	120	74	129
11	53	69	67	73	90	95	95	103	106	120	124	118	111	152
12	53	68	66	74	89	89	97	104	104	127	125	119	252	376

Tableau C-6. Longueurs de bulles L_b (m) mesurées par le traitement d'images pour les expériences réalisées en traçage de sel, utilisées pour l'étude des distributions de phases sur le degré de mélange.

	N° expérience													
Canal	**1**	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**	**11**	**12**	**13**	**14**
1	0,004	0,006	0,009	0,003	0,005	0,008	0,002	0,004	0,007	0,002	0,003	0,005	0,002	0,005
2	0,004	0,007	0,012	0,003	0,005	0,009	0,002	0,003	0,006	0,002	0,003	0,005	0,004	0,012
3	0,004	0,008	0,008	0,003	0,004	0,005	0,002	0,003	0,009	0,002	0,003	0,005	0,006	0,011
4	0,004	0,008	0,012	0,003	0,005	0,008	0,002	0,003	0,007	0,002	0,003	0,004	0,012	0,003
5	0,004	0,006	0,011	0,003	0,004	0,009	0,002	0,003	0,008	0,002	0,003	0,005	0,003	0,007
6	0,004	0,006	0,008	0,003	0,004	0,005	0,002	0,003	0,005	0,002	0,003	0,005	0,002	0,002
7	0,004	0,006	0,009	0,003	0,004	0,006	0,002	0,003	0,005	0,002	0,003	0,004	0,003	0,002
8	0,004	0,006	0,008	0,003	0,004	0,007	0,002	0,003	0,007	0,002	0,003	0,005	0,004	0,006
9	0,004	0,006	0,008	0,003	0,004	0,005	0,002	0,003	0,005	0,002	0,003	0,005	0,007	0,006
10	0,004	0,005	0,008	0,003	0,004	0,005	0,002	0,003	0,004	0,002	0,003	0,004	0,004	0,005
11	0,004	0,006	0,008	0,003	0,004	0,005	0,002	0,003	0,005	0,002	0,003	0,005	0,003	0,003
12	0,004	0,006	0,008	0,003	0,004	0,006	0,002	0,003	0,005	0,002	0,003	0,005	0,001	0,001

Tableau C-7. Paramètre $k_i a_i$ (s^{-1}) du modèle PDE pour les 12 canaux pour les 9 cas de maldistribution théorique.

Canal	N° cas								
	1	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**
1	0,86	0,91	0,91	1,04	0,69	0,98	0,98	0,53	0,57
2	0,86	0,86	0,97	0,97	0,56	0,86	1,12	0,66	0,42
3	0,86	0,91	0,91	1,02	0,63	0,98	0,98	0,57	0,50
4	0,86	0,81	0,81	0,56	0,86	0,76	0,76	1,71	0,86
5	0,86	0,91	0,91	0,97	0,41	0,98	0,98	0,66	0,28
6	0,86	0,91	1,02	0,91	0,49	0,98	1,28	0,76	0,35
7	0,86	0,81	0,81	0,75	1,16	0,76	0,76	1,12	2,01
8	0,86	0,81	0,69	0,59	1,25	0,76	0,57	1,58	2,95
9	0,86	0,91	0,97	0,99	0,91	0,98	1,12	0,62	0,98
10	0,86	0,81	0,69	0,63	0,81	0,76	0,57	1,47	0,76
11	0,86	0,86	0,86	1,09	1,20	0,86	0,86	0,46	2,40
12	0,86	0,81	0,75	0,69	1,06	0,76	0,66	1,28	1,47

Tableau C-8. Paramètre ϕ_i du modèle PDE pour les 12 canaux pour les 9 cas de maldistribution théorique.

Canal	N° cas								
	1	**2**	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**
1	0,91	0,90	0,90	0,89	0,92	0,91	0,91	0,91	0,91
2	0,91	0,91	0,89	0,89	0,94	0,91	0,91	0,91	0,91
3	0,91	0,90	0,90	0,89	0,93	0,91	0,91	0,91	0,91
4	0,91	0,91	0,91	0,94	0,91	0,91	0,91	0,91	0,91
5	0,91	0,90	0,90	0,89	0,96	0,91	0,91	0,91	0,91
6	0,91	0,90	0,89	0,90	0,95	0,91	0,91	0,91	0,91
7	0,91	0,91	0,91	0,92	0,88	0,91	0,91	0,91	0,91
8	0,91	0,91	0,92	0,93	0,87	0,91	0,91	0,91	0,91
9	0,91	0,90	0,89	0,89	0,90	0,91	0,91	0,91	0,91
10	0,91	0,91	0,92	0,93	0,91	0,91	0,91	0,91	0,91
11	0,91	0,91	0,91	0,88	0,87	0,91	0,91	0,91	0,91
12	0,91	0,91	0,92	0,92	0,88	0,91	0,91	0,91	0,91

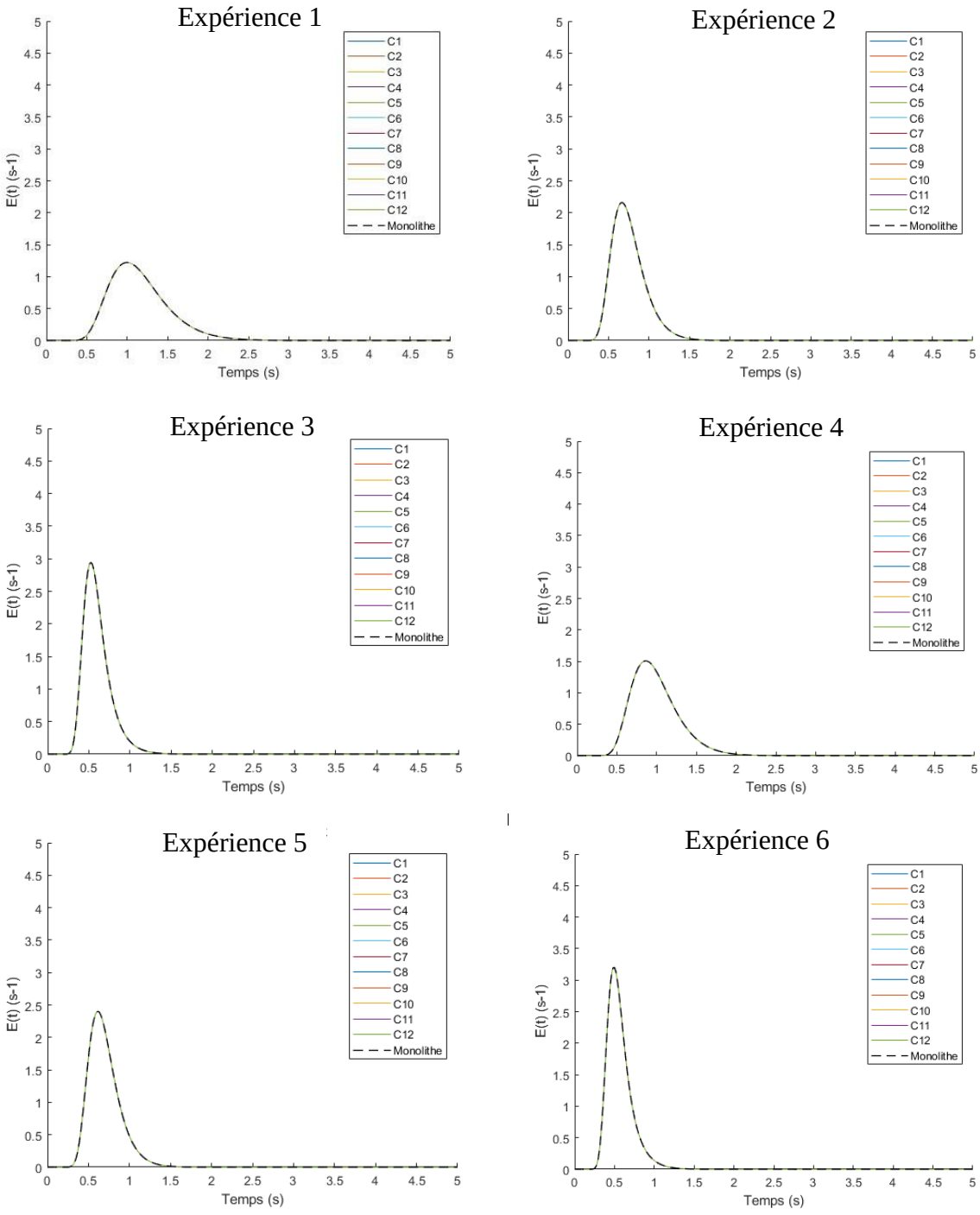
Tableau C-9. Valeurs des vitesses de bulles, taux de gaz et coefficients volumétriques de transfert gaz-liquide pour les 12 canaux de la distribution théorique n°5.

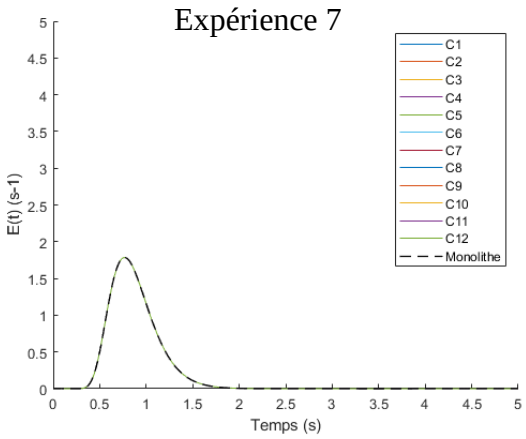
Canal	U_B (m/s)	ε_G (-)	$k_{L,d,i}a_{d,i}$	$k_{L,st,i}a_{st,i}$
1	0,42	0,44	0,53	2,33E-04
2	0,29	0,45	0,46	1,67E-04
3	0,36	0,45	0,50	2,00E-04
4	0,61	0,44	0,62	3,32E-04
5	0,17	0,46	0,36	1,01E-04
6	0,23	0,45	0,41	1,34E-04
7	1,00	0,43	0,77	5,27E-04
8	1,13	0,42	0,81	5,93E-04
9	0,67	0,44	0,65	3,64E-04
10	0,54	0,44	0,60	2,99E-04
11	1,06	0,42	0,79	5,60E-04
12	0,86	0,43	0,72	4,62E-04

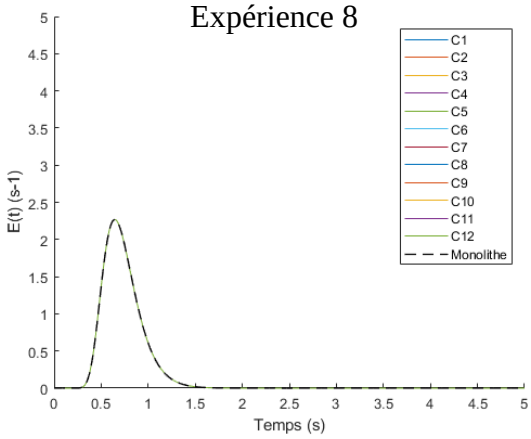
Tableau C-10. Valeurs des vitesses de bulles, taux de gaz et coefficients volumétriques de transfert gaz-liquide pour les 12 canaux de la distribution théorique n°9.

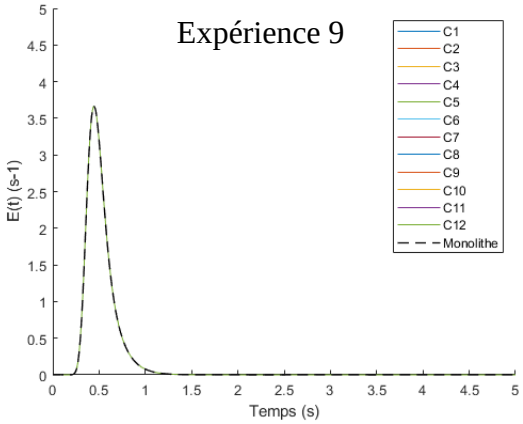
Canal	U_B (m/s)	ε_G (-)	$k_{L,d,i}a_{d,i}$	$k_{L,st,i}a_{st,i}$
1	0,61	0,31	0,35	1,88E-04
2	0,61	0,22	0,22	1,19E-04
3	0,61	0,26	0,29	1,52E-04
4	0,61	0,44	0,62	3,32E-04
5	0,61	0,13	0,12	6,44E-05
6	0,61	0,17	0,17	9,05E-05
7	0,61	0,70	1,87	9,94E-04
8	0,61	0,79	2,97	1,58E-03
9	0,61	0,48	0,74	3,96E-04
10	0,61	0,39	0,52	2,77E-04
11	0,61	0,74	2,33	1,24E-03
12	0,61	0,61	1,27	6,74E-04

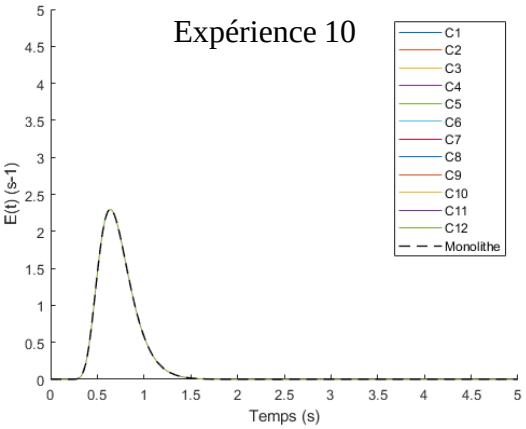
Figure C-2. Courbes DTS obtenues pour des mesures hydrodynamiques obtenues expérimentalement, en considérant une distribution des phases uniforme.

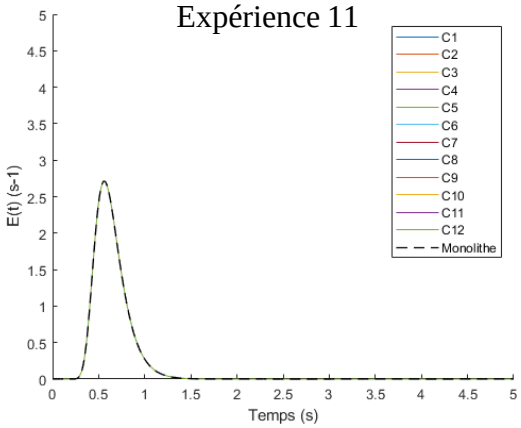


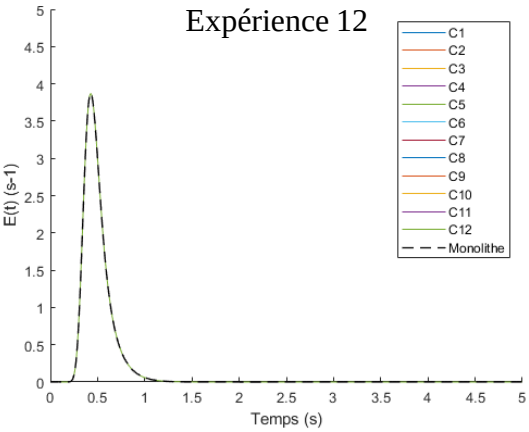

Expérience 7
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe

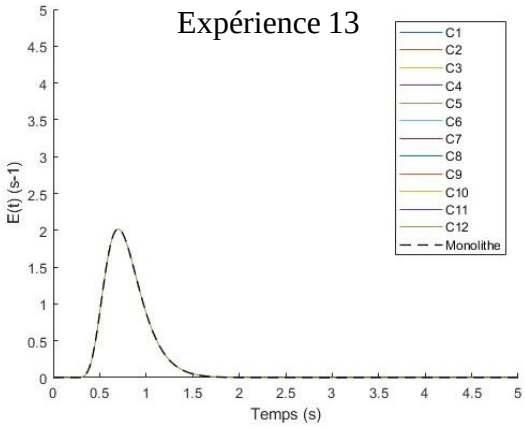

Expérience 8
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 9
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 10
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 11
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 12
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 13
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe

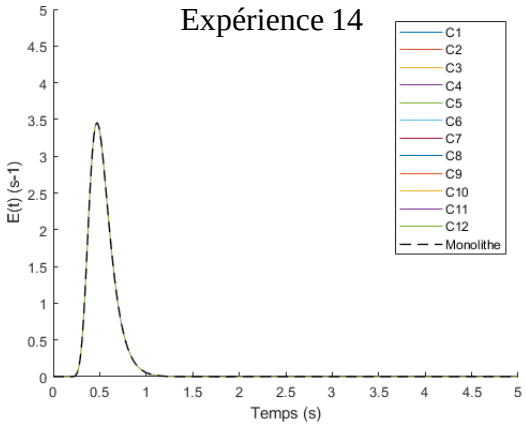
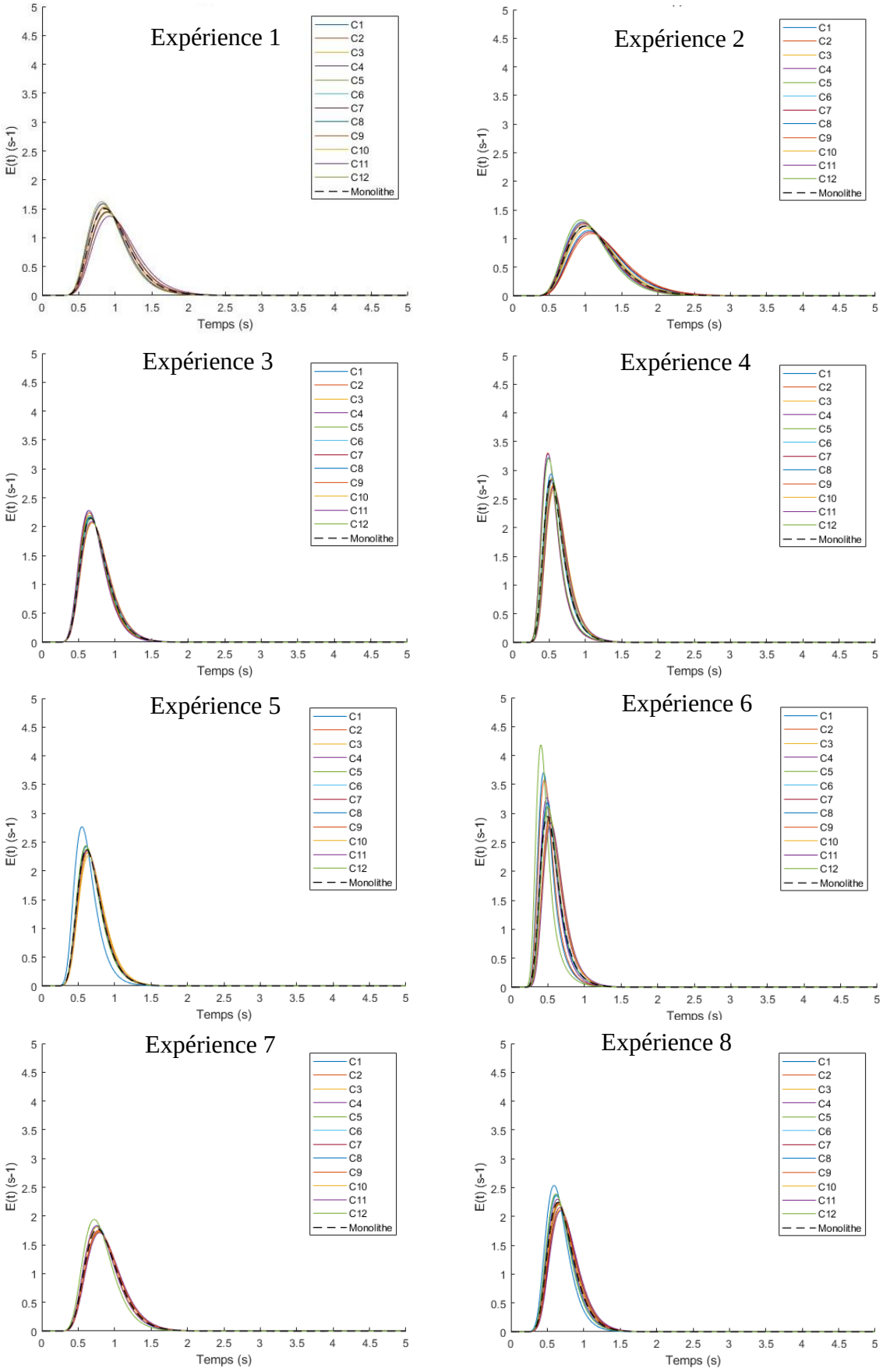
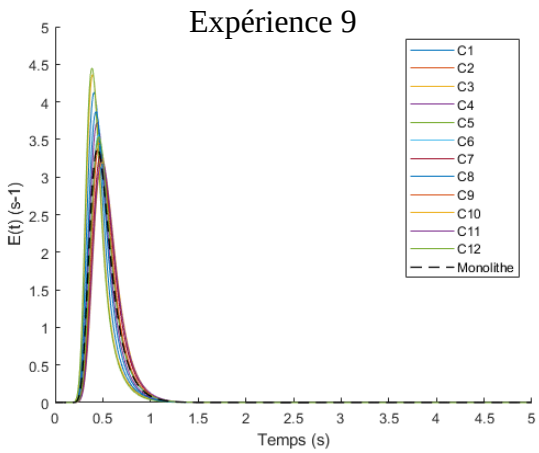
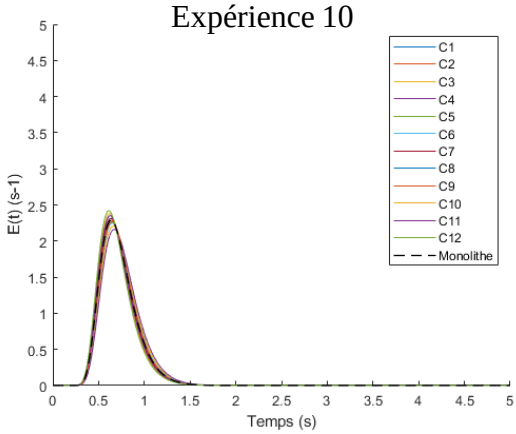
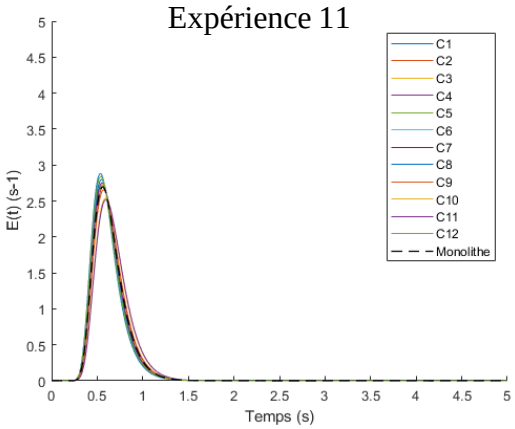

Expérience 14
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe

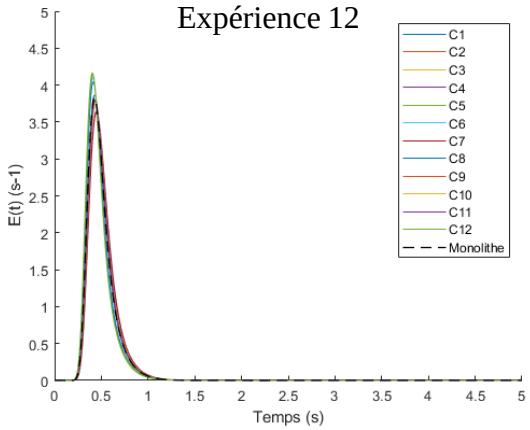
Figure C-3. Courbes DTS obtenues pour des mesures hydrodynamiques obtenues expérimentalement, en tenant compte de la maldistribution des phases dans les canaux.

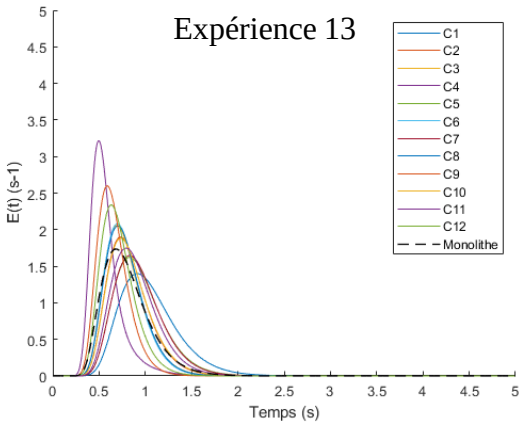


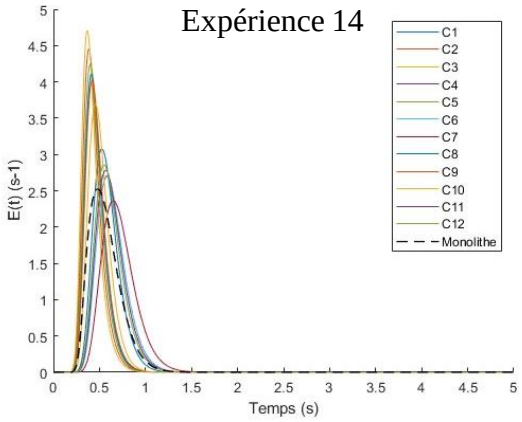

Expérience 9
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 10
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 11
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 12
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 13
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe


Expérience 14
E(t) (s-1)
Temps (s)
C1
C2
C3
C4
C5
C6
C7
C8
C9
C10
C11
C12
Monolithe

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
Liberté
Égalité
Fraternité

Université de Toulouse

Titre : Vers une meilleure distribution des fluides dans les réacteurs polyphasiques

Mots clés : Réacteur gaz-liquide, Réacteur monolithe, Maldistribution, Ecoulement de Taylor, Traitement de signal, Distribution de Temps de Séjour

Résumé : La maldistribution des phases dans les réacteurs millistructurés de type monolithe est un inconvénient majeur pour les réactions gaz-liquide, qui freine le déploiement de cette technologie à l'échelle industrielle. En effet, ce problème est d'autant plus gênant pour les réacteurs monolithes, qui sont plus efficaces que les réacteurs classiques pour les réactions catalytiques si la distribution des fluides est uniforme.
Afin de résoudre ce problème, un distributeur gaz-liquide original avec une géométrie basée sur une jonction en T, et conçu au LGC pour un monolithe à 84 canaux, a été construit par fabrication additive (stéréolithographie) et testé avec un système air-eau.
Pour caractériser la distribution de gaz et de liquide effectuée, un capteur résistif spécifique a été développé, qui permet de mesurer la fréquence des bulles, la vitesse des bulles et la rétention de gaz dans tous les canaux simultanément. Cet outil est constitué de circuits imprimés et de 84 paires d'électrodes, qui délivrent à haute résolution temporelle la résistivité équivalente du mélange gaz-liquide traversant chaque canal. Le capteur a été évalué avec une précision de ± 10 % pour la fréquence des bulles et de ± 20 % pour la rétention de gaz et la vitesse des bulles, par référence à l'ombroscopie, utilisée comme technique de référence.
Des essais expérimentaux ont été réalisés pour plusieurs régimes d'écoulement avec le distributeur innovant et le capteur spécifique. Elles ont été comparées à celles réalisées avec un distributeur conventionnel, de technologie basée sur des plateaux perforés. Un critère combinant la fréquence des bulles et l'existence d'un écoulement gaz-liquide dans les canaux est choisi pour évaluer la maldistribution. Le distributeur proposé présente une distribution des fluides plus homogène que celui du distributeur conventionnel, avec une maldistribution de 20% pour tous les régimes, à l'exception du régime à bulles (32%). Ainsi, le distributeur conventionnel donne en moyenne une maldistribution de 61%.
Pour le distributeur innovant, l'impact du matériau et de sa rugosité, l'impact de la géométrie interne du distributeur, ainsi que la stabilité des flux distribués tout au long des canaux monolithiques, ont été étudiés.
Parallèlement, une approche de distribution du temps de séjour est proposée pour modéliser le comportement global de l'écoulement - quantifier la dispersion - au sein du monolithe. Pour des couples donnés de débits globaux de gaz et de liquide, cette approche combine la représentation DTS de l'écoulement de Taylor – attendu au sein des canaux – et la maldistribution observée en sortie du distributeur (ou à l'entrée du monolithe). Pour des maldistributions allant jusqu'à 20 % sur la vitesse de bulles et/ou le taux de gaz et, le degré de mélange est augmenté jusqu'à 60 % pour le nombre de Péclet or jusqu'à 160 % pour le coefficient de dispersion axiale, par rapport à ceux d'une distribution uniforme de débits équivalents.
Le modèle DTS résultant peut ensuite être couplé à une cinétique de réaction afin de prédire l'avancement de la réaction à la sortie du réacteur, et permet d'explorer l'impact de maldistributions réalistes sur les performances du réacteur. Pour des maldistributions allant jusqu'à 20% sur la vitesse de bulles et/ou le taux de gaz et en considérant une cinétique de réaction de pseudo premier ordre couplée au transfert de masse d'un réactif issu de la phase gaz, la performance du réacteur est réduite d'un facteur pouvant atteindre 20%, par rapport à une distribution uniforme.

Title: Toward a better fluid distribution in multiphase reactors

Key words: Gas-liquid reactor, Monolith reactor, Maldistribution, Taylor flow, Signal processing, Residence Time Distribution

Abstract: Maldistribution of phases in milli-structured reactors of monolith type is a major drawback for gas-liquid reactions, which hinders the deployment of this technology on industrial scale. Indeed, this problem is all the more troublesome for monolith reactors, which are more efficient than conventional reactors for catalytic reactions if the fluid distribution is uniform.
In order to solve this problem, an original gas-liquid distributor with a T-junction based geometry, previously designed in the laboratory for an 84-channel monolith, has been built by additive manufacturing (stereolithography), and tested with air-water system.
To characterize the performed gas and liquid distribution, a specific sensor was developed, which allows measuring bubble frequency, bubble velocity, and gas holdup simultaneously in all channels. This tool consists of printed circuit boards and 84 pairs of electrodes, which deliver at high temporal resolution the equivalent resistivity of the gas-liquid mixture passing through each channel. The sensor was assessed with an accuracy of ± 10% for bubble frequency and of ± 20% for gas holdup and bubble velocity, with respect to the shadowgraphy as reference technique.
Experimental essays have been carried out for several flow regimes with the innovative distributor and the specific sensor. They were compared to those performed with a conventional one of showerhead type. A criterion combining bubble frequency and the occurrence of gas-liquid flow is chosen to assess maldistribution. The proposed distributor is found to induce a more homogeneous distribution than the showerhead one, with a maldistribution of 20% for all regimes, except for bubbly flows (32%). The showerhead distributor gives an average of 61% of maldistribution.
For the innovative distributor, the impact of the material and its roughness, the impact of the inner distributor geometry, as well as the stability of the distributed flows all along the monolith channels are investigated.
Alongside, a Residence Time Distribution approach is proposed to model the overall flow behaviour - i.e. to quantify its dispersion - within the monolith. For a given set of gas and liquid global flow rates, this approach combines the RTD representation of the Taylor flow – which is expected within the channels – and the observed maldistribution at distributor outlet (or at monolith inlet). For experimental maldistributions of up to 20% for bubble velocity and/or gas holdup, mixing degree is increased by up to 60% for the Peclet number (or by up to 160% for the axial dispersion coefficient), as compared to a uniform distribution.
The resulting RTD model can then be coupled to reaction kinetics in order to predict the reaction yield at reactor outlet, and allows exploring the impact of realistic maldistributions onto the reactor performance. For experimental maldistributions of up to 20% for bubble velocity and/or gas holdup and considering a pseudo first-order reaction kinetics with gas-liquid mass transfer, the reactor yield is reduced by up to 20%, as compared to a uniform distribution.