



**HAL**  
open science

## Validité des milieux modèles pour étudier les procédés gaz-liquide industriels

Hélène Chaumat, Anne-Marie Billet, Frédéric Augier, Corinne Mathieu, Henri  
Delmas

► **To cite this version:**

Hélène Chaumat, Anne-Marie Billet, Frédéric Augier, Corinne Mathieu, Henri Delmas. Validité des milieux modèles pour étudier les procédés gaz-liquide industriels. *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 2007, 95. hal-04775406

**HAL Id: hal-04775406**

**<https://hal.science/hal-04775406v1>**

Submitted on 10 Nov 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.

## **VALIDITE DES MILIEUX MODELES POUR ETUDIER LES PROCEDES GAZ-LIQUIDE INDUSTRIELS**

CHAUMAT Hélène<sup>a</sup>, BILLET-DUQUENNE Anne-Marie<sup>a</sup>,  
AUGIER Frédéric<sup>b</sup>, MATHIEU Corinne<sup>b</sup> et DELMAS Henri<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Laboratoire de Génie Chimique  
5, rue Paulin Talabot – B.P. 1301 – 31106 Toulouse cedex 1 – France

<sup>b</sup>Rhodia, Centre de Recherches de Lyon  
85, av. des Frères Perret – B.P.62 – 69192 Saint Fons cedex – France

**Résumé.** En colonne à bulles, la nature de la phase liquide a un effet indéniable sur la répartition de la phase gazeuse. Or, pour des raisons pratiques, les milieux de type eau+tensio-actif sont couramment utilisés comme liquide modèle pour simuler les liquides organiques. Il est en effet supposé qu'en supprimant l'effet coalescent de l'eau, il est possible d'approcher le comportement des milieux organiques, mais cette hypothèse n'a jamais été vérifiée. En comparant successivement le comportement d'un solvant (le cyclohexane) à celui de l'eau en colonne à bulles et le comportement de ces deux milieux à celui de solutions d'eau+butanol sur une installation de taille plus réduite, cette étude permet de montrer que cette hypothèse est incorrecte : les distributions de tailles de bulles en eau+butanol sont beaucoup plus stables que celles observées en cyclohexane, ce qui conduit à des distributions de tailles différentes qu'en cyclohexane, et notamment à un diamètre moyen moins élevé et à des distributions de tailles de bulles moins étalées. On peut alors affirmer que les transitions entre régimes de bullage en colonnes ont lieu à des vitesses de gaz différentes pour le cyclohexane et l'eau additivée.

**Mots-clés.** gaz-liquide, colonne à bulles, panache de bulles, tension superficielle, nature du liquide

### **1. INTRODUCTION**

Les colonnes à bulles sont des réacteurs très utilisés dans l'industrie chimique. Dans ces appareils, où la concentration de bulles est généralement élevée, la répartition de la phase gazeuse et la distribution de tailles de bulles sont cruciales puisqu'elles conditionnent le transfert de masse entre les phases, la structure de l'écoulement liquide et par suite le taux de conversion de la réaction. Les propriétés physico-chimiques (viscosité, tension superficielle, densité) ont un grand impact sur le comportement de la dispersion. Cet aspect est donc largement étudié dans la littérature, les milieux analysés se limitant souvent à des solutions aqueuses. Or, les liquides organiques sont plus proches des milieux industriels rencontrés dans l'industrie chimique que les milieux 'eau additivée'. Ces milieux organiques, de manipulation délicate, sont toutefois peu étudiés expérimentalement. La distinction essentielle entre l'eau et les liquides organiques étant la faible coalescence observée en liquide organique du fait d'une tension superficielle plus faible [2-3], il est courant de modéliser expérimentalement les solvants par des milieux modèles du type eau+surfactant, car ce type d'additif tend à diminuer la fréquence de coalescence des bulles. Des comportements similaires sont donc attendus pour les milieux eau+surfactant et les liquides organiques. Il a cependant été mis en évidence par Burckhart et Deckwer [1] et Ozturk et al. [2] que l'effet de la tension superficielle en liquides organiques purs est plus faible que celui observé en solutions additivées. Compte tenu du comportement assez atypique des mélanges [1, 2, 4], il est légitime de s'interroger sur la pertinence des milieux modèles de type eau+surfactant.

Rappelons qu'en colonne à bulles, le régime de bullage homogène est observable dans l'eau à faibles vitesses de gaz (vitesse superficielle de gaz inférieure à 0,04 m/s environ, dans les installations équipées d'un distributeur de gaz percé de petits orifices) ; dans ce régime, les bulles formées au distributeur ont toutes la même taille et montent verticalement à une vitesse donnée sans interaction (pas de coalescence) ; il y a peu de circulation liquide à macro-échelle et les profils radiaux sont relativement plats. A plus fortes vitesses gazeuses, ce régime est déstabilisé et laisse sa place au régime hétérogène dans lequel règnent des macro-circulations liquide et gazeuse ; la distribution des bulles y est large et le diamètre moyen des bulles est gouverné par l'équilibre rupture-coalescence ; les profils radiaux présentent un maximum marqué sur l'axe de la colonne.

Les effets classiquement observés lors de l'ajout de surfactant à l'eau sont essentiellement une diminution de la fréquence de coalescence des bulles et une diminution de la vitesse terminale des bulles [5]. Une plus faible coalescence engendre une diminution de la taille moyenne des bulles, une augmentation du taux de vide [6-7], et un régime de bullage homogène étendu à de plus fortes valeurs de vitesses superficielles de gaz [8] (et donc des profils de taux de vide plus plats [7, 9]). Parasu Veera et al. (2000) [10], dont les mesures ont essentiellement été réalisées en régime hétérogène, observent pour leur part des évolutions axiales des profils de taux de vide différentes en eau et en eau+butanol (concentrations en butanol entre 0,02% et 0,5%vol.) : l'équilibre est établi (il n'y a plus d'évolution axiale) dès H/D=5 en eau alors qu'une hauteur correspondant à H/D=8 est nécessaire en eau+butanol. Cette observation est en accord avec les travaux de Malysa et al. (2005) [5] effectués sur une bulle isolée : en présence de surfactant la bulle formée au distributeur a besoin d'une

distance plus grande pour atteindre sa vitesse terminale. En eau, ou en solutions très concentrées en surfactant, la bulle formée accélère rapidement jusqu'à sa vitesse terminale, alors qu'en présence de faible quantité de surfactant la vitesse des bulles passe par un maximum avant d'atteindre sa vitesse terminale. Les phénomènes observés en eau+surfactant s'expliquent en grande partie par le gradient de tension superficielle observé autour de la bulle qui diminue la mobilité de l'interface (et donc sa vitesse); mais ce phénomène peut, à faible concentration, nécessiter du temps pour se mettre en place à cause de la migration du surfactant [5, 11]. Il est intéressant dans ce cas de parler de tension superficielle dynamique du mélange, grandeur qui permet de déterminer des valeurs de tensions superficielles pour des âges de surface variables [12].

L'enjeu de cette étude est d'évaluer, particulièrement dans les conditions rencontrées industriellement, c'est-à-dire à forte densité de bulles, la pertinence des mélanges eau+additif pour modéliser le comportement des liquides organiques. Le liquide organique de référence utilisé ici est le cyclohexane et les milieux additivés sont des solutions eau+butanol.

## 2. INSTALLATIONS EXPERIMENTALES

Deux installations expérimentales sont utilisées pour cette analyse.

La première est une colonne à bulles de 0,2 m de diamètre et de 1,6 m de hauteur de liquide, dimensions choisies de manière à pouvoir supposer que son comportement est représentatif de celui d'une colonne industrielle, sans toutefois nécessiter la manipulation d'un volume de solvant trop important. Le gaz est injecté en bas de colonne via deux tores concentriques de 0,115 et de 0,160 m de diamètre, percés d'orifices dirigés vers le haut. Deux distributeurs de même pourcentage d'ouverture (0,8%) sont utilisés, percés respectivement de 80 trous de  $d_0=0,001$  m et de 320 trous de  $d_0=0,0005$  m.

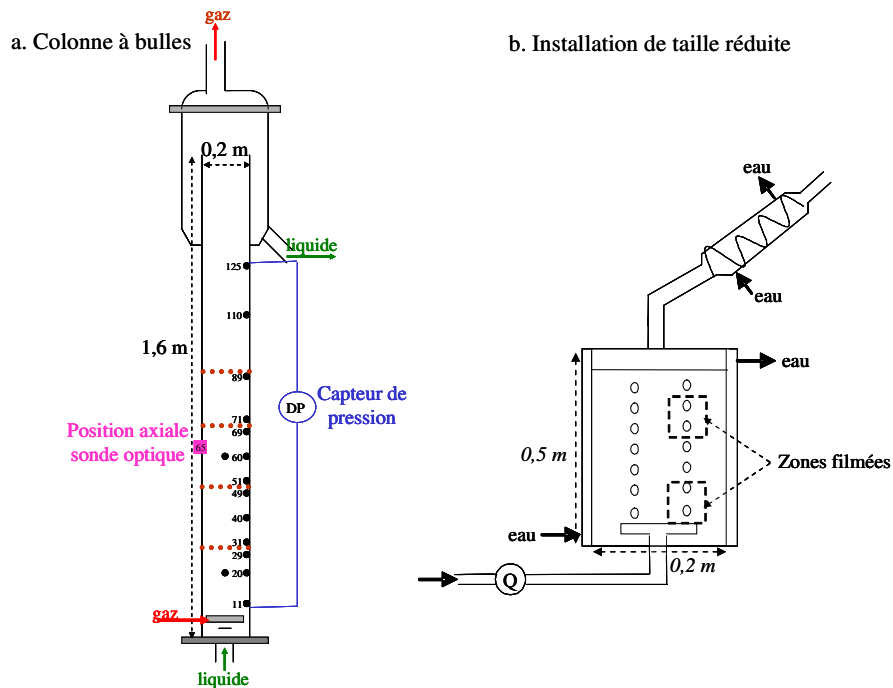


Figure 1 : Installations expérimentales

Les liquides étudiés dans cette colonne sont l'eau et le cyclohexane; l'emploi en colonne d'eau additivée, envisagé dans un premier temps n'a pas abouti du fait de problèmes de moussage. Par ailleurs, il serait délicat d'assurer la répétitivité du mélange en terme de concentration (l'installation est difficile à rincer parfaitement), alors que le taux de vide est très sensible à la concentration en butanol [13]. Pour observer les profils de taux de vide obtenus en eau-butanol pour des concentrations en butanol entre 0,02 et 0,5% vol. dans une installation ayant un distributeur similaire au nôtre, on pourra se référer notamment aux travaux de Parasu Veera et al. [7, 13]. La manipulation du cyclohexane nécessite de nombreuses précautions, car le cyclohexane est agressif, inflammable, volatil, toxique et dangereux pour l'environnement (COV). Ainsi, dans cette étude, le gaz utilisé avec le cyclohexane est l'azote (inerte) et, afin de condenser les vapeurs de solvant (tension de vapeur de 10% à 20°C), le gaz passe en sortie par un condenseur cryogénique de type CIRRUS (Linde Gaz) régulé à -30°C avant d'être rejeté dans l'atmosphère. La manipulation de l'eau étant moins contraignante, le gaz utilisé dans ce cas est l'air comprimé.

Les vitesses superficielles de gaz envisagées sont comparables à celles rencontrées industriellement ( $u_G=0,03-0,25$  m/s) ; elles conduisent à des taux de vide pouvant atteindre 45%. Le liquide pour sa part opère en batch (pas de circulation liquide).

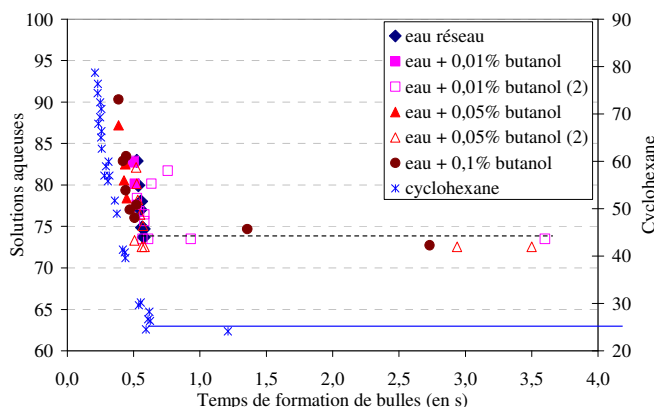
Un capteur de pression différentielle capacitif Brooks, placé comme indiqué sur la figure 1a, permet d'obtenir des valeurs fiables de taux de vide global dans la colonne [14]. Des mesures locales sont également effectuées à l'aide de sondes optiques doubles à une hauteur de 0,65 m (fig. 1a), hauteur suffisante pour être représentative de l'écoulement dans le cœur de la colonne sans risquer de se trouver dans la zone de désengagement [15]. Ces sondes permettent d'obtenir des mesures locales de taux de vide, de fréquence de bullage, d'aire interfaciale et de diamètre de Sauter, mais cette métrologie ne permet pas, dans nos conditions expérimentales, d'accéder à des distributions de tailles de bulles [16].

Pour pouvoir comparer les distributions en cyclohexane, en eau et en eau+butanol, une installation transparente de taille réduite est utilisée, dans laquelle les distributions de tailles de bulles au sein de panaches de bulles sont évaluées par caméra rapide.

Cette seconde installation est constituée d'une cuve en verre parallélépipédique de dimensions 0,25\*0,25\*0,50m, remplie d'environ 30 L de liquide (fig. 1b). Le gaz (air comprimé ou azote) est injecté dans cette cuve à travers deux orifices rigides (trous uniques) de 0,001 m de diamètre, espacés de 0,04 m. Les essais sont réalisés à pression atmosphérique et la cuve est thermostatée à 25°C par une double enveloppe. La gamme de vitesses d'éjection ( $u_{G0}$ ) balayée est comprise entre 1 et 22,1 m/s (la vitesse d'éjection de 22,1 m/s est celle observée en colonne pour  $u_G=0,045$  m/s), ce qui correspond à des nombres de Reynolds à l'orifice  $Re_0$  ( $Re_0=\rho_G u_{G0} d_0/\mu_G$ ) compris entre 60 et 1350. Pour couvrir l'ensemble de la gamme de débits avec un maximum de précision, deux rotamètres Brooks (R2-15-A pour 0-0,02 L/s et R2-15-C pour 0-0,1 L/s) sont utilisés. Les liquides étudiés dans cette cellule sont l'eau, le cyclohexane (propriétés physico-chimiques reportées dans le tableau 1), et des mélanges eau+butanol à faibles concentrations en butanol (0,01, 0,05 et 0,1% en volume). Les tensions superficielles dynamiques de ces milieux sont mesurées par la méthode de pression de bulles décrite dans Loubière et Hébrard (2004) [12] ; cette méthode est couramment utilisée pour déterminer la tension superficielle dynamique pour des âges d'interface de bulle de 0,05 à 50 secondes. Les résultats obtenus sont reportés sur la figure 2. Les tensions superficielles statiques des liquides sont retrouvées pour les temps de formation importants.

*Tableau 1 : Propriétés physico-chimiques des produits purs testés*

Nom	Formule	Densité à 20°C (kg/m <sup>3</sup> )	Viscosité à 25°C (mPa.s)	Tension superficielle à 25°C (mN/m)
cyclohexane	C <sub>6</sub> H <sub>12</sub>	778,5	0,894	24,65
Eau (réseau)	H <sub>2</sub> O	996,3	0,890	71,99



*Figure 2 : Tension superficielle dynamique des différents liquides étudiés (mN/m)*

Lors de la manipulation de solvant dans l'installation de taille réduite, des mesures de sécurité sont également prises : l'azote est injecté en lieu et place de l'air pour ne pas travailler dans la zone d'explosivité, la cuve est fermée par un couvercle étanche et la sortie de gaz est reliée à un condenseur pour éviter le rejet et l'inhalation de vapeurs. Enfin, cette installation est placée sous une hotte aspirante.

Les panaches de bulles sont filmés à l'aide d'une caméra monochrome Leutron LV-95, selon le même protocole que celui décrit dans Chaumat et al. [17]. La taille de la fenêtre de visualisation est de 0,04\*0,04 m. Le traitement des images avec le logiciel Visilog 5.1 nous permet d'accéder aux distributions de tailles (projetées) des bulles ainsi que de calculer les diamètres moyens ( $d_{10}$ ) et les diamètres de Sauter ( $d_{32}$ ) [17], deux paramètres complémentaires attribuant des poids différents aux diverses classes de bulles (les grosses bulles ont davantage d'importance dans le diamètre de Sauter que dans le diamètre moyen). L'évolution axiale des distributions est estimée en filmant à deux hauteurs : au niveau du distributeur ( $h=0$  m) et à 20 cm au-dessus ( $h=0,2$  m).

### 3. RESULTATS

#### 3.1 Colonne à bulles

Les premiers résultats présentés concernent la comparaison, en colonne à bulles, du comportement du cyclohexane à celui de l'eau. Pour cela les profils de taux de vide locaux obtenus à  $h=0,65$  m pour l'eau et le cyclohexane sont tracés (fig. 3) pour deux distributeurs perforés de trous de taille différente.

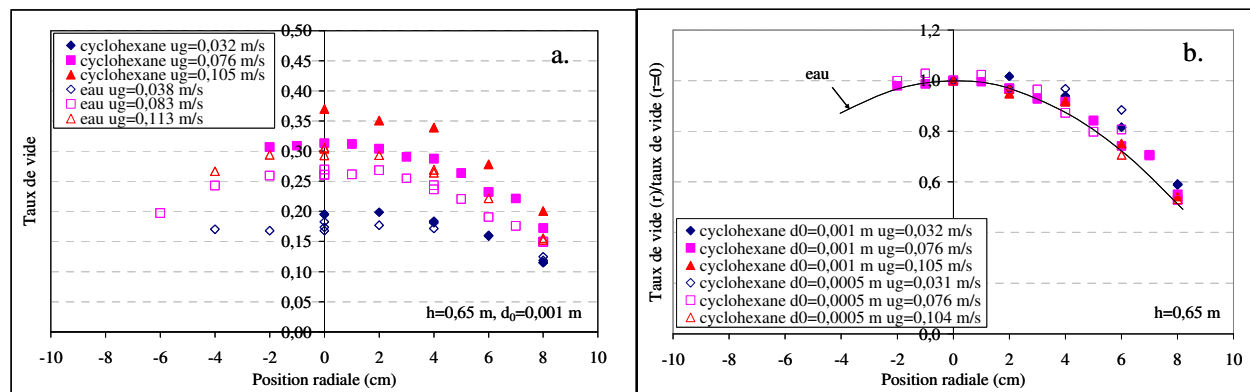


Figure 3 : Comparaison des profils de taux de vide à  $h=0,65$  m en eau et en cyclohexane

Conformément à nos attentes, pour le distributeur percé d'orifices de 0,001 m, le taux de vide en cyclohexane est systématiquement supérieur à celui observé en eau et ce d'autant plus que la vitesse de gaz augmente (fig. 3a). En revanche, la comparaison de l'allure de ces profils (profils normés par la valeur au centre, fig. 3b) ne dénote de différence claire ni entre les deux distributeurs, ni entre les deux milieux, alors que, comme en solutions d'eau additivée [7, 9], des profils plus plats étaient attendus en cyclohexane. Cette similitude de forme de profils (en taux de vide, mais aussi en diamètres de bulles [18]) permet de limiter la comparaison de nos résultats aux valeurs obtenues sur l'axe (fig. 4).

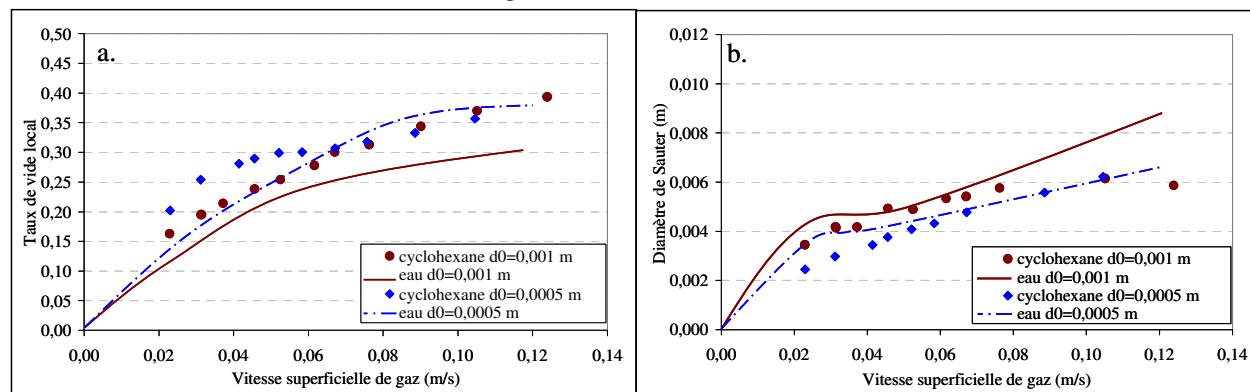


Figure 4 : Comparaison des valeurs locales de taux de vide et de diamètre de Sauter sur l'axe

Il apparait alors sur la figure 4b que le diamètre de Sauter à l'équilibre entre coalescence et rupture (valeur asymptotique à fortes vitesses gazeuses) est d'environ 6 mm en cyclohexane. En eau, cet équilibre ne semble pas atteint dans nos conditions (le diamètre de Sauter continue à augmenter à fortes  $u_G$  et ne se stabilise pas). Avec le distributeur percé de gros orifices ( $d_0=0,001$  m), le taux de vide est plus important et les bulles plus petites en cyclohexane qu'en eau (fig. 4a et 4b). Cette tendance s'inverse pour le distributeur percé d'orifices de 0,0005 m dans la gamme de vitesse de gaz comprise entre 0,07 et 0,12 m/s : le taux de vide est plus grand en eau et les tailles de bulles sont similaires pour les deux milieux (fig. 4a et b). Ce dernier comportement est en désaccord avec ce que prédit usuellement la littérature pour les milieux à faible tension superficielle. Pour confirmer et expliquer ces tendances, les taux de vide moyens sur la colonne sont tracés, et les régimes de bullage sont alors déterminés (fig. 5).

On retrouve sur la figure 5 l'effet classique du distributeur [19-21] : le distributeur percé des orifices les plus petits ( $d_0=0,0005$  m) conduit à des taux de vide supérieurs ou égaux à celui percé d'orifices plus gros ( $d_0=0,001$  m) et le régime homogène s'étend sur une gamme de vitesses superficielles de gaz plus large. Par contre, l'effet du milieu est plus surprenant : inférieur à faible débit, le taux de vide en cyclohexane devient supérieur à celui obtenu en eau à des débits plus importants (fig. 5a). L'explication de ce comportement réside dans l'étendue différente des régimes de bullage pour les deux milieux : le régime homogène et le régime de transition s'étendent en eau sur des gammes de vitesses de gaz plus larges qu'en cyclohexane (fig. 5b). Ainsi,

dans un régime donné, le taux de vide en cyclohexane ( $\sigma=24,65$  mN/m) est supérieur à celui en eau ( $\sigma=71,99$ mN/m), et les bulles sont plus petites, du fait de la différence de tension superficielle entre les deux milieux, tendance qui peut être ponctuellement inversée lorsque les deux milieux opèrent, à une vitesse superficielle de gaz donnée, dans des régimes différents. Ce comportement justifie les résultats précédents (fig. 3 et 4), mais il est difficile à expliquer à la seule vue des propriétés physico-chimiques des deux liquides (tab. 1).

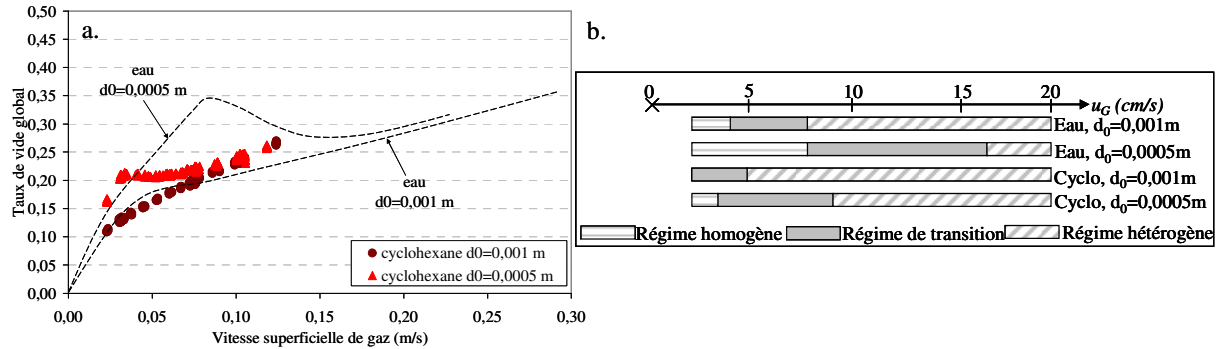


Figure 5 : Taux de vide global et régimes de bullage

Pour conclure, les mesures effectuées en colonne montrent que, dans un régime de bullage donné, les tailles de bulles sont plus petites en cyclohexane qu'en eau. Cependant en cyclohexane le régime de bullage homogène est déstabilisé pour une vitesse superficielle de gaz inférieure à celle observée en eau. La comparaison de ces résultats avec ceux classiquement observés en eau additivée (cf. §1) et pour des milieux de tensions superficielles différentes montre une bonne adéquation en terme de taille de bulles mais des disparités en terme de régimes de bullage entre le comportement observé en cyclohexane et celui attendu en milieu eau+tensio-actif. Pour mieux comprendre ces différences, les distributions de tailles de bulles observées sur l'installation de petite échelle en eau, en cyclohexane et en eau+butanol sont comparées.

### 3.2. Cellule de petite taille

Les principaux résultats en termes de diamètres moyens, diamètres de Sauter, diamètres minimum et maximum, ainsi que le nombre de bulles utilisées pour le traitement sont reportés dans le tableau 2. On ne peut certes espérer retrouver dans cette installation les mêmes distributions de tailles de bulles qu'en colonne, mais cela permet au moins de les approcher (pour la zone de formation au moins) et d'appréhender leurs évolutions avec la hauteur et la vitesse d'éjection  $u_{G0}$ . Au vu de ce tableau, on peut d'ores et déjà observer qu'en eau et en cyclohexane, les diamètres de Sauter observés à 0,2 m du distributeur sont du même ordre de grandeur que ceux mesurés en colonne : il existe par conséquent une certaine cohérence et une bonne complémentarité des informations obtenues dans ces deux installations.

Tableau 2 : Résultats obtenus en petite cellule

milieu	hauteur (m)	$u_{G0}$ (m/s)	$d_{32}$ (mm)	$d_{10}$ (mm)	$d_{min}$ (mm)	$d_{max}$ (mm)	écart type (%)	nb de bulles traitées
cyclohexane	0,2	1	5,76	5,31	0,30	9,36	21,10	180
eau	0,2	1	5,64	5,32	2,04	8,43	17,13	156
eau+but 0,01%	0,2	1	4,05	3,61	0,89	5,38	26,55	286
eau+but 0,05%	0,2	1	4,42	3,88	0,84	5,86	29,64	226
cyclohexane	0,2	5	8,50	4,61	0,24	13,24	70,86	346
eau	0,2	5	7,78	6,99	0,88	10,68	26,05	168
eau+but 0,01%	0,2	5	5,64	4,71	0,58	7,42	36,35	289
cyclohexane	0,2	10	7,68	4,22	0,11	11,71	71,48	434
eau	0,2	10	8,65	6,04	0,57	13,26	51,77	363
eau+but 0,01%	0,2	10	5,72	4,78	1,04	9,42	34,34	410
cyclohexane	0,2	22,1	7,18	1,77	0,23	14,70	117,37	497
eau	0,2	22,1	9,07	3,76	0,13	16,70	92,31	447
eau+but 0,01%	0,2	22,1	6,18	4,07	0,58	9,13	56,39	421
eau+but 0,05%	0,2	22,1	6,41	4,31	0,54	10,28	55,15	347
eau+but 0,1%	0,2	22,1	6,40	3,86	0,29	10,98	62,64	456
cyclohexane	0	1	3,76	3,18	0,44	5,45	33,66	230
eau	0	1	4,50	4,03	1,38	5,89	26,24	223
eau+but 0,01%	0	1	4,35	3,82	0,79	8,56	27,98	227
cyclohexane	0	22,1	7,80	3,22	0,23	11,49	93,51	394
eau	0	22,1	15,63	9,45	0,38	20,08	67,51	207
eau+but 0,01%	0	22,1	9,22	5,65	0,52	13,22	65,30	329

Dans un premier temps, examinons l'effet de la concentration en butanol dans l'eau sur les résultats.

Le tableau 2 et la figure 6 montrent que les diamètres de bulles ( $d_{10}$  et  $d_{32}$ ) sont plus faibles dans les mélanges eau+butanol qu'en eau et que les distributions sont plus resserrées, particulièrement à fortes vitesses d'éjection à  $h=0,2$  m : la taille maximale de bulles diminue et la population de très petites bulles perd de l'importance. Le butanol agit donc dès la formation des bulles et migre rapidement vers les interfaces (cf. tension dynamique, fig. 2) ; les bulles stabilisées par le butanol ne coalescent pas et ne se cassent pas sous l'effet du cisaillement pour former de très petites bulles comme c'est le cas pour l'eau (cf. plus loin).

Par contre, aucune différence prononcée n'est observée entre les différentes concentrations en butanol tant au niveau des diamètres moyens que des distributions. Les courbes de tension superficielle dynamique tracées sur la figure 2 montraient d'ailleurs que ce paramètre est peu influencé par la concentration en butanol. Notons de plus que dans la gamme de concentration étudiée, la tension superficielle statique (correspondant aux longs temps de formation des bulles) est similaire entre les milieux eau et eau+butanol, ce qui témoigne clairement de la limite de ce paramètre. L'effet observé de la concentration en butanol est en accord avec la tendance observée dans la littérature pour ce type d'installation : au-delà d'une certaine concentration (0,01% vol. ici), l'effet de l'alcool ne dépend plus de sa concentration. On se limitera ainsi dans la suite à la présentation des résultats obtenus à 0,01% vol. en butanol.

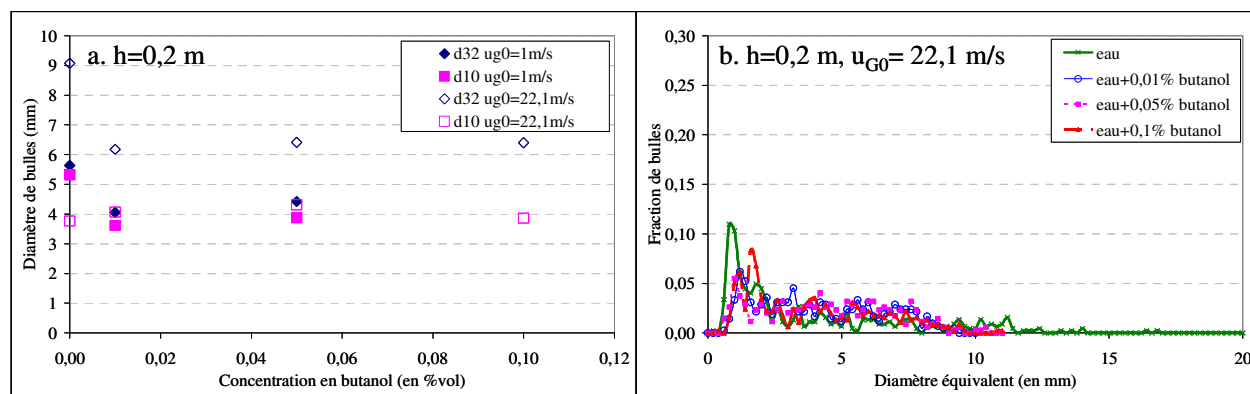


Figure 6 : Effet de la concentration en butanol dans l'eau

Comparons à présent les distributions de tailles de bulles des trois milieux : eau, cyclohexane et eau+0,01% butanol (fig. 7 et 8). Selon la vitesse d'éjection, les bulles formées au niveau du distributeur se présentent soit sous la forme d'un chapelet de bulles, soit d'un jet [22]. La distinction entre ces 2 régimes est ici faite par observation visuelle des images.

De manière générale, en cyclohexane, le régime à bulles prédomine pour des vitesses d'éjection entre 1 et 10 m/s et le régime à jet est observé à  $u_{G0}=22,1$  m/s, ce qui est en accord avec un changement de régime pour un nombre de Reynolds à l'injection  $Re_0$  de l'ordre de 1000. En régime à bulles, la distribution des bulles est monomodale ; cette population de bulles voit son diamètre et son étalement augmenter avec la vitesse d'éjection (fig. 8), mais évolue peu avec la hauteur (fig. 7a et 8a) : le diamètre moyen semble osciller autour d'une valeur d'équilibre. En régime à jet (figure 7b et 8d), une nouvelle population de bulles apparaît : la population initiale atteint un diamètre tel qu'elle devient instable ; les bulles coalescent et se cassent conduisant à l'apparition d'une seconde population de très petites bulles. La proportion de petites bulles croît avec la position axiale ; elle est en partie responsable des variations axiales de diamètres de bulles et peut représenter une proportion importante de bulles.

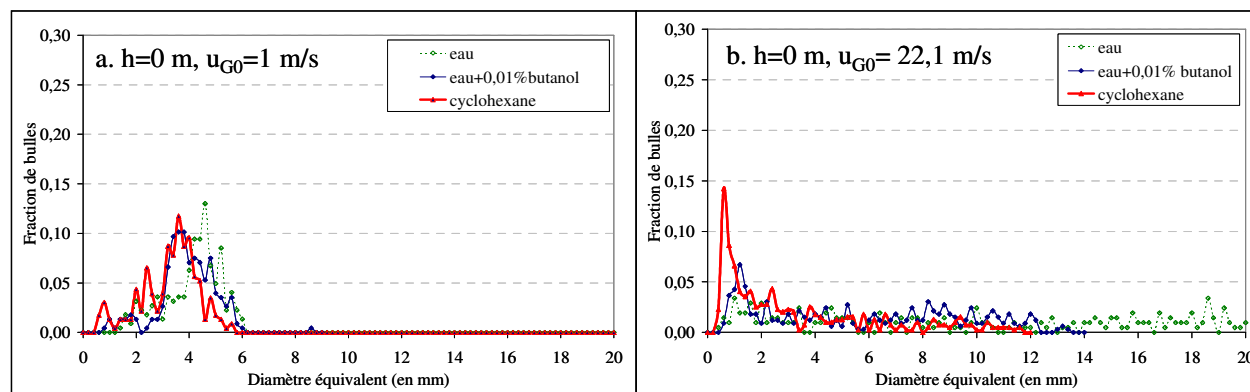


Figure 7 : Distribution de tailles de bulles au niveau du distributeur pour l'eau, le cyclohexane et une solution eau+0,01% butanol

En eau, le comportement général est assez similaire : le régime d'injection est à bulles pour  $u_{G0}=1$  à 5 m/s et à jet pour  $u_{G0}=22,1$  m/s (à  $u_{G0}=10$  m/s, le bullage est intermédiaire entre ces deux régimes). En régime à

bulles, on ne distingue qu'une seule population de bulles moyennes à grosses (>5 mm). En régime à jet, une seconde population, constituée de petites bulles, apparaît, dont l'importance grandit avec la vitesse d'éjection. Lors de l'ascension des bulles, les distributions ont tendance à se resserrer. Par contre en cyclohexane, les bulles sont plus petites et les évolutions axiales sont moins prononcées qu'en eau. L'ajout de butanol à l'eau permet de se rapprocher des tendances observées en cyclohexane : la taille maximale des bulles diminue et le pic de la population de bulles « moyennes » se déplace vers des valeurs de diamètres plus faibles (6 mm au lieu de 8 mm). Par contre, la population de petites bulles est moins importante qu'en cyclohexane : les bulles, stabilisées à l'interface par le butanol se cassent peu sous l'effet du cisaillement pour former de très petites bulles.

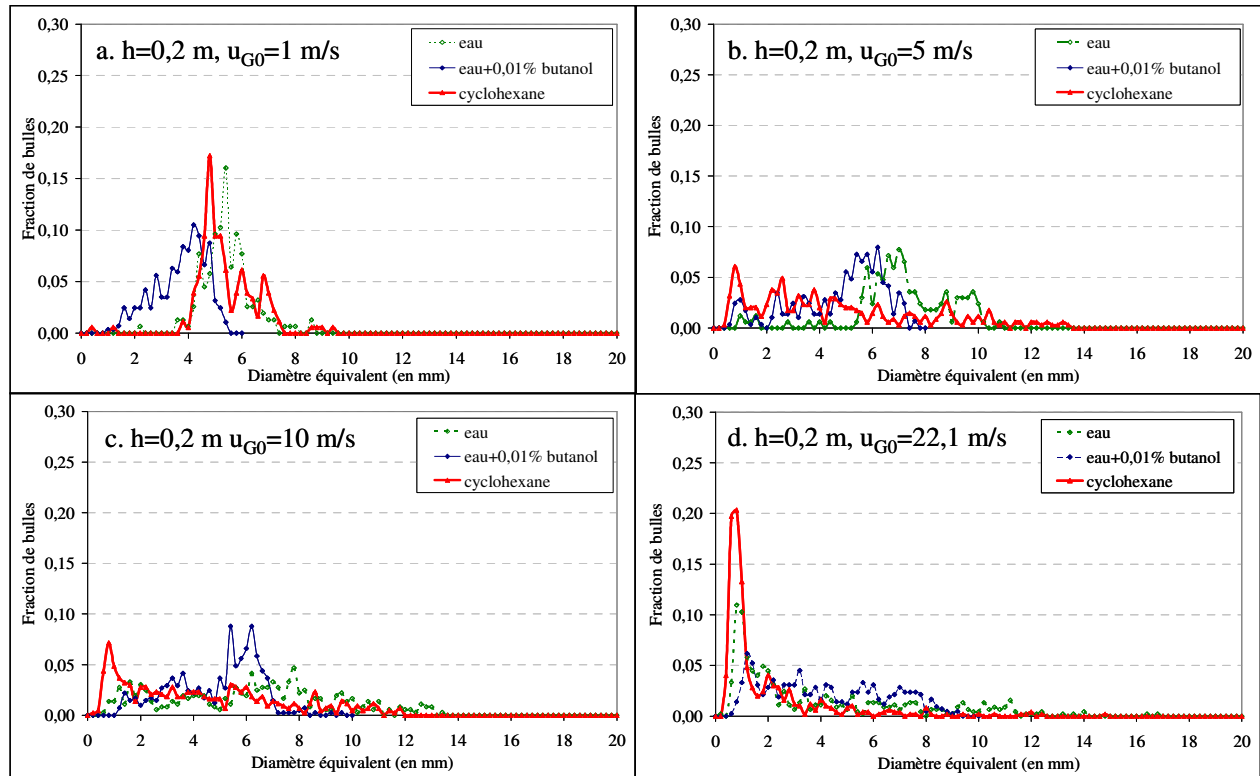


Figure 8 : Distribution de tailles de bulles à 0,2 m du distributeur pour l'eau, le cyclohexane et une solution eau+0,01% butanol

Ainsi, au niveau du distributeur (fig. 7) à faibles vitesses de gaz, les distributions en cyclohexane et en eau+butanol sont similaires, alors que les écarts se creusent à plus fortes vitesses : les classes de diamètres sont les mêmes dans les deux milieux, mais la classe des petites bulles est beaucoup plus représentée en cyclohexane, ce qui peut être à l'origine des taux de vide importants observés en colonne à bulles en cyclohexane dans la zone de distribution.

Plus haut dans la cellule ( $h=0,2$  m, fig. 8), les écarts se creusent entre le comportement du cyclohexane et du mélange eau-butanol : le diamètre maximal des bulles est systématiquement plus grand et le diamètre minimal plus petit en cyclohexane ; les distributions sont donc plus resserrées en eau+butanol. A faible vitesse, la population des bulles est centrée autour d'un diamètre de bulles plus petit en eau additivée alors qu'à fortes vitesses, le pic des petites bulles est beaucoup plus prononcé en cyclohexane. Certes, par rapport à l'eau, la taille des bulles en eau+butanol diminue et se rapproche de celle obtenue en liquide organique, mais elle ne permet pas de retrouver le même étalement de la distribution ni la population de fines bulles (issues de la rupture de grosses bulles formées par coalescence) : stabilisées par le surfactant, les interfaces sont trop rigides.

#### 4. CONCLUSION

Les résultats obtenus en colonne à bulles montrent que le diamètre moyen des bulles tend à être plus petit en cyclohexane qu'en eau. En revanche, en cyclohexane, le régime de bullage homogène est déstabilisé pour une vitesse superficielle de gaz inférieure à celle observée en eau, contrairement à ce que les propriétés physico-chimiques permettaient de prédire et à ce qui est classiquement observé en milieu eau+tensioactif.

Les essais réalisés en cellule de petite taille, conduisant à des tailles de bulles similaires à celles observées en colonne, montrent par ailleurs que les distributions rencontrées en eau+butanol sont plus resserrées et ne font pas apparaître une importante population de petites bulles, contrairement au cyclohexane. L'ajout de butanol à l'eau a donc un fort effet stabilisateur et anti-coalescent ; il ne permet pas de représenter les milieux organiques,



surtout à fortes vitesses d'éjection, vitesses couramment rencontrées en colonne, car les milieux organiques sont tout de même un peu coalescents. La différence de largeur de la distribution des tailles pourrait expliquer la différence de régimes de bullage observés en colonne : en cyclohexane, la population bimodale apparaît à une vitesse plus faible qu'en eau, et implique l'apparition précoce du régime hétérogène. Vu l'importance de la distribution de tailles de bulles en colonne, il semble donc délicat de simuler le cyclohexane par un mélange eau+butanol, si ce n'est éventuellement à très faibles vitesses gazeuses, cas peu intéressant industriellement.

Cette étude, réalisée pour un seul solvant, n'est pas extrapolable à tout liquide organique, mais elle met clairement en évidence l'impossibilité de modéliser a priori un liquide organique par un milieu de type eau additivée.

## REFERENCES

- [1] BURCKHARDT R., DECKWER W.-D., Bubble size distribution and interfacial areas of electrolyte solutions in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, 30, 351-354, (1975).
- [2] OZTURK S.S., SCHUMPE A., DECKWER W.-D., Organic liquids in a bubble column: hold-ups and mass transfer coefficients, *AIChE J.*, 33, 9, 1473-1480, (1987).
- [3] KEITEL G., ONKEN U., Inhibition of bubble coalescence by solutes in air/water dispersions, *Chem. Eng. Sci.*, 37, 11, 1635-1638, (1982).
- [4] BACH H.F., PILHOFER T., Variation of gas hold-up in bubble columns with physical properties of liquids and operating parameters of columns, *Ger. Chem. Eng.*, 1, 270-275, (1978).
- [5] MALYSA K., KRASOWSKA M., KRZAN M., Influence of surface substances on bubble motion and collision with various interfaces, *Adv. in Colloids Interface Sci.*, 114-115, 205-225, (2005).
- [6] ZAHRADNIK J., FIAVOLA M., KASTANEK F., GREEN K.D., THOMAS N.H., The effect of electrolytes on bubble coalescence and gas hold-up in bubble column reactors, *TransIChemE*, 73A, 341-346, (1995).
- [7] PARASU VEERA U., KATARIA K.L., JOSHI J.B., Effect of superficial gas velocity on gas hold-up profiles in foaming liquids in bubble column reactors, *Chem. Eng. J.*, 99, 53-58, (2004).
- [8] KRISHNA R., DREHER A.J., URSEANU M.I., Influence of alcohol addition on gas hold-up in bubble columns: Development of a scale up model, *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, 27, 4, 465-472, (2000).
- [9] DHOTRE M.T., EKAMBARA K., JOSHI J.B., CFD simulation of sparger design and height to diameter ratio on gas hold-up profiles in bubble columns reactors, *Exp. Therm. and Fluid Sci.*, 28, 407-421, (2004).
- [10] PARASU VEERA U., JOSHI J.B., Measurement of gas hold-up profiles in bubble column by gamma ray tomography: Effect of liquid phase properties, *TransIChemE.*, 78, 303-317, (2000).
- [11] PRINCE M.J., BLANCH H.W., Bubble coalescence and break-up in air-sparged bubble columns, *AIChE J.*, 36, 10, 1485-1499, (1990).
- [12] LOUBIERE K., HEBRARD G., Influence of liquid surface tension (surfactants) on bubble formation at rigid and flexible orifices, *Chem. Eng. Process.*, 43, 11, 1361-1369, (2004).
- [13] PARASU VEERA U., KATARIA K.L., JOSHI J.B., Gas hold-up profiles in foaming liquids in bubble columns, *Chem. Eng. J.*, 84, 247-256, (2001).
- [14] CHAUMAT H., BILLET-DUQUENNE A.M., BASCOUL A., AUGIER F., MATHIEU C., DELMAS H., Utilisation des capteurs de pression en colonnes à bulles industrielles : des mesures fiables et complètes, *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 92, S-9, (2005).
- [15] CHAUMAT H., BILLET A.M., DELMAS H., Axial and radial investigation of hydrodynamics in a bubble column; influence of fluid flow rates and sparger type, *Int. J. of Chem. Reactor Eng.*, 4, A25, (2006).
- [16] CHAUMAT H., DUQUENNE A.M., AUGIER F., MATHIEU C., DELMAS H., On the reliability of an optical fibre probe in bubble column under industrial relevant operating conditions, *Exp. Thermal and Fluid Sci.*, 31, 495-504, (2007).
- [17] CHAUMAT H., BILLET-DUQUENNE A.M., HEBRARD G., AUGIER F., MATHIEU C., DELMAS H., Influence des propriétés physico-chimiques sur la distribution de tailles de bulles, *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 92, S-10, (2005).
- [18] CHAUMAT H., Hydrodynamique locale et globale d'une colonne à bulles en conditions industrielles, Thèse, INPT, France, (2004).
- [19] OHKI Y., INOUE H., Longitudinal mixing of the liquid phase in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, 25, 1-16, (1970).
- [20] ZHAO M., NIRANJAN K., DAVIDSON J.F., Mass transfer to viscous liquids in bubble columns and air-lift reactors: influence of baffles, *Chem. Eng. Sci.*, 49, 2359-2369, (1994).
- [21] ZAHRADNIK J., FIAVOLA M., RUZICKA M., DRAHOS J., KASTANEK F., THOMAS N.H., Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors, *Chem. Eng. Sci.*, 52, 3811-3826, (1997).
- [22] HEIJNEN J.J., VAN'T RIET K., Mass transfer mixing and heat transfer phenomena in low viscosity bubble column reactors, *The Chem. Eng. J.*, 28, B21-B42, (1984).