



**HAL**  
open science

# Hydrodynamique locale et globale d'une colonne à bulles en conditions industrielles

Hélène Chaumat

► **To cite this version:**

Hélène Chaumat. Hydrodynamique locale et globale d'une colonne à bulles en conditions industrielles. Génie chimique. Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse), 2004. Français. NNT : 2004INPT017G . tel-04258400

**HAL Id: tel-04258400**

**<https://hal.science/tel-04258400>**

Submitted on 25 Oct 2023

**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.

N° d'ordre : 2136

# **THESE**

présentée

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE**

**Ecole doctorale Sciences des Procédés**

**Spécialité : Génie des Procédés et de l'Environnement**

par

**Hélène CHAUMAT**

Ingénieur E.N.S.I.G.C.

## **HYDRODYNAMIQUE LOCALE ET GLOBALE D'UNE COLONNE A BULLES EN CONDITIONS INDUSTRIELLES**

Thèse soutenue le 30 septembre 2004 devant le jury composé de :

M.	Alain CARTELLIER	Rapporteur
M.	Noël MIDOUX	Rapporteur
Mme	Anne-Marie BILLET	Directrice de thèse
M.	Henri DELMAS	Directeur de thèse
Mme	Catherine COLIN	Membre
Mme	Corinne MATHIEU	Membre
M.	Frédéric AUGIER	Membre invité
M.	Gilles HEBRARD	Membre invité



## REMERCIEMENTS

*C'est avec plaisir que cette thèse a été réalisée au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, dans l'équipe Réacteurs et Réactions Polyphasiques du département Réaction Mélange et Séparation. Je tiens tout particulièrement à saluer la réactivité du laboratoire qui a permis un redémarrage « rapide » de mon installation suite à l'explosion d'AZF (détruisant ses locaux). Le retard engendré par l'explosion, un an après le début de ma thèse, a ainsi pu être limité à un peu moins d'un an.*

*Mes premières attentions se dirigent naturellement vers Anne-Marie Billet (toujours positive) et Henri Delmas, co-encadrants de ma thèse. Leur endurance a été pour le moins mise à l'épreuve les derniers mois de cette thèse... Je leur suis reconnaissante de la confiance qu'ils m'ont témoignée.*

*Mes pensées s'orientent ensuite vers le Centre de Recherche de Lyon (CRL) de Rhodia, qui a financé cette thèse. Je tiens à témoigner ma sincère gratitude à Corinne Mathieu, François Seidlitz et Frédéric Augier pour leur encadrement, qui m'a permis, au cours de cette thèse, de m'épanouir sans contrainte, mais aussi pour leurs qualités humaines, fortement appréciées suite à l'explosion d'AZF. Les quelques jours passés au CRL m'ont également permis d'apprécier la gentillesse de l'ensemble de leur équipe. Je remercie aussi Jean-Michel Assié, qui m'a accompagné et aidé lors des campagnes de mesures réalisées à Lyon. Enfin, il faut signaler que cette thèse n'aurait pas pu être effectuée dans de bonnes conditions sans le soutien de A. Gorius, qui a permis le financement complémentaire de mes travaux.*

*J'exprime ma sincère reconnaissance aux membres du jury : A. Cartellier, N. Midoux, C. Colin, C. Mathieu, F. Augier, G. Hébrard, A.-M. Billet Duquenne et H. Delmas, avec une attention particulière pour mes rapporteurs qui ont lu avec attention ce volumineux pavé.*

*Il est ensuite impossible de parler de ce travail sans y associer l'ensemble de l'équipe technique du laboratoire, qui a été largement sollicitée et sans qui rien n'aurait été possible. La solidarité et la motivation qui a régné dans cette équipe après l'explosion sont considérables. Je tiens notamment à citer Franck Dunglas (alias Junior, payable en Kinder Surprise), Jean-Louis Labat, Alec Maunoury, Jean-Marc Svedje, Jean-Louis Nadalín pour leurs interventions techniques, Lahcen Fahri (le philosophe) et Ignace pour l'électronique, Bernard Galy, pour m'avoir permis de ne pas totalement geler durant les mois d'hiver sur le quai de déchargement, et évidemment Lucien Pollini (Lulu), papa de ma manip*

reconnaissable au doux son de sa voix, pour la conception. Pour être exhaustive, il faudrait en fait citer tout le monde, soit pour leur aide ponctuelle, soit et c'est très important pour leur soutien moral et leur convivialité. Les mois passés en leur compagnie sont gravés dans ma mémoire.

Une autre équipe mérite d'être remerciée : l'équipe « Delmas » au sein de laquelle règne une grande convivialité et un certain goût de la fête. Un merci particulier pour Berthe, qui, je ne l'oublierai pas, m'a recueilli dans un moment d'abattement suite à l'explosion.

Suite à l'explosion (toujours elle), je me dois de saluer la solidarité des laboratoires de Toulouse : l'IMFT tout d'abord qui, par le biais de H. Ayrolles, a vérifié notre matériel électronique, et surtout l'INSA de Toulouse. Le département GPI (Génie des Procédés Industriels) du LIPE (Laboratoire d'Ingénierie des Procédés de l'Environnement) m'a en effet accueilli durant plus d'un mois et a mis à ma disposition le matériel nécessaire à l'étude de la physico-chimie du milieu. L'aide de Gilles Hébrard, Salima Moustiri et Karine Loubière m'a touché, merci ! Merci aussi à Pisut pour sa grande gentillesse.

Pour fonctionner, mon pilote a aussi nécessité l'intervention de personnes extérieures au laboratoire qui, à mes yeux, doivent aussi être associées à ce travail. Il s'agit tout d'abord d'A. Cartellier et de L. Terrier du LEGI (Laboratoire des Écoulements Géophysiques et Industriels) de Grenoble qui nous ont gentiment fait profiter de leur savoir-faire en terme de sondes optiques. R. Baghai, de la société RBI, a également été d'une aide précieuse pour la conception...et surtout la réparation... des sondes optiques. Pour la mise en œuvre des essais en solvant, l'utilisation d'un cryogène CIRRUS a été nécessaire ; je remercie à cet effet MM. Brünner, Bertorello, Forrest et Azéma de la société Linde pour leur travail et leur disponibilité lors de l'adaptation de cet appareil à notre pilote. Les essais de transfert ont nécessité la mise au point d'une méthode d'analyse Infra-Rouge. Celle-ci a pu être élaboré grâce à l'aide de C. André du service IR de l'UPS et de P. Diffine de la société Brüker Optics. Enfin, je remercie Michel Woock, de la société ISO, qui, très amicalement, nous a conseillé pour l'ensemble des capteurs de l'installation et est fréquemment et patiemment revenu pour modifier leur étalonnage...

Au cours de cette thèse, j'ai également eu l'occasion d'encadrer cinq stagiaires : Thomas Schönaert, Xavier Lombard, Edy Rusbandi Untung, Vincent Russeil et Vincent Bessou. Merci de leur contribution.

Enfin, la thèse ne se limitant pas à des heures de travail, je remercie chaleureusement toutes les personnes avec qui j'ai partagé un moment de convivialité. Je ne peux évidemment citer tout le monde, thésards, stagiaires et permanents qui ont contribué à ce que cette thèse se déroule dans une bonne atmosphère, dans l'enceinte de la cafét', au labo, dans un bureau ou au détour d'un couloir. Je tiens plus spécifiquement à remercier Yves, Sammy, Boumédienne, Ludo, Franck, Carlos, Rodolphe et Loïc qui, plus que des collègues, sont devenus des amis.

*Cette liste est incomplète, je le sais et je m'excuse pour les personnes oubliées, mais on ne peut pas résumer en une à deux pages l'expérience qu'est une thèse.*

*Pour conclure, cette thèse ne s'est pas faite en un jour ; elle est le fruit d'efforts personnels, mais ceux-ci n'auraient jamais pu aboutir sans un certains nombres de personnes qui ont toute ma gratitude. Ce travail n'a pas été de tout repos et les péripéties se sont succédées, mais je garderai de ces années beaucoup de satisfactions et d'excellents souvenirs, grâce à vous tous qui avez croisé mon chemin.*

*Il y a toutefois une personne que je ne tiens pas à remercier, qui n'a pas ma reconnaissance : le lutin de ma manip, qui, sans aucun doute, facétieux et fourbe, est à l'origine de toutes mes petites misères... Resté seul au fond du laboratoire, il est aujourd'hui malheureux ; je lance donc un appel : qui veut adopter ce petit lutin orphelin ?*



# TABLE DES MATIERES

<b>CONTEXTE</b>	<b>15</b>
-----------------	-----------

---

<b>CHAPITRE I : CARACTERISATION EXPERIMENTALE D'UNE COLONNE A BULLES</b>	<b>19</b>
--	-----------

---

<b><u>PARTIE A</u> : CARACTERISATION D'UNE COLONNE A BULLES « CLASSIQUE » (colonne sans internes, solution aqueuse, fonctionnement batch sur le liquide)</b>	<b>19</b>
--	-----------

<b>A.I. APPROCHE GLOBALE</b>	<b>20</b>
A.I.1. Régimes hydrodynamiques de bullage	20
A.I.1.a. Régime homogène	20
A.I.1.b. Régime hétérogène	22
A.I.1.c. Régime à bouchons	23
A.I.1.d. Transition	24
A.I.1.e. Récapitulatif	25
A.I.2. Approches globales classiques de la dispersion du gaz en colonne à bulles	26
A.I.2.a. Concept de flux de dérive du gaz	26
A.I.2.b. Estimation du taux de vide à partir de la vitesse de la phase gazeuse	28
A.I.2.c. Modèle à deux classes de bulles	29
A.I.2.d. Distribution de taille de bulles : Désengagement Dynamique du Gaz	30
A.I.3. Approche globale en boucle de circulation	31
A.I.4. Corrélations entre les principales caractéristiques, tendances générales	32
A.I.4.a. Taux de vide	32
A.I.4.b. Coefficient de transfert de matière, $k_{La}$	33
A.I.4.c. Coefficients de dispersion	35
A.I.4.d. Récapitulatif : tendances générales	36
<b>A.II. ECOULEMENT GAZEUX : EVOLUTIONS SPATIALES</b>	<b>37</b>
A.II.1. Zone d'injection : les bulles primaires	38
A.II.1.a. Régimes de formation : effet du débit gazeux	38



A.II.1.b. Technologie du distributeur.....	39
A.II.1.c. Propriétés physico-chimiques du liquide.....	41
A.II.2. Cœur de la colonne : zone d'équilibre.....	42
A.II.2.a. Valeurs moyennes des caractéristiques des bulles.....	42
A.II.2.b. Profils.....	42
A.II.2.c. Distributions locales.....	43
A.II.3. Evolution axiale.....	44
A.II.4. Evolutions temporelles.....	45
A.II.5. Conclusions.....	45
<b><u>PARTIE B</u> : CONDITIONS OPERATOIRES INDUSTRIELLES</b>	<b>45</b>
<b>B.I. EFFET DE LA TAILLE.....</b>	<b>46</b>
B.I.1. Diamètre de Colonne ( $D_C$ ).....	46
B.I.2. Hauteur de liquide ( $H_L$ ).....	46
<b>B.II. PRESSION ET TEMPERATURE.....</b>	<b>46</b>
<b>B.III. NATURE DU LIQUIDE.....</b>	<b>47</b>
B.III.1. Effet de la physico-chimie.....	47
B.III.1.a. Viscosité.....	47
B.III.1.b. Densité liquide.....	49
B.III.1.c. Tension superficielle.....	49
B.III.2. Liquides organiques.....	49
<b>B.IV. DEBIT LIQUIDE.....</b>	<b>50</b>
<b>B.V. PLATEAUX PERFORES.....</b>	<b>50</b>
<b><u>PARTIE C</u> : STRATEGIE D'ETUDE</b>	<b>52</b>
<b>CHAPITRE II : MONTAGES EXPERIMENTAUX ET CONDITIONS OPERATOIRES</b>	<b>53</b>
<b>I. MILIEUX LIQUIDES.....</b>	<b>53</b>
I.1. Liquides utilisés en pilote.....	54
I.2. Liquides utilisés en aquarium.....	54
I.2.a. Effet des propriétés physico-chimiques sur des milieux purs.....	55
I.2.b. Comportement des mélanges.....	56
<b>II. PILOTE.....</b>	<b>56</b>
II.1. Organes de base du pilote.....	58
II.1.a. La colonne à bulles.....	58
II.1.b. Séparateur gaz-liquide.....	61
II.1.c. La pompe.....	62
II.1.d. Régulation de la température : les échangeurs.....	62
II.2. Capteurs.....	62
II.2.a. Mesure de la température.....	62
II.2.b. Mesure de la pression.....	62

II.2.c. Mesure de débits .....	63
II.2.d. Mesures de niveau .....	63
II.2.e. Mesures globales et locales.....	63
II.3. Régulation.....	64
II.4. Sécurité .....	64
II.4.a. Risques liés aux fluides.....	64
II.4.b. Risques liés au fonctionnement de l’installation : supervision.....	66
II.4.c. Risques liés aux périodes de démarrage et d’arrêt.....	67
II.5. Effluents du pilote .....	67
II.5.a. Présentation du problème.....	67
II.5.b. Le CIRRUS.....	68
II.6. Conditions étudiées.....	71
<b>III. AQUARIUM .....</b>	<b>72</b>
III.1. Installations .....	72
III.1.a. Application à la caractérisation des distributions de tailles de bulles dans différents liquides.....	72
III.1.b. Application à la validation de la métrologie locale.....	74
III.2. Acquisition des données.....	75
III.2.a. Description du montage.....	75
III.2.b. Système d’acquisition pour l’analyse de diamètre de bulles.....	75
III.2.c. Système d’acquisition pour l’analyse de vitesses de bulles .....	76
<b>IV. CONCLUSIONS .....</b>	<b>76</b>

## **CHAPITRE III : OUTILS POUR LES MESURES HYDRODYNAMIQUES**

**77**

<b><u>PARTIE A</u> : HYDRODYNAMIQUE GLOBALE</b>	<b>77</b>
<b>A.I. METROLOGIES GLOBALES .....</b>	<b>77</b>
A.I.1. Taux de vide.....	78
A.I.2. Régimes hydrodynamiques .....	78
A.I.3. Distribution de taille de bulles : Désengagement dynamique de gaz (DDG) .....	79
A.I.4. Mélange dans chacune des deux phases : traçage.....	79
A.I.5. Bilan.....	79
<b>A.II. CARACTERISATION DE LA PHASE GAZ : CAPTEURS DE PRESSION....</b>	<b>80</b>
A.II.1. Mise en œuvre des capteurs de pression.....	80
A.II.2. Traitement des données issues des capteurs de pression.....	82
A.II.2.a. Taux de vide global.....	82
A.II.2.b. Désengagement Dynamique du Gaz (DDG) .....	85
A.II.2.c. Régimes hydrodynamiques.....	85
A.II.3. Conclusion .....	85
<b>A.III. CARACTERISATION DE LA PHASE LIQUIDE : DETERMINATION DES TEMPS DE SEJOUR.....</b>	<b>86</b>
<b>A.IV. CONCLUSIONS .....</b>	<b>86</b>

<b>PARTIE B : HYDRODYNAMIQUE LOCALE</b>	<b>87</b>
<b>B.I. METROLOGIES LOCALES</b> .....	<b>87</b>
B.I.1. Métrologies non intrusives .....	87
B.I.2. Métrologies intrusives de caractérisation de la phase liquide .....	87
B.I.3. Métrologies intrusives de caractérisation de la phase gaz.....	88
<b>B.II. MISE EN ŒUVRE DE LA BI-SONDE OPTIQUE</b> .....	<b>90</b>
B.II.1. Partie sensible des sondes optiques utilisées .....	90
B.II.2. Canne-support des sondes optiques utilisées .....	92
B.II.3. Description du système d’insertion dans la colonne.....	93
B.II.4. Position des piquages pour la sonde optique .....	93
B.II.5. Acquisition des données .....	95
B.II.5.a. Fréquence d’acquisition .....	96
B.II.5.b. Durée d’acquisition.....	98
<b>B.III. TRAITEMENT DES DONNEES</b> .....	<b>100</b>
B.III.1. Traitement des données « type » .....	100
B.III.2. Taux de vide, fréquence de bullage .....	101
B.III.2.a. Détermination des seuils (pour binariser les signaux).....	101
B.III.2.b. Calcul du taux de vide .....	103
B.III.2.c. Fréquence de bullage .....	105
B.III.3. Vitesses de bulle .....	105
B.III.3.a. Vitesse la plus probable .....	106
B.III.3.b. Distribution de vitesse de bulles .....	107
B.III.3.c. Validité de la mesure de vitesse moyenne .....	119
B.III.4. Cordes .....	120
B.III.5. Diamètres de bulles .....	124
B.III.5.a. Distribution de diamètres de bulles .....	124
B.III.5.b. Tailles moyennes .....	128
B.III.5.c. Validation.....	130
<b>B.IV. SYNTHÈSE : DEMARCHE ADOPTÉE</b> .....	<b>131</b>

---

**CHAPITRE IV : CARACTERISATION EXPERIMENTALE DE L’HYDRODYNAMIQUE** **133**

---

<b>PARTIE A : CAS DE REFERENCE (eau, sans plateaux, sans débit liquide)</b>	<b>134</b>
<b>A.I. TAUX DE VIDE GLOBAL</b> .....	<b>134</b>
A.I.1. Allure générale .....	135
A.I.1.a. Régimes de bullage .....	136
A.I.1.b. Comparaison avec les corrélations classiques .....	136
A.I.2. Evolution axiale du taux de vide global.....	137
A.I.2.a. Distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) .....	138
A.I.2.b. Distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ).....	141

<b>A.II. VALEURS LOCALES DE TAUX DE VIDE ET DE FREQUENCE DE BULLAGE, CRITERES DERIVES .....</b>	<b>143</b>
A.II.1. Comparaison des taux de vide globaux et locaux.....	143
A.II.2. Profils de taux de vide et de fréquence de bullage .....	144
A.II.3. Evolution des valeurs centrales avec la vitesse superficielle de gaz .....	148
A.II.3.a. Courbes en taux de vide local .....	148
A.II.3.b. Courbes en fréquence de bullage.....	150
A.II.3.c. Rapport entre la fréquence de bullage et le taux de vide .....	151
A.II.4. Comparaison des résultats des deux fibres .....	152
<b>A.III. VITESSE DE BULLES .....</b>	<b>153</b>
<b>A.IV. AIRE INTERFACIALE ET DIAMETRE DE SAUTER.....</b>	<b>154</b>
A.IV.1. Profils .....	154
A.IV.2. Valeurs sur l'axe .....	157
<b>A.V. CONCLUSIONS.....</b>	<b>159</b>
<b><u>PARTIE B : EFFET DU MILIEU</u> .....</b>	<b>160</b>
<b>B.I. ETUDE EN CYCLOHEXANE.....</b>	<b>160</b>
B.I.1. Taux de vide global .....	160
B.I.1.a. Allure générale .....	160
B.I.1.b. Evolution axiale du taux de vide .....	164
B.I.2. Valeurs locales de taux de vide et de fréquence de bullage.....	165
B.I.2.a. Comparaison des taux de vide locaux et globaux .....	165
B.I.2.b. Profils de taux de vide et de fréquences de bulles.....	166
B.I.2.c. Evolution des valeurs centrales avec la vitesse superficielle de gaz .....	170
B.I.3. Aire interfaciale et diamètre de Sauter.....	173
B.I.3.a. Profils .....	173
B.I.3.b. Valeurs sur l'axe.....	178
B.I.4. Conclusions .....	180
<b>B.II. ETUDE EN OLONE .....</b>	<b>180</b>
B.II.1. Taux de vide global.....	180
B.II.2. Grandeurs locales.....	181
<b>B.III. ECARTS ENTRE LES MILIEUX : EFFET DE LA PHYSICO-CHIMIE.....</b>	<b>183</b>
<b><u>PARTIE C : FONCTIONNEMENT CONTINU SUR LE LIQUIDE : EFFET DU DEBIT LIQUIDE</u> .....</b>	<b>183</b>
<b>C.I. MELANGE DE LA PHASE LIQUIDE .....</b>	<b>184</b>
<b>C.II. TAUX DE VIDE GLOBAL .....</b>	<b>184</b>
C.II.1. Allure générale.....	184
C.II.2. Régimes hydrodynamiques.....	186
C.II.3. Evolution axiale .....	187
<b>C.III. TAUX DE VIDE LOCAL, FREQUENCE DE BULLAGE .....</b>	<b>191</b>
C.III.1. Comparaison des taux de vide locaux et globaux.....	191
C.III.2. Profils.....	192

C.III.3. Evolution des valeurs sur l'axe.....	194
C.III.3.a. Taux de vide.....	194
C.III.3.b. Fréquence de bullage.....	195
C.III.3.c. Rapport entre la fréquence de bullage et le taux de vide.....	196
<b>C.IV. AIRE INTERFACIALE ET DIAMETRE DE BULLES .....</b>	<b>196</b>
C.IV.1. Profils .....	196
C.IV.2. Valeurs sur l'axe (niveau 2, h=65cm).....	197
<b>C.V. CONCLUSIONS.....</b>	<b>199</b>
<b><u>PARTIE D : EFFET DES PLATEAUX PERFORES</u></b>	<b>200</b>
<b>D.I. EFFET DES PLATEAUX A DEBIT LIQUIDE NUL.....</b>	<b>200</b>
D.I.1. Taux de vide global.....	201
D.I.1.a. Allure générale .....	201
D.I.1.b. Evolution axiale .....	202
D.I.1.c. Comportement d'un compartiment .....	205
D.I.2. Taux de vide local et fréquence de bullage.....	206
D.I.2.a. Comparaison des valeurs locales et globales .....	206
D.I.2.b. Profils de taux de vide et de fréquence de bullage.....	206
D.I.2.c. Valeurs centrales .....	209
D.I.3. Aire interfaciale, diamètre de Sauter.....	212
D.I.3.a. Profils .....	212
D.I.3.b. Valeurs centrales .....	214
D.I.4. Conclusions .....	215
<b>D.II. EFFET COUPLE DES PLATEAUX ET DU DEBIT LIQUIDE.....</b>	<b>216</b>
D.II.1. Mélange de la phase liquide .....	217
D.II.2. Taux de vide global .....	217
D.II.2.a. Tendances générales .....	217
D.II.2.b. Evolutions axiales.....	218
D.II.2.c. Evolution axiale entre deux plateaux.....	221
D.II.3. Taux de vide local, fréquence de bulles.....	221
D.II.3.a. Profils.....	222
D.II.3.a. Valeurs centrales.....	224
D.II.4. Aire interfaciale et diamètre de Sauter .....	226
D.II.4.a. Profils.....	226
D.II.4.b. Valeurs centrales.....	228
D.II.5. Conclusions.....	230
<b><u>PARTIE E : CONCLUSIONS, PERSPECTIVES</u></b>	<b>230</b>

<b>CHAPITRE V : TRANSFERT DE MATIERE</b>	<b>233</b>
<b><u>PARTIE A : CHOIX D'UNE METHODE ADAPTEE</u></b>	<b>233</b>
<b>A.I. METHODES EXPERIMENTALES CLASSIQUES DE MESURE DE <math>k_L a</math> .....</b>	<b>234</b>
A.I.1. Méthodes chimiques .....	234
A.I.2. Méthodes physiques .....	235
A.I.2.a. Méthode stationnaire .....	235
A.I.2.b. Méthode dynamique (transitoire) .....	236
<b>A.II. CHOIX ET MISE AU POINT D'UNE METHODE ADAPTEE A NOTRE     ETUDE .....</b>	<b>237</b>
A.II.1. Contraintes spécifiques à notre étude, choix de la méthode .....	237
A.II.2. Choix du gaz et de la méthode analytique de dosage associée .....	237
A.II.2.a. Données de solubilité dans le cyclohexane .....	237
A.II.2.b. Cas de l'oxygène .....	238
A.II.2.c Méthodes de caractérisation de gaz dissous autres que $O_2$ .....	238
A.II.3. Synthèse .....	240
<b><u>PARTIE B :MISE EN ŒUVRE</u></b>	<b>240</b>
<b>B.I. MISE EN ŒUVRE SUR PILOTE .....</b>	<b>240</b>
<b>B.II. ANALYSE DES ECHANTILLONS PAR SPECTROMETRIE INFRAROUGE     .....</b>	<b>241</b>
B.II.1. Appareillage .....	241
B.II.2. Spectres obtenus .....	243
<b>B.III. TRAITEMENT DES DONNEES .....</b>	<b>245</b>
B.III.1. Efficacité du transfert .....	245
B.III.2. Coefficient $k_L a$ .....	245
B.III.3. Données nécessaires au traitement .....	247
<b><u>PARTIE C :RESULTATS</u></b>	<b>248</b>
<b>C.I. EFFICACITE .....</b>	<b>250</b>
<b>C.II. COEFFICIENT <math>k_L a</math> .....</b>	<b>251</b>
<b>C.III. LIEN ENTRE L'HYDRODYNAMIQUE ET LE TRANSFERT DE MATIERE     .....</b>	<b>253</b>
C.III.1. $k_L a/\varepsilon_G$ .....	253
C.III.2. $k_L a/a$ .....	253
<b><u>PARTIE D :CONCLUSIONS</u></b>	<b>255</b>
<b>CONCLUSIONS</b>	<b>257</b>

<b>NOMENCLATURE</b>	<b>259</b>
---------------------	------------

---

<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b>	<b>263</b>
------------------------------------	------------

---

<b>ANNEXES</b>	
----------------	--

---

## CONTEXTE GENERAL DE L'ETUDE

Les colonnes à bulles sont des contacteurs gaz-liquide largement répandus industriellement en raison de leur simplicité de conception et de leurs performances en transfert de matière et de chaleur. Pourtant, malgré leur utilisation fréquente comme réacteur fonctionnant en continu, les études en la matière reportées dans la littérature sont souvent restreintes à un fonctionnement en batch sur le liquide (généralement une solution aqueuse), à faible taux de vide et à température et pression ambiantes ; les études en conditions de type industriel (utilisation de solvant, débits importants, température et pression élevées) restent anecdotiques.

Les colonnes à bulles génèrent des écoulements gaz-liquide complexes, difficiles à caractériser précisément, mais surtout à anticiper. Afin de progresser dans la prévision des phénomènes, et donc des performances des appareils, les outils de simulation connaissent des développements incessants. La tâche n'est cependant pas aisée et malgré les grandes avancées réalisées en la matière, l'application prédictive de ces méthodes en conditions industrielles est loin d'être d'actualité. En effet, il est encore hors de question de prédire le comportement d'une colonne à partir de sa géométrie (distributeur de gaz inclus), des débits d'alimentation en gaz et liquide et de l'ensemble des propriétés physiques des deux phases fluides. Actuellement les modélisations les plus aptes à décrire une colonne industrielle reposent sur une représentation continue des deux phases, basée sur les caractéristiques moyennes temporelles en tout point (modèles Euler-Euler). Avec l'accélération continue des capacités de calcul il est possible que des modèles plus physiques, prédisant le déplacement de millions de bulles (modèles Euler-Lagrange), se développent à l'échelle industrielle. Ces divers modèles, dans le meilleur des cas, impliquent des bilans de populations sur plusieurs classes de tailles de bulles, pour simuler la réalité de bulles polydispersées, mais il faut leur fournir une distribution d'alimentation (ou initiale) et surtout des paramètres dans les modèles de coalescence-rupture qui sont encore très approximatifs. Enfin, la physique élémentaire au niveau d'une bulle est basée sur une forme sphérique ou parfois ellipsoïdale très éloignée des bulles réelles et la turbulence liquide liée aux sillages de bulles pose encore de gros problèmes.

Ainsi, au vu de cette liste non exhaustive des limitations de la modélisation, il est évident qu'à moyen terme des expériences en conditions réalistes sont indispensables à une meilleure connaissance des appareils industriels. Les données de ces expériences permettront de mieux comprendre ces écoulements et les performances des réacteurs industriels, de valider ou non des options de conception et d'en proposer de nouvelles.



Cette thèse CIFRE, réalisée pour Rhodia au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse a donc pour objectif ambitieux de caractériser expérimentalement une colonne à bulles en conditions industrielles.

Les conditions « cibles », dictées par le procédé industriel, sont les suivantes :

- \_ Liquide organique à base de cyclohexane,
- \_ Distribution du gaz par des tores percés d'orifices de 1mm,
- \_ Ecoulement partitionné par des plateaux perforés,
- \_ Vitesse superficielle de liquide de 8cm/s,
- \_ Vitesse de gaz importante,
- \_ Température et pressions élevées.

En parallèle, la colonne est également étudiée en conditions « classiques » (colonne sans internes, en fonctionnement en eau et en batch), afin de mieux appréhender, par référence à la bibliographie, les effets méconnus de l'utilisation de solvant, d'un débit liquide conséquent et de la présence de plateaux perforés. Ainsi, cette étude, d'enjeu industriel, doit également permettre de progresser dans la connaissance plus générale des colonnes à bulles.

La caractérisation de l'hydrodynamique de cette colonne est envisagée tant à l'échelle globale, qui fournit des mesures fiables applicables en usine et qui permettent de comparer le fonctionnement de notre colonne par rapport à celui des installations industrielles, qu'à l'échelle locale, dont les mesures sont plutôt dédiées à la compréhension des écoulements à bulles à fort taux de gaz.

Le critère ultime pour évaluer l'efficacité d'un contacteur gaz-liquide reste cependant le transfert de matière. Or, cette donnée, cruciale pour l'industriel, est encore méconnue en cyclohexane. Par conséquent, son évaluation ajoute un intérêt primordial aux données hydrodynamiques.

Les conditions contraignantes à étudier et la manipulation de solvants imposent la conception d'un pilote spécifique et de conditions de sécurité particulières. En outre, les écoulements chaotiques engendrés dans ce type d'appareil compliquent l'analyse et mettent à mal l'utilisation des métrologies classiques. Une stratégie expérimentale adaptée doit être choisie.

Ce manuscrit s'articule en cinq chapitres.

Le premier chapitre offre un tour d'horizon rapide des connaissances en colonnes à bulles et des analyses classiquement adaptées à ces appareils, évaluées pour nos essais. Dans un second temps, les connaissances concernant les conditions opératoires industrielles sont répertoriées et permettent de dégager les aspects à approfondir ; une stratégie d'étude est alors élaborée.

Les appareils et milieux nécessaires à cette démarche sont précisés au chapitre II. Le cœur de ce chapitre s'intéresse à la description de l'installation pilote conçue pour travailler dans les conditions industrielles fixées, et met en évidence les différents enjeux de sa conception. Ce chapitre détaille également une installation à petite échelle de type « aquarium » qui permet de compléter les données obtenues en pilote.

Les métrologies mises en œuvre pour caractériser l'hydrodynamique de ces installations font l'objet du chapitre III. Les métrologies globales, assez classiques posent peu de problème, alors que l'analyse locale s'avère moins évidente : les trajectoires chaotiques des bulles rendent le traitement des données délicat ; une étude approfondie à ce sujet est nécessaire. Les problèmes soulevés lors de cette analyse et la démarche retenue sont analysés en détail.

Une fois la démarche expérimentale établie, la caractérisation de l'hydrodynamique en pilote peut commencer (chapitre IV). Initiée par l'étude de la configuration « classique » de la littérature (colonne sans interne en eau, sans débit liquide), l'étude s'oriente progressivement

vers la configuration industrielle, en abordant tour à tour les effets du milieu, du débit liquide et des plateaux perforés. L'acquisition et l'analyse des résultats portent successivement sur les évolutions axiales de taux de vide global et les évolutions axiales et radiales de valeurs locales du taux de vide, de la fréquence de bulles, des diamètres de bulles et de l'aire interfaciale.

Pour compléter cette étude, le transfert de matière est évalué au chapitre V dans les mêmes conditions opératoires que précédemment. Les conditions les plus difficiles (cyclohexane, forts débits, circulation liquide) requièrent l'élaboration d'une méthode spécifique. Des estimations rares du coefficient de transfert volumétrique  $k_L a$  en cyclohexane sont alors obtenues et les grandes tendances sont comparées à celles observées lors de l'étude de l'hydrodynamique.



# **CHAPITRE I : CARACTERISATION EXPERIMENTALE DES COLONNES A BULLES**

L'objectif de cette thèse est la caractérisation expérimentale d'une colonne à bulles en conditions industrielles. Dans cette optique, une stratégie d'étude doit être établie.

Au préalable, la caractérisation globale et locale d'une colonne à bulles « classique » est décrite (partie A). Elle permet de mieux connaître les écoulements en présence, mais aussi de lister, pour une configuration très étudiée, les grandeurs utiles à la caractérisation de l'écoulement et les approches globales les plus utilisées pour représenter les phénomènes, approches chères à l'industriel.

Pour s'approcher des conditions industrielles, un bilan sur les effets connus de la nature du milieu, du débit de liquide et de la présence de plateaux perforés est établi (partie B). Les lacunes et manques en ce domaine sont ainsi mis à jour et conduisent à l'élaboration d'une stratégie d'étude et à la définition des paramètres sensibles étudiés dans la suite (partie C).

## **PARTIE A : CARACTERISATION D'UNE COLONNE A BULLES « CLASSIQUE » (colonne sans internes, solution aqueuse, fonctionnement batch sur le liquide)**

---

Les colonnes à bulles peuvent être caractérisées à deux échelles : globale et locale.

L'échelle globale est la plus étudiée et la plus facilement accessible (surtout industriellement). Elle fournit des informations générales intéressantes sur l'écoulement et est particulièrement propice aux développements de modèles ou de corrélations pour la prédiction ou l'extrapolation en installations industrielles.

Les informations à l'échelle locale sont beaucoup plus difficiles à obtenir. Elles sont néanmoins incontournables pour une analyse et une compréhension plus poussée des écoulements.

Ces deux approches, aux informations complémentaires, sont tour à tour décrites dans cette partie.

## A.I. APPROCHE GLOBALE

L'approche globale repose sur l'estimation de trois paramètres principaux qui sont : le taux de vide, le coefficient de transfert volumétrique  $k_L a$  (indicateur du transfert de matière) et l'efficacité du mélange. La plupart des études sont réalisées en taux de vide, grandeur facilement accessible liée au type de bullage ; elle peut être mesurée industriellement sans perturber le fonctionnement normal de l'installation.

### A.I.1. Régimes hydrodynamiques de bullage

Dans l'approche globale, l'un des moyens les plus classiques de caractérisation d'une colonne est la distinction de différents régimes hydrodynamiques. Cette approche, bien que simpliste, est encore largement utilisée. En effet, malgré son caractère rustique, elle fait, aujourd'hui encore, l'objet de nombreuses publications, car les régimes conditionnent profondément l'efficacité d'un réacteur ; il est donc primordial pour un industriel de savoir dans quel régime son appareil opère. Quatre régimes hydrodynamiques sont classiquement distingués :

- \_ Le régime homogène,
- \_ Le régime hétérogène,
- \_ Le régime de transition,
- \_ Le régime à bouchons.

Ils diffèrent par leur type d'écoulement, ainsi que par leur sensibilité aux paramètres géométriques (géométrie du distributeur et de la colonne) et opératoires (débits, propriétés physiques du liquide). De ce fait, les corrélations et performances énoncées en colonnes à bulles doivent être interprétées avec prudence, car elles sont en général propres au régime pour lequel elles ont été établies.

La description des régimes présentée ici fait le point sur l'ensemble des connaissances en la matière. Elle fait ponctuellement référence à des études locales, études qui permettent de développer et d'expliquer les tendances globales observées, mais les régimes restent une notion globale.

#### A.I.1.a. Régime homogène

Le régime homogène est régi par des mécanismes simples : les bulles formées au distributeur, toutes de la même taille, montent verticalement à une vitesse donnée et sans interagir (pas de coalescence) (cf. Figure 1) ; il n'y a pas de circulation liquide à grande échelle.

Compte tenu des caractéristiques très restrictives de ce régime, il ne peut exister qu'à faibles densités de bulles. Sinon, les interactions entre bulles sont inévitables (à moins de stabiliser les interfaces) et engendrent des bulles plus grosses, donc non sphériques et animées d'un mouvement non vertical. Ainsi, ce régime se caractérise expérimentalement par :

- \_ De faibles valeurs de taux de vide global,
- \_ Des valeurs locales de taux de vide, de vitesses et de tailles de bulles uniformes dans toute la colonne.

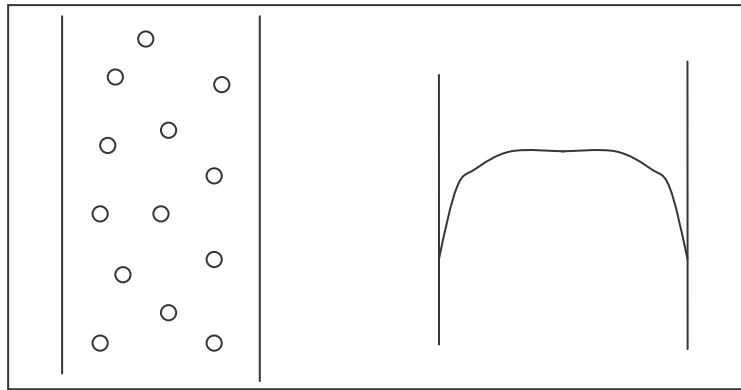


Figure 1 : Caractéristiques du régime homogène : répartition des bulles et profil-type de taux de vide (moyennes temporelles)

En toute rigueur cependant, de tels écoulements sont peu réalistes et leurs caractéristiques doivent être nuancées :

- \_ Les bulles n'ont pas rigoureusement la même taille : la distribution de taille de bulles est étroite, centrée sur de faibles valeurs de diamètre.
- \_ L'ascension des bulles n'est pas rigoureusement verticale : elle s'en approche pour des diamètres de bulles inférieurs à 1-2mm [Bach et Pilhofer (1978), Zahradnik et al. (1997)] ou devient plus oscillante (oscillations axiales et transverses de faible amplitude) pour des diamètres supérieurs [Zahradnik et al. (1997)].
- \_ La distribution radiale de gaz n'est pas totalement uniforme dans toute la gamme de vitesses du régime homogène : des écarts radiaux apparaissent alors que le taux de vide global présente encore les caractéristiques du régime homogène [Müdde et Van den Akker (1999)].

Par ailleurs, bien qu'il n'existe aucune circulation liquide grande échelle, une circulation à l'échelle de la bulle est inévitable. En effet, lors de leur ascension, les bulles entraînent un petit volume de liquide, liquide qui doit, en fonctionnement batch, nécessairement redescendre. Cet écoulement à contre-courant freine l'ascension des bulles et engendre une légère augmentation du taux de vide.

Le champ de vitesse à petite échelle est instationnaire et très fluctuant sur les petites échelles de temps, mais les profils radiaux de vitesse et de degré de vide moyennés dans le temps restent plats [Ruzicka et al. (2001)]. La turbulence n'est pas isotrope et son échelle est de l'ordre du diamètre de bulle [Zahradnik et al. (1997), Olmos et al. (2003)].

Enfin, puisque, dans ce régime, les bulles ont en théorie toutes la même vitesse, leur temps de séjour est identique et le taux de vide est proportionnel à la vitesse superficielle de gaz : si le débit de gaz est doublé, le taux de vide l'est également. Ainsi, sur le graphique classique représentant le taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz, le régime homogène est idéalement représenté par une droite. Le taux de vide peut alors être exprimé par

$$\varepsilon_G = \frac{u_G}{v_{B,\infty}} \quad (\text{où } v_{B,\infty} \text{ est la vitesse terminale d'ascension d'une bulle), \text{ lorsque les bulles}$$

n'interagissent pas entre elles.

La réalité est cependant un peu différente, car le couplage hydrodynamique entre les phases est inévitable : la courbe expérimentale n'est pas rigoureusement une droite mais une portion de courbe quasi-linéaire souvent représentée par une équation de la forme :

$$\varepsilon_G = \alpha u_G^r \quad (\text{eq.1})$$

où :  $r=0,7-1,2$  [Shah et al. (1982), Kawase et al. (1987), et Müller-Steinhager (1992), Reilly et al. (1994), Sarrafi et al. (1999), Ruzicka et al. (2001), Moustiri et al. (2001), Olmos et al. (2003)]

Lorsque  $r$  est supérieur à 1, le taux de vide augmente plus rapidement que dans le cas idéal : le gaz présente un temps de séjour supérieur à celui attendu, probablement parce que le film liquide descendant freine son ascension [Ruzicka et al. (2003)]. Lorsque  $r$  est inférieur à 1 en revanche, le temps de séjour des bulles est diminué par rapport à l'idéalité : les bulles sont plus déformées ou quelques grosses bulles rapides sont présentes. Cette déviation expérimentale de  $r$  par rapport à la valeur théorique de 1 montre que le régime homogène « parfait » est une vue de l'esprit.

L'augmentation ainsi observée du taux de vide avec le débit gazeux rend, au-delà d'un certain débit, les interactions entre bulles inévitables : le régime homogène ne peut plus être maintenu. Cette valeur limite de débit dépend beaucoup du distributeur de gaz : s'il est peu efficace, c'est-à-dire si de grosses bulles sont formées même à faible débit, l'établissement du régime homogène est impossible.

Comme dans ce régime la distribution initiale des bulles impose la taille des bulles et le degré de vide dans l'ensemble de la colonne (pas de coalescence), les paramètres déterminant l'écoulement sont les caractéristiques géométriques du distributeur de gaz (taille et nombre des orifices) et les propriétés physico-chimiques du système.

#### A.I.1.b. Régime hétérogène

Lorsque l'écoulement précédent devient instable, des macro-circulations liquide et gazeuse s'installent : c'est le régime hétérogène. Ces macro-circulations résultent de distributions non uniformes de vitesses et de rétention gazeuses : de grosses bulles rapides, dont le nombre croît avec la vitesse superficielle du gaz, sont formées par coalescence et s'accumulent au centre de la colonne. Des phénomènes instationnaires du type essaims de bulles ou panaches oscillants sont alors observés. Les essaims formés se déplacent comme d'énormes bulles uniques animées de fortes vitesses ; ils entraînent dans leur sillage de nombreuses petites bulles [Bach et Pilhofer (1978), Shah et al. (1982), Hyndman et al. (1997)] et du liquide.

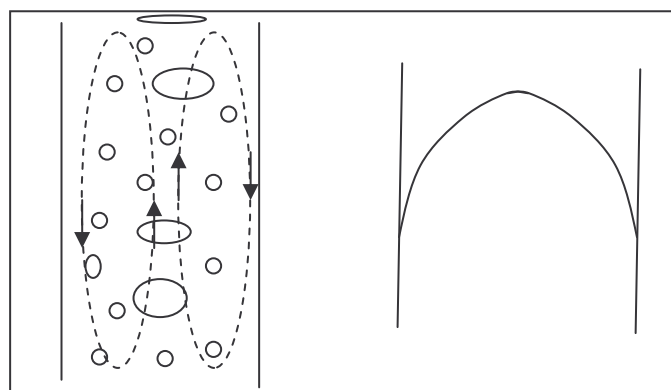


Figure 2 : Caractéristiques du régime hétérogène : répartition des bulles et profil-type de taux de vide (moyennes temporelles)

Ce régime hydrodynamique se caractérise donc par (cf. Figure 2) :

- \_ Une large distribution de taille de bulles avec un diamètre moyen gouverné par un équilibre entre coalescence et rupture [Olmos et al. (2003), Thorat et Joshi. (2004)],

- \_ Un profil radial de taux de vide bombé (maximum au centre de la colonne),
- \_ Un profil radial de vitesse de bulles parabolique, avec de très fortes vitesses au centre.

Dans ce régime, l'intensité de turbulence dépasse largement celle des autres régimes, ce qui engendre des mécanismes de transfert très différents.

L'écoulement est principalement déterminé par la circulation interne du liquide ; la dispersion primaire de gaz (bulles formées au distributeur) n'a plus d'effet sur le taux de vide global. Par conséquent, les courbes de taux de vide global issues de distributeurs différents se rejoignent à fortes vitesses (en régime hétérogène) (cf. Figure 3). On peut noter qu'avec un distributeur à gros orifices ( $d_0 > 1\text{mm}$ ) [Bach et Pilhofer (1978)], le régime hétérogène peut prédominer dans toute la gamme de vitesse superficielle de gaz, c'est le régime hétérogène pur (cf. Figure 3) [Vial et al. (2001), Jones et Züber (1975), Ruzicka et al. (2001)]. Ce dernier cas est couramment rencontrés industriellement, où l'utilisation d'orifices de l'ordre du millimètre est fréquente [Bach et Pilhofer (1978)].

La taille moyenne des bulles observées dans cet écoulement résulte d'un équilibre entre la coalescence et la rupture ; elle est de ce fait très distribuée et fonction des propriétés du liquide.

L'effet de la vitesse superficielle de gaz, pour sa part, est plus faible qu'en régime homogène : le taux de vide augmente en  $u_G^r$ , avec  $r$  compris entre 0,4 et 0,7 [Shah et al. (1982)]. Le degré de vide augmente moins vite avec la vitesse superficielle de gaz du fait de la formation de bulles plus grosses par coalescence ; ces bulles, en moyenne plus concentrées au centre de la colonne, circulent plus vite et ont des temps de séjour plus faibles [Kelkar (1985), De Bruijn et al. (1988), Zheng et al. (1988)]. Quant à la vitesse des bulles, elle présente, selon Ohki et Inoue (1970) et Ruzicka et al. (2003), une augmentation linéaire en fonction de la vitesse superficielle de gaz :  $v_B = v_{B,\infty} + Bu_G$  [Ruzicka et al. (2003)].

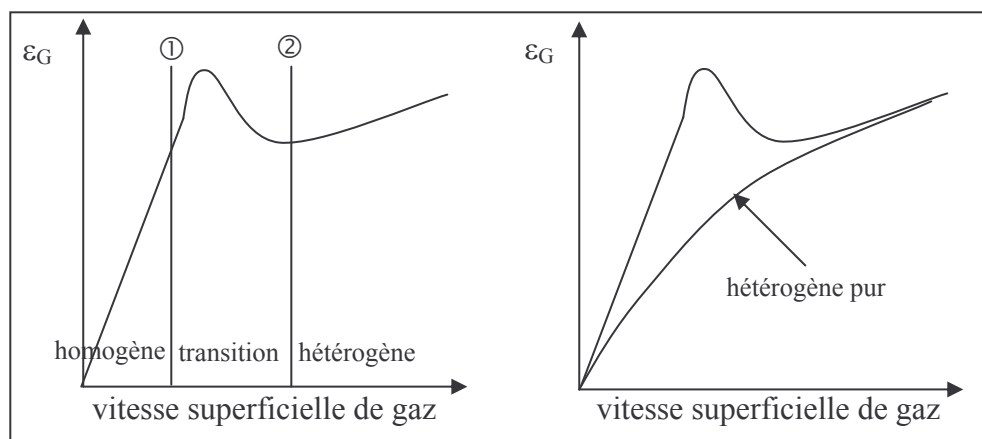


Figure 3 : Comparaison des courbes de degré de vide en présence et en absence de régime homogène [Ruzicka et al. (2001a)]

#### A.I.1.c. Régime à bouchons

Le régime à bouchons est un cas particulier du régime hétérogène rencontré en colonne de petit diamètre ( $D_c < 0,1\text{m}$  [Kelkar (1985)] ou  $D_c \leq 0,15\text{m}$  [Shah et al. (1982)]). Il est par conséquent peu observé en colonnes industrielles. Dans ce régime, les grosses bulles, stabilisées par les parois, forment des « bouchons » de vitesse d'ascension importante et de taille proche du diamètre de la colonne (cf. Figure 4) ; il y a alors alternance de poches de gaz



et de liquide. Ce régime est profondément instationnaire [Guet et al. (2002)] et son domaine d'application s'élargit lorsque les liquides sont très visqueux [Godbole et al. (1984)]. D'occurrence impossible dans notre étude, ce régime n'est pas détaillé davantage.

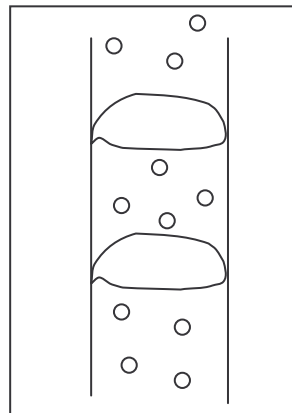


Figure 4 : Caractéristiques du régime à bouchons

#### A.I.1.d. Transition

En régime homogène, les structures turbulentes, de petite échelle, ne sont pas visibles dans les moyennes temporelles, alors qu'en régime hétérogène, elles atteignent des tailles comparables à celles de la colonne, produisant de la cohérence à grandes échelles et en moyenne une boucle de recirculation. Par conséquent, le passage du régime homogène au régime hétérogène (ou à bouchons) ne peut pas être soudain : il passe par le développement progressif et sans à-coup de la turbulence [Bennett et al. (1999), Ruzicka et al. (2001a)], processus intermittent dans l'espace et le temps [Ruzicka et al. (2001a)]. Cette situation intermédiaire, instable et complexe, constitue le régime de transition. Il s'étale du début au développement complet de la recirculation liquide et se caractérise par un nombre croissant de structures cohérentes (circulation, vortex), germes du régime hétérogène, de taille et d'intensité croissantes [Ruzicka et al. (2001a)].

Ce régime est complexe et peut prendre des formes très diverses selon l'importance relative de  $u_G$ , de la coalescence et des recirculations.

Olmos et al. (2003) découpent, dans une colonne 2D, le régime de transition en deux parties (cf. Figure 5).

Dans la première (T1), la structure de l'écoulement n'est pas encore établie : la coalescence n'a lieu qu'à proximité du distributeur où les panaches de bulles individuelles se transforment en un panache oscillant de bulles serrées. Cependant, ce panache n'est pas stable et la structure de l'écoulement retrouve, plus haut dans la colonne, une structure similaire à celle de l'homogène : les bulles présentent des trajectoires individuelles, mais la taille des bulles n'est plus directement fixée par le distributeur... La hauteur nécessaire pour retrouver ce régime pseudo-homogène augmente avec la vitesse superficielle de gaz, jusqu'à atteindre la hauteur de la colonne : le régime de transition est alors pleinement établi (T2).

Ruzicka et al. (2001a) considèrent pour la modélisation une transition du même type : il existe en régime transitoire une portion de colonne opérant en conditions homogènes.

Il est toutefois peu probable que ces représentations soient généralisables à toutes les installations, car le type de distributeur et de liquide employé conditionne fortement l'allure de la courbe dans la transition.

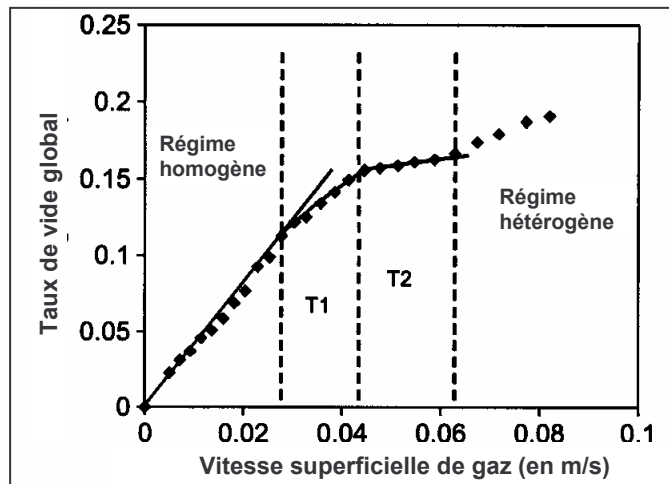


Figure 5 : Evolution du taux de vide global avec la vitesse superficielle de gaz selon Olmos et al. (2003) (colonne 2D, distribution de gaz uniforme)

#### A.I.1.e. Récapitulatif

Le Tableau 1 récapitule les principales caractéristiques des deux régimes principaux : le régime homogène et le régime hétérogène.

	Régime homogène	Régime hétérogène
<b>Taux de vide</b>	uniforme	profil radial prononcé
<b>Vitesse de gaz</b>	faible / uniforme	grande / non uniforme
<b>Taille des bulles</b>	petite	grande
<b>Distribution taille de bulles</b>	étroite	large
<b>Trajectoire des bulles</b>	verticale	irrégulière
<b>Coalescence/ rupture</b>	absente	présente
<b>Liquide</b>	pas de macro-circulation échelle de la bulle	macro-circulation échelle de $D_c$
<b>Paramètres clefs</b>	distributeur, $u_G$ propriétés physico-chimiques du système (++)	$u_G$ propriétés physico-chimiques du système (+)

Tableau 1 : Caractéristiques des régimes homogènes et hétérogènes.

Comme énoncé en préambule, il est important pour un industriel de savoir dans quel régime hydrodynamique son appareil opère. Il serait donc intéressant de pouvoir prédire la zone de débits gazeux de la transition, d'autant plus que cette valeur est également utilisée dans certains modèles de calcul de taux de vide, comme le modèle à deux populations de Krishna et al. (1999). Diverses approches, résumées en annexe I.A, ont été envisagées, mais le caractère progressif du phénomène est un frein aux tentatives de prévision. Malgré les continuels efforts en ce sens, il semble peu réaliste de vouloir quantifier précisément les transitions.

Les valeurs caractérisant la fin du régime homogène, ainsi que son existence, dépendent de nombreux facteurs [Heijnen et Van't Riet (1984), Joshi et al. (1990), Krishna et al. (1999), Lin et Fan (1999)] :

- \_ Le type de distributeur de gaz : plus le distributeur est efficace, plus la transition est repoussée vers de plus grands débits gazeux. Cette transition ne peut toutefois pas

excéder une valeur limite de débit (ou de taux de vide) au-delà de laquelle l'écoulement est gouverné par la circulation macro-échelle.

- \_ La géométrie de la colonne : hauteur, diamètre (importance relative des effets de parois) [Zahradnik et al. (1997)],
- \_ Les propriétés liquide : viscosité, tension superficielle,
- \_ La présence de tensio-actifs ou d'impuretés gênant la coalescence,
- \_ La densité gazeuse,
- \_ La circulation liquide [Vial et al. (2001)].

En solutions aqueuses, avec un distributeur suffisamment efficace, le régime homogène s'étend classiquement jusqu'à  $u_G=3-5\text{cm/s}$  et le régime hétérogène débute aux alentours de  $7-9\text{cm/s}$ .

### A.I.2. Approches globales classiques de la dispersion du gaz en colonne à bulles

Pour expliquer et comprendre les phénomènes observés en colonne à bulles, une multitude de modèles globaux a été élaborée pour la phase gaz. Quatre approches sont présentées ici du fait de leur simplicité et de leur popularité. Ce sont :

- \_ Le concept de flux de dérive,
- \_ Le calcul du taux de vide à partir de la vitesse de la phase gazeuse,
- \_ Le modèle à deux classes de bulles,
- \_ La méthode de désengagement dynamique du gaz.

Ces modèles sont souvent utilisés indifféremment pour prévoir les régimes de bullage ou pour estimer les valeurs des caractéristiques hydrodynamiques (taux de vide principalement).

#### A.I.2.a. Concept de flux de dérive du gaz

Cette approche a connu au fil des années de nombreuses déclinaisons. Elle repose sur le flux de dérive  $j_{GL}$  (ou  $j_{LG}$ ), flux de gaz (ou de liquide) associé à la différence entre la vitesse de la phase gaz (ou liquide) et la vitesse du mélange diphasique gaz-liquide ( $v_m$ ). Ce flux peut s'écrire sous la forme :

$$j_{GL} = \varepsilon_G (v_G - v_m) \quad (\text{eq.2})$$

$$j_{LG} = \varepsilon_L (v_L - v_m) = (1 - \varepsilon_G)(v_L - v_m) \quad (\text{eq.3})$$

Comme  $j_{LG} = -j_{GL}$  (conservation de la masse), le flux de dérive s'écrit :

$$j_{GL} = \varepsilon_G \varepsilon_L (v_G - v_L) = \varepsilon_G (1 - \varepsilon_G) u_S = u_G (1 - \varepsilon_G) - u_L (1 - \varepsilon_G) \quad (\text{eq.4})$$

Ce flux est fréquemment utilisé pour la prédiction des transitions, comme le propose Wallis (1962) pour un fonctionnement batch sur le liquide ( $u_L=0$ ) : un changement de pente de  $j_{GL}=u_G(1-\varepsilon_G) = f(\varepsilon_G)$  correspond à un changement de régime [Shah et al. (1982), Kelkar (1985), Krishna et al. (1999), Jamialahmadi et al. (2000), Vial et al. (2001), Ruzicka et al. (2001a et b)]. Ce flux est également fréquemment utilisé pour modéliser et prédire le taux de vide.

**A.I.2.a.α Approche de Lapidus et Elgin (1957)**

En régime homogène, Lapidus et Elgin (1957) supposent que la vitesse de glissement,  $u_s$  ne dépend que de la vitesse terminale d'ascension,  $v_{B,\infty}$ , et du taux de vide,  $\varepsilon_G$  :

$$u_s = v_G - v_L = \frac{u_G}{\varepsilon_G} - \frac{u_L}{1 - \varepsilon_G} = v_{B,\infty} \Phi(\varepsilon_G) \quad (\text{eq.5})$$

Lorsque le comportement de l'écoulement s'écarte de cette tendance, c'est-à-dire que la vitesse de glissement fait intervenir d'autres paramètres tels que la circulation liquide, le régime homogène est terminé.

Si l'équation (eq.5) est introduite l'équation du flux de dérive (eq.4), le flux de dérive s'écrit :

$$j_{GL} = u_G(1 - \varepsilon_G) - u_L(1 - \varepsilon_G) = u_s \varepsilon_G (1 - \varepsilon_G) = v_{B,\infty} \varepsilon_G (1 - \varepsilon_G) \Phi(\varepsilon_G) \quad (\text{eq.6})$$

Dans la littérature, plusieurs expressions sont proposées pour  $\Phi(\varepsilon_G)$  [Shah et al. (1982), Joshi et Lali (1984), Snape et al. (1995), Jamialahmadi et al. (2000)], afin de déduire de l'expression ci-dessus une relation simple pour la prévision du taux de vide en régime homogène (en supposant la vitesse terminale d'ascension,  $v_{B,\infty}$ , connue). L'équation de Richardson et Zaki (1954) est souvent recommandée, car elle s'applique jusqu'à des taux de vide de 30% [Shah et al. (1982)] (en régime homogène !). Elle s'écrit :

$$\Phi(\varepsilon_G) = (1 - \varepsilon_G)^{n-1} \quad (\text{eq.7})$$

avec :  $n=2,39$  (système air-eau)

**A.I.2.a.β Approche de Züber et Findlay (1965)**

En régime hétérogène, l'approche précédente n'est plus valable ; pour étendre sa gamme de validité, Züber et Findlay (1965) moyennent le flux de dérive sur une section. Il en découle que la courbe  $u_G/\varepsilon_G = f(u_G + u_L)$  permet de visualiser les différents régimes hydrodynamiques : un changement de pente caractérise un changement de régime, chaque régime (homogène, transition et hétérogène) étant représenté par une portion de droite. On écrit alors pour chaque régime :

$$\frac{u_G}{\varepsilon_G} = C_0 (u_G + u_L) + C_1 \quad (\text{eq.8})$$

où,  $C_0$  et  $C_1$  sont des constantes

Lorsque la phase liquide est stationnaire, ces constantes peuvent être écrites sous la forme :

$$C_0 = \frac{\langle \varepsilon_G u_G \rangle}{\langle \varepsilon_G \rangle \langle u_G \rangle} \quad \text{et} \quad C_1 = \frac{\langle j_{GL} \rangle}{\langle \varepsilon_G \rangle} = \frac{\langle \varepsilon_G \varepsilon_L u_s \rangle}{\langle \varepsilon_G \rangle} = \frac{\langle \varepsilon_G (1 - \varepsilon_G) u_s \rangle}{\langle \varepsilon_G \rangle} \quad (\text{eq.9})$$

où les crochets correspondent aux moyennes spatiales

Si la phase liquide n'est pas stationnaire, ces expressions font intervenir la vitesse du mélange  $v_m$  au lieu de la vitesse superficielle de gaz.

Un sens physique est parfois donné aux constantes  $C_0$  et  $C_1$  :

- \_ Le **paramètre**  $C_0$  représente la non uniformité des profils radiaux ; il vaut théoriquement 1 si le profil est uniforme. Ainsi les valeurs de  $C_0$  obtenues en régime homogène sont assez proches de 1 (1,08 pour Snape et al. (1995)), alors qu'elles sont supérieures en régime hétérogène (1,5 pour Snape et al. (1995)), où la distribution n'est plus uniforme (Parasu Veera et al. (2001) obtiennent des valeurs atteignant 2,5). Cette interprétation n'est toutefois pas toujours valable, puisque Legius et al. (1997) observent une valeur de 1,2 tant en homogène qu'en régime à bouchons.  
Cette constante dépend de tous les facteurs pouvant influencer la distribution du gaz, et notamment de la présence de tensio-actifs. Parasu Veera et al. (2001) observent ainsi que  $C_0$  diminue lorsque la concentration de butanol dans l'eau augmente.
- \_ Le **paramètre**  $C_1$  est associé à une vitesse de dispersion ; il est souvent assimilé à la vitesse de bulle ou à la vitesse terminale d'ascension. Les valeurs de  $C_1$  obtenues par Parasu Veera et al. (2001) balaient la gamme 0,2-1,3m/s.

La prédiction des paramètres  $C_0$  et  $C_1$  est indispensable à la modélisation du taux de vide à partir de l'expression (eq.8). A cet effet, Hibiki et al. (2003a et b) ont développé un modèle pour déterminer en conduite les coefficients  $C_0$  et  $C_1$  propres à chaque régime. Ils mettent en évidence une grande sensibilité de ces valeurs à la présence de grosses bulles et de recirculations liquide. En effet, ces phénomènes, désorganisant la distribution radiale des bulles et accélérant les bulles, causent une augmentation de  $C_0$  et de  $C_1$ . De ce fait, les coefficients  $C_0$  et  $C_1$  dépendent beaucoup du diamètre de la colonne (recirculation facilitée en colonne de grand diamètre) et de la vitesse superficielle du gaz.

#### A.I.2.b. Estimation du taux de vide à partir de la vitesse de la phase gazeuse

Le taux de vide peut être exprimé sous la forme suivante [Heijnen et Van't Riet (1984)] :

$$\varepsilon_G = \frac{u_G}{v_B} \quad (\text{eq.10})$$

Cette approche est très souvent utilisée en régime homogène, car la vitesse de bulle est proche de la vitesse terminale d'ascension (pour un diamètre de Sauter supérieur à 1mm,  $v_B \approx v_{B,\infty} \approx 0,25\text{m/s}$ ), vitesse plus facile à évaluer [Krishna et al. (2000a)].

Ruzicka et al. (2001a) généralisent cette approche au régime hétérogène en estimant la vitesse de la phase gazeuse comme la somme de la vitesse terminale de la bulle et de la vitesse de la circulation liquide :

$$v_B = v_{B,\infty} \pm w \quad (\text{eq.11})$$

où :  $w$  caractérise les interactions entre bulles et le couplage entre le déplacement des bulles et celui du liquide.

En régime homogène, ils ne supposent plus  $v_B = v_{B,\infty}$ , mais  $v_B = v_{B,\infty} - w$  pour prendre en compte le ralentissement des bulles par la descente du liquide (à petite échelle) entre les bulles. En régime hétérogène,  $w$  est ajouté, car la vitesse des bulles est accrue par la circulation liquide à grande échelle (la majorité des bulles se situent dans la zone d'ascension du liquide). En

régime de transition, un facteur supplémentaire est introduit ; il correspond à la fraction de colonne dans laquelle prédomine le régime homogène.

Ce modèle de taux de vide est toutefois assez limité : il comprend 5 paramètres ajustables, dont les vitesses terminales de bulles. Il est néanmoins cohérent avec les approches précédentes puisqu'en régime homogène, il conduit à une fonction du type  $\Phi(\varepsilon_G)$  et qu'en régime hétérogène, l'expression obtenue se rapproche de celle de Züber et Findlay (1965).

### A.I.2.c. Modèle à deux classes de bulles

L'équipe de Krishna a développé dans les années 1990 un modèle permettant la prévision du taux de vide global à partir d'une conception bimodale de la distribution des bulles. Cette théorie repose sur l'hypothèse qu'il n'y a, en régime homogène, qu'une seule population de bulles, de petits ellipsoïdes de 1 à 6mm, et que le degré de vide augmente linéairement avec la vitesse superficielle de gaz. Une fois la vitesse de transition  $u_{G,trans}$  atteinte, le degré de vide devient la somme de deux contributions : le degré de vide des petites bulles, qui est constant et égal à  $\varepsilon_{G,trans}$ , et le degré de vide dû aux grosses bulles rapides, des calottes sphériques de 20 à 80mm [Krishna et al. (1991), Hoefsloot et Krishna (1993), Krishna et al. (1999)] (cf. Figure 6). Ces dernières sont instables et coalescent et se cassent fréquemment ; leur taille dépend fortement du diamètre de la colonne et leur vitesse peut atteindre 2m/s [Krishna et al. (1999)].

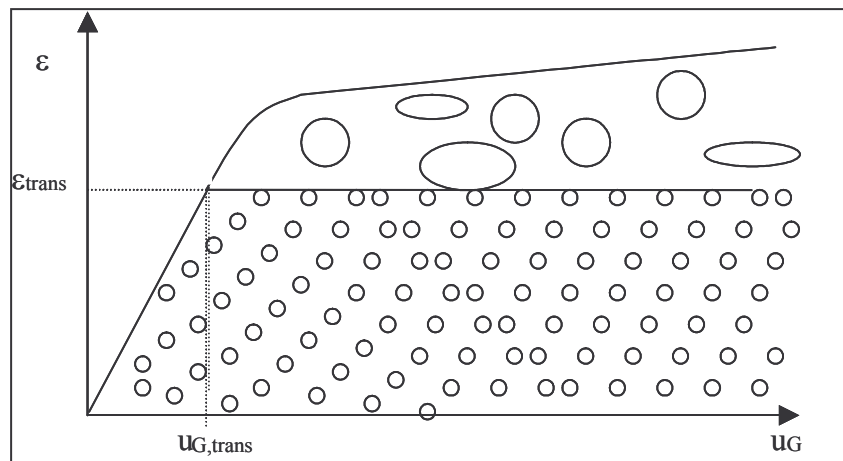


Figure 6 : Théorie bimodale de la distribution des bulles

Pour le régime homogène, Krishna et al. (1991) utilisent l'équation linéaire classique reliant le taux de vide à la vitesse superficielle de gaz [Heijnen et Van't Riet (1984)] :

$$\varepsilon_{G, \text{homogène}} = C u_G \quad \text{avec :} \quad C = \frac{1}{v_{B, \text{petites}}} = \frac{1}{0,25} = 4 \quad (\text{eq.12})$$

L'expression de C est similaire à celle du paragraphe I.2.b avec  $v_{B, \text{petites}} = 0,25 \text{ m/s}$ , valeur couramment acceptée.

Pour le régime hétérogène, le taux de vide s'écrit [Krishna et al. (1991), Wilkinson (1991)] :

$$\varepsilon_{G, \text{hétérogène}} = \varepsilon_{G, \text{trans}} + \varepsilon_{G, \text{grosses}} \quad (\text{eq.13})$$

Deux approches peuvent alors être envisagées pour estimer  $\varepsilon_{G,grosses}$  :

$$\begin{aligned} \bullet \varepsilon_{G,hétérogène} &= \varepsilon_{G,trans} + \varepsilon_{G,grosses} = \varepsilon_{G,trans} + A(u_G - u_{G,trans})^r \quad [\text{Krishna et al. (1991)}] \\ &= Cu_{G,trans} + A(u_G - u_{G,trans})^r = 4u_{G,trans} + A(u_G - u_{G,trans})^r \quad (\text{eq.14}) \end{aligned}$$

où : A et r sont issus de lissages expérimentaux  
 $u_{G,trans}$  est déterminé expérimentalement

$$\bullet \varepsilon_{G,hétérogène} = \frac{u_{G,trans}}{v_{B,petites}} + \frac{u_G - u_{G,trans}}{v_{B,grosses}} \quad [\text{Wilkinson (1991), Krishna et al. (1999, 2000a, b, 2001)}](\text{eq.15})$$

où :  $v_{B,petites}$  et  $v_{B,grosses}$  sont issues de corrélations (cf. Reilly et al. (1994), Krishna et al. (1999, 2000a et b, 2001))

Cette approche est intéressante mais demeure assez simpliste : la vision bimodale des bulles semble assez réaliste et a même été mise en évidence expérimentalement [Kim et al. (2000), Sun et al. (2002)], mais le fait de considérer le régime hétérogène comme un simple ajout de grosses bulles aux petites bulles du régime homogène est assez osé.

#### A.I.2.d. Distribution de taille de bulles : Désengagement Dynamique du Gaz

La seule méthode expérimentale permettant de caractériser globalement la distribution des bulles est le désengagement dynamique du gaz (DDG). Cette méthode, initialement introduite par Sriram et al. (1977), a depuis fait l'objet de nombreux développements. Cette approche est très attractive, puisqu'elle permet, après l'arrêt brusque des alimentations gaz et liquide, de caractériser la structure de l'écoulement à bulles (régime hydrodynamique, vitesse de bulles, ...) à partir de la seule évolution de la hauteur de la dispersion gaz-liquide (ou de celle du taux de vide). Une distribution de taille de bulles peut même être obtenue si une relation fiable est établie entre la vitesse d'ascension des bulles et leur taille.

Le signal obtenu par cette méthode peut être traité de diverses manières, selon l'hypothèse faite sur la distribution des tailles de bulles (cf. Figure 7) :

- \_ Distribution bimodale (la plus courante) [Vermeer et Krishna (1981), Schumpe et Grund (1986), Hofman et Gasche (1988), Deshpande et al. (1995)] : distinction de deux pentes sur la courbe de désengagement,
- \_ Distribution multimodale [Sasaki et al. (1986), Patel et al. (1989), Vial et al. (2000)] : distinction de n pentes sur la courbe de désengagement, n étant le nombre de population,
- \_ Distribution continue [Sriram et al. (1977)].

Les principales limites du désengagement dynamique du gaz résident dans les hypothèses de base couramment associées : l'homogénéité axiale de la dispersion du gaz et l'absence d'interaction entre bulles. En effet, ces hypothèses sont loin de représenter la réalité [Luo (1993)], en particulier en régime hétérogène où les caractéristiques de l'écoulement et des bulles sont particulièrement complexes : fortes interactions bulles-bulles ainsi que liquide-bulles [Lee et al. (1999)]. Bien que certains modèles aient été corrigés pour prendre en compte ces aspects, cette méthode reste difficilement applicable en écoulement hétérogène. Toutefois, les allures générales des courbes de désengagement et leur évolution avec les conditions opératoires demeurent intéressantes.

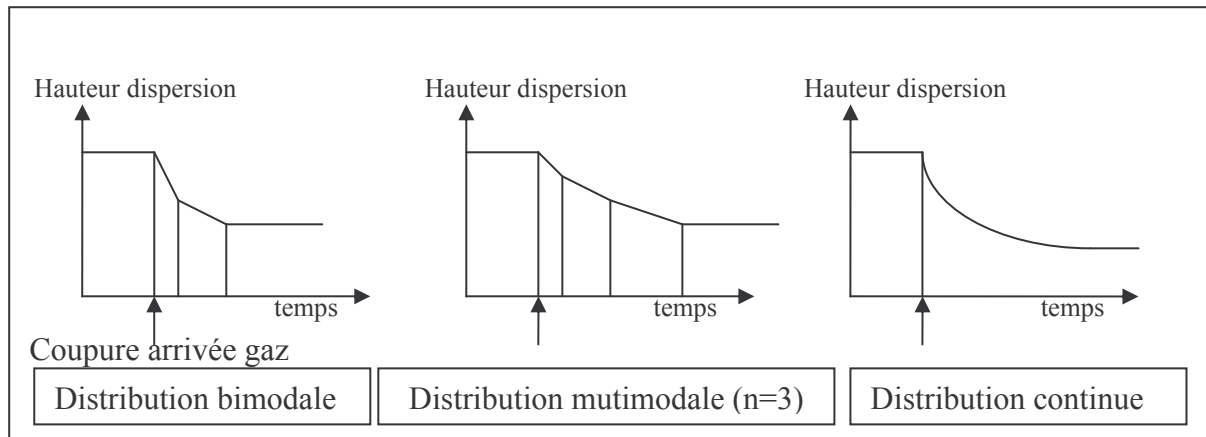


Figure 7 : Type de distribution de tailles de bulles sur les courbes de désengagement

### A.I.3. Approche globale en boucle de circulation

Pour caractériser l'écoulement en régime hétérogène, où les recirculations liquide sont importantes, l'écoulement est classiquement découpé radialement en trois zones [Franz et al. (1984)] :

- \_ La partie centrale de la colonne : dans cette partie, les bulles montent préférentiellement, la turbulence est homogène et la coalescence des bulles prédomine. Quelles que soient les conditions opératoires, la majeure partie des bulles se situe dans cette zone [Garcio Calvo et Leton (1991)].
- \_ La partie annulaire de la colonne : cette zone contient peu de bulles, l'écoulement est descendant en moyenne. La proportion de bulles dans cette zone augmente progressivement pour des débits gazeux croissants [Millies et Mewes (1995a)].
- \_ La partie intermédiaire : entre les deux parties précédentes existe une zone caractérisée par de forts gradients de vitesses et des cisaillements élevés ; la plupart de la redispersion du gaz a lieu dans cette zone. Dans cette partie, Degaleesan et al. (2001) constatent que les grosses bulles ont tendance à avoir une trajectoire ascendante et à entraîner dans leur ascension un peu de liquide, alors que les petites bulles sont préférentiellement entraînées vers le bas par la circulation liquide ; ces trajectoires antagonistes favorisent les rencontres et donc la coalescence et la rupture.

La zone d'inversion de l'écoulement, délimitant la zone ascendante et la zone descendante, est la plus turbulente [Degaleesan et al. (2001)]. Elle se situe classiquement à un rayon de colonne adimensionnel ( $r/R_C$ ) entre 0,65 et 0,8 [Fischer et al. (1994), Degaleesan et al. (2001)], la plupart des auteurs la situant toutefois aux alentours de  $r/R_C=0,7$  [Clark et al. (1987), Millies et Mewes (1995)], conformément aux prévisions d'Orell (1992).

Les caractéristiques de cette boucle de recirculation dépendent du diamètre de la colonne, du distributeur, des propriétés des fluides et du débit gazeux ; le paramètre le plus important étant le diamètre de la colonne [Joshi et Sharma (1979), Shah et al. (1982)].

Il faut garder à l'esprit que cette approche permet de représenter globalement l'écoulement dans la colonne, mais ne représente qu'une vision moyenne. Quelques analyses temporelles de l'écoulement en paroi [Groen et al. (1995), Müdde et Van Den Akker (1999)] montrent en effet qu'en régime hétérogène, les bulles ascendantes ne sont pas absentes en paroi. Groen et



al. (1995) enregistrent ainsi à la fois des bulles ascendantes et descendantes dans un mode alternatif. L'écoulement en paroi est donc loin d'être permanent puisque se superposent à la circulation liquide à grande échelle d'autres vitesses non permanentes (amas de bulles notamment).

Ainsi, même si l'écoulement liquide est classiquement représenté par une simple boucle de recirculation, l'écoulement réel est beaucoup plus complexe et dépend fortement du comportement des bulles.

Remarque :

La boucle de circulation énoncée dans ce paragraphe est la plus couramment rencontrée, mais il existe quelques cas particuliers où l'écoulement diffère, notamment, lorsque les orifices du distributeur sont suffisamment éloignés (espace supérieur à 10cm). Dans ce cas, il se forme autant de boucle de recirculation que d'orifices [Tilton et Russel (1982)]. Ce comportement dépend également du milieu liquide utilisé, comme en témoignent les résultats de Lin et al. (1996).

### **A.I.4.Corrélations entre les principales caractéristiques, tendances générales**

Certaines grandeurs globales permettent d'estimer l'efficacité de l'appareil utilisé. Ce sont le taux de vide, le coefficient de transfert de matière et les coefficients de dispersion axiale des écoulements du liquide et du gaz. Ce paragraphe se base sur les corrélations courantes associées à ces grandeurs. Les relations répertoriées en annexe I.B relient ces grandeurs aux propriétés physico-chimiques classiques (densités, viscosités et tension superficielle) et aux dimensions de la colonne (diamètre, hauteur). Ces relations sont utiles à l'industriel pour la conception d'installations.

Ces informations sont cependant insuffisantes pour une bonne prédiction, car, pour des conditions opératoires données, les résultats des diverses corrélations diffèrent largement : chaque corrélation n'est valable que pour les conditions dans lesquelles elle a été établie. Les relations sont ainsi d'autant plus générales qu'elles ont été établies pour de nombreuses configurations. La grande diversité d'équations répertoriées témoigne de la complexité des phénomènes mis en jeu puisque, à ce jour, aucune relation ne permet de décrire l'ensemble des conditions de fonctionnement.

Néanmoins, les tendances observées représentent indubitablement une partie de la réalité, car chaque corrélation est le reflet d'un certain nombre d'essais expérimentaux. Ainsi, malgré leurs limites évidentes, ces corrélations regorgent d'informations sur les comportements des colonnes à bulles et sur les paramètres influents. Les principales évolutions des trois paramètres envisagés (taux de vide,  $k_{L,A}$  et coefficient de dispersion) sont énoncés dans ce paragraphe.

#### **A.I.4.a. Taux de vide**

Le taux de vide global conditionne l'ensemble des caractéristiques du réacteur. Les corrélations classiques associées à cette grandeur sont reportées en annexe I.B. Elles font intervenir un nombre plus ou moins important de paramètres, mais un seul est omniprésent car très influent : la vitesse superficielle du gaz. Certains modèles, non reportés ici, se limitent même à exprimer le taux de vide sous la forme :

$$\varepsilon_G = b_1 u_G^n \quad (\text{eq.16})$$

La puissance  $n$  est fonction du régime hydrodynamique : elle vaut entre 0,7 et 1,2 en homogène et entre 0,4 et 0,7 en hétérogène [Shah et al. (1982), Kawase et al. (1992)]. Les puissances  $n$  reportées dans les corrélations laissent alors penser que celles-ci ont pour la plupart été établies en régime hétérogène, ce qui est assez cohérent avec l'application industrielle recherchée.

Les corrélations mentionnées font également intervenir la géométrie de la colonne (diamètre de la colonne, hauteur de liquide), les propriétés du gaz (viscosité, densité) et du liquide (viscosité, densité, tension superficielle), mais ces paramètres n'interviennent que ponctuellement au gré des conditions étudiées par les auteurs.

Ce foisonnement de corrélations prouve leurs limites, et ce, quel que soit le nombre de paramètres retenus. Cette diversité s'explique en partie par la grande sensibilité du taux de vide au système liquide et aux traces d'impuretés ; des corrélations différentes devraient être appliquées pour les liquides purs, les solutions électrolytiques, les liquides coalescents, les mélanges, etc., comme le proposent certains auteurs [Akita et Yoshida (1973), Hikita et al. (1981), Godbole et al. (1982, 1984), Chaudhari et Hofman (1994), Elgozali et al. (2002)].

#### **A.I.4.b. Coefficient de transfert de matière, $k_L a$**

Outre le taux de vide, l'étude complète des caractéristiques d'une colonne à bulles passe nécessairement par le transfert de matière, puisqu'il témoigne de l'efficacité du contacteur. Pour caractériser le transfert, le coefficient volumétrique de transfert de matière  $k_L a$  est le plus couramment utilisé. Il représente le coefficient de proportionnalité reliant le flux de matière transféré d'une phase à l'autre au potentiel de transfert en terme de concentration ( $c^* - c_L$ ).

Du fait de l'enjeu majeur de sa détermination, il a fait l'objet, comme le taux de vide, de nombreuses corrélations ; certaines d'entre elles sont répertoriées en annexe I.B. Ces corrélations sont souvent établies en solutions aqueuses, seules conditions pour lesquelles ce coefficient est assez facilement mesurable, ce qui restreint considérablement leur application et leur généralité. En effet, parmi les corrélations reportées en annexe, seule celle de Ozturk et al. (1987) a été établie pour des liquides organiques. Elles ne peuvent donc pas être utilisées dans la majorité des contacteurs industriels.

Les corrélations proposées pour prédire le coefficient de transfert de matière sont très similaires à celles observées pour le taux de vide. En effet, le coefficient de transfert de matière est le produit de la vitesse de transfert,  $k_L$ , et de l'aire interfaciale,  $a$ . Comme le paramètre le plus sensible aux changements de conditions opératoires est l'aire interfaciale,  $k_L a$  dénote des tendances similaires à celles du taux de vide. Quelques corrélations déduisent directement le coefficient de transfert de matière du taux de vide [Akita et Yoshida (1973), Gestrich et al. (1975), Akita (1989), Jordan et al. (2002), Elgozali et al. (2002)] ; le taux de vide  $y$  est alors élevé à une puissance allant de 1 à 1,18. Comme ces corrélations ne font, pour la plupart, pas intervenir la vitesse du gaz, et que la puissance à laquelle est élevée le taux de vide est proche de 1, ces corrélations mettent en évidence un rapport de proportionnalité entre  $k_L a$  et le taux de vide, la constante de proportionnalité étant fonction seulement de l'installation et des milieux.

En réalité, ce comportement est caractéristique du régime hétérogène, où  $k_L a / \varepsilon_G$ , représentant le transfert de matière volumique par unité de volume de bulle, est souvent trouvé constant et égal à  $0,5s^{-1}$  [Letzel et al. (1999) et Vandu et Krishna (2004)]. En effet, comme en régime hétérogène un équilibre entre la coalescence et la rupture est établi, la taille des bulles devient indépendante des conditions de débit gazeux et l'augmentation de l'aire interfaciale, principal facteur de  $k_L a$ , est proportionnelle à l'augmentation du taux de vide.

En régime homogène en revanche,  $k_L a / \varepsilon_G$  dépend de  $u_G$  et est beaucoup plus grand : Vandu et Krishna (2004) mettent en évidence une chute brutale du rapport  $k_L a / \varepsilon_G$  (de 0,8 à  $0,5s^{-1}$ ), au moment de la transition ; le transfert est moins efficace en régime hétérogène.

Il faut préciser qu'en régime hétérogène, le rapport  $k_L a / \varepsilon_G$  ne peut être constant que si la taille des bulles et  $k_L$  ne varient pas. Ce n'est pas le cas pour Wilkinson et al. (1994) : ils observent une augmentation du rapport  $k_L a / \varepsilon_G$  avec la vitesse superficielle du gaz, augmentation qu'ils rattachent à l'intensification du passage des bulles et à l'augmentation de  $k_L$ , dues à l'accroissement de la turbulence.

Ce lien fort unissant le taux de vide et le transfert de matière en régime hétérogène explique les tendances similaires observées pour les deux séries de corrélations.

Comme le taux de vide, le coefficient de transfert de matière dépend principalement de la vitesse superficielle de gaz, seul paramètre systématiquement représenté dans les corrélations.

Il est ainsi souvent représenté sous la forme suivante :

$$k_L a = b_2 u_G^n \quad (\text{eq.17})$$

où :  $b_2$  et  $n$  sont des constantes

La **puissance n** est toujours positive (entre 0,5 et 1) :  $k_L a$  augmente avec la vitesse superficielle de gaz, du fait de l'augmentation de l'aire interfaciale. Ce facteur  $n$  est indépendant du distributeur et a priori fonction du milieu (même si Hikita et al. (1981) utilisent un même coefficient (0,76) pour les liquides purs, les solutions non électrolytiques et les électrolytes).

En ce qui concerne le **facteur  $b_2$**  (entre 0,4 et 1,2), il dépend du distributeur et du liquide, mais principalement du distributeur : il vaut 0,46 pour un distributeur percé d'orifices de 1mm et 1,2 à 1,4 pour un poreux [Deckwer et al. (1974)]. Malgré cette forte dépendance du distributeur, celui-ci n'apparaît dans aucune des corrélations, ce qui peut expliquer les écarts entre celles-ci et limite leur applicabilité à un système utilisant un distributeur de même nature. Pour pallier ce problème, Heijnen et Van't Riet (1984) suggèrent deux corrélations, l'une pour les petites bulles (distributeur « efficace » et milieux non coalescent) et l'autre pour les bulles plus grosses (de 4 à 6mm) (milieux coalescent ou « mauvais » distributeur). Dans le cas des grosses bulles,  $k_L a$ , peu influencé par le milieu, est de la forme suivante :

$$k_L a = 0,32 u_G^{0,7} \quad (D_c = 0,08-11,6m ; H=0,3-21m ; u_G=0-0,3m/s) \text{ [Heijnen et Van't Riet (1984)]}$$

L'effet de la hauteur du liquide sur ce paramètre est très peu considéré, car les corrélations ont surtout été élaborées pour des applications industrielles, avec des distributeurs peu efficaces. Cependant, pour un distributeur efficace, les petites bulles formées au distributeur peuvent coalescer et entraîner une diminution de l'aire interfaciale et donc de  $k_L a$  avec la hauteur [Syaiful (1992), Shimizu et al. (2000)]. Alvarez-Cuenca et Nerenberg (1981) mettent ainsi en évidence que plus de 95% du transfert peut se faire dans les 20% inférieurs de la colonne.

Cette évolution axiale de  $k_L a$  est très courante et a conduit à l'élaboration de modèles à deux zones [Alvarez-Cuenca et Nerenberg (1981), Shah et al. (1982)] : dans la première zone, en bas de colonne,  $k_L a$  varie sous l'effet de la turbulence et de la coalescence [Syaiful (1992)], et dans la seconde zone, « au cœur du fluide », l'écoulement est à l'équilibre ;  $k_L a$  est constant [Hikita et al. (1981)]. La hauteur respective de chacune de ces zones dépend notamment du débit : à faible vitesse, l'évolution axiale de  $k_L a$  est relativement lente alors qu'elle est

beaucoup plus rapide à fortes vitesses (formation facilitée des grosses bulles) [Shimizu et al. (2000)].

Pour conclure,  $k_L a$  dépend principalement du taux de vide et de la taille des bulles c'est-à-dire de la vitesse superficielle de gaz, du distributeur et des propriétés physico-chimiques. Pour mieux décrire les écoulements certaines corrélations font intervenir les valeurs de taux de vide et de diamètre de bulles, ce qui nécessite soit des pré-requis de taille soit des corrélations supplémentaires, mais les corrélations en tailles de bulles sont peu satisfaisantes.

La description générale des corrélations de  $k_L a$  peut également être étoffée par les corrélations faisant intervenir séparément  $k_L$  et  $a$ , comme celles de Hughmark (1967) et de Gestrich et al. (1975-1978). Cette séparation des influences de  $k_L$  et de  $a$ , de plus en plus recherchée, est intéressante, mais le chemin est encore long avant de pouvoir l'envisager en colonne à bulles à forts débits. Cette différenciation semble en outre assez futile lorsque les données de  $k_L a$ , paramètre le plus utile, demeurent encore très peu nombreuses en liquides organiques.

#### **A.I.4.c. Coefficients de dispersion**

Les caractéristiques du mélange des phases sont importantes, car elles déterminent la force motrice du transfert. Un coefficient de dispersion est alors associé au mélange de chaque phase, même si ces coefficients ne peuvent pas être totalement découplés, le mélange d'une phase étant influencé par le mélange de l'autre. Pour une meilleure compréhension, il faudrait également évaluer les interactions entre le liquide et le gaz, comme l'envisagent Lin et al. (1996).

Les coefficients de dispersion des deux phases sont très sensibles au changement de régime de bullage : il existe, lors de la transition, un lien direct entre les modifications des coefficients de dispersion et celles du taux de vide et de  $k_L a$ .

##### ***A.I.4.c.α. Coefficient de dispersion gazeuse***

Le coefficient de dispersion en phase gaz est lié au mouvement des bulles ; il est gouverné par la circulation liquide induite et par les phénomènes de coalescence et de rupture des bulles. Facteur important dans la caractérisation d'un réacteur, il est cependant très peu étudié, du fait de la complexité de sa mesure. Lorsqu'il est évalué, il est systématiquement plus faible que son homologue en phase liquide, ce qui caractérise un écoulement plus « piston » du gaz.

Les paramètres influençant le coefficient de dispersion axiale gazeux sont identiques à ceux qui régissent le taux de vide, particulièrement en terme de propriétés physiques du système [Kantak et al. (1995)]. Les quelques corrélations reportées en annexe I.B permettent de dégager les tendances suivantes :

- \_ Le coefficient de dispersion axiale gazeux augmente avec la vitesse superficielle de gaz (effet des mouvements axiaux des bulles et des sillages),
- \_ Le coefficient de dispersion axiale gazeux augmente avec le rapport  $u_G/\varepsilon_G$ , vitesse de la phase gaz,
- \_ Le coefficient de dispersion axiale gazeux augmente avec le diamètre de la colonne à une puissance comprise entre 1,3 et 1,8.
- \_ Le coefficient de dispersion axiale gazeux dépend peu des propriétés du gaz [cf. Kantak et al. (1995)].

#### ***A.I.4.c.β Coefficient de dispersion liquide***

Le coefficient de dispersion liquide a deux origines en colonne à bulles : la turbulence liquide induite par le mouvement des bulles (prédominante en régime homogène) et la circulation liquide grande échelle (prédominante en régime hétérogène).

Les effets des différents paramètres sur ce coefficient, tirés de l'analyse bibliographique et des corrélations (cf. annexe I.B), sont les suivants :

- \_ Le coefficient de dispersion augmente avec la vitesse superficielle du gaz (puissance 0,2-1,2), car la taille des bulles, donc la turbulence et par suite le degré de mélange liquide, augmente [Yang et Fan (2003), Moustiri et al. (2001)]. Cet effet est plus prononcé en régime homogène car, en régime hétérogène, l'augmentation de  $u_G$  n'améliore pas le mélange aussi efficacement que les fluctuations turbulentes locales du régime homogène [Yang et Fan. (2003)].
- \_ Le coefficient de dispersion augmente significativement avec le diamètre de la colonne (puissance entre 1 et 2) [Yang et Fan (2003), Krishna et al. (1999), Moustiri et al. (2001)]. En effet, comme la boucle de recirculation liquide et la turbulence liquide dépendent, en régime hétérogène, du diamètre de la colonne, le degré de mélange liquide varie également avec  $D_C$ . Cependant Ohki et Inoue (1970) limitent cet effet aux diamètres de colonne inférieurs à 16cm.
- \_ Le coefficient de dispersion dépend du distributeur [Hébrard et al. (1999)] : il est plus grand pour les plateaux perforés que pour les membranes.
- \_ Le coefficient de dispersion est quasiment indépendant de la viscosité liquide [Krishna et al. (2000c)].
- \_ L'effet du débit liquide sur le coefficient de dispersion est plus controversé ; parfois trouvé négligeable [Ohki et Inoue (1970)], Zahradnik et Fiavola (1996), Yang et Fan (2003), Moustiri et al. (2001) et Shawaqfeh (2003) lui trouvent un effet positif ( $D_{zL}$  augmente avec  $u_L$ ), car la turbulence liquide est favorisée. Néanmoins cet effet demeure très faible devant celui de la vitesse gazeuse.
- \_ Le coefficient de dispersion diminue quand la pression augmente, car la taille des bulles et donc la turbulence diminuent [Yang et Fan (2003)]. Dans ce cas, l'effet d'échelle est moins prononcé [Yang et al. (2003)].

#### **A.I.4.d. Récapitulatif : tendances générales**

Compte tenu du grand nombre de variables dont dépendent le degré de vide et le coefficient de transfert de matière, il est difficile d'établir une relation valable dans tous les cas. Cependant, il découle de ces expressions certaines tendances générales.

Ainsi le degré de vide augmente lorsque :

- \_ La vitesse gazeuse croît (à l'exception de certains régimes de transition),
- \_ La tension superficielle diminue,
- \_ La viscosité liquide diminue,
- \_ La densité liquide augmente,
- \_ La densité gazeuse augmente,
- \_ Le diamètre de bulle diminue.

Les mêmes tendances sont observées pour le coefficient de transfert de matière, puisque ces deux paramètres sont très liés.  $k_L a$  augmente avec le degré de vide avec en outre une influence positive du coefficient de diffusion. Yoshida et Akita et (1965) et Ozturk et al. (1987) montrent également que  $k_L a$  est plus sensible à la viscosité liquide que le taux de vide.

En ce qui concerne les coefficients de dispersion des deux phases, ils sont principalement déterminés par la vitesse superficielle du gaz (ou le taux de vide) et le diamètre de la colonne. Le mélange de la phase liquide est toujours supérieur à celui de la phase gaz.

*L'approche en régime hydrodynamique est très utile dans la compréhension des phénomènes et offre une description intéressante des écoulements à grande échelle. Elle demeure cependant insuffisante pour la compréhension complète des colonnes à bulles et ne permet pas de tout expliquer.*

*Les quelques modèles gaz et liquide présentés ici apportent une vision intéressante des phénomènes, mais ils demeurent souvent simplistes.*

*Enfin, les corrélations permettent de dégager certaines tendances, mais elles manquent de généralités et ne sont utilisables que dans des conditions similaires à celles de leur élaboration.*

*Des approches plus locales sont nécessaires.*

## A.II. ECOULEMENT GAZEUX : EVOLUTIONS SPATIALES

L'écoulement gazeux est à la base de tous les comportements de la colonne (en absence d'alimentation liquide) ; il conditionne le transfert via l'aire interfaciale des bulles (et donc leur taille moyenne). Une connaissance spécifique de la phase gazeuse à plus fine échelle est donc indispensable.

Notons que l'écoulement liquide local peut également être caractérisé, à l'aide de mesures locales de vitesses et de turbulence, mais cet aspect, non étudié ici, n'est pas détaillé.

Selon les auteurs, la colonne à bulles peut être divisée axialement en trois ou quatre zones [Fischer et al. (1994), Millies et Mewes (1999), Pohorecki et al. (2001)], caractérisées chacune par une distribution de tailles de bulles :

- \_ Les bulles primaires, de taille  $d_B^*$  : ce sont les bulles formées au distributeur. Lorsque le débit de gaz est important, ces bulles ne peuvent exister que sur une très faible hauteur (de l'ordre de quelques  $d_B^*$  [Tilton et Russel (1982)]).
- \_ Les bulles secondaires (pas toujours présentes) : elles sont présentes lorsque l'inertie du liquide à l'injection des bulles est suffisante pour briser les bulles primaires. La taille des bulles secondaires est globalement  $d_B^*/2$  [Millies et Mewes (1999), Pohorecki et al. (2001)].
- \_ Les bulles à l'équilibre : les bulles primaires ou secondaires évoluent au fil de leur ascension dans la colonne (sauf en régime homogène) pour atteindre une distribution de tailles de bulles résultant de l'équilibre dynamique entre rupture et coalescence (donc fonction de la concentration en nombre des bulles et des propriétés du liquide) [Yao et al. (1991), Pohorecki et al. (2001)]. L'établissement progressif de cet équilibre nécessite une hauteur de colonne minimale [Millies et Mewes (1999)], n'excédant jamais  $5D_C$  [Joshi et al. (1990)].
- \_ La zone de désengagement ou de séparation des bulles : en haut de la colonne, les bulles s'accumulent sous la surface libre conduisant à une forte concentration de bulles ; une sorte de mousse est parfois observée.

Il est à noter que, dans ce découpage de la colonne, la zone « transitoire », où les populations de bulles évoluent, n'est pas considérée.

Par ailleurs, selon les conditions opératoires (géométrie de la colonne, distributeur, vitesse de gaz, propriétés du liquide, ...), les proportions respectives de ces zones et les populations de bulles qui y sont rencontrées varient.

Parmi ces zones, deux sont plus spécifiquement étudiés ici : la zone d'équilibre, car elle représente industriellement (colonne de grande taille) une part importante de la colonne, et la zone d'injection, car elle peut conditionner à faibles débits, l'hydrodynamique de toute la colonne. Par contre, la zone de désengagement n'est pas approfondie.

Dans ce paragraphe, les bulles primaires et à l'équilibre sont donc tour à tour étudiées, puis les évolutions axiales et temporelles sont brièvement observées.

### **A.II.1. Zone d'injection : les bulles primaires**

Le diamètre des bulles primaires est une donnée cruciale en colonne à bulles, puisqu'en régime homogène, il conditionne le comportement de l'ensemble de la colonne. En outre, même à fortes vitesses, la zone d'injection peut demeurer primordiale de par son effet majeur sur le transfert de matière.

Compte tenu de la complexité des phénomènes dans cette zone, la distribution des bulles issue d'un distributeur complet est peu abordée ; la zone d'injection est souvent étudiée sur un filet de bulles issu d'un orifice unique [Heijnen et Van't Riet (1984)].

La distribution des bulles dans la zone d'injection dépend de trois facteurs interdépendants :

- \_ La technologie du distributeur,
- \_ Les propriétés physico-chimiques du liquide,
- \_ Les conditions opératoires (vitesse d'éjection, circulation liquide, pression, température).

Les effets de ces paramètres sont brièvement décrits ici, exceptés les effets de la pression, de la température et de la circulation liquide, effets abordés dans la partie B, consacrée aux conditions industrielles.

#### **A.II.1.a. Régimes de formation : effet du débit gazeux**

Pour les distributeurs percés (en général pour  $d_0 \geq 1\text{mm}$ ), les plus courants, plusieurs régimes de formation de bulles sont distingués en fonction de la vitesse d'éjection du gaz [Heijnen et Van't Riet (1984)]. Ils sont en général regroupés en trois familles (cf. Figure 8) :

- \_ Les régimes à bulles (séparées ou continues),
- \_ Les régimes de transition ou à bulles multiples,
- \_ Les régimes à jets (simples ou dispersés).

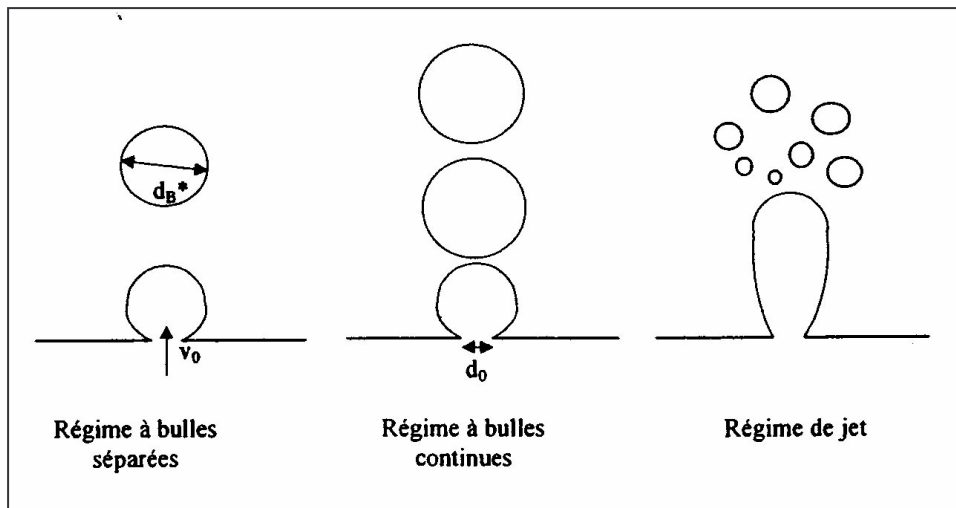


Figure 8 : Régimes de formation de bulles.

L'évolution du diamètre des bulles propre à chacun de ces régimes est représentée par le tracé empirique de  $d_B^* = f\left(\text{Re}_0 = \frac{\rho_G u_{G0} d_0}{\mu_G}\right)$  (cf. Figure 9). Une description plus poussée de ces régimes est proposée en annexe I.C.

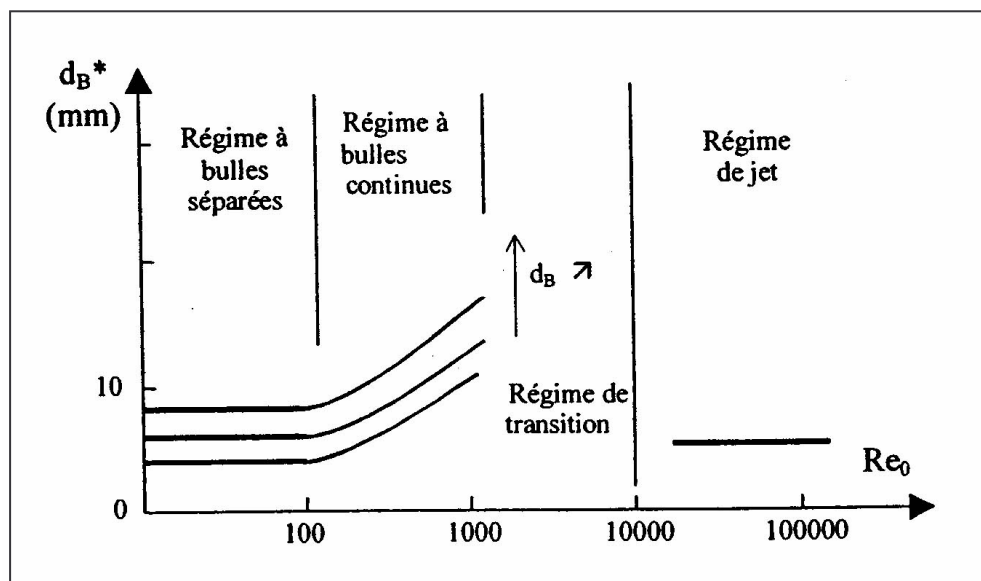


Figure 9 : Taille des bulles formées à un orifice rigide

### A.II.1.b. Technologie du distributeur

Il existe deux grandes familles de distributeurs : les distributeurs rigides et les distributeurs à élasticité (membranes). L'avantage de ces derniers est leur déformation périodique qui assure une distribution uniforme du gaz sans que se posent les problèmes associés au dépôt et au colmatage [Deckwer (1992)] ; spécifiques à certaines applications, ils ne sont pas abordés dans cette étude. Par contre, les distributeurs rigides, d'utilisation très courante, sont plus largement détaillés.



Ils peuvent être répartis en trois sous-familles (cf. Figure 10) :

- \_ Les distributeurs poreux et frittés (1) : ils permettent la formation de petites bulles mais leur colmatage est problématique et limite leur utilisation.
- \_ Les distributeurs à orifice (2) (orifice unique, capillaire, plateau perforé, tube ou tore percé, ...)
- \_ Les éjecteurs gaz-liquide (3) : le gaz est distribué dans le sillage d'un fort jet de liquide.

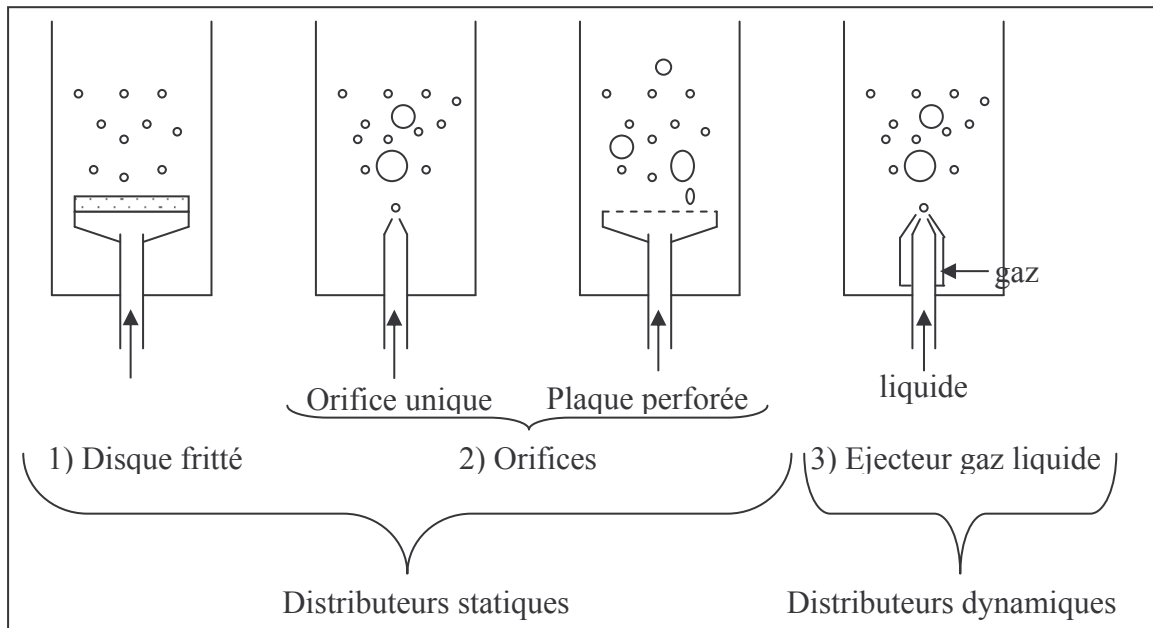


Figure 10 : Distributeurs de gaz

Parmi les distributeurs à orifices, les plus utilisés industriellement sont les plateaux perforés de trous de 1 à 5 mm. Généralement en métal, leur aire percée représente 0,5 à 5% de la section de la colonne [Deckwer (1992)]. Le distributeur à orifice unique est également d'utilisation courante, mais seulement lorsque la vitesse de réaction est très faible devant la vitesse potentielle de transfert, car ce distributeur est peu efficace pour le transfert.

Le type du distributeur a une influence majeure sur la distribution et la taille initiale des bulles, mais le diamètre des orifices et le matériau du distributeur ont également un rôle à jouer. Dans la suite, seuls les distributeurs de type percé, utilisés lors de notre étude, sont décrits.

Pour ces distributeurs, plusieurs paramètres sont influents dont :

- \_ Le diamètre de l'orifice, qui influe à la fois sur le volume de la bulle [Terasaka et Tsuge (2001), Polli et al. (2002)] et sur sa déformation [Tomiyama et al. (2002), Okawa et al. (2003)],
- \_ Le nombre de trous [Polli et al. (2002), Xie et Tan (2003), Loimer et al (2004)],
- \_ Le pas, distance entre deux orifices [Polli et al. (2002)],
- \_ La forme et l'orientation de l'orifice [Valentin (1967)],
- \_ La répartition des trous,
- \_ Le matériau (mouillabilité) [Gaddis et Vogelpohl (1986), Fan et al. (1999), Byakova et al. (2003), Gnyloskurenko et al. (2003), Loimer et al. (2004)],

- \_ La pression et le volume de la chambre, emplacement sous l'orifice où se trouve le gaz avant d'être injecté dans la colonne. Cet effet est négligeable dans notre cas, car le nombre de trous du distributeur est supérieur à 15 [Miyara et al. (1983), cités par Polli et al. (2002)].

Le nombre, le diamètre des orifices et leur pas ont des effets interdépendants. Pour résumer, l'efficacité du distributeur est meilleure lorsque le nombre de trous est important, que la taille des orifices est petite et que l'aire percée est grande [Ohki et Inoue (1970), Zhao et al. (1994), Zahradnik et al. (1997), Jamialahmadi et al. (2000), Jianping et al. (2000), Lin et al. (2001), Thorat et Joshi (2004)]. L'effet de la taille des orifices est atténué au-delà d'une taille limite qui vaut, selon les auteurs, entre 1mm et 1,6mm [Ohki et Inoue (1970), Bach et Pilhofer (1978), Zahradnik et al. (1997), Jamialahmadi et al. (2000), Lin et al. (2001)]. Par contre, l'effet du pas [Jamialahmadi et al. (2000), Polli et al. (2002)] ne peut pas être généralisé.

La répartition des orifices sur la section peut aussi modifier la distribution des bulles et la qualité du transfert. Kang et al. (1995) ont ainsi testé plusieurs types de distributions qui sont dans l'ordre décroissant de  $k_L a$  obtenu : la distribution uniforme sur la section, la distribution en paroi (de type tore), la distribution au centre (cas qui s'approche de l'injecteur central), et la distribution asymétrique. Pohorecki et al. (1999) et Dziallas et al. (2000) étendent cette étude aux évolutions axiales de taux de vide pour trois types de distributeurs classiques : le plateau perforé, le tore et l'injecteur central. Dans le cas du tore (distributeur utilisé lors de notre étude), ils observent que :

- \_ En régime homogène, un maximum de taux de vide est observé au niveau du rayon du tore.
- \_ En régime hétérogène, les profils observés sont paraboliques en tête de colonne, mais en pied, la zone où le distributeur est influent est plus grande qu'avec un plateau perforé : les valeurs maximales de taux de vide, observées au-dessus des injecteurs en bas de colonne, ne sont pas au centre ; leur décalage progressif vers le centre de la colonne pour tendre vers le profil parabolique est plus long qu'avec un plateau perforé.

En colonne de grands diamètres, l'utilisation de tores à proximité de la paroi peut même conduire à un écoulement inversé dans la zone du distributeur : montée des bulles en paroi et descente au centre ; l'écoulement classique est retrouvé plus haut (à  $3-4D_C$ ) [Lapin et al. (2001 et 2002)].

#### **A.II.1.c. Propriétés physico-chimiques du liquide**

Les deux propriétés fréquemment considérées pour la prévision du diamètre des bulles primaires sont la tension superficielle et la densité du liquide. Ces tendances peuvent être expliquées par les forces s'exerçant sur la bulle lors de sa formation :

- \_ Lorsque la densité du liquide augmente, la force de flottabilité, qui tend à arracher la bulle de l'orifice, augmente et la taille des bulles diminue.
- \_ Lorsque la tension superficielle augmente, la force de tension superficielle, qui tend à maintenir la bulle attachée à l'orifice, augmente et la taille des bulles augmente.

L'importance respective de ces propriétés dépend alors de l'importance de la force sur laquelle elles agissent dans le bilan global.

## **A.II.2. Cœur de la colonne : zone d'équilibre**

En régime homogène, les évolutions axiales sont faibles, le comportement du cœur de la colonne est dicté par les bulles primaires.

Par contre, à plus forts débits, l'effet de la distribution des bulles primaires sur le comportement de la zone d'équilibre diminue jusqu'à disparaître (régime hétérogène). La distribution des bulles est alors dictée par l'équilibre entre la coalescence et la rupture.

La coalescence est la conséquence de collisions permanentes entre les bulles alors que la rupture provient plutôt de cisaillements. En général, ces deux procédés ne sont pas interdépendants, leurs origines étant différentes : la coalescence des bulles dépend en partie des conditions hydrodynamiques locales (qui déterminent les vitesses de collision et les densités de bulles), mais surtout de la nature des interfaces gaz-liquide (les systèmes contenant des concentrations significatives d'électrolytes, d'espèces organiques ou des surfactant sont souvent décrits comme inhibiteur de coalescence), alors que la rupture dépend principalement des considérations hydrodynamiques locales (micro-échelle de turbulence [Prince et Blanch 1990]). Dans certains cas cependant, la coalescence et la rupture peuvent être couplées ; la coalescence de deux bulles s'accompagne alors de la formation de plus petites bulles [Luo et al. (1999)]. Les phénomènes de coalescence et de rupture, très complexes, ne sont pas détaillés davantage ici.

Ce paragraphe s'attache plutôt à la description de leurs conséquences : le comportement de la phase gaz au cœur de la colonne. Cette description peut être envisagée selon trois approches : les valeurs moyennes, les profils et, pour finir, les distributions locales. Pour cela, les caractéristiques retenues pour le gaz sont principalement le taux de vide, la vitesse et le diamètre des bulles.

### **A.II.2.a. Valeurs moyennes des caractéristiques des bulles**

Les valeurs moyennes de taux de vide, de vitesse et de diamètre de bulles évoluent différemment selon le débit gazeux et donc le régime de bullage dans lequel la colonne opère. Ces points, en grande partie abordés lors de la description des régimes (cf. §A.I.1), ne sont pas repris ici.

On peut toutefois préciser que des corrélations ont été établies pour tenter de prévoir le diamètre des bulles, paramètre essentiel conditionnant l'aire interfaciale (cf. annexe I.B). Ces corrélations sont bien moins nombreuses que celles répertoriées pour les paramètres globaux du §I.4 (taux de vide, coefficient de transfert, dispersion axiale), car cette grandeur, plus locale, est aussi plus difficile à mesurer. Les tendances déduites de ces corrélations sont assez unanimes : le diamètre des bulles dépend peu de la vitesse superficielle du gaz, mais il augmente avec la tension superficielle et diminue avec les densités liquide et gazeuse. L'effet de la viscosité est double : une forte viscosité liquide favorise la coalescence alors qu'une faible viscosité favorise la rupture [Shah et al. (1982)]. Les effets du diamètre de la colonne et du distributeur sont controversés, probablement car ils dépendent du régime hydrodynamique.

### **A.II.2.b. Profils**

Les valeurs moyennes ne représentent que partiellement le comportement de la colonne ; pour mieux appréhender la répartition du gaz dans la colonne, des profils sont établis. Ces profils, souvent propres à une installation ne sont pas détaillés ; seules les grandes lignes sont reprises ici.

### ***A.II.2.b.α Symétrie des profils***

La symétrie des profils de taux de vide est souvent observée [Dziallas et al. (2000), Chen et al. (2001) pour  $D_C=20\text{cm}$ , Degaleesan et al. (2001) pour  $H_C>50\text{cm}$ , Kemoun et al. (2001)], mais certaines dissymétries sont parfois constatées. Elles peuvent être attribuées :

- \_ A une dissymétrie du distributeur [Degaleesan et al. (2001), Magaud et al. (2001)],
- \_ A la circulation liquide : Chen et al. (2001) observent un profil symétrique pour  $D_C=20\text{cm}$ , mais plus pour  $D_C=40\text{cm}$ ,
- \_ A l'inclinaison de la colonne.

### ***A.II.2.b.β Profils de taux de vide***

Le premier des profils abordés, celui de taux de vide, est de loin le plus classique, car il est à la fois facile à obtenir et riche en informations. Son allure, relativement plate à faibles vitesses [Yao et al. (1991), Groen et al. (1995), Magaud et al. (2001)], devient de plus en plus bombée lorsque le taux de vide augmente [Yao et al. (1991), Groen et al. (1995)].

Les profils de taux de vide sont souvent représentés à l'aide d'une loi puissance [Joshi et Sharma (1979), Clark et al. (1987), Luo et Svendsen (1991), Fischer et al. (1994), Groen et al. (1995), Kemoun et al. (2001)]. Néanmoins, le profil de taux de vide peut parfois largement différer de la parabole à faible vitesse superficielle de gaz (surtout à faible  $D_C$ ) en présence d'alcool et adopter des formes de type « selle » ou « W » [Clark et al. (1987), Parasu Veera et al. (2001)].

### ***A.II.2.b.γ Profils de vitesses des bulles***

Les profils de vitesses de bulles suivent le même type d'évolution avec la vitesse superficielle de gaz que les profils de taux de vide : ils passent progressivement du profil plat au profil parabolique. Toutefois, les profils paraboliques apparaissent à plus faibles débits : des profils bombés apparaissent déjà en régime homogène [Yao et al. (1991), Magaud et al. (2001)]. A forts débits, le profil de vitesses se stabilise et n'évolue plus [Yao et al. (1991)] ; cette observation est en accord avec la stabilisation de la circulation et du mélange liquide à forts débits.

Yao et al. (1991) s'intéressent aussi à la composante radiale de vitesse : nulle en régime homogène, où les bulles montent verticalement, elle varie en fonction de la position radiale, à plus fortes vitesses, car les bulles migrent vers le centre.

### ***A.II.2.b.δ Profils de diamètres de bulles***

Les profils de diamètres de bulles sont très rares en colonne à bulles en fonctionnement batch, les expérimentateurs se limitant souvent à une valeur moyenne ou à la valeur centrale.

Yao et al. (1991), rares expérimentateurs à avoir mesuré des profils de diamètres, observent un profil radial de diamètres quasi-uniforme présentant une légère diminution en paroi.

## **A.II.2.c. Distributions locales**

Les profils sont constitués de moyennes locales, grandeurs pas toujours suffisantes pour la compréhension des phénomènes. Il est ainsi intéressant de pouvoir accéder aux distributions de vitesses et de tailles de bulles.

### *A.II.2.c. $\alpha$ Distributions de diamètres*

Les distributions reportées dans la littérature sont souvent obtenues par photographie. Elles ne concernent alors que les faibles débits gazeux et une zone non ponctuelle de la colonne (en outre souvent limitée à la paroi).

Les distributions les plus couramment rencontrées ou supposées en écoulement gaz-liquide sont :

- \_ Les distributions normales [Todtenhaupt (1971)],
- \_ Les distributions log-normales [Akita et Yoshida (1974), Sriram et al. (1977), Kamp (1996)],
- \_ Les distributions gaussiennes [Fischer et al. (1994)],
- \_ Les distributions bimodales [Kim et al. (2000), Sun et al. (2002), Krishna et al. (1991, 1999, 2000a et b, 2001)].

Les distributions expérimentales sont en fait rarement symétriques et s'étalent souvent vers les grands diamètres [Burckhardt et Deckwer (1975), Magaud et al. (2001)]. Burckhardt et Deckwer (1975) mettent en outre en évidence qu'en colonnes de forts diamètres, même à faibles débits, les bulles prennent des formes très variées et possèdent une distribution bimodale.

### *A.II.2.c. $\beta$ Distributions de vitesses de bulles [Yao et al. (1991)]*

La distribution des **vitesses axiales** de bulles peut être assez bien approximée par une distribution normale.

En régime homogène, les bulles, de taille uniforme, engendrent une distribution étroite des vitesses de montées de bulles alors que, dans les régimes turbulents et de transition, la distribution des vitesses de montée des bulles s'élargit et dépend de la position radiale (la largeur de la distribution est minimale au centre et maximale en paroi), mais elle ne change pas significativement dans la direction d'écoulement. L'étalement de la distribution de vitesses en paroi peut être lié à la présence de tourbillons plus nombreux dans cette zone.

La distribution des **vitesses radiales** pour sa part présente deux pics : certaines bulles bougent vers la paroi et d'autres vers le centre ; elles peuvent même osciller radialement durant toutes leur ascension. A faibles débits gazeux toutefois, la vitesse radiale moyenne est nulle : les bulles se déplacent aussi bien vers le centre que vers la paroi. En revanche, à plus fortes vitesses, les bulles qui migrent vers le centre sont plus nombreuses que celles allant vers la paroi.

## **A.II.3. Evolution axiale**

A leur formation, les bulles présentent parfois des comportements très différents de ceux observés dans le cœur de la colonne. Dans ce cas, l'évolution axiale des caractéristiques des bulles fournit une information supplémentaire sur le comportement de la colonne.

Cette évolution axiale dépend profondément des débits gazeux, du distributeur et du milieu, trois paramètres qui conditionnent les bulles formées au distributeur (taille, distribution, position radiale), leur évolution axiale (coalescence, rupture, migration au centre, ascension verticale, symétrie, ...) et la hauteur nécessaire pour atteindre un équilibre (fonction de la distribution initiale et de la nature coalescente du milieu). Cet équilibre peut alors revêtir des aspects très différents selon les conditions (profils plats ou bombés). Yao et al. (1991) constatent qu'en régime hétérogène, les profils ne se stabilisent pas et sont de plus en plus

bombés au fur et à mesure de l'ascension dans la colonne, bien que le taux de vide moyen n'évolue plus ( $H_C=4,5\text{m}$  !).

#### **A.II.4. Evolutions temporelles**

Les évolutions spatiales des caractéristiques des bulles sont à présent décrites dans les grandes lignes, mais les évolutions temporelles constituent également une information intéressante. Elles incluent à la fois les évolutions temporelles au démarrage de l'installation et en écoulement établi.

Le temps de stabilisation de la dispersion du gaz lors du démarrage de l'installation augmente avec la vitesse de gaz [Glasgow et al. (1984)] et peut dépendre des propriétés du milieu telles que la viscosité. Il demeure toutefois très faible : stabilisation du taux de vide en moins de 7s pour  $u_G=18,2\text{cm/s}$  [Schulzke et al. (1998)].

Les évolutions temporelles, les plus intéressantes, sont celles observées lorsque l'écoulement est établi, comme par exemple les variations au cours du temps du taux de vide en un point donné. Ce comportement instationnaire est encore mal connu, en particulier pour les colonnes commerciales à grande échelle [Chen et al. (2001)]. Pour caractériser le comportement dynamique dans les réacteurs multiphasiques, l'analyse des évolutions temporelles des données permet d'obtenir des fréquences dominantes et de valider les échelles de phénomènes hydrodynamiques (tourbillons, ...). Dans les dix dernières années, de nouvelles approches basées sur la théorie du chaos déterministe ont également été adoptées.

#### **A.II.5. Conclusions**

*Ce paragraphe met en évidence les évolutions complexes des caractéristiques au sein de la colonne : évolutions axiales, radiales et temporelles. Il met également à jour le manque certain de données locales (surtout de diamètres) et plus particulièrement d'évolutions radiales et axiales de ces données en colonne à bulles.*

## **PARTIE B : CONDITIONS OPERATOIRES INDUSTRIELLES**

---

Les écoulements décrits précédemment sont très éloignés de nos conditions cibles : milieu organique, vitesse de gaz importante, débit liquide non nul, pression et température élevées et présence de plateaux perforés. Un état des lieux des connaissances sur ces différents aspects est donc envisagé, afin d'évaluer les paramètres les plus intéressants à étudier.

Avant d'aborder ce point, les paramètres géométriques de la colonne (diamètre, hauteur) sont brièvement décrits, afin de définir, pour un pilote, les dimensions les plus favorables à l'extrapolation industrielle, sans toutefois nécessiter des volumes de liquide trop importants.

## **B.I. EFFET DE LA TAILLE**

### **B.I.1. Diamètre de Colonne ( $D_C$ )**

L'effet du diamètre de la colonne est très étudié. Il semble qu'au delà d'un certain diamètre, estimé selon les auteurs entre 10 et 20cm [Bach et Pilhofer (1978), Shah et al. (1982), Schumpe et Deckwer (1987), Hikita et al. (1981), Deckwer (1992), Wilkinson (1991), Jamialahmadi et Müller-Steinhagen (1992), Kastanek et al. (1993), Zahradnik et al. (1997)], le taux de vide et  $k_{La}$  ne dépendent plus du diamètre de la colonne. A ces valeurs, l'effet du diamètre sur le mélange liquide demeure important (le nombre de Peclet diminue [Krishna et al. (2001), Moustiri et al. (2001)]), mais ne peut être évité.

### **B.I.2. Hauteur de liquide ( $H_L$ )**

Pour représenter au mieux une installation industrielle, la hauteur de colonne ne doit pas être trop faible. En effet, si la hauteur de liquide est insuffisante, l'effet des régions extrêmes (zones du distributeur et de désengagement) peut perturber la moyenne de taux de vide [Ruzicka et al. (2001b)] et encore plus celle de  $k_{La}$  (effet important de la zone du distributeur) ; elle peut même modifier les valeurs de transition [Jamialahmadi et al. (2000), Ruzicka et al. (2001b), Thorat et Joshi (2004)].

Le choix d'une hauteur représentative est délicat, car il dépend beaucoup du diamètre de la colonne, mais aussi des conditions opératoires (milieu, débits) et du distributeur [Deckwer et al. (1974)], paramètres qui déterminent les évolutions axiales dans la colonne. Il est toutefois couramment admis que l'équilibre de la colonne est établi pour un rapport  $H_C/D_C$  supérieur à 5 [Joshi et al. (1990), Thorat et Joshi (2004)].

## **B.II. PRESSION ET TEMPERATURE**

L'effet de la pression a fait l'objet au cours des deux dernières décennies de plus de 40 publications et d'une thèse [Wilkinson (1991)]. Les effets de la pression étant assez bien connus désormais, cette étude n'est pas approfondie ici. Globalement l'augmentation de la pression se caractérise par une diminution conjointe du diamètre et de la vitesse des bulles (plus de petites bulles) ce qui se traduit par une augmentation du taux de vide, de  $k_{La}$  et de la vitesse superficielle de transition, et par une diminution de la dispersion axiale.

Les effets de la température pour leur part ne sont pas toujours élucidés [Lin et al. (1998)], mais ils sont souvent attribués aux effets des propriétés physico-chimiques modifiées [Yoshida et Akita (1965), Bhaga et al. (1971)].

## B.III. NATURE DU LIQUIDE

Les propriétés physico-chimiques ont un grand impact sur le comportement de la dispersion. Cet aspect est donc largement étudié, mais les milieux analysés se limitent souvent à des solutions aqueuses ; de ce fait, l'application de ces tendances aux liquides organiques doit être considérée avec précaution. Ainsi, après avoir énoncé les effets des propriétés physico-chimiques de base (viscosité, densité et tension superficielle), le cas plus spécifique des liquides organiques est abordé.

### B.III.1. Effet de la physico-chimie

#### B.III.1.a. Viscosité

Les corrélations énoncées en annexe I.B mettent en évidence un effet ambigu de la viscosité sur le taux de vide : négatif en général, il est parfois positif [Hikita et al. (1981), Chaudhari et Hofman (1994), Sotelo et al. (1994)]. Son effet sur la dispersion gazeuse et  $k_{La}$  est plus tranché : il est systématiquement négatif sur  $k_{La}$  (l'augmentation de la viscosité diminue  $k_{La}$ ) et peu influent sur la dispersion gazeuse.

Le Tableau 2 résume les diverses tendances observées en la matière dans la littérature. Il faut mettre l'accent sur le fait que la plupart de ces études ont été réalisées à partir de solutions aqueuses de différentes concentrations en saccharose, glycérol ou Carboxy-Méthyl-Cellulose (CMC). Même si Burckardt et Deckwer (1975) considèrent que le comportement de ces solutions est similaire à celui des produits purs, le doute en la matière reste de mise.

Les différentes études reportées dans le Tableau 2 conduisent à l'observation de trois comportements spécifiques selon la valeur de viscosité :

- \_ Pour  $\mu_L < 3 \text{ mPa.s}$  [Zahradnik et al. (1995), Ruzicka et al. (2003)] : l'augmentation de la viscosité freine le mouvement ascendant des bulles, ce qui entraîne l'augmentation du temps de séjour des bulles, et par conséquent celle du taux de vide,
- \_ Pour  $\mu_L = 3\text{-}30 \text{ mPa.s}$  [Zahradnik et al. (1995), Ruzicka et al. (2003)] : les forces de traînée deviennent suffisantes pour favoriser la coalescence. Cela se traduit par l'augmentation de la taille des bulles, la diminution du taux de vide et la polydispersion des distributions de bulles. La vitesse de transition vers le régime hétérogène est alors avancée, au détriment du régime homogène qui disparaît dès  $\mu_L > 8 \text{ mPa.s}$  [Zahradnik et al. (1997), Kuncova et Zahradnik (1995)]. Cet effet peut être compensé par l'addition de petites quantités de tensioactifs ( $1.10^{-5}$  à  $10^{-3} \text{ kmol/m}^3$ ) [Kuncova et Zahradnik (1995)].
- \_ Pour  $\mu_L > 30 \text{ mPa.s}$  [Kuncova et al. (1995), Ruzicka et al. (2003)], l'écoulement opère en régime hétérogène pur et le lit de bulles adopte une structure bimodale :
  - Les **grosses bulles** (usuellement de forme ellipsoïdales et de diamètre équivalent supérieur à 20mm) sont en volume largement majoritaires. Elles proviennent de la coalescence et sont favorisées par l'inhibition de la rupture. En colonne de petits diamètres, leur taille peut atteindre le diamètre de la colonne, provoquant une transition vers le régime à bouchons.
  - Les **petites bulles** (essentiellement sphériques et de diamètre compris entre 100 $\mu\text{m}$  et 1mm) représentent une part marginale du débit (moins de 1%), mais,



par accumulation dans le milieu, elles peuvent représenter jusqu'à 50% du taux de vide. Elles proviennent de la rupture des grosses bulles à la surface et des « sous-produits » du procédé de coalescence près du distributeur. Leur contribution augmente avec la viscosité liquide et diminue avec la vitesse gazeuse. Cette accumulation conduit également à l'allongement du temps de stabilisation de l'écoulement avec la viscosité (entre 10 minutes et 1 heure).

Auteurs	Effet de la viscosité liquide
Burckardt et Deckwer (1975)	↘ taux de vide
Bach et Pilhofer (1978)	Paramètre le plus important ↘ taux de vide en régime hétérogène, pour un liquide pur
Mangartz et Pilhofer (1981)	↘ taux de vide
Prince et Blanch (1990)	Faible effet sur la rupture
Philip et al. (1990)	Distribution bimodale
Glasgow et al. (1994)	↗ diamètre maximum stable ↘ énergie turbulente (moins de rupture)
Zhao et al. (1994)	↘ $k_L a$ et taux de vide, mais $k_L a$ davantage affecté ↘ $k_L$ car diminution de la diffusivité ↘ aire interfaciale du fait de la présence de grosses bulles ↘ marquée jusqu'à 0,3Pa.s, au-delà diminution plus douce ↗ diamètre de bulles Favorise la coalescence
Kantak et al. (1995)	↘ $D_{ZG}$ (car la proportion de bulles montant en essaim au centre de la colonne et animée d'un écoulement de type « piston » augmente) ↗ coalescence, ce qui augmente la vitesse des bulles ↘ rupture
Kuncova et Zahradnik (1995)	Structure bimodale du lit pour $\mu_L > 30 \text{mPa.s}$
Yang et Fan (2003)	↗ diamètre de bulles ↘ taux de vide
Zahradnik et al. (1995)	Effet négatif limité à la gamme de $\mu_L$ entre 3 et 30mPa.s ↗ taux de vide pour $\mu_L < 3 \text{mPa.s}$ , mouvement ascendant freiné ↘ taux de vide pour $\mu_L = 3-30 \text{mPa.s}$ , coalescence favorisée
Zahradnik et al. (1997)	↘ étendue du régime homogène Disparition du régime homogène pour $\mu_L \geq 8 \text{mPa.s}$
Fan et al. (1999)	↘ taux de vide
Kang et Cho (1999)	↗ diamètre de bulles ↘ $k_L a$
Krishna et al. (2001)	↗ diamètre de bulles ↘ $u_{G,trans}$ ↘ facteur correctif (AF) (interactions plus faibles des sillages de bulles, du fait de sillages plus petits)
Behkish et al. (2002)	↘ $k_L$
Ruzicka et al (2003)	↗ taux de vide pour faibles $\mu_L$ , stabilisation du régime homogène ↘ taux de vide pour $\mu_L$ plus fortes (coalescence, polydispersion) Bidispersion en milieux très visqueux
Thorat et Joshi (2004)	Coalescence favorisée ↘ $\varepsilon_{G,trans}$

Tableau 2 : Effet de la viscosité liquide dans la littérature

Il faut préciser que la population de petites bulles décrites pour  $\mu_L > 30 \text{mPa.s}$  est déjà présente pour des viscosités inférieures, mais qu'elle ne s'accumule pas dans le milieu [Kuncova et Zahradnik (1995)]. Ainsi, quelle que soit la vitesse de gaz, il existe systématiquement une faible fraction de petites bulles dans la colonne [Philip et al. (1990), Kantak et al. (1995)], bulles qui contribuent peu au taux de vide, mais qui peuvent favoriser considérablement le transfert de matière.

### **B.III.1.b. Densité liquide**

L'effet de la densité liquide est rarement isolé et les tendances observées sont difficiles à interpréter [Fan et al. (1999)].

Au vu des corrélations de taux de vide rapportées en annexe I.B, il apparaît toutefois que, pour une viscosité liquide donnée, le taux de vide et  $k_L a$  augmentent avec la densité liquide. Bach et Pilhofer (1978) établissent en régime hétérogène une relation (vérifiée en cyclohexane) où la densité apparaît (via la viscosité cinématique) à la puissance 0,23. Millies et Mewes (1999) relie cet effet à une modification de la vitesse de rupture avec la densité.

En terme de diamètres de bulles, l'effet de la densité du liquide est plus nette ; il intervient via la force d'Archimède : le diamètre de bulle augmente quand la densité liquide diminue.

### **B.III.1.c. Tension superficielle**

Les corrélations faisant intervenir la tension superficielle et l'ensemble des publications sont unanimes : du fait de son effet sur la coalescence, une augmentation de la tension superficielle entraîne la diminution du taux de vide et de  $k_L a$  et l'augmentation de la taille des bulles.

Burckardt et Deckwer (1975) observent toutefois qu'en milieux purs, la tension superficielle du liquide n'affecte pas le taux de vide en régime hétérogène. Cette observation est en opposition avec la plupart des observations et des corrélations classiques, ce qui peut être liée au fait que la plupart des auteurs estiment cet effet à partir de solutions aqueuses additivées. Ozturk et al. (1987) observent ainsi que les corrélations de taux de vide les plus adaptées aux liquides organiques purs sont celle de Hikita et al. (1981) et de Akita et Yoshida (1974), corrélations faisant soit intervenir la tension superficielle à une puissance faible (-0,185), soit ne prenant pas en compte cet effet. Selon ces auteurs, l'effet de la tension superficielle sur  $k_L a$  est plus important et proportionnel à  $\sigma^{-0,33}$ . Les observations de Burckardt et Deckwer (1975) et de Bach et Pilhofer (1978) sont confirmées : les solutions additivées ont des comportements très différents des liquides purs.

## **B.III.2. Liquides organiques**

Devant la diversité des résultats en solutions aqueuses, il est nécessaire de faire le point sur les tendances observées en liquide organiques.

Les milieux organiques sont moins coalescents que les solutions aqueuses [Keitel et Onken (1982), Ozturk et al (1987)] : les tailles de bulles sont inférieures et les degrés de vide supérieurs et groupés dans une gamme étroite de valeurs. La présence d'impuretés est aussi moins sensible sur le taux de vide, car les liquides organiques ont une tension superficielle plus faible [Bhaga et al. (1971)].

Cependant, comme en milieux aqueux, les mélanges ont un comportement très particulier : la plupart des mélanges de liquides organiques testés présentent des taux de vide supérieurs à ceux obtenus avec les liquides purs [Bhaga et al. (1971), Ozturk et al. (1987)] : les degrés de vide observés en mélanges ne peuvent pas être reliés aux propriétés liquide des corps purs et aucune corrélation ne permet de les décrire correctement [Ozturk et al. (1987), Krishna et al. (1999)]. Cette forte modification des comportements en mélange est attribuée par Keitel et Onken (1982) à une inhibition de la coalescence quand la phase liquide n'est pas un composant pur. Par ailleurs, en mélange, l'écart entre le coefficient de transfert de matière et le degré de vide s'accroît, ce qu'Ozturk et al. (1987) expliquent en considérant que pour les mélanges, de très petites bulles stagnantes sont formées, bulles ne participant pas au transfert gaz-liquide.

## B.IV. DEBIT LIQUIDE

En colonne à bulles l'effet du débit liquide en co-courant ascendant (cas de notre étude) est peu étudié. En outre, lorsqu'un tel débit de liquide est imposé, il est en général très faible (1cm/s) et son effet est négligé.

Quatre études à plus fortes vitesses de liquide sont présentées dans le Tableau 3. Elles montrent que l'introduction d'un débit de liquide tend à diminuer légèrement le taux de vide et à augmenter la vitesse des bulles, le mélange et la turbulence.

Auteurs	Gamme de $u_L$	Gamme de $u_G$	Effet de $u_L$
Zheng et al. (1988)	0-4cm/s	0-15cm/s	<ul style="list-style-type: none"> <li>↘ Taux de vide</li> <li>Modification de la fréquence caractéristique des régimes</li> </ul>
Yang et Fan (2003)	0-11cm/s	0-11cm/s	<ul style="list-style-type: none"> <li>↗ <math>D_{z1}</math></li> <li>↗ Turbulence liquide</li> </ul>
Magaud et al. (2001)	5-12cm/s	0-7cm/s	<ul style="list-style-type: none"> <li>Peu de variation de <math>d_B</math></li> <li>↗ Vitesse de bulle</li> </ul>
Moustiri et al. (2001)	0,56-2,16cm/s	0-5,5cm/s	<ul style="list-style-type: none"> <li>↘ Taux de vide</li> <li>↗ Pe</li> </ul>

Tableau 3 : Effets du débit liquide en colonne à bulles

L'effet de la vitesse du liquide ne peut cependant être dissocié du débit de gaz : Alvarez Cuenca et Nerenberg (1981) observent que  $k_{LA}$  diminue avec la vitesse de liquide jusqu'à  $u_G=7,5\text{cm/s}$  et augmente au-delà. Il existe néanmoins peu de données en la matière et celles-ci se restreignent souvent aux solutions aqueuses.

## B.V. PLATEAUX PERFORES

Pour augmenter la productivité et la sélectivité d'une colonne à bulles, il faut en général minimiser la dispersion axiale, afin d'atteindre un nombre d'étages équivalent de l'ordre de 5 [Blass et Cornelius (1977)]. Pour cela, la solution la plus efficace est l'introduction de garnissage.

Cette géométrie, a priori la meilleure du point de vue hydrodynamique, a fait l'objet de divers développements au cours des dernières années [Abraham et Sawant (1990), Belfares et al. (2001), Murugesan et Sivakumar (2001), Moustiri et al. (2002)] : en gênant la coalescence et le rétro-mélange, le garnissage permet de maintenir un régime homogène à plus fortes vitesses gazeuse et d'augmenter le taux de vide. Ce type d'internes engendre cependant des pertes de charges importantes et nécessite l'utilisation de matériau inerte chimiquement, contraintes peu compatibles avec une application industrielle. C'est pourquoi, l'utilisation de plateaux perforés est parfois préférée [Maretto et Krishna (2001)]. Elle fait toutefois l'objet de moins d'études ; la plupart d'entre elles se limitant en outre à des mesures de temps de séjour. Les conditions opératoires des trois principales études en ce domaine sont reportées dans le Tableau 4 pour le cas qui nous intéresse : écoulement en co-courant ascendant.

Il est souvent considéré que l'effet de la géométrie des plateaux, de la distance entre plateaux et, dans une moindre mesure, de  $u_L$  ont un effet négligeable sur le taux de vide, alors que le taux de vide augmente nettement avec  $u_G$  [Blass et Cornelius (1977), Zhao et al. (1994)].

Le mélange axial est plus sensible : en introduisant une structure dans un comportement hydrodynamique chaotique, les plateaux diminuent la dispersion axiale [Blass et Cornelius

(1977), Sekizawa et Kubota (1974), Zhao et al. (1994), Dreher et Krishna (2001), Maretto et Krishna (2001)]. En général ( $\varphi > 5\%$ ), cette dispersion augmente avec  $u_G$  et  $\varphi$ , et diminue avec  $u_L$  [Blass et Cornelius (1977)]. Il dépend également du diamètre de la colonne et de l'espace entre plateaux. Cependant, contrairement au cas de la colonne vide, ce coefficient n'augmente pas avec le diamètre de la colonne, mais diminue plutôt, ce qui est favorable à une dispersion axiale modérée en réacteurs industriels [Sekizawa et Kubota (1974), Dreher et Krishna (2001)].

	<b>Blass et Cornelius (1977)</b>	<b>Serizawa et Kubota (1974)</b>	<b>Dreher et Krishna (2001)</b>
<b>Milieu liquide</b>	Eau	Solutions aqueuses de glycérine	Eau
<b>Vitesse superficielle de gaz, <math>u_G</math></b>	1,5-45cm/s	0,35-9,25cm/s	5-10cm/s
<b>Vitesse superficielle de liquide, <math>u_L</math></b>	0,05-1cm/s	0,12-0,45cm/s	0
<b>Diamètre de colonne, <math>D_C</math></b>	14cm	5-20cm	10-38cm
<b>Hauteur de colonne, <math>H_C</math></b>	3,25m	1-1,2m	4-6m (dispersion: 2,9-4,7m)
<b>Distance entre plateaux, <math>\delta</math></b>	53,4-70cm	10-40cm	
<b>Diamètre des trous, <math>d_t</math></b>	2-4mm	0,5-2,0mm	10mm
<b>Aire percée, <math>\varphi</math></b>	1,7-36%	7-20%	18,6-30,7%

Tableau 4 : Conditions opératoires des principale études avec plateaux perforés

Les effets des vitesses de liquide et de gaz sont selon Blass et Cornelius (1977) liés au retour de liquide entre étages et au mélange insuffisant dans un étage. Pour estimer cette grandeur, Sekizawa et Kubota (1974-1975) ont mesuré la fraction de rétromélange (liquide descendant),  $\kappa$ , et Dreher et Krishna (2001), la vitesse de liquide descendant. Ces paramètres sont indépendants de l'espace entre plateaux, du diamètre de la colonne et de la tension superficielle. Par contre ils varient en fonction des vitesses superficielle de liquide et de gaz, de l'épaisseur du plateau, du diamètre des trous, de l'aire percée et de la viscosité.

$\kappa$  augmente avec l'aire percée et diminue avec le diamètre des trous. L'effet du débit gazeux sur ce paramètre dépend de la géométrie du plateau.

Selon Blass et Cornelius (1977), la vitesse de ce liquide descendant peut atteindre, en conditions défavorables, 5 fois la vitesse superficielle de liquide. Ce rétromélange est bien sûr lié à la nécessaire descente de liquide pour compenser le liquide entraîné par les bulles en batch sur le liquide et à un effet de pression, du fait de la présence sous le plateau d'un coussin de gaz, dont l'épaisseur augmente avec la vitesse superficielle de gaz (et cause une augmentation de taux de vide) et diminue avec le diamètre de colonne [Sekizawa et Kubota (1974), Blass et Cornelius (1977), Zhao et al. (1994), Dreher et Krishna (2001)] : plus ce coussin est épais et plus le liquide a tendance à redescendre. A partir d'un certain débit gazeux cependant, cette tendance s'inverse : le mouvement du gaz gêne ce retour de liquide [Blass et Cornelius (1977)]. La présence de cette accumulation de bulles sous le plateau est, selon Dreher et Krishna (2001), défavorable, car elle favorise la coalescence et diminue l'aire interfaciale. La diminution de ce coussin en colonne de forts diamètres, diminue toutefois cet effet en colonne industriel. Lapin et al. (2001) observent que cet amas de bulles est composé de bulles plates, formées par coalescence de 10 à 20 bulles. Ces bulles traversent ensuite le plateau au centre ou en paroi et entre dans le compartiment suivant sous forme de grosses bulles.

L'ensemble de ces effets ayant été réalisé avec des vitesses de liquide très faibles, l'importance de celui-ci est intuité à partir d'essais en airlift : la circulation liquide interne est toujours diminuée, le taux de vide et  $k_L a$  augmente et en outre, le coussin de bulles disparaît [Krishnavaruk et Pavasant (2002)].

Ces quelques publications fournissent des informations sur l'effet des plateaux, mais demeure très limitées en n'étudiant que des milieux aqueux, des vitesses superficielle de liquide très faible ( $<1\text{cm/s}$ ) et des diamètres de trous limités ( $<10\text{mm}$ ). En outre, les informations mesurées demeurent très globales et ne concernent que le taux de vide, la dispersion et  $k_{La}$  ; aucune connaissance plus fine n'est apportée.

## **PARTIE C : STRATEGIE D'ETUDE**

---

Cette analyse permet de positionner notre étude.

Les données globales de taux de vide sont importantes et permettent notamment de caractériser les régimes, informations importantes pour l'industriel, mais elles ne permettent pas de comprendre les phénomènes. Pour cela, des données locales sont nécessaires pour cartographier radialement et axialement la colonne à bulles. Ces données demeurent toutefois rares, particulièrement en diamètre moyen et en distribution de taille de bulles.

Ce constat, établi pour des conditions largement étudiées s'aggrave en conditions industrielles. La caractérisation de la répartition du gaz en milieux organiques (purs ou mélanges) sont rares et souvent globales. Il en est de même pour les effets de la circulation liquide et des plateaux perforés. Ces trois aspects seront donc plus approfondis au cours de notre étude.

Dans cet objectif, le pilote utilisé devra, pour être représentatif, avoir un diamètre supérieur à 15-20cm et une hauteur vérifiant  $H_C/D_C > 5$ . Il servira à caractériser l'écoulement global et local en écoulement industriel (sans les effets de pression et de température) et à préciser les effets du milieu, du débit liquide et des plateaux perforés. Pour cela, l'établissement d'un cas de référence est nécessaire ; le cas très étudié de la colonne sans internes, sans débit liquide et en eau semble approprié.

Il faut noter que les effets du milieu ne peuvent toutefois pas, pour des raisons pratiques, être approfondis en pilote. Ce point sera alors précisé à plus petite échelle.

Les limites de l'étude étant fixées, il s'agit à présent de définir les installations expérimentales utilisées (chapitre II), ainsi que les méthodes d'analyse de l'hydrodynamique (chapitre III).

## **CHAPITRE II. : MONTAGES EXPERIMENTAUX ET CONDITIONS OPERATOIRES**

L'objectif majeur de cette étude est la cartographie à l'échelle locale d'une colonne à bulles dans des conditions proches de celles rencontrées industriellement. Les milieux et débits utilisés sont de ce fait choisis proches des conditions industrielles, ce qui nécessite une installation pilote spécifique et soulève des problèmes évidents de sécurité. Dans cette installation sont étudiés les paramètres ciblés au chapitre I : le milieu liquide, le débit de liquide et les plateaux (cf. chapitre IV). Les diverses métrologies associées à ce pilote sont présentées dans le chapitre III (« outils pour les mesures hydrodynamiques »).

En parallèle, une étude doit être menée sur l'influence des propriétés physico-chimiques du liquide sur la distribution des tailles de bulles. Cette étude, primordiale pour une meilleure compréhension des phénomènes, n'est pas réalisée en pilote du fait du volume important de liquide nécessaire (150 à 200L), ainsi que de la difficulté à rincer parfaitement le pilote (et donc à garantir la pureté des produits dans le pilote). Elle est réalisée dans une petite cuve en verre de type aquarium où les tailles de bulles sont mesurées par caméra. Cet aquarium est également utile pour la validation de la métrologie locale envisagée.

Ce chapitre s'articule en deux parties ; la première est consacrée aux liquides utilisés tant en pilote qu'en aquarium et la seconde aux installations expérimentales adaptées aux conditions définies pour l'étude. Les précautions nécessaires aux manipulations envisagées sont également détaillées.

### **I. MILIEUX LIQUIDES**

Cette première partie, dédiée aux milieux liquides, se découpe en deux paragraphes : le premier traite des milieux utilisés en pilote pour l'étude de l'hydrodynamique et le second s'intéresse aux liquides mis en oeuvre en aquarium pour l'étude de l'effet de la physico-chimie des milieux. Les fiches-produits de l'ensemble des liquides utilisés sont disponibles en annexe II.A.

## I.1. Liquides utilisés en pilote

Les liquides utilisés en pilote sont essentiellement les milieux d'intérêt industriel pour Rhodia. Toutefois, l'utilisation systématique du liquide industriel, composé majoritairement de cyclohexane mais également de nombreux additifs, n'est pas envisagée. Il est en effet difficile d'assurer une longue série de manipulations sans que la composition de ce milieu ne soit altérée, soit par un problème de reproductibilité de sa préparation, soit par l'évolution temporelle de sa composition, certains composés étant très volatils. Pour s'affranchir de ces contraintes et ainsi opérer plus rigoureusement, le milieu choisi comme milieu modèle est le cyclohexane pur. Toutefois, l'utilisation ponctuelle d'olone (milieu cible), mélange plus proche du milieu réel composé de cyclohexane additivé de 2% de cyclohexanol et de 1% de cyclohexanone, est également envisagée. Cette étude, certes spécifique aux milieux utilisés par Rhodia, apporte des informations locales encore très rares en milieux organiques.

Par ailleurs, la volonté de comparer ces résultats à ceux classiquement mentionnés dans la littérature rend les manipulations en eau indispensables. L'étude en eau, de mise en oeuvre plus aisée, permet en outre d'approfondir certains points abordés en cyclohexane. L'eau utilisée en pilote est de l'eau industrielle, dont la qualité peut varier d'un jour à l'autre. Dans notre installation, ces variations n'ont pas d'effet majeur sur les résultats, point vérifié au chapitre IV.

Ainsi, les liquides étudiés en pilote sont principalement l'eau et le cyclohexane, l'eau en tant que milieu de référence et le cyclohexane en tant que milieu modèle. L'utilisation d'olone, milieu cible, est plus ponctuelle.

## I.2. Liquides utilisés en aquarium

L'étude en « aquarium » de différents milieux liquides doit permettre d'atteindre quatre objectifs :

- *L'observation des distributions de tailles de bulles obtenues dans les liquides étudiés en pilote.* Celle-ci permet d'une part d'estimer dans quelle mesure les valeurs recueillies en aquarium peuvent être extrapolées en colonne, et d'autre part d'observer visuellement le comportement des bulles dans les liquides étudiés.
- *L'évaluation de l'effet découplé des trois paramètres physico-chimiques classiques pour les liquides* (la tension superficielle, la viscosité et la densité). Cette étude tend à mieux comprendre l'effet du milieu liquide dans les écoulements à bulles. De telles études ont déjà été menées, mais elles se limitent souvent à la modification du milieu au moyen d'additifs, dont le comportement n'est probablement pas représentatif des milieux purs. Pour éviter ces erreurs d'appréciation, l'approche envisagée ici est centrée sur l'étude de milieux purs.
- *L'étude succincte du comportement des mélanges.* Celle-ci découle de l'interrogation précédente concernant la possibilité de comparaison des liquides purs à des mélanges de propriétés similaires, raccourci souvent réalisé pour étudier l'effet des propriétés physico-chimiques. Par ailleurs, cette hypothèse est également sous-jacente lorsque des milieux aqueux additivés sont utilisés comme milieux modèles de liquides organiques ; la validité de cette hypothèse sera discutée.
- *La validation de la métrologie locale.* Dans ce cas, les liquides étudiés sont ceux mis en oeuvre sur pilote.

Les milieux utilisés en aquarium sont généralement identiques à ceux mis en œuvre en pilote. Seul le développement des points 2 et 3, concernant l'effet des milieux (purs ou non), nécessite au préalable un choix minutieux des liquides étudiés ; c'est l'objet de ce paragraphe.

### I.2.a. Effet des propriétés physico-chimiques sur des milieux purs

Les liquides utilisés pour évaluer l'effet des paramètres physico-chimiques sur la distribution de tailles de bulles sont choisis de manière à ce qu'une seule des trois propriétés considérées (viscosité, densité et tension superficielle) diffère des caractéristiques du milieu modèle, le cyclohexane. En outre, pour vérifier si ces trois paramètres sont suffisants pour caractériser un milieu, un liquide ayant les trois mêmes propriétés que le cyclohexane est également proposé. A ces fins, des fluides ayant des viscosités et/ou des tensions superficielles et/ou des densités proches de celles du cyclohexane sont recherchés à partir des données du 'Handbook of Chemistry and Physics' [Lide (1999)]. Les liquides envisageables sont répertoriés dans le Tableau 1 ; les propriétés se rapprochant de celles du cyclohexane y figurent en italique gras.

Nom	Formule	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Viscosité (mPa.s)		Tension superficielle (mN/m)		
		20°C	25°C	50°C	10°C	25°C	50°C
cyclohexane	C <sub>6</sub> H <sub>12</sub>	0,7785	0,894	0,615	26,43	24,65	21,68
dibutylamine	C <sub>8</sub> H <sub>19</sub> N	<b>0,7670</b>	<b>0,918</b>	0,619		<b>24,12</b>	21,74
décane	C <sub>10</sub> H <sub>22</sub>	<b>0,7300</b>	<b>0,838</b>	0,598	24,75	<b>23,37</b>	21,07
eau	H <sub>2</sub> O	0,9963	<b>0,890</b>	0,547	74,23	71,99	67,94
tétrachlorométhane	CCl <sub>4</sub>	1,5940	<b>0,908</b>	0,656		<b>26,43</b>	23,37
pentylamine	C <sub>5</sub> H <sub>13</sub> N	<b>0,7547</b>	0,702	0,493		<b>24,69</b>	22,14
pentan-3-one	C <sub>5</sub> H <sub>10</sub> O	<b>0,8130</b>	0,444	0,345		<b>24,74</b>	22,13
butan-1-ol	C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> O	<b>0,8100</b>	2,544	1,394	26,28	<b>24,93</b>	22,69

Tableau 1 : Propriétés physico-chimiques des produits envisageables

Afin d'évaluer si les trois paramètres proposés sont suffisants, la comparaison des milieux organiques cyclohexane et dibutylamine semble idéale (écarts inférieurs à 2,65% pour les trois propriétés physico-chimiques retenues). Cependant, pour des raisons de sécurité, le décane lui est préféré, bien qu'un peu plus éloigné des propriétés du cyclohexane.

Pour étudier l'influence de la **viscosité**, les liquides appropriés sont ceux qui, parmi les produits de même tension superficielle que le cyclohexane (à 1% près), ont également des densités proches. Parmi les liquides satisfaisant à ces conditions (le pentylamine, le pentan-3-one et le butan-1-ol), le milieu retenu est le butan-1-ol, liquide de manipulation courante, fréquemment utilisé comme additif à l'eau pour servir de liquide modèle aux milieux organiques (cf. étude des mélanges).

L'étude de l'influence de la **tension superficielle** est plus délicate, car aucun produit de viscosité et de densité similaires à celles du cyclohexane n'est identifié. Cette comparaison étant néanmoins primordiale, elle est effectuée avec l'eau, malgré leur différence de densité.

L'effet engendré par cet écart de **densité** n'est cependant pas rigoureusement vérifié, car le seul produit satisfaisant pour cette étude est le tétrachlorométhane, qui, pour des raisons évidentes de sécurité, n'a pas été envisagé ici. Les aspects de la tension superficielle et de la densité sont donc étudiés de pair.

Le Tableau 2 récapitule les comparaisons envisagées.



Couples étudiés	Viscosité	Tension superficielle	Densité	Objectif
cyclohexane/ décane	6,70%	5,33%	6,43%	Comparaison de deux milieux proches (en viscosité, densité et tension superficielle)
cyclohexane/butanol	95,99%	1,13%	3,97%	Influence de la viscosité
Cyclohexane/eau	0,40%	94,30%	24,90%	Influence de la tension superficielle et de la densité

Tableau 2 : Comparaisons envisagées et écarts observés entre les propriétés

Compte tenu de la forte sensibilité au milieu de ce type de manipulations, l'eau utilisée lors de cette étude est de l'eau osmosée.

### I.2.b. Comportement des mélanges

Le comportement des mélanges est étudié à la fois sur des mélanges de type organique tel que l'olone et sur des mélanges aqueux.

L'étude comparative du cyclohexane et de l'olone, milieux étudiés en colonne permet d'une part de vérifier si les tendances observées en pilote et en aquarium sont similaires et d'autre part d'observer le comportement d'un mélange organique, mélange très peu étudié dans la littérature.

Le coeur de cette étude vise toutefois les milieux aqueux, et plus précisément les milieux eau+butanol, couramment utilisés tant comme milieu modèle de milieux organiques industriels que pour estimer l'effet de la tension superficielle du milieu. Pour mieux cerner le comportement des mélanges, des mélanges à plusieurs concentrations de butanol sont étudiés et rapprochés des résultats obtenus en milieux purs (eau pure et butanol pur). En outre, les concentrations étudiées étant de l'ordre de celles utilisées industriellement pour représenter le milieu réel (entre 0,01%vol et 0,1%vol), une comparaison des distributions de taille de bulles obtenues en cyclohexane et dans les mélanges eau-butanol permet d'évaluer la validité de cette approche.

## II. PILOTE

La majeure partie des essais réalisés dans cette étude est effectuée dans un pilote semi-industriel, conçu lors d'un contrat préalable à la thèse. Celui-ci devait fonctionner dans des conditions très contraignantes : température et pression élevées, utilisation de milieux organiques, débits importants de liquide et de gaz. Pour résister à ces conditions, chaque élément de l'installation a été choisi et conçu avec soin : l'ensemble du pilote est réalisé en inox, les joints sont prévus pour résister aux solvants, à la température et à la pression et les appareils de réglage et de mesure sont du matériel industriel équipé de sécurités intrinsèques classiquement utilisé dans les industries chimiques.

Le pilote initial a été profondément modifié au cours de cette thèse, afin de corriger certains dysfonctionnements (débits instables, sortie de liquide par la sortie gaz de la colonne, ...) et de s'adapter à nos métrologies, mais tout en restant rigoureusement compatible avec les

conditions opératoires industrielles. La conception initiale du pilote, ainsi que les modifications ultérieures, ont été menées avec l'aide de L. Pollini, Ingénieur d'Etudes au LGC.

Le pilote est constitué de plusieurs organes principaux qui sont (dans le sens de la circulation liquide) : une colonne à bulles (entièrement refaite pour cette étude), un séparateur gaz-liquide, une pompe, un refroidisseur et un réchauffeur (cf. Figure 1).

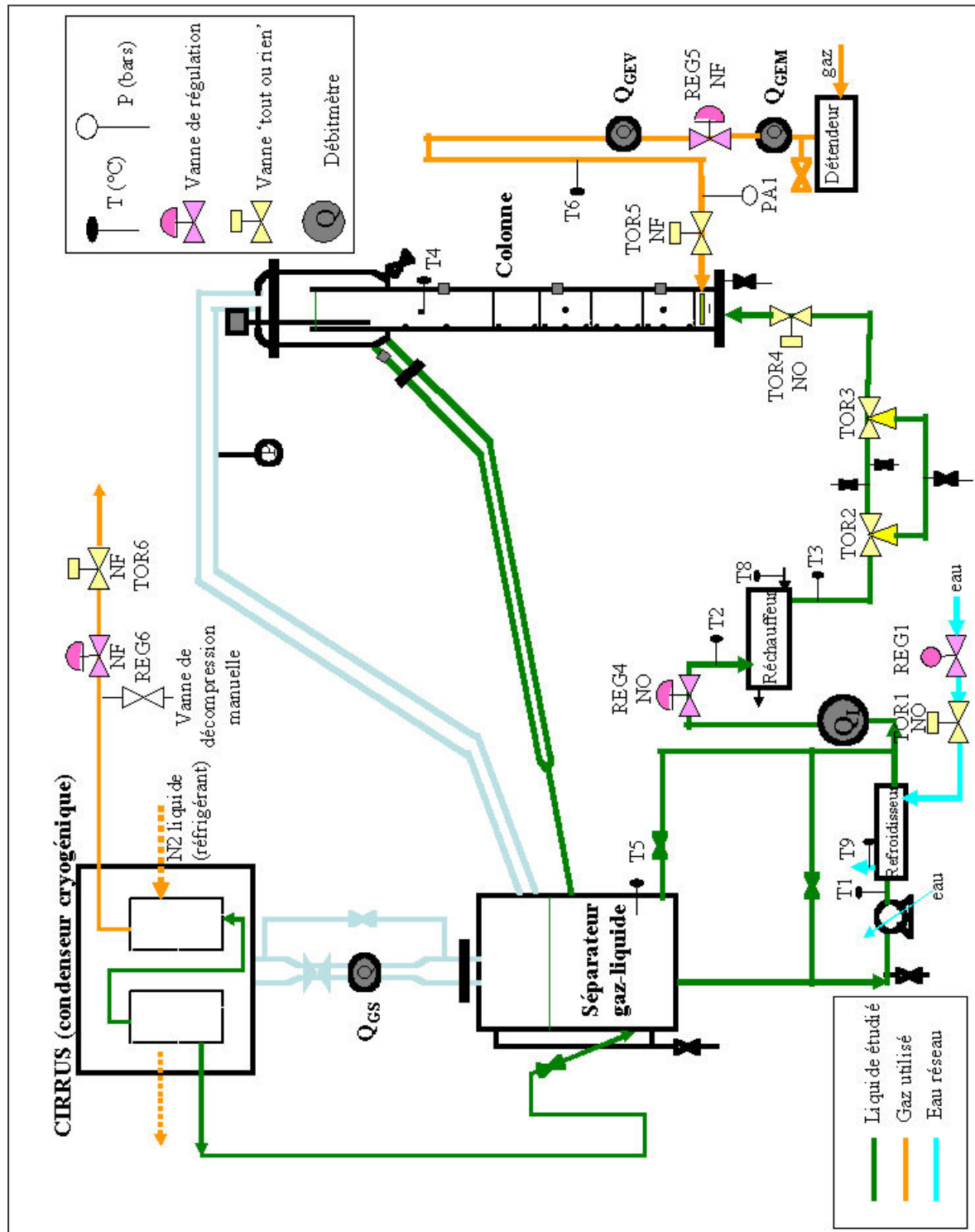


Figure 1 : Schéma général de l'installation utilisée

Cet agencement permet d'imposer une circulation liquide dans la colonne et de travailler en circuit fermé sur le liquide, ce qui est impératif pour un fonctionnement en liquide organique, en température et pression. Ce dispositif est évidemment équipé d'un ensemble d'appareils de mesures, de sécurité et de régulation (cf. Figure 1). A cela s'ajoute, lors du fonctionnement en liquide organique, un condenseur cryogénique, élément primordial pour la récupération des vapeurs de solvant dans l'effluent gazeux.

Ce paragraphe s'efforce de décrire l'ensemble de ces éléments, conçus pour le fonctionnement optimal de l'élément central du pilote qu'est la colonne à bulles, dans des conditions proches des conditions industrielles. Il s'intéresse successivement aux organes de base du pilote, aux capteurs, à la régulation, à la sécurité et au traitement des effluents.

## II.1. Organes de base du pilote

### II.1.a. La colonne à bulles

Pour représenter au mieux les conditions industrielles, la colonne à bulles est conçue comme une réplique à moyenne échelle de la colonne industrielle (distribution du gaz, injection du liquide, ...).

#### *I.1.a.α. Description générale*

La colonne utilisée est schématisée sur la Figure 2. Elle a un diamètre de 20cm, diamètre suffisant pour simuler des colonnes industrielles et éviter des phénomènes de paroi trop importants (cf. chapitre I.C). La hauteur de liquide dans cet appareil est constante et maintenue à 1,60m (par une surverse symétrique sur toute la section), soit à  $8D_C$ , hauteur a priori suffisante pour une bonne représentativité.

#### Arrivée du liquide :

Une plaque redistributrice est placée, comme industriellement, en bas de colonne, face à l'arrivée du liquide, afin d'éviter la formation d'un jet violent perturbant l'écoulement dans une partie importante de la colonne. Des simulations monophasiques sous Fluent ont montré a posteriori l'intérêt de cette plaque [Sardeing et al. (2005)] : sans elle, un jet liquide occupant quasiment la moitié de la colonne est formé, ce qui engendre une grande cellule de recirculation autour de ce jet et des zones mortes en bas de colonne. Cet effet, indésirable pour le procédé industriel, est très fortement réduit par l'ajout de la plaque au-dessus de l'arrivée liquide.

#### Distribution du gaz :

Le gaz est injecté dans la colonne par deux tores concentriques en inox (respectivement de diamètre 115 et 160mm) percés de trous de même diamètre, orientés vers le haut. Selon le diamètre d'orifice retenu, deux distributeurs sont élaborés :

- \_ Le premier est percé de 80 trous de 1mm, diamètre utilisé industriellement pour sa simplicité de réalisation et son faible risque de colmatage. Ce distributeur sert de référence ; dans la suite, il est appelé « distributeur 1 ».
- \_ Le second est percé de 320 trous de 0,5mm ; ce distributeur, appelé « distributeur 2 », permet d'observer l'ensemble des régimes hydrodynamiques et ainsi d'évaluer l'effet de ce paramètre.

Le nombre de trous de chaque tore est fixé de manière à avoir le même pourcentage d'ouverture pour les deux distributeurs (0,8%), et d'ainsi conserver des vitesses d'éjection à l'orifice constantes pour un débit donné.

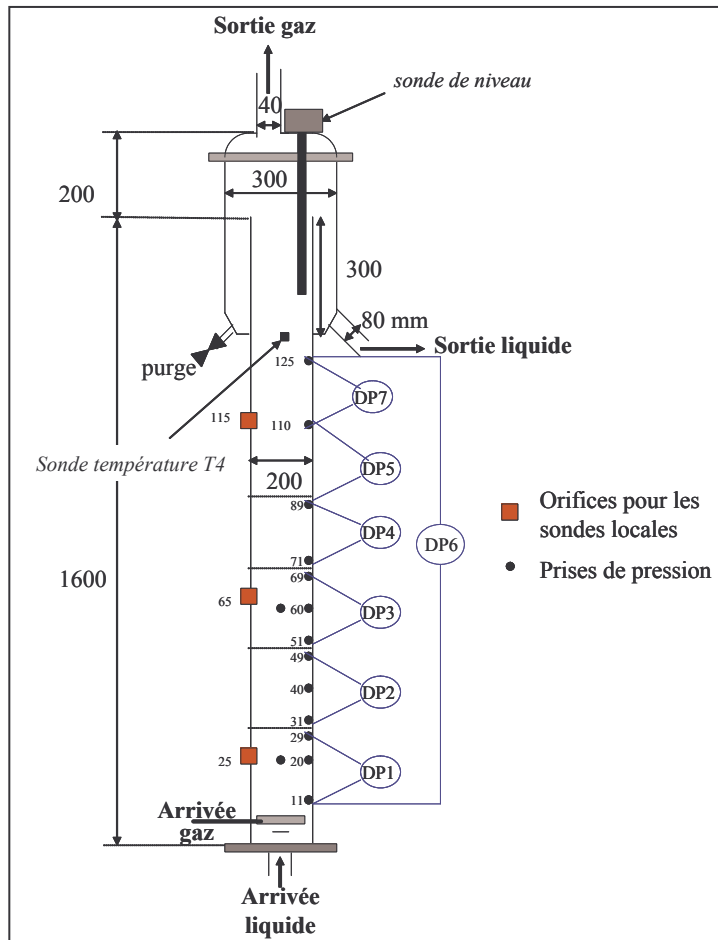


Figure 2 : Schéma de la colonne à bulles

Plateaux perforés :

La colonne peut également être équipée de 4 plateaux perforés (traités pour résister aux produits industriels), insérés comme indiqué sur la Figure 2, maintenus en place à l'aide de quatre entretoises (tiges filetées). Les plateaux utilisés sont similaires à ceux mis en place industriellement. Leurs caractéristiques sont mentionnées dans le Tableau 3. Compte tenu du fort pourcentage d'ouverture des plateaux (30%), la perte de charge moyenne lors de leur traversée est négligeable.

<b>Diamètre des plateaux</b>	200mm
<b>Diamètre des trous</b>	30mm
<b>Nombre de trous</b>	14
<b>Pourcentage d'ouverture</b>	30%
<b>Espacement entre plateaux</b>	200mm

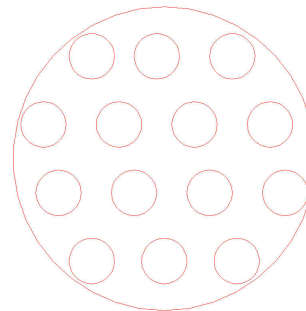


Tableau 3 : Caractéristiques des plateaux utilisés

D'autres configurations auraient certes été envisageables pour approfondir l'effet de ce paramètre encore peu étudié (variations du pourcentage d'ouverture, du diamètre des trous, de

l'espacement entre plateaux), mais le temps imparti à cette étude n'a pas permis d'aborder cet aspect.

### *1.1.a.β Alimentation en gaz*

Le gaz d'alimentation de la colonne provient soit du circuit d'air comprimé du laboratoire (étude en eau), soit d'une cuve d'azote (étude en cyclohexane). En effet, pour des raisons de sécurité, il est impératif de ne pas injecter d'oxygène dans le cyclohexane, afin d'éviter tout risque de se trouver dans la zone d'explosivité (zone située entre 1,2 et 8,8% d'O<sub>2</sub> dans le gaz à 20°C).

Le type de distribution du gaz peut être estimé à l'aide du nombre de Reynolds à l'orifice :

$$Re_0 = \frac{\rho_G u_{G0} d_0}{\mu_G}$$

Ces valeurs fournissent une première approximation de la qualité de nos distributions, à savoir si les bulles sont plutôt formées individuellement ou en jet. L'interprétation de ces valeurs en terme de régimes de formation doit ici être considérée avec précaution, dans la mesure où les valeurs de  $Re_0$  associées aux différents régimes d'injection ont été établies pour un distributeur à orifice unique dans un liquide au repos, alors qu'en colonne à bulles les interactions entre les bulles issues des divers orifices sont fortes et que la turbulence liquide influence la formation.

Ces indications peuvent être complétées par l'approche de Mersmann (1978) : pour un distributeur à orifices, une bonne distribution est assurée si le gaz passe par tous les orifices, condition satisfaite si :

$$We_0 = \frac{u_{G0}^2 d_0 \rho_G}{\sigma} \geq 2$$

Les nombres de Reynolds et de Weber à l'orifice sont calculés pour toute la gamme de débits étudiés (cf. Tableau 4). Pour ces deux paramètres, le diamètre de l'orifice a un poids important :  $Re_0$  et  $We_0$  diminuent de moitié entre les distributeurs 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) ( $d_0$  divisé par deux). Par contre, seul le nombre de Weber est sensible à la nature du liquide : il est très supérieur en cyclohexane, de tension superficielle plus faible.

Si les valeurs de  $Re_0$  de notre pilote sont extrapolées en terme de régime d'éjection (cf. chapitre I, §B.I), la plupart des essais sont réalisés dans le régime de transition entre les régimes à bulles et à jet ( $1000 < Re_0 < 10000$ ). Seuls les essais réalisés à  $u_G < 4\text{cm/s}$  pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et à  $8\text{cm/s}$  pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) sont susceptibles d'avoir une injection à bulles ( $Re_0 < 1000$ ).

Les valeurs de  $We_0$  vérifient le critère de Mersmann ( $We_0 > 2$ ) dans toute la gamme de conditions opératoires envisagée : le distributeur fonctionne correctement (utilisation de tous les orifices).

Les distributeurs utilisés offrent ainsi un bon compromis entre la qualité de la distribution (cf. nombre de Weber) et la taille des bulles formées (cf. nombre de Reynolds).

$Q_G$ (m <sup>3</sup> /h)	$u_G$ (m/s)	$u_{G0}$ (m/s)	$Re_0$ ( $d_0=1\text{mm}$ )		$We_0$ ( $d_0=1\text{mm}$ )		$Re_0$ ( $d_0=0,5\text{mm}$ )		$We_0$ ( $d_0=0,5\text{mm}$ )	
			eau	cyclohexane	eau	cyclohexane	eau	cyclohexane	eau	cyclohexane
3	0,0265	13,26	815	791	3	8	407	395	1	4
4	0,0354	17,68	1086	1055	5	15	543	527	3	7
5	0,0442	22,10	1358	1318	8	23	679	659	4	12
6	0,0531	26,53	1629	1582	12	33	815	791	6	17
7	0,0619	30,95	1901	1846	16	45	950	923	8	23
8	0,0707	35,37	2173	2109	21	59	1086	1055	10	30
9	0,0796	39,79	2444	2373	26	75	1222	1186	13	37
10	0,0884	44,21	2716	2637	33	92	1358	1318	16	46
11	0,0973	48,63	2987	2900	39	112	1494	1450	20	56
12	0,1061	53,05	3259	3164	47	133	1629	1582	23	66
13	0,1149	57,47	3530	3428	55	156	1765	1714	27	78
14	0,1238	61,89	3802	3691	64	181	1901	1846	32	90
15	0,1326	66,31	4073	3955	73	207	2037	1977	37	104
16	0,1415	70,74	4345	4218	83	236	2173	2109	42	118
17	0,1503	75,16	4617	4482	94	266	2308	2241	47	133
18	0,1592	79,58	4888	4746	105	299	2444	2373	53	149
19	0,1680	84,00	5160	5009	117	333	2580	2505	59	166
20	0,1768	88,42	5431	5273	130	369	2716	2637	65	184
25	0,2210	110,52	6789	6591	203	576	3395	3296	102	288
30	0,2653	132,63	8147	7910	293	830	4073	3955	146	415

Tableau 4 : Calcul des nombre de Reynolds et de Weber à l'orifice avec les deux distributeurs

### II.1.b. Séparateur gaz-liquide

Le séparateur gaz-liquide (cf. Figure 3) est un bidon cylindrique de 40cm de diamètre équipé de 2 chicanes. De conception très simple, il permet de fonctionner en circuit fermé sur le liquide.

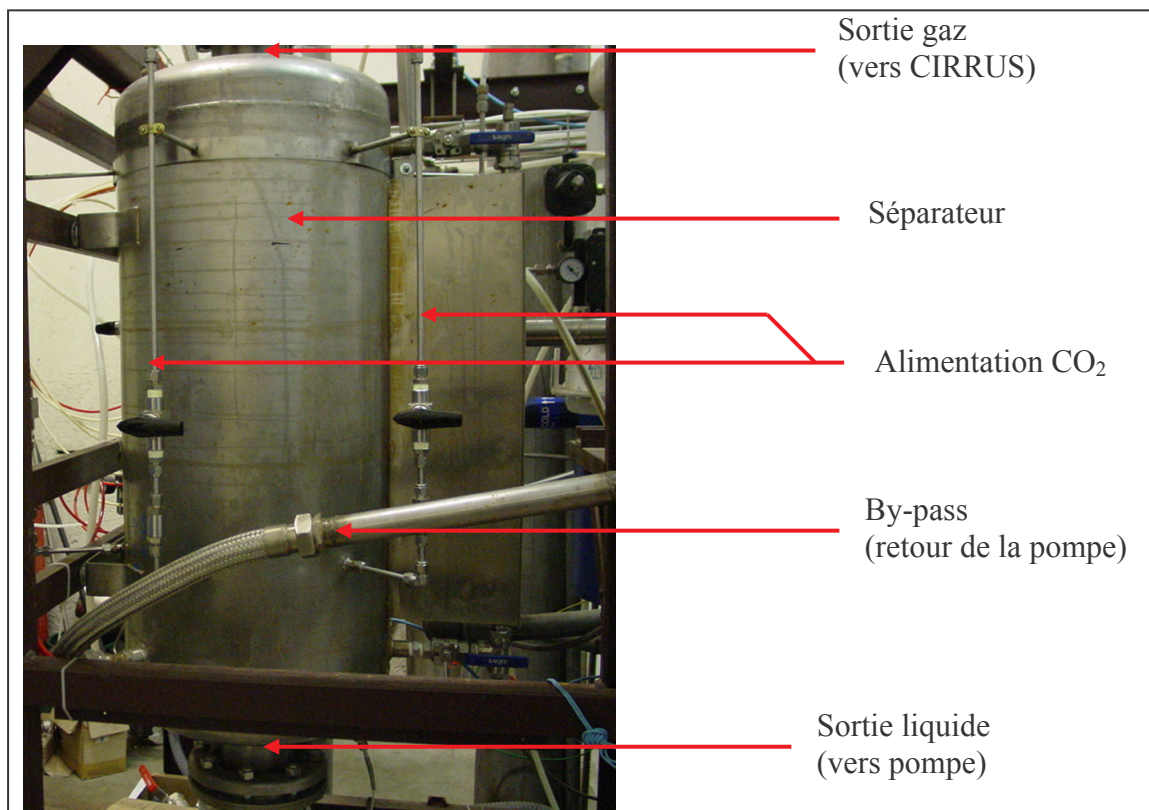


Figure 3 : Séparateur gaz-liquide

Lors de l'étude de transfert de matière, le séparateur est aussi utilisé comme absorbeur, afin de charger le liquide en un gaz transférable, CO<sub>2</sub> (voir chapitre V). Pour cela, 6 tubes en inox percés chacun de 32 trous de 0,5mm de diamètre orientés vers le haut, sont introduits en étoile

dans le séparateur, comme indiqué sur la Figure 4. Ils se situent environ au tiers de la hauteur du liquide.

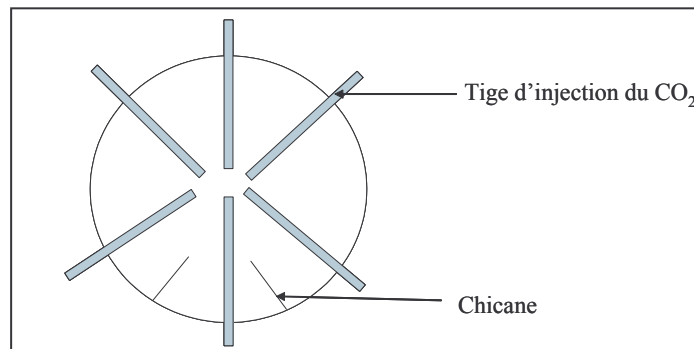


Figure 4 : Vue de dessus du séparateur en coupe et des tiges d'injection du CO<sub>2</sub>

### II.1.c. La pompe

La pompe utilisée est une pompe Sterling centrifuge multi-étagée à entraînement magnétique, auto-amorçante, permettant de travailler jusqu'à des débits de 15m<sup>3</sup>/h. Elle est adaptée au pompage simultané de liquide et de gaz (en cas de passage occasionnel de bulles) et sa technologie garantit une étanchéité absolue et une bonne résistance au cyclohexane. Pour assurer un fonctionnement en pression, elle est équipée d'un système de contre-pression à l'air comprimé. Par ailleurs, cet élément dégageant beaucoup de chaleur, une circulation de refroidissement est intégrée.

### II.1.d. Régulation de la température : les échangeurs

La température de l'installation peut être réglée grâce à la combinaison de deux échangeurs à plaques nervurées : un réchauffeur et un refroidisseur (cf. Figure 1). Dans notre étude, les essais étant réalisés à température ambiante, seul le refroidisseur est utilisé, de manière à stabiliser la température à la valeur souhaitée en compensant la chaleur dégagée par la pompe. La température est réglée en modulant manuellement l'ouverture de la vanne d'alimentation en eau du refroidisseur (REG1).

## II.2. Capteurs

Afin de maîtriser les conditions opératoires, de nombreux organes de mesures (températures, pressions, niveaux et débits) équipent le pilote.

### II.2.a. Mesure de la température

Pour la régulation ou le simple suivi de la température, l'installation est équipée de 8 capteurs de température de type PT100, placés comme indiqués sur la Figure 1.

### II.2.b. Mesure de la pression

Le suivi de la pression globale dans l'installation est assuré par un capteur de type capacitif de marque Keller situé sur la sortie gaz de la colonne. Un capteur de ce type est également placé sur l'alimentation de gaz.

*Remarque :*

Comme nous le verrons au §II.5, la mesure de la pression de l'installation est primordiale lors de l'utilisation du cryogène CIRRUS.

### II.2.c. Mesure de débits

Quatre débits sont mesurés sur cette installation : le débit de liquide, le débit de gaz en entrée de la colonne, le débit de gaz en sortie et, lors des tests de transfert, le débit de CO<sub>2</sub> dans le séparateur.

La connaissance du débit liquide ( $Q_L$ ) permet de déterminer la vitesse superficielle du liquide dans la colonne. Ce débit est mesuré à l'aide d'un débitmètre à flotteur aimanté Brooks pouvant mesurer des débits entre 2 et 15m<sup>3</sup>/h avec une précision de 0,25% de la pleine échelle.

Le débit de gaz en entrée ( $Q_{GE}$ ) est la donnée de base pour caractériser le fonctionnement de la colonne à bulles ; il doit donc être déterminé le plus précisément possible. Cette mesure est réalisée par un débitmètre massique Brooks ( $Q_{GEM}$ ), appareil précis dont la mesure est indépendante de la température et de la pression amont.

La mesure du débit de gaz en sortie d'installation ( $Q_{GS}$ ) permet de déterminer, dans le cas de l'utilisation du cyclohexane, liquide volatil ( $P^{vap}(20^\circ C)=0,1bar$ ), la quantité réelle de gaz dans l'installation (gaz injecté + cyclohexane vaporisé). A cet effet, un débitmètre à effet vortex est placé sur la canalisation de sortie, mais la profonde instabilité des mesures gêne son interprétation.

Pour les tests de transfert, la mesure du débit entrant de CO<sub>2</sub> ( $Q_{G,sép}$ ) est une indication intéressante permettant de déterminer un débit optimal pour cette étude et d'opérer systématiquement dans ces conditions. Elle est mesurée via un débitmètre massique thermique Brooks.

### II.2.d. Mesures de niveau

Les niveaux de remplissage de la colonne et du séparateur sont également accessibles.

Le premier est suivi à l'aide d'une sonde de niveau capacitive de 500mm de longueur placée en tête de colonne (cf. Figure 2). Cette sonde permet de vérifier que le niveau de remplissage de la colonne est constant et que le liquide ne remplit pas le ciel gazeux.

Le niveau du séparateur est quant à lui accessible via un témoin de niveau à tube de verre monté sur le séparateur comme indiqué sur la Figure 1. L'effet de la quantité totale de liquide dans l'installation a été évalué : quel que soit le niveau de remplissage du séparateur (entre 20 et 80% de remplissage), les grandeurs mesurées dans la colonne demeurent inchangées.

### II.2.e. Mesures globales et locales

D'autres mesures sont réalisées sur l'installation en vue, non plus de fixer les conditions d'études ou de contrôler le bon fonctionnement de l'installation, mais de caractériser la colonne. Il s'agit de mesures hydrodynamiques locales et globales et de mesures de transfert. Ces points ne sont pas décrits ici ; ils sont détaillés dans le chapitre III, consacré aux moyens de caractérisation de l'hydrodynamique de la colonne, et dans le chapitre V, consacré aux tests de transfert. Néanmoins, les piquages associés sur la colonne sont d'ores et déjà représentés sur la Figure 2.



### II.3. Régulation

Quatre des grandeurs mesurées peuvent être régulées. Deux d'entre elles, les plus cruciales, font l'objet de boucles de régulation automatiques ; ce sont (cf. Figure 1) :

- \_ Le débit liquide : la mesure du débit liquide ( $Q_L$ ) agit sur l'ouverture de la vanne située après la pompe (REG4).
- \_ Le débit gaz : la mesure du débit de gaz entrant ( $Q_{GE}$ ) agit sur l'ouverture de la vanne d'entrée gaz (REG5).

Pour chacun de ces cas, la mesure (grandeur réglée) est transmise à un PID (WEST) qui agit sur une vanne de régulation pneumatique MAXFLO avec positionneur. Les gammes étudiées étant très larges, il est délicat de fixer pour les PID des paramètres valables dans tous les cas. Le fonctionnement manuel des vannes est donc parfois préférable.

Les deux autres boucles de réglage, manuelles, permettent de stabiliser :

- \_ La température de l'installation en modulant l'ouverture de la vanne d'arrivée d'eau du réseau du refroidisseur (REG1),
- \_ Le débit de  $CO_2$  en fixant soit l'ouverture de la vanne d'arrivée du  $CO_2$  sur le pilote, soit la pression amont en sortie du cadre.

### II.4. Sécurité

Compte tenu du procédé (et plus particulièrement du produit) étudié, l'aspect sécurité est primordial. L'analyse des risques comprend trois volets :

- \_ Les risques liés aux fluides,
- \_ Les risques liés à l'installation en fonctionnement,
- \_ Les risques liés aux étapes de démarrage et d'arrêt.

#### II.4.a. Risques liés aux fluides

##### *II.4.a.α. Cyclohexane*

La manipulation du cyclohexane n'est pas anodine et pose quatre problèmes essentiels :

- \_ L'agressivité,
- \_ L'inflammabilité,
- \_ La toxicité,
- \_ Le risque pour l'environnement.

Les contraintes imposées par chacun de ces points sont détaillées ci-dessous.

##### II.4.a.α.1. Agressivité

Le cyclohexane attaque de nombreux matériaux, ce qui nécessite un choix minutieux de tout élément en contact avec ce produit : joints, appareillages, colles, ...

#### II.4.a.α.2. Inflammabilité, explosivité

Le cyclohexane est très inflammable. De plus, bien que très stable et peu réactif aux températures classiques, il réagit violemment avec les oxydants puissants, ce qui peut conduire à des incendies et explosions... Le risque d'inflammation est par conséquent un risque majeur.

Pour éviter l'auto-inflammation, nous nous situons toujours très en deçà de 245°C (température d'auto-inflammation).

La zone d'explosivité est comprise entre 1,3 et 8,8% d'oxygène dans la vapeur, valeurs relativement faibles. Ainsi, compte tenu de la dangerosité de l'introduction d'oxygène dans le cyclohexane a des teneurs non contrôlées, il est préférable, pour éviter tout incident, de bannir l'utilisation d'oxygène en présence de cyclohexane. Les essais sont donc réalisés en azote.

En outre, pour pallier tout dysfonctionnement, un extincteur à CO<sub>2</sub> est situé à proximité de l'installation.

#### II.4.a.α.3. Toxicité

Les valeurs limites de concentrations de cyclohexane dans l'air des locaux de travail ont été fixées en France à 300ppm (soit 1050mg/m<sup>3</sup>) pour une exposition de 8 heures par jour, soit 40 heures par semaine (Valeur Moyenne d'Exposition), et à 375ppm (soit 1300mg/m<sup>3</sup>) pour une exposition de 15 minutes (Valeur Limite d'Exposition). Pour des expositions supérieures, le cyclohexane cause des irritations aux yeux, aux muqueuses et à la peau. A hautes concentrations, il a un effet anesthésiant et narcotique. Des précautions s'imposent donc pour la manipulation de ce produit : manipulation dans un local ventilé ou sous hotte, port de blouse, gants et lunettes.

#### II.4.a.α.4. Effluents : risques pour l'environnement

Le cyclohexane est un liquide très volatil. Il est donc nécessaire pour respecter l'environnement de confiner les vapeurs de cyclohexane. Cet aspect, spécifiquement pris en compte dans cette étude, est développé au §II.5.

#### **↳ Mesures prises pour la manipulation du cyclohexane :**

Compte tenu de l'explosivité et de l'inflammabilité du cyclohexane et de sa nocivité pour la santé, il est impératif de le confiner au maximum et de le manipuler dans des endroits très ventilés. Le cyclohexane est donc stocké à l'extérieur du bâtiment, dans des fûts sous atmosphère d'azote, d'où il est pompé pour remplir l'installation (préalablement inertée à l'azote).

Le seul risque lié au fluide présent à l'intérieur du bâtiment est la fuite. Pour éviter la dispersion du cyclohexane, l'installation est équipée d'un bac de rétention de 200L (contenance maximale du pilote). Un ventilateur centrifuge (avec moteur AntiDéFlagrations) et la présence d'une porte coulissante ouverte sur l'extérieur à proximité (quai de déchargement) permettent pour leur part de minimiser les risques d'inhalation et d'inflammation. Evidemment, la zone de manipulation est une zone non fumeur. En outre, pour prévenir tout problème, l'ensemble du matériel électrique de l'installation est certifié ADF, les commandes sont déportées et un extincteur est placé à proximité. En cas de projection de produit, un rince-œil et une douche de sécurité ont été installés à proximité de l'installation.

La très forte aération du local est un atout majeur qui rend inutile la mise en place d'un détecteur de cyclohexane. De toute façon, le seuil de détection olfactive se situant à 0,417ppm, valeur très nettement inférieure à la valeur d'exposition admissible de 300ppm (1030mg/m<sup>3</sup>), notre odorat nous prévient avant tout détecteur !

### ***II.4.a.β Gaz***

Il n'existe pas de risque à utiliser de l'air comprimé, mais l'emploi d'azote en grande quantité (cuve de 10m<sup>3</sup>) introduit un risque d'asphyxie en cas de fuite dans le local, lors des périodes d'arrêt du pilote (local fermé).

Le dioxyde de carbone pose aussi un de problème puisqu'une augmentation de sa concentration dans l'organisme conduit à une modification du pH et à des effets sur le métabolisme cellulaire. Une concentration de 0,7% dans l'air représente un niveau acceptable ; au-delà de ce seuil, des maux de tête et une augmentation du rythme respiratoire peuvent être déclenchés (pour des taux de 3-4%). Le risque mortel apparaît pour des concentrations supérieures à 10%.

Pour éviter tout incident, l'azote et le dioxyde de carbone, stockés à l'extérieur du bâtiment, sont systématiquement utilisés en local ouvert. En fin de manipulation, toutes les vannes d'alimentation (deux sur chaque circuit en amont du pilote) sont fermées.

Pour encore plus de sûreté, un second niveau de protection est mis en oeuvre : un capteur à oxygène à deux niveaux d'alarme est placé sur le châssis du pilote à proximité du manipulateur. La première alarme se déclenche si l'air ambiant chute à la teneur de 19% d'oxygène, et permet d'aérer la pièce (ventilateur, porte coulissante) et d'identifier le problème. La seconde alarme, réglée à 17%, impose l'évacuation.

### **II.4.b. Risques liés au fonctionnement de l'installation : supervision**

Pour limiter les risques liés au fonctionnement de l'installation, le procédé est entièrement automatisé et chaque paramètre est suivi sur l'interface de supervision (programmée en Pascal sur un ordinateur). Cet automate a quatre fonctions principales :

- \_ Agir à distance sur les vannes pneumatiques, lorsque le pilote est en fonctionnement
- \_ Visualiser et sauvegarder les grandeurs mesurées (pressions, températures, débits, niveau dans la colonne, pertes de charge). Pour la sauvegarde, la fréquence d'acquisition est ajustable entre 1 et 10Hz.
- \_ Eviter toute fausse manipulation (seules les procédures « sûres » sont permises par le programme).
- \_ Intégrer des procédures automatiques de sécurité (fermetures de vannes, coupe-circuit, alarmes...) en fonction des anomalies détectées (niveau élevé de pression, température ou débits).

### ***II.4.b.α Action sur les vannes***

L'automate gère l'ouverture et la fermeture de 4 vannes pneumatiques « tout ou rien » (TOR). Ce sont des vannes très fiables, adaptées pour travailler dans des conditions extrêmes (très fortes variations de température, ambiance corrosive). Elles sont placées respectivement (cf. Figure 1) :

- \_ Sur l'arrivée liquide de la colonne, en aval de la pompe (Normalement Ouverte), (TOR4),
- \_ Sur l'arrivée gazeuse (Normalement Fermée), (TOR5),
- \_ Sur la sortie gaz de l'installation (NF), (TOR6),
- \_ Sur le circuit d'eau du refroidisseur (NO) (TOR1).

Les ouvertures normales des vannes sont dictées par des considérations de sécurité : en cas de coupure de l'air service et/ou de l'électricité, l'installation doit se retrouver dans des conditions optimales de sécurité.

L'automate gère, en plus de ces 4 vannes, deux vannes « trois voies » pneumatiques (utilisées pour les essais de DTS). Seules deux positions étant permises pour ces vannes, leur servomoteur est assimilable à celui des vannes tout ou rien (TOR2 et TOR3).

#### ***II.4.b.β Procédures pré-définies***

Les procédures de commandes de vannes adaptées à notre étude et programmées au niveau de la supervision sont :

- \_ Le fonctionnement normal (toutes les vannes ouvertes),
- \_ La DTS (fonctionnement normal avec inversion de la position des deux vannes trois voies) (TOR2 et TOR3),
- \_ Le désengagement (toutes les vannes fermées sauf sur le circuit de refroidissement)
- \_ L'arrêt (toutes les vannes fermées sauf sur le circuit liquide).

A ces procédures s'ajoute une procédure de « mise en sécurité » : isolation de l'installation par fermeture des vannes sur le circuit gaz et ouverture de la vanne du refroidisseur pour éviter toute surchauffe ; ceci correspond aux positions « normales » des vannes (arrêt de l'air service). Contrairement aux autres procédures, elle n'est pas choisie par l'opérateur, mais se déclenche lorsque les débits de gaz ou de liquide sont excessifs, ou que la pression ou la température sont trop élevées. Deux niveaux d'alarme sont fixés : le premier affiche une mise en garde au niveau de la supervision pour laisser à l'opérateur le temps d'agir, le second met l'installation « en sécurité ».

#### **II.4.c. Risques liés aux périodes de démarrage et d'arrêt**

Les paragraphes précédents ont permis d'analyser les risques liés aux fluides et au fonctionnement de l'installation. Les étapes de démarrage et d'arrêt ne doivent toutefois pas être négligées. Des protocoles spécifiques sont donc également établis pour gérer ces deux étapes délicates, particulièrement lors des phases de remplissage et de purge lorsque l'installation fonctionne en cyclohexane.

### **II.5. Effluents du pilote**

#### **II.5.a. Présentation du problème**

Comme nous l'avons vu, les émissions de cyclohexane dans l'atmosphère se doivent d'être contrôlées :

- \_ Pour éviter l'inhalation,
- \_ Pour respecter l'environnement,
- \_ Pour éviter la perte d'une grande quantité de produits (tension de vapeur de 10% dans nos conditions de température et de pression).

Dans le contexte environnemental actuel, les normes de rejet du cyclohexane sont strictes. En effet, le cyclohexane appartient à la famille des COV (Carbones Organiques Volatils), produits dont la réduction des rejets est une des orientations majeures de la commission

européenne. Ils font ainsi l'objet de différentes directives européennes depuis quelques années, l'objectif annoncé par la directive 1999/13 étant d'abaisser les émissions de ces gaz de 57% entre 1990 et 2010.

En effet, en plus de leur toxicité propre (irritations, maladies, risques mutagènes, cancérigènes ou toxiques, ...), les COV influencent le processus de conversion du monoxyde d'azote en dioxyde d'azote ( $O_2 + NO_2 \leftrightarrow O_3 + NO$  en présence de radiation lumineuse). Certains COV contribuent ainsi aux épisodes de pollution par l'ozone en servant de précurseurs, alors que d'autres participent à l'amincissement de la couche d'ozone et au réchauffement climatique.

#### Définition des COV

La définition des COV a évolué au fil des années.

A la convention de Genève en 1979, ils sont définis comme l'« ensemble des hydrocarbures d'origine humaine capable, en présence d'oxyde d'azote et de lumière, de produire des polluants photochimiques ».

L'arrêté ministériel du 2 février 1998 définit les COV comme « tous les composés contenant du carbone et de l'hydrogène, dans lesquels l'hydrogène peut être partiellement ou totalement remplacé par des halogènes, du soufre ou de l'azote, à l'exception des oxydes de carbones et des carbonates ». Les COV sont alors les composés organiques volatils ayant une pression de vapeur supérieure ou égale à 0,01kPa à 293,15°K.

Le cyclohexane vérifie cette définition ; sa tension de vapeur valant 10,4kPa à 20°C. Ce produit fait d'ailleurs partie des 15 substances polluantes faisant l'objet de normes prioritaires de qualité de l'air dans l'Ontario.

**☞ La mise en place d'un surpresseur permettant de fonctionner en circuit fermé sur le gaz ou d'un condenseur permettant de récupérer les vapeurs de cyclohexane issues du pilote s'impose.**

#### **II.5.b. Le CIRRUS**

Dans notre gamme de débits gazeux, aucun surpresseur ne permet simplement de recomprimer le gaz de sortie (avec condensation du cyclohexane) et de le recycler sur l'installation ; l'utilisation d'un condenseur cryogénique est donc envisagée pour récupérer le cyclohexane entraîné dans la phase gazeuse en sortie du pilote.

Le procédé retenu pour piéger les vapeurs de cyclohexane est le procédé CIRRUS, procédé développé et loué par LINDE gaz. Le module CIRRUS est choisi d'une part parce qu'il a été spécialement conçu pour éliminer les solvants (ou d'autres composés organiques volatils) de l'air, et d'autre part parce qu'il s'adapte à nos débits gazeux. Il convient en effet tout particulièrement lorsque la teneur en vapeur du gaz est supérieure à 20g/m<sup>3</sup> (360g/m<sup>3</sup> dans notre cas) et lorsque le débit du gaz procédé est inférieur à 1000m<sup>3</sup>/h (inférieurs à 20m<sup>3</sup>/h dans notre cas). Pour résister aux solvants, le matériau de construction de base est l'inox et pour éviter la montée en pression, l'ensemble du système est équipé de soupapes de sécurité.

Ce système repose sur la diminution de la tension de vapeur par refroidissement. Les vapeurs sont condensées à l'aide de deux échangeurs d'une grande efficacité, isolés par polyuréthane et Armaflex. (cf. Figure 5 et Figure 6). Le solvant contenu dans le gaz issu du procédé entrant dans le CIRRUS est alors condensé et redirigé vers le séparateur gaz-liquide, alors que le gaz purifié est rejeté à l'atmosphère.

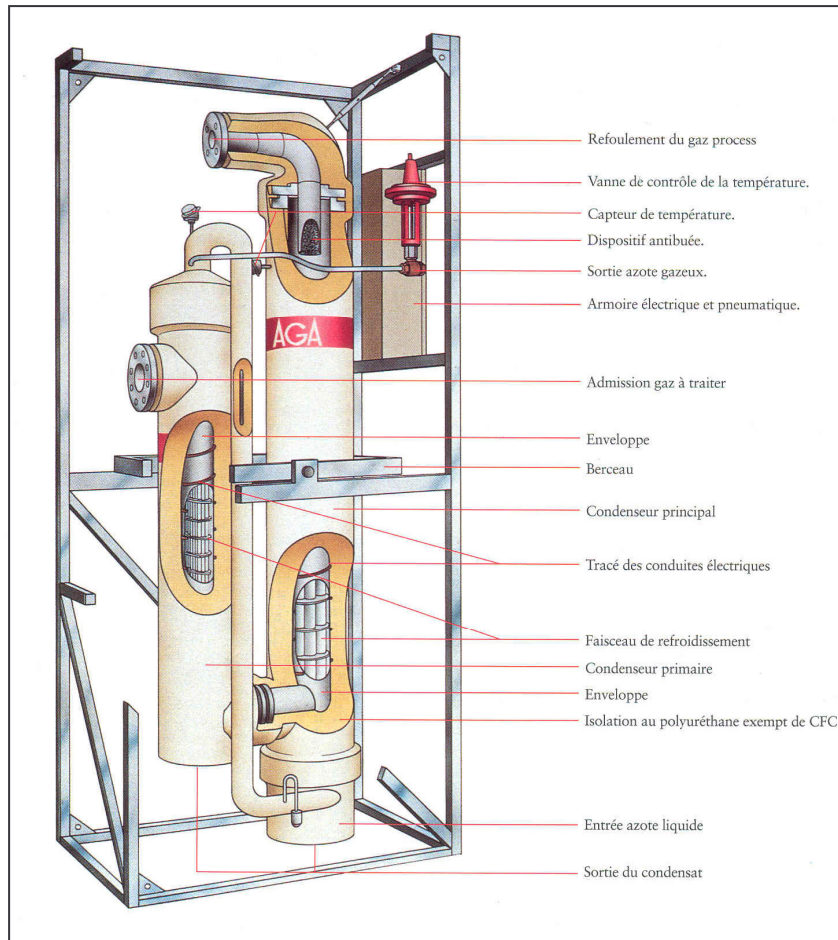


Figure 5 : Schéma du CIRRUS (documentation AGA)

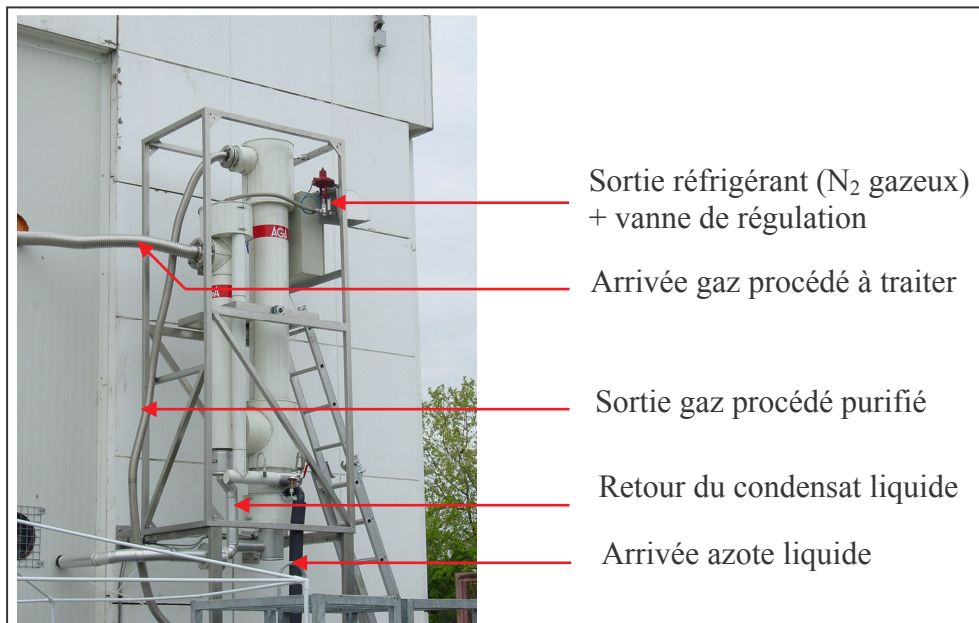


Figure 6 : CIRRUS

Le niveau des émissions est alors en relation directe avec la température de condensation. Celle-ci est fixée à l'aide d'un automate (fourni avec le CIRRUS) et régulée en modifiant le débit de l'agent réfrigérant. Ce régulateur (PID) garantit la stabilité de la température de condensation en cas de modification subite du flux de gaz issu du procédé, de variation de

pression, ou de fluctuation de température. L'agent réfrigérant utilisé est l'azote liquide, notamment en raison de sa faible agressivité à l'égard de l'environnement. Cette utilisation est d'autant plus pratique, lorsque, comme dans notre cas, ce gaz est également utilisé pour alimenter le procédé.

La formation de glace dans l'appareil est possible si le gaz issu du procédé contient de l'eau ou une autre substance qui a un point de congélation élevé. Il est ainsi préférable que les produits traités aient des points de gel inférieurs à  $-30^{\circ}\text{C}$ , ce qui n'est pas notre cas.

Pour notre application, la température de consigne est fixée à  $-30^{\circ}\text{C}$ , pour limiter les rejets ( $P^{\text{vap}}(-30^{\circ}\text{C})=5,8 \cdot 10^{-3}\text{bar}$ ). En effet, pour des températures plus élevées, le cyclohexane étant très volatils, les rejets excèderaient la valeur fixée par la norme (cf. Figure 7). Cependant, à cette température le cyclohexane gèle (point de gelée à  $6,55^{\circ}\text{C}$ ), ce qui pose quelques problèmes. En effet, au lieu d'être condensé et éliminé sous forme liquide, le solvant gèle, ce qui conduit à la formation au cours du temps d'un dépôt de glace de cyclohexane, dépôt qui finit par boucher les échangeurs et par provoquer une montée en pression dans l'installation. La durée des expériences est ainsi limitée par ce phénomène, surtout aux forts débits de gaz procédé. A titre d'exemple, pour une vitesse superficielle de gaz de  $10\text{cm/s}$ , l'appareil se bouche en 15-20 minutes.

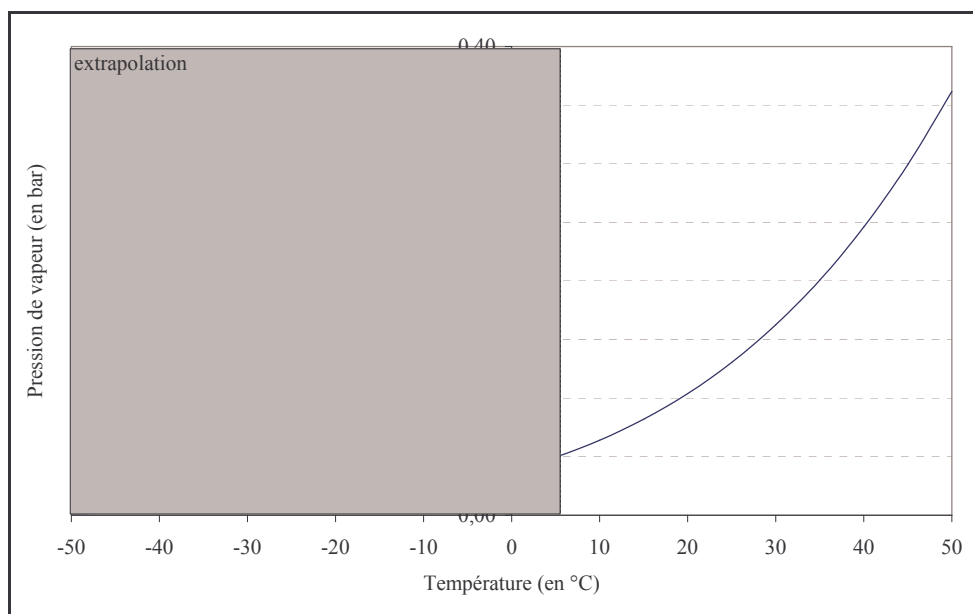


Figure 7 : Evolution de la pression de vapeur en cyclohexane avec la température

Une fois bouché, l'appareil doit être dégivré durant 1 à 2 heures à l'aide d'une résistance électrique (organe prévu dans le CIRRUS). Pour anticiper ce phénomène et arrêter l'installation avant qu'elle ne monte en pression, il est primordial de mesurer la pression dans l'installation.

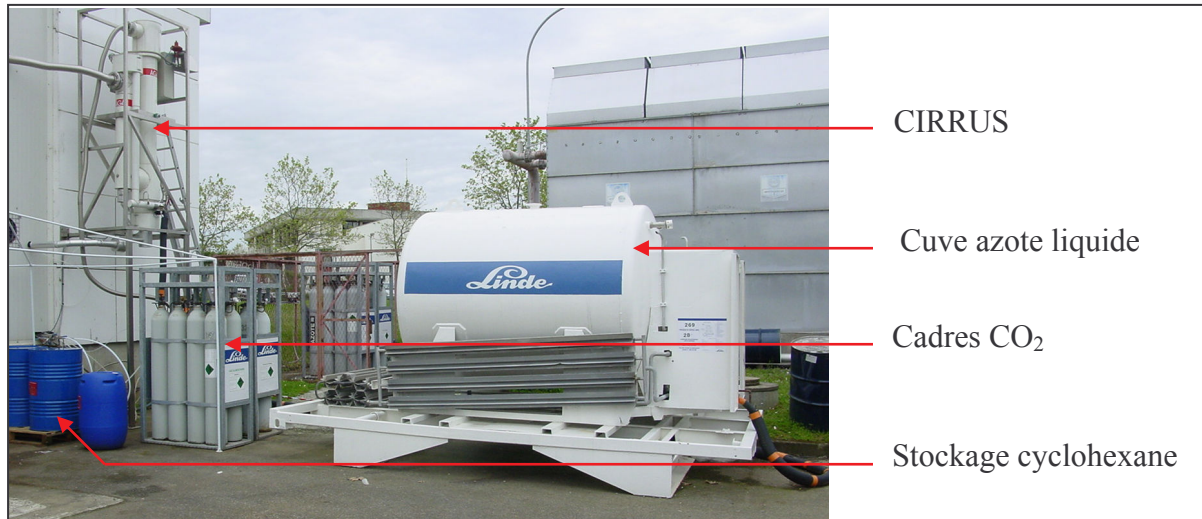


Figure 8 : Partie extérieure de l'installation

## II.6. Conditions étudiées

Le pilote étant décrit dans son intégralité, il ne reste plus qu'à préciser l'ensemble des conditions opératoires envisagées.

Trois liquides sont étudiés : l'eau, le cyclohexane et l'olone.

Pour l'eau, le gaz employé est l'air comprimé alors que pour les milieux organiques, l'azote est préconisé (raisons de sécurité).

Les essais sont réalisés à pression atmosphérique et à température ambiante (régulée entre 21 et 28°C selon les saisons).

Trois configurations de base sont envisagées pour la colonne :

- \_ Distributeur 1 (orifices de 1mm) sans plateau,
- \_ Distributeur 2 (orifices de 0,5mm) sans plateau,
- \_ Distributeur 1 avec plateaux.

Les gammes de vitesses superficielles de liquide et de gaz balayées pour chaque couple milieu/configuration sont répertoriées dans le Tableau 5.

	<b>eau</b>	<b>cyclohexane</b>	<b>Olone</b>
<b>Distributeur 1</b>	$u_L=0-12\text{cm/s}$ $u_G=2-30\text{cm/s}$	$u_L=0-8\text{cm/s}$ $u_G=2-12,5\text{cm/s}$	$u_L=0-8\text{cm/s}$ $u_G=2-12,5\text{cm/s}$
<b>Distributeur 2</b>	$u_L=0-12\text{cm/s}$ $u_G=2-20\text{cm/s}$	$u_L=0-8\text{cm/s}$ $u_G=2-12,5\text{cm/s}$	$u_L=0-8\text{cm/s}$ $u_G=2-12,5\text{cm/s}$
<b>Distributeur 1 +plateaux</b>	$u_L=0-12\text{cm/s}$ $u_G=2-25\text{cm/s}$	$u_L=0-8\text{cm/s}$ $u_G=2-12,5\text{cm/s}$	$u_L=0-8\text{cm/s}$ $u_G=2-12,5\text{cm/s}$

Tableau 5 : Conditions opératoires étudiées



### III. AQUARIUM

L'utilisation complémentaire de l'aquarium vise deux objectifs assez différents :

- \_ La caractérisation des distributions de tailles de bulles dans divers liquides. Cette partie regroupe les études des milieux utilisés en pilote, de la physico-chimie des liquides purs et des mélanges.
- \_ La validation de la métrologie locale (taille et vitesse de bulles)

Ces deux applications étant très différentes, elles engendrent des différences majeures dans leur mise en œuvre. Cette distinction est sensible dans l'ensemble de la description ci-dessous.

La technique d'analyse associée à l'aquarium est la prise d'images, technique retenue d'une part parce qu'elle a fait ses preuves et d'autre part parce qu'elle permet de visualiser les bulles formées dans un milieu donné, ce qui constitue une information utile pour l'interprétation des mesures réalisées « en aveugle » sur le pilote.

#### III.1. Installations

L'aquarium utilisé est une cuve en verre parallélépipédique (pour éviter toute distorsion optique) de dimensions 25\*25\*50cm. La pression est maintenue à la valeur atmosphérique. Afin d'éviter l'inhalation et le rejet de vapeurs lors de l'utilisation de liquides organiques, cette cuve est équipée d'un couvercle étanche et sa sortie gaz est reliée à un condenseur. Le gaz est injecté dans la cuve à l'aide de deux orifices (trous uniques) de 1mm de diamètre, diamètre également utilisé en pilote.

##### III.1.a. Application à la caractérisation des distributions de tailles de bulles dans différents liquides

La première étude envisagée dans cet appareil concerne l'évaluation de la distribution des tailles de bulles dans divers milieux, point crucial pour une bonne compréhension des phénomènes. Cette étude, lourde à mettre œuvre en pilote, est beaucoup plus aisée à réaliser en aquarium, appareil facile à purger et à nettoyer et de contenance limitée à 30L de liquide. Dans cet appareillage, l'effet de la nature des milieux est estimé pour une configuration de travail donnée, mais il peut également être couplé à des effets géométriques (effet du diamètre de l'orifice, de la forme des trous, de leur proximité), spatiaux (évolution avec la hauteur dans la cuve) ou dynamiques (effet du débit gazeux ou d'une circulation liquide), ..., autant de points non totalement élucidés. Cependant, compte tenu des objectifs et des limites temporelles de ce travail, ces points ne sont pas tous approfondis. L'étude de l'influence de la géométrie, déjà amorcée en cyclohexane lors d'un post-doc réalisé pour Rhodia à l'INSA de Toulouse par Salima Moustiri, n'est pas abordée ici. Les aspects dynamiques et spatiaux sont quant à eux étudiés, car l'effet du milieu dépend probablement du régime d'éjection (c'est-à-dire de la vitesse d'éjection) et de la hauteur des bulles au-dessus de l'injecteur. L'effet de la circulation du liquide dans l'aquarium, certes intéressant, n'est pas envisagé, car cette étude nécessiterait une installation plus complexe (pompe, bac, déflecteurs, ...).

La cuve utilisée pour cette étude, gracieusement prêtée par l'INSA de Toulouse, est représentée ci-dessous (cf. Figure 9).

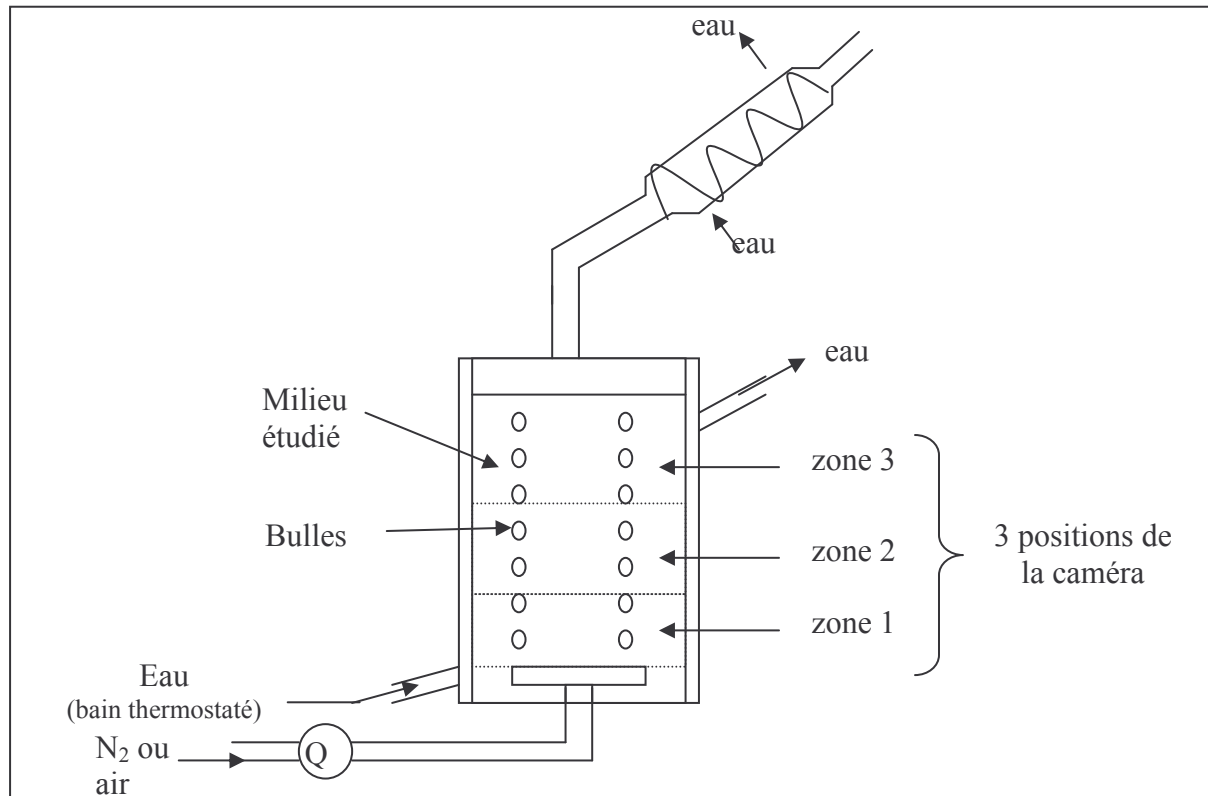


Figure 9 : Schéma de l'aquarium utilisé pour l'étude de la physico-chimie

Elle est équipée d'une double enveloppe reliée à un bain thermostaté, permettant dans notre cas de réguler la température à 25°C. Le gaz utilisé est, comme en pilote, soit l'air comprimé (pour les milieux aqueux), soit l'azote (milieux organiques).

Effets dynamiques :

Les débits de gaz utilisés pour cette caractérisation conduisent à des vitesses d'éjection entre 1 et 40m/s, mais le traitement des images n'est possible que jusqu'à 22,1m/s (au-delà, la densité de bulles est trop forte). Deux rotamètres (R2-15-A et R2-15-C) sont utilisés afin de couvrir l'ensemble de la gamme de vitesses avec le plus de précision possible (0-0,02L/s et 0-0,1L/s). Cette gamme de vitesse permet, au vu des nombres de Reynolds associés (cf. Tableau 6), de balayer les régimes à bulles et le début de la transition vers le régime de jet.

$u_{G0}$ (m/s)	$Re_0$ (air)	$Re_0$ (azote)
1	61	60
5	307	298
10	614	596
15	921	895
20	1229	1193
22	1351	1312
40	2457	2386

Tableau 6 : Nombre de Reynolds à l'orifice pour les essais en aquarium

Les vitesses retenues demeurent cependant faibles par rapport à celles rencontrées en pilote (entre 13 et 132m/s), mais l'utilisation de vitesses plus fortes en aquarium rendrait tout

traitement d'images impossible (trop grande densité de bulles). La gamme de vitesse retenue permet néanmoins de caractériser les vitesses d'éjection en colonne correspondant à un débit inférieur à  $5\text{m}^3/\text{h}$  pour le distributeur 1, percé d'orifices de 1mm.

Effets spatiaux :

Pour suivre l'évolution des diamètres de bulles avec la hauteur, trois zones particulières sont étudiées (cf. Figure 9) :

- \_ La zone 1 correspondant à la sortie de l'injecteur,
- \_ La zone 2 située 10 cm au-dessus de l'injecteur,
- \_ La zone 3 située 20 cm au-dessus de l'injecteur.

Ces zones se situent largement en dessous de l'interface liquide pour éviter toute interaction avec les phénomènes de surface (désengagement des bulles). Elles ont une hauteur d'environ 4cm.

### III.1.b. Application à la validation de la métrologie locale

La seconde utilisation de l'aquarium vise la validation des mesures effectuées par bi-sonde optique (métrologie locale retenue au chapitre III) par comparaison de ses résultats à ceux obtenus par visualisation. Cette validation est évidemment limitée puisque d'une part les conditions d'écoulement liquide en aquarium diffèrent radicalement de celles observées en colonne et que d'autre part l'utilisation de la photographie (pour permettre le traitement ultérieur des images) limite considérablement la densité de bulles. Néanmoins, il est possible en aquarium d'injecter des bulles à des vitesses similaires à celles observées en colonne, ce qui nous offre la possibilité d'analyser les performances de la sonde optique. Ce point est développé dans la partie réservée au traitement des données par sonde optique (cf. chapitre III.B).

Pour cette application, un nouvel aquarium est construit de manière à pouvoir introduire la sonde optique en paroi (cf. Figure 10).

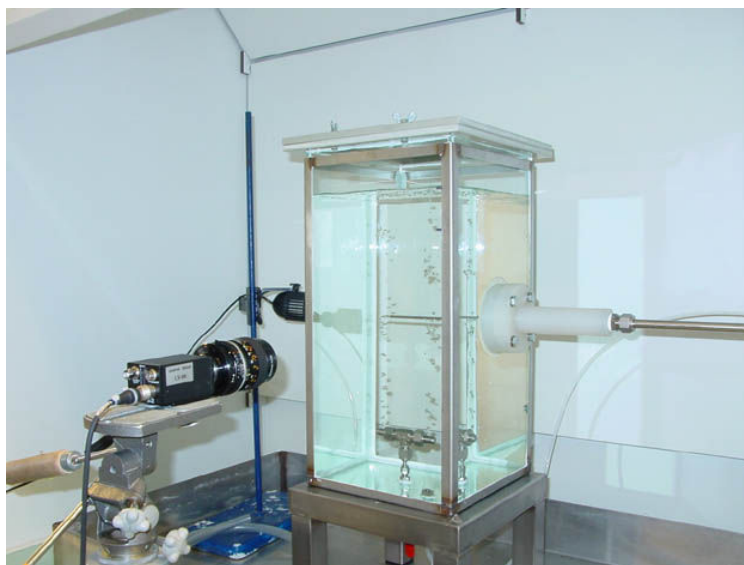


Figure 10 : Photographie de l'aquarium de validation de la bisonde (fonctionnant en eau sur cette photo)

Cette cuve est en tout point similaire à la précédente si ce n'est qu'elle ne possède plus de double enveloppe et qu'une des parois de la cuve est percée d'un orifice et munie d'une bride pour permettre l'insertion de la sonde optique. Les pièces correspondantes sont réalisées en polypropylène, matière à la fois légère et résistante au cyclohexane. Les milieux liquides utilisés pour cette validation sont ceux utilisés en pilote : l'eau, le cyclohexane et l'olone.

Le débit de gaz n'est pas systématiquement mesuré dans cette étude ; on cherche préférentiellement à retrouver des vitesses de bulles similaires à celles observées en colonne tout en conservant une densité de bulles compatible avec le traitement d'images. Pour cela, l'ouverture de la vanne d'entrée de gaz et la pression du gaz sont toutes deux modulées.

## III.2. Acquisition des données

### III.2.a. Description du montage

Pour l'acquisition des données, le montage utilisé est commun aux deux applications ; il est schématisé sur la Figure 11.

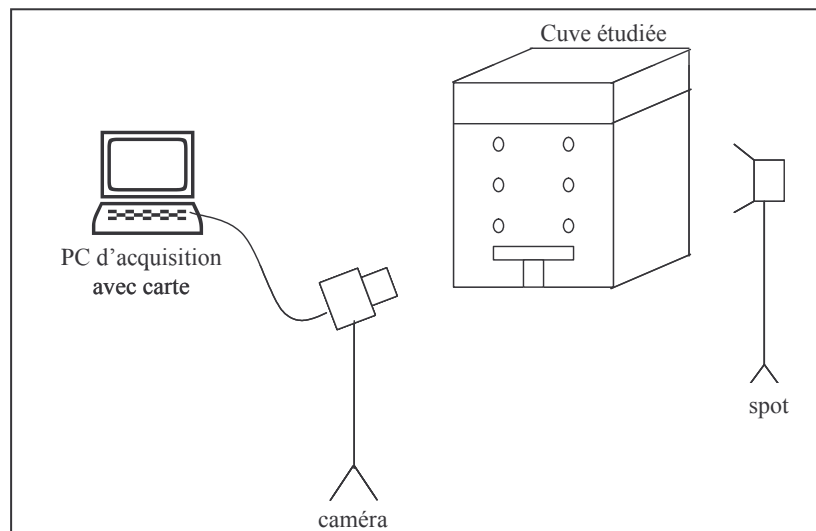


Figure 11 : Montage expérimental pour la photographie

L'éclairage joue un rôle crucial dans la qualité des images. Il est assuré par un spot placé et orienté avec soin, afin d'optimiser le contraste entre les bulles et le liquide et d'éviter les reflets gênants.

La caméra est vissée sur un support permettant son déplacement vertical ; elle est reliée à un PC qui permet l'enregistrement des images en format bitmap.

### III.2.b. Système d'acquisition pour l'analyse de diamètre de bulles

Pour réaliser la mesure des diamètres de bulles, les bulles sont filmées à l'aide d'une caméra monochrome Leutron LV-95 contrôlée directement par le PC via la carte PicPort Mono H4 et le logiciel Leutron Vision. La vitesse de cette caméra peut aller jusqu'à 360 images/s, mais elle est fixée à une valeur modérée de 30 images par seconde pour l'ensemble des essais. Cette valeur correspond à un compromis entre le nombre d'images par seconde (pour ne pas rater de phénomènes) et le temps d'acquisition (pour avoir un suivi sur un temps représentatif de l'écoulement, i.e. visualiser suffisamment de bulles), sachant que le nombre maximal d'images enregistrables par la caméra est de 80 images. En outre, comme la taille de la cellule filmée est inversement proportionnelle à la vitesse d'acquisition, la fréquence d'acquisition

retenue offre une fenêtre d'observation suffisamment grande pour contenir les plus grosses bulles présentes dans l'écoulement.

### **III.2.c. Système d'acquisition pour l'analyse de vitesses de bulles**

Pour effectuer des mesures de vitesses de bulles, comme envisagées pour la validation de la bisonde optique, il faut disposer de plusieurs images successives de la même bulle, donc travailler à une fréquence d'acquisition élevée. Or la fenêtre de visualisation de la caméra décrite au II.2.b s'avère trop petite à fortes vitesses pour le suivi des bulles ; un système New Vision technologies NV1000 est alors utilisé.

La caméra associée est une caméra CMOS monochrome pouvant travailler jusqu'à 1825 images/s à une résolution pouvant atteindre 1024\*1024 pixels. Le système d'acquisition est commandé par le logiciel Matrix Vision Impact.

Les paramètres de cette caméra sont déterminés afin de visualiser chaque bulle sur au moins 5 images et de conserver un temps d'acquisition représentatif. La fréquence d'acquisition retenue est de 51,44 images/s et la fenêtre d'observation est d'environ 5cm.

## **IV. CONCLUSIONS**

L'installation utilisée pour les essais en pilote permet de travailler en toute sécurité dans des conditions difficiles (solvant, débits importants). En outre, la fiabilité des appareils utilisés assure un excellent contrôle des conditions opératoires et donc une bonne reproductibilité des essais. Cependant, la lourdeur de ces manipulations limite leur diversité. Les essais en aquarium permettent de compléter les données ainsi obtenues.

## **CHAPITRE III. : OUTILS POUR LES MESURES HYDRODYNAMIQUES**

L'étude hydrodynamique globale et locale de notre colonne constitue le premier volet, et le plus important, de notre étude. En ce domaine, de nombreuses méthodes de mesures ont été développées, en particulier pour l'analyse locale des écoulements. Cependant, peu sont adaptées à nos conditions d'étude (forts taux de vide, mouvement chaotique des bulles), ce qui explique en partie le peu d'informations locales disponibles dans ces écoulements.

Ce chapitre est dédié à la mise en œuvre des « outils » nécessaires à cette caractérisation. Il se compose de deux parties. La première est consacrée à l'analyse de l'hydrodynamique globale, analyse classique et fiable quelles que soient les conditions d'étude, alors que la seconde s'attache à la mesure plus délicate des grandeurs locales. Chacune de ces parties se découpe en trois paragraphes : le premier est consacré au choix de la méthode de mesure la plus adaptée, le second décrit sa mise en œuvre et le troisième le traitement associé le plus approprié pour notre étude. Ce dernier paragraphe fera l'objet d'une attention particulière pour la mesure locale, car l'ascension chaotique des bulles perturbe fortement le traitement des données.

### **PARTIE A. : HYDRODYNAMIQUE GLOBALE**

---

L'analyse de l'hydrodynamique globale est certes une approche rudimentaire, mais elle est fiable et fournit à elle seule déjà de nombreuses informations. En outre, elle permet de vérifier la validité des mesures locales, moins adaptées aux conditions industrielles.

#### **A.I. METROLOGIES GLOBALES**

Les métrologies globales permettent d'accéder à quatre types d'informations concernant la structure générale de l'écoulement gaz-liquide :

- \_ Le taux de vide,
- \_ Le régime hydrodynamique de bullage,

- \_ Les populations de bulles les plus représentées : estimation de leur nombre, de leur vitesse et éventuellement de leur taille par désengagement dynamique du gaz,
- \_ Le degré de mélange de chaque phase ou degré de « dispersion ».

### A.I.1. Taux de vide

Le taux de vide est la mesure globale la plus usitée : facile d'accès, elle renseigne sur le volume gazeux contenu dans le contacteur. Les méthodes de mesure les plus classiques sont répertoriées dans le Tableau 1.

Principe	Appareil	Limites
<b>Dégazage</b> (mesure du volume occupé par le gaz à la suite du démarrage ou de l'arrêt de la circulation gazeuse)	Visuellement Caméra Sonde de niveau	Transparence du contacteur (pour les méthodes visuelles) Problème en présence de mousse ou lorsque le niveau liquide est très fluctuant [Boyd et Varley (2002)]
<b>Modification d'une propriété du milieu</b>	Sonde à impédance Tomographie (rayons X, gamma, neutrons, lumière, ultrasons)	Lourd, coûteux
<b>Perte de charge</b>	Capteurs de pression	
<b>Traçage</b>		Lourd

Tableau 1 : Méthodes classiques de mesure du taux de vide global

### A.I.2. Régimes hydrodynamiques

Pour déterminer les transitions entre les régimes de bullage, différentes méthodes expérimentales ont été élaborées : la visualisation directe, la mesure de taux de vide ou l'analyse des fluctuations de signaux (tels que pression, température, ...).

La **visualisation directe** est la méthode la plus ancienne et celle qui a permis de mettre en évidence le concept de régimes. Les photos de Jones et al. (1975) explicitent ainsi clairement les principes de reconnaissance des régimes à partir de la seule observation de l'écoulement. Cette méthode est assez arbitraire et se limite aux réacteurs et milieux transparents. Néanmoins, de par sa simplicité, elle sert encore souvent de référence [Benett et al. (1999), Lin et al. (2001)]. Elle a même récemment trouvé un nouvel essor avec l'arrivée de la tomographie qui fournit la répartition du gaz sur une section de colonne [Harvel et al. (1996), Bennett et al (1999), Nedeltchev et al. (2003)], mais au prix d'une lourdeur de calcul non négligeable.

L'**analyse du degré de vide** est également très employée pour caractériser les régimes hydrodynamiques, car elle permet une analyse directe et relativement simple des données [Lin et al. (2001)]. Elle regroupe trois approches : l'analyse directe de l'évolution du taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz, l'analyse en flux de dérive et l'analyse des courbes de désengagement (moins utilisée).

Enfin, un lien entre les régimes hydrodynamiques et les **fluctuations de signaux** a été explicité durant la dernière décennie : l'évolution du taux de vide en fonction du temps est très fluctuante en régime hétérogène alors qu'elle est quasiment stable en homogène. Cette approche est complexe, puisqu'elle exploite la projection en une dimension de phénomènes tridimensionnels, mais elle se veut plus objective et plus générale que les précédentes. Plusieurs types d'analyse sont envisageables : l'analyse statistique [Jones (1975), Tutu (1982), Drahos et al. (1991), Letzel et al. (1997a et b), Vial et al. (2001)], l'analyse temporelle

[Drahos et al. (1991), Groen et al. (1995), Vial et al. (2000, 2003)], l'analyse spectrale (ou fréquentielle) [Glasgow et al. (1984), Hofman et Gasche (1988), Zheng et al. (1988), Letzel et al. (1997), Drahos et al. (1999), Vial et al. (2000)], l'analyse fractale ou chaotique [Letzel et al. (1997), Vial et al. (2000), Letzel et al. (1999), Kang et al. (1999, 2000), Lin et al. (2001)] et plus récemment l'analyse en vaguelettes [Vial et al. (2003), Kulkarni et al. (2001), Olmos et al. (2003)]. Néanmoins, la mise en oeuvre de ces méthodes n'est pas triviale : elle nécessite d'une part un placement adéquat des capteurs au sein de l'écoulement et d'autre part une dynamique de l'écoulement modérément chaotique [Lin et al. (2001)]. Parmi les signaux exploitables (pression, température, ondes acoustiques, taux de vide, ...), la grandeur la plus utilisée est de loin la pression, car sa mesure est simple, fiable, robuste, bon marché et non intrusive.

### **A.I.3. Distribution de taille de bulles : Désengagement dynamique de gaz (DDG)**

Cette méthode, déjà abordée au chapitre I (§I.2.e), est la seule méthode globale permettant d'approcher les populations de bulles. Elle consiste à suivre l'évolution au cours du temps de la hauteur de la dispersion gaz-liquide (ou celle du taux de vide) après l'arrêt brutal des alimentations liquide et gaz. Pour cela, les moyens disponibles rejoignent ceux de paragraphes précédents (photographie, rayons  $\gamma$ , conductivité, ...), mais le plus adapté et le plus utilisé est sans conteste le capteur de pression [Hofman et Gasche (1988), Luo (1993), Deshpande et al. (1995), Vial et al. (2000), Fransolet et al. (2002)]. Il permet en effet d'effectuer des mesures rapides et précises, et ce même en colonne opaque, en liquide moussant, en température et en pression [Luo (1993)].

### **A.I.4. Mélange dans chacune des deux phases : traçage**

Pour caractériser l'écoulement d'une phase dans un appareil, la technique de traçage ou de détermination du temps de séjour (DTS), méthode de base en génie des procédés, est couramment utilisée. Elle repose sur le suivi au cours du temps de la concentration d'un traceur, injecté sous forme de créneau ou d'impulsion (injection instantanée) au temps initial. En milieu diphasique, cette mesure permet d'une part de déterminer le taux de vide, mais également de caractériser le degré de mélange au sein d'une phase et de mettre en place un modèle d'écoulement. Le mélange est couramment caractérisé soit par un coefficient de dispersion (ou un nombre de Peclet), soit par un nombre de réacteurs parfaitement agités en série.

### **A.I.5. Bilan**

*Cet aperçu des mesures globales envisageables conduit à choisir une méthode de mesure de pression pour la caractérisation de la phase gaz, car elle est la seule qui permette, dans nos conditions opératoires, d'accéder à toutes les informations énoncées ci-dessus (exception faite du cas particulier du degré de mélange). En outre, l'utilisation de capteurs de pression est très prometteuse, car elle est simple, robuste, bon marché et utilisable quelles que soient les propriétés du liquide et la géométrie du contacteur (transparent ou non). Elle présente de plus l'avantage majeur de permettre l'obtention de taux de vide globaux sur différentes portions du contacteur, et ce sans nécessiter l'interruption de l'écoulement.*



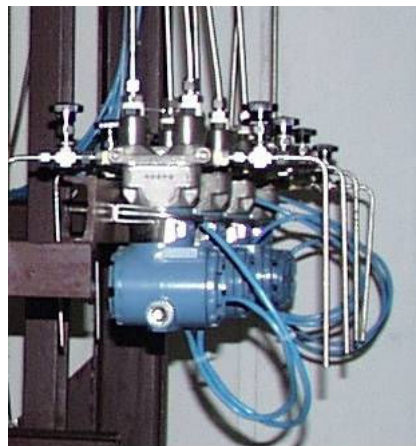
*Pour caractériser la phase liquide, la méthode retenue est le traçage. Cette analyse conduit à l'établissement d'un modèle pour la phase liquide, modèle requis pour la mesure ultérieure du transfert de matière (cf. chapitre V).*

Il s'agit à présent de détailler successivement la mise en oeuvre de ces deux techniques.

## **A.II. CARACTERISATION DE LA PHASE GAZ : CAPTEURS DE PRESSION**

### **A.II.1. Mise en œuvre des capteurs de pression**

Les capteurs de pression retenus pour caractériser la phase gaz sont choisis en fonction de leur robustesse et de la possibilité d'enregistrer leur signal en continu. Il s'agit de capteurs différentiels capacitifs « intelligents » Brooks (cf. Figure 1) ; leur membrane en céramique offre une excellente résistance tant mécanique que chimique et permet d'encaisser de brusques variations. En outre, leur précision est excellente :  $\pm 0,075\%$  de l'étendue d'échelle.



*Figure 1 : Capteurs de pression Brooks utilisés*

Pour la mise en œuvre de ces capteurs, des prises de pression en paroi sont réparties sur toute la hauteur de la colonne, de manière à connaître les pertes de charges (et indirectement les taux de vide) et leurs évolutions sur les différentes portions de la colonne (cf. Figure 2).

L'espacement moyen retenu entre chaque piquage est de 10cm (soit la moitié de l'espace entre deux plateaux, dans le cas où la colonne est équipée de plateaux). Tous les piquages ne sont toutefois pas utilisés simultanément et les capteurs de pression, au nombre de 7, sont placés par défaut comme indiqué sur la Figure 2, c'est-à-dire sur des portions de colonne de 20cm de haut environ. Seul le capteur DP6 fait exception et délivre un taux de vide global sur toute la colonne.

Les données issues de ces capteurs sont enregistrées à une fréquence comprise entre 1 et 10Hz.

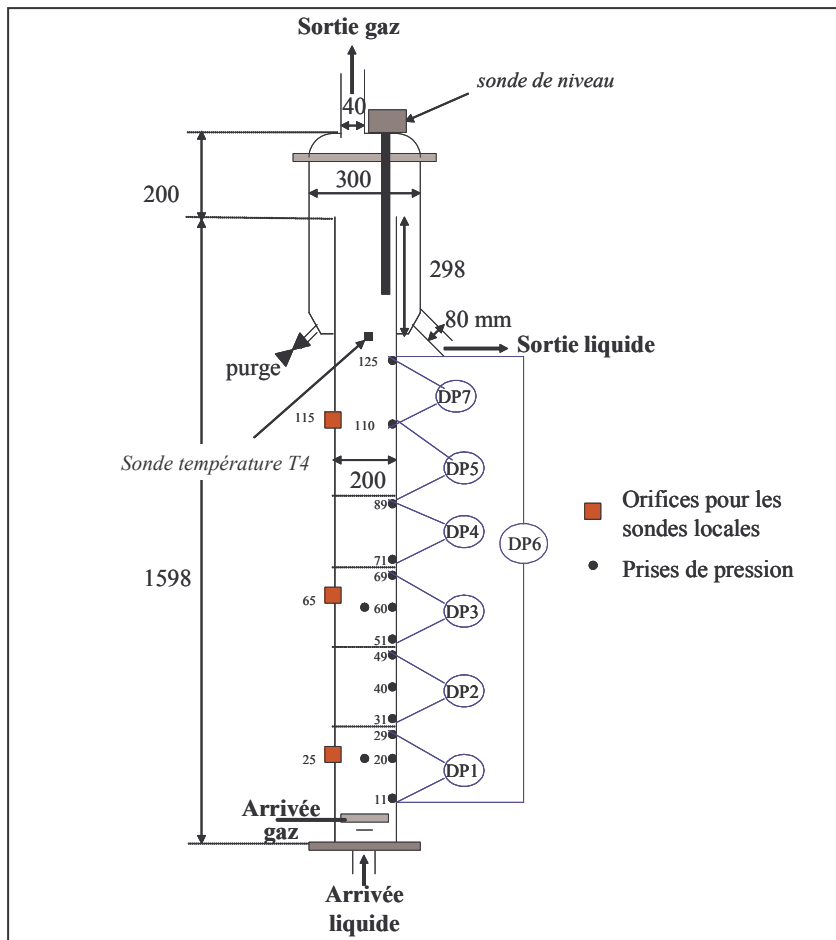


Figure 2 : Position des capteurs de pression dans la colonne

La Figure 3 présente un exemple des signaux de pression obtenus. Elle se compose de quatre parties : la ligne de base (absence de gaz), l'essai (gaz injecté), le désengagement (rapide) suite à l'interruption de l'injection du gaz et le retour à la ligne de base.

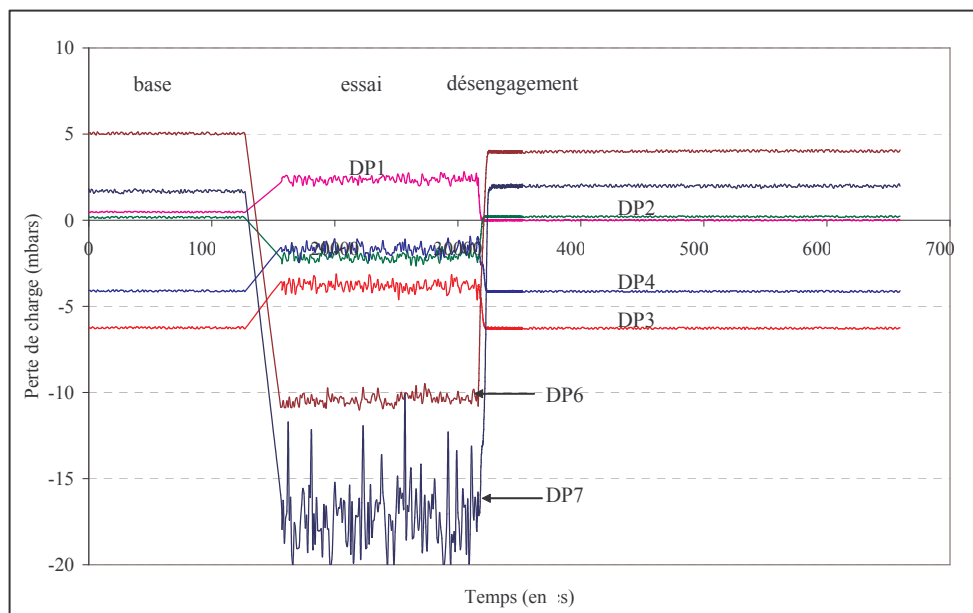


Figure 3 : Exemple de signaux des capteurs de pression (cyclohexane, distributeur 1, débit liquide nul,  $u_G=10,84\text{cm/s}$ )

Il est à noter que, selon le branchement de chaque capteur de pression, les différences de pression sont tantôt positives, tantôt négatives. En outre, ces signaux sont globalement peu bruités, exception faite du signal issu du capteur DP7 en cours d'essais, car celui-ci est placé dans la zone de désengagement, où le taux de vide est probablement très fluctuant.

## A.II.2. Traitement des données issues des capteurs de pression

Les données des capteurs de pression recueillies sont exploitées pour atteindre le taux de vide et les régimes de bullage. Des essais de désengagement sont également envisagés. Par contre, l'analyse fréquentielle est écartée, car la faible fréquence d'acquisition et la mesure d'une pression différentielle sur un compartiment et non d'une pression absolue en un point limitent son application.

### A.II.2.a. Taux de vide global

#### A.II.2.a.α. Calcul

Le taux de vide est déduit de la différence de pression ( $\Delta P = P_2 - P_1$ ) (cf. Figure 4) par :

$$\varepsilon_G = \frac{\Delta P}{\rho_L g \Delta h} \quad (\text{eq.1})$$

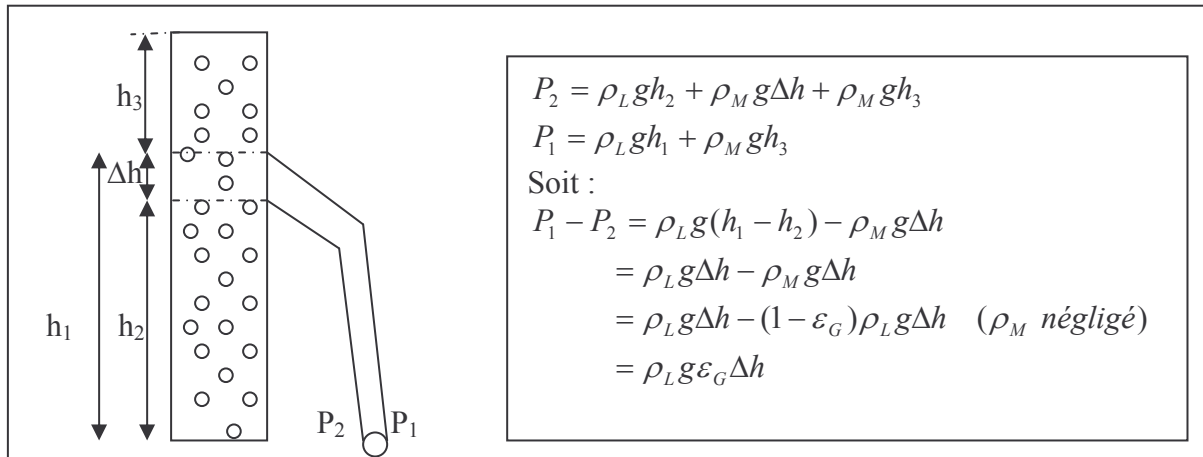


Figure 4 : Calcul du taux de vide à partir des pertes de charge

#### A.II.2.a.β. Fiabilité

- Pour évaluer la fiabilité de ces mesures, la cohérence de la valeur du taux de vide global dans la colonne est validée dans un premier temps par pesée de la différence de liquide (eau) dans la colonne avant et après le bullage, c'est-à-dire entre la colonne pleine et la colonne ayant éliminé par la surverse le volume de liquide occupé par le gaz. Cette méthode de purge, peu fiable et peu reproductible, permet de vérifier les ordres de grandeur fournis par les capteurs de pression, méthode plus précise et très reproductible (cf. Tableau 2).

Débit gazeux	Taux de vide par DP	Taux de vide par purge
10m <sup>3</sup> /h	24,7%	19,7%
4m <sup>3</sup> /h	10,1%	12,0%
14m <sup>3</sup> /h	19,0%	23,4%
8m <sup>3</sup> /h	22,8%	18,7%
6m <sup>3</sup> /h	11,3%	16,2%
12m <sup>3</sup> /h	27,5%	22,7%

Tableau 2 : Comparaison des taux de vide issus des capteurs de pression et de la purge de la colonne

• Ensuite, l'accord entre les données des différents capteurs est vérifié en comparant la somme des pertes de charge sur la colonne à la valeur délivrée par le capteur DP6 qui englobe toute la colonne (cf. Figure 2).

La Figure 5 montre une bonne adéquation entre ces deux grandeurs (écart inférieur à 2%) : tous les capteurs fonctionnent correctement et les taux de vide issus des différents capteurs sont fiables.

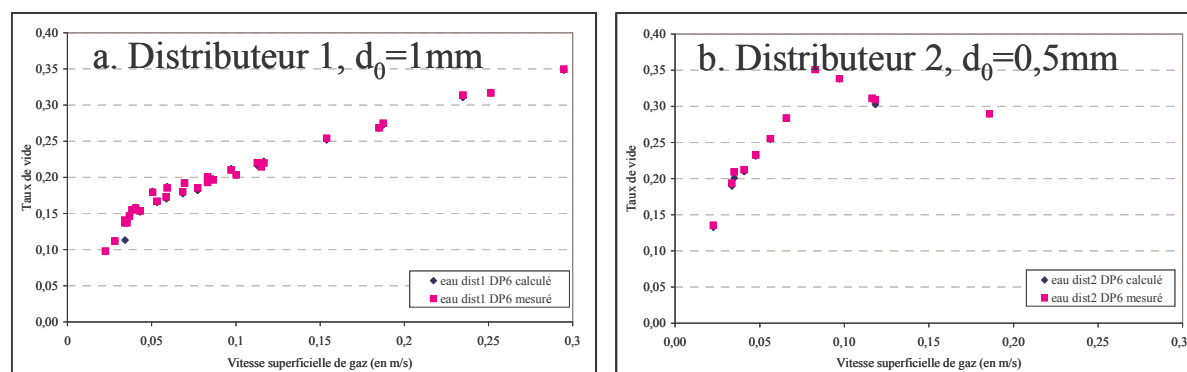


Figure 5 : Comparaison des taux de vide globaux issus du capteur DP6 et de l'ensemble des autres capteurs (eau, débit liquide nul)

Remarque :

Lorsque la même comparaison est effectuée en présence des plateaux (cf. Figure 6), l'écart entre les courbes des taux de vide calculé et mesuré augmente. En effet, il existe, pour les capteurs DP1 à DP4, 2cm non explorés entre chaque prise de pression (cf. Figure 2), zones où, en présence de plateaux, le taux de vide est, à débit liquide nul, très supérieur à celui dans le reste de la colonne (voir chapitre IV). L'écart entre les deux mesures est alors dû à la prise en compte de zones avec le capteur DP6 non considérées en faisant la somme des pertes de charges des autres capteurs.

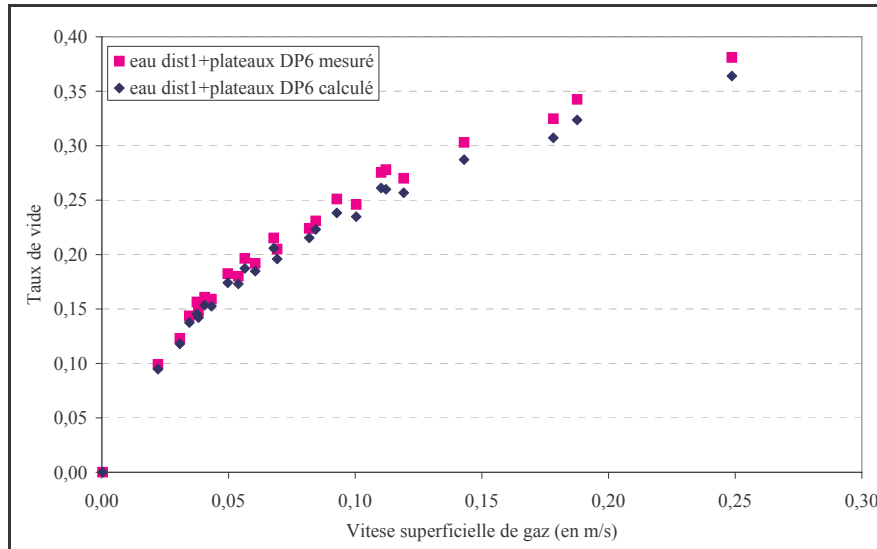


Figure 6 : Comparaison des taux de vide globaux issus du capteur DP6 et de l'ensemble des autres capteurs dans le cas des plateaux (eau, débit liquide nul)

- Le point suivant concerne l'effet de la position transversale des piquages sur la mesure de la perte de charge.

Sur notre colonne, tous les piquages couramment utilisés sont alignés axialement. Il s'agit ici de déterminer si les valeurs de taux de vide ainsi obtenues différeraient si ces piquages étaient disposés différemment, ce qui revient à analyser la sensibilité de la mesure à l'écoulement à proximité du capteur. Pour cela, des essais sont réalisés en plaçant sur une même section deux capteurs de pression connectés sur des piquages différents, comme indiqué sur la Figure 7.

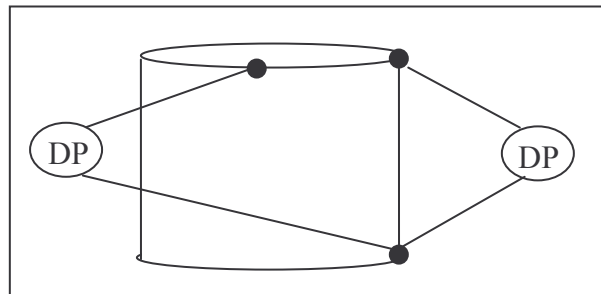


Figure 7 : Positions de deux capteurs de pression sur une même section

Quel que soit le débit de gaz envisagé, les écarts de taux de vide entre les deux mesures demeurent toujours inférieurs à 0,3%. Le taux de vide mesuré est donc représentatif de la portion de colonne étudiée et ne dépend ni des phénomènes à proximité du capteur, ni de la position du capteur, ni du capteur utilisé.

- Enfin, la répétabilité des résultats s'avère excellente, comme le montrent les courbes présentées dans le chapitre IV faisant figurer l'ensemble des points obtenus.

**La mesure du taux de vide global par capteurs de pression est une mesure très fiable quel que soit le milieu et les débits. Elle permet d'évaluer le taux de vide sur différentes sections de colonne et d'ainsi estimer les évolutions axiales et les effets des différents paramètres testés. En outre, elle constitue une mesure de référence indispensable à la validation des résultats locaux obtenus.**

### A.II.2.b. Désengagement Dynamique du Gaz (DDG)

Des essais de Désengagement Dynamique du Gaz sont réalisés. La Figure 8 montre un exemple des courbes obtenues (zoom de la Figure 3 sur la zone de désengagement). Il découle de ces essais que le retour à la ligne de base des capteurs se fait chronologiquement du bas vers le haut de la colonne. Ces essais ne sont cependant pas analysés davantage, car les signaux obtenus s'y prêtent mal : des portions de droites ne peuvent pas être clairement identifiées sur les courbes de désengagement. Cela suggère que, dans nos écoulements, les distributions de bulles sont plutôt étalées.

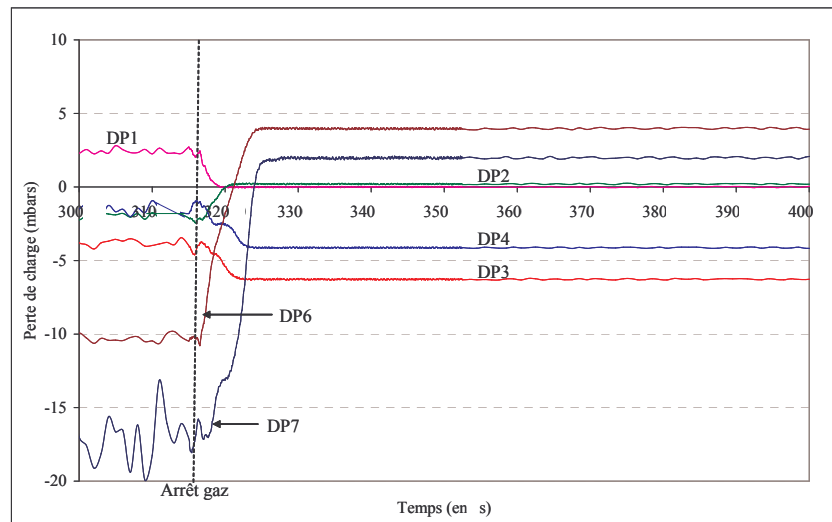


Figure 8 : Signaux de pression dans la zone de désengagement (cyclohexane, distributeur 1, débit liquide nul,  $u_G=10,84\text{cm/s}$ )

### A.II.2.c. Régimes hydrodynamiques

L'analyse des régimes hydrodynamiques est réalisée à partir des courbes de taux de vide (en fonction de  $u_G$ ), dont la fiabilité a été montrée précédemment. Parmi les trois approches classiques énoncées au §A.I.2 (analyse directe, en flux de dérive et à partir des courbes de désengagement), seules les deux premières sont utilisées, le désengagement ayant montré ses limites (cf. paragraphe précédent). La mise en œuvre de ces méthodes est reprise en annexe III.C.

### A.II.3. Conclusion

*Pour conclure, les capteurs de pression permettent de caractériser l'hydrodynamique globale de notre installation avec une bonne fiabilité. Ils fournissent des indications en terme de taux de vide, de régimes de bullage, voire de vitesse moyenne de phase (rapport  $u_G/\varepsilon_G$ ), données intéressantes servant en outre de base solide à l'interprétation des données locales.*

### A.III. CARACTERISATION DE LA PHASE LIQUIDE : DETERMINATION DES TEMPS DE SEJOUR

La détermination du temps de séjour constitue dans cette étude la seule investigation de la phase liquide. Elle est réalisée en injectant quasi-instantanément 8 à 10g de KOH en pied de colonne, et en suivant par mesure de conductivité l'évolution de la concentration en sel en entrée et en sortie de colonne. La mesure en entrée permet de caractériser l'injection de sel et sa similarité à un signal de type Dirac.

Les données sont ensuite traitées par la méthode des moments pour obtenir le nombre de RAC en série donnant le même signal de sortie. L'ensemble de la procédure conduisant à cette mesure ainsi que sa validation sont détaillés en annexe III.A.

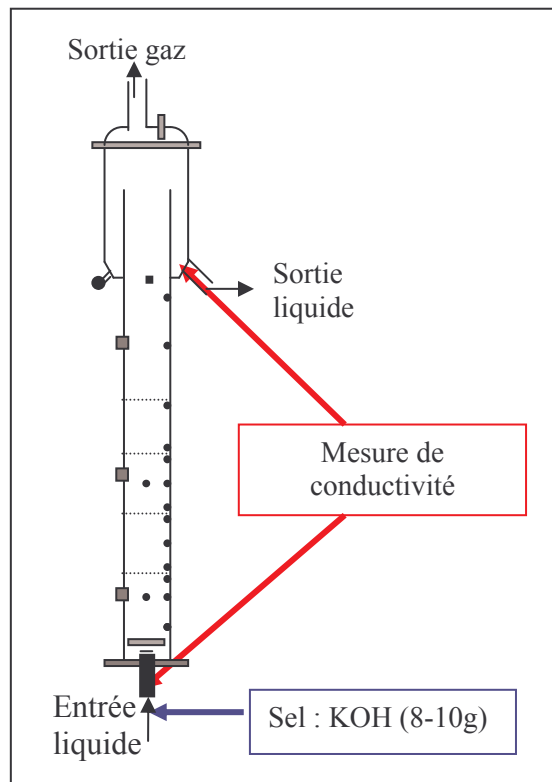


Figure 9 : Représentation des essais de DTS

### A.IV. CONCLUSIONS

*Les deux phases sont caractérisées de façon globale. Les données obtenues sont les rétentions, les vitesses moyennes de circulation et les structures d'écoulement.*

## **PARTIE B : HYDRODYNAMIQUE LOCALE**

---

L'incontournable besoin de connaissances concernant l'hydrodynamique locale des écoulements gaz-liquide a engendré le développement fulgurant de métrologies variées dans les deux dernières décennies. De nombreuses revues les répertorient, la plus récente en la matière étant celle de Boyer et al. (2002). L'ensemble de ces méthodes est brièvement listé ici, mais seules celles susceptibles d'être retenues dans notre cas sont détaillées. Une fois une métrologie choisie, sa mise en œuvre sur le pilote est décrite, puis la question plus délicate du traitement de données est posée.

### **B.I. METROLOGIES LOCALES**

Les métrologies locales sont classées d'une part selon leur caractère intrusif ou non intrusif et d'autre part selon leur principe de base. Les méthodes intrusives sont ensuite distinguées selon la phase qu'elles permettent de caractériser. Seules les grandes lignes sont rappelées ici.

#### **B.I.1. Métrologies non intrusives**

Les métrologies non intrusives sont souvent préférées (ou préférables !), car elles permettent de caractériser l'écoulement sans le perturber. Parmi elles, les méthodes de visualisation occupent une place privilégiée : très utilisées, elles se limitent toutefois en colonne à bulles à l'analyse de la zone en proche paroi et à des écoulement à faible taux de vide. Elles sont dans notre étude largement utilisées pour les essais en aquarium (effet de la physico-chimie du milieu et validation de la métrologie locale choisie), appareil adapté à leur utilisation. Le traitement de données associé est reporté en annexe III.B.

D'autres méthodes telles le traçage, la tomographie et les méthodes laser (LDA, PIV, PIS, ...) ont également pris leur essor au cours des dernières années, mais aucune n'est vraiment adaptée à nos conditions, car elles deviennent inutilisables en réacteur non transparent, à forte densité de bulles et en présence de phénomènes non stationnaires. Par ailleurs, ces méthodes sont souvent difficiles d'emploi et très coûteuses.

#### **B.I.2. Métrologies intrusives de caractérisation de la phase liquide**

De manière générale, les méthodes intrusives doivent respecter les quatre conditions suivantes [Werther et Molerus (1973)] :

- \_ Permettre la mesure de variables locales,
- \_ Perturber le moins possible l'écoulement (i.e. avoir des dimensions mécaniques adéquates),
- \_ Détecter de brusques variations,
- \_ Etre déplaçable.

Deux métrologies locales intrusives permettent de caractériser la phase liquide, c'est-à-dire de déterminer sa vitesse : le tube de Pitot et l'anémométrie thermique.



Dans notre étude, l'utilisation des tubes de Pitot n'est pas retenue, car ces tubes sont fortement perturbés par la présence d'un grand nombre de bulles. Par ailleurs, l'information fournie par cette technique est limitée à la vitesse moyenne du liquide, paramètre certes important, mais qui ne permet pas de caractériser l'hydrodynamique locale (pas d'accès à la turbulence). Un travail pour son adaptation à nos conditions opératoires serait par conséquent peu judicieux.

L'anémométrie thermique est quant à elle une méthode intrusive très répandue pour l'étude des caractéristiques hydrodynamiques locales des liquides ; en écoulement à bulles, elle permet d'accéder conjointement aux données de taux de vide, de vitesse liquide (1 à 3 composantes selon les sondes) et de turbulence, et ce même pour des taux de vide supérieurs à 10% [Garnier et al. (2002)]. Elle repose sur les échanges thermiques entre la sonde et l'écoulement, mais ne fournit les informations souhaitées qu'à condition que l'écoulement soit à température et propriétés thermiques uniformes. Bien que très attrayante, du fait de son accès quasi-unique à la turbulence, l'anémométrie thermique n'est pas retenue pour nos essais, car le maintien d'une température constante dans le liquide ne peut être assuré du fait de l'entrée dans la colonne d'un fort débit de gaz froid (azote issu de la cuve d'azote liquide en milieu cyclohexane). En outre, dans nos écoulements, la présence d'un très grand nombre de bulles rendrait le signal dû au liquide très minoritaire et difficile à interpréter.

*L'hydrodynamique locale de la phase liquide n'est pas abordée dans cette étude ; seule l'hydrodynamique globale de l'écoulement liquide est étudiée, via les mesures de dispersion par DTS.*

### B.I.3. Métrologies intrusives de caractérisation de la phase gaz

Le Tableau 3 récapitule les métrologies locales intrusives classiques de caractérisation de la phase gazeuse. Parmi elles, la sonde optique semble la plus adaptée à nos conditions opératoires, puisqu'elle est utilisable à forts taux de vide, en milieu non conducteur et en colonne opaque. Cette technique possède cependant encore des lacunes, car l'intrusivité des sondes induit des perturbations, fonctions de la géométrie de la sonde retenue (déformation et déviation de bulles notamment).

Méthode	Données	Limites
Sonde électrochimique	$d_B$	Milieux conducteurs Mises au point nécessaires
Réseau de fils conducteurs	Distribution $d_B$	Milieux conducteurs Perturbation majeure de l'écoulement
Sonde ultra-sonore (US)	$d_B$ ou $a$	Développements nécessaires
Sonde ultra-sonore à effet Doppler	$v_B$	Coût Traitement complexe Taux de vide faible Vitesse de bulles uniquement
Pique-bulles simple	$\varepsilon_G$	Sonde résistive : milieux conducteurs Sonde optique : fragilité, coût
Pique-bulles double	$\varepsilon_G, v_B, d_B$	Traitement complexe (pour sondes doubles) Sensibilité à l'orientation sonde (pour sondes doubles)

Tableau 3 : Métrologies locales intrusives de caractérisation de la phase gazeuse

Parmi les types de sondes optiques les plus classiques (sondes en U, sondes pointues ou pique-bulles et sondes à bulbe), les pique-bulles sont les plus courantes. Elles sont en outre souvent considérées comme la métrologie la plus précise en système diphasique à fort taux de

vide. Elles se composent classiquement d'une (ou deux) fibre(s) optique(s) en quartz entourée(s) d'une gaine protectrice (téflon). Leur extrémité, effilée par étirement ou par polissage, est dénudée sur environ 1cm pour permettre la mesure. En milieu agressif (présence de particules solide), pour une meilleure résistance, la pointe sensible peut être en saphir. Son diamètre doit être le plus fin possible de manière à percer la bulle en minimisant sa déformation et son retard. Pour cela, il est toujours inférieur à 200µm et même souvent à 50µm. Ainsi, toutes les sondes en fibre optique ont des extrémités très fines par rapport aux dimensions des bulles étudiées.

Ces sondes sont mono-fibres lorsque seule la mesure du taux de vide est recherchée ou bi-fibres (ou plus) lorsque des données de vitesses de bulles et de taille sont souhaitées. Il existe toutefois aussi des mono-sondes profilées [Cartellier (1998), Cartellier et Barrau (1998a et b), Barrau et al. (1999)], permettant d'accéder aux mêmes informations que les bi-sondes ; elles ont été développées par l'équipe de A. Cartellier (LEGI de Grenoble) [Cartellier (1992)]. Ces sondes, couplées à un traitement du signal en temps réel attractif [Cartellier et al. (1996), Barrau et al. (1999)], ont en outre déjà été testées, avec succès, avec des fluides organiques, dont le cyclohexane, et dans des conditions opératoires difficiles en températures, pressions et vitesses.

Envisagé et testé dans un premier temps, ce type de sondes n'a finalement pas été retenu, leur fragilité nécessitant de trop fréquentes réparations. Notre choix s'est alors orienté vers les sondes optiques doubles du commerce (RBI). Leurs principales caractéristiques sont répertoriées dans le Tableau 4.

Conditions d'utilisation	Données	Avantages	Inconvénients
<ul style="list-style-type: none"> <li>• Résistance à hautes températures<sup>(1)</sup> et pressions<sup>(2)</sup></li> <li>• Degré de vide &lt;20%</li> <li>• Utilisable dans de nombreux milieux<sup>(3)</sup></li> <li>• Milieu non inhibiteur de coalescence<sup>(4)</sup></li> <li>• Vitesses jusqu'à 20 à 50m/s</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>◆ Degré de vide</li> <li>◆ Taille des bulles</li> <li>◆ Vitesse des bulles</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>♥ Utilisable dans une large gamme de températures, pressions et produits</li> <li>♥ Temps de vie long</li> <li>♥ Temps de réponse court</li> <li>♥ Signal net</li> <li>♥ Bonne précision</li> <li>♥ Utilisable en colonne opaque et circulaire</li> <li>♥ Utilisable avec des milieux non conducteurs</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>♠ Intrusive</li> <li>♠ Chère</li> <li>♠ Nécessité de déplacer la sonde pour avoir un profil</li> <li>♠ Importance de l'orientation de la sonde</li> <li>♠ Choix des seuils du traitement du signal délicat</li> <li>♠ Problèmes en milieux inhibiteurs de coalescence</li> </ul>

<sup>(1)</sup> Les mesures sont généralement réalisées à des températures modérées mais restent possibles à températures plus élevées (100-175°C). Certaines sondes de conception particulière peuvent même travailler entre -170 et +300°C.

<sup>(2)</sup> Les sondes optiques de base ne sont pas utilisables sous hautes pressions, mais le constructeur (RBI) peut les traiter (sonde en saphir) de manière à assurer leur étanchéité dans ces conditions. Certaines sondes peuvent ainsi travailler sous 150 bars.

<sup>(3)</sup> Les sondes optiques ne fonctionnent bien que si la phase liquide les mouille correctement.

<sup>(4)</sup> En milieu inhibiteur de coalescence, les bulles sont trop petites et rigides et la fibre optique ne parvient pas à percer les bulles.

Tableau 4 : Caractéristiques classiques des bi-sondes

Ces sondes constituent certes la meilleure solution à notre problème mais le traitement du signal associé pose de nombreux problèmes à fort taux de vide, sans écoulement porteur. En effet, la détermination des vitesses et des diamètres de bulles repose sur des hypothèses fortement discutables (vitesse parallèle à la sonde, hypothèse de forme, ...). Ce traitement est détaillé au §B.III.

## B.II. MISE EN ŒUVRE DE LA BI-SONDE OPTIQUE

### B.II.1. Partie sensible des sondes optiques utilisées

Les sondes optiques utilisées sont des bi-sondes commerciales RBI à extrémité effilée (cf. Figure 10a).

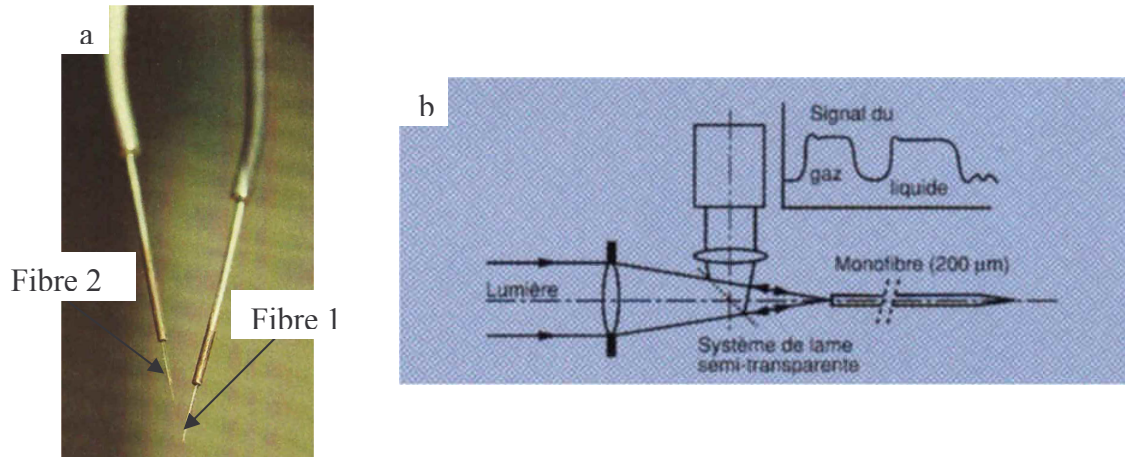


Figure 10 : a. Photo d'une bi-sonde optique RBI droite

b. Schéma des phénomènes optiques dans une fibre optique

Une lumière infra-rouge est introduite dans chacune de ces fibres via un boîtier opto-électronique ; une partie de ce flux lumineux s'échappe à travers la pointe alors que son complément est réfléchi, dévié vers une photodiode à l'aide d'une lame semi-transparente associée à un prisme (cf. Figure 10b), et renvoyé vers le boîtier opto-électronique. L'importance du flux lumineux réfléchi dépend de l'indice de réfraction du milieu où se trouve la sonde (loi de Snell), c'est-à-dire dans notre cas le liquide ou le gaz. Après amplification du flux réfléchi, un signal caractérisant la nature du fluide autour de la pointe est obtenu sous la forme de créneaux (cf. Figure 10b) : les parties hautes correspondent au gaz (majorité de lumière réfléchi) et les parties basses au liquide (majorité de lumière réfractée). Ces sondes ont les caractéristiques mentionnées dans le Tableau 5. Le temps de montée du signal est tout à fait satisfaisant puisqu'il est très inférieur au temps de passage d'une bulle sur la sonde. Ce dernier est estimé à 1 ms par Larue de Tournemine (2001) et à 5ms minimum par Suzanne et al. (1998) (pour des bulles de 2mm en liquide stagnant) ; il est de l'ordre de 2ms dans notre cas.

Diamètre de la partie sensible	$\approx 40\mu\text{m}$
Temps de montée du signal	$\approx 0,5 \text{ à } 1\mu\text{s}$
Vitesse maximale de l'écoulement	30m/s

Tableau 5 : Caractéristiques des sondes RBI

Pour que la bi-sonde puisse fournir, outre la mesure du taux de vide, celle de la vitesse et de la taille des bulles, elle doit être placée face à la direction de l'écoulement [Choi et al. (1990)], et la distance entre les deux pointes doit être précisée.

La géométrie de la sonde peut jouer un rôle important dans la représentativité des mesures d'une part en limitant les interactions bulles sonde (aplatissement, rotation, déviation, coalescence, rupture) et d'autre part en fixant la bulle la plus petites mesurable [Buchholtz et al. (1981)]. En outre, dans notre écoulement, où le mouvement des bulles est chaotique

(mouvement transversal par rapport à la direction de la sonde), il est particulièrement délicat de trouver un bon accord entre la distance entre les fibres ( $l_{12}$ ) et la taille des bulles ( $d_B$ ). Cette distance résulte d'un compromis : elle doit être suffisamment faible pour repérer le passage d'une même bulles sur les deux fibres, mais pas trop pour éviter une mauvaise estimation de la vitesse [Sanaullah et al. (2001)].

Dans cette optique, certains auteurs ont défini des critères d'espacement entre les fibres ( $l_{12}$ ) en fonction de la taille des bulles ( $d_B$ ) attendue. Les valeurs préconisées varient selon les auteurs, mais restent dans les mêmes ordres de grandeurs :

$$- 0,6 \leq \frac{l_{12}}{d_B} \leq 1 \quad [\text{Le Corre et Ishii (2002)}] \quad (\text{eq.2})$$

$$- 0,5 < \frac{l_{12}}{d_B} < 2 \quad [\text{Wu et al. (2001)}] \quad (\text{eq.3})$$

Ces critères, assez restrictifs, établis pour des bulles sphériques idéales, devraient permettre d'adapter les caractéristiques de la sonde à utiliser à l'écoulement [Buchholz et al. (1981), Le Corre et Ishii (2002)]. Ils montrent cependant surtout la difficulté à utiliser des bi-sondes (ou toute autre technique d'ailleurs [Buchholz et al. (1981)]) en présence d'une large gamme de diamètres de bulles. Par ailleurs, l'adaptation envisagée est délicate, car elle nécessiterait la connaissance préalable des diamètres à mesurer.

Selon ces critères, dans notre cas, pour une taille de bulles moyenne de 5mm, il faudrait que  $l_{12}$  soit supérieur à 2,5mm, mais cela diminuerait le nombre de bulles associées ainsi que la proportion de petites bulles détectées. Le choix d'une distance inter-fibre est donc très délicat lorsque la distribution de taille de bulles est très étalée.

Les espacements classiquement rencontrés sont reportés dans le Tableau 6. Pour notre part, les écarts entre les deux fibres ( $l_{12}$ ) des bi-sondes utilisées sont (d'après le constructeur RBI) : 1,0mm, 1,5 mm, 1,7mm et 2,0mm.

Auteurs	Distance entre fibres	Appareil
Werther et Molerus (1973)	3,6mm	Lit fluidisé
Buchholz et al. (1981)	0,2mm pour $d_B < 1\text{mm}$	Colonne à bulles à faible $\varepsilon_G$
Moujaes et Dougall (1987) Moujaes (1990)	1,295mm	Cellule d'étalonnage
Fröhlich et al. (1991)	0,7mm	Airlift
Revankar et Ishii (1992)	2-5mm	Colonne à bulles, $u_G=0-12\text{cm/s}$ , dist. par capillaire
Cartellier et al. (1996)	1,08mm	Cellule d'étalonnage
Suzanne et al. (1998)	3,8mm	Écoulement gaz-liquide avec $\varepsilon_G=1\%$
Wu et Ishii (1999)	2,65mm	Cellule de calibration
Hibiki et al. (2001)	2-3mm	Colonne à bulle co-courant
Magaud et al. (2001)	1,0mm	
Larue de Tournemine (2001)	3,1mm	Colonne à bulles co-courant
Sanaullah et al. (2001)	5mm	Co-courant ascendant
Yang et al. (2001)	1,2mm	
Kiambi (2003)	3,1mm	Airlift externe

Tableau 6 : Distance entre fibres couramment observées dans la littérature

La précision de ce type de sonde a été évaluée par différents auteurs. Les résultats obtenus pour deux d'entre eux sont répertoriés dans le Tableau 7.

	Magaud et al. (2001)	Garnier et al. (2002)
Taux de vide (précision)	5%	5%
Taux de vide (reproductibilité)	5%	
Vitesse de bulle (précision)	15%	<10%
Cordes (précision)	25%	
Cordes (reproductibilité)	10%	
Fluctuations de vitesse		15%

Tableau 7 : Précision des mesures effectuées par bi-sonde

Dans notre installation, des tests de reproductibilité ont été réalisés (pour des essais dont la vitesse superficielle de gaz est répétable à  $\pm 4\%$ ) (cf. Tableau 8) : la reproductibilité est de l'ordre de 5 à 8%, selon la grandeur mesurée.

Grandeurs	Reproductibilité	Remarque
Taux de vide	Ecart < 5%	La reproductibilité diminue en proche parois
Nombre de bulles	Ecart < 5%	
Corde moyenne	Ecart < 8%	
Vitesse moyenne	Ecart < 6%	

Tableau 8 : Répétabilité des essais réalisés avec notre bi-sonde optique

### B.II.2. Canne-support des sondes optiques utilisées

Pour permettre l'introduction de ces sondes optiques dans notre colonne, une canne-support a été conçue.

Afin de réaliser des profils radiaux à différentes hauteurs de colonne (en maintenant l'étanchéité de l'installation) et en présence de plateaux, les sondes utilisées sont introduites par la paroi. Comme les résultats sont sensibles à l'inclinaison de la sonde par rapport à l'écoulement [Cartellier et al. (1996)], le support doit être coudé pour que les fibres puissent être orientées dans le sens de l'écoulement. Pour s'adapter à nos conditions difficiles (forts débits, fortes contraintes mécaniques), la sonde est insérée dans un tube inox, comme décrit par la Figure 11. Enfin, pour minimiser les perturbations liées à la présence de la sonde, le tube inox proche des pointes a été choisi aussi fin que possible.

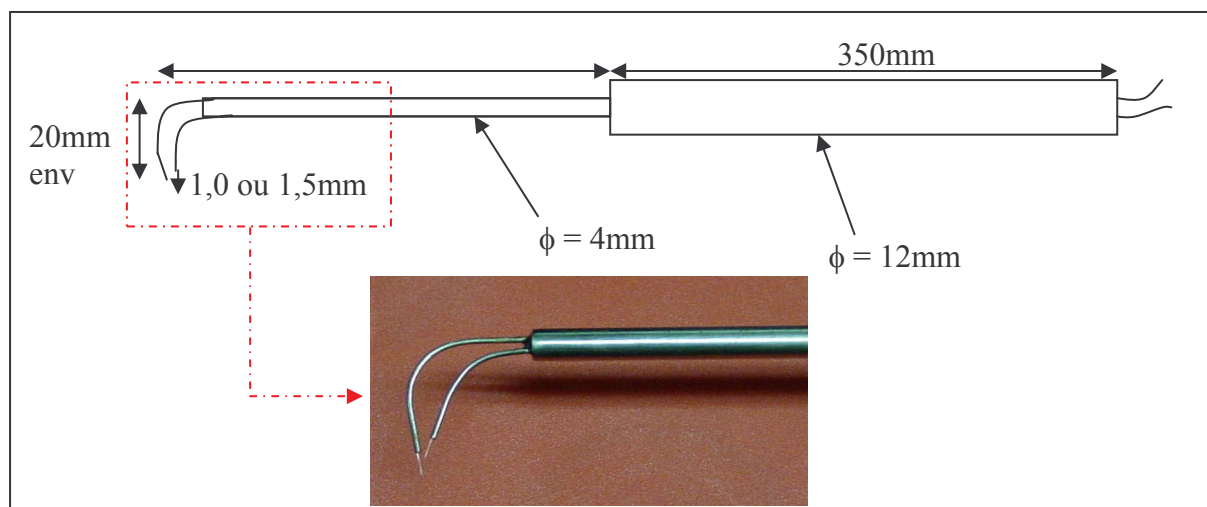


Figure 11 : Bi-sonde optique et son support

### B.II.3. Description du système d'insertion dans la colonne

Pour maintenir cette sonde en place et permettre son déplacement radial en conservant une parfaite étanchéité, un porte-sonde spécifique a été conçu par notre service technique (cf. Figure 12).

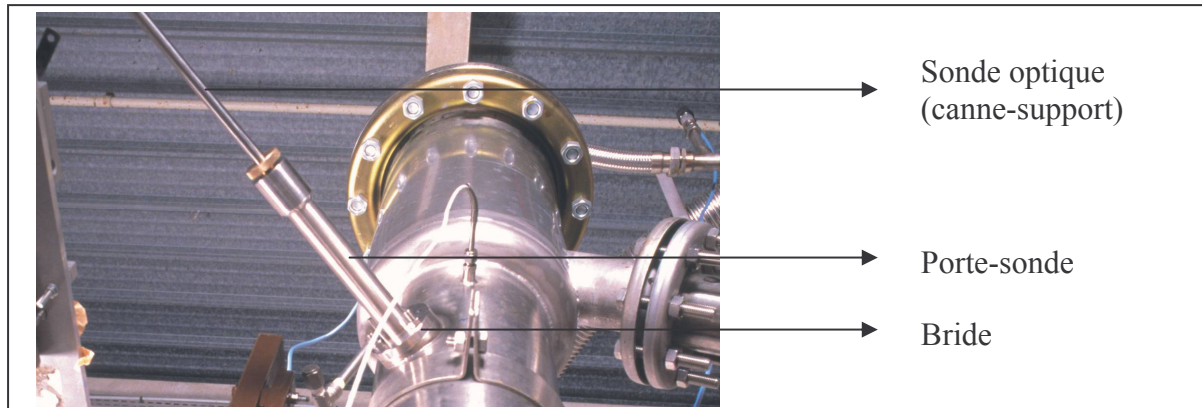


Figure 12 : Système d'insertion de la sonde optique dans la colonne (vue du dessous)

L'inconvénient majeur de ce système est que l'orifice permettant l'introduction de la sonde doit être le plus petit possible pour assurer l'étanchéité de la colonne, mais surtout pour éviter que la mise en place d'une bride n'aplanisse la paroi de la colonne, empêchant l'introduction des plateaux. Compte tenu de la fragilité des fibres de la sonde et de cette faible dimension, la moindre maladresse lors de l'introduction d'une sonde provoque la casse des pointes. L'étendue de nos campagnes de mesures est considérablement limitée par ce facteur.

### B.II.4. Position des piquages pour la sonde optique

Les systèmes d'insertion et de déplacement de la sonde étant définis, il reste à déterminer les hauteurs intéressantes à explorer. Pour limiter les usinages sur la colonne tout en conservant un nombre de piquage suffisant pour observer une évolution axiale des grandeurs, il semble correct de réaliser trois piquages. Deux d'entre eux sont assez simples à déterminer (cf. Figure 13) :

- \_ Pour connaître la répartition des bulles à l'injection et sa modification en fonction du distributeur, un piquage légèrement au-dessus du distributeur s'impose. Le premier piquage (« niveau 1 ») est alors situé à 25cm du fond de la colonne (17cm du distributeur).
- \_ Pour évaluer la distribution des bulles en sortie de colonne, un piquage est réalisé en haut de colonne : il doit être suffisamment haut pour que l'équilibre entre la coalescence et la rupture soit établi, mais pas trop haut pour éviter les perturbations dues au dégazage et à la surface libre. Ce piquage (« niveau 3 ») est placé à 115cm du fond de la colonne.

Un autre piquage doit à présent être positionné entre les deux précédents. Pour permettre l'étude de la configuration avec plateaux, celui-ci doit être situé au sein d'un compartiment (espace entre deux plateaux). En outre, il est préférentiellement placé dans la partie supérieure du compartiment de manière à éviter les jets éventuels de fluide en sortie de plateau, mais pas trop haut pour ne pas être situé dans la couche de bulles éventuellement accumulées sous un plateau. Enfin, pour assurer un espacement assez régulier entre les trois piquages, il sera placé

dans le troisième compartiment. Ce piquage (« niveau 2 ») est donc situé à 65cm du fond de la colonne (cf. Figure 13).

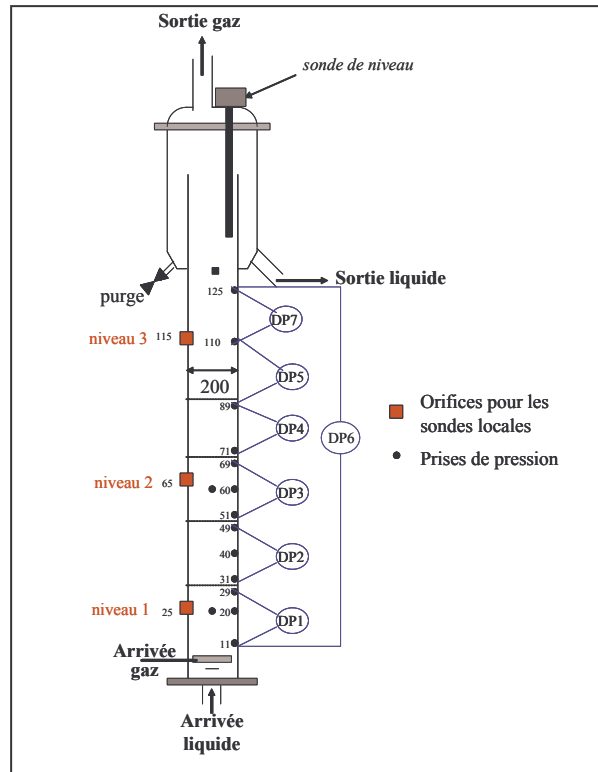


Figure 13 : Positions des piquages pour l'introduction de la sonde optique

♣ **Remarque :**

Une étude préalable de l'évolution du taux de vide avec la hauteur dans la colonne (pour deux positions radiales : au centre et en proche paroi) est réalisée par sonde locale résistive (en eau, avec le distributeur 1 percé de trous de 1mm) pour vérifier la pertinence de ces trois piquages (cf. Figure 14).

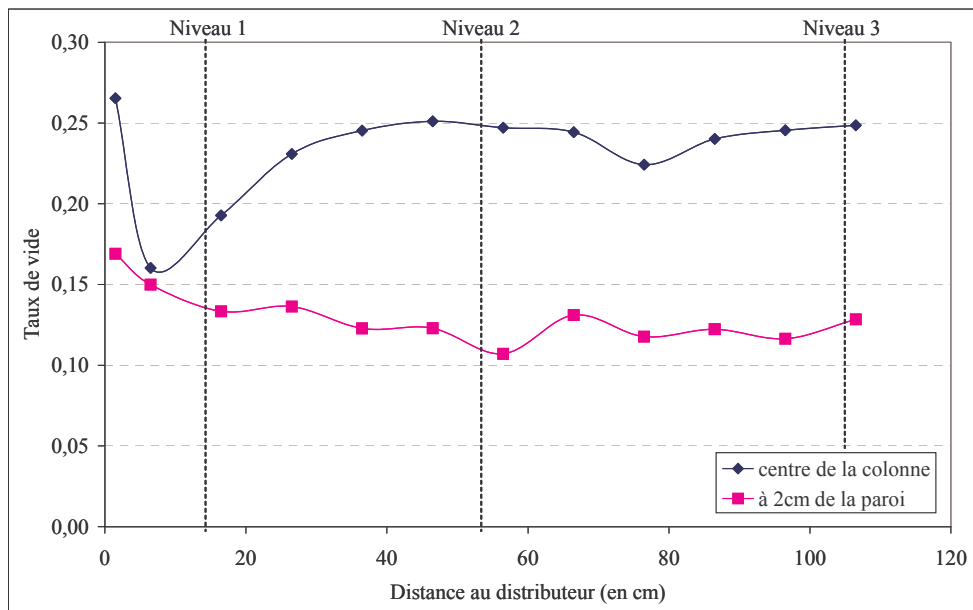


Figure 14 : Evolution du taux de vide avec la hauteur dans la colonne obtenue par sonde locale résistive (eau, distributeur 1,  $u_L=7\text{cm/s}$ ,  $u_G=7,5\text{cm/s}$ )

Dans le cas sans plateau, l'écoulement commence à se stabiliser au niveau 2 (57cm du distributeur). Ce point est en partie vérifié au chapitre IV lors de la comparaison des niveaux 2 et 3.

### B.II.5. Acquisition des données

La chaîne d'acquisition des données de la bi-sonde est représentée en Figure 15.

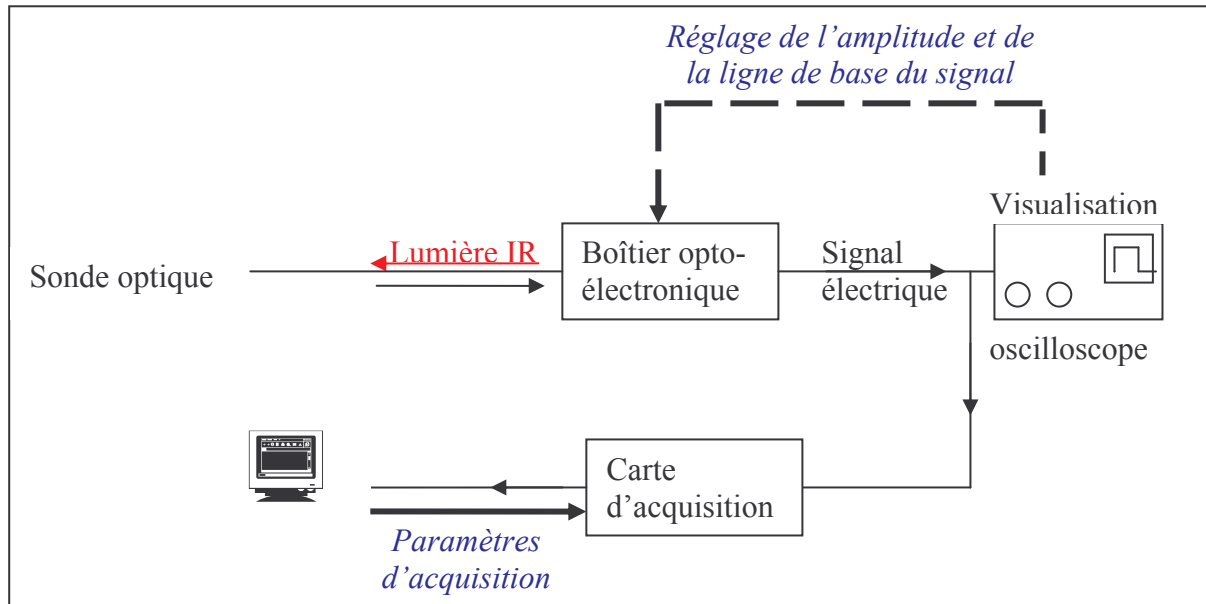


Figure 15 : Chaîne d'acquisition des données de la bi-sonde optique

Elle permet, une fois la fréquence et le temps d'acquisition choisis, d'enregistrer l'ensemble des valeurs de tension recueillies par le boîtier opto-électronique pour les deux fibres.

Ce système nécessite le réglage de deux paramètres (pour chaque fibre) : l'amplitude du signal et la ligne de base (ou « zéro »). Ces réglages permettent d'obtenir des créneaux de forte amplitude, compris dans notre cas entre 0 et 5V (gamme imposée par la carte d'acquisition), avec le moins de bruit possible. Ceci facilite la distinction ultérieure entre les deux phases et conditionne la qualité et la fiabilité des résultats. Ces ajustements sont faits en visualisant le signal sur l'oscilloscope.

La chaîne d'acquisition utilisée est ponctuellement modifiée pour permettre l'acquisition simultanée des données avec notre carte d'acquisition et avec la carte d'acquisition associée au logiciel commercial de traitement de données de la société RBI, que nous avons voulu comparer au notre (modifications en gras sur la Figure 16). Dans ce cas, en plus du système précédent, une sortie annexe du boîtier opto-électronique est connectée à la carte d'acquisition RBI.



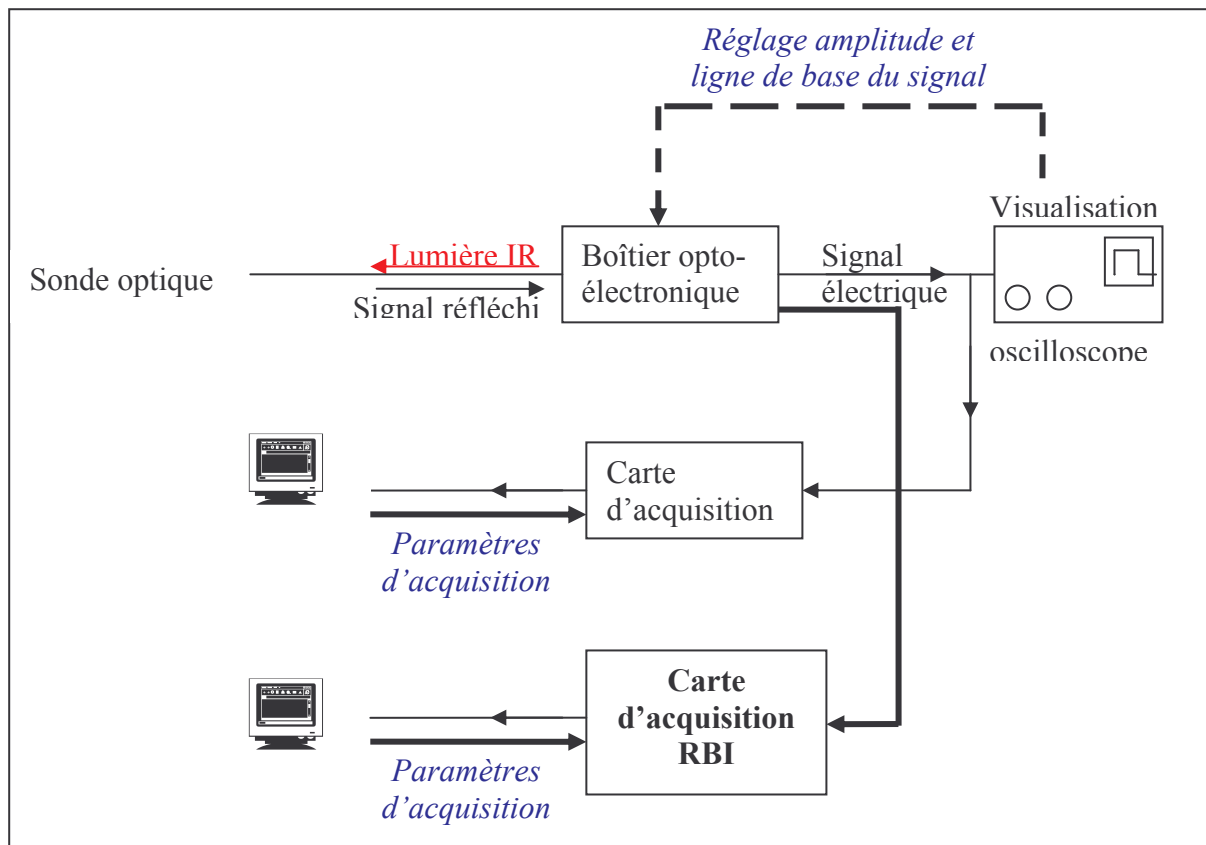


Figure 16 : Schéma de la chaîne d'acquisition modifiée

### B.II.5.a. Fréquence d'acquisition

Pour une bonne description des signaux, une haute fréquence d'acquisition est nécessaire. Les valeurs rencontrées dans la littérature sont reportées dans le Tableau 9.

Auteurs	Fréquence d'acquisition	Appareil
Burgess et al. (1981)	> 3kHz	Lit fluidisé
Gunn et Al-Doori (1985)	1738Hz	
Choi et Lee (1990)	5kHz	Airlift interne
Kalkach-Navarro et al. (1993)	10 à 25kHz	Co-courant ascendant
Hogsett et Ishii (1997)	≤ 10kHz	airlift
Suzanne et al. (1998)	2,5 à 5kHz	Ecoulement gaz-liquide avec $\varepsilon_G=1\%$
Camarasa et al. (1999)	8MHz	airlift
Luo et al. (1999)	2kHz	
Magaud et al. (2001)	16,384kHz	
Larue de Tournemine (2001)	5kHz (15 à 25 points par bulle)	Co-courant ascendant
Sanaullah et al. (2001)	25kHz	Co-courant ascendant
Lo et Hwang (2003)	100kHz	
Hibiki et al. (2003)	333kHz	Co-courant ascendant
Kiambi et al. (2001)	6,25kHz	Airlift externe
Logiciel RBI	Entre 500kHz et 1MHz	

Tableau 9 : Fréquences d'acquisition rencontrées dans la littérature

La plupart des auteurs utilisent des fréquences entre 2 et 10kHz alors que d'autres préfèrent des fréquences largement supérieures (supérieures à 1MHz). Cet écart colossal entre les deux groupes d'expérimentateurs s'explique par des modes d'acquisition radicalement différents : les premiers enregistrent les signaux de tension dans leur intégralité alors que les seconds

fixent des seuils dès l'acquisition et ne conservent que les temps d'arrivée et de départ de bulles. Cette méthode, limitant la taille des fichiers d'acquisition, est très attractive, mais si le seuil initial est mal choisi ou si le signal dérive au cours du temps, les fichiers obtenus sont inexploitable. Par ailleurs, cette méthode est plutôt destinée aux faibles taux de vide, c'est-à-dire quand la fréquence de bullage est faible et que l'acquisition doit être longue pour permettre l'enregistrement d'un nombre suffisant de bulles. Pour cette étude, les taux de vide attendus étant importants, l'enregistrement du signal complet est préféré.

Il est alors nécessaire de trouver la fréquence optimale permettant de décrire correctement les signaux sans que la taille des fichiers engendrés soit trop importante. Pour cela, un même signal est échantillonné entre 2 et 10kHz et les résultats obtenus sont comparés (cf. Figure 17).

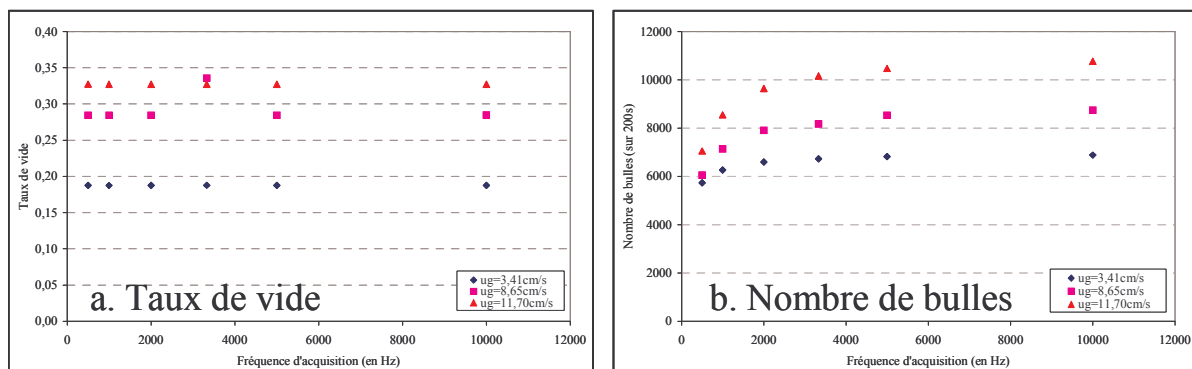


Figure 17 : Evolutions avec la fréquence d'acquisition des données de la fibre 1 (essais en eau, distributeur 1, niveau 3, débit liquide nul, centre de la colonne, durée d'acquisition de 200s)

La fréquence d'acquisition a peu d'effet sur les valeurs de taux de vide (cf. Figure 17a), mais influe fortement sur le nombre de bulles (cf. Figure 17b) ; ce critère est donc retenu préférentiellement pour déterminer la fréquence optimale. Dans la plage de conditions explorées, le nombre de bulles (détectées en 200s) augmente continuellement avec la fréquence d'acquisition, mais la pente de la courbe diminue progressivement. Ainsi, une fréquence de 6kHz semble suffisante pour représenter le bullage local, et ce quelle que soit la vitesse superficielle de gaz. Toutefois, pour assurer une bonne description du signal et donc une bonne précision pour les calculs ultérieurs, une fréquence de 10kHz est préférée.

La comparaison des données de taux de vide et de fréquence de bullage acquises simultanément avec notre système d'acquisition et la chaîne d'acquisition RBI (utilisant une fréquence d'acquisition de l'ordre du MHz) permet de vérifier l'inutilité d'échantillonner à plus de 10kHz (pour le taux de vide et la fréquence de bullage). En effet, l'écart entre les deux méthodes est inférieur à 15% en terme de taux de vide (valeurs plus faibles pour le système RBI) et inférieur à 20% en terme de fréquence (valeurs plus faibles pour le système RBI). Ces écarts pourraient être liés à un traitement des données un peu différent : un seuil unique est utilisé pour notre traitement, alors que le traitement RBI en utilise deux. Le fonctionnement exact de ce seuillage nous étant inconnu, ce point n'est pas approfondi. La répétabilité quant à elle est meilleure avec notre traitement.

**La fréquence retenue pour nos acquisitions est de 10kHz, fréquence qui permet de décrire correctement le signal (une vingtaine de points par créneau de passage de bulle) tout en maintenant une taille de fichier gérable pour le traitement ultérieur sous Matlab.**

**B.II.5.b. Durée d'acquisition**

Pour une fréquence d'acquisition de 10kHz, les fichiers engendrés sont volumineux. Cependant, la durée d'acquisition doit aussi être suffisante pour que les résultats soient représentatifs : elle doit être très supérieure au temps caractéristique des phénomènes les plus lents (circulation liquide macroscopique, panaches de bulles, ...), temps qui dépend du type d'écoulement et de ce fait de l'appareil utilisé (cf. Tableau 10).

Auteurs	Temps d'acquisition (s)	Appareil
Choi et al. (1990)	96	Airlift interne
Groen et al. (1995)	410	Colonne à bulles
Larue de Tournemine (2001)	100 à 400	Co-courant ascendant
Magaud et al. (2001)	80	
Sanaullah et al. (2001)	60	Colonne à bulles avec circulation liquide à co-courant
Kiambi (2003)	60 à 80	airlift

Tableau 10 : Temps d'acquisition rencontrés dans la littérature

Pour évaluer la durée d'acquisition nécessaire dans notre installation, l'évolution du taux de vide en fonction du temps, de la position dans la colonne (en paroi ou au centre) et de la vitesse superficielle de gaz est tracée (cf. Figure 18).

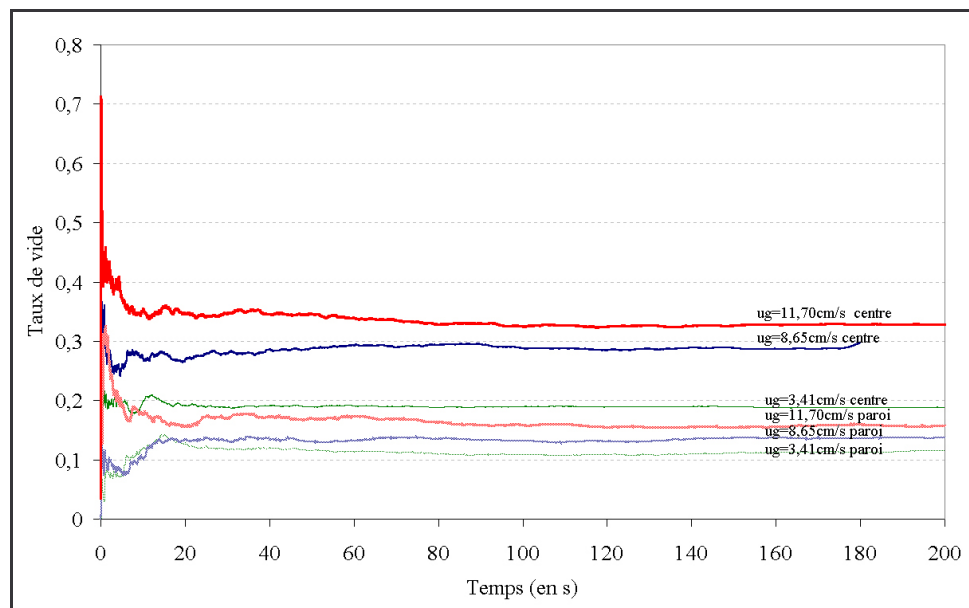


Figure 18 : Evolution en eau du taux de vide avec la durée d'acquisition (distributeur 1, niveau 3) pour différentes vitesses superficielles de gaz et deux positions dans la colonne (centre et paroi)

Il en découle que le temps nécessaire à la stabilisation des valeurs de taux de vide augmente avec le débit gazeux : au centre de la colonne, 40s suffisent à faibles débits alors que 80 à 100s sont nécessaires aux vitesses les plus fortes. Ces temps dépendent également de la position dans la colonne et augmentent lorsqu'on s'approche des parois (siège de davantage de phénomènes instationnaires).

Ces temps ne suffisent toutefois pas pour fixer la durée d'acquisition, car il faut aussi que celle-ci soit suffisante pour effectuer les calculs statistiques nécessaires à l'estimation des tailles de bulles : pour une bonne représentativité, le nombre de bulles traitées doit être de l'ordre de 1000 à 2000 bulles [Burgess et al. (1981), Yao et al. (1991), Hogsett et Ishii (1997),

Suzanne et al. (1998), Larue de Tournemine (2001), Magaud et al. (2001), Hibiki et al. (2003)].

Le débit gazeux a une influence majeure sur le temps nécessaire à l'obtention de 1000 bulles : plus le débit augmente plus le nombre de bulles piquées par la fibre amont (fibre 1), nb1, augmente. Le critère principal ici n'est toutefois pas le nombre de bulles piquées par une fibre, mais le nombre de bulles utilisées pour le calcul de diamètres, c'est-à-dire le nombre de bulles ayant piqué les deux fibres, nommé ici « nbtraite ». Comme nbtraite augmente également avec la vitesse de gaz (Tableau 11), la durée d'acquisition nécessaire pour traiter 1000 à 2000 bulles dépend du débit gazeux. En outre, la position radiale (notée r) dans la colonne influe également sur cette proportion : nbtraite diminue fortement lorsqu'on s'éloigne du centre (profils de fréquence de bullage bombé, turbulence accrue). Ainsi, le temps d'acquisition nécessaire diminue avec la vitesse gazeuse mais augmente quand on s'approche des parois. Au vu du Tableau 11, 200s sont suffisantes, excepté en paroi. A cet endroit, deux enregistrements successifs sont effectués, de manière à obtenir suffisamment de bulles, tout en conservant des tailles de fichier gérables.

ug (m/s)	r (cm)	$\epsilon_G$	nb1	nb traite	nbtraite/nb1
0,0229	0	0,1631	6747	1891	0,2803
	8	0,1154	5418	725	0,1338
0,0323	8	0,1148	5358	639	0,1193
	6	0,1592	7130	1280	0,1795
	4	0,1835	7644	1605	0,2100
	2	0,1986	8337	1932	0,2317
	0	0,1953	8322	2036	0,2447
	0	0,1949	8213	2071	0,2522
0,03720	0	0,2143	9064	2432	0,2683
0,04564	0	0,2384	10360	2163	0,2088
0,05249	0	0,254	11136	2527	0,2269
0,06160	0	0,2781	12039	2861	0,2376
0,06706	0	0,3004	12792	3162	0,2472
0,0765	8	0,1722	8572	642	0,0749
	7	0,2215	7439	929	0,1249
	6	0,2323	8062	1064	0,1320
	5	0,2638	8659	1575	0,1819
	4	0,2874	9360	1710	0,1827
	3	0,2904	9317	1899	0,2038
	2	0,3039	9748	2510	0,2575
	1	0,3119	10336	2416	0,2337
	0	0,3132	10191	2329	0,2285
-1	0,3091	10062	2294	0,2280	
-2	0,3066	10101	2167	0,2145	
0,0901	0	0,3441	14771	3446	0,2333
0,1051	8	0,2007	7554	636	0,0842
	6	0,2779	6450	966	0,1498
	4	0,3392	7396	1670	0,2258
	2	0,351	7952	2033	0,2557
	0	0,3701	8215	2156	0,2624
0,1239	0	0,3936	9146	2486	0,2718

Tableau 11 : Proportion de bulles traitées pour différentes conditions (cyclohexane, distributeur 1, niveau 2,  $u_L=0\text{cm/s}$ , acquisition de 200s)

**Le temps d'acquisition retenu, 200s, est supérieur aux durées couramment utilisées dans la littérature (cf. Tableau 10) pour des taux de vide plus faibles, car la proportion de bulles effectivement traitées en terme de diamètre de bulles (nbtraite/nb1) est très faible dans notre écoulement (entre 7 et 28% pour le cas étudié dans le Tableau 11).**

### B.III. TRAITEMENT DES DONNEES

Les fichiers de données, enregistrés à 10kHz sur des périodes de 200s, doivent à présent être traités, ce qui n'est pas trivial. Ce problème a certes déjà été largement abordé dans la littérature, mais les traitements de données élaborés sont souvent destinés à des écoulements moins turbulents (taux de vide plus faible, présence d'un écoulement porteur). En effet, sans écoulement porteur et à très fortes densités gazeuses, il est unanimement reconnu que toute mesure devient problématique. Après avoir brièvement décrit le traitement classique, chaque étape est réévaluée en détail pour estimer sa validité dans nos écoulements. Pour ces tests préliminaires, la configuration de référence de la colonne retenue est la suivante : distributeur 1 (trous de 1mm), niveau 2 (h=85cm), débit liquide nul. Cette étude est réalisée pour les deux principaux milieux liquides nous concernant : le cyclohexane et l'eau. Le programme de traitement spécifique mis au point dans cette étude est écrit sous Matlab.

#### B.III.1. Traitement des données « type »

Le traitement des données type décrit ici est issu des travaux de A. Kamp (1996). Les différentes étapes de ce traitement sont schématisées ci-après (cf. Figure 19).

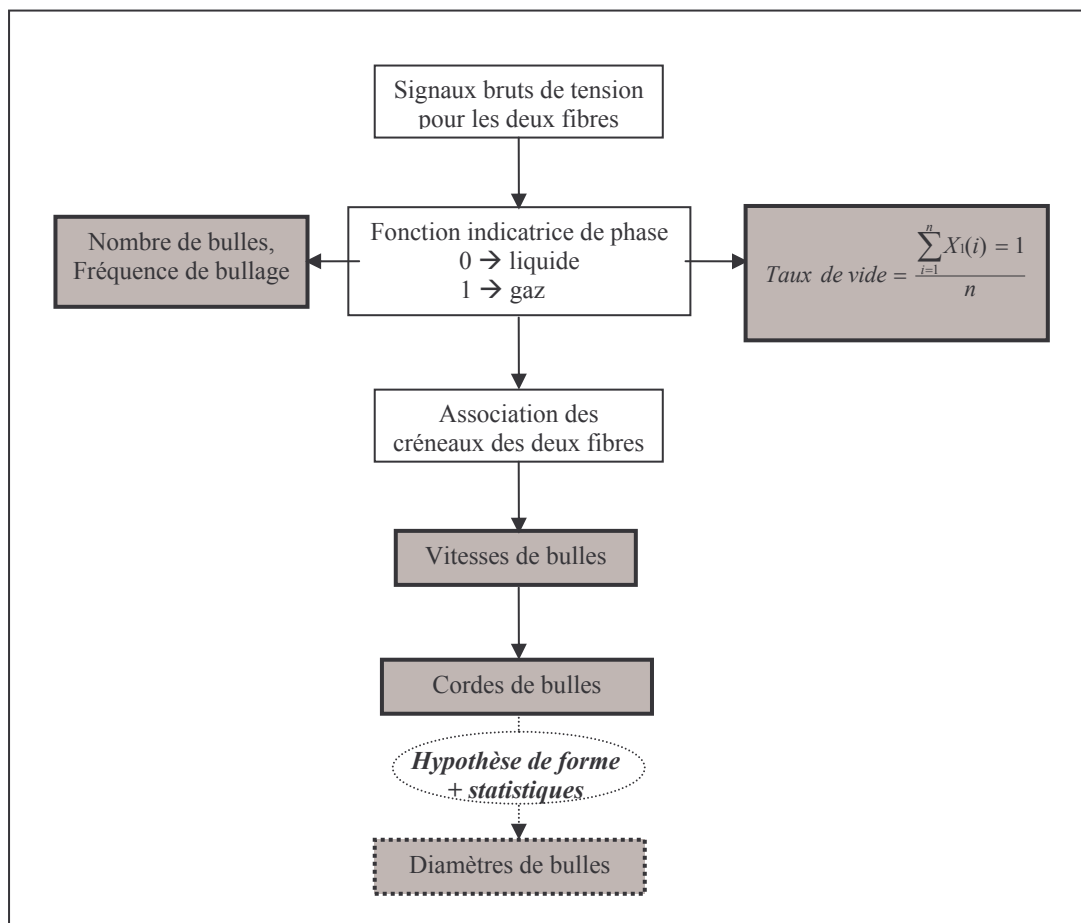


Figure 19 : Schéma simplifié du traitement utilisé

Dans un premier temps les signaux de tension des deux fibres sont binarisés : la valeur 0 est associée aux points correspondant au liquide et la valeur 1 à ceux associés au gaz.

Le taux de vide est alors calculé pour chaque fibre : il correspond au temps passé par la sonde dans le gaz, divisé par le temps total d'acquisition.

Afin de pouvoir associer les créneaux des fibres 1 et 2 correspondant à la même bulle, le temps le plus probable mis par une bulle pour aller d'une fibre à l'autre est calculé. Ce temps,  $\tau_{\max}$ , est issu du calcul de l'inter-corrélation des signaux. Une bulle du signal de la fibre 1 (amont) est alors associée à une bulle de la fibre 2 (aval), si celle-ci atteint la fibre 2 dans un intervalle de temps donné,  $[\alpha\tau_{\max} ; \beta\tau_{\max}]$ , après avoir atteint la fibre 1.

Connaissant la distance entre les deux fibres et le temps mis par chaque bulle (associée) pour aller d'une fibre à l'autre, une vitesse axiale est associée à chaque bulle en négligeant les effets de déformation, de déviation et de rotation.

Une fois la vitesse de chaque bulle (associée) connue, son temps de séjour sur une fibre fournit une longueur de corde. La distribution des longueurs de cordes peut ensuite être statistiquement transformée en une distribution de diamètres en supposant une forme pour les bulles (sphérique ou ellipsoïdale), et éventuellement en fixant la forme de la distribution finale (loi normale, log-normale, gaussienne, ...). Pour effectuer cette transformation, les bulles doivent être petites (1 à 3mm).

Remarque :

Le traitement des données de tous les types de pique-bulles étant similaires, les auteurs cités dans la suite ont utilisé indifféremment des sondes optiques ou capacitives.

### B.III.2. Taux de vide, fréquence de bullage

#### B.III.2.a. Détermination des seuils (pour binariser les signaux)

La détermination du seuil est la base de tout traitement : c'est une étape primordiale et délicate [Gunn et Al-Doori (1985), Hogsett et Ishii (1997), Le Corre et Ishii (2002)] qui consiste à identifier les parties du signal brut  $Y_i$  de la fibre  $i$ , correspondant respectivement au gaz et au liquide.

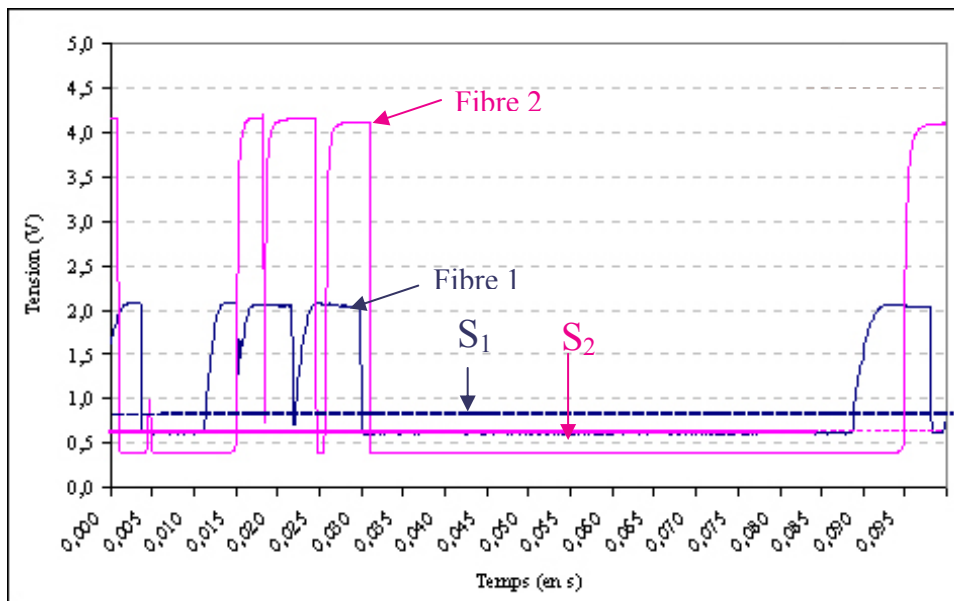


Figure 20 : Binarisation du signal

Pour cela, un seuil de tension,  $S_i$ , propre à la fibre  $i$ , est fixé : en dessous de  $S_i$ , la sonde se trouve en phase liquide (valeurs ramenées à 0) et au-dessus elle se trouve en phase gaz (valeurs ramenées à 1) (cf. Figure 20) :

$$- X_i(t) = 0 \text{ si } Y_i(t) \leq S_i \quad (\text{eq.4})$$

$$- X_i(t) = 1 \text{ si } Y_i(t) > S_i \quad (\text{eq.5})$$

La fonction  $X_i(t)$  obtenue est la fonction indicatrice de phase.

Le choix du seuil de détection est très important : s'il est trop petit, certains bruits peuvent être assimilés au passage de bulles et, inversement, un seuil trop grand peut impliquer la non détection de certaines petites bulles (cf. Figure 21). Il s'agit donc de trouver un compromis entre l'amplitude des créneaux et celle des parasites (d'où la nécessité d'optimiser les réglages pour avoir le meilleur rapport amplitude/bruit). Il existe deux principales méthodes de détermination des seuils :

- \_ La première consiste à valider le choix du seuil en comparant les taux de vide obtenus par la sonde et par une autre méthode (perte de charge [Hogsett et Ishii (1997)] ou photographie [Gunn et Al-Doori (1985)]). La méthode utilisant la perte de charge nécessite de nombreuses mesures de taux de vide sur une section [Cartellier et al. (1996)].
- \_ La seconde, et la plus utilisée, repose sur la simple observation du signal. Il s'agit de placer le seuil au-dessus du niveau de bruit soit par simple observation du signal brut, soit en se fixant une proportion de la hauteur totale du signal [Choi et Lee (1990), Hogsett et Ishii (1997), Utiger (1999), Lo et Hwang (2003)].

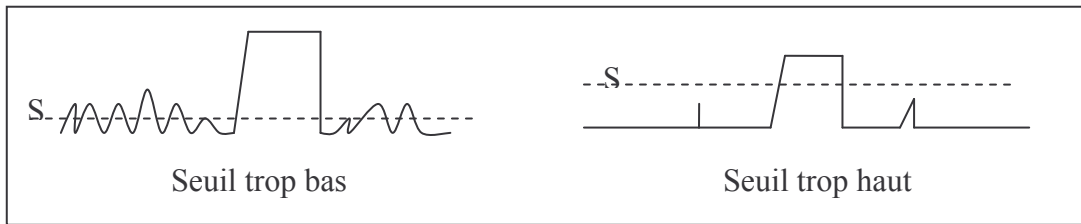


Figure 21 : Exemples de mauvais seuillages

Comme les signaux obtenus par sonde optique sont par essence peu bruités et ont des temps de montée et de descente rapides (cf. signal de la Figure 20 et Tableau 5), la valeur du taux de vide est peu sensible au seuil et la simple observation des signaux doit suffire. Cette tendance est vérifiée par une étude de sensibilité au seuil (cf. Figure 22, où la ligne de base est systématiquement ramenée à 0).

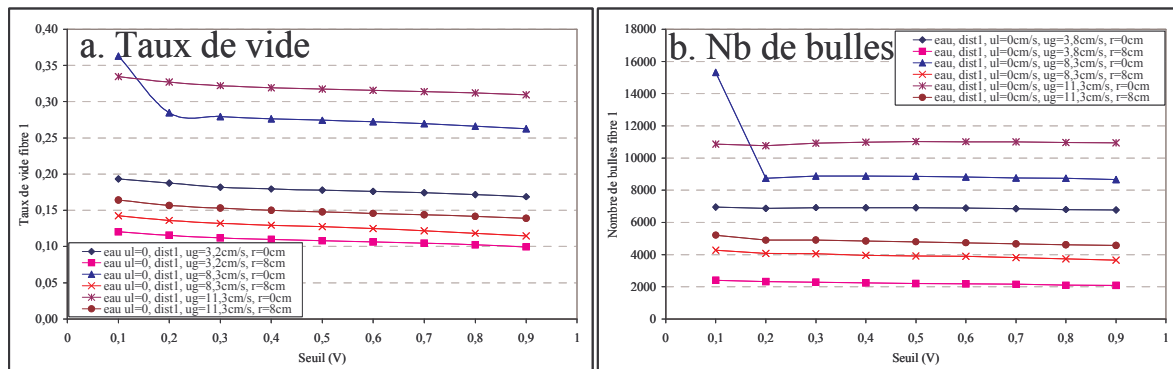


Figure 22 : Effet du seuil dans différentes conditions (fibre 1)

La Figure 22 montre que le choix du seuil est indépendant des conditions opératoires et que, bien que peu sensibles, le taux de vide, ainsi que le nombre de bulles, diminuent lorsque le seuil augmente : plus le seuil est haut, plus le taux de vide diminue, car l'intégralité des temps de montée et de descente du signal, et les petites bulles n'ayant pas eu le temps d'engendrer un créneau de hauteur suffisante, ne sont plus comptabilisés dans la phase gaz. Cette diminution concerne davantage le taux de vide que le nombre de bulles, la baisse du nombre de bulles entre les seuils de 0,2V et de 0,9V n'étant que de 3% : les créneaux de bulles de taille inférieurs à 1V sont donc négligeables et l'augmentation du seuil minimise principalement les délais de montée et de descente du signal. Pour éviter cette minimisation, le seuil est choisi le plus faible possible, c'est-à-dire à la tension à laquelle le nombre de bulles se stabilise. Il vaudra donc 0,2V, soit 5 à 10% de la hauteur totale du créneau (10% pour Utiger (1999), 20% pour Choi et Lee (1990) et 80% pour Lo et Hwang (2003)).

Remarque :

Certains auteurs utilisent parfois deux seuils, un pour chaque phase ; c'est la méthode retenue pour le traitement de données de la société RBI.

**B.III.2.b. Calcul du taux de vide**

A partir de la fonction indicatrice de phase, le taux de vide d'une fibre est calculé simplement à partir de :

$$\varepsilon_G = \frac{\sum_{j=1}^n (X_1(j) = 1)}{n} \quad (\text{eq.6})$$

où : n est le nombre de points de l'enregistrement

Pour l'ensemble des résultats traités, conformément aux observations antérieures [Choi et Lee (1990), Revankar et Ishii (1992), Cartellier et al. (1996), Kamp (1996), Kiambi (2003)], le taux de vide de la fibre amont est globalement supérieur à celui de la fibre aval, l'écart demeurant inférieur à 10%. Il est en effet probable que la fibre amont perturbe l'écoulement et détourne certaines bulles qui ne peuvent donc être vues par la seconde fibre. Ainsi, la valeur retenue pour le taux de vide est traditionnellement celle issue de la fibre 1.

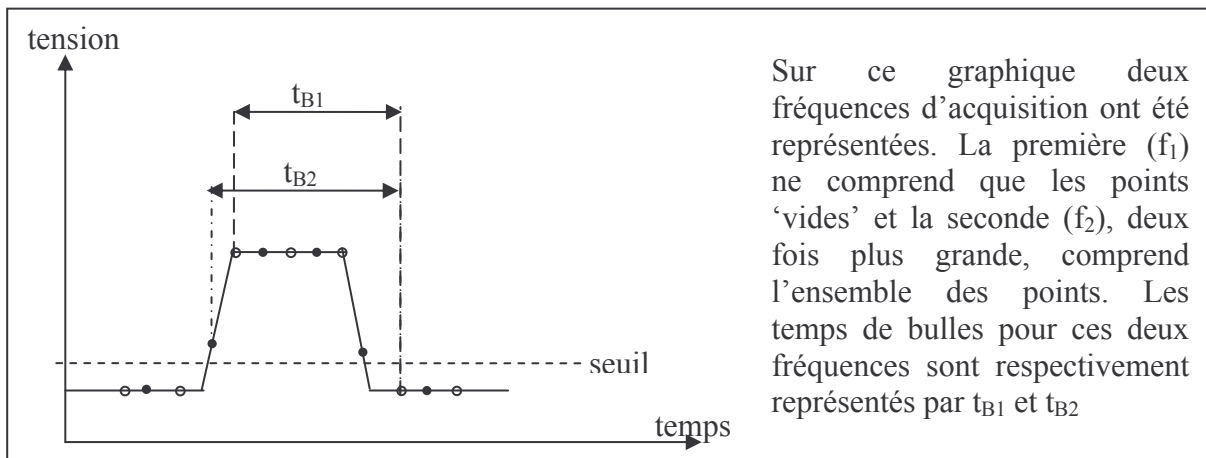


Figure 23 : Effet de la fréquence d'acquisition sur le taux de vide



Cette valeur, ainsi que sa précision, dépendent de trois facteurs [Larue de Tournemine (2001)] :

- \_ La fréquence d'acquisition : si la fréquence utilisée est trop faible, la détection des arrivées et des départs de bulles est retardée, ce qui peut engendrer des erreurs au niveau de l'estimation des temps respectifs passés par la sonde dans les deux phases (cf. Figure 23),
- \_ Le temps d'acquisition (ce paramètre est important si le bullage comporte des effets instationnaires),
- \_ Le seuil.

Ces trois paramètres ayant été choisis avec soin, les valeurs de taux de vide obtenues sont a priori correctes. Cependant, l'intégration de profils radiaux fournit un taux de vide global sur une section qui, comparé au taux de vide global issu des capteurs de pression, sous-estime toujours le taux de vide (écart inférieur à 20% pour  $u_G < 20\text{cm/s}$ ) (cf. Figure 24).

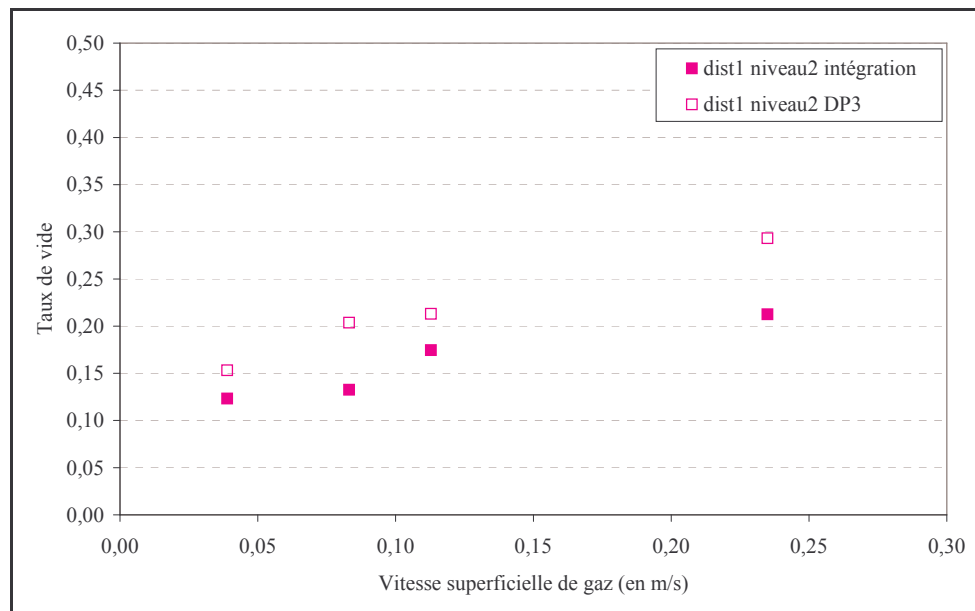


Figure 24 : Comparaison des taux de vide globaux obtenus par intégration des mesure par bi-sonde optique et par capteur de pression (eau, distributeur 1, débit liquide nul, niveau 2)

L'écart minimal entre les valeurs locales et globales est observé à faible débit. En effet, à forts débits, il existe une zone d'inversion de l'écoulement liquide moyen, se situant pour un diamètre adimensionnel ( $r/R_C$ ) compris entre 0,56 et 0,75 ; dans cette zone, les petites bulles peuvent être entraînées par l'écoulement liquide descendant et sont mal piquées par la sonde. Par conséquent, comme les taux de vide sont mesurés jusqu'à  $r/R_C=0,8$ , le taux de vide moyen est sous-estimé, particulièrement à forts débits gazeux, où les chances d'écoulement descendant sont plus grandes.

Par rapport à cette incertitude, l'erreur induite sur le taux de vide par le caractère intrusif de la sonde peut être négligée, car non seulement elle est peu importante mais elle diminue en présence de grosses bulles [Kiambi (2003)], ce qui est a priori notre cas.

### B.III.2.c. Fréquence de bullage

La fréquence de bullage correspond au nombre de bulles détectées par unité de temps par une fibre. Pour la déterminer, mais aussi pour calculer toutes les grandeurs associées à la phase gazeuse (fréquence de bullage, vitesses, cordes), il est nécessaire d'identifier les instants de début et de fin de bulles. Pour cela, les signaux binarisés sont différenciés par rapport au temps, de la manière suivante :

$$diff(t) = X(t + \Delta t) - X(t) \quad (\text{eq.7})$$

où  $\Delta t$  est la période d'acquisition

L'arrivée et le départ des bulles sont respectivement identifiés par les 1 et les -1 de la fonction différenciée. Les signaux sont ensuite tronqués pour éliminer les bulles éventuellement coupées en début et en fin d'acquisition et ne contenir que des bulles entières. Le nombre de bulles vues par chaque fibre correspond alors au nombre de valeurs positives ou négatives obtenues par différenciation.

Pour les mêmes raisons que précédemment, le nombre de bulles de la fibre 1 est supérieur à celui de la fibre 2 ; la fréquence de bullage reportée dans la suite est donc celle de la fibre 1. Cet écart entre les résultats de deux fibres est compris entre 7 et 42% pour les essais en cyclohexane et entre 0 et 9% pour les essais en eau, ce qui est en accord avec les observations de Kiambi (2003) (dans son travail, le nombre de bulles de la fibre 1 excède de 30% le nombre de bulle de la fibre 2).

### B.III.3. Vitesses de bulle

Le calcul de la vitesse d'une bulle (ou plus exactement de sa composante verticale) repose sur le temps mis par la bulle pour parcourir la distance séparant les deux fibres ( $l_{12}$ ). Pour cette estimation, deux hypothèses sont indispensables :

- \_ Le mouvement de la bulle n'est pas perturbé par la première fibre avant qu'elle pique la seconde.
- \_ La vitesse de la bulle est parallèle à la direction d'alignement des deux fibres, sinon le temps de vol de la bulle est biaisé par la courbure de l'interface (cf. Figure 25).

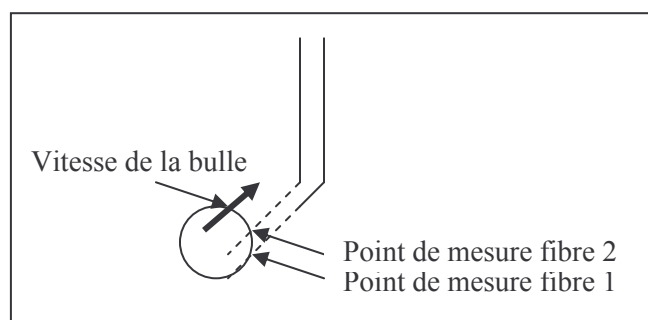


Figure 25 : Effet de la courbure de la bulle si la trajectoire n'est pas parallèle aux deux fibres (cas où le piquage par les deux fibres est quasiment simultané)

La vitesse mesurée par la sonde optique correspond théoriquement à la vitesse axiale de l'ensemble de la bulle : elle intègre, outre le déplacement moyen du centre de gravité de la bulle, les effets des fluctuations du mouvement du centre de gravité et de la rotation de la bulle (modification de l'orientation de l'interface). Elle diffère a priori de la vitesse de

l'interface à moins que l'écart entre les fibres de la sonde  $l_{12}$  soit faible par rapport à la taille des bulles [Kiambi et al. (2003)].

### B.III.3.a. Vitesse la plus probable

L'estimation de la vitesse passe souvent par celle, préalable, de la vitesse la plus probable des bulles. Pour cela, le temps de vol le plus probable,  $\tau_{\max}$ , est calculé ; c'est le maximum de l'intercorrélacion des signaux des deux fibres :

$$X_{\text{corr}}(\tau) = \int_0^{\infty} X_1(t)X_2(t+\tau)dt \quad (\text{eq.8})$$

où  $X_i$  est la fonction de phase de la fibre  $i$

La fonction d'intercorrélacion-type obtenue dans notre cas est représentée sur la Figure 26 : elle présente d'une part une forme triangulaire, car elle est obtenue à partir de créneaux, et d'autre part un maximum très marqué. Ainsi, même en écoulement perturbé, la vitesse moyenne la plus probable,  $v_{\text{moy}}$ , peut être déterminée à partir de la distance entre les deux fibres ( $l_{12}$ ) et du maximum d'intercorrélacion ( $\tau_{\max}$ ) :

$$v_{\text{moy}} = \frac{l_{12}}{\tau_{\max}} \quad (\text{eq.9})$$

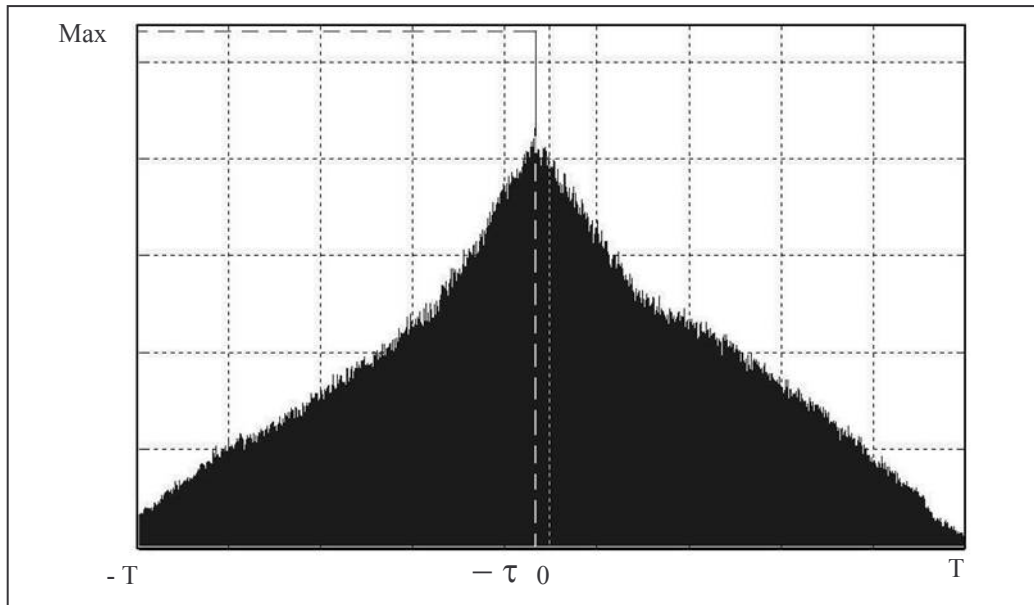


Figure 26 : Tracé de la fonction d'intercorrélacion classiquement obtenu lors de nos essais

Cette vitesse, issue des statistiques, est souvent associée à une vitesse moyenne [Werther et Molerus (1973)], mais cette approximation devient discutable lorsque les signaux des deux fibres sont très différents, c'est-à-dire lorsque le coefficient d'intercorrélacion,  $k$ , est faible.

$$k = \frac{\sum_t (X_1(t) - \overline{X_1})(X_2(t+\tau) - \overline{X_2})}{\sum_t (X_1(t) - \overline{X_1})^2 \sum_t (X_2(t+\tau) - \overline{X_2})^2} \quad (\text{eq.10})$$

Il est ainsi classiquement admis qu'un coefficient de corrélation supérieur à 0,7 est nécessaire pour assurer une bonne reproductibilité des résultats. Or, dans notre colonne, les coefficients d'intercorrélation sont relativement faibles (surtout en eau) : ils sont classiquement compris entre 0,4 et 0,8 (cf. Figure 27). Dans nos conditions, ce coefficient ne dépend pas de la vitesse du gaz mais du milieu (il est supérieur en cyclohexane) et de la position radiale (il décroît légèrement vers la paroi).

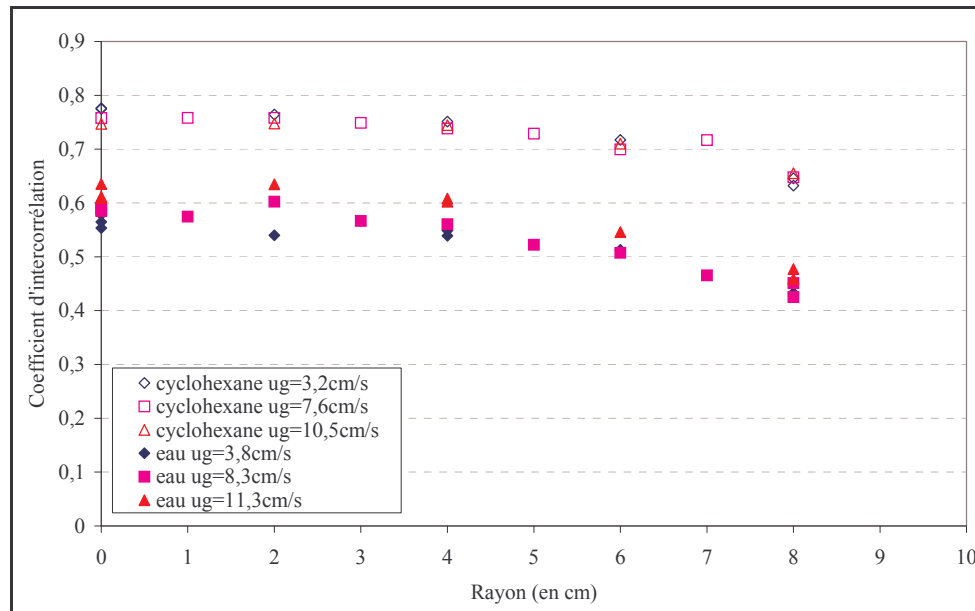


Figure 27 : Profils de coefficients de corrélation obtenus en eau et en cyclohexane

Les faibles valeurs de  $k$  observées mettent en évidence la mauvaise corrélation des signaux des deux fibres de la sonde, et ce malgré la faible distance entre les deux fibres. Cela peut résulter de mouvements très désordonnés des bulles dans nos écoulements, mais témoigne surtout des limites de la technique par bi-sonde en écoulements complexes ; un doute subsiste donc sur les valeurs de  $\tau_{\max}$  et par conséquent de  $v_{\text{moy}}$  obtenues.

Remarque :

Notons que les valeurs de vitesses moyennes ainsi obtenues sont en accord avec celles issues du traitement par le logiciel RBI : les écarts observés entre les deux traitements sont en moyenne inférieurs à 6% et n'excèdent jamais 10%.

**B.III.3.b. Distribution de vitesse de bulles**

Certains auteurs cherchent à déterminer, outre une vitesse moyenne des bulles, une distribution des vitesses, ce qui revient à associer, dans la mesure du possible, une vitesse à chaque bulle [Kalkach-Navarro et al. (1993), Kamp (1996)]. Cette vitesse est déduite de la distance  $l_{12}$  entre les deux fibres et du temps mis par la  $i^{\text{ème}}$  bulle pour aller d'une fibre à l'autre par (les notations utilisées sont celles de la Figure 28) :

$$v_{Bi} = \frac{l_{12}}{t_{i2} - t_{i1}} \tag{eq.11}$$

Ce calcul n'est cependant valable que si les temps d'arrivée  $t_{i1}$  et  $t_{i2}$  sont bien engendrés par la même bulle et que si cette bulle a une ascension verticale entre les fibres.

Plusieurs paramètres peuvent influencer sur la précision de cette mesure.

Pour éviter l'effet, sur les temps de départ, de la déformation et de la déviation engendrées par le caractère intrusif de la sonde, seuls les temps d'arrivée ( $t_{i1}$  et  $t_{i2}$ ) de la bulle sont pris en compte [Kamp (1996), Le Corre et Ishii (2002)]. Dans ce cas, la différence de temps mesurée caractérise bien l'intervalle de temps pour que la surface de la bulle passe d'une fibre à l'autre, car à l'arrivée de la bulle la sonde déforme et/ou fragmente peu les bulles du fait de la faible dimension de la partie sensible ( $40\mu\text{m}$ , cf. Tableau 5) [Wu et Ishii (1999)].

Pour minimiser la proportion de bulles ne piquant qu'une seule des fibres, la distance  $l_{12}$  est choisie suffisamment faible (faible devant le diamètre moyen).

Pour limiter les imprécisions à fortes vitesses, la fréquence d'acquisition doit être grande. En effet, c'est à partir du temps de transit de la bulle d'une fibre à l'autre, et de la distance entre les deux fibres, qu'est déterminée la vitesse de la bulle ( $v_B = l_{12}/\text{temps de transit}$ ). Or, ce temps de transit correspond, pour une fréquence d'acquisition donnée, au nombre entier de points séparant les deux signaux. Il est ainsi impossible, à une fréquence de 10kHz avec une sonde ayant un  $l_{12}$  de 1mm, de mesurer des vitesses entre 1,3 et 1,4m/s, ni entre 1,5 et 1,6m/s. Par contre, cette sonde est adaptée pour une bonne mesure de vitesses inférieures à 1m/s.

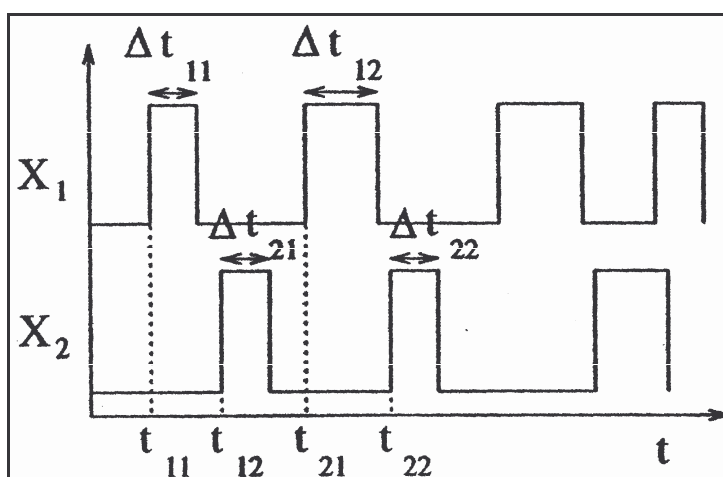


Figure 28 : Représentation des signaux, notations utilisées

Pour le calcul de la vitesse de chaque bulle, la principale difficulté réside dans l'estimation du temps de vol de chaque bulle, c'est-à-dire dans l'association des créneaux des deux fibres correspondant à une même bulle. Cette étape est d'autant plus délicate que chaque bulle identifiée sur la fibre 1 n'a pas forcément engendré de créneau sur la fibre 2 et inversement [Larue de Tournemine (2001), Le Corre et Ishii (2002)] ; le nombre de bulles donnant lieu à une valeur de vitesse est inférieur au nombre de bulles vues par une fibre. Pour éviter le rejet d'un nombre trop important de bulles, certains auteurs attribuent parfois la valeur de la vitesse moyenne aux bulles non associées.

Pour réaliser l'association des bulles, plusieurs types de critères existent :

- \_ La bulle doit toucher (et quitter) la sonde 1 avant la sonde 2 [Kalkach-Navarro et al. (1993), Lo et Hwang (2003)] :

$$t_{11} < t_{12} \quad (c.1)$$

$$(t_{11} + \Delta t_{11}) < (t_{12} + \Delta t_{21}) \quad (c.2)$$

- \_ Les temps de séjours d'une bulle sur les deux sondes doivent être comparables :

$$\frac{\Delta t_{11} - \Delta t_{21}}{\Delta t_{11}} \leq \varepsilon = 0,3 \text{ [Kalkach-Navarro et al. (1993)]} \quad (\text{c.3})$$

$$0,9 < \frac{\Delta t_{11}}{0,5(\Delta t_{11} + \Delta t_{12})} < 1,1 \text{ [Lo et Hwang (2003)]} \quad (\text{c.4})$$

\_ Le temps que met la bulle pour aller d'une sonde à l'autre doit être supérieur à un minimum, correspondant à la vitesse maximale de bulle possible ( $v_{B,max}$ ), et inférieur à un maximum, correspondant à la vitesse minimale de bulle possible ( $v_{B,min}$ ) [Kalkach-Navarro et al. (1993)] :

$$\Delta t_{min} < (t_{12} - t_{11}) < \Delta t_{max} \quad (\text{c.5})$$

$$\text{avec : } \Delta t_{min} = \frac{l_{12}}{v_{B,max}} \quad \text{et} \quad \Delta t_{max} = \frac{l_{12}}{v_{B,min}}$$

Pour estimer les valeurs  $v_{B,min}$  et  $v_{B,max}$ , des considérations théoriques peuvent être utilisées [Kalkach-Navarro et al. (1993)], mais la plupart des auteurs utilise plutôt un intervalle de temps autour du temps le plus probable,  $\tau_{max}$  [Werther et Molerus (1973), Gunn et Al-Doori (1985) et Kamp (1996)]. C'est l'option que nous avons retenue.

### ***B.III.3.b.α Largeur de l'intervalle de recherche : choix de α et β***

La méthode d'association des créneaux sélectionnée dans cette étude est celle de Kamp (1996) : une bulle de la fibre 2 est associée à une bulles de la fibre 1 lorsque l'écart entre les temps d'arrivée des deux bulles est compris dans un intervalle de temps  $\delta t$  autour du temps le plus probable issu de l'intercorrélacion. De manière générale, cet intervalle est déterminé à l'aide d'un coefficient a (compris entre 0,25 et 0,75) tel que :

$$(1-a) \tau_{max} < \delta t < (1+a) \tau_{max} \quad (\text{eq.12})$$

Cette condition permet à elle seule de respecter les conditions (c.1) et (c.5).

A faible taux de vide, les résultats sont peu sensibles au coefficient a ; celui-ci est alors souvent choisi égal à 0,5. En effet, lorsque a passe de 0,5 à 1, Larue de Tournemine (2001) observe un écart inférieur à 4% entre les moyennes des vitesses de bulles évaluées et une augmentation de 31% de la largeur de la distribution. Ce résultat est obtenu pour une colonne avec écoulement liquide porteur (taux de vide inférieur à 15%), dans laquelle l'écoulement des bulles est principalement vertical et l'association des bulles est quasi parfaite. Lorsque le même test est effectué dans notre installation (en cyclohexane), où les trajectoires de bulles sont plus perturbées (composantes transversales de la vitesse non négligeables), le paramètre a devient beaucoup plus influant : la moyenne des vitesses varie de 53% lorsque a passe de 0,5 à 1 et la largeur de la distribution augmente de 150%.

Pour évaluer l'importance de la largeur de l'intervalle de recherche sur nos résultats, la symétrie de la recherche n'est plus imposée. L'intervalle de recherche d'une bulle sur la fibre 2 s'écrit alors :

$$\alpha \tau_{max} < \delta t < \beta \tau_{max} \quad \text{avec } \alpha < 1 \text{ et } \beta > 1 \quad (\text{eq.13})$$

Le choix de  $\alpha$  et  $\beta$  est délicat, car, en fixant les vitesses minimales et maximales acceptées, ces paramètres fixent arbitrairement la largeur de la distribution de vitesse : si  $\alpha$  est petit, de grandes vitesses sont acceptées et la vitesse moyenne augmente, alors que si  $\beta$  est grand, de faibles vitesses sont permises et la vitesse moyenne de bulle tend plutôt à diminuer. En outre, si  $\beta$  est choisi trop grand, la recherche d'une bulle dans un large intervalle de temps peut conduire à associer des créneaux de bulles différentes, notamment lorsqu'une bulle de la fibre 1 n'a pas touché la fibre 2 (cf. Figure 29) ; cette mauvaise association des créneaux engendre idéalement l'apparition d'un second pic de vitesse à très faibles vitesses [Larue de Tournemine (2001)].

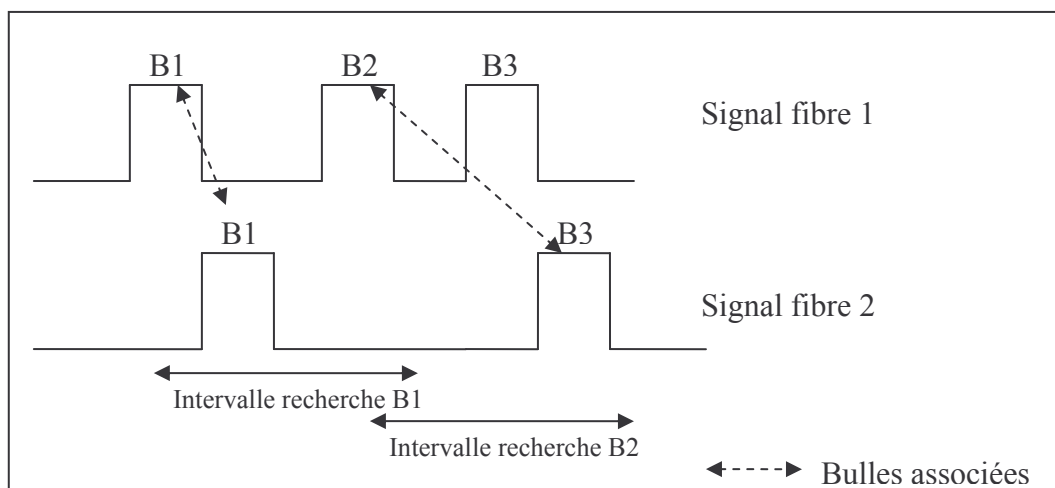


Figure 29 : Mauvaise association des bulles si  $\beta$  est choisi trop grand

Dans nos écoulements très turbulents, divers tests sont réalisés pour évaluer l'influence respective de  $\alpha$  et  $\beta$  sur la mesure des vitesses, tant dans le sens de l'élargissement que du rétrécissement de l'intervalle de recherche ; il s'ensuit que le paramètre le plus sensible est  $\alpha$ . La Figure 30 représente les distributions de temps de vols (temps mis par une bulle pour aller d'une fibre à l'autre) pour deux couples [ $\alpha$  ;  $\beta$ ].

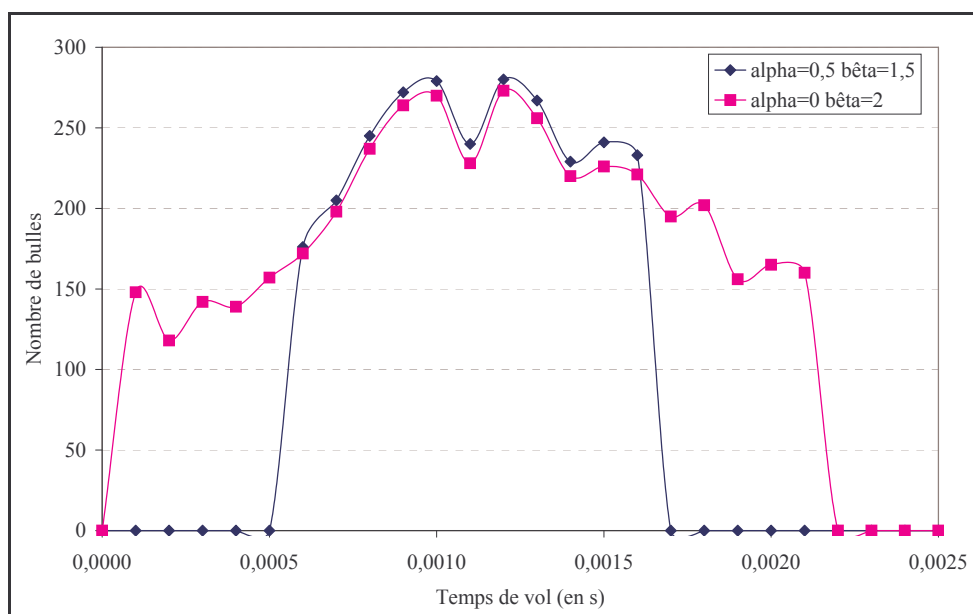


Figure 30 : Effet de  $\alpha$  et  $\beta$  sur la distribution des temps de vol d'une fibre à l'autre (cyclohexane,  $u_G=10\text{cm/s}$ )

Le plus faible temps de vol obtenu, pour  $[\alpha ; \beta]=[0 ; 2]$  vaut 0,0001s, ce qui, pour un  $l_{12}$  de 1mm, conduit à une vitesse de 10m/s, vitesse maximale enregistrable avec cette sonde. En effet, pour une fréquence de 10kHz et une distance interfibre de 1mm, la vitesse maximale de bulles est :

$$v_{B,max} = \frac{l_{12}}{t_{\min\text{mesurable}}} = l_{12} * \text{fréquence} = 10m/s \quad (\text{eq.14})$$

L'observation d'une telle vitesse signifie que la bulle a rencontré les deux fibres quasi-simultanément, c'est-à-dire que sa trajectoire comporte une composante radiale forte (cf. Figure 31).

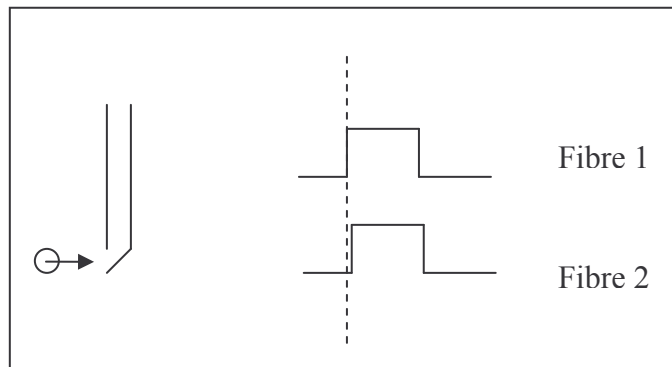


Figure 31 : Interprétation des vitesses de bulles aberrantes

Sur la Figure 30, il apparaît que l'extension de l'intervalle de recherche s'accompagne de l'extension de l'intervalle des temps de vol, mais cela conduit également à la diminution du nombre de bulles dans les classes communes aux deux distributions : certaines bulles sont associées différemment.

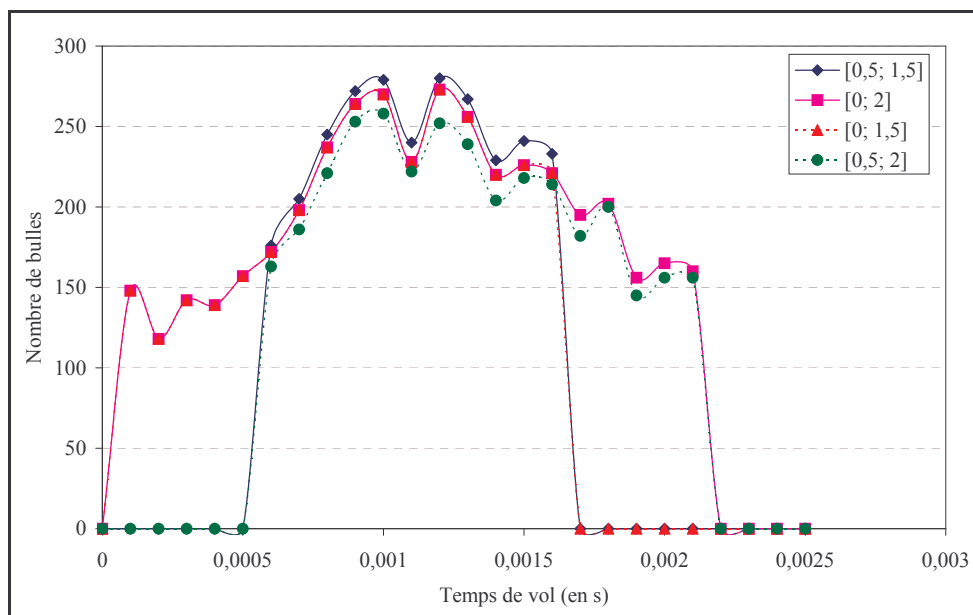


Figure 32 : Effet de  $\alpha$  et  $\beta$  sur la distribution des temps de vol d'une fibre à l'autre (cyclohexane,  $u_G=10\text{cm/s}$ )



La Figure 32 confirme que l'association des bulles est sensible à la largeur de l'intervalle de recherche : il existe une courbe propre à chaque couple  $[\alpha ; \beta]$ . De ce fait, comme il y a priori des bulles de diverses vitesses, il est impossible qu'un couple  $[\alpha ; \beta]$  permette d'associer correctement toutes les bulles ; il s'agit donc de minimiser les erreurs commises. A cet effet, il faudrait définir un critère permettant de déterminer les bornes les plus adaptées à nos essais.

♣ Critère 1 : Proportion de créneaux associés

La proportion de bulles traitées est définie par le rapport entre le nombre de bulles associées (nbtraite) et le nombre de bulles ayant piqué la première fibre (nb1). Ce critère d'aide au choix de  $\alpha$  et  $\beta$  est satisfaisant s'il existe un maximum dans l'évolution du nombre de bulles traitées pour un couple  $[\alpha ; \beta]$ . Ce n'est malheureusement pas le cas : lorsque  $\alpha$  diminue, l'intervalle de recherche augmente et avec lui la proportion de bulle traitées (cf. Figure 33a) ; les vitesses associées peuvent atteindre des valeurs non physiques.

Le rapport  $nbtraite/(\beta-\alpha)$  n'est pas un meilleur critère : ce rapport diminue lorsque l'intervalle balayé s'élargit (cf. Figure 33b).

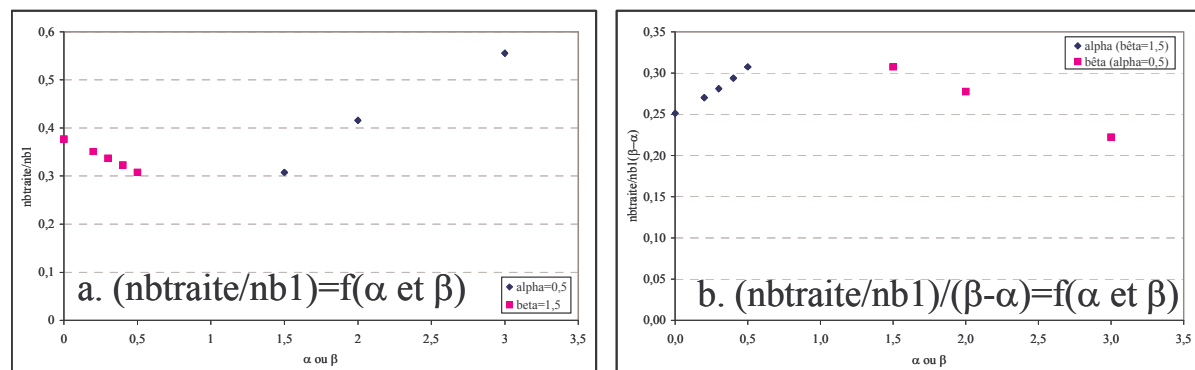


Figure 33 : Evolution de nombre de bulles traitées avec  $\alpha$  et  $\beta$

L'évolution de la proportion de bulles traitées ne permet donc pas à elle seule d'identifier les valeurs optimales de  $\alpha$  et  $\beta$ .

♣ Critère 2 : histogramme de vitesses à une seul pic

L'obtention d'un histogramme de vitesses à un seul pic, suggéré par Larue de Tournemine (2001), n'est pas satisfaisante non plus, car le nombre de pics dépend fortement de la largeur des classes choisies, largeur qui dépend à son tour de la vitesse à mesurer...

Il est par conséquent délicat de déterminer les valeurs de  $\alpha$  et  $\beta$  conduisant à la meilleure association des créneaux ; d'ailleurs, ce couple  $[\alpha ; \beta]$  n'existe sans doute pas. Il faut alors trancher : à une position donnée, il est peu raisonnable que les fluctuations de vitesses de bulles excèdent la vitesse moyenne de bulles ; la vitesse maximale de bulles est donc souhaitée inférieure au double de la vitesse moyenne : 0,5 semble de ce fait une valeur appropriée pour  $\alpha$ . Le choix de  $\beta$  est plus délicat : une grande valeur de  $\beta$  peut conduire a une mauvaise association des créneaux qui peut se propager aux bulles voisines. La probabilité d'occurrence de cette mauvaise association augmente en absence de circulation liquide (écoulement non monodirectionnel) et pour des taux de vide supérieurs à 20% (augmentation du nombre d'impact et de la complexité des trajectoires) [Barrau et al. (1999)]. Cette erreur peut conduire à des écarts importants entre les valeurs de la vitesse moyenne issue de l'intercorrélacion et de la moyenne des vitesses associées, mais elle ne peut pas être décelée avec ce critère, car il n'existe aucun lien entre ces deux vitesses. Ainsi pour limiter les

mauvaises associations, la valeur de  $\beta$  doit être modérée ; la valeur de 1,5 semble la plus appropriée. L'intervalle  $[0,5\tau_{\max} ; 1,5\tau_{\max}]$  permet globalement d'obtenir une moyenne des vitesses du même ordre de grandeur que la vitesse moyenne donnée par  $I_{12}/\tau_{\max}$  (écart entre 9 et 13%).

*Ainsi, pour chaque bulle détectée sur la fibre 1, si un signal de bulle (non encore attribué) est rencontré dans l'intervalle  $[0,5\tau_{\max} ; 1,5\tau_{\max}]$  sur la fibre 2, il est supposé engendré par la même bulle.*

Lorsque plusieurs bulles se trouvent dans cet intervalle, la plupart des auteurs [Kamp (1996), Larue de Tournemine (2001)] utilisent préférentiellement la bulle ayant la vitesse la proche de la vitesse moyenne. Pour nos essais, le fait de retenir la bulle de vitesse la plus proche de la vitesse moyenne ou plus arbitrairement la première rencontrée modifie peu les vitesses (écart inférieur à 1,4%) ; l'une ou l'autre approche peut être utilisée indifféremment.

### B.III.3.b.β Profils et distribution de vitesses

#### ♣ Vitesses moyennes de bulles

Des profils de vitesses (moyennes locales) issus de ce calcul pour l'eau et le cyclohexane sont présentés sur la Figure 34. Ils sont relativement plats, excepté à forts débits de gaz pour le cyclohexane où ces profils présentent des vitesses plus fortes en paroi qu'au centre. Compte tenu de la circulation préférentiellement descendante en paroi en régime hétérogène, cette dernière tendance, déjà observée par Sun et al. (2002), est aberrante. Elle met en évidence que les mesures de vitesses ne sont pas fiables près des parois, à cause du mouvement perturbé des bulles : les bulles descendantes ne sont pas prises en compte et les bulles ascendantes sont fortement perturbées par la circulation liquide et ont une trajectoire qui s'éloigne profondément de la verticalité (faible composante axiale de la vitesse des bulles). De ce fait, les bulles ont tendance à arriver de biais sur la sonde et le piquage des bulles sur la sonde s'éloigne du cas théorique pour lequel le traitement a été développé et la vitesse des bulles est surestimée.

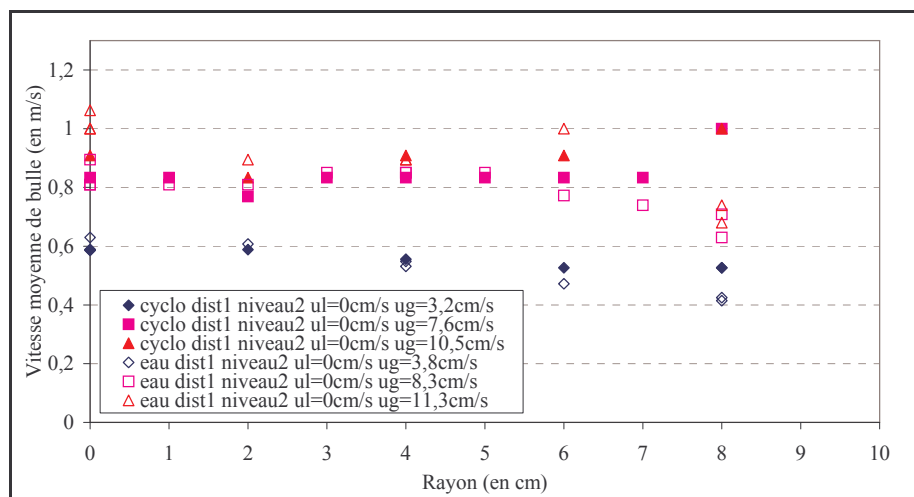


Figure 34 : Profils de vitesses en eau et en cyclohexane

Pour évaluer la fiabilité de ces mesures, deux paramètres, déjà présentés plus haut, sont utilisés : le coefficient d'intercorrélation et la proportion de bulles traitées ( $nb_{traite}/nb_1$ ).

Dans nos écoulements, la proportion de bulles traitées est très faible : elle n'excède pas 28%, même à faibles vitesses. Ces valeurs sont extrêmement faibles par rapport à celles

couramment observées dans la littérature (>70%, cf. Tableau 12), alors qu'un faible écart entre les deux fibres devrait augmenter la probabilité qu'une bulle soit piquée par les deux fibres [Le Corre et Ishii (2002)]. Les valeurs supérieures de la littérature peuvent être rattachées à une utilisation habituelle des bi-sondes en lit fluidisé ou en airlift, c'est-à-dire dans des écoulements plutôt monodirectionnels, au sein desquels les trajectoires des bulles sont moins perturbées. La proportion de bulles traitées peut donc fournir une information sur la qualité de l'association des signaux : moins les bulles sont associées, plus les bulles ont un comportement complexe et plus le traitement est discutable.

Auteurs	Pourcentage de bulles traitées	Appareil
Gunn et Al-Doori (1985)	75 à 90%	
Suzanne et al. (1998)	70%	Ecoulement gaz-liquide, $\varepsilon_G=1\%$
Larue de Tournemine (2001)	70 à 80%	Co-courant ascendant
Kiambi (2003)	80 à 90%	Airlift externe

Tableau 12 : Pourcentages de bulles traitées rencontrés dans la littérature

Le coefficient d'intercorrélation, qui renseigne sur le degré de ressemblance des signaux des deux fibres, peut lui aussi permettre d'évaluer la validité du traitement.

Les coefficient de corrélation et nbtraite/nb1 diminuent tout deux à proximité des parois (cf. Figure 35), ce qui va dans le sens attendu d'une validité moindre des mesures en paroi.

Par contre, le débit gazeux a un effet opposé sur ces deux grandeurs : le coefficient d'intercorrélation augmente (très légèrement) avec la vitesse de gaz, alors que le rapport nbtraite/nb1 diminue (cf. Figure 36). Cette dernière tendance semble plus représentative de la physique des phénomènes : lorsque le débit gazeux augmente, le régime hétérogène s'installe, les trajectoires de bulles sont de plus en plus complexes et s'éloignent des hypothèses nécessaires au traitement. Le rapport nbtraite/nb1 est donc a priori le plus adapté pour représenter la qualité du traitement.

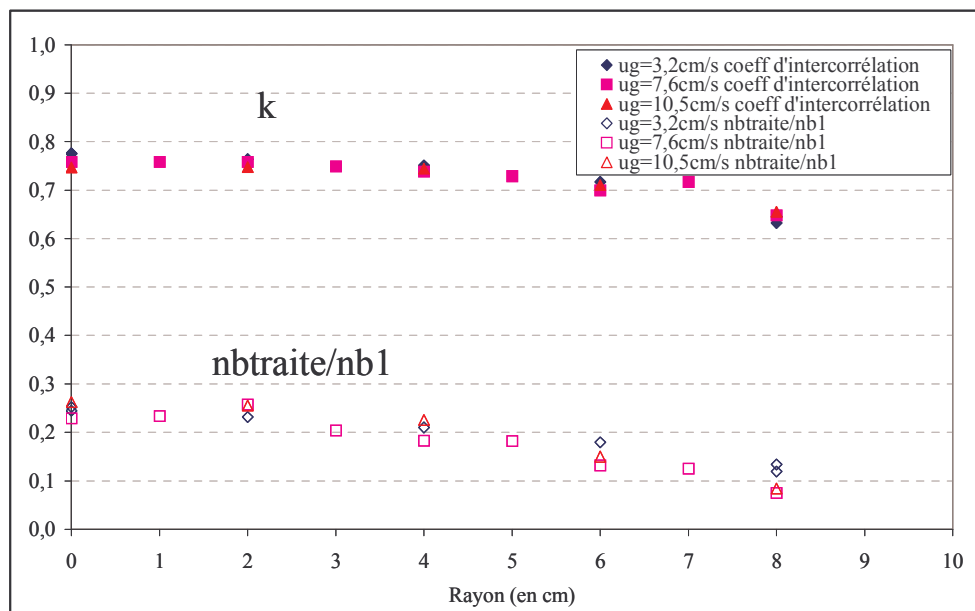


Figure 35 : Exemple des profils de coefficients d'intercorrélation et de proportions de bulles (cyclohexane)

Par ailleurs, les valeurs du rapport nbtraite/nb1, plus élevées en eau qu'en cyclohexane (cf. Figure 36), sont également en accord avec une plus grande cohérence des profils obtenus en

eau. Cet effet du milieu peut être expliqué par le fait que les deux milieux opèrent dans des régimes de bullages différents : le régime hétérogène s'installe pour des vitesses de gaz plus faibles en cyclohexane qu'en eau (cf. chapitre 4).

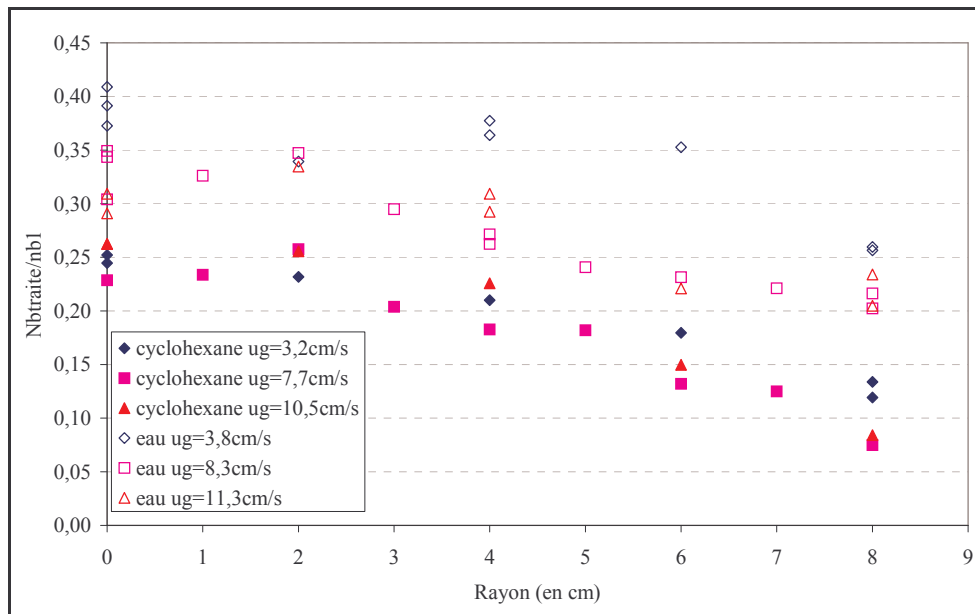


Figure 36 : Profils des proportions de bulles traitées en eau et en cyclohexane

♣ Distribution des vitesses

Une fois la vitesse moyenne la plus probable obtenue, la distribution des vitesses peut être calculée.

A faible débit de gaz ( $u_G=3,2\text{cm/s}$ , cf. Figure 37), les distributions de temps de vol et de vitesses sont, comme les valeurs moyennes, cohérentes ; la distribution de vitesses présente un pic prononcé, observé aux alentours de 0,5m/s, qui s'étale vers les grandes valeurs de vitesses (jusqu'à 1,2m/s, valeur fixée par  $\alpha$ ). Vers la paroi ( $r=8\text{cm}$ ), ce pic se déplace vers des valeurs plus faibles de vitesses et est légèrement plus large. La valeur du maximum est légèrement décalée par rapport à la valeur moyenne (0,6m/s), car la distribution n'est pas symétrique et s'étale vers les grandes valeurs.

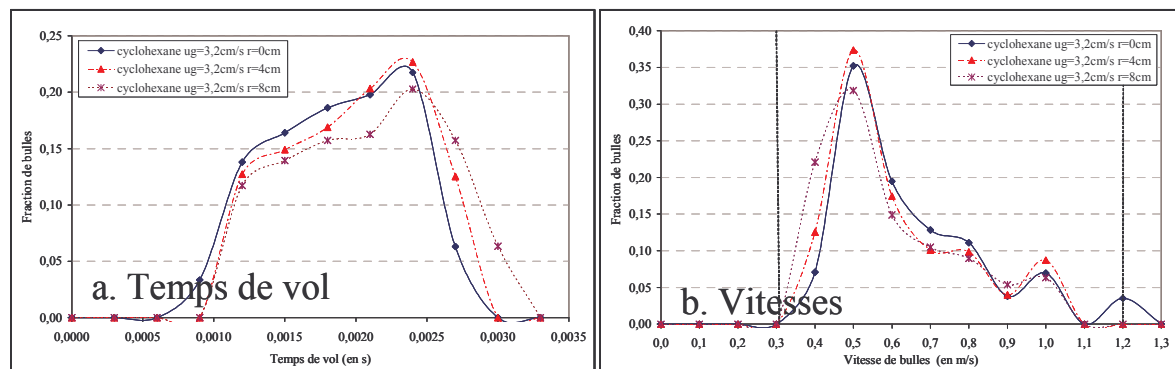


Figure 37 : Distributions en cyclohexane,  $u_G=3,2\text{cm/s}$  (les pointillés rappellent les bornes fixées par  $\alpha$  et  $\beta$ )

Pour  $u_G=10,5\text{cm/s}$ , la distribution des vitesses est plus surprenante : elle est décalée vers les fortes valeurs de vitesses et est très étalée, avec occurrence de nombreuses bulles à très fortes vitesses, tendance accrue à l'approche des parois. L'existence de ces bulles très rapides dans ces proportions est discutable, en particulier en proche paroi où l'écoulement liquide moyen

est descendant. Ces anomalies, jointes à la faible proportion de bulles traitées (10% au lieu des 25% au centre de la colonne, cf. Figure 35), peuvent une fois encore être reliées à un écoulement plus perturbé à fort débit, c'est-à-dire à un nombre croissant de bulles piquant la sonde de biais, bulles mal identifiées par le programme, conduisant à des valeurs de vitesses de bulles très importantes en inadéquation avec la réalité.

***A fort débit, la distribution des vitesses de bulles, et donc la valeur moyenne associée, doivent être considérée avec précaution, car elles ne sont pas représentatives de la population de bulles présentes à cet endroit.***

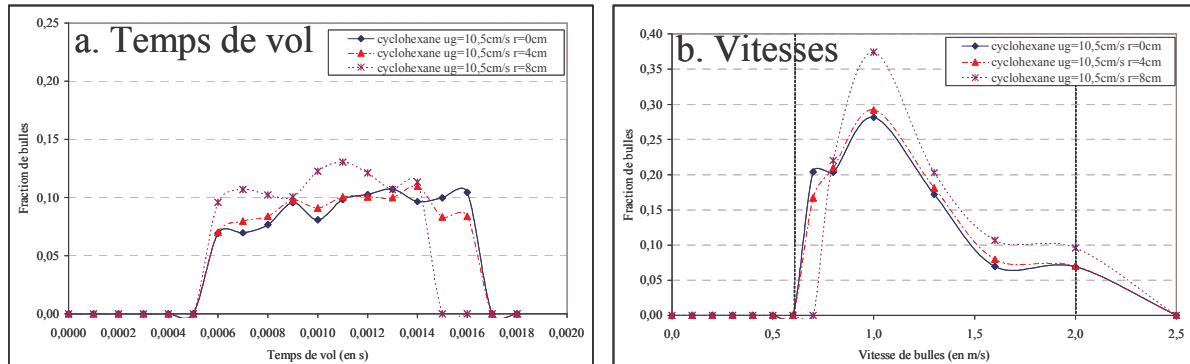


Figure 38 : Distributions en cyclohexane,  $u_G=10,5\text{cm/s}$  (les pointillés rappellent les bornes fixées par  $\alpha$  et  $\beta$ )

Ces courbes témoignent de l'imperfection du traitement envisagé. Plusieurs sources d'erreurs sont mises en évidence :

- \_ La faible proportion de bulles traitées : elle peut être reliée aux bulles d'ascension non verticale, aux déviations induites par la sonde, ainsi qu'à des phénomènes de coalescence et de rupture pendant le temps de séjour de la bulle sur la sonde.
- \_ Une surestimation de la vitesse des bulles arrivant sur la sonde de biais et piquant les deux fibres quasi-simultanément.
- \_ Une mauvaise association des créneaux : son occurrence augmente avec la vitesse superficielle de gaz, c'est-à-dire avec la densité de bulles [Garnier et al. (2002)].

Les deux derniers points peuvent encore être améliorés, notamment en introduisant, lors du traitement, un critère supplémentaire.

### ***B.III.3.b.γ Amélioration du traitement***

Lors de l'association des créneaux, un critère de similarité des temps de séjour sur les deux fibres [Buchholtz et al. (1981), Kalkach-Navarro et al. (1993), Barrau et al. (1999), Lo et Hwang (2003)] peut être appliqué :

$$\Delta t_i \approx \Delta t_{2i} \tag{cs.1}$$

Les bulles ainsi associées ont une probabilité supérieure de correspondre à la même bulle et d'avoir une trajectoire plutôt verticale (cf. Figure 39).

Pour tester ce critère dans notre cas, les signaux des deux sondes sont considérés comme induits par la même bulle lorsque la différence de longueurs de cordes de ces signaux est inférieure à 20% (valeur choisie arbitrairement).

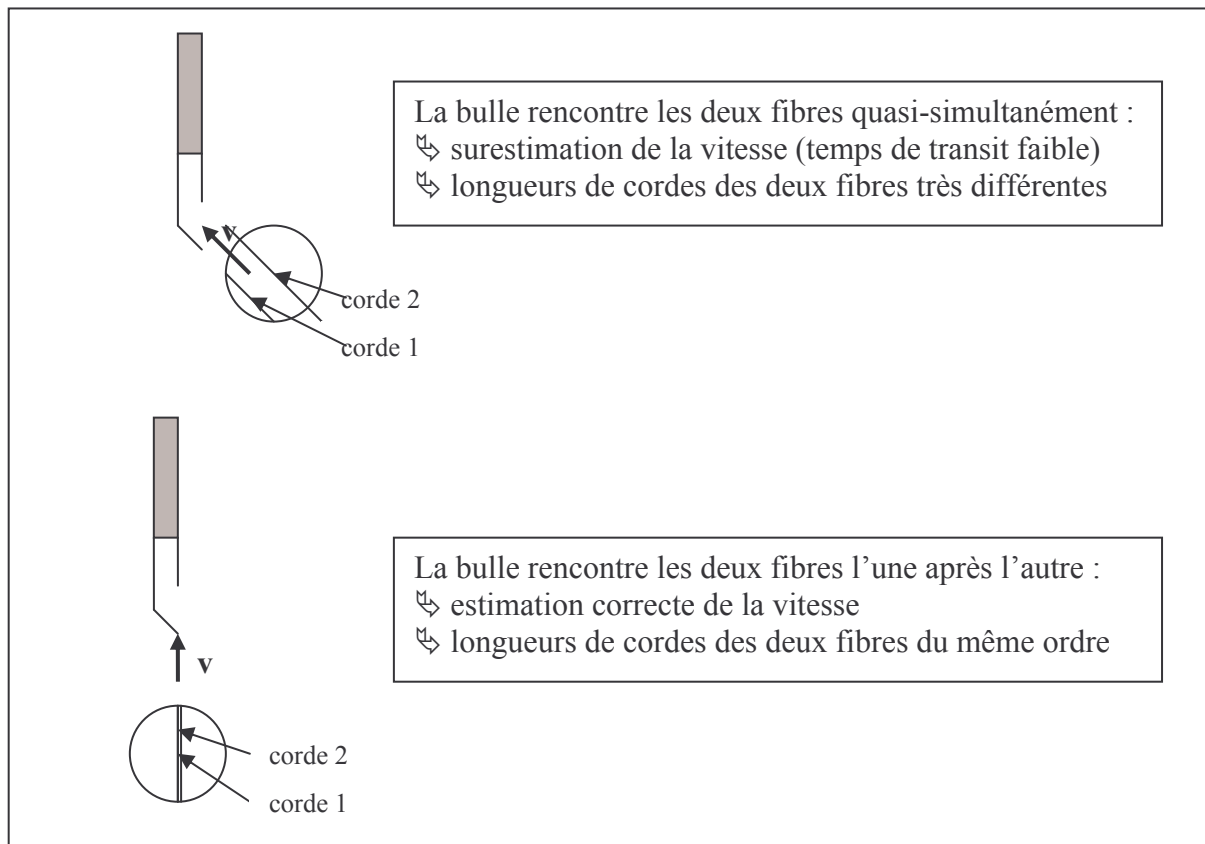


Figure 39 : Illustration de la condition en longueur de corde

L'ajout de cette contrainte a pour premier effet une nette diminution du nombre de bulles traitées (de l'ordre de 60% sur les 25% précédents) (cf. Tableau 13), diminution qui s'accroît lorsqu'on s'approche des parois où elle peut atteindre 75% (sur les 10% précédents) ; la population de bulles traitées n'est alors plus que 2-3%.

	sans	avec	écart (%)
<b>nb bulles traitées</b>	2329	996	-57,2
<b>moyenne des vitesses</b>	0,8718	0,8707	-0,1
<b>d10</b>	0,0067	0,0080	18,3
<b>d20</b>	0,0097	0,0110	14,0
<b>d30</b>	0,0131	0,0146	11,5
<b>d32</b>	0,0244	0,0255	4,5
<b>c10</b>	0,0050	0,0064	27,5
<b>corde min</b>	0,0001	0,0001	0,0
<b>corde max</b>	0,0651	0,0651	0,0
<b>vitesse min</b>	0,5882	0,5882	0,0
<b>vitesse max</b>	1,4286	1,4286	0,0

Tableau 13 : Effet de l'ajout d'un critère en temps de séjour (exemple du cyclohexane,  $u_G=7,5\text{cm/s}$ , centre de la colonne)

Cette observation confirme le rôle de filtre introduit par ce critère, filtre d'autant plus serré en paroi où l'imprécision est supérieure. En outre, ce fort taux de rejet prouve également que les bulles montent rarement verticalement, ou que les bulles sont très déformées entre les deux fibres.

Cette diminution du nombre de bulles traitées ne s'accompagne cependant d'aucun changement significatif de la moyenne des vitesses (cf. Tableau 13), ni de la distribution des vitesses (cf. Figure 40) ; les valeurs importantes de vitesses demeurent : le faible écart entre les fibres limite les différences de temps de séjour sur les deux fibres, même si une bulle arrive latéralement (cf. Figure 41).

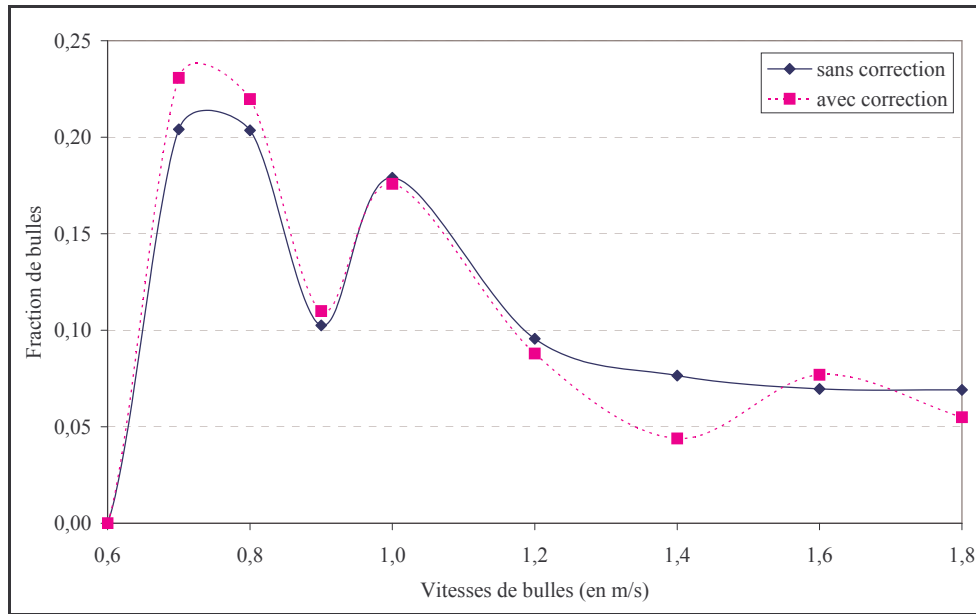


Figure 40 : Comparaison des distributions de vitesses avec et sans correction (cyclohexane,  $u_G=10,5\text{cm/s}$ )

Ce filtre n'est donc pas appliqué dans la suite, puisque les bulles aberrantes ne sont pas systématiquement éliminées alors que de « vraies » bulles sont exclues.

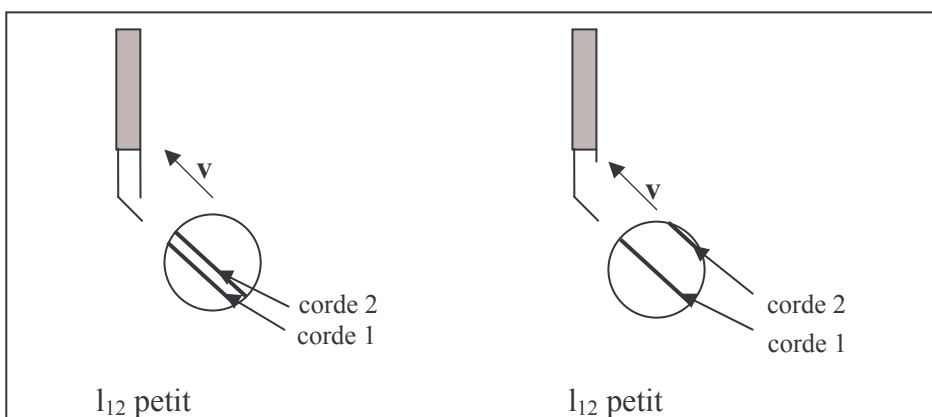


Figure 41 : Effet de la distance entre les fibres sur le piquage de la bulle

**Pour conclure, pour les écoulements où la trajectoire des bulles est aléatoire, l'association d'une vitesse à chaque bulle est très hasardeuse.**

**B.III.3.c. Validité de la mesure de vitesse moyenne**

Pour estimer la validité des valeurs de vitesses moyennes obtenues, des essais sont réalisés en aquarium, de manière à mesurer simultanément la vitesse des bulles par sonde optique et par caméra rapide. Dans cet appareil, les trajectoires sont assez perturbées : les vitesses transversales peuvent parfois atteindre la vitesse axiale.

La mesure par caméra est faite juste en amont de la position de la sonde. Le traitement associé, reporté en annexe III.B, repose sur l'analyse de 200 bulles, alors que 2000 à 5400 sont utilisées pour la mesure par bi-sonde. Les bulles suivies par la caméra ont été, dans la mesure du possible, sélectionnées dans toute la gamme de tailles possibles (entre 1,3 et 22mm, selon les débits).

La comparaison des deux méthodes montre un accord correct entre la vitesse moyenne des bulles la plus probable, issue de la sonde optique,  $v_{moy}$ , et la vitesse axiale moyenne, issue de la photographie (cf. Tableau 14). Ce bon accord obtenu en aquarium ne signifie toutefois pas que les vitesses de bulles en pilote peuvent être déterminées avec la même précision, même si les ordres de grandeurs de vitesses de bulles sont similaires, car les écoulements dans ces deux appareils sont très différents. En effet, les écoulements en aquarium sont beaucoup moins perturbés et plus monodirectionnels, ce qu'illustrent les valeurs supérieures dans cet appareil des coefficients de corrélation (de 0,79 à 0,86, peu influencés par le débit, en aquarium, de 0,63 à 0,78 en pilote) et des rapports  $nb_{traite}/nb_1$  (entre 52 et 76%, en aquarium, entre 19 et 45% en pilote). Néanmoins, en aquarium, les bulles se déplacent, comme en colonne, en essaims et présentent des vitesses similaires à celles observées en colonne. Même si l'écoulement est plus monodirectionnel, la validation en aquarium permet de penser que la mesure de la vitesse moyenne est moins précise en colonne mais correcte. En revanche, aucune conclusion ne peut être tirée en terme de distributions de vitesses, aspect non validé ici.

	Analyse d'images		Sonde optique	
	Vitesse axiale (m/s)	Module de vitesse (m/s)	$v_{moy}$ (m/s)	$\bar{v}$ (m/s)
<b>Test 1</b>	0,415	0,443	0,4415	0,4391
<b>Test 2</b>	0,396	0,422	0,4400	0,4682
<b>Test 3</b>	0,455	0,520	0,5220	0,5502
<b>Test 4</b>	0,562	0,733	0,7331	0,7860

Tableau 14 : Comparaison des résultats moyens obtenus avec la bi-sonde et la caméra rapide

**Les résultats observés en aquarium permettent de considérer que :**

- La bi-sonde permet de mesurer de fortes vitesses dans des essaims de bulles.
- Les grandes vitesses moyennes de bulles obtenues en colonne sont crédibles, compte tenu des vitesses importantes déjà observées en aquarium.

Par ailleurs, la comparaison des deux méthodes de mesure (cf. Tableau 14) montre que la vitesse moyenne de bulles la plus probable, issue de la sonde optique,  $v_{moy}$ , est plus proche de la vitesse axiale (issue de la photo) que la moyenne des vitesses,  $\bar{v}$  (issue de la bi-sonde). L'écart entre ces deux grandeurs augmente avec la vitesse de bulles (6% pour le test 1 à 30% pour le test 4), probablement du fait d'un écoulement moins vertical. En outre, la vitesse mesurée par la sonde semble plus proche du module de la vitesse que de la vitesse axiale (écart <5%), et ce quelle que soit la vitesse (de 40 à 75cm/s). Cette tendance, déjà observée par Kiambi (2003) entre le module de la vitesse et la vitesse interfaciale, amène à s'interroger sur la signification de la vitesse mesurée par la sonde.



Remarque :

L'assimilation de la vitesse la plus probable à la vitesse moyenne est conditionnée par l'existence d'une seule vitesse prédominante. Cette hypothèse n'est plus valable en présence de plusieurs « populations de vitesses ». Dans ce cas, la vitesse la plus probable ne correspond plus à la vitesse moyenne. Aucun des traitements de données de la bi-sonde énoncé ne permet de prendre en compte cette alternative.

### B.III.4. Cordes

Une fois les valeurs de vitesses obtenues, l'étape suivante vers l'obtention des diamètres est le calcul des cordes.

La corde est la distance parcourue par la sonde dans la bulle. Elle peut, en cas de perçage parfait (pas de déformation de la bulle, mouvement ascendant vertical) d'une bulle sphérique, balayer toute la gamme de taille inférieure ou égale au diamètre de la bulle (cf. Figure 42).

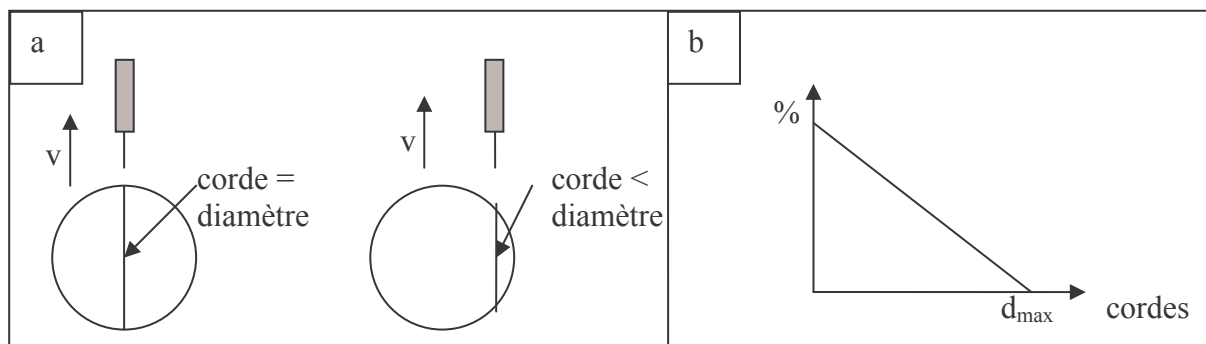


Figure 42 : a. Illustration de la différence entre corde et diamètre

b. Distribution théorique de cordes pour des bulles sphériques de taille constante ( $d_B = d_{max}$ )

Lors du traitement des données de la bi-sonde optique, cette grandeur est issue du produit entre le temps de passage de la bulle sur une fibre et la vitesse de la bulle. Les résultats peuvent alors différer selon le temps de séjour et la vitesse retenus.

- Même s'il est possible d'avoir une valeur de **temps de séjour** pour chaque fibre, les temps issus de la fibre 1 sont les plus utilisés, car ces valeurs sont moins perturbées par la sonde. Néanmoins, l'utilisation de la moyenne entre les temps de séjour des deux fibres est parfois préférée [Lo et Hwang (2003)].

La Figure 43 représente les différences entre les valeurs des cordes sur les deux fibres : contrairement aux grandeurs moyennes de taux de vide et de fréquence de bullage, les longueurs de cordes ne sont pas systématiquement inférieures pour une des deux fibres.

Dans cette étude, les cordes utilisées sont issues de la fibre 1.

Remarque :

Malgré la faible distance entre les deux fibres ( $l_{12}$ ), il existe, pour une même bulle, une assez forte différence entre les longueurs de cordes obtenues sur les deux fibres. Ceci explique le fort rejet précédemment observé lors de l'ajout d'une contrainte en temps de séjour pour l'association des bulles (cf. § B.III.3.b.γ). Une analyse un peu plus poussée montre que ce rejet concerne davantage les petites cordes. En effet, à faibles valeurs, l'écart de 20% maximum imposé précédemment entre les deux cordes correspond, en absolu, à un très faible écart, statistiquement très probable. Ceci amplifie encore le phénomène de filtre. Cette

approche n'ayant pas été retenue, ses conséquences en terme de cordes ne sont pas approfondies.

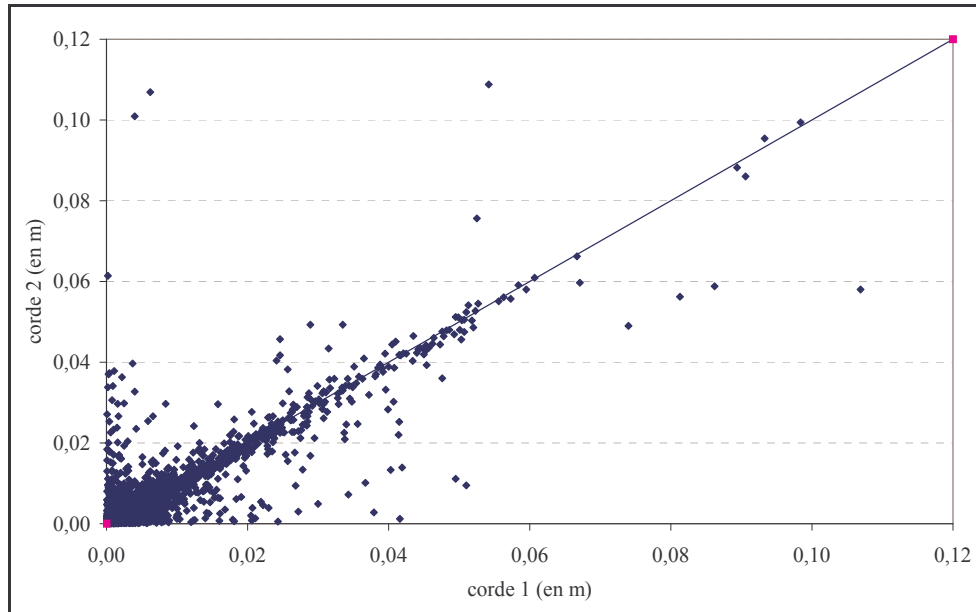


Figure 43 : Comparaison des longueurs de cordes issues des deux fibres (eau,  $u_G=11,28\text{cm/s}$ , centre de la colonne)

• Deux vitesses de bulles sont couramment retenues pour le calcul des cordes : la vitesse moyenne des bulles,  $v_{\text{moy}}$  [Werther et Molerus (1973), Werther (1974a)], ou la vitesse associée à chaque bulle,  $v_{B,i}$  [Revankar et Ishii (1992), Kalkach-Navarro et al. (1993), Kamp (1996)] :

$$\text{corde}_i = v_{B,i} \times \Delta t_{1i} \quad (\text{vitesse instantanée}) \quad (\text{eq.15})$$

$$\text{corde}_i = v_{\text{moy}} \times \Delta t_{1i} \quad (\text{vitesse moyenne}) \quad (\text{eq.16})$$

L'utilisation d'une vitesse fixe pour toutes les bulles, la vitesse moyenne, est préconisée par Werther et Molerus (1973). En effet, la distribution des vitesses est, en essaim de bulles, plus étroite que celle des tailles, les résultats en terme de longueurs de cordes (ou de diamètres) sont donc peu sensibles au type de vitesse utilisée [Werther et Molerus (1973), Werther et al. (1974a)]. Cette approche a deux principaux avantages :

- \_ D'une part elle évite d'avoir à associer les créneaux, étape, comme on l'a vu, particulièrement délicate (Werther et Molerus (1973)]. De ce fait, des valeurs de cordes ne sont pas déduites de vitesses erronées.
- \_ D'autre part, elle permet d'associer une corde à chaque bulle et non aux seules bulles reconnues sur les deux fibres.

Pour éviter de rejeter un trop grand nombre de bulles, lors de l'utilisation d'une vitesse par bulles, il est également envisageable d'attribuer aux bulles non associées la vitesse moyenne. Cette méthode est à mi-chemin entre les deux approches précédentes.

Pour évaluer l'effet de la vitesse choisie (une vitesse instantanée  $v_{B,i}$  pour chacune des nbtraite bulles associées (cas 1), ou la vitesse moyenne  $v_{\text{moy}}$  pour toutes les nb1 bulles (cas 2)), la distribution de cordes est calculée pour chacune d'elles. En terme de corde moyenne, les écarts entre les deux approches sont compris entre 2 et 20%, la corde la plus grande étant

toujours observée pour le cas où une vitesse est associée à chaque bulle (cas 1) ; cet écart est comparable à celui entre la vitesse moyenne et la moyenne des vitesses.

Pour dissocier dans cet écart l'impact de la vitesse choisie et du nombre de bulles traitées, un cas intermédiaire est envisagé (cas 3) : on associe la vitesse la plus probable seulement aux nbtraite bulles (cf. Tableau 15).

	Vitesses	Nombre de bulles
<b>Cas 1</b>	$v_{B,i}$ (1 par bulle)	nbtraite
<b>Cas 2</b>	$v_{moy}$ (pour toutes les bulles)	nb1
<b>Cas 3</b>	$v_{moy}$ (pour toutes les bulles)	nbtraite

Tableau 15 : Récapitulatif des trois cas étudiés

Il est tout d'abord vérifié sur ces distributions qu'il y a davantage de bulles dans la classe de petites cordes lorsque toutes les bulles sont prises en compte et non seulement les bulles associées (cas 2 et 3) : les petites cordes sont moins facilement associées. Cette observation semble assez cohérente dans la mesure où les petites cordes correspondent soit à des petites bulles soit à des bords de bulles, cas où la probabilité de ne croiser qu'une seule des fibres est la plus importante.

En ce qui concerne les cas 1 et 3, le passage à une vitesse fixe élimine une partie des cordes les plus grandes (non représentées sur la Figure 44 pour des raisons de lisibilité), la corde maximale passant de 10,69cm à 9,35cm. Cependant, dans un cas comme dans l'autre, cette corde maximale demeure aberrante.

Ainsi, le passage à une vitesse fixe élimine les cordes aberrantes issues d'une surestimation de la vitesse de bulles, notamment lors de l'arrivée de bulles de biais, mais il n'empêche pas l'occurrence de grandes cordes : les effets de la vitesse et du temps de séjour des bulles doivent être découplés. Toutefois, on peut d'ores et déjà conclure que l'erreur liée au choix de vitesse demeure a priori faible et n'est probablement pas la plus pénalisante.

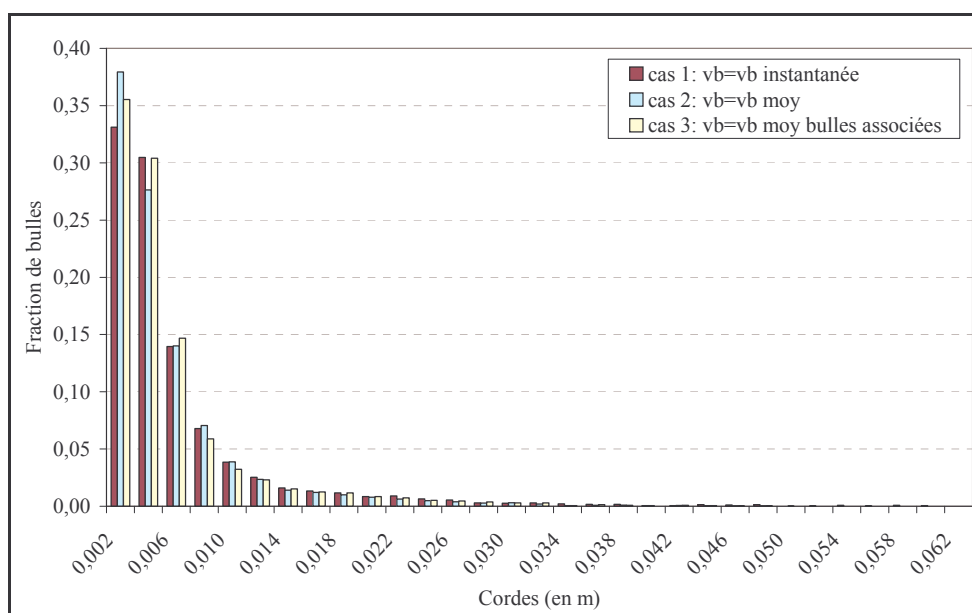


Figure 44 : Histogrammes de cordes (de la fibre 1) obtenues selon les 3 modes de calcul des cordes du Tableau 15 (eau,  $u_G=8,3\text{cm/s}$ )

Pour confirmer ce point, la répartition des temps de séjour sur la fibre 1 est tracée (cf. Figure 45) : il existe de très forts temps de séjour allant jusqu'à 0,054s. Même si l'existence de grosses bulles ou des bulles allongées n'est pas à écarter, elles ne peuvent pas être la cause de

toutes les bulles ayant un fort temps de séjour. Ces temps sont vraisemblablement liés au passage d'essaims de bulles, dont les bulles, très proches les unes des autres, ne peuvent être distinguées par la sonde.

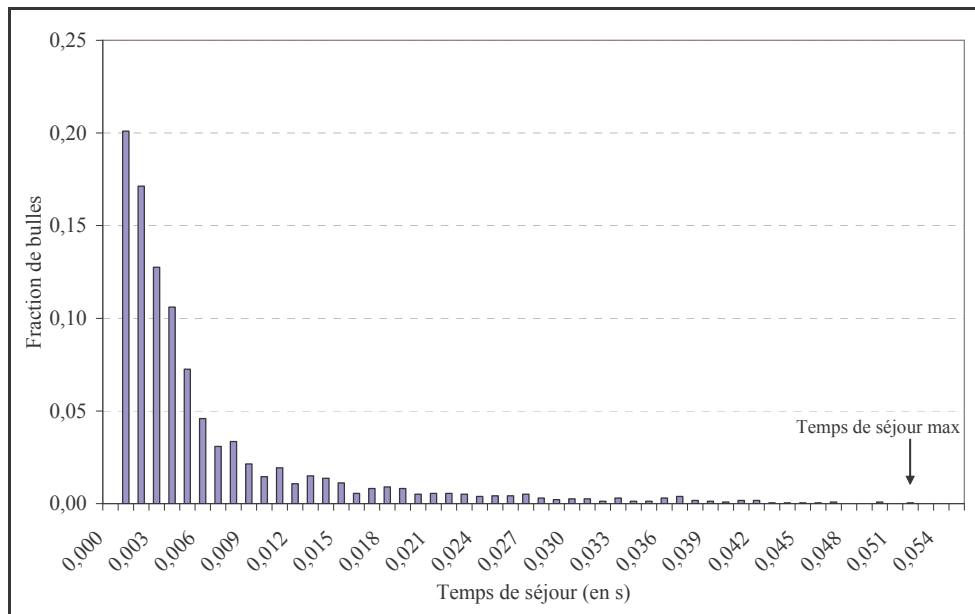


Figure 45 : Histogramme de temps de séjour sur la fibre 1 (eau,  $u_G=8,3\text{cms}$ )

- Hibiki et al. (2001) définissent une épaisseur limite minimum visible entre deux bulles,  $\delta_B$  :

$$\delta_B \approx \max \left[ \frac{u_G}{f}, u_G \Theta \right] \quad (\text{eq.17})$$

où :  $f$  : fréquence d'acquisition  
 $\Theta$  : temps minimum de réponse du circuit

En dessous de cette distance, la bi-sonde ne parvient plus à distinguer toutes les bulles d'un essaim, car elles sont trop proches les unes des autres. Pour nos vitesses, cet écart vaut entre 0,04 et 0,1mm.

- La mauvaise distinction des bulles en amas peut également être liée à l'utilisation d'un seuil unique : lorsque les bulles sont très proches les unes des autres le signal peut amorcer sa descente en sortie de la première bulle, mais n'a pas forcément le temps de redescendre jusqu'au seuil avant l'arrivée de la bulle suivante (cf. Figure 46a). Dans ce cas l'utilisation de deux seuils pourrait être préférable (cf. Figure 46b), mais il est plus délicat à mettre en œuvre puisque tous les pics n'ont pas la même hauteur.

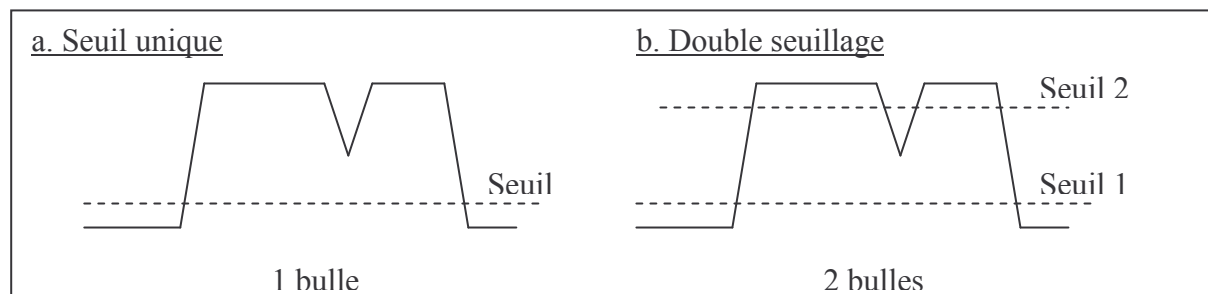


Figure 46 : Influence du seuillage sur le nombre de bulles identifiées par la sonde optique

Ainsi, l'erreur sur le temps de séjour est ici principalement attribuée à la mauvaise distinction des frontières de bulles dans les essaims, la forme, la déformation et la trajectoire de la bulle ne conduisant qu'à des surestimations mineures du temps de séjour sur la sonde [Kiambi (2003)].

*Les distributions de longueur de cordes obtenues cumulent les erreurs induites par les mesures de vitesses (liées principalement à l'ascension non verticale des bulles) et de temps de séjour sur les fibres. L'erreur commise sur cette grandeur est par conséquent accrue par rapport à celle observée en vitesse. Pour Magaud et al. (2001), la précision passe de 15% sur les vitesses à 25% sur les cordes. Cette étude ayant été réalisée en régime homogène, ces valeurs doivent être largement supérieures dans notre cas...*

### B.III.5. Diamètres de bulles

#### B.III.5.a. Distribution de diamètres de bulles

##### *B.III.5.a. $\alpha$ Principe*

L'obtention d'une distribution de diamètres de bulles découle de la distribution de cordes. Le passage d'une distribution à l'autre repose sur des concepts de probabilités ; il est principalement basé sur les travaux de Clark et Turton (1988), qui étendent la démarche de Werther (1974) aux différentes formes de bulles classiquement rencontrées en écoulements polyphasiques (sphères, ellipses entières ou tronquées). Les hypothèses nécessaires à cette transformation sont :

- \_ Hyp.1 : Toutes les cordes ont la même probabilité d'être piquées par la sonde,
- \_ Hyp.2 : Toutes les formes de bulles peuvent être décrites à partir d'un critère de forme unique (ce qui limite considérablement les formes explorées),
- \_ Hyp.3 : L'axe de rotation de la bulle est parallèle à la sonde.

Ces hypothèses sont bien sûr discutables.

♣ **Hyp.1** : « *Toutes les cordes ont la même probabilité d'être piquées par la sonde* »

Cette hypothèse n'est pas vérifiée lorsque la distance de la sonde à la paroi est inférieure à la largeur de la bulle [Kalkach-Navarro et al. (1993), Werther (1974a)]. Dans la zone centrale du contacteur, la validité de cette hypothèse est meilleure, mais elle ne peut être totalement vérifiée lorsqu'une vitesse est associée à chaque bulle, puisqu'il a été vu au paragraphe précédent que les petites cordes sont statistiquement moins associées que les grosses.

♣ **Hyp.2** : « *Toutes les formes de bulles peuvent être décrites à partir d'un critère de forme unique* »

Les auteurs font souvent l'hypothèse de bulles sphériques ou de bulles ellipsoïdales d'excentricité donnée. Une excentricité variable peut également être envisagée pour prendre en compte la variation de la forme de la bulle (excentricité) avec la taille ; une relation est alors définie entre le diamètre de la bulle et l'excentricité [Buchholtz et al. (1981), Kamp (1996)].

Dans notre cas, l'analyse des formes de bulles en aquarium (cf. annexe III.B) montre qu'une telle relation ne peut être établie pour nos écoulements, comme le laissait pressentir la

diversité des formes vue sur les photographies (cf. Figure 47) : les formes de bulles ne peuvent pas être décrites facilement.

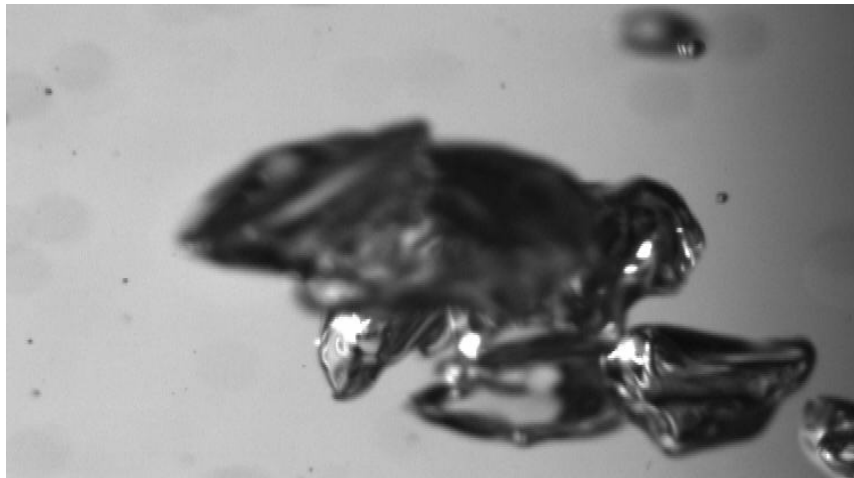


Figure 47 : Exemple de formes de bulles rencontrées en aquarium ( $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ )

Afin de tout de même évaluer la transformation de la distribution de cordes en distribution de diamètres, deux hypothèses de forme classiques sont testées : le cas sphérique (référence) et le cas ellipsoïdal de Kamp (1996), utilisant une excentricité fonction du diamètre.

♣ **Hyp.3** : « *L'axe de rotation de la bulle est parallèle à la sonde* »

Cette hypothèse revient à supposer une ascension verticale des bulles, hypothèse très discutable vu ce qui précède.

**B.III.5.a.β Exemples de résultats**

Le Tableau 16 regroupe les résultats obtenus dans notre pilote en terme de diamètres moyens ( $d_{10}$ ) et de diamètres de Sauter pour les deux hypothèses de forme retenues (sphériques et ellipsoïdales avec excentricité variable).

Les écarts entre les deux approches vont de 2 à 45%. Dans le cas ellipsoïdal le diamètre moyen est systématiquement plus grand et le diamètre de Sauter systématiquement plus petit que dans le cas sphérique : l'hypothèse « ellipsoïdes » réduit la gamme des diamètres calculés.

Lors du passage en distribution de diamètres, le nombre de classes de la distribution finale doit être fixé ; ce choix résulte d'un compromis avec le nombre de bulles traitées. En effet, si le nombre de classes est trop important ou si le nombre de bulles traitées est insuffisant, des incohérences peuvent apparaître ; elles se traduisent en général par des valeurs irrégulières, voire négatives, dans certaines classes de diamètres de bulles [Clark et Turton (1988), Turton et Clark (1989), Clark et al. (1996)]. Werther (1974a) utilise ainsi 2200 bulles réparties en 10 classes alors que Turton et Clark (1989) montrent que 1000 bulles sont suffisantes (pour le même nombre de classes). Il est cependant impossible de définir un nombre minimal ou maximal de classes, car cela dépend de la nature des bulles [Turton et Clark (1989)]. Ce choix est particulièrement problématique en présence d'une distribution multimodale [Turton et Clark (1989)], ce qui peut être notre cas. En première approximation, 10 classes sont utilisées pour cette étude. Aucune hypothèse préalable n'est formulée pour la forme de la distribution.

Un exemple de distribution obtenue en cyclohexane est tracé sur la Figure 48 pour les deux hypothèses précédentes (sphère ou ellipse avec excentricité variable). L'hypothèse « ellipse avec excentricité variable » de Kamp (1996) paraît totalement inadaptée à notre cas, conduisant à des nombres de bulles négatifs atteignant -180 (cf. Figure 48a). Dans le cas

sphérique, quelques probabilités négatives sont aussi observées mais dans une bien moindre mesure (cf. Figure 48b). Cette anomalie est assez courante dans ce traitement lorsque aucune forme n'est fixée pour la distribution de diamètres ou que le nombre de bulles est insuffisant.

$u_G$ (m/s)	r (cm)	sphère		ellipsoïde		écart	
		$d_{10}$ (m)	$d_{32}$ (m)	$d_{10}$ (m)	$d_{32}$ (m)	$d_{10}$ (m)	$d_{32}$ (m)
0,03227	8	0,0044	0,0193	0,0061	0,0122	0,3238	-0,4508
	8	0,0047	0,0192	0,0055	0,0126	0,1569	-0,4151
	6	0,0048	0,0145	0,0053	0,0123	0,0990	-0,1642
	4	0,0049	0,0194	0,0062	0,0160	0,2342	-0,1921
	2	0,0050	0,0170	0,0064	0,0150	0,2456	-0,1250
	0	0,0049	0,0141	0,0052	0,0134	0,0594	-0,0509
	0	0,0049	0,0138	0,0055	0,0129	0,1154	-0,0674
0,07647	8	0,0075	0,0285	0,0077	0,0221	0,0263	-0,2530
	7	0,0074	0,0294	0,0080	0,0228	0,0779	-0,2529
	6	0,0068	0,0278	0,0078	0,0230	0,1370	-0,1890
	5	0,0071	0,0289	0,0081	0,0246	0,1316	-0,1607
	4	0,0066	0,0234	0,0075	0,0221	0,1277	-0,0571
	3	0,0071	0,0266	0,0079	0,0238	0,1067	-0,1111
	2	0,0060	0,0217	0,0072	0,0203	0,1818	-0,0667
	1	0,0061	0,0218	0,0073	0,0206	0,1791	-0,0566
	0	0,0067	0,0244	0,0077	0,0221	0,1389	-0,0989
	-1	0,0068	0,0275	0,0084	0,0236	0,2105	-0,1526
-2	0,0062	0,0245	0,0074	0,0224	0,1765	-0,0896	
0,10512	8	0,0071	0,0280	0,0079	0,0231	0,1067	-0,1918
	6	0,0067	0,0264	0,0080	0,0237	0,1769	-0,1078
	4	0,0071	0,0300	0,0084	0,0253	0,1677	-0,1700
	2	0,0060	0,0222	0,0075	0,0213	0,2222	-0,0414
	0	0,0072	0,0266	0,0084	0,0241	0,1538	-0,0986

Tableau 16 : Diamètres moyens et de Sauter obtenus en cyclohexane en faisant les hypothèses sphérique et ellipsoïdale (r correspond à la position radiale de la sonde)

Les hypothèses les plus classiques en terme de forme de distribution sont des distributions log-normales [Werther (1974a), Van Lare et al. (1997), Kamp (1996)] ou des fonctions gamma [Burgess et al. (1981)] ou de Rayleigh [Liu et Clark (1995), Clark et al. (1996)]. Ce lissage n'est pas effectué dans notre cas, car la forme de la distribution de bulles n'est pas connue ; au vu des résultats en aquarium elle ne serait pas unimodale (cf. annexe IV.A).

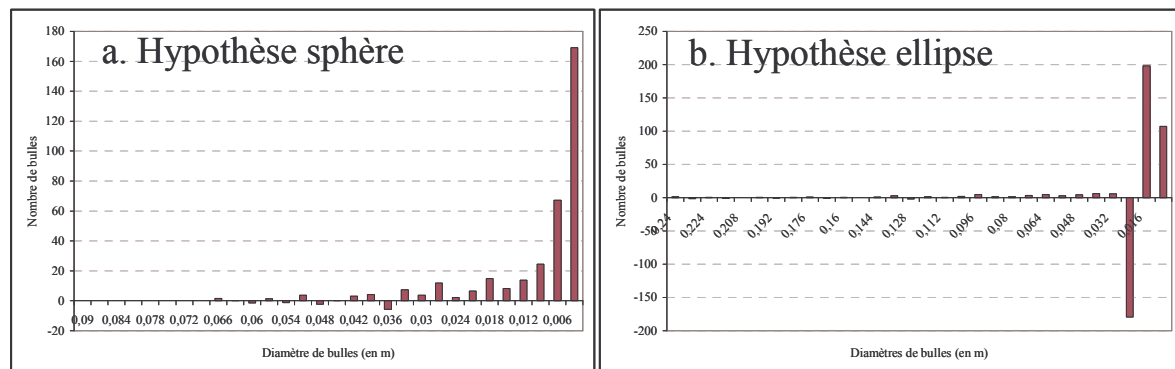


Figure 48 : Distribution de tailles de bulles (cyclohexane,  $u_G=7,6\text{cm/s}$ )

En outre, nous avons travaillé sur plus de 2300 bulles, alors que Kamp (1996) ne considère le lissage nécessaire pour éviter les valeurs négatives qu'en deçà de 1000 bulles traitées. La différence entre les deux cas est une fois de plus à relier à un écoulement plus perturbé dans

notre appareil, ce qui conduit à une distribution de bulles beaucoup plus étalée, nécessitant davantage de bulles pour le calcul et par conséquent des durées d'expériences très allongées, puisque la proportion de bulles traitées est très inférieures à celle couramment rencontrée (entre 19 et 45% contre 70 à 90% dans la littérature, cf. Tableau 12).

Par ailleurs, les courbes de la Figure 48 mettent en évidence que, du fait d'une large distribution de tailles de bulles et de la nécessité de conserver un faible nombre de classes pour limiter les aberrations, la largeur des classes est très grande (environ 2mm), ce qui limite fortement la précision des mesures et les informations fournies à faibles diamètres. Comme il est irréaliste d'augmenter le nombre de classes, des essais sont réalisés avec des classes de tailles variables : fines à faibles diamètres, elles augmentent progressivement en conservant un nombre total de 10 classes. Ainsi, au lieu de définir la largeur des classes par le rapport entre le diamètre maximal et le nombre de classes, il est défini par :

$$l \text{ largeur de classes}(i + 1) = 0,07 i \frac{\text{diamètre max}}{\text{nombre de classes}} \quad (\text{eq.18})$$

Cette modification n'a pas d'effet sur le diamètre moyen, alors que le diamètre de Sauter augmente de 2 à 17% (cf. Tableau 17) : l'utilisation de classes variables ne modifie pas fondamentalement les valeurs de diamètres.

u <sub>L</sub> (m/s)	u <sub>G</sub> (m/s)	r (cm)	d <sub>32</sub> (m)		
			classes fixes	classes variables	écart
0,07	0,0355	0	0,0143	0,0146	0,0208
0,07	0,0355	0	0,0148	0,0164	0,1026
0,07	0,0355	4	0,0132	0,014	0,0588
0,07	0,0355	4	0,0113	0,0134	0,1700
0,07	0,0355	8	0,0088	0,0089	0,0113
0,07	0,0355	8	0,0068	0,0069	0,0146
0	0,0353	8	0,0085	0,0099	0,1522
0	0,0353	8	0,0073	0,0082	0,1161
0	0,0353	4	0,0063	0,0069	0,0909
0	0,0353	0	0,0062	0,0067	0,0775
0	0,0353	0	0,0061	0,0064	0,0480
0,07	0,0841	0	0,0384	0,0396	0,0308
0,07	0,0841	0	0,0401	0,0418	0,0415
0,07	0,0841	4	0,0333	0,034	0,0208
0,07	0,0841	8	0,0228	0,0262	0,1388
0	0,0831	8	0,0242	0,0265	0,0907
0	0,0831	4	0,0394	0,0419	0,0615
0	0,0831	0	0,0429	0,0445	0,0366
0	0,0831	0	0,0325	0,0354	0,0854

Tableau 17 : Effet de classes de largeur variable sur le diamètre de Sauter (essais en eau, niveau 3)

Un exemple de cet effet sur la distribution de tailles est fourni sur la Figure 49. Pour que les deux cas puissent figurer sur le même graphique, les histogrammes sont traduits en courbes (les hauteurs de pics ne doivent pas être comparées, car les largeurs de classes diffèrent entre les deux cas). En présence de classes variables, l'allure du profil est améliorée et plus précise à faibles diamètres, mais, à forts diamètres, des valeurs négatives persistent.



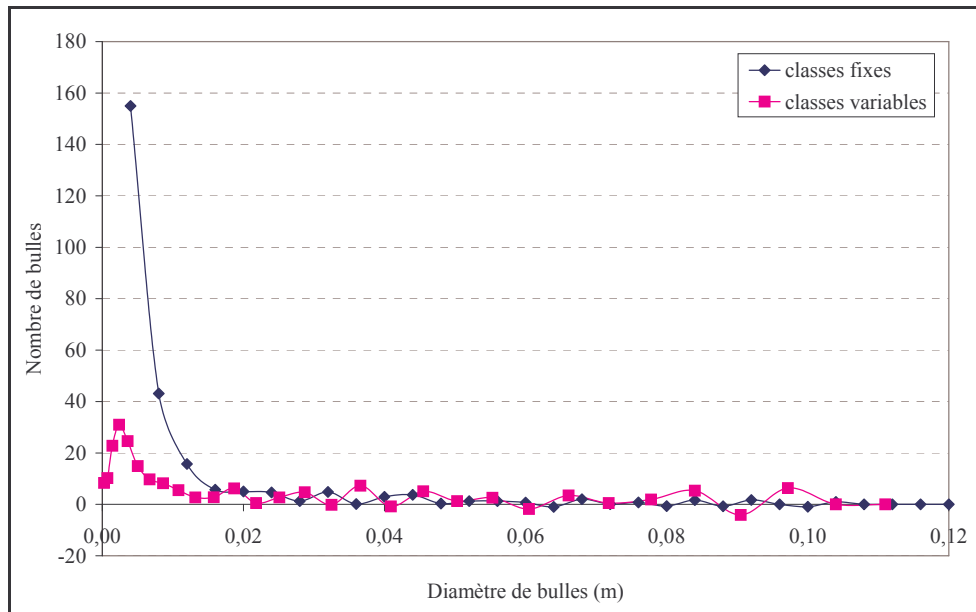


Figure 49 : Effet de classes de largeurs variables sur la distribution de tailles de bulles (eau, niveau 3,  $u_G=8,31\text{ cm/s}$ )

### B.III.5.a. $\gamma$ Conclusions

La transformation des distributions de cordes en distributions de diamètres est très sensible aux erreurs d'estimation de cordes. Pour minimiser ces erreurs, le nombre de bulles traitées doit être important, mais la sous-estimation des petites cordes, due à la déflexion des bulles par la sonde optique, et la présence de très grandes valeurs de cordes, dues à la présence d'essaims, semblent incontournables dans nos conditions.

En outre, l'obtention d'une distribution de diamètres nécessite une hypothèse de forme. L'hypothèse testée ici est sphérique, ce qui est extrêmement discutable.

Enfin, pour éviter les probabilités négatives dans les distributions de diamètres, l'idéal serait de connaître au préalable la forme de la distribution réelle de taille de bulles, car il est irréaliste de diminuer le nombre de classes ou d'augmenter davantage le nombre de bulles traitées (i.e. le temps d'acquisition). Cette forme est soit issue d'une loi de probabilité (log-normale, gamme, Rayleigh, ...), soit d'un lien entre la vitesse des bulles et leur diamètre [Clark et al. (1996), Liu et Clark (1995)]. Cette dernière approche n'est guère envisageable dans les écoulements à forts taux de vide où les bulles interagissent fortement et ont une vitesse assez uniforme [Werther et Molerus (1973)], les grosses bulles entraînant les plus petites.

*Ainsi, dans nos écoulements les distributions de tailles de bulles sont inaccessibles avec l'outil actuel. En attendant une étude spécifique à ce sujet, il est préférable de se limiter à l'estimation de valeurs moyennes.*

### B.III.5.b. Tailles moyennes

Le principal avantage des valeurs moyennes est le faible poids donné aux quelques valeurs aberrantes observées précédemment.

**B.III.5.b.α A partir de la corde moyenne**

Pour estimer un diamètre moyen de bulles,  $d_{10}$ , cette grandeur est reliée par certains expérimentateurs à la corde moyenne,  $c_{10}$ , par :

$$d_{10} = \lambda c_{10} \quad (\text{eq.19})$$

où :  $\lambda$  est un paramètre dépendant des caractéristiques de l'écoulement local (vitesse liquide, propriétés du fluide, débit gazeux, ...).

Le paramètre  $\lambda$  vaut couramment 1,5 [Thang et Davis (1979), Magaud et al. (2001)]. Néanmoins, Fröhlich et al. (1991) préconisent plutôt un facteur 1,33 pour prendre en compte les petites bulles « oubliées » ou ratées par la technique. Cette approche nécessite alors une calibration préalable.

Pour évaluer le critère  $\lambda$  dans nos écoulements, des essais sont réalisés en aquarium, en eau et en cyclohexane. La taille des bulles est évaluée simultanément par deux techniques : la sonde optique et une caméra rapide (le traitement associé est décrit en annexe III.B) ; la première donne la corde moyenne et la seconde le diamètre moyen. Les résultats obtenus sont reportés dans le Tableau 18.

Milieu	Vitesse (m/s)	$c_{10}$ (m) (bisonde)	$d_{10}$ (m) (photo)	$\lambda$
cyclohexane	1,17	0,0102	0,0031	0,30
cyclohexane	0,80	0,0053	0,0052	0,95
cyclohexane	0,57	0,0031	0,0032	1,03
eau	1,20	0,0120	0,0038	0,32
eau	0,73	0,0048	0,0059	1,23

Tableau 18 : Evaluation du critère  $\lambda$

Les facteurs  $\lambda$  obtenus (entre 0,3 et 1,2) sont très inférieurs aux valeurs énoncées ci-dessus ; ils varient légèrement avec le milieu et diffèrent largement selon la vitesse de gaz, et donc la largeur de la distribution de bulles. Les très faibles valeurs de  $\lambda$  à fortes vitesses de gaz, lorsque l'écoulement présente de nombreuses petites bulles (cf. annexe IV.A), témoignent de la mauvaise prise en compte de cette population par la sonde optique. Cette procédure n'est pas retenue pour le calcul du diamètre moyen.

**B.III.5.b.β A partir de l'aire interfaciale**

Le diamètre de Sauter peut, par définition, être estimé à partir de l'aire interfaciale par :

$$d_{SM} = \frac{6\varepsilon_G}{a} \quad (\text{eq.20})$$

Sachant que l'aire interfaciale peut être calculée, pour des bulles sphériques, par [Kataoka et al. (1986)] :

$$a = \frac{4f_B}{v_{B,axiale}} \quad (\text{eq.21})$$

Et en supposant que la vitesse axiale est égale à la vitesse moyenne,  $v_{moy}$ , le diamètre de Sauter vaut :

$$d_{SM} = \frac{3v_{moy} \varepsilon_G}{2f_B} \quad (\text{eq.22})$$

Cette écriture revient à fixer  $\lambda=1,5$  dans l'expression précédente ( $d_{SM}=1,5c_{10}$ ), mais le diamètre estimé est alors le diamètre de Sauter et non plus le diamètre moyen. Cette approche semble la seule envisageable dans nos écoulements.

### B.III.5.c. Validation

Deux méthodes de calculs moyennés de diamètres sont évaluées ici :

- \_ Le diamètre moyen et le diamètre de Sauter, issus de la distribution de tailles obtenue en supposant les bulles sphériques (cf. §B.III.5.a), notés respectivement  $d_{10sp}$  et  $d_{32sp}$  (méth.1),
- \_ Le diamètre de Sauter, issu des valeurs moyennes de taux de vide, de fréquence et de vitesse par  $d_{32}=3v_{moy}\varepsilon_G/2f_B$  (cf. §B.III.5.b.β), noté  $d_{32moy}$  (méth.2).

Pour cela, des essais en aquarium sont réalisés pour les trois milieux étudiés en pilote et les valeurs de diamètres obtenues avec la bi-sonde sont comparées à celles mesurées par visualisation (cf. Tableau 19).

	vitesse (m/s)	$d_{10sp}$ (m)	$d_{10}$ photos (m)	écart (%)	$d_{32sp}$ (m)	$d_{32moy}$ (m)	$d_{32}$ photo (m)	écart (%) ( $d_{32sp}$ )	écart (%) ( $d_{32moy}$ )
cyclohexane	1,17	0,0112	0,0031	-261,38	0,0211	0,01013	0,00906	-133,08	-11,13
cyclohexane	0,80	0,0058	0,0052	-10,31	0,0094	0,00526	0,00600	-57,00	13,05
cyclohexane	0,57	0,0036	0,0032	-11,99	0,0048	0,00343	0,00359	-34,63	4,62
olone	1,03	0,008933333	0,0027	-226,03	0,014816667	0,00875	0,00806	-83,83	-8,19
olone	0,83	0,006233333			0,010333333	0,00598	0,00578	-78,78	-3,42
olone	0,57	0,00365	0,0024	-55,32	0,0050375	0,00383	0,00285	-76,75	-29,39
eau	1,20	0,0123	0,0038	-227,44	0,0219	0,01234	0,0106	-106,81	-15,18
eau	0,88	0,0067			0,0103	0,00698	0,00623	-65,56	-11,39
eau	0,73	0,0053	0,0059	10,46	0,0076	0,00561	0,00602	-26,41	7,05

Tableau 19 : Validation des tailles moyennes par analyse d'images

L'approche en distribution de diamètres met en évidence de fortes différences en diamètres moyens entre la sonde et la photographie : cette méthode n'est acceptable qu'à petits débits. Comme les écarts en diamètres de Sauter sont plus modérés, cela conforte l'hypothèse que la sonde ne pique pas correctement les petites bulles. Ceci se confirme avec l'olone, milieu pour lequel l'écart en diamètre moyen demeure grand même à petits débits (55% contre 10% pour les autres milieux) : il y a dans ce milieu de nombreuses petites bulles même à faible débit que la bi-sonde ne peut pas détecter, probablement parce que l'interface bulle-olone est plus rigide.

La comparaison des deux méthodes testées montre que le diamètre de Sauter est évalué beaucoup plus précisément avec l'approche basée sur l'aire interfaciale (méth.2) ; l'utilisation des distributions de diamètres (méth.1), donnant plus de poids aux points aberrants, n'est pas satisfaisante.

**Les écarts entre la photographie et la méth.2 demeurant modérés (inférieurs à 15% pour l'eau et le cyclohexane), malgré l'hypothèse de bulles sphériques sous-jacente, le diamètre**

**de Sauter est dans la suite calculé par :**  $d_{SM} = \frac{3v_{moy} \varepsilon_G}{2f_B}$

*Il est certes impossible d'affirmer que les bons résultats obtenus par ce biais en aquarium sont vérifiés en colonne, mais cette approche reste en l'état la plus fiable.*

## B.IV. SYNTHÈSE : DEMARCHE ADOPTÉE

Le traitement de données finalement retenu est schématisé sur la Figure 50 ; les paramètres évalués sont le taux de vide, la fréquence de bulles, la vitesse moyenne et le diamètre de Sauter. Le rapport entre le taux de vide et la fréquence de bulles est également calculé, car il renseigne sur le rapport entre le diamètre de Sauter et la vitesse moyenne, sans avoir à passer par l'étape délicate de l'estimation de la vitesse.

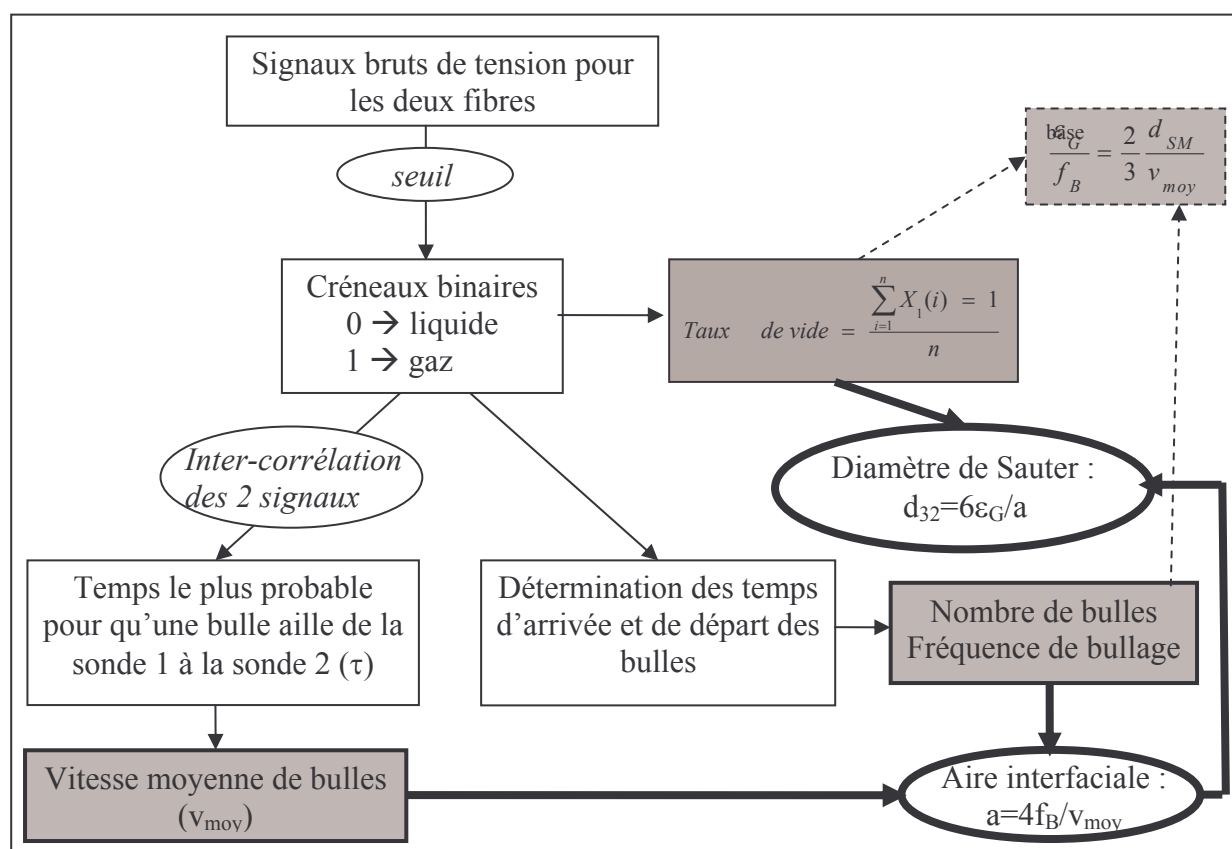


Figure 50 : Traitement de données adopté

L'approche envisagée permet, en ne reposant que sur des valeurs moyennes, d'éviter le problème de l'association des créneaux et donne par suite peu de poids aux points aberrants. Ce choix ne permet toutefois pas de résoudre l'intégralité du problème, notamment en terme de vitesses puisque les bulles d'ascension non verticales peuvent, si elles sont nombreuses, fausser les mesures de vitesses (particulièrement en parois). Les valeurs de vitesses sont donc à manipuler avec prudence. Le passage en diamètres n'est pas non plus anodin puisqu'il suppose a priori des bulles sphériques.

Il faut en outre garder à l'esprit la mauvaise prise en compte des petites bulles par la sonde [Buchholtz et al. (1981)], l'impossibilité de traiter une double population de bulles et la difficulté à piquer les bulles en alone.

Pour évaluer la fiabilité de nos résultats, plusieurs outils sont à notre disposition :

- \_ La comparaison du taux de vide moyen obtenu par intégration des taux de vide locaux sur une section de colonne et du taux de vide issu des capteurs de pression,
- \_ La comparaison de l'intégration du produit du taux de vide et de la vitesse de bulle sur une section de colonne ( $\int \varepsilon_G(r) v_B(r)$ ) avec la vitesse superficielle de gaz,  $u_G$ ,
- \_ Le rapport  $nb_{traite}/nb_1$  : lorsque le nombre de bulles « associables » ( $nb_{traite}/nb_1$ ) est grand, l'écoulement est globalement ascendant et les résultats obtenus sont a priori fiables. (Ce paramètre est plus fiable que le coefficient d'intercorrélation.)

Les essais réalisés dans nos écoulements témoignent des limites de la bi-sonde optique en écoulements très turbulents et du manque d'informations dans ces conditions : forte densité de bulles, absence d'écoulement porteur, mouvement chaotique (mouvement des bulles non vertical), et large distribution de tailles. Il en découle une forte sensibilité des résultats aux paramètres  $\alpha$  et  $\beta$ , une faible proportion de bulles traitées, ( $nb_{traite}/nb_1$ ), de faibles coefficients de corrélation entre les signaux des deux fibres, des incohérences dans les distributions de vitesses et de cordes, l'impossibilité de caractériser la forme des bulles, ...

Dans ces conditions, l'obtention précise de taux de vide et de fréquence de bullage et plus approximativement de vitesses et de diamètres de bulles constitue déjà un objectif ambitieux.

## CHAPITRE IV : CARACTERISATION EXPERIMENTALE DE L'HYDRODYNAMIQUE

La connaissance de l'hydrodynamique des colonnes à bulles est essentielle à leur utilisation optimale, mais les informations locales en conditions industrielles (liquide organique, débits importants, plateaux perforés, distributeurs à gros trous) sont peu nombreuses, parce que ces manipulations sont délicates et nécessitent des installations spécifiques (cf. chapitre II) et que les outils de caractérisation locale sont peu adaptés (cf. chapitre III).

Pour progresser en ce domaine, l'hydrodynamique locale et globale de la colonne à bulles décrite au chapitre II est étudiée. Les mesures globales de taux de vide sont effectuées sur différentes portions de colonne par capteurs de pression, et les mesures locales de taux de vide, de fréquence de bulles, de diamètre de Sauter et d'aire interfaciale proviennent de mesures par bi-sonde optique. Ces méthodes sont détaillées au chapitre III.

Avant tout, l'établissement d'un cas de référence est nécessaire ; il s'agit de la configuration la plus classique et de ce fait la mieux connue : la colonne vide fonctionnant en eau à débit liquide nul. Pour ce cas de référence, deux distributeurs sont successivement utilisés. Ces distributeurs, décrits au chapitre II (§II.1), sont composés de deux tores concentriques. Le distributeur 1, ou distributeur de référence, percé de trous de 1mm, se rapproche des conditions industrielles, alors que le distributeur 2, percé de trous de 0,5mm, permet d'étendre le régime homogène et donc de se positionner par rapport aux cas fréquemment rencontrés dans la littérature. La surface totale des trous est identique pour les deux distributeurs.

A partir de l'étude du cas de référence (partie A), la démarche expérimentale adoptée consiste à progresser pas à pas vers la condition industrielle cible (cyclohexane, distributeur à gros trous,  $u_L=8\text{cm/s}$ , débits gazeux importants, plateaux perforés), en analysant tour à tour les effets du milieu (partie B), de la circulation liquide (partie C) et des plateaux perforés (partie D), par rapport au cas de référence établi.

Dans chacune de ces parties, la même démarche, consistant à caractériser successivement l'hydrodynamique globale et locale de la phase gazeuse, est appliquée. Les données globales, issues des capteurs de pression, fiables quelles que soient les conditions étudiées (cf. chapitre III, §A.II), permettent d'établir de premières tendances, mais aussi de vérifier la cohérence des données locales issues de la sonde optique. En présence de débits liquide, cette approche globale est complétée par des données de DTS concernant le mélange de la phase liquide (méthode décrite au chapitre III, §A.III). Les informations locales de taux de vide, de fréquence de bulles, d'aire interfaciale et de diamètre de Sauter sont ensuite indispensables

pour préciser la répartition des bulles dans la colonne et l'effet des différents paramètres étudiés (milieu, débits, plateaux).

Cet ensemble d'informations alimentera une base de données permettant à terme leur extrapolation à l'échelle industrielle et la modélisation de ce type d'écoulement. Elles sont surtout indispensables à une meilleure compréhension des écoulements en conditions rigoureuses (liquide organique, débits importants, plateaux perforés, distributeurs à gros trous), rarement explorées dans la littérature, et à leur positionnement par rapport aux conditions plus connues.

*Remarques :*

\_ Les essais en cyclohexane, lourds à mettre en œuvre (dangereux et coûteux), sont menés par campagnes (location du CIRRUS) et nécessitent de découpler les manipulations du traitement des données. Il a de ce fait été impossible de réitérer les quelques essais dont les résultats semblent incohérents.

\_ L'utilisation de l'eau, liquide facile à manipuler (pas de danger pour la santé, pas de risque d'inflammation, pas de problème d'agressivité, cryogène non nécessaire), autorise le balayage d'une gamme de conditions opératoires plus large qu'en cyclohexane, ce qui permet d'approfondir certains aspects.

Comme il est impossible en colonne d'observer la forme et la distribution de tailles de bulles (cf. chapitre III, §B.III), celle-ci a été préalablement étudiée en aquarium (cf. annexe IV.A), et ce pour deux raisons essentielles : d'une part la visualisation des bulles susceptibles d'être rencontrées en colonne (ou du moins dans la zone d'injection) peut aider à la compréhension de certaines tendances observées en colonne et, d'autre part, l'utilisation en aquarium d'une gamme de produits plus large qu'en colonne peut permettre de mieux saisir les effets des propriétés physico-chimiques sur la taille des bulles. Cette étude, découplée de l'analyse en cours mais indispensable, est présentée en annexe IV.A ; ces résultats sont parfois mentionnés pour étayer nos explications en colonne. Il faut toutefois garder à l'esprit que cette étude, effectuée par caméra rapide, est limitée à de faibles densités de bulles : la vitesse maximale d'éjection à l'orifice ( $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ ) correspond à vitesse superficielle de gaz dans la colonne de 4,4cm/s.

## **PARTIE A. : CAS DE REFERENCE (eau, sans plateaux, sans débit liquide)**

---

### **A.I. TAUX DE VIDE GLOBAL**

L'étude hydrodynamique du cas de référence débute inéluctablement par l'évaluation du taux de vide global, grandeur classique qui offre un premier aperçu de la dispersion gazeuse générée par chaque distributeur. Elle permet classiquement de déterminer dans quelles plages du débit de gaz le bullage est homogène ou hétérogène (cf chapitre III.A). Cette information est importante pour l'analyse des mesures locales dans la colonne et pour celle de l'efficacité du transfert.

### A.I.1. Allure générale

L'évolution du taux de vide global sur toute la colonne (fourni par le capteur DP6) est tracée en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les deux distributeurs envisagés (cf. Figure 1).

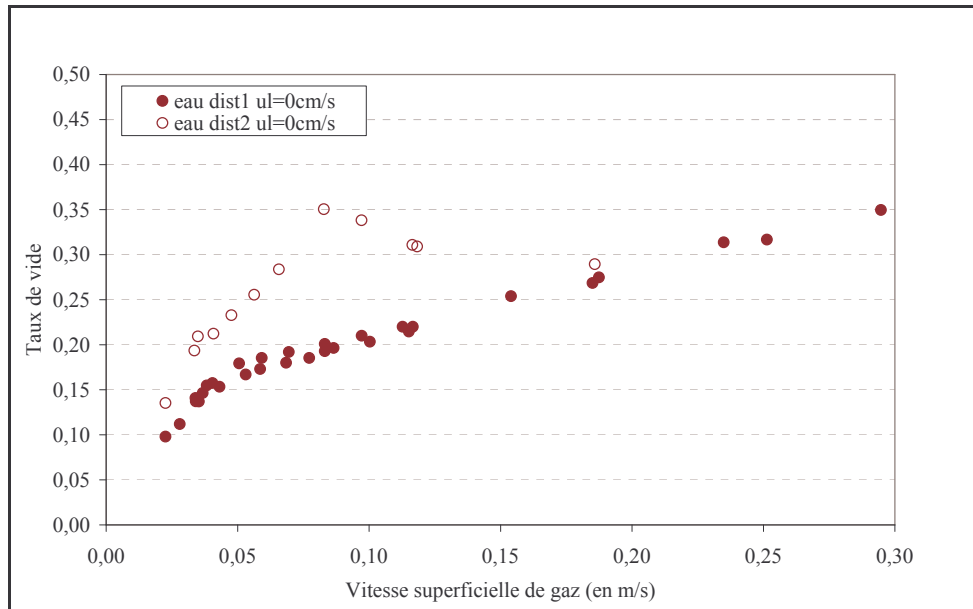


Figure 1 : Evolution du taux de vide global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les deux distributeurs (eau,  $u_L=0\text{cm/s}$ )

Les courbes obtenues sont assez classiques et permettent de retrouver les tendances vues dans la littérature :

- \_ A faibles vitesses superficielles de gaz, lorsque les deux distributeurs opèrent en régime homogène, le taux de vide du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) est supérieur à celui du distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ). En effet, le distributeur 2, à petits orifices, forme a priori des bulles plus petites qui ont un temps de séjour plus long. Comme, en régime homogène, les bulles formées au distributeur se conservent et imposent l'écoulement dans toute la colonne, le taux de vide du distributeur 2 est supérieur à celui du distributeur 1.
- \_ A fortes  $u_G$ , lorsque le régime hétérogène est établi pour les deux distributeurs, les taux de vide des deux distributeurs se rejoignent, car dans ce régime le facteur déterminant la distribution des bulles dans la colonne est l'équilibre coalescence-rupture, équilibre indépendant du distributeur. Ce régime est a priori observé dès 6-8cm/s avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) alors qu'il ne devient visible qu'à 16cm/s environ avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ).
- \_ La transition est fortement dépendante du distributeur :

La transition est plus précoce pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), car l'utilisation de gros orifices favorise à la fois la formation de bulles plus grosses et la déstabilisation du régime d'injection à des vitesses de gaz plus faibles (le nombre de Reynolds à l'orifice dépend du diamètre de l'orifice). Ces bulles ne sont alors plus animées d'un mouvement vertical et ont tendance à entrer en collision, ce qui favorise la coalescence et par voie de conséquence la transition.

La transition est plus marquée pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) qui présente un net maximum de taux de vide (pour  $u_G \approx 8\text{cm/s}$ ), alors que la transition n'est



caractérisée pour le distributeur 1 que par un changement de pente aux alentours de 4cm/s.

- Les écarts se creusent entre les taux de vide des deux distributeurs lorsqu'ils conduisent à des régimes de bullage différents.

La répétabilité des essais est très satisfaisante, excepté pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) dans la zone de transition, où l'écart sur le taux de vide, au demeurant acceptable (inférieur à 7%), est un peu plus marqué. Il apparaît alors que le régime de transition est plus sensible que les autres à la qualité de l'eau : moins stable et moins prévisible, ce régime est à éviter industriellement.

Pour positionner notre étude par rapport à la littérature et préciser notre étude, les analyses globales énoncées au chapitre I (régimes hydrodynamiques et corrélations) sont envisagées.

#### **A.I.1.a. Régimes de bullage**

A partir des courbes des évolutions du taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz, une étude plus approfondie des régimes de bullage est envisagée. Cette étude, séparée du contexte général de ce chapitre, fournit néanmoins des résultats intéressants ; elle est reportée en annexe IV.B.

*Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), cette approche permet de distinguer les trois régimes hydrodynamiques classiques : régime homogène pour  $u_G \leq 4\text{cm/s}$ , régime de transition pour  $u_G$  compris entre 4 et 7-8cm/s et régime hétérogène pour des vitesses supérieures. Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), la caractérisation est plus difficile et quatre zones sont distinguées. Trois d'entre elles peuvent être facilement associées à un régime de bullage : le régime homogène, entre 0 et 4cm/s, le régime de transition entre 7,5 et 16cm/s et le régime hétérogène au-delà. Par contre, la zone de débit entre 4 et 7,5cm/s a un comportement moins tranché ; elle est ici plutôt associée au régime homogène, car a priori la coalescence ne prédomine pas dans cette zone. Cette zone, dont le comportement est délicat est nommée régime homogène « bis », par opposition au régime homogène « pur », obtenu pour  $u_G < 4\text{cm/s}$ .*

*En régime homogène et de transition, l'allure des courbes de taux de vide et la persistance des régimes dépendent du distributeur ; les écoulements ne sont pas semblables pour les deux distributeurs.*

Les notions de régimes décrites ici permettent d'avoir une première idée de l'écoulement, mais ne représentent qu'une version simplifiée de la réalité. Au vu des distributions de bulles observées en aquarium (cf. annexe IV.A), il est par exemple improbable qu'aux vitesses d'éjection des bulles imposées au distributeur en pilote, les bulles formées aient toutes la même taille, même en régime dit homogène.

#### **A.I.1.b. Comparaison avec les corrélations classiques**

Parmi les approches globales classiques des colonnes à bulles vues au chapitre I, les corrélations occupent une place importante ; on peut donc s'interroger sur la représentativité de ces corrélations dans nos écoulements. Il est toutefois d'ores et déjà possible d'affirmer que ces corrélations ne peuvent pas représenter l'ensemble de nos données, dans la mesure où elles n'incluent pas l'effet distributeur. Elles devraient néanmoins être cohérentes en régime hétérogène, où l'effet du distributeur disparaît. Pour éclaircir cela, treize corrélations

classiques sont superposées, pour les deux distributeurs, aux courbes de taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz (Figure 2) ; les corrélations testées sont reportées en annexe I.B, les relations spécifiques aux installations sous pression ou aux liquides très visqueux ayant été écartées. Les corrélations faisant intervenir deux populations de bulles sont aussi rejetées, car elles ont montré leurs limites (cf. annexe IV.B).

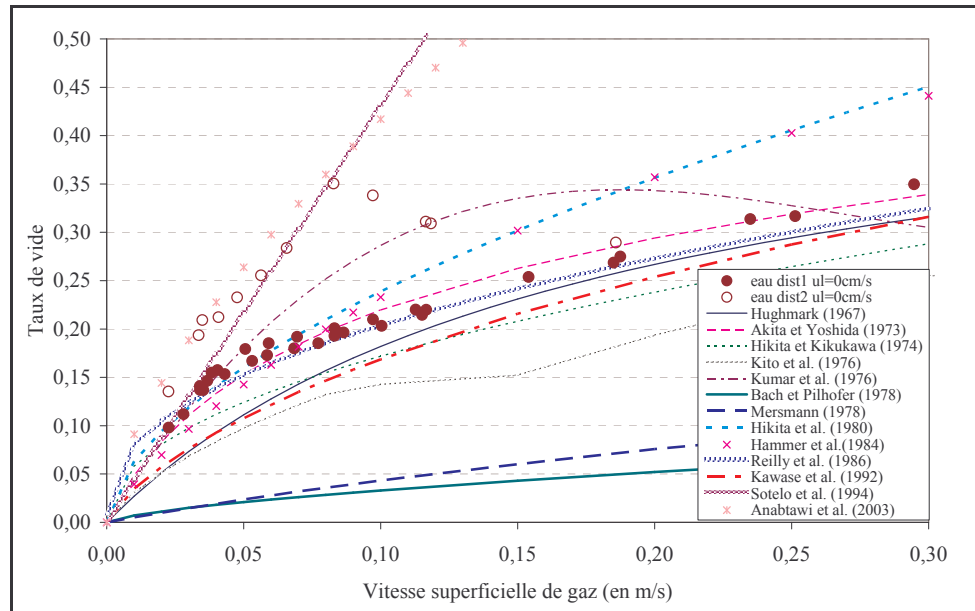


Figure 2 : Evaluation des corrélations de la littérature

Ces corrélations conduisent à un très large panel de formes de courbes, ce qui témoigne de la grande diversité et complexité des écoulements en colonnes à bulles et du manque de compréhension de ces phénomènes. Bon nombre de ces corrélations n'ont ainsi aucune ressemblance avec nos données expérimentales et ce même en régime hétérogène, où a priori le distributeur n'influe plus...

Seules les corrélations de Akita et Yoshida (1973), établie dans des conditions similaires (diffuseur à orifices,  $u_G \leq 40 \text{ cm/s}$ ,  $u_L \leq 4,4 \text{ cm/s}$ ,  $D_C = 15,2-60 \text{ cm}$ ,  $H = 1,26-3,5 \text{ m}$ ) et prenant en compte un grand nombre d'essais, et de Reilly et al. (1986) donnent une représentation correcte du taux de vide du distributeur 1 ( $d_0 = 1 \text{ mm}$ ).

La courbe obtenue avec le distributeur 2 ( $d_0 = 0,5 \text{ mm}$ ) présente une allure plus difficile à représenter par une seule corrélation sur toute la gamme de vitesses superficielles explorée. La corrélation d'Anabtawi et al. (2003) coïncide assez bien à notre courbe expérimentale pour des vitesses inférieures à  $u_G = 8 \text{ cm/s}$  (régime homogène) ; cet accord est toutefois assez surprenant et résulte probablement d'une coïncidence, car les conditions opératoires de ces auteurs diffèrent largement des nôtres.

Enfin, si seul le régime hétérogène est considéré, les corrélations de Hughmark (1965) et de Kawase et al. (1992) peuvent représenter correctement nos données.

### A.I.2. Evolution axiale du taux de vide global

Les capteurs de pression différentielle fournissent, outre le taux de vide global, des indications sur l'évolution axiale du taux de vide global sur différentes portions de colonne. Ces évolutions sont reportées pour le distributeur 1 ( $d_0 = 1 \text{ mm}$ ) et le distributeur 2 ( $d_0 = 0,5 \text{ mm}$ ), respectivement sur la Figure 4 et la Figure 8. Les capteurs de pression sont nommés avec un

indice qui croît avec leur position axiale dans la colonne (cf. Figure 3), sauf le capteur DP6 qui regroupe l'ensemble de la colonne (capteur utilisé dans le paragraphe précédent).

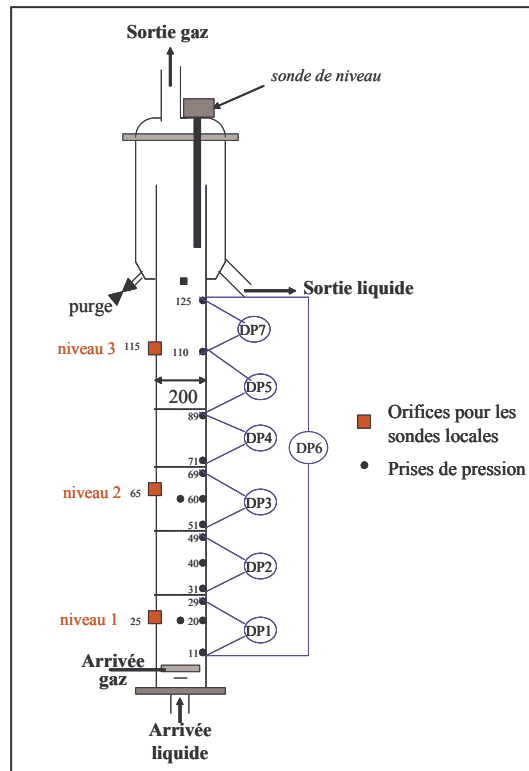


Figure 3 : Positions de base des capteurs de pression

### A.I.2.a. Distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )

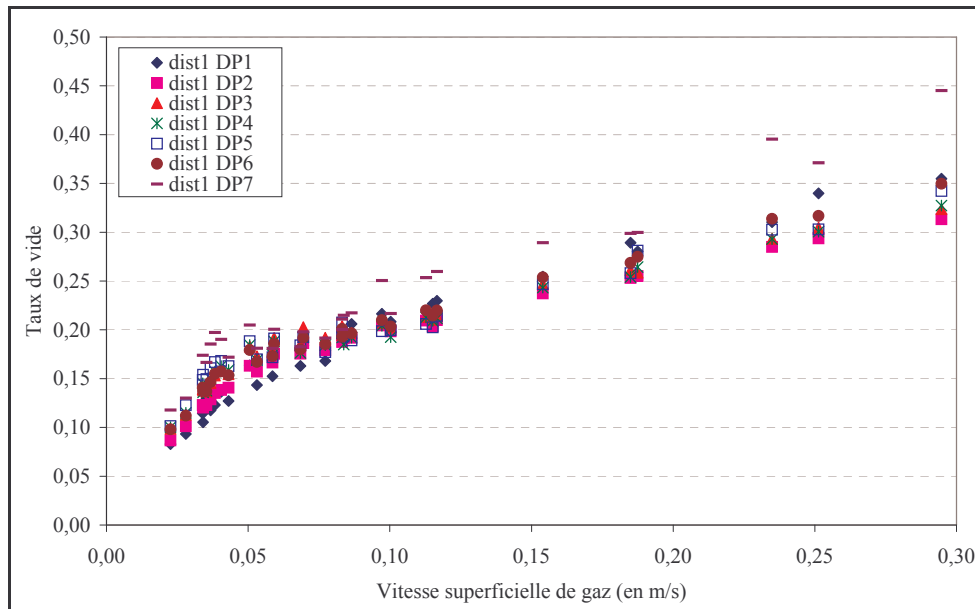


Figure 4 : Evolution axiale du taux de vide (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ )

Avec le distributeur 1, percé de trous de 1mm, les taux de vide des capteurs DP3 à DP5 sont équivalents lorsque la vitesse superficielle de gaz est supérieure à 4cm/s (cf. Figure 4 et Figure 5) : l'écoulement dans la colonne est stable dans la zone centrale de la colonne (entre

50 et 110cm du fond). En dessous de cette valeur ( $u_G < 4\text{cm/s}$ , régime homogène), le taux de vide augmente légèrement entre le bas et le haut de la colonne : il n'y a pas d'équilibre.

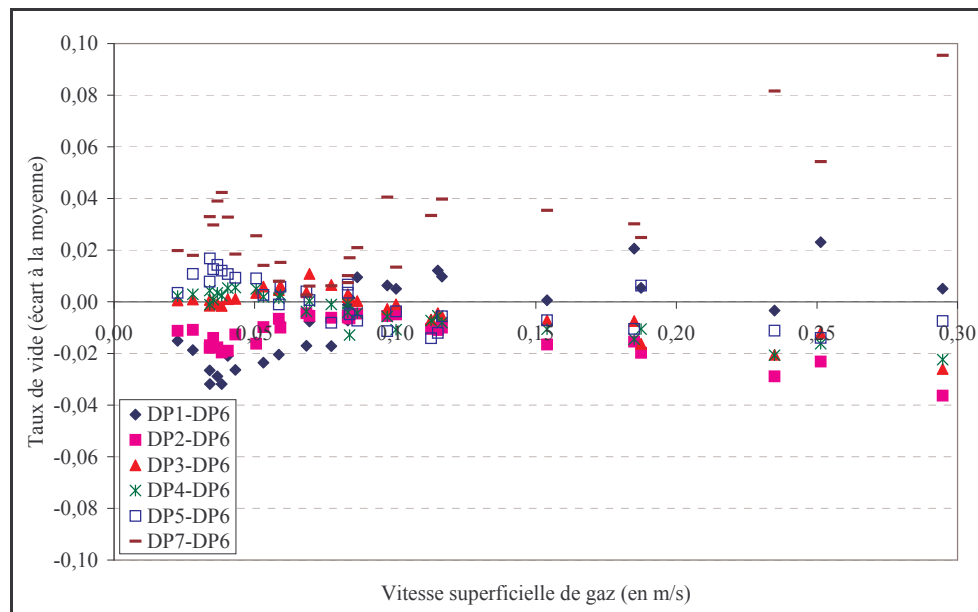


Figure 5 : Evolution axiale du taux de vide relatif (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ )

En bas de colonne, le capteur DP1, placé juste au-dessus du distributeur, a un comportement atypique : pour des vitesses superficielles de gaz inférieures à  $8\text{cm/s}$ , son taux de vide est inférieur à la valeur mesurée plus haut dans la colonne (régime homogène et de transition), tendance qui s'inverse pour  $u_G > 8\text{cm/s}$  (régime hétérogène).

Pour  $u_G > 8\text{cm/s}$ , le capteur DP2 présente des valeurs de taux de vide identiques à celle des capteurs DP3 à DP5 (régime hétérogène) : l'équilibre est atteint à ce niveau. Par contre, à plus faibles vitesses de gaz, le taux de vide est à ce niveau systématiquement inférieur aux valeurs d'équilibre : celui-ci nécessite à ces débits une hauteur plus importante pour s'installer.

Le taux de vide du capteur DP7 (entre 110 et 125cm du fond) est systématiquement supérieur à celui observé sur les autres portions de la colonne. Ce capteur se situe probablement dans la zone de désengagement du gaz, caractérisée par une sorte de mousse (observée visuellement) et un fort taux de vide. Cette zone de désengagement est étonnamment grande : elle s'installe à une distance importante de la surface (50cm !). Dans la zone de transition, ce capteur présente un comportement atypique : il se rapproche de la tendance générale.

Pour préciser la répétabilité moindre observée précédemment dans la zone de transition (cf. §A.I.1), les courbes de taux de vide obtenues aux différentes hauteurs sont dissociées (cf. Figure 6). Il s'avère certes que la répétabilité est moins bonne dans la zone transitoire (4-8cm/s), mais cet effet semble surtout marqué pour les capteurs situés aux extrémités de la colonne (capteurs DP1, DP5 et DP7) (cf. Figure 6a). Ces zones sont donc plus sensibles aux changements minimes du milieu dans la zone instable de la transition : caractère plus ou moins moussant (capteur DP7), désengagement sur une zone plus ou moins grande (capteur DP5) et injection des bulles (capteur DP1).

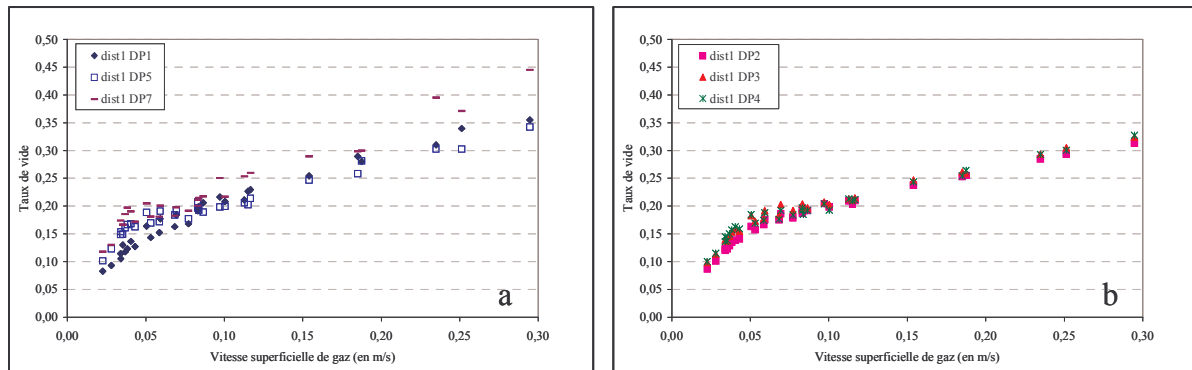


Figure 6 : Evolution du taux de vide pour les différents capteurs (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ )

L'évolution de la vitesse moyenne de gaz, issue du rapport entre la vitesse superficielle du gaz et le taux de vide ( $u_G/\varepsilon_G$ ), confirme les tendances observées en taux de vide (cf. Figure 7) :

- \_ La vitesse du capteur DP1 est supérieure aux autres à faibles vitesses superficielles de gaz (bulles plus rapides ou plus grosses non réparties sur toute la section), mais devient inférieure en régime hétérogène, lorsque le distributeur n'opère plus en régime à bulles (apparition probable d'une population de toutes petites bulles, comme mis en évidence en aquarium, cf. annexe IV.A).
- \_ La vitesse du capteur DP2 est légèrement supérieure aux autres à faibles débits ( $u_G < 8\text{cm/s}$ , homogène) : l'accélération des bulles au distributeur se fait peut-être encore sentir.
- \_ La vitesse dans le compartiment DP7 est nettement inférieure aux autres (sauf dans la zone de transition), ce qui est caractéristique de la zone de désengagement (ralentissement des bulles, formation de mousse).

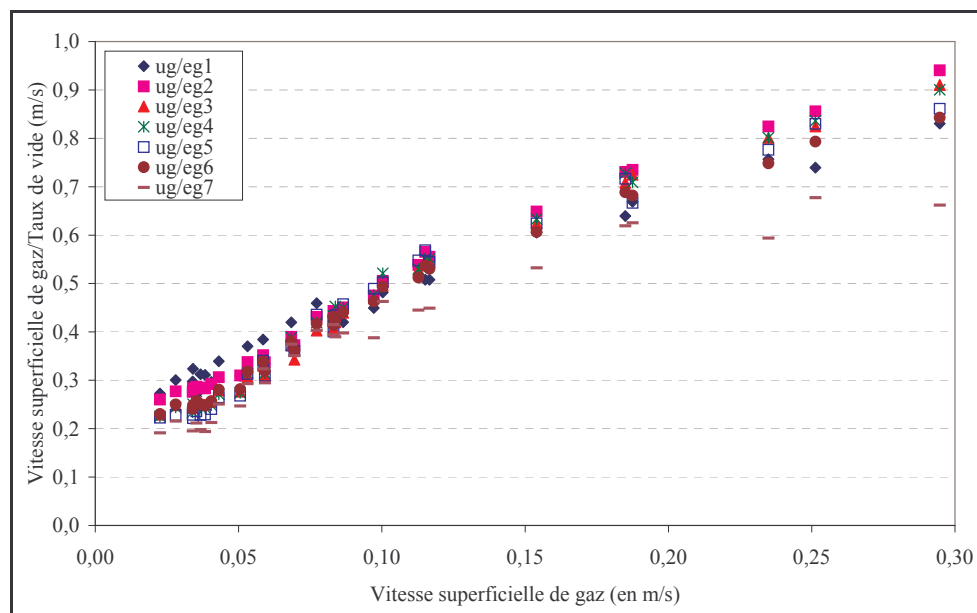


Figure 7 : Evolution axiale des vitesses moyennes de gaz (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ )

Remarque : régimes de bullage

Au vu de ces évolutions de vitesses, également utilisées pour caractériser les régimes hydrodynamiques (cf. annexe IV.B), il semble que, bien que les pentes diffèrent selon les capteurs, les valeurs de vitesses superficielles de gaz de transition ne dépendent pas de la position axiale dans la colonne.

En outre, en régime homogène, la pente de ces courbes est plus élevée pour les capteurs DP1 et DP2 (paramètre  $C_0$  de l'approche en flux de dérive) : les bulles mettent peut-être plus de temps à se répartir sur toute la section.

**Les données du taux de vide global par portion de colonne ont permis de dégager quelques tendances pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) :**

\_ Pour  $u_G > 4\text{cm/s}$ , l'écoulement diphasique est établi dans la colonne à partir de 50cm (plus d'évolution axiale au-dessus). En régime hétérogène, il est même établi dès 30cm.

\_ La zone de désengagement débute assez bas, dès 110cm.

\_ La zone à proximité de l'injecteur n'est pas représentative du reste de l'écoulement. Les bulles rencontrées dans cette zone sont intermédiaires entre les bulles primaires et les bulles à l'équilibre.

\_ La zone entre 50 et 110cm est assez représentative de l'équilibre, lorsqu'il existe, c'est-à-dire lorsque  $u_G > 4\text{cm/s}$ .

\_ Les essais réalisés en régime de transition sont moins répétables et plus sensibles à des différences opératoires minimes.

\_ Les transitions semblent apparaître aux mêmes vitesses aux diverses positions axiales étudiées dans la colonne.

#### A.I.2.b. Distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )

Les courbes représentant l'évolution axiale du taux de vide avec le distributeur 2, percés de trous de 0,5mm, sont beaucoup plus disparates (cf. Figure 8 et Figure 9).

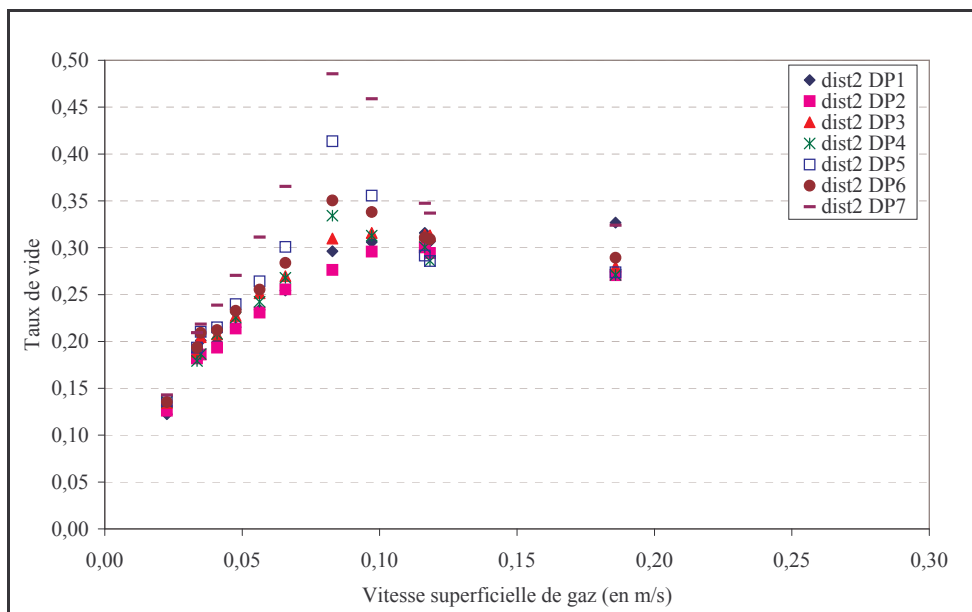


Figure 8 : Evolution axiale du taux de vide (distributeur 2,  $d_0=0,5\text{mm}$ )

Pour  $u_G < 8\text{cm/s}$  et  $u_G > 11\text{cm/s}$ , les courbes DP2 à DP4 sont globalement confondues. Entre 8 et 11cm/s, l'évolution axiale du taux de vide est plus marqué : le taux de vide augmente régulièrement entre DP2 et DP7 (DP2 < DP3 < DP4 < DP5 < DP7) ; aucun équilibre n'est observé. A faible vitesse de gaz, le capteur DP1 présente un taux de vide similaire à celui des capteurs DP2 à DP4 (en régime homogène, les bulles sont a priori identiques dans toute la colonne). Par contre, pour  $u_G > 11\text{cm/s}$ , son taux de vide devient largement supérieur à la moyenne.

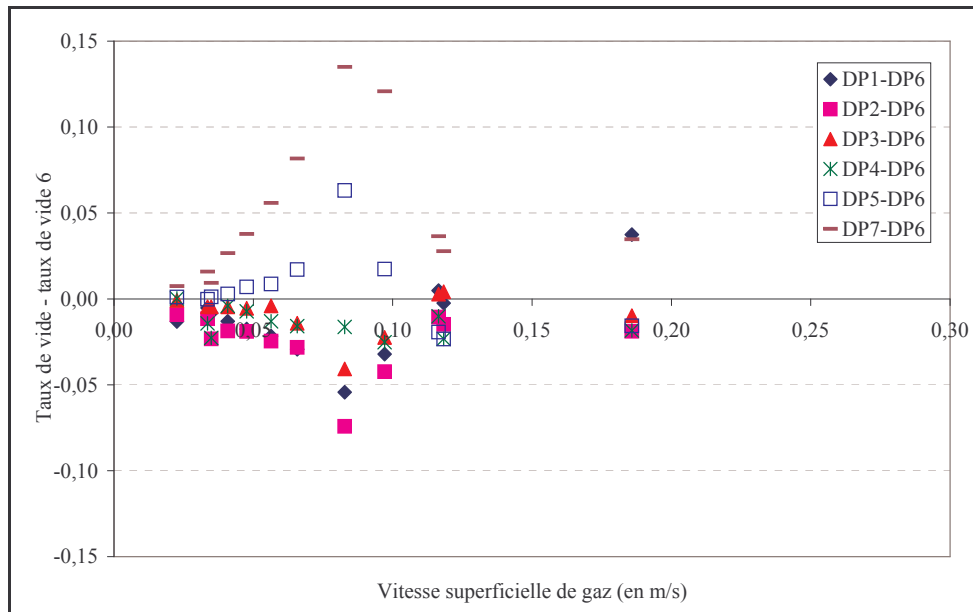


Figure 9 : Evolution axiale du taux de vide relatif (distributeur 2,  $d_0=0,5mm$ )

Le capteur DP7 conduit à des taux de vide supérieurs à la moyenne dès 3cm/s : il se trouve dans la zone de désengagement, où les bulles ralentissent. Entre 4 et 10cm/s, le taux de vide du capteur DP5 est largement supérieur à celui des autres capteurs : à ces débits, ce capteur semble aussi être dans la zone de désengagement, ce qui confère à cette zone une proportion très importante... (La taille de cette zone semble dépendre du taux de vide, maximal dans cette gamme de débits.)

Notons enfin que le capteur DP7 présente un comportement différent de celui observé avec le distributeur 1 ( $d_0=1mm$ ) : son taux de vide s'écarte davantage de celui des autres capteurs dans la zone de transition au lieu de s'en approcher.

Remarque : Régimes de bullage

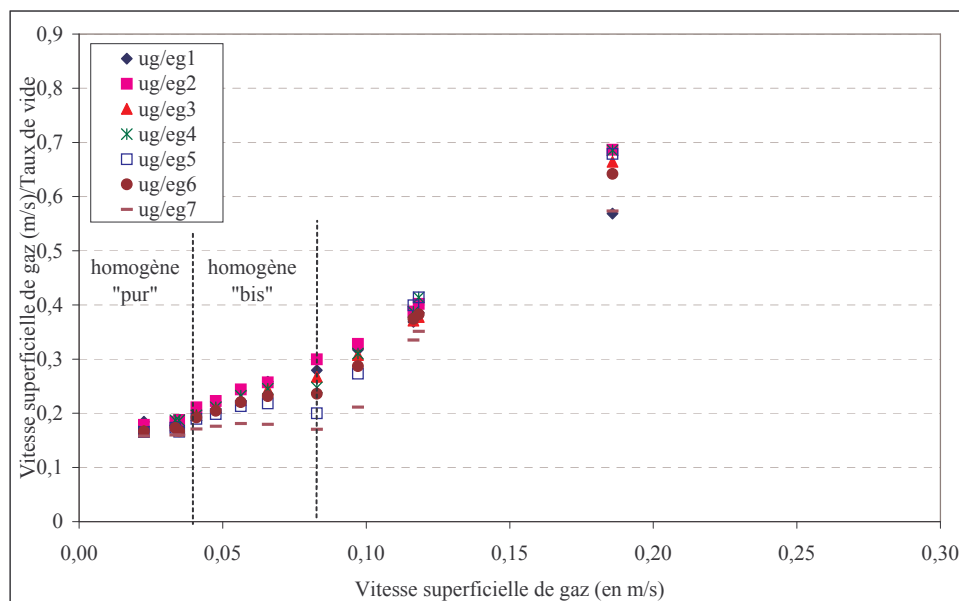


Figure 10 : Evolution axiale des vitesses moyennes de gaz (distributeur 2,  $d_0=0,5mm$ )

Lorsque les courbes de vitesses (cf. Figure 10) sont interprétées en terme de régimes hydrodynamiques (cf. annexe IV.B), les transitions entre régimes sont identifiées pour les mêmes vitesses superficielles de gaz quelle que soit la hauteur (capteur DP7 exclu) ; il n'y a a priori pas une transition progressive du bas vers le haut de la colonne ou inversement, comme parfois énoncé dans la littérature.

Dans la partie homogène « pur » ( $u_G < 4 \text{ cm/s}$ ) toutes les vitesses sont rigoureusement identiques (quel que soit niveau et la vitesse superficielle), ce qui valide l'uniformité de la répartition des bulles dans ce régime et le fait qu'elles n'interagissent pas entre elles.

***Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), les tendances sont les suivantes :***

***– Entre 8 et 11cm/s (début du régime de transition), le taux de vide augmente continuellement entre le bas et le haut de la colonne. En dehors de cette plage de vitesses, l'écoulement est installé dès 30cm (du fond de la colonne).***

***– Le capteur DP1 n'est représentatif du reste de la colonne qu'en régime homogène. En régime hétérogène, son taux de vide devient supérieur à la moyenne.***

***– La zone de désengagement est très grande pour  $u_G$  compris entre 4 et 10cm/s.***

***– Les transitions semblent apparaître aux mêmes vitesses quelle que soit la position axiale étudiée dans la colonne.***

## **A.II. VALEURS LOCALES DE TAUX DE VIDE ET DE FREQUENCE DE BULLAGE, CRITERES DERIVES**

Les informations globales sont complétées par l'étude de données locales (obtenues par sonde optique), en commençant par les plus simples : le taux de vide et la fréquence de bullage. Outre les informations découlant directement de ces grandeurs, d'autres analyses peuvent être établies à partir de ces données de base (comparaison des 2 fibres, rapport  $\epsilon_G/f_B$ ). Ces analyses complémentaires permettent d'une part d'évaluer la validité des résultats obtenus par sonde optique, et d'autre part d'apporter des informations complémentaires sur l'écoulement.

### **A.II.1. Comparaison des taux de vide globaux et locaux**

La validité des valeurs de taux de vide local est évaluée en comparant le taux de vide moyen, issu de l'intégration des taux de vide locaux sur une section de la colonne, au taux de vide de référence, fourni par le capteur de pression différentielle du compartiment où se trouve la sonde optique (DP1 pour le niveau 1, DP3 pour le niveau 2, DP5 pour le niveau 3) ; ces deux valeurs doivent être similaires si le taux de vide de la section étudiée avec la sonde est assimilable au taux de vide moyen sur l'ensemble du compartiment mesuré avec le capteur de pression. Cette hypothèse étant peu réaliste au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ), situé juste au-dessus du distributeur (évolution axiale importante dans cette zone), seuls les résultats des niveaux 2 et 3 ( $h=65$  et  $115\text{cm}$ ) sont reportés sur la Figure 11.

Avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), à une vitesse superficielle de gaz donnée, les valeurs de taux de vide moyen intégrées sont identiques pour les niveaux 2 et 3, ce qui est en accord avec les observations globales constatant l'équivalence des compartiments associés (DP3 et DP5) (cf. Figure 11a). Par contre, le taux de vide intégré est systématiquement sous-estimé (de 0 à 25% pour  $u_G \leq 12 \text{ cm/s}$ ). Cet écart, croissant avec la vitesse superficielle de gaz, atteint 35% à  $u_G=25\text{cm/s}$ . La même tendance est observée avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) (cf. Figure



11b) : la sonde optique sous-estime le taux de vide dans les mêmes proportions pour les deux distributeurs (entre 7 et 25%).

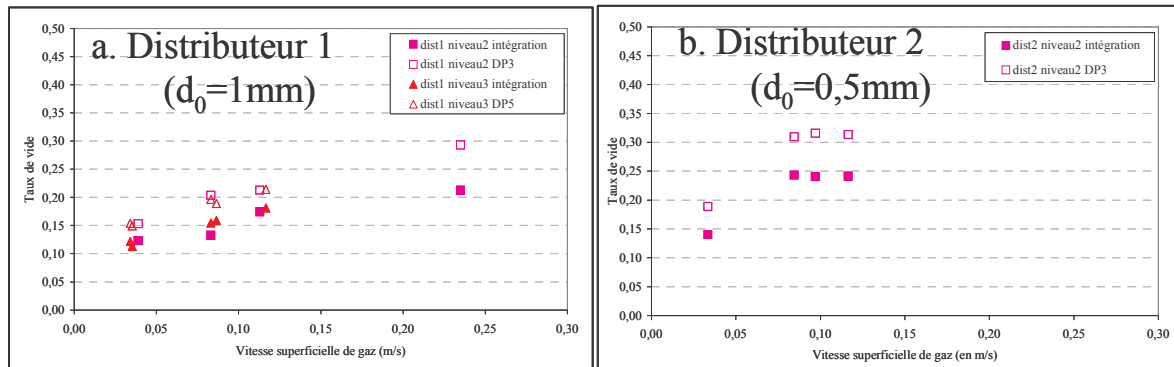


Figure 11 : Comparaison des données de taux de vide global et local intégrées sur une section de colonne

Trois explications sont apportées à cette sous-estimation. La première, et la moindre, est le caractère intrusif des sondes qui cause l'accélération et la déviation des bulles. Les deux raisons essentielles sont l'orientation de la sonde (la sonde ne pique correctement que les bulles ascendantes) et la mauvaise prise en compte par la sonde des petites bulles. Comme la proportion de bulles descendantes augmente avec  $u_G$ , il est cohérent que l'incertitude des mesures locales augmente avec  $u_G$ . Néanmoins, puisque les bulles descendantes sont principalement vers la paroi, les valeurs centrales demeurent probablement assez précises.

### A.II.2. Profils de taux de vide et de fréquence de bullage

Les profils de taux de vide et de fréquence de bulles obtenus avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) sont regroupés sur la Figure 12 pour différentes vitesses de gaz aux trois niveaux. Pour ces profils, au moins trois vitesses superficielles de gaz sont explorées ( $u_G \approx 3, 8$  et  $11\text{cm/s}$ ). Pour chacune d'elles, une mesure est réalisée tous les  $2\text{cm}$ , sauf pour la vitesse intermédiaire ( $u_G \approx 8\text{cm/s}$ ), où les points ne sont espacés que de  $1\text{cm}$ .

Les différents profils tracés dans ce paragraphe permettent de vérifier la bonne reproductibilité des mesures, certains points ayant été doublés voire triplés et certains profils ayant même été réitérés sur des qualités d'eau différentes (cf. Figure 12, niveau 3).

#### Symétrie

Ces graphiques sont analysés en premier lieu en terme de symétrie : les profils obtenus sont symétriques aux niveaux 2 et 3 ( $h=65$  et  $115\text{cm}$ ), quels que soit le distributeur et la vitesse de gaz, et ce tant en taux de vide qu'en fréquence de bullage. Au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ), en revanche, les profils sont moins symétriques : il y a parfois un peu plus de gaz dans la partie gauche du profil.

Cette dissymétrie ne peut, sans débit liquide, être expliquée que par une dissymétrie, même minime, de la distribution du gaz.

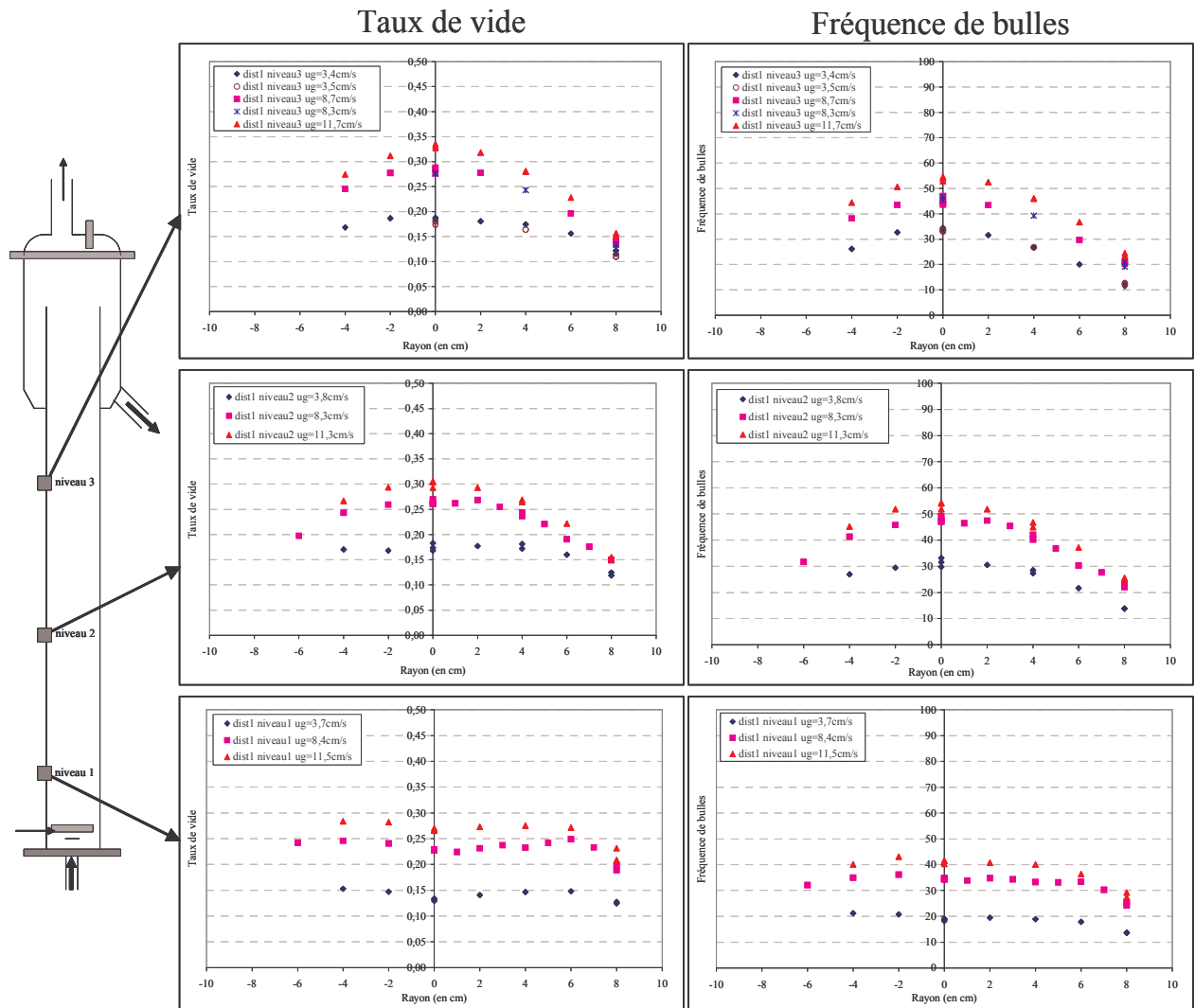


Figure 12 : Evolutions axiales et radiales du taux de vide et de la fréquence de bullage pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )

### Niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ )

Pour les deux distributeurs, les profils de taux de vide et de fréquence de bulles changent considérablement entre 3,5 et 8,3cm/s (cf. Figure 13) : le taux de vide et la fréquence augmentent fortement et la dissymétrie des profils s'accroît (surtout en fréquence de bullage). Au-delà de 8,3cm/s, l'augmentation de  $u_G$  n'a presque plus d'effet.

La forte évolution des profils observée entre  $u_G=3,5$  et  $u_G=8,3\text{cm/s}$  peut être due à un changement du régime d'éjection pour ces deux distributeurs (fin du régime à bulles prévisible pour  $Re_0 \approx 1000$ , c'est-à-dire pour  $u_G \approx 4\text{cm/s}$  pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et pour  $u_G \approx 8\text{cm/s}$  pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )).

Lorsque ces deux distributeurs sont confrontés (cf. Figure 13), il est indéniable que le taux de vide, et surtout la fréquence de bulles, sont largement supérieurs avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) et ce quelle que soit la vitesse du gaz, probablement du fait de la formation de bulles plus petites, et donc plus lentes, avec le distributeur à petits orifices (distributeur 2).

Entre les deux distributeurs, les profils de taux de vide sont simplement traduits, sans que l'allure du profil ne soit profondément modifiée : le gaz est assez bien réparti sur toute la section, voire un peu moins présent sur l'axe, plus éloigné des tores d'injection ( $r_{\text{tore}}=5$  et  $7,5\text{cm}$ ). Par contre, la forme des profils de fréquences de bulles diffère largement entre les

deux distributeurs (pour  $u_G > 8 \text{ cm/s}$ ) : les profils restent plus symétriques pour le premier ( $d_0 = 1 \text{ mm}$ ) que pour le second ( $d_0 = 0,5 \text{ mm}$ ) à fortes vitesses.

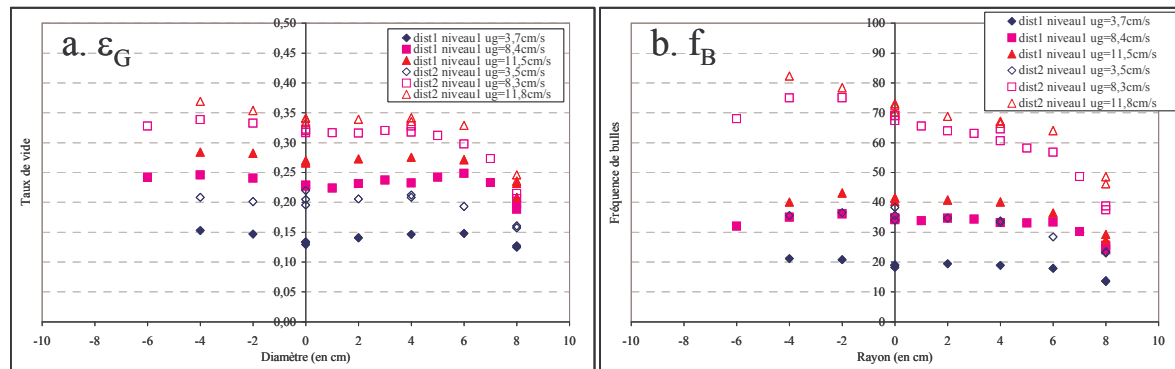


Figure 13 : Effet du distributeur sur les profils au niveau 1 ( $h=25 \text{ cm}$ )

Niveau 2 ( $h=65 \text{ cm}$ )

A faibles vitesses de gaz ( $u_G = 3,5 \text{ cm/s}$ ), le profil de taux de vide est relativement plat pour les deux distributeurs (cf. Figure 14a) : ils opèrent tout deux en régime homogène. Les profils de fréquences de bulles sont cependant déjà bombés à cette vitesse (cf. Figure 14b). Bien que les écarts entre le centre et la paroi demeurent modérés, le fait qu'il y ait, pour un même taux de vide, plus ou moins de bulles infirme l'hypothèse d'une taille de bulle uniforme (déjà mise à mal par les bulles générées au distributeur en aquarium, cf. annexe IV.A) : le régime homogène est une vue de l'esprit (ou une vision globale). A cette vitesse ( $u_G = 3,5 \text{ cm/s}$ ), les valeurs de taux de vide et de fréquences de bulles obtenues avec le distributeur 2 ( $d_0 = 0,5 \text{ mm}$ ) sont, comme le taux de vide global, légèrement supérieures à celles du distributeur 1 ( $d_0 = 1 \text{ mm}$ ).

A plus fortes vitesses de gaz (entre 4 et  $12 \text{ cm/s}$ ), pour les deux distributeurs, les profils de taux de vide et de fréquence de bullage sont plus bombés ; ils évoluent peu en forme et en valeurs entre 8 et  $12 \text{ cm/s}$  (comme le taux de vide global) (cf. Figure 14). Les taux de vide et les fréquences de bullage sont largement supérieurs avec le distributeur 2 ( $d_0 = 0,5 \text{ mm}$ ), car les deux distributeurs opèrent pour ces débits dans des régimes hydrodynamiques différents (régime hétérogène pour le distributeur 1 et régime de transition pour le distributeur 2).

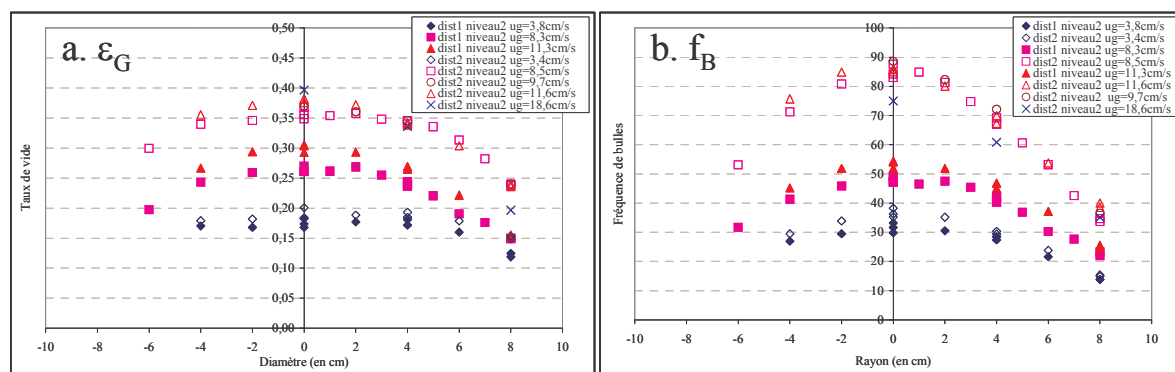


Figure 14 : Effet du distributeur sur les profils au niveau 2 ( $h=65 \text{ cm}$ )

Les profils normés (par la valeur centrale) associés sont tracés sur la Figure 15. Les profils normés de fréquences de bulles sont identiques quels que soient la vitesse de gaz et le distributeur (cf. Figure 15b). Par contre, les profils normés de taux de vide diffèrent selon les conditions.

A faibles vitesses de gaz ( $u_G=3,5\text{cm/s}$ ), le profil normé est plus bombé avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ).

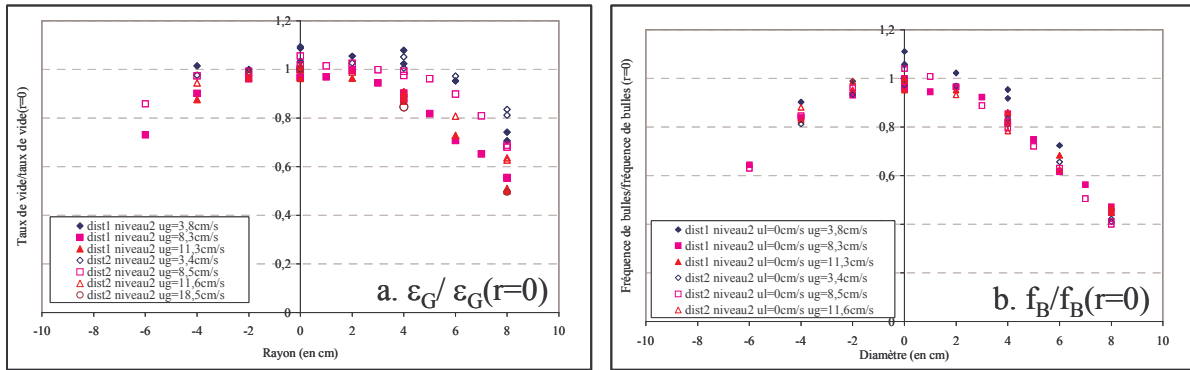


Figure 15 : Profils normés par la valeur centrale pour les deux distributeurs au niveau 2

A plus fortes vitesses de gaz, les profils normés obtenus avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) sont confondus, alors que, pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), leur forme se bombe progressivement entre 8,3 et 11,6cm/s ; ces profils tendent toutefois, à très fortes vitesses ( $u_G=18,5\text{cm/s}$ ), vers le profil obtenu avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ). Il semble donc qu'en régime hétérogène (distributeur 1 et distributeur 2 à  $u_G=18,5\text{cm/s}$ ), la forme des profils de taux de vide n'évolue plus avec la vitesse de gaz alors qu'en régime de transition (distributeur 2 entre 4 et 16cm/s), les profils se bombent progressivement pour passer du profil du régime homogène à celui du régime hétérogène.

Il découle de ces observations que, si le profil normé de fréquences de bulles n'évolue pas, les modifications des profils de taux de vide sont liées à des changements de tailles de bulles. L'invariance de ces deux profils en régime hétérogène signifie donc que la distribution de tailles de bulles n'évolue plus avec la vitesse de gaz (équilibre coalescence-rupture atteint).

### Evolution axiale

La Figure 16 représente l'évolution axiale du taux de vide dans la colonne pour les deux distributeurs. Les profils sont assez plats au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ) (assez bonne répartition radiale des bulles) et se bombent au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) : les bulles migrent au centre. Le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) à faible débit ( $u_G=3,5\text{cm/s}$ ) fait exception : son profil de taux de vide est quasiment inchangé entre les niveaux 1 et 2, ce qui correspond à l'évolution axiale en régime homogène décrite dans la littérature.

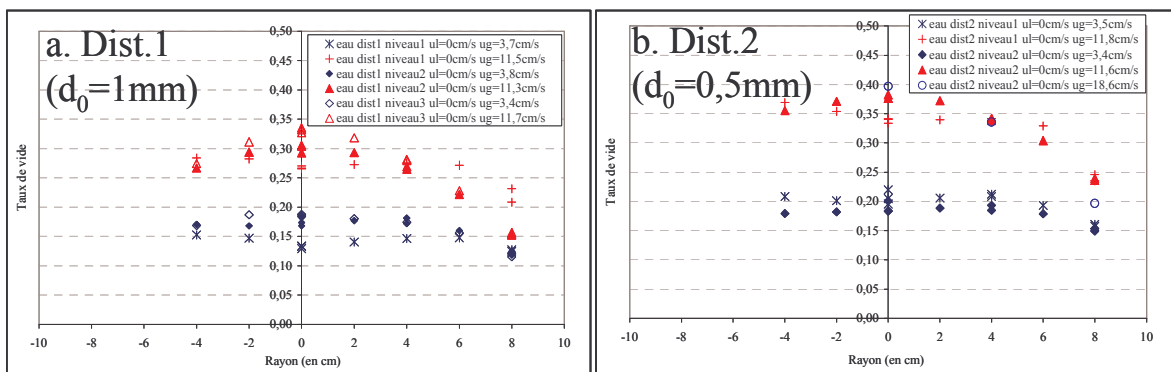


Figure 16 : Evolution des profils de taux de vide entre les niveaux

La bonne répartition initiale du gaz (niveau 1,  $h=25\text{cm}$ ) peut être rattachée à l'utilisation de distributeurs toriques de diamètres importants ( $r_{\text{tore}}=5$  et  $7,5\text{cm}$ ), qui favorisent une répartition uniforme des bulles en contre-balançant la migration vers l'axe.

L'analyse des évolutions entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) a été menée avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) (cf. Figure 17) : quelle que soit la vitesse de gaz, les profils de taux de vide et de fréquences de bulles des niveaux 2 et 3 sont proches ; l'équilibre est a priori atteint.

Cette comparaison a peu d'intérêt avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), car dans ce cas le niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) n'est pas représentatif ; il se situe parfois dans la zone de désengagement, conformément aux indications du capteur DP5 (cf. Figure 8) : des taux de vide de 50 à 70% peuvent être observés pour  $u_G=8\text{cm/s}$ .

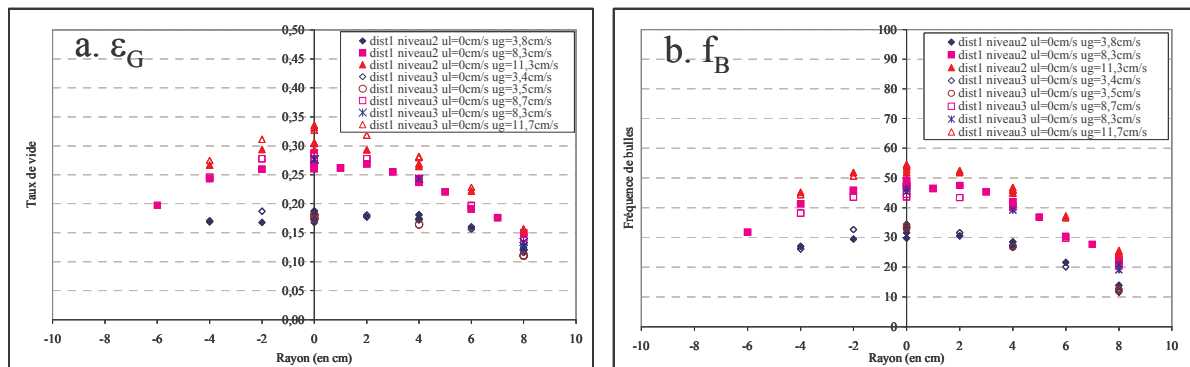


Figure 17 : Comparaison des profils obtenus avec le distributeur 1 pour les niveaux 2 et 3 ( $h=65$  et  $115\text{cm}$ )

*Pour résumer, quelle que soit la vitesse de gaz, les bulles formées (niveau 1,  $h=25\text{cm}$ ) dépendent fortement du distributeur utilisé. Elles sont assez uniformément réparties et migrent en montant vers le centre jusqu'à atteindre une répartition d'équilibre. Celle-ci est a priori atteinte au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) et a fortiori au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ).*

*La forme des profils de fréquences de bullage à l'équilibre est inchangée quelles que soient les conditions opératoires, alors que la forme des profils de taux de vide n'est invariante qu'en régime hétérogène ; les données du taux de vide et de la fréquence de bullage sont complémentaires.*

### A.II.3. Evolution des valeurs centrales avec la vitesse superficielle de gaz

Dans le paragraphe précédent, les profils n'ont été étudiés que pour quelques vitesses de gaz. Pour étendre ces tendances à d'autres vitesses, on peut observer l'évolution des valeurs sur l'axe, a priori le moins entachées d'erreur. La mesure de ces valeurs est d'autant plus intéressante qu'elle permet à elle seule, au vu de l'invariance des profils précédemment établie, de déduire, au niveau étudié, l'ensemble des profils de fréquences de bullage et les profils de taux de vide en régime hétérogène.

#### A.II.3.a. Courbes en taux de vide local

La Figure 18 représente l'évolution du taux de vide local au centre de la colonne (a priori le plus fiable) en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et

$h=115\text{cm}$ ) et pour les deux distributeurs. A titre indicatif, les taux de vide moyennés issus des capteurs de pression sont rappelés. Comme dans le paragraphe précédent, avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), la courbe représentative du niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) n'est pas représentée, car à ce niveau la sonde est parfois dans la zone de désengagemet.

L'allure générale de la courbe obtenue est assez similaire à la courbe globale de taux de vide, mais il est peu réaliste d'en déduire les valeurs de vitesses superficielles de transition entre régimes, car la notion de régimes est globale et nécessite la connaissance du contenu gazeux de toute une section.

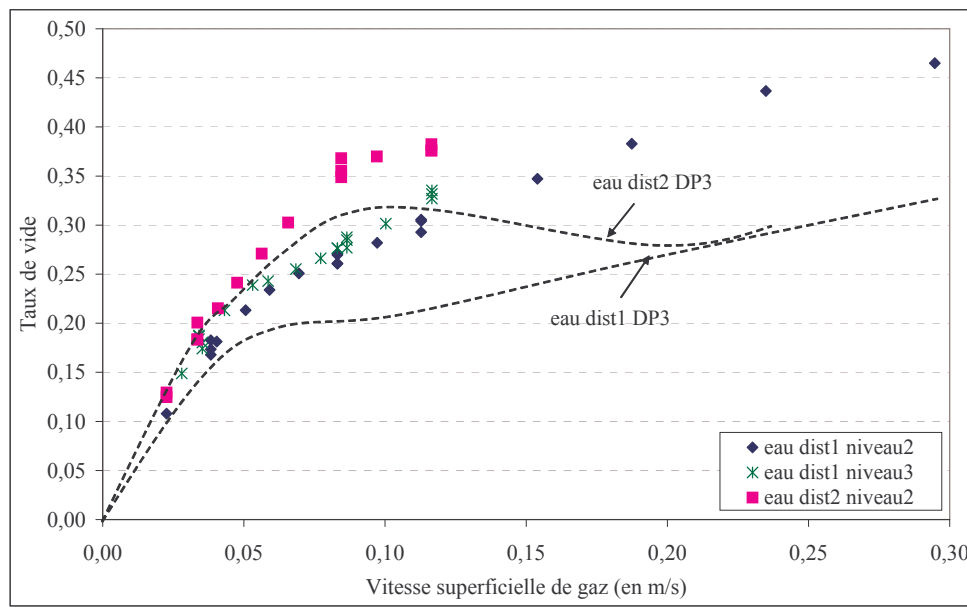


Figure 18 : Evolution du taux de vide local au centre de la colonne en fonction de la vitesse superficielle du gaz ; comparaison au taux de vide global (capteurs de pression)

Effet du distributeur

Sur la Figure 18, l'effet du distributeur est similaire à celui observé en global.

Effet du niveau

Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), dans la zone de transition ( $u_G=4-8\text{cm/s}$ ), le taux de vide au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) est très légèrement supérieur à celui mesuré au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) (cf. Figure 18) : l'état d'équilibre se met progressivement en place et n'est pas encore établi au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ).

Dans le reste de la gamme de vitesses, les écarts entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) sont négligeables : un équilibre représentatif de la colonne est atteint au niveau 2 en régimes homogène et hétérogène. Le léger écart résiduel systématique entre les niveaux 2 et 3 (taux de vide au niveau 3 très légèrement supérieur) peut être dû aux effets de pressions entre ces deux niveaux ou à un profil légèrement plus bombé au niveau 3 (observable pour  $u_G=11,7\text{cm/s}$  sur la Figure 17).

Comparaison des valeurs locales au centre et des valeurs globales

La comparaison entre les courbes de taux de vide global et local sur l'axe permet d'intuiter l'allure des profils sur toute la gamme de vitesse de gaz : plus l'écart entre les courbes locales et globales augmente, plus le profil est bombé (ce que confirme les valeurs associées aux profils du paragraphe précédent). Il est à noter que les valeurs locales et globales peuvent être comparées avec une bonne précision, malgré l'erreur systématique mise en évidence sur les valeurs locales, car les valeurs centrales sont considérées comme les plus fiables.

Pour les deux distributeurs, à faibles vitesses de gaz, les courbes locales et globales sont voisines, c'est-à-dire que la valeur au centre est égale à la valeur moyenne (profil assez plat) : la colonne opère en régime homogène.

Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les deux courbes s'éloignent dès  $u_G=2,5\text{cm/s}$ , alors que la fin du régime homogène n'est estimée qu'à  $4\text{cm/s}$  ; des profils légèrement bombés sont donc déjà observés en régime homogène (en accord avec les profils précédents). Cette tendance est observée, pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), aux alentours de  $4\text{cm/s}$  (fin de régime homogène « pur »).

Lorsque le régime de transition s'amorce ( $u_G=4\text{cm/s}$  pour le distributeur 1,  $u_G=7-8\text{cm/s}$  pour le distributeur 2), la valeur locale devient largement supérieure à la valeur globale : le profil est plus bombé.

*Cette analyse, validée par les quelques profils précédents, montre la faible évolution axiale du taux de vide. Elle permet de retrouver la distinction entre les régimes et de préciser la courbure croissante des profils dans chacun d'eux. L'allure de ces profils ne peut pas être prédite à partir de la seule connaissance du régime hydrodynamique dans lequel il a été établi.*

### A.II.3.b. Courbes en fréquence de bullage

L'évolution de la fréquence de bullage sur l'axe, présentée sur la Figure 19, complète les données précédentes.

Il apparaît sur cette courbe que la fréquence de bullage augmente fortement et quasi-linéairement en régime homogène pour les deux distributeurs. Cette augmentation est beaucoup plus faible en régime hétérogène, a priori car les bulles sont plus grosses. En régime transitoire, le comportement de la fréquence de bullage dépend du distributeur : elle diminue avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) alors qu'elle augmente avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ). Dans ce régime, la part respective de l'augmentation du diamètre de bulles, de l'augmentation des vitesses de bulles et d'un profil plus bombé dépend a priori du distributeur. L'influence du distributeur est plus marquée sur la fréquence de bullage que sur le taux de vide.

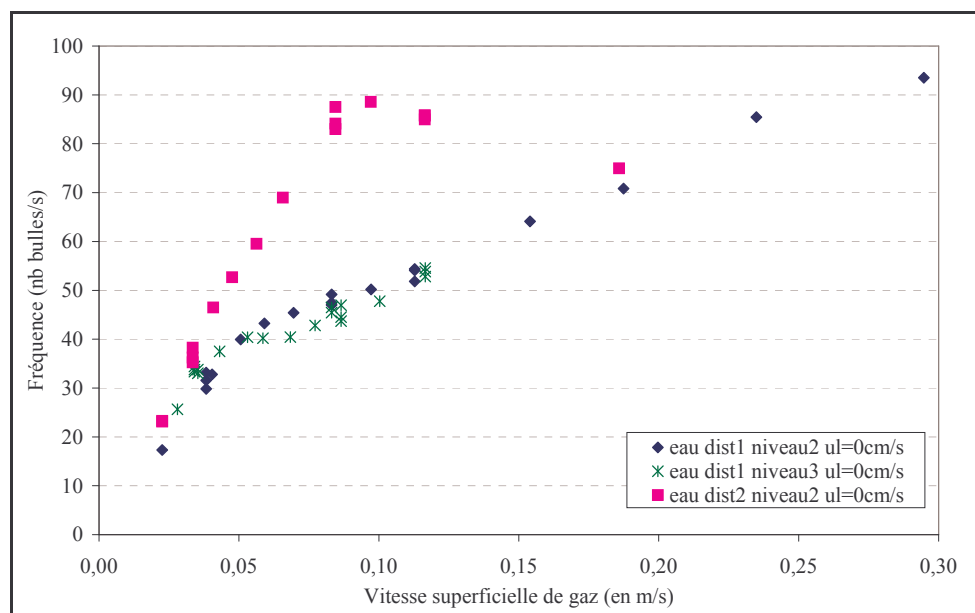


Figure 19 : Evolution de la fréquence locale de bullage au centre de la colonne en fonction de la vitesse superficielle du gaz

Les évolutions axiales de la fréquence de bullage sur l'axe entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) sont établies pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) :

- \_ En régime homogène ( $u_G=0-4\text{cm/s}$ ), la fréquence de bulles est légèrement supérieure au niveau 3,
- \_ En régime de transition ( $u_G=4-8\text{cm/s}$ ), la fréquence de bulles est légèrement inférieure au niveau 3,
- \_ En régime hétérogène ( $u_G>8\text{cm/s}$ ), les fréquence de bullage sont similaires aux deux niveaux.

Lorsque ces tendances sont comparées à celles en taux de vide, des évolutions de tailles et de vitesses peuvent être pressenties. Le rapport entre ces deux grandeurs est donc envisagé.

### A.II.3.c. Rapport entre la fréquence de bullage et le taux de vide

Le rapport taux de vide/fréquence de bullage, représentant le temps de séjour moyen d'une bulle sur une fibre optique de la sonde, est préféré à son inverse. Il est proportionnel au rapport entre le diamètre et la vitesse de bulles (cf. analyse effectuée au chapitre III). Son évolution avec la vitesse superficielle de gaz est tracée pour les deux distributeurs sur la Figure 20.

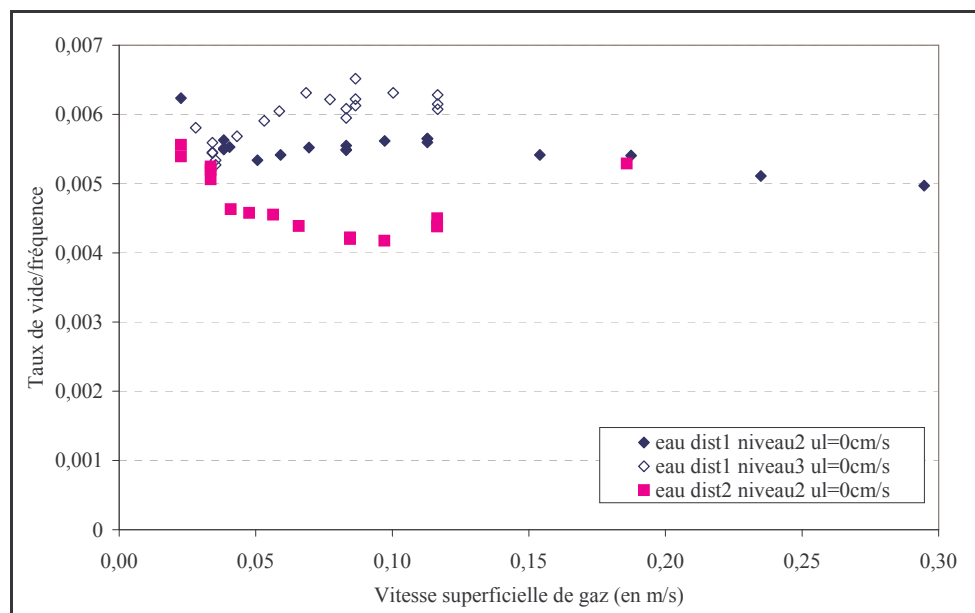


Figure 20 : Evolution du rapport taux de vide/fréquence de bulles en fonction de la vitesse superficielle de gaz

Il apparaît que le sens d'évolution de ce critère en fonction de la vitesse superficielle de gaz est, pour les deux distributeurs, fonction du régime :

- \_ En régime homogène,  $\varepsilon_G/f_B$  diminue,
- \_ En régime de transition,  $\varepsilon_G/f_B$  augmente,
- \_ En régime hétérogène,  $\varepsilon_G/f_B$  diminue légèrement, voire se stabilise.

Les changements de pente de ce critère peuvent alors être interprétés comme des changements de régimes.



En régime homogène, la diminution observée ne peut pas être engendrée par une diminution de diamètre ; l'augmentation de la vitesse est prédominante sur l'augmentation du diamètre. Cette tendance est moins accentuée dans le régime homogène « bis » du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) (pente plus faible), probablement car l'augmentation relative du diamètre est plus grande. En régime de transition, l'augmentation de ce critère signifie que l'augmentation du diamètre est supérieure à celle de la vitesse. Enfin, sa faible évolution en régime hétérogène correspond à l'établissement de l'équilibre coalescence-rupture.

#### Effet du distributeur

Ce critère est inférieur pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) en régime homogène et de transition : les bulles sont a priori plus petites.

#### Effet du niveau (limité au distributeur 1, $d_0=1\text{mm}$ )

Les changements de pente liés aux changements de régimes sont plus marqués au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ).

En régime homogène ( $u_G < 4\text{cm/s}$ ), le rapport  $\varepsilon_G/f_B$  varie axialement, il est légèrement plus faible au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ). Comme dans le même temps le taux de vide global augmente aussi entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) (cf. Figure 4), il y a probablement une diminution de la taille des bulles entre ces deux niveaux.

En régime de transition,  $\varepsilon_G/f_B$  est plus grand au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) ; il y a probablement plus de grosses bulles au centre. L'allure du profil de taux de vide est modifiée mais pas la valeur moyenne (taux de vide global inchangé entre ces deux niveaux).

En régime hétérogène ( $u_G > 8\text{cm/s}$ ), un effet notable et surprenant du niveau est visible. Comme seul le taux de vide varie entre ces deux niveaux, ce peut-être dû à un effet de pression et/ou à un profil légèrement plus bombé (cf. profils de la Figure 17).

*Le critère  $\varepsilon_G/f_B$  permet de différencier assez facilement les régimes de bullage par un changement de pente net. Il met aussi en évidence des tendances intéressantes quant à l'évolution couplée de la vitesse de bulle et du diamètre de Sauter avec la vitesse de gaz, le distributeur et le niveau. Toutefois, il ne permet pas de conclure quant aux évolutions de tailles de bulles : l'utilisation d'une mono-sonde fournit des informations intéressantes, mais elle ne suffit pas.*

### **A.II.4. Comparaison des résultats des deux fibres**

La comparaison des valeurs de taux de vide et de fréquence de bulles entre les deux fibres est utile pour évaluer la fiabilité des paramètres de caractérisation déduits de l'exploitation des deux signaux (vitesses, diamètres de Sauter, aires interfaciales) : plus les valeurs sont proches et plus on peut s'attendre à ce que l'association des crêneaux soit facilitée. Le cas présenté sur la Figure 21 est celui du distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) : les données des deux fibres sont similaires, les écarts moyens étant de 2,0% en taux de vide, comme en fréquence de bullage. Lorsqu'on ne considère que les points en proche paroi ( $r=8\text{cm}$ ), zone où l'écoulement est plus chaotique, les écarts sont peu modifiés : l'écart moyen en taux de vide passe à 6,6%, mais reste à 2,2% en fréquence de bullage. Par conséquent, la sonde perturbe peu l'écoulement.

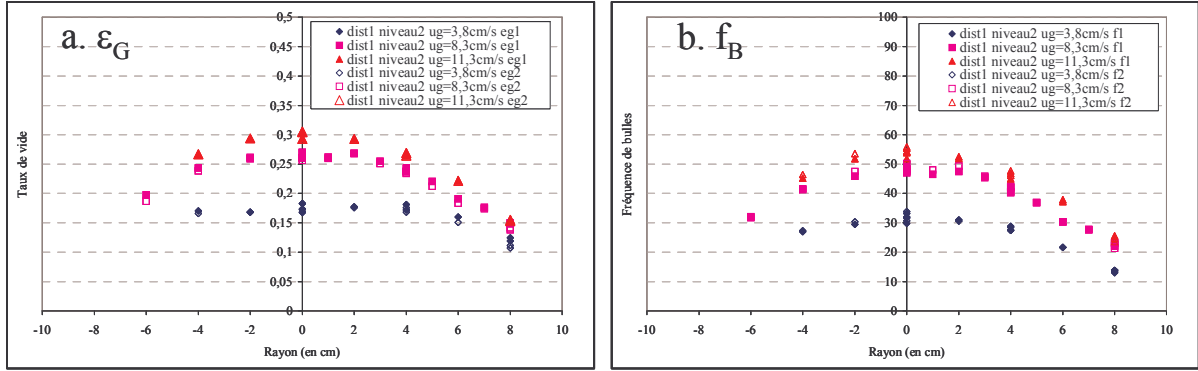


Figure 21 : Comparaison des données entre les deux fibres (distributeur 1,  $d_0=1mm$ , niveau 2,  $h=65cm$ )

Ces tendances sont généralisables aux autres niveaux et au distributeur 2 ( $d_0=0,5mm$ ).

### A.III. VITESSE DE BULLES

Pour obtenir la taille des bulles, paramètre crucial dans cette étude, il faut au préalable calculer la vitesse la plus probable des bulles à partir de l'intercorrélation des signaux des deux fibres. L'aire interfaciale et le diamètre de Sauter sont alors déduits par (cf. chapitre III, §B.III) :

$$a = \frac{4f_B}{v_{moy}} \quad \text{et} \quad d_{SM} = \frac{6\epsilon_G}{a}$$

Afin d'évaluer la cohérence entre la vitesse la plus probable,  $v_{moy}$ , et la vitesse moyenne « réelle », il est possible de comparer la vitesse moyenne sur une section (déduite des vitesses locales de bulles) à la vitesse globale sur une tranche de colonne (rapport entre la vitesse superficielle de gaz  $u_G$  et le taux de vide  $\epsilon_G$ , fournie par les capteurs de pression), ce qui revient à comparer l'intégrale sur une section du produit  $\epsilon_G(r) \cdot v_{moy}(r)$  à la vitesse superficielle de gaz (cf. Figure 22). Comme la mesure de taux de vide est relativement fiable (cf. §A.II.1), les écarts entre les deux grandeurs peuvent être imputés à une mauvaise estimation de la vitesse locale de bulles.

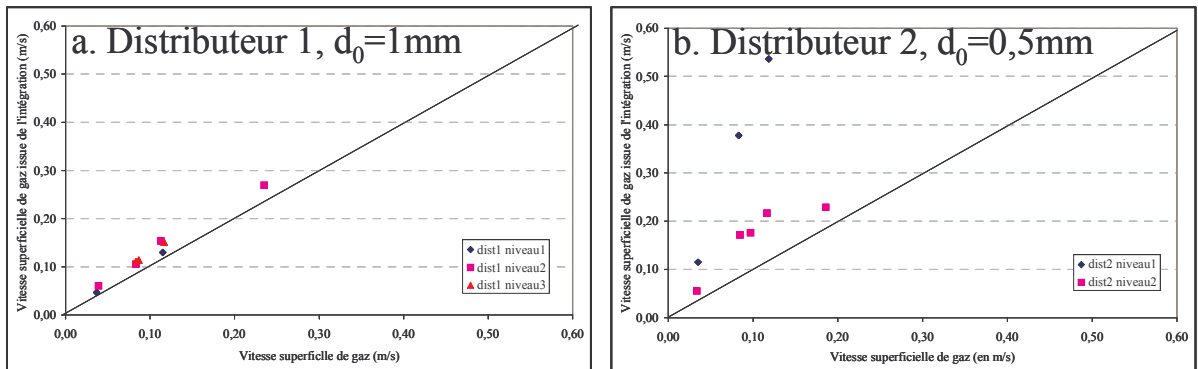


Figure 22 : Comparaison des vitesses superficielles de gaz réelles et issues de l'intégration sur une section des valeurs locales de  $\epsilon_G(r) \cdot v_B(r)$

Conformément à nos attentes (cf. chapitre III, §B.III), la vitesse superficielle calculée par la bi-sonde est systématiquement surestimée, car les bulles descendantes sont mal considérées et que les bulles piquant la sonde de biais causent une surestimation de la vitesse.

Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), cette surestimation évolue peu avec la vitesse superficielle de gaz et le niveau ; elle n'excède pas 40%.

Les résultats issus du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) sont plus surprenants : l'écart maximal entre la vitesse superficielle de gaz mesurée et obtenue par intégration des valeurs de vitesse atteint 350% au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ). Cet écart dépend du niveau : il est beaucoup plus grand au niveau 1 qu'au niveau 2 ( $<100\%$ ), surtout à fortes vitesses de gaz. Il faut préciser qu'aucun des critères pressentis au chapitre III (§.B.III) (proportion de bulles traitées, coefficient de corrélation) ne permet de prévoir cet écart.

Dans ces conditions, cet écart entre les deux distributeurs ne peut être lié qu'à un écoulement différent dans cette zone délicate de la distribution du gaz. Il doit provenir pour l'essentiel des mouvements des bulles, très désordonnés à ce niveau et donc très éloignés de l'ascension verticale supposée pour le calcul. Les données de vitesses ne sont donc pas exploitées à ce niveau, car la vitesse la plus probable n'a pas d'intérêt, dans la mesure où elle ne correspond pas à la vitesse moyenne. Il faut en outre garder à l'esprit que la vitesse la plus probable n'est assimilée à la vitesse moyenne que si toutes les bulles ont la même vitesse axiale, ce qui est impossible à réaliser s'il y a un inversement d'écoulement. Par conséquent, les valeurs de vitesses les plus proches de la vitesse moyenne sont celles établies au centre de la colonne où l'écoulement est principalement ascendant (sauf au niveau 1,  $h=25\text{cm}$ , où la circulation est inconnue).

Comme le calcul de la vitesse la plus probable n'a d'intérêt que comme intermédiaire de calcul pour atteindre l'aire interfaciale et le diamètre de Sauter, il n'est pas développé davantage. Il est à noter que ces critères (aire interfaciale et diamètre) sont moins sensibles que la vitesse, car la majorité des bulles piquées par la sonde, et donc traitées, ont effectivement une vitesse proche de la vitesse la plus probable, aux incertitudes près du traitement en écoulements chaotiques (cf. chapitre III).

## A.IV. AIRE INTERFACIALE ET DIAMETRE DE SAUTER

Il est établi que les valeurs de diamètres et d'aires interfaciales obtenues sur l'axe de la colonne et/ou aux niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) sont plus fiables que les valeurs en paroi et/ou au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ), zones où l'écoulement est très chaotique.

### A.IV.1. Profils

La Figure 23 représente les profils d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ).

#### Niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ )

Au niveau 1, le diamètre de Sauter augmente avec la vitesse superficielle de gaz, surtout entre 3 et 8cm/s (changement de régime d'éjection, fin du régime à bulles pour  $u_G=4\text{cm/s}$ ). Les bulles sont plus petites au centre, ce qui peut être lié au grand diamètre des tores ( $r_{\text{tore}}=5$  et 7,5cm).

Les profils d'aires interfaciales en revanche ressemblent davantage aux profils de taux de vide : il sont légèrement bombés, voire légèrement creusés au centre à faible débit gazeux.

Ces profils ne dépendent toutefois que très peu de la vitesse superficielle de gaz et les valeurs d'aires interfaciales sont faibles ( $<100\text{m}^2/\text{m}^3$ ).

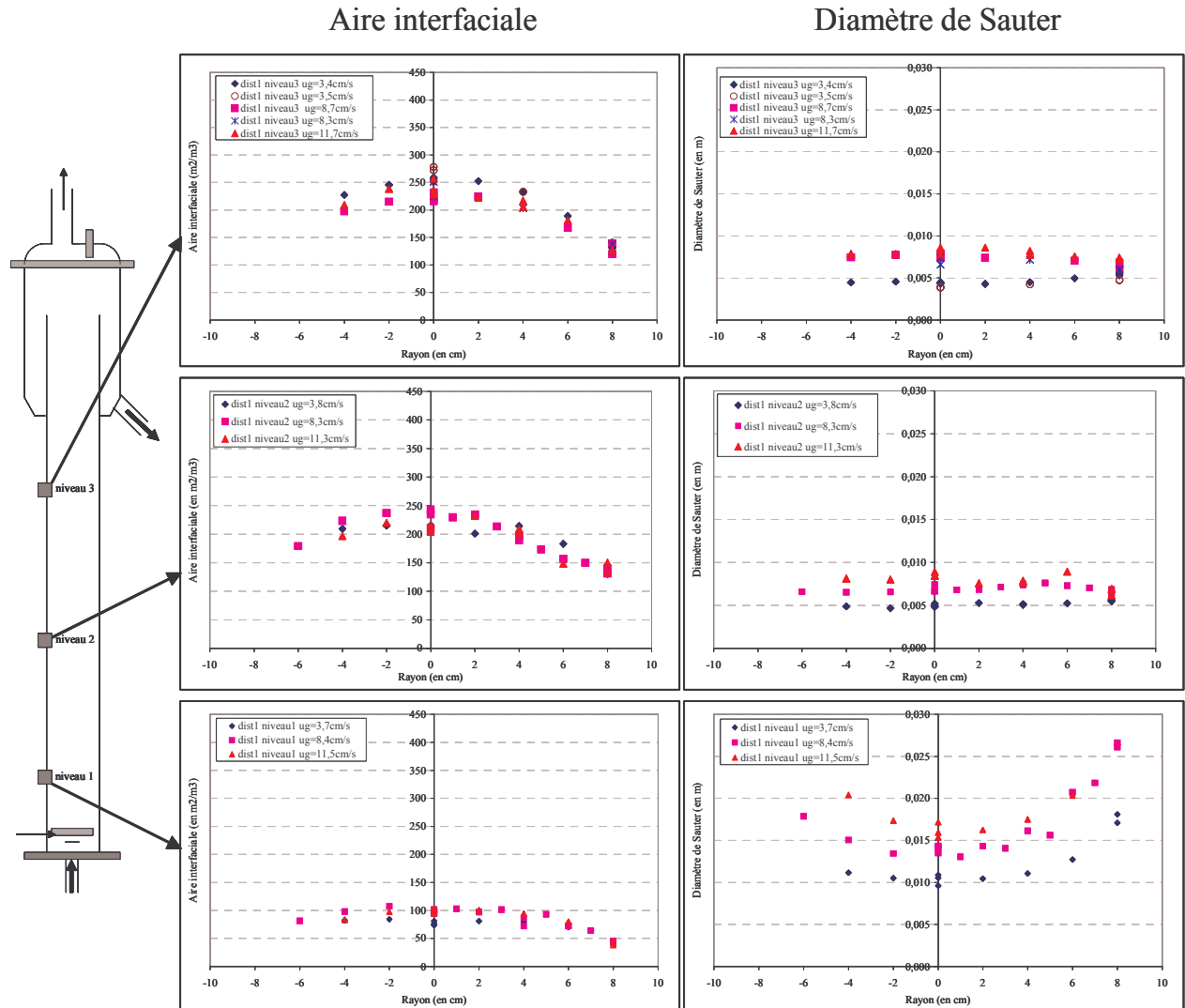


Figure 23 : Evolutions axiales et radiales des profils en aires interfaciales et en diamètres de Sauter

Remarque :

En faisant un parallèle avec les bulles formées en aquarium, on peut penser que les tores forment à la fois de grosses bulles, qui vont tout de suite monter, et des bulles plus petites qui vont peut-être rester plus longtemps en bas et se répartir sur toute la section. Ce type de distribution pourrait même être à l'origine d'une circulation de liquide inversée en bas de colonne (liquide ascendant en paroi et descendant au centre).

#### Niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$ et $h=115\text{cm}$ )

Les profils des niveaux 2 et 3 ( $h=65$  et  $115\text{cm}$ ) sont assez semblables.

Le diamètre de Sauter augmente entre 3 et 8cm/s puis se stabilise à sa valeur d'équilibre (régime hétérogène). Les profils sont assez plats quelle que soit la vitesse superficielle de gaz. Les profils d'aires interfaciales sont bombés et ne montrent pas d'effet net de  $u_G$ . Ces tendances sont similaires dans un régime hydrodynamique donné.

Effet du distributeur

Au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ), l'effet du distributeur est très sensible sur toute la gamme de vitesse de gaz (cf. Figure 24) : le diamètre des bulles formées par le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) reste inférieur à celui issu du distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), ce qui conduit à des aires interfaciales plus faibles pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ).

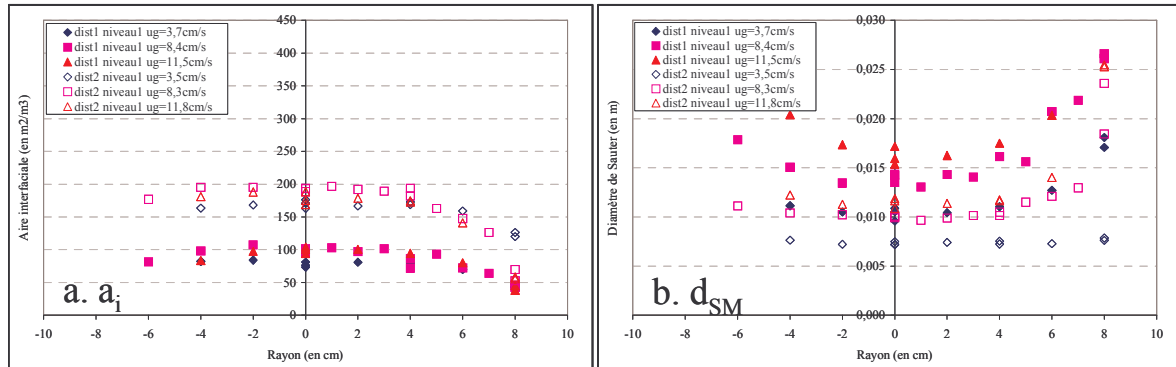


Figure 24 : Profils pour les deux distributeurs au niveau 1

Au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ), comme le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) n'opère pas en régime hétérogène dans la gamme de débits étudiés ici, les diamètres de Sauter issus de ce distributeur sont toujours inférieurs à ceux obtenus avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ). Ces différences sont plus marquées en aire interfaciale (cf. Figure 25a), car elle fait intervenir conjointement le taux de vide et le diamètre de Sauter. Il en découle que les profils en aires interfaciales sont plus bombés que ceux en diamètres, relativement plats quels que soient le distributeur et la vitesse du gaz (cf. Figure 25b), car il y a moins de bulles en paroi.

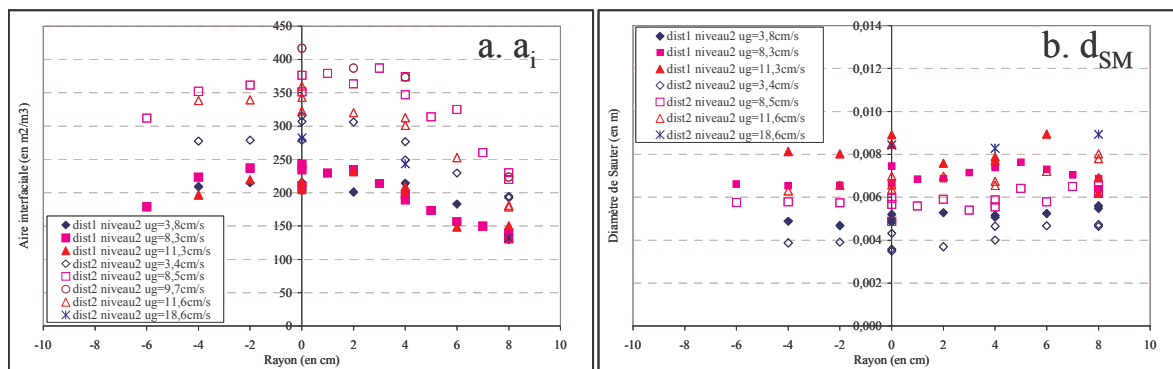


Figure 25 : Profils pour les deux distributeurs au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ )

Evolution axiale

Pour les deux distributeurs, il y a systématiquement une diminution de la taille moyenne de bulles entre les niveaux 1 et 2 ( $h=25\text{cm}$  et  $h=65\text{cm}$ ) (cf. Figure 26 et Figure 27). Cette diminution est probablement liée à la formation au distributeur de très grosses bulles instables, attendues aux vitesses d'éjection utilisées (cf. annexe IV.A). Ainsi, comme en aquarium (cf. annexe IV.A), il y a un resserrement de la distribution lors de l'ascension des bulles.

Par contre, l'évolution des tailles de bulles entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) est négligeable, si ce n'est une légère diminution à faible vitesse, déjà pressentie au vu de l'évolution des vitesses globales.

Dans toute cette discussion il faut garder à l'esprit que les données obtenues sont des diamètres de Sauter et non des distributions de tailles de bulles, et que seules les bulles ascendantes sont détectées.

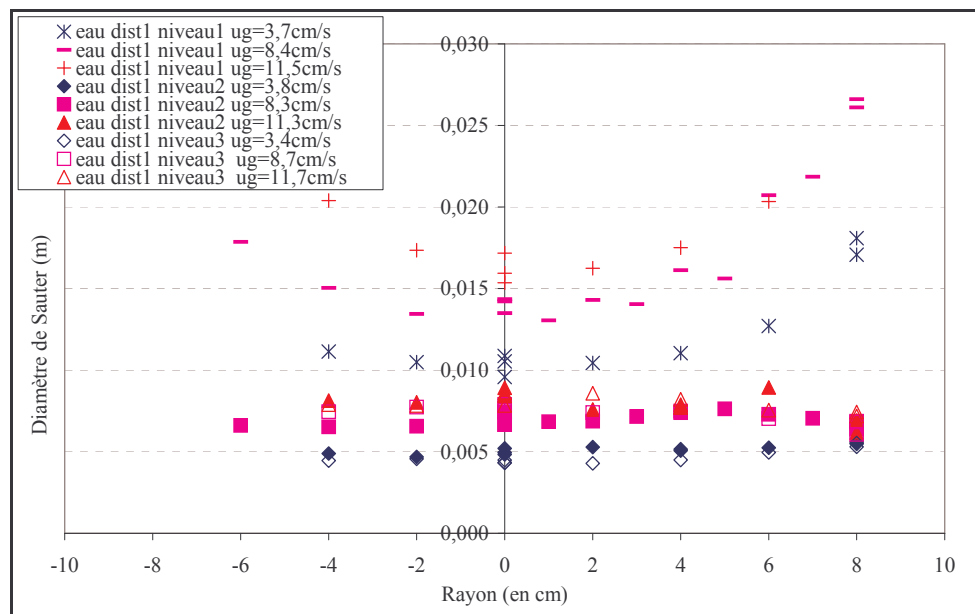


Figure 26 : Evolution axiale du diamètre de Sauter pour le distributeur 1 ( $d_0=1mm$ )

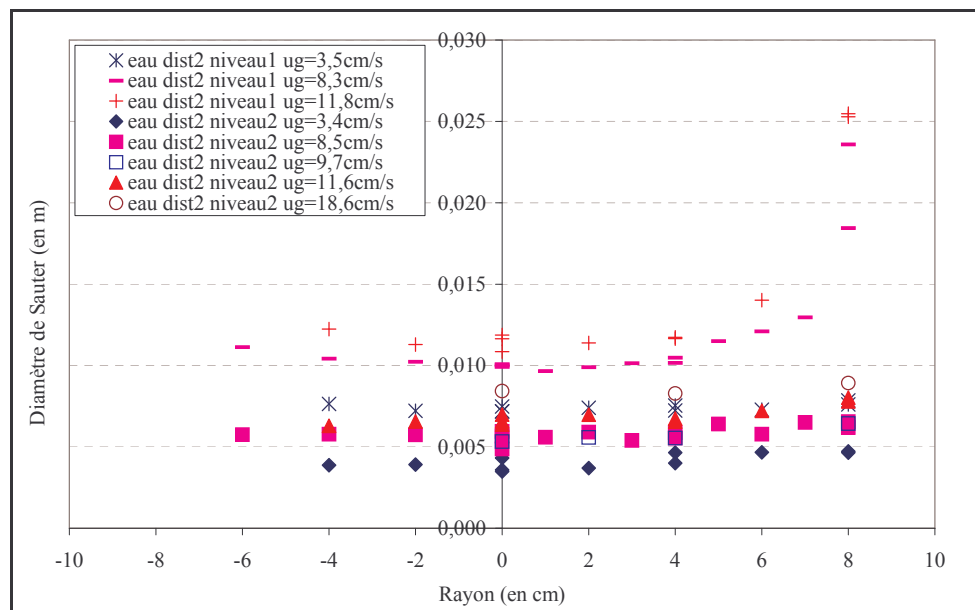


Figure 27 : Evolution axiale du diamètre de Sauter pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5mm$ )

#### A.IV.2. Valeurs sur l'axe

Les allures des profils de diamètres de Sauter et d'aires interfaciales étant similaires quelles que soient les conditions, la comparaison des valeurs centrales, plus fiables et les plus nombreuses, est permise. Les observations précédentes sont alors étendues à toute la gamme de vitesses superficielles de gaz ; la Figure 28 regroupe les courbes d'évolutions des valeurs

sur l'axe des diamètres de Sauter et des aires interfaciales aux niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) (seuls niveaux intéressants pour l'industriel) pour les deux distributeurs.

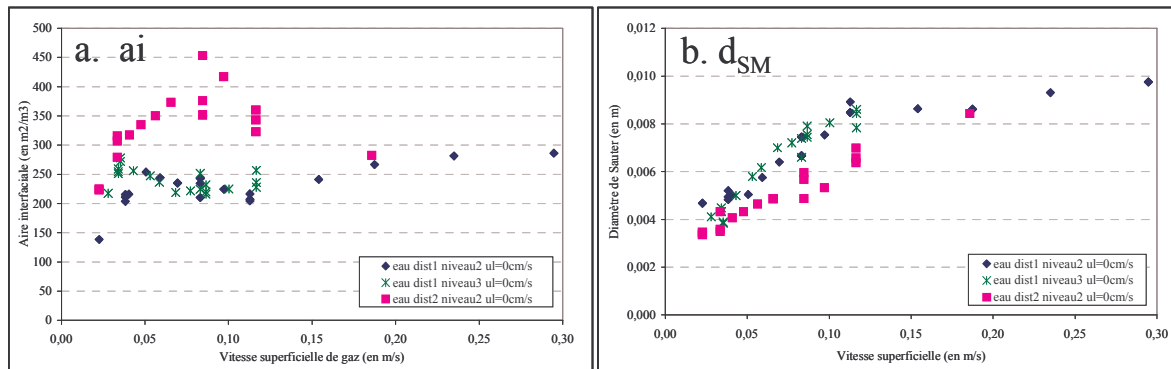


Figure 28 : Evolution des valeurs au centre de la colonne en fonction de la vitesse de gaz

L'effet de la vitesse superficielle de gaz est directement lié au régime. Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), il est observé que :

- \_ En régime homogène, l'aire interfaciale augmente avec  $u_G$ , alors que la taille des bulles évolue peu (de l'ordre de 4,5mm), car le taux de vide augmente.
- \_ En régime de transition, l'aire interfaciale diminue avec  $u_G$  et le diamètre de Sauter augmente beaucoup, sous l'effet de la coalescence.
- \_ En régime hétérogène, le diamètre de Sauter est quasiment stable avec  $u_G$  (aux environs de 9mm), car l'équilibre coalescence-rupture est atteint. Comme, dans ce régime, le taux de vide évolue également peu avec la vitesse superficielle de gaz, l'aire interfaciale augmente avec une pente assez faible : il est peu rentable dans ce régime d'augmenter le débit de gaz pour augmenter l'aire interfaciale.

#### Effet du distributeur

Le comportement du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) diffère du précédent qu'en régime homogène « bis » ( $u_G=4-8\text{cm/s}$ ) : l'évolution du diamètre de bulles est beaucoup plus grande qu'en régime homogène « classique » ( $u_G<4\text{cm/s}$ ), mais l'aire interfaciale continue de croître fortement.

En régime homogène et de transition, l'aire interfaciale est systématiquement inférieure et le diamètre de Sauter est systématiquement supérieur avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) ; cette tendance est en accord avec l'ensemble des résultats antérieurs. En régime hétérogène, les deux distributeurs conduisent a priori aux mêmes résultats.

#### Effet du niveau (distributeur 1, $d_0=1\text{mm}$ )

En régime homogène, le diamètre a tendance à diminuer entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ), et l'aire interfaciale à augmenter. Cette évolution de taille entre ces deux niveaux engendre les différences observées précédemment en taux de vide local et global ainsi qu'en fréquences de bulles.

En régime hétérogène et de transition, on peut considérer que le diamètre de Sauter et l'aire interfaciale n'évolue pas entre les deux niveaux. L'effet du niveau observé en  $\varepsilon_G/f_B$  (cf. Figure 20) résulte alors probablement de la somme des incertitudes de mesure, car tous les autres paramètres tendent à montrer que l'équilibre est atteint dès le niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ).

**Pour conclure :**

*– Les tendances observées en diamètres de bulles et en aires interfaciales sont cohérentes entre elles et avec les valeurs de taux de vide et de fréquences de bulles. Le diamètre de Sauter évolue peu à faibles vitesses de gaz, puis augmente pour atteindre en régime hétérogène sa distribution d'équilibre entre coalescence et rupture ( $d_{SM} \approx 9\text{mm}$ ). Bien qu'une seule valeur de diamètre soit accessible, cela ne signifie pas que toutes les bulles ont la même taille. Au contraire, au vu des distributions observées en aquarium (cf. annexe IV.A), on peut s'attendre à des distributions très étalées.*

*– L'équilibre est atteint dès le niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) en régime hétérogène et de transition.*

*– L'aire interfaciale évolue peu avec la vitesse du gaz en régime hétérogène.*

## A.V. CONCLUSIONS

Les différentes approches envisagées dans ce paragraphe présentent une bonne cohérence générale et valident la démarche expérimentale, malgré les limitations des métrologies retenues. Pour cette configuration de référence, les résultats permettent d'ores et déjà de mettre en évidence de nombreux phénomènes et apportent des données chiffrées utiles pour l'industriel.

L'effet du distributeur dans le cœur de la colonne est en grande partie lié à la modification des régimes hydrodynamiques qu'il engendre. Pour un distributeur industriel, le régime hétérogène est établi à bas débits gazeux.

Les régimes homogène et de transition présentent des comportements divers selon le distributeur et la vitesse du gaz.

En régime homogène, on a :

- Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) à  $u_G < 4\text{cm/s}$  : les taux de vide globaux et locaux augmentent axialement, les profils de taux de vide et de fréquence de bullage sont légèrement bombés, le diamètre de Sauter (5mm dans le cœur de la colonne) diminue axialement, mais reste à peu près constant avec  $u_G$ . Il y a de la rupture lors de l'ascension des bulles.
- Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) pour  $u_G < 4\text{cm/s}$  (régime homogène « pur ») : il n'y a pas d'évolution axiale, les profils de taux de vide sont assez plats et la taille de bulles ( $d_{SM}=4\text{mm}$  environ) ne varie pas avec  $u_G$ . Cette description correspond au régime homogène « idéal ».
- Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) entre 4 et 8cm/s (régime homogène « bis ») : le taux de vide global n'évolue pas axialement, mais les profils de taux de vide sont moins plats et le diamètre de Sauter augmente avec  $u_G$ . La taille des bulles au distributeur grossit.

Le comportement du régime homogène dépend beaucoup de la distribution primaire des bulles, mais celle-ci n'est pas forcément maintenue dans toute la colonne.

La transition est également sensible au distributeur ; elle s'étale sur une gamme de vitesses de gaz plus large et présente un maximum de taux de vide plus marqué pour le distributeur 2 à petits orifices ( $d_0=0,5\text{mm}$ ).



Ainsi, la distinction des régimes homogène et de transition est utile à la compréhension, mais ne suffit pas à caractériser l'écoulement, celui-ci pouvant prendre des formes très diverses.

Seul le régime hétérogène semble unique pour les deux distributeurs. Dans ce régime, l'équilibre est atteint assez bas dans la colonne, dès 30cm du fond. En outre, les profils normés de taux de vide et de fréquences de bulles ne varient pas avec la vitesse de gaz, : la valeur centrale suffit à connaître l'ensemble des profils à un niveau donné de la colonne. Le diamètre de Sauter à l'équilibre est constant et vaut environ 8mm. L'aire interfaciale et le taux de vide augmentent peu dans ce régime, et valent en moyenne, respectivement,  $200\text{m}^{-1}$  et 22%.

Cette étude en eau apporte des informations intéressantes sur le comportement de la colonne. Elle fournit des données rares de profils radiaux de taux de vide, de fréquences de bulles, d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter à trois positions axiales. En outre, les évolutions axiales du taux de vide par capteurs de pression sont également intéressantes. Elles permettent de mettre en évidence :

- \_ L'étendue parfois très grande de la zone de désengagement,
- \_ La spécificité de la zone d'injection,
- \_ Les hauteurs d'établissement d'écoulements invariants,
- \_ L'indépendance des transitions de régime de bullage avec la hauteur dans la colonne.

## **PARTIE B. : EFFET DU MILIEU**

---

L'hydrodynamique de la colonne dans sa configuration de référence ayant été caractérisée en eau, l'effet du milieu peut être étudié. Les liquides utilisés dans cette partie sont le cyclohexane (milieu modèle) et dans une moindre mesure l'olone (milieu cible), milieu le plus proche du liquide industriel. Ces milieux sont tour à tour analysés, par comparaison respectivement avec l'eau et le cyclohexane. Pour cela, la même démarche qu'au A, allant des données les plus globales aux plus locales, est retenue.

Une tentative d'explication des différences observées entre les différents milieux (eau, cyclohexane et olone) est ensuite envisagée, basée sur une étude approfondie de la physico-chimie sur une installation de taille réduite (aquarium) et sur la comparaison de ces essais aux essais en pilote. La possibilité de prédire les comportements en colonne à l'aide d'essais en aquarium est alors discutée.

### **B.I. ETUDE EN CYCLOHEXANE**

#### **B.I.1. Taux de vide global**

##### **B.I.1.a. Allure générale**

Avant d'entamer l'étude hydrodynamique de la colonne, il faut préciser que, pour des raisons pratiques (bouchage du cryogène, cf. chapitre II, §II.5.b), les essais ont été, en liquides

organiques, restreints à une gamme de vitesses superficielles moins large qu'en eau (entre 0 et 12,5cm/s).

### Reproductibilité

Pour évaluer la reproductibilité de ces essais, deux campagnes de mesures sont comparées : la première, ayant servi aux différentes mises au points, et, 4 à 6 mois plus tard, la seconde, au cours de laquelle les mesures locales ont été réalisées ; cette seconde série est celle présentée dans la suite. Cette comparaison (cf. Figure 29) permet de vérifier la parfaite reproductibilité de ces essais en taux de vide global (DP6), même pour des essais très différés. La même reproductibilité, bien supérieure à celle obtenue en eau du réseau, est observée pour tous les capteurs de pression et toutes les configurations étudiées ultérieurement (débit liquide et plateaux).

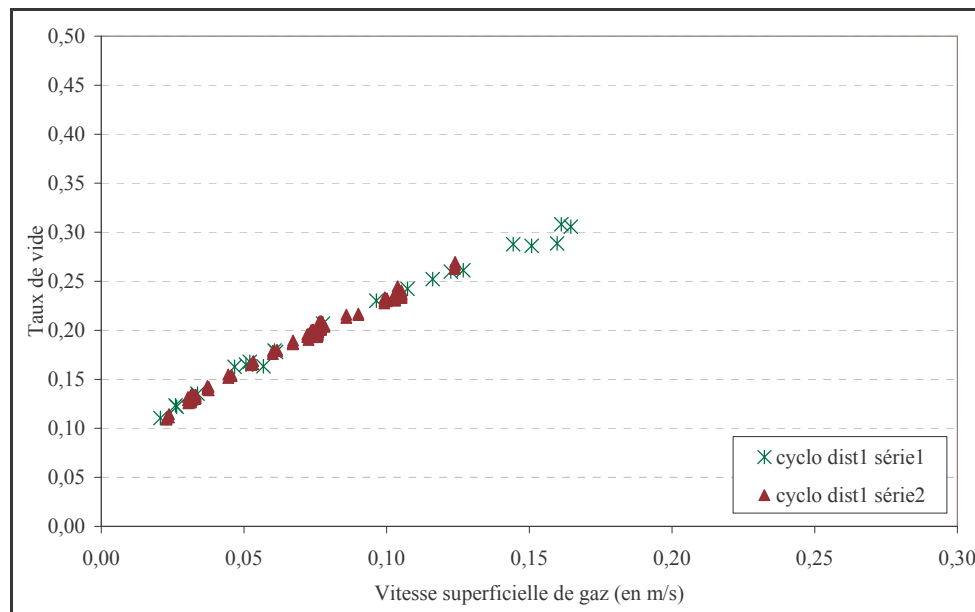


Figure 29 : Comparaison des taux de vide globaux (DP6) issus de deux campagnes de mesures en cyclohexane avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )

### Tendances observées

L'effet du distributeur de gaz sur l'évolution du taux de vide global (DP6) en fonction de la vitesse superficielle de gaz est le même en cyclohexane et en eau (cf. Figure 30) :

- \_ Le régime de transition avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) est plus net et plus complexe ; il commence à plus forts débits gazeux et s'étend sur une large gamme de vitesses de gaz,
- \_ Le taux de vide du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) est supérieur à celui du distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) en régime homogène et de transition,
- \_ L'effet du distributeur disparaît à forts débits gazeux, lorsque le régime hétérogène est établi pour les deux distributeurs.

Néanmoins, les deux milieux manifestent des comportements très différents. Si, en régime homogène, le taux de vide diffère peu entre les deux milieux, il est, en régime hétérogène, toujours supérieur en cyclohexane. Dans la zone de débits intermédiaires entre ces deux comportements extrêmes, le taux de vide en eau est supérieur à celui en cyclohexane, car les deux milieux n'opèrent pas dans les mêmes régimes hydrodynamiques : le régime homogène est plus étendu en eau.

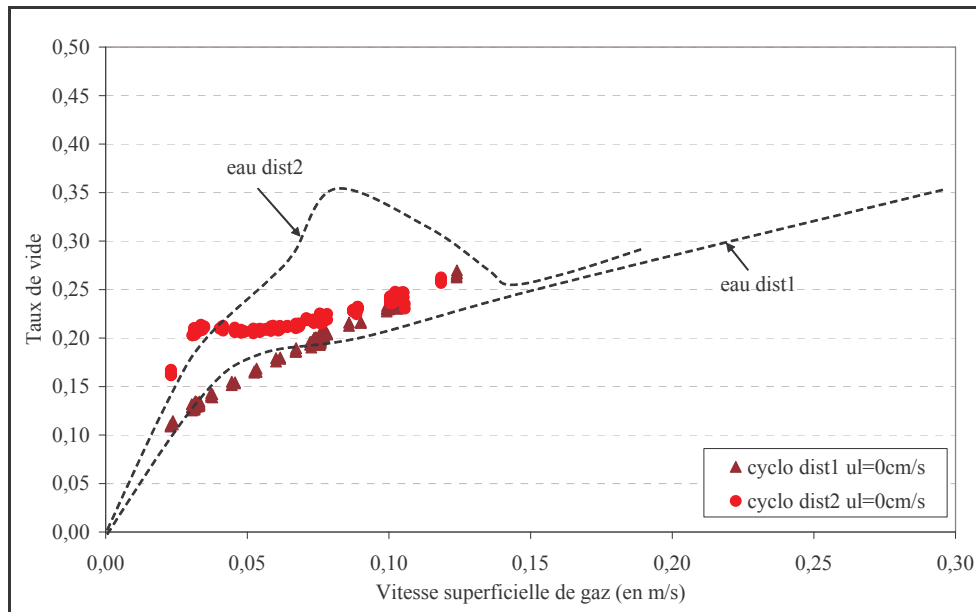


Figure 30 : Comparaison des évolutions du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz entre l'eau et le cyclohexane pour les deux distributeurs

*En cyclohexane, l'effet du distributeur de gaz est comparable à celui observé en eau. Toutefois, en régime hétérogène, le taux de vide est systématiquement supérieur en cyclohexane et les deux milieux diffèrent par leurs valeurs de transition entre les régimes ; elles sont globalement plus faibles en cyclohexane.*

#### B.I.1.a. $\alpha$ Régimes de bullages

Pour préciser ce point, une analyse des régimes de bullage similaire à celle réalisée en eau est effectuée et détaillée en annexe IV.B.

*Des comportements assez différents de ceux observés en eau sont mis en évidence : la dualité du régime homogène n'est rencontrée pour aucun des deux distributeurs pour lesquels, en outre, les régimes homogènes s'achèvent à des valeurs de vitesses superficielles nettement plus faibles. Ainsi, en cyclohexane, avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), le régime homogène n'est pas observé et le régime hétérogène prédomine probablement dès  $5\text{cm/s}$  (voire sur toute la gamme étudiée). Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), le régime homogène est observé mais il s'achève dès  $3\text{cm/s}$  et le régime hétérogène est installé à  $u_G=9\text{cm/s}$ .*

La Figure 31 récapitule les valeurs de transition obtenues pour les deux milieux.

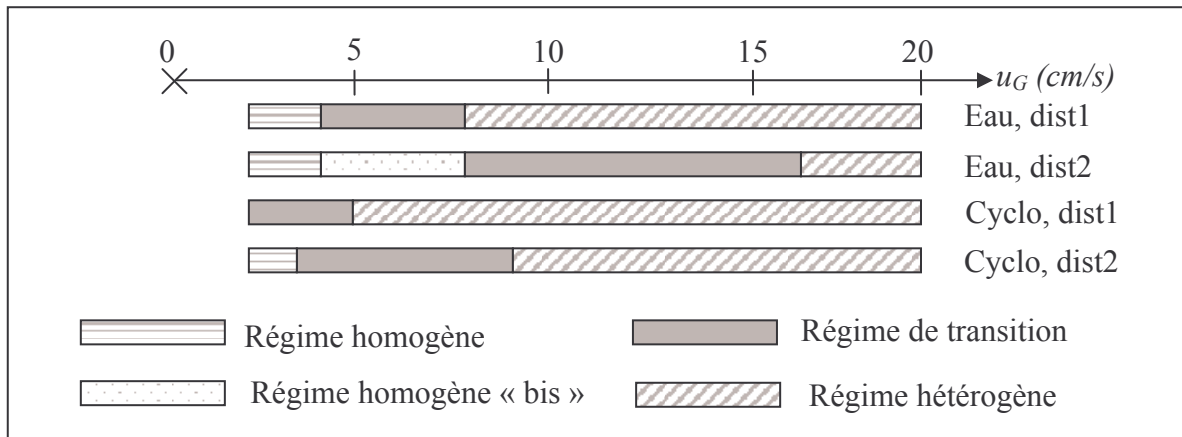


Figure 31 : Régimes de bullage pour les différentes configurations étudiées

### B.I.1.a.β Corrélations en taux de vide

Comme pour l'eau, les courbes de taux de vide global en cyclohexane sont confrontées aux valeurs prédites par les corrélations de la littérature. L'approche en deux populations de bulles de Wilkinson (1991), certes plus adaptée qu'en eau (cf. annexe IV.B), conduit à des valeurs de transition et de vitesses de bulles aberrantes ; elle n'est pas présentée ici.

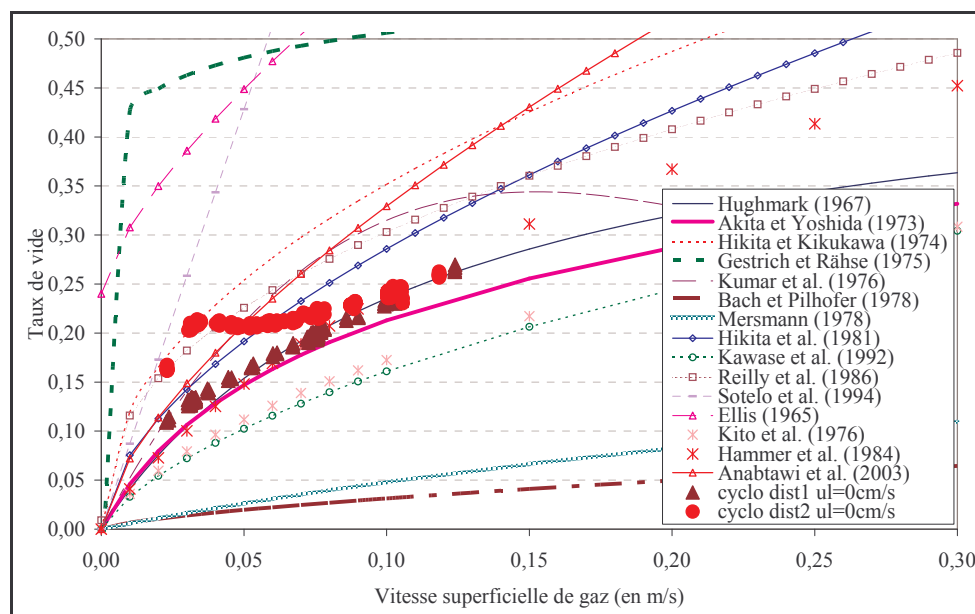


Figure 32 : Comparaison des courbes de taux de vide global avec les corrélations classiques

Les corrélations testées sont les mêmes que pour l'eau. Elles conduisent ici aussi à un très large étalement des courbes (cf. Figure 32) : aucune corrélation ne permet de représenter les courbes dans leur intégralité.

Parmi les corrélations établies pour des liquides organiques, celle de Gestrich et Rähse (1975) donne une évolution de taux de vide totalement aberrante, alors que celle de Bach et Pilhofer (1978) est plus conforme ; elle prend en compte les effets de la vitesse du gaz, de la viscosité et de la densité.

En régime hétérogène, régime indépendant du distributeur mais dépendant du milieu, seule la corrélation de Hughmark (1967) est satisfaisante. Comme elle était également valable en régime hétérogène pour l'eau, elle semble adaptée pour caractériser le comportement hétérogène de notre colonne. En effet, elle a été élaborée pour une gamme de conditions assez

large en vitesses superficielles de gaz et en milieux pour un distributeur percé (cf. annexe I.B). Elle ne fait intervenir que la densité du liquide, la tension superficielle et la vitesse superficielle de gaz.

Comme il est plus difficile de trouver des corrélations appropriées pour le cyclohexane que pour l'eau, ces corrélations sont encore plus inadaptées qu'en eau.

### B.1.1.b. Evolution axiale du taux de vide

Les évolutions axiales observées en cyclohexane pour les deux distributeurs sont reportées sur la Figure 33 (pour la position des capteurs, voir la Figure 3). Pour plus de lisibilité, l'échelle de ces courbes est différente de celle utilisée par ailleurs.

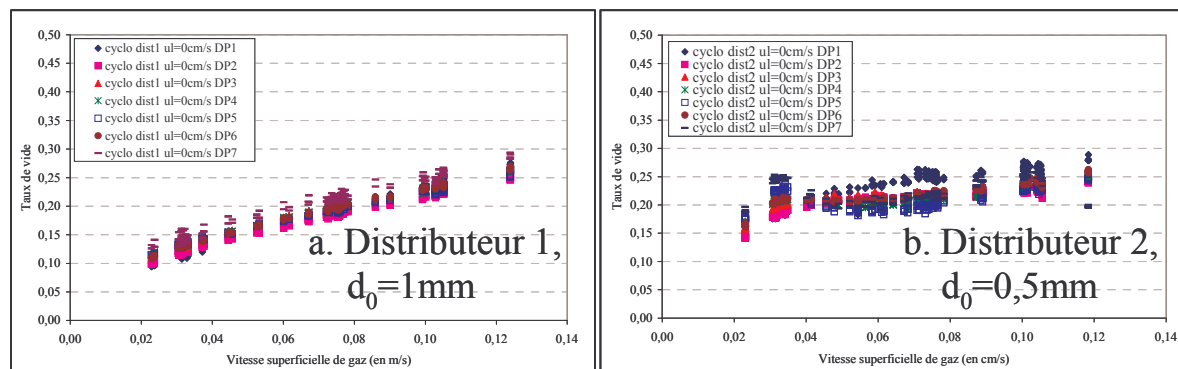


Figure 33 : Evolution axiale du taux de vide global en cyclohexane

Avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) (cf. Figure 33a), le taux de vide évolue peu ou pas dans la zone centrale correspondant aux capteurs DP2 à DP5. Le capteur DP7, situé en tête de colonne, est légèrement au-dessus des autres courbes, car il se situe dans la zone de désengagement du gaz. Le capteur DP1 a un taux de vide légèrement inférieur à la moyenne à faible débit et légèrement supérieur à forts débits.

Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) (cf. Figure 33b), en régime hétérogène ( $u_G > 8\text{cm/s}$ ), les capteurs DP2 à DP5 sont équivalents. En régime homogène ( $u_G < 3-4\text{cm/s}$ ), le taux de vide augmente axialement, alors que cette tendance s'inverse en régime de transition ( $u_G = 4-8\text{cm/s}$ ) : le taux de vide diminue avec la hauteur. Dans la zone d'injection, pour  $u_G > 4\text{cm/s}$ , le taux de vide (DP1) est très supérieur à la moyenne. En haut de colonne, le capteur DP7 présente un taux de vide légèrement supérieur à la moyenne : il se trouve dans la zone de désengagement.

Pour ces deux distributeurs, lorsque l'évolution de  $u_G/\varepsilon_G$  est tracée comme en eau en fonction de  $u_G$  (non représentée ici), il s'avère que la transition n'est pas sensible à la position axiale dans notre colonne.

#### Effet du milieu : comparaison avec l'eau

*En régime hétérogène, pour les deux milieux, le taux de vide n'évolue pas axialement entre 30 et 110cm (DP2 à DP5). Par contre, dans ce régime, le comportement de la zone d'injection (DP1) est sensible au milieu : le taux de vide dans cette zone est plus éloignée de la moyenne en cyclohexane qu'en eau (surtout avec le distributeur 2,  $d_0=0,5\text{mm}$ ).*

*Le régime homogène du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) en cyclohexane ( $u_G < 3-4\text{cm/s}$ ), comme celui obtenu avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) en eau ( $u_G < 4\text{cm/s}$ ) présente une augmentation axiale du taux de vide : le régime homogène n'est pas si simple que supposé.*

*Le régime de transition pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5mm$ ) en cyclohexane a un comportement atypique : le taux de vide diminue avec la hauteur (sauf dans la zone de désengagement, capteur DP7).*

*La zone de désengagement s'éloigne moins du taux de vide moyen en cyclohexane qu'en eau : cette zone est peut-être plus petite ; le cyclohexane est peut-être moins « moussant ».*

*Les valeurs de transitions sont, comme en eau, indépendantes de la position axiale dans la colonne.*

Remarque :

En cyclohexane, la phase gaz comporte une partie de cyclohexane vaporisé (10% environ à l'équilibre). Cette composante du débit gaz n'a pas pu être évaluée précisément dans cette étude et le débit considéré est ici le débit d'azote. L'ajout progressif de cyclohexane dans la phase gazeuse pourrait engendrer une évolution axiale systématique du taux de vide, ce qui n'est a priori pas le cas ici : un équilibre doit être atteint très vite en bas de colonne entre les deux phases.

### B.I.2. Valeurs locales de taux de vide et de fréquence de bullage

Pour expliciter ces tendances, les valeurs locales sont analysées en commençant, comme en eau, par les plus directes à obtenir et les plus fiables : le taux de vide et la fréquence de bullage.

#### B.I.2.a. Comparaison des taux de vide locaux et globaux

Tout d'abord, la fiabilité des mesures de taux de vide locaux est vérifiée, comme en eau, en comparant l'intégrale sur une section de colonne des valeurs locales de taux de vide aux valeurs globales sur le compartiment associé. L'accord entre ces valeurs est excellent (cf. Figure 34), surtout pour le distributeur 1 ( $d_0=1mm$ ) (écart moyen de 6,5% et toujours inférieur à 10%). Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5mm$ ), percé de trous plus petits ( $d_0=0,5mm$ ) et créant a priori des bulles plus petites, le taux de vide issu de la sonde sous-estime davantage le taux de vide : les bulles les plus petites sont peut-être mal vues par la sonde. Cet aspect demeure toutefois anecdotique, car l'écart moyen reste faible (10,5%) et n'excède jamais 15%. Ces écarts inférieurs à ceux observés en eau dans la même gamme de mesure, montrent que les valeurs de taux de vide local en cyclohexane sont très fiables ; elles peuvent être utilisées en toute confiance.

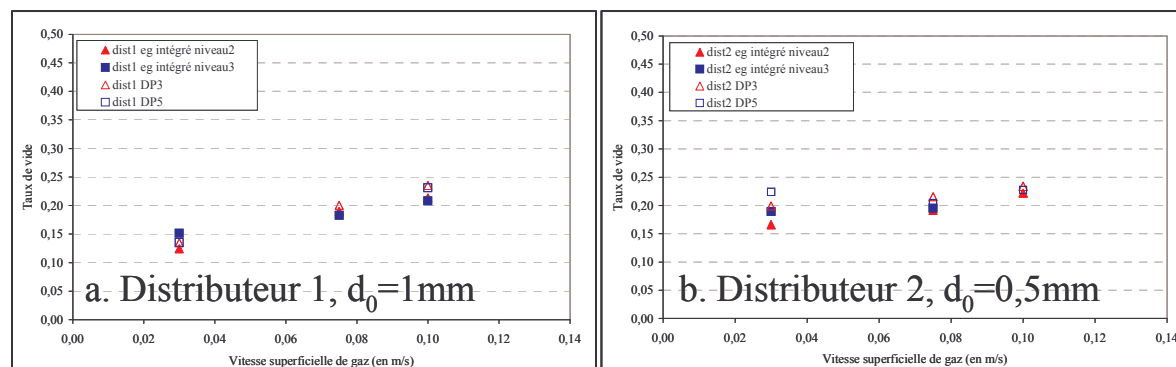


Figure 34 : Comparaison des taux de vide locaux intégrés aux taux de vide globaux sur la même section

**B.I.2.b. Profils de taux de vide et de fréquences de bulles**

Les profils de taux de vide relatifs au cyclohexane pour les deux distributeurs aux trois niveaux sont représentés sur la Figure 35. Comme en eau, ils mettent en évidence une bonne répétabilité des mesures.

Symétrie

Pour des raisons pratiques (bouchage rapide du cryogène), la symétrie des profils n'a pas été vérifiée intégralement en cyclohexane. Elle est supposée similaire à celle observée en eau : les profils sont symétriques sauf au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ). Cette tendance est cohérente avec les quelques points réalisés sur la partie gauche des profils.

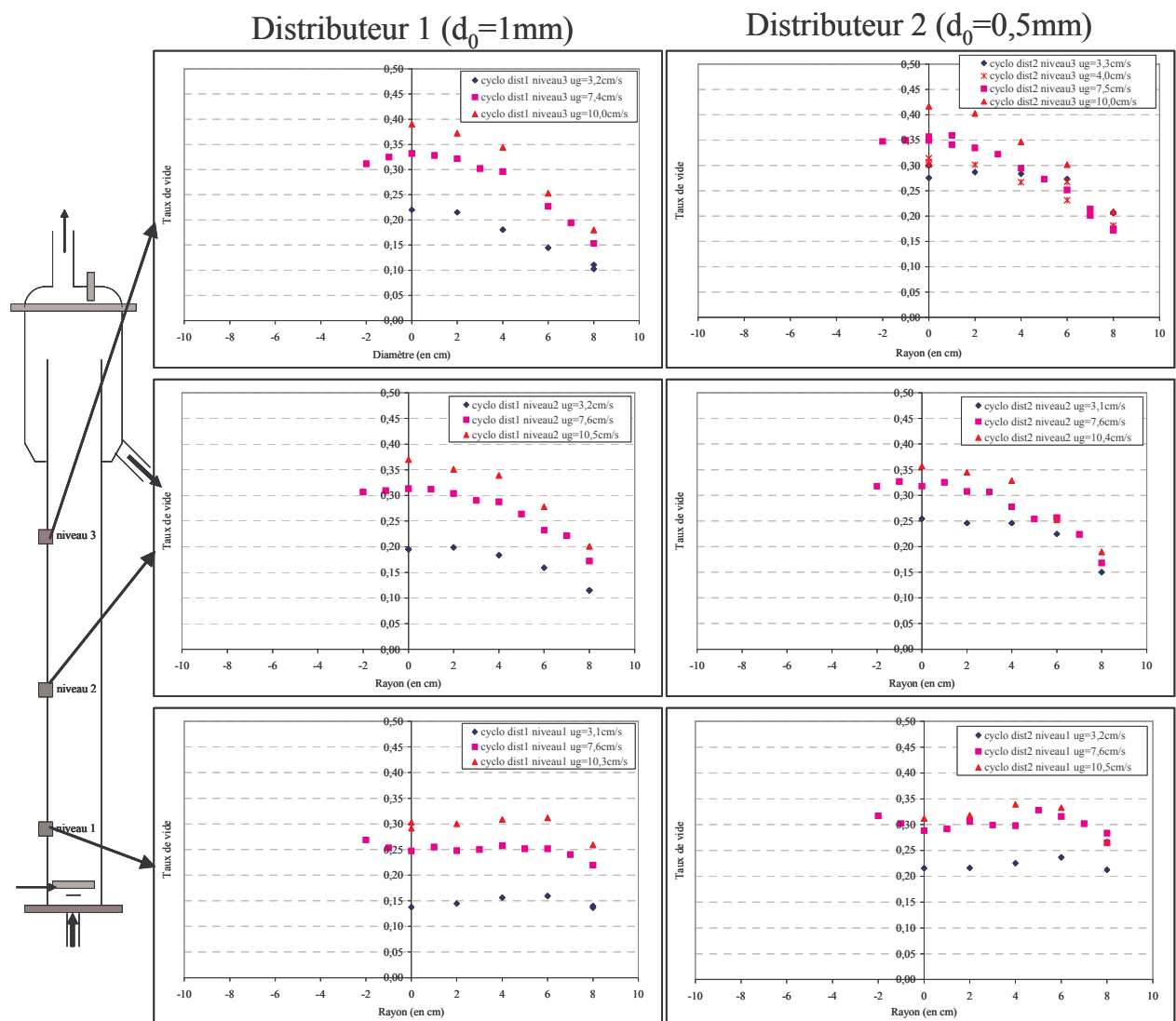


Figure 35 : Evolution axiale et radiale du taux de vide local pour les deux distributeurs en cyclohexane

Niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ )

En cyclohexane, comme en eau, l'augmentation du taux de vide est, pour les deux distributeurs, très marquée entre 3,1 et 7,6cm/s (cf. Figure 35), alors que l'effet d'une augmentation supplémentaire de la vitesse superficielle est moins prononcée.

La forme des profils de taux de vide est également similaire pour les deux milieux (cf. Figure 36a et b). Par contre, la forme des profils de fréquences de bullage diffère : les profils ne sont pas bombés en cyclohexane et présentent des maxima en dehors de l'axe. Ce comportement est probablement lié en cyclohexane à un effet encore sensible à ce niveau de la position des tores ( $r_{\text{tore}}=5$  et  $7,5\text{cm}$ ).

*Remarque : Cette zone étant assez complexe et n'étant pas fondamentale pour cette étude, ce point n'est pas éclairci. Quelques hypothèses peuvent néanmoins être proposées pour expliquer cette différence entre les deux milieux, dont une évolution axiale plus lente (comme en aquarium) ou un écoulement plus ascendant en cyclohexane (répartition radiale du gaz plus lente).*

Les valeurs de taux de vide et de fréquence de bullage sont systématiquement supérieures en cyclohexane : les bulles sont certainement plus petites, comme le laisse présager les observations en aquarium (cf. annexe IV.A).

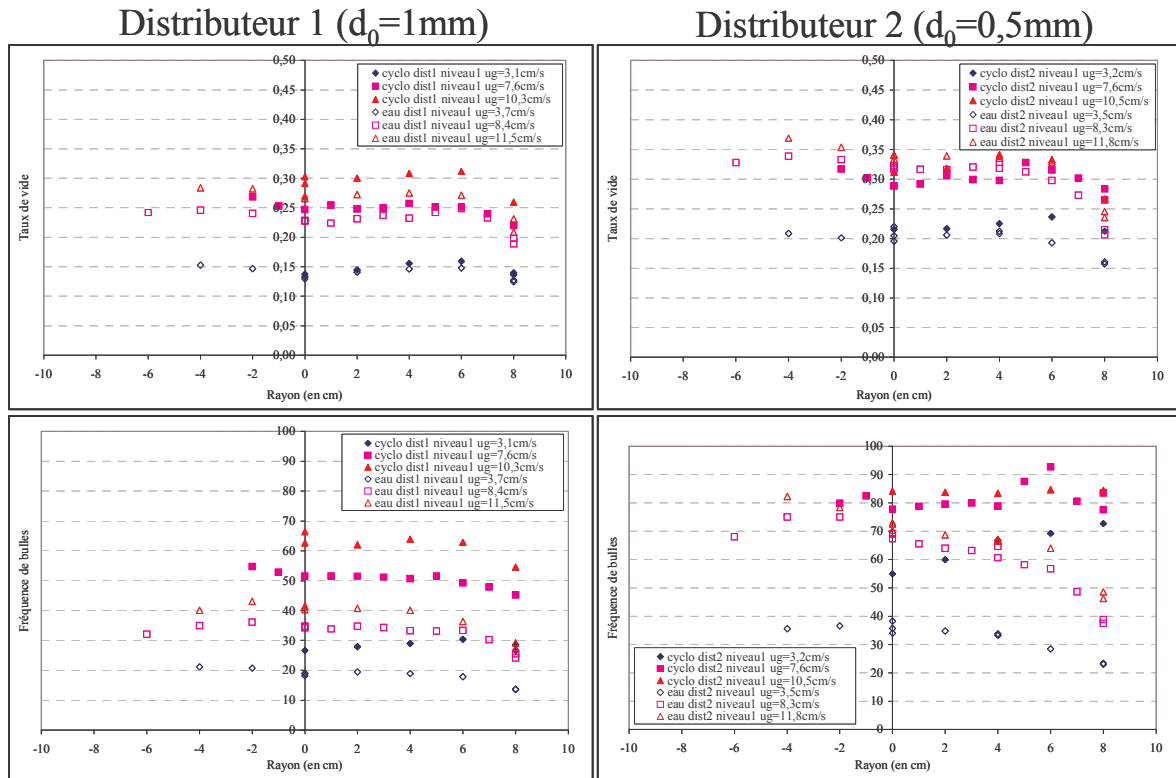


Figure 36 : Effet du milieu sur les profils de taux de vide et de fréquence de bullage au niveau 1 pour les deux distributeurs

Niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ )

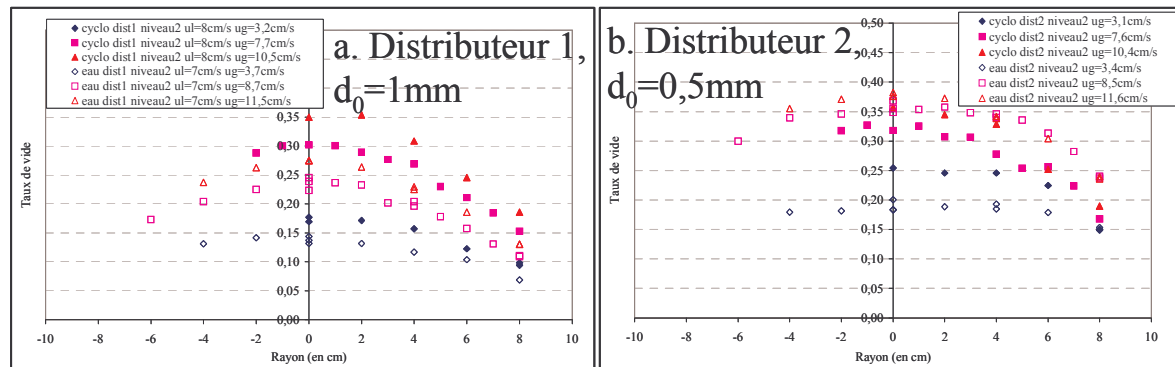


Figure 37 : Effet du milieu sur les profils de taux de vide au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ )





***un taux de vide moyen constant. Les capteurs de pression ne suffisent donc pas pour préciser l'établissement de l'écoulement.***

Profils normés

Les profils normés étudiés ici sont ceux des niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$ ,  $h=115\text{cm}$ ), plus représentatifs du comportement de la colonne. A un niveau donné, les profils normés de taux de vide sont indépendants de la vitesse superficielle de gaz et du distributeur (cf. Figure 39). Cette indépendance du distributeur, logique en régime hétérogène, est, en cyclohexane, vérifiée dans le régime de transition, ce qui n'était pas le cas en eau (cf. Figure 15).

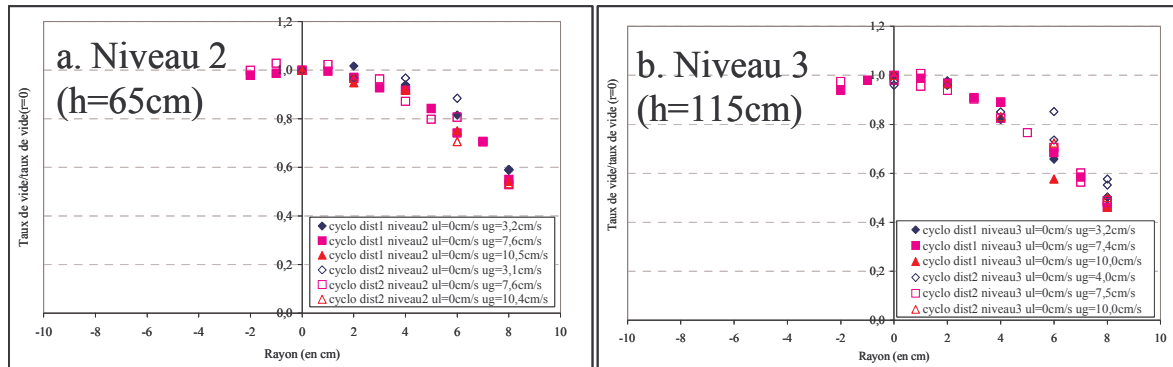


Figure 39 : Effet du distributeur sur les profils normés de taux de vide en cyclohexane

Plus surprenant, au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ), la Figure 40 montre qu'en régime hétérogène, le milieu influence également peu sur l'allure du profil de taux de vide normé. Les profils en régime hétérogène pourraient donc être représentés à ce niveau par une loi ne faisant intervenir que la valeur centrale (quels que soient le débit de gaz en hétérogène, le milieu et le distributeur). Dans ce cas, le régime hétérogène serait propre à une installation et indépendant du milieu et du distributeur.

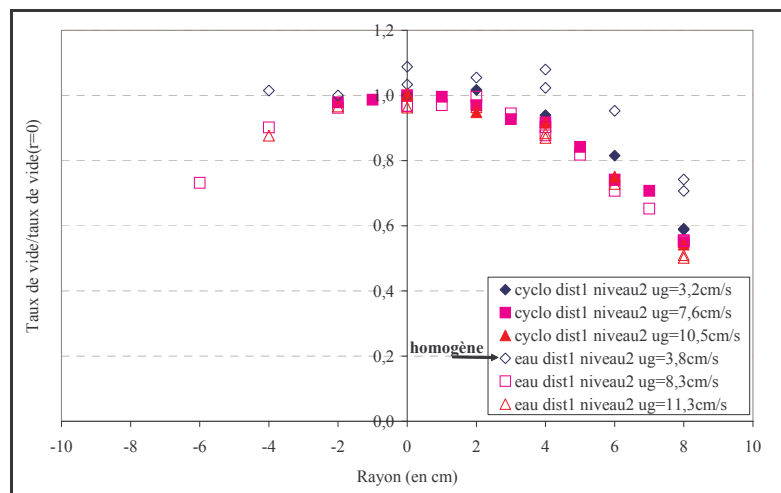


Figure 40 : Effet du milieu sur les profils normés de taux de vide (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$  niveau 2,  $h=65\text{cm}$ )

Ce propos est toutefois à modérer, car, dans ce régime, avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), l'évolution en cyclohexane du taux de vide entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) (cf. Figure 38), non observée en eau, réduit la validité de cette observation. On peut toutefois penser que le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) en cyclohexane est ici peu représentatif du régime hétérogène établi. Nous reviendrons sur ce point au paragraphe suivant.

La Figure 41 étend cette analyse aux profils normés de fréquences de bulles :

- \_ Au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ), les profils normés de fréquences de bulles ne dépendent ni de la vitesse du gaz, ni du distributeur, mais du milieu.
- \_ Au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ), cette tendance n'est vraie qu'en régime hétérogène.

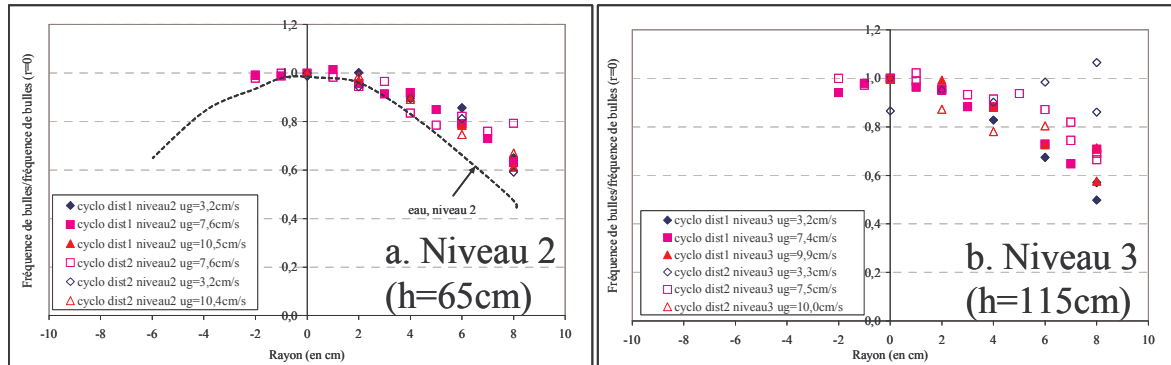


Figure 41 : Profils normés de fréquences de bulles en cyclohexane

A partir des données obtenues en cyclohexane et en eau à 65cm du fond de la colonne (niveau 2), les tendances peuvent être résumées comme suit :

- \_ Les profils normés de fréquences de bulles ne dépendent que de la hauteur et du milieu, tendance peut-être limitée au régime hétérogène,
- \_ Les profils normés de taux de vide sont confondus en régime hétérogène (pas de dépendance du distributeur et du milieu).

Ces tendances n'ont pu être évaluées qu'à une seule position axiale (niveau 2,  $h=65\text{cm}$ ), ce qui limite leur applicabilité. Il faudrait pouvoir étendre cette étude à davantage de niveaux (où l'équilibre est établi), pour vérifier s'il s'agit ou non d'une coïncidence.

Remarque :

Il serait aussi intéressant de pouvoir évaluer l'effet du diamètre de la colonne sur ces profils, car il est probable que les allures des profils soient propres à un diamètre de colonne donné, les effets de parois ayant certainement un rôle à jouer.

**B.I.2.c. Evolution des valeurs centrales avec la vitesse superficielle de gaz**

Les profils des niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) étant similaires (allure bombée), la comparaison de leurs valeurs centrales a un sens. Elle permet, comme en eau, d'étendre les tendances à une plus large gamme de vitesses superficielles.

**B.I.2.c.α. Taux de vide**

Effet du débit de gaz : comparaison des valeurs locales et globales

A un niveau donné, l'évolution du taux de vide local sur l'axe de la colonne en fonction de la vitesse superficielle du gaz est assez similaire à l'évolution du taux de vide global (cf. Figure 42). Le taux de vide local augmente cependant davantage avec la vitesse du gaz, ce qui signifie que les profils deviennent plus bombés.

Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les courbes locales et globales associées à un niveau donné sont très distinctes sur toute la gamme de débits étudiée : les profils sont bombés même à

faibles vitesses, ce qui est en accord avec le profil effectué dans cette zone et avec l'absence de régime homogène.

Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), en revanche, il existe à faibles vitesses une zone où les valeurs globales et locales diffèrent peu ; cette zone correspond au régime homogène. Une fois la vitesse superficielle de gaz à la transition dépassée, l'écart entre les deux courbes se creuse et rappelle le comportement du distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) en régime hétérogène.

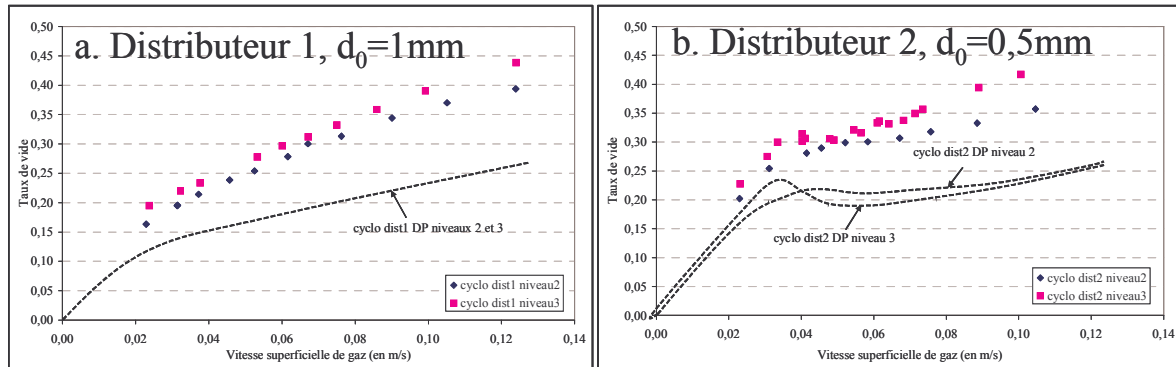


Figure 42 : Evolution du taux de vide local sur l'axe de la colonne en fonction de la vitesse superficielle de gaz ; comparaison aux valeurs globales (cyclohexane)

#### Effet du niveau

Contrairement au cas de l'eau, le taux de vide local sur l'axe augmente nettement entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) quelles que soient les conditions opératoires. Cet écart semble augmenter avec la vitesse superficielle de gaz en régime hétérogène, surtout avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ). En comparant, ces évolutions aux valeurs globales, les évolutions axiales des profils, vues au paragraphe précédent, peuvent être étendues à toute la gamme de vitesses de gaz explorée :

- Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), le taux de vide moyen n'évolue pas entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) : les profils se bombent avec la hauteur, mais le contenu gazeux de la section reste inchangé.
- Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), pour  $u_G$  compris entre 4 et 9cm/s (régime de transition), le taux de vide global diminue entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ), alors que le taux de vide local sur l'axe augmente. Pour respecter cela, les profils doivent être plus bombés au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) et la diminution du taux de vide en paroi doit être suffisante pour ne pas être compensée par l'augmentation du taux de vide sur l'axe.
- Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), pour une vitesse supérieure à 9cm/s, le taux de vide moyen sur la section ne dépend plus de la hauteur ; comme pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les profils sont nettement modifiés entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) pour un contenu gazeux moyen identique.

#### **B.I.2.c.β Fréquence de bullage**

Les valeurs centrales de fréquence de bullage sont tracées sur la Figure 43. Comme en eau, cette courbe met en évidence l'effet du distributeur.

#### Effet distributeur :

Au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ), comme en eau, les courbes des deux distributeurs se rejoignent en régime hétérogène. Cette tendance n'est cependant plus vérifiée au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) : le comportement à fortes vitesses du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) est étrange.

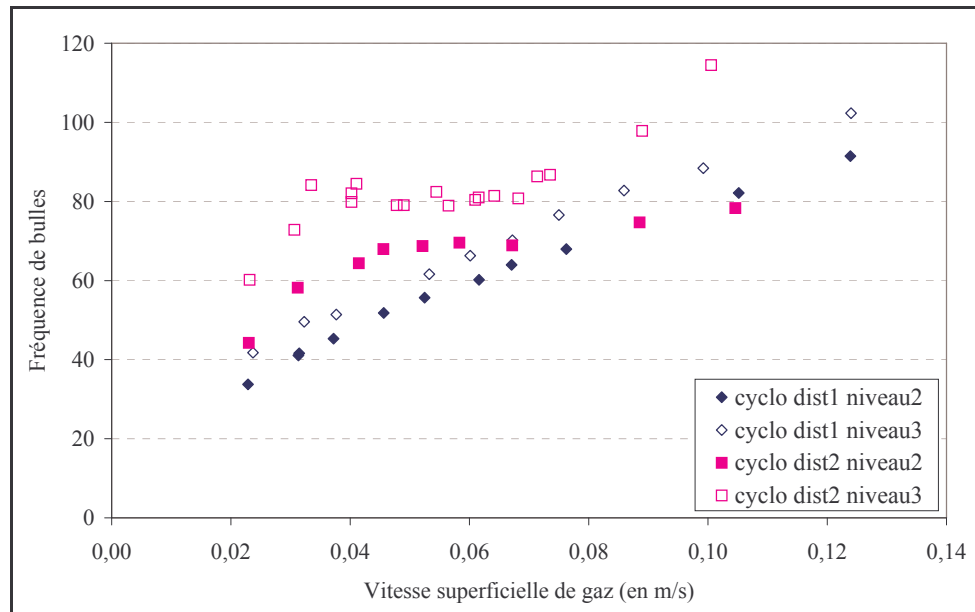


Figure 43 : Evolution de la fréquence de bullage locale sur l'axe de la colonne en fonction de la vitesse superficielle de gaz

#### Effet du niveau :

Contrairement au cas de l'eau, il y a une évolution axiale nette de la fréquence de bulles entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) : la fréquence de bulles, comme le taux de vide, augmente, et ce surtout à fortes vitesses de gaz et pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) ; il y a de la rupture de bulles entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ).

Dans la plupart des conditions opératoires balayées en cyclohexane, les profils sont nettement modifiés entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) : ils se bombent.

Dans le cas du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), les évolutions des profils sont très importantes entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) et dépendent du distributeur. Cette augmentation ne peut pas être liée aux seuls effets de pressions ou de vaporisation du cyclohexane, car d'une part une telle augmentation n'est pas visible sur les courbes de taux de vide global et d'autre part elle concerne aussi la fréquence de bullage. Cela signifie que l'équilibre coalescence-rupture n'est pas encore atteint au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) et pose le problème de la hauteur de colonne représentative d'une colonne industrielle. Pour la déterminer, il est clair qu'il ne faut pas se baser sur les résultats en eau, dont l'évolution axiale est très différente, ni sur les seules données des capteurs de pression, qui n'évoluent plus entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ )... Les données en cyclohexane avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) doivent être considérées avec précaution, car elles ne représentent pas l'équilibre. Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les écarts étant plus faibles entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ), on peut considérer l'équilibre atteint au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ).

Ces observations semblent aussi montrer que plus un distributeur crée de petites bulles au distributeur, plus la hauteur d'établissement de l'écoulement est grande, surtout pour des liquides peu coalescents.

*En cyclohexane, l'effet du niveau sur les données locales de taux de vide et de fréquences de bullage est plus sensible ; la hauteur de colonne nécessaire pour atteindre l'équilibre est plus grande. La hauteur de notre colonne est d'ailleurs insuffisante pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ).*

**B.I.2.c.  $\gamma$  Evolution du rapport taux de vide/ fréquence de bullage**

Le rapport taux de vide/ fréquence de bullage, équivalent au rapport entre la taille des bulles et la vitesse du gaz, est tracé sur la Figure 44.

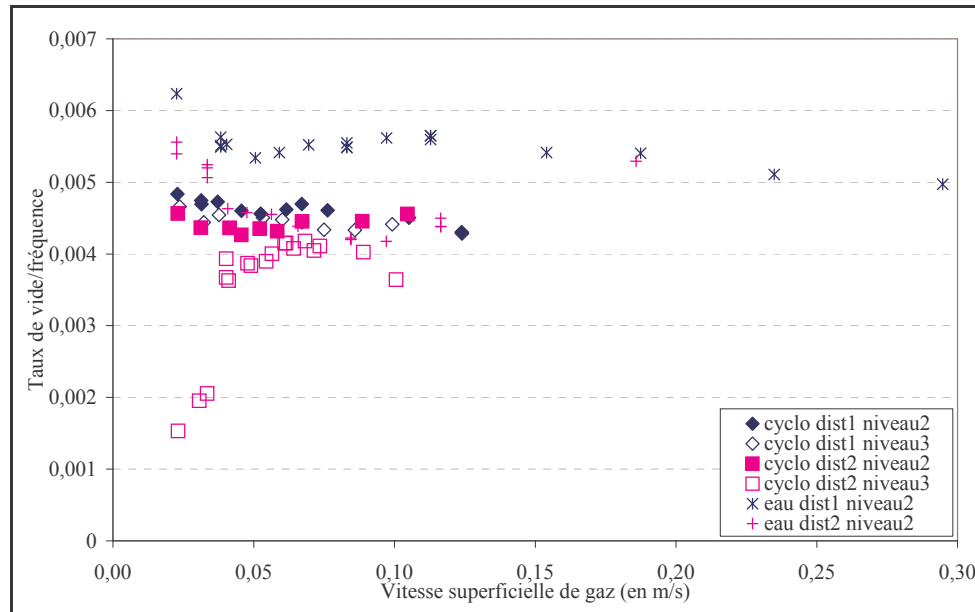


Figure 44 : Evolution du rapport  $\varepsilon_G/f_B$  en fonction de la vitesse superficielle de gaz (sur l'axe de la colonne)

Contrairement au cas de l'eau, le tracé de ce rapport ne permet pas de retrouver la distinction entre les différents régimes à partir de changements de pentes nets ; ce critère n'est donc pas adapté à cette application.

Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), en régime hétérogène ( $u_G>5\text{cm/s}$ ), les valeurs de  $\varepsilon_G/f_B$  sur l'axe de la colonne, évoluent peu avec la vitesse superficielle de gaz et ne dépendent quasiment pas du niveau. Cette tendance à adopter une valeur quasi-constante de  $\varepsilon_G/f_B$  en régime hétérogène avait été mise en évidence en eau, mais la valeur d'équilibre obtenue, caractéristique de l'équilibre entre coalescence et rupture, dépend du milieu (bulles a priori plus petites en cyclohexane) (cf. Figure 44).

Notons en outre que, pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), l'effet de la position axiale sur les valeurs de  $\varepsilon_G/f_B$  est plus faible que celui observé séparément sur le taux de vide et la fréquence de bullage : les variations du taux de vide et de la fréquence de bullage se compensent.

**B.I.3. Aire interfaciale et diamètre de Sauter**

**B.I.3.a. Profils**

**B.I.3.a.  $\alpha$  Diamètre de Sauter**

La Figure 45 propose de comparer, pour les deux distributeurs, les profils en diamètres de Sauter obtenus aux trois niveaux.

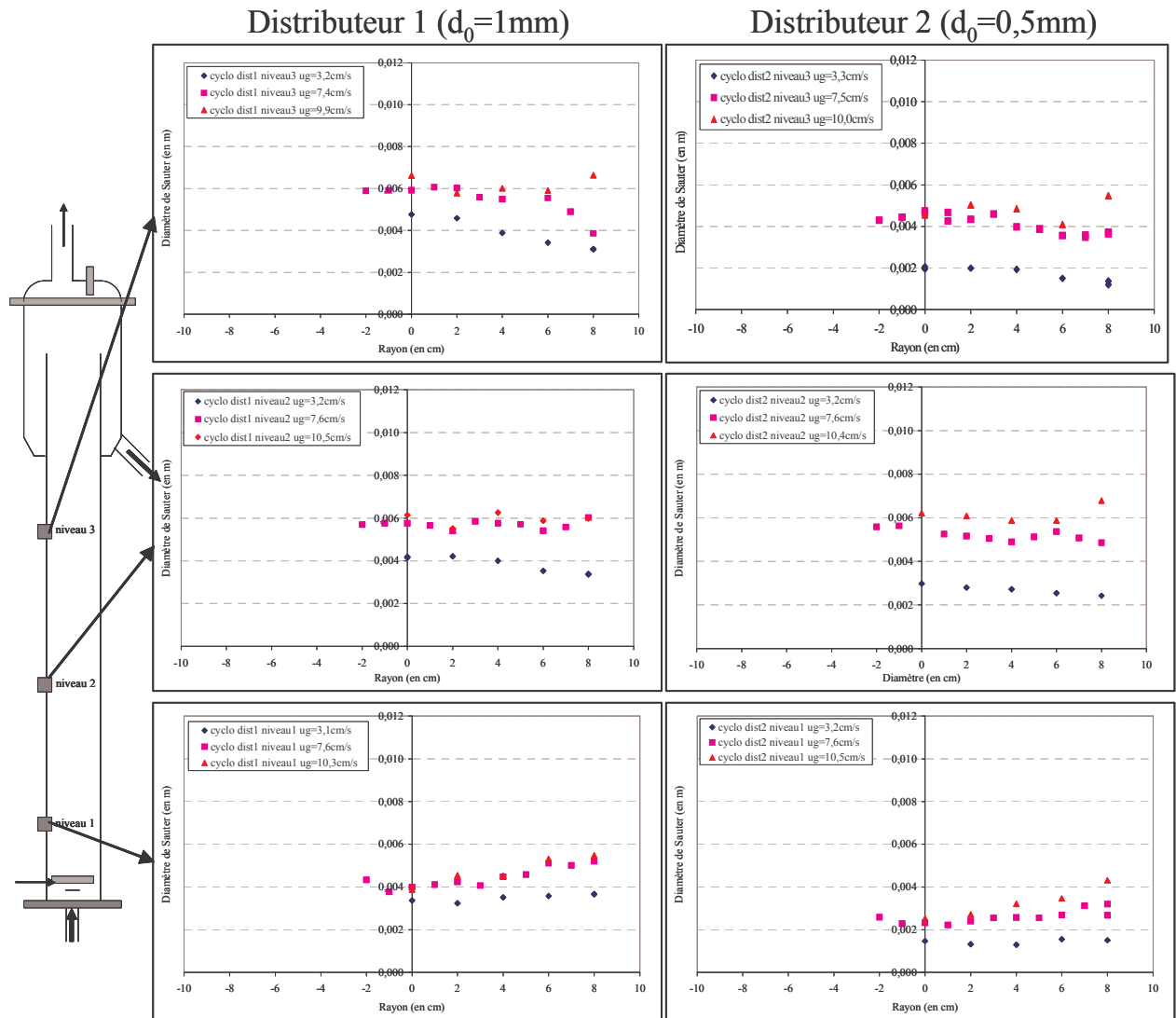


Figure 45 : Evolution axiale et radiale des profils en diamètre de Sauter pour les deux distributeurs

Les profils de diamètres de Sauter reportés sont tous assez plats et similaires. Quels que soient le distributeur et le niveau, le diamètre de Sauter augmente, sur l'axe de la colonne, avec la vitesse superficielle de gaz, mais, comme pour le taux de vide, cette augmentation est plus prononcée entre 3 et 7,5cm/s qu'à plus fortes vitesses.

#### Niveau 1 (h=25cm)

L'injection des bulles dans la colonne est bien meilleure qu'en eau, d'une part car les bulles sont plus petites ( $d_{SM}=4\text{mm}$  avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ),  $d_{SM}=2\text{mm}$  avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), contre 15 et 10mm en eau respectivement), et d'autre part car les bulles ont une taille plus uniforme sur toute la section (les profils présentent qu'un maximum peu prononcé au-dessus de l'injecteur) (cf. Figure 46). Cette taille de bulles augmente par ailleurs légèrement avec le débit gazeux, mais elle est nettement moins sensible à ce paramètre qu'en eau.

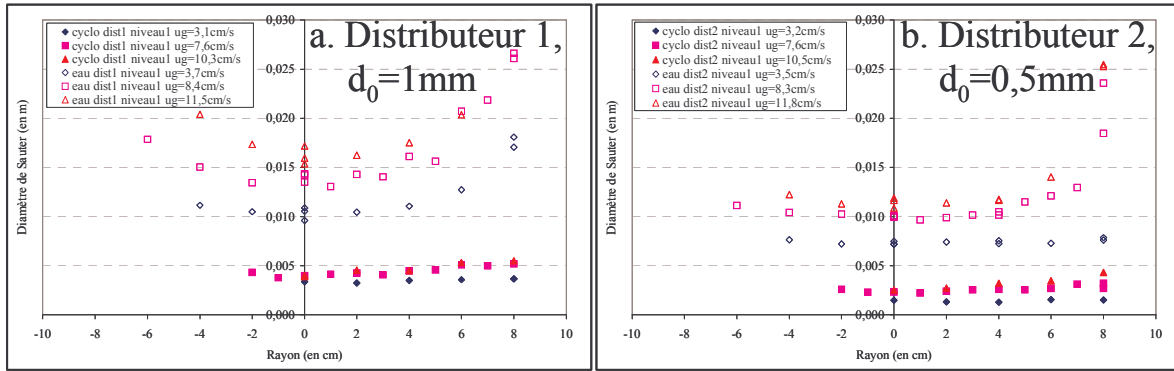


Figure 46 : Effet du milieu sur le diamètre de Sauter au niveau 1

Niveaux 2 et 3 (h=65cm et h=115cm)

Cette analyse, présentée sur la Figure 47 pour le niveau 2 (h=65cm), conduit aux mêmes observations au niveau 3 (h=115cm).

Aux niveaux 2 et 3, les profils de diamètres de Sauter sont plus plats et de forme plus régulière qu'en eau. En outre, le diamètre de Sauter est systématiquement plus faible en cyclohexane. Le seul cas où cette tendance est atténuée est au niveau 2 (h=65cm) avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), lorsque le régime homogène est maintenu en eau et non en cyclohexane (cf. Figure 47b).

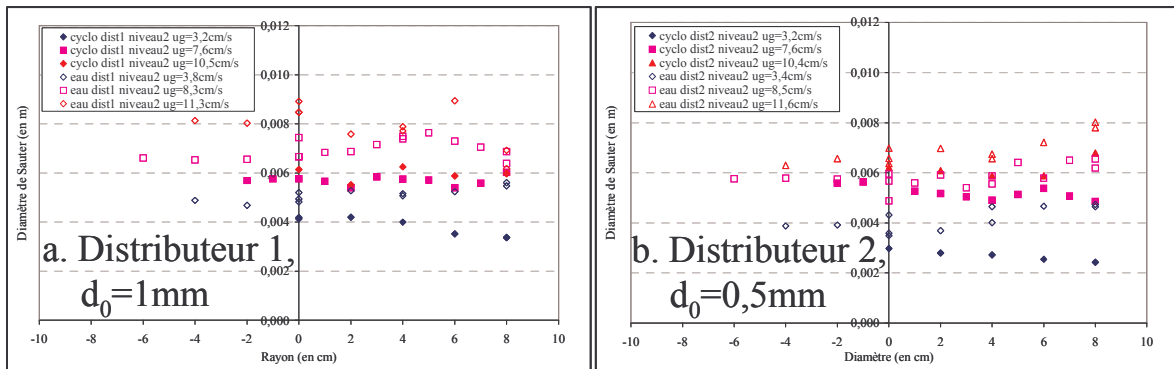


Figure 47 : Effet du milieu sur le diamètre de Sauter au niveau 2

Evolution axiale :

Il reste alors à aborder l'évolution axiale du diamètre de Sauter (cf. Figure 48).

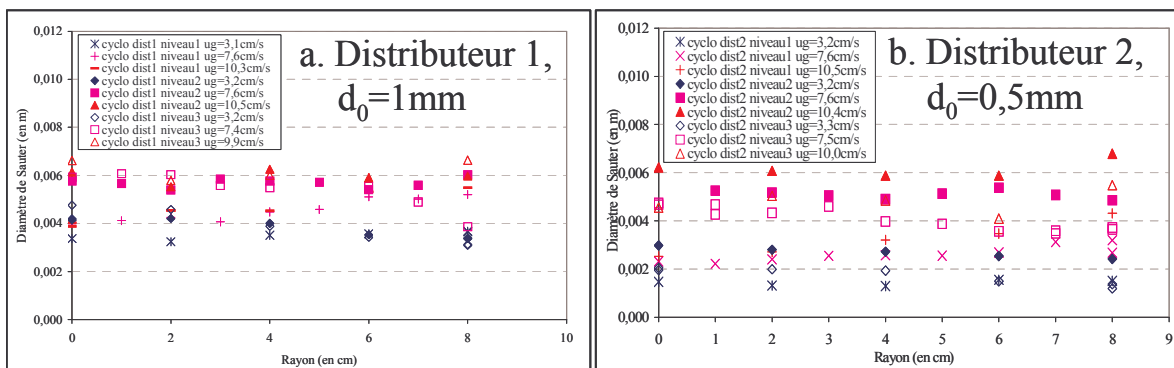


Figure 48 : Evolution axiale du diamètre de Sauter en cyclohexane

Avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), le diamètre de Sauter augmente nettement entre les niveaux 1 et 2 (h=25cm et h=65cm) et n'évolue plus entre les niveaux 2 et 3 (h=65cm et h=115cm).



Avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), les évolutions axiales sont, une fois de plus, surprenantes : quel que soit le débit de gaz, le diamètre de Sauter augmente entre les niveaux 1 et 2 ( $h=25\text{cm}$  et  $h=65\text{cm}$ ) alors qu'il diminue entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ). Ces tendances sont toutefois cohérentes avec la comparaison des évolutions des profils de taux de vide (cf. Figure 38) et de fréquences de bulles (cf. Figure 49).

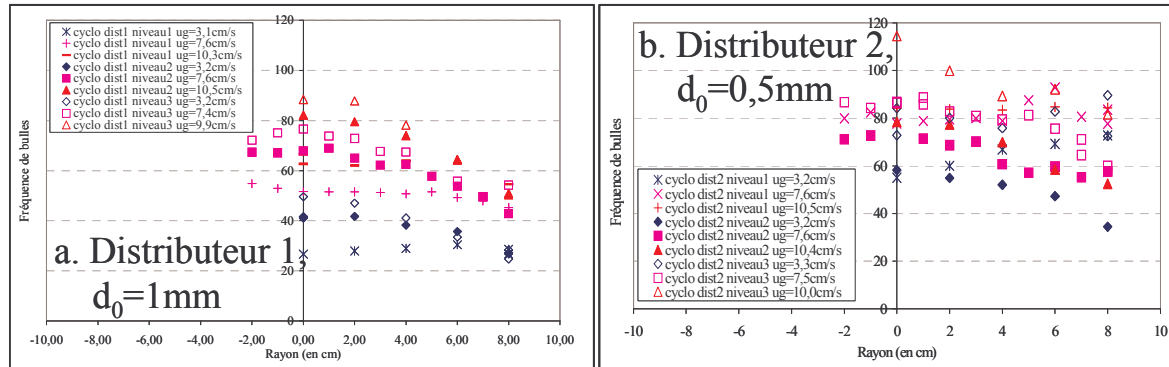


Figure 49 : Evolution axiale des fréquences de bulles en cyclohexane

Au vu des évolutions du taux de vide, de la fréquence de bulles et du diamètre de Sauter avec la vitesse de gaz et la hauteur, il est probable que, en cyclohexane, les très petites bulles formées, très nombreuses lorsque  $u_G$  augmente, ont tendance à coalescer entre les niveaux 1 et 2 ( $h=25\text{cm}$  et  $h=65\text{cm}$ ) (très visible avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), pour lequel les bulles formées sont les plus petites). Ce phénomène pourrait être modéré plus haut dans la colonne par la rupture. En eau, où les bulles formées sont plus grosses et moins stables, la rupture est peut-être plus efficace, dès le bas de la colonne ; ce qui expliquerait que l'équilibre soit atteint plus bas.

### B.I.3.a. $\beta$ Aire interfaciale

Lorsque ces profils sont transcrits en aires interfaciales, les graphiques de la Figure 50 sont obtenus.

Avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les profils d'aire interfaciale sont assez plats et les valeurs évoluent peu avec la vitesse superficielle de gaz : les augmentation du taux de vide et du diamètre de Sauter se compensent. L'évolution axiale est également faible, excepté en paroi où l'aire interfaciale tend à augmenter avec le niveau. Cette tendance est soit due à une diminution de diamètre de Sauter prédominante devant la diminution du taux de vide, soit à une erreur d'estimation en proche paroi par la sonde optique (cf. chapitre III, §B.III).

Avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), l'aire interfaciale est toujours au moins deux fois plus grande qu'avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) ; les profils sont plus bombés. L'effet du débit gazeux est faible pour une vitesse supérieure à  $7\text{cm/s}$ , mais la hauteur a un effet majeur (tout aussi curieux que pour les autres paramètres) : l'aire diminue beaucoup entre les niveaux 1 et 2 ( $h=25\text{cm}$  et  $h=65\text{cm}$ ) et augmente entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) ; ceci serait conforme à une action tardive de la rupture.

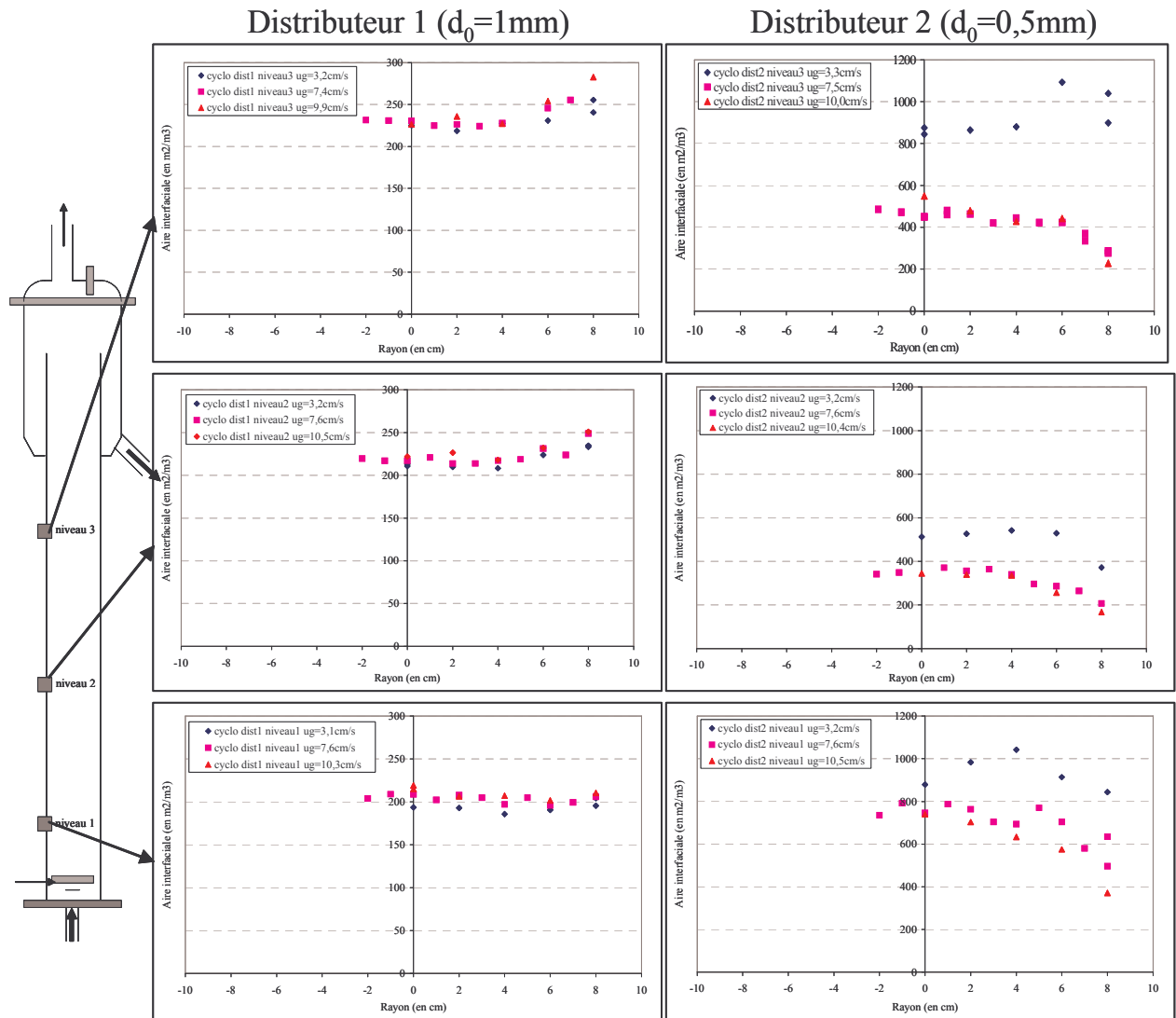


Figure 50 : Evolution axiale et radiale des profils en aires interfaciales (attention aux échelles)

Effet du milieu :

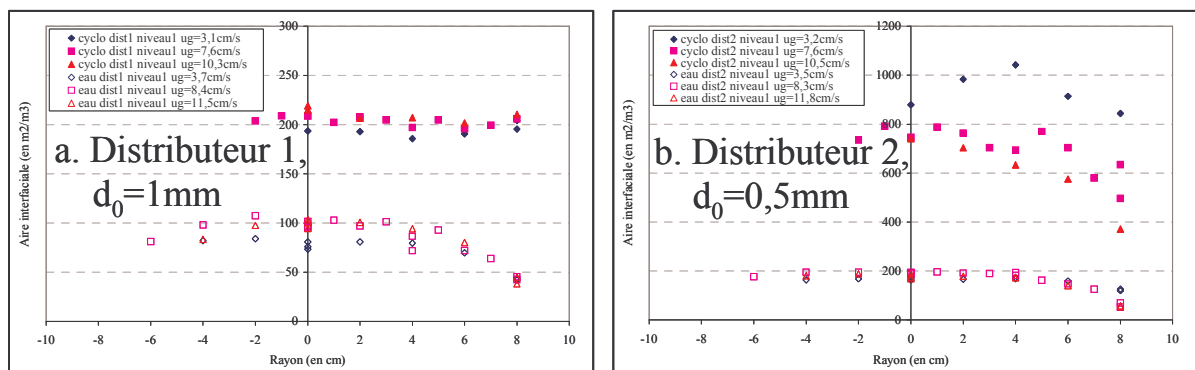


Figure 51 : Effet du milieu sur les profils d'aire interfaciale au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ) (attention aux échelles)

Dans la mesure où les bulles sont globalement plus petites en cyclohexane et que le taux de vide est globalement plus grand, l'observation d'aires interfaciales supérieures en

cyclohexane était prévisible (cf. Figure 51 et Figure 52). Cet effet du milieu est surtout sensible au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ), où l'aire interfaciale est deux fois plus grande en cyclohexane qu'en eau avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et quatre fois avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) (cf. Figure 51).

Au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ), avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les profils en aire interfaciale sont beaucoup plus plats en cyclohexane qu'en eau du fait d'un profil de diamètres également plus plat (à ce niveau, en régime hétérogène, l'allure du profil de taux de vide n'a plus d'influence sur l'aire interfaciale, car les profils normés sont identiques pour les deux milieux). Comme la valeur sur l'axe est similaire pour les deux milieux, l'aire interfaciale moyenne demeure supérieure en cyclohexane (cf. Figure 52a).

Au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ), pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), à faible vitesse de gaz ( $u_G=3,2\text{cm/s}$ ), un gros écart est observé entre les milieux, écart qui disparaît à plus fortes vitesses (cf. Figure 52b), car les taux de vide et les diamètres de Sauter sont du même ordre pour les deux milieux, tendance permise par le fait qu'ils opèrent dans des régimes de bullage différents.

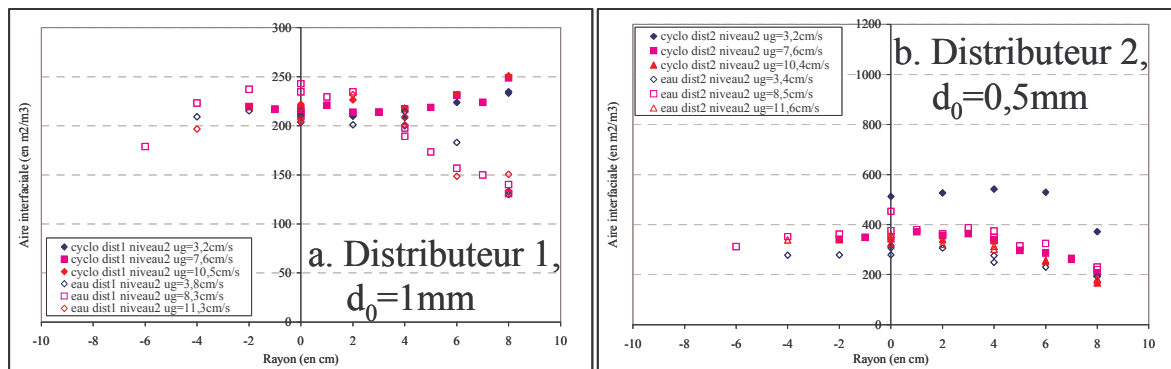


Figure 52 : Effet du milieu sur les profils d'aire interfaciale au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) (attention aux échelles)

L'utilisation du cyclohexane conduit globalement à des aires interfaciales supérieures, excepté lorsqu'un distributeur efficace permet de prolonger le régime homogène en eau et d'obtenir des valeurs de taux de vide très grandes. Il reste alors à vérifier si ce gain d'aire interfaciale est vraiment favorable au transfert (cf. chapitre V).

### B.I.3.b. Valeurs sur l'axe

Pour étendre ces données, les valeurs centrales sont étudiées. Elles permettent d'estimer sans encombre les effets du niveau et du milieu sur les diamètres de Sauter, car l'allure des profils diffère peu, mais elles sont inadaptées pour évaluer l'effet du milieu sur les aires interfaciales, compte tenu des fortes différences de profils observées.

#### B.I.3.b. $\alpha$ Diamètre de Sauter

Le diamètre de Sauter augmente avec la vitesse superficielle de gaz, puis se stabilise, lorsque le régime hétérogène est établi, à une valeur indépendante du distributeur et du niveau (de l'ordre de 6mm, soit 2mm de moins qu'en eau) (cf. Figure 53).

#### Effet du niveau (cf. Figure 53a)

Pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), le diamètre de Sauter sur l'axe est légèrement plus grand au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ). Comme, dans le même temps, avec ce distributeur, le taux de vide global n'évolue pas (cf. Figure 33) et que le taux de vide local et la fréquence de bulles locale

sur l'axe augmentent entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) (cf. Figure 42a) ; cette augmentation témoigne d'une répartition différente des bulles selon la hauteur : les grosses bulles se concentrent sur l'axe, mais le taux de vide sur une section reste inchangée.

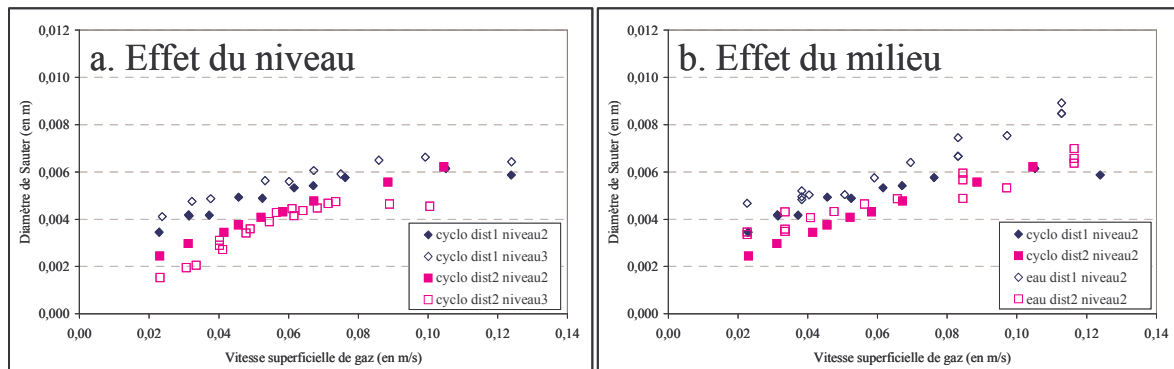


Figure 53 : Evolution du diamètre de Sauter sur l'axe de la colonne avec la vitesse superficielle de gaz en cyclohexane

Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), en régime homogène ( $u_G < 4\text{cm/s}$ ), le diamètre de Sauter des bulles diminue entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ), ce qui est en accord avec l'augmentation du taux de vide local et global et l'augmentation de la fréquence de bullage. En régime de transition ( $4-9\text{cm/s}$ ), le diamètre de Sauter sur l'axe diminue avec la hauteur, alors que dans le même temps le taux de vide local augmente et que le taux de vide global diminue.

#### Effet du milieu (cf. Figure 53b)

Quelles que soit les conditions opératoires, même lorsque les deux milieux n'opèrent pas dans des régimes hydrodynamiques identiques, le cyclohexane conserve un diamètre de Sauter plus faible.

***Le diamètre de Sauter augmente avec  $u_G$  jusqu'à atteindre un équilibre en régime hétérogène ( $d_{SM} \approx 6\text{mm}$ ). A l'équilibre, le diamètre en cyclohexane est inférieur à celui en eau ( $d_{SM} \approx 8\text{mm}$ ).***

#### ***B.I.3.b.β Aire interfaciale***

La traduction des résultats de taux de vide et de diamètre de Sauter conduit aux tendances en aires interfaciales suivantes (cf. Figure 54) :

- \_ Avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), l'aire interfaciale est constante quels que soient le niveau et la vitesse superficielle de gaz : les augmentations de diamètres de Sauter et de taux de vide se compensent (!!!).
- \_ Avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), l'aire interfaciale augmente axialement, surtout en régime homogène où le taux de vide est plus grand et le diamètre de Sauter plus petit.
- \_ En régime hétérogène, l'écart entre les deux distributeurs aux niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) pose question quant à l'établissement de l'équilibre voire à la validité de ces points.

***L'aire interfaciale évolue peu avec  $u_G$  pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et reste de l'ordre de  $200\text{m}^{-1}$ .***

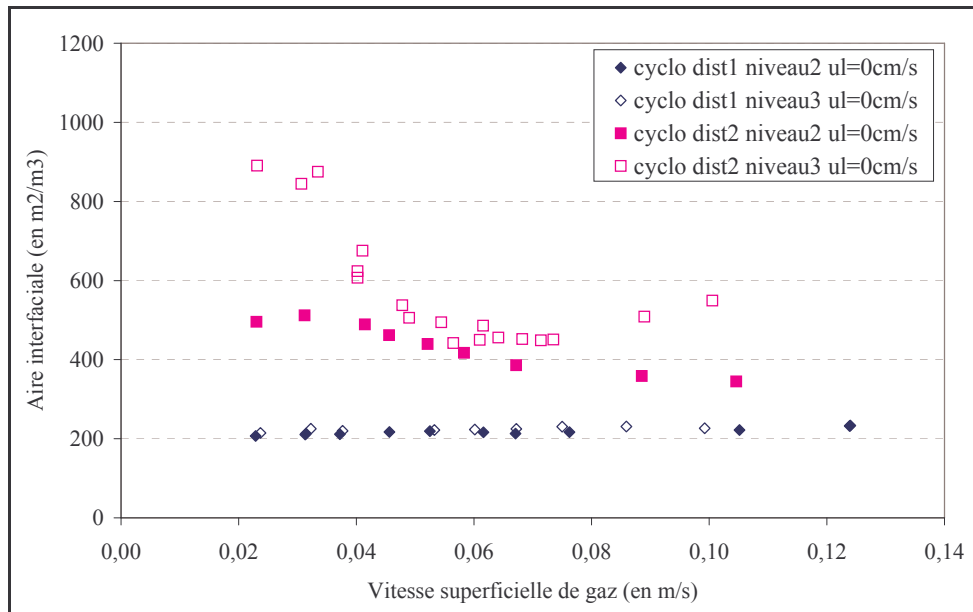


Figure 54 : Evolution de l'aire interfaciale sur l'axe de la colonne avec la vitesse superficielle de gaz (cyclohexane)

### B.I.4. Conclusions

Cette étude en cyclohexane fournit des informations utiles et rares à l'industriel sur le comportement d'une colonne à bulles fonctionnant avec son milieu.

La comparaison avec les essais en eau montre que ces deux milieux diffèrent par l'étendue de leurs régimes hydrodynamiques et leurs valeurs de transition, mais également nettement par leur zone d'injection et la hauteur nécessaire à la mise en régime. Les évolutions axiales sont aussi beaucoup plus importantes et marquées en cyclohexane, ce qui conduit à une zone d'équilibre mal identifiée.

Le diamètre de Sauter à l'équilibre en régime hétérogène est plus petit en cyclohexane qu'en eau (6mm contre 8mm) et, curieusement, l'aire interfaciale évolue peu avec la vitesse du gaz ( $200\text{m}^{-1}$  avec le distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ ).

Les écoulements sont, à une vitesse de gaz donnée, radicalement différents selon le milieu utilisé. Dans ce contexte, il est important d'évaluer les écarts entre le milieu modèle étudié ici et le milieu cible, plus proche du milieu industriel, l'olone.

## B.II. ETUDE EN OLONE

### B.II.1. Taux de vide global

En pilote, le comportement global de l'olone diffère peu de celui du cyclohexane : il conduit à des valeurs de taux de vide global légèrement supérieures (cf. Figure 55). Cette tendance, très légère en régime hétérogène est un peu plus importante à plus faibles débits, mais ni les valeurs des transitions (cf. annexe IV.B), ni les évolutions axiales ne sont modifiées (cf. Figure 56). La différence essentielle en olone serait a priori la présence de bulles un peu plus petites, comme observé en aquarium (cf. annexe IV.A).

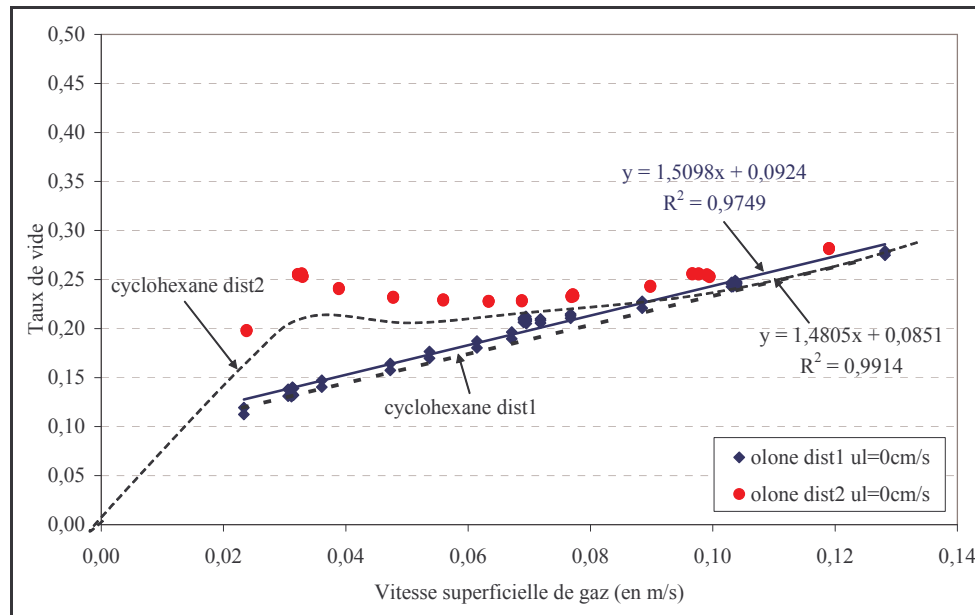


Figure 55 : Effet des additifs sur l'évolution de taux de vide global (cyclohexane, olone)

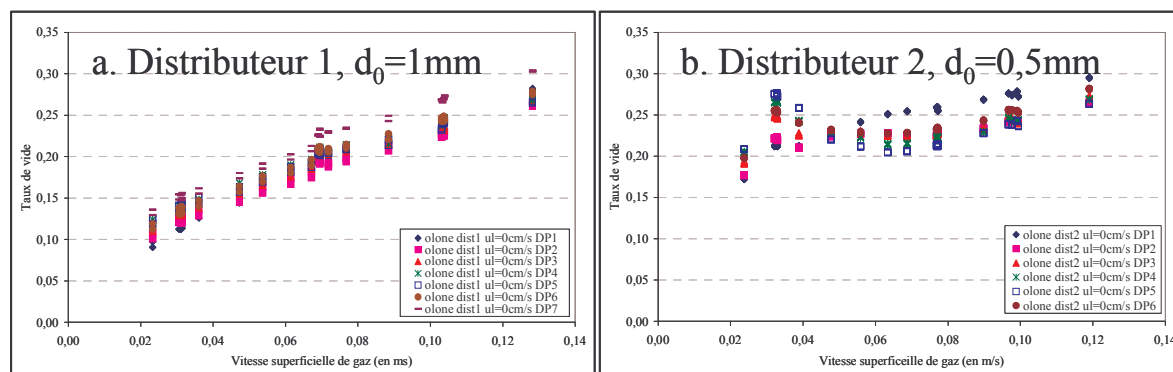


Figure 56 : Evolution axiale du taux de vide globale en olone

## B.II.2. Grandeurs locales

Au niveau local, le nombre de configurations explorées en olone est plus faible qu'en cyclohexane ; en colonne vide, seul le niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) a été étudié. La validation des données locales de taux de vide à ce niveau est moins bonne qu'en cyclohexane et en eau (cf. Figure 57) : la sous-estimation du taux de vide varie entre 31 et 42% pour les deux distributeurs et ne dépend pas de  $u_G$ . Une plus forte incertitude avait déjà été obtenue en aquarium avec ce milieu sur la mesure du diamètre (cf. chapitre III §B.III.5.c).

Cette incertitude devient très pénalisante lorsque les taux de vide locaux du cyclohexane et de l'olone sont comparés (cf. Figure 58), car les tendances observées sont contraires aux données globales, où le taux de vide est supérieur pour l'olone. Les courbes locales obtenues en olone permettent donc de vérifier que son comportement est similaire à celui du cyclohexane, mais les valeurs ne peuvent pas être exploitées.

L'incertitude de la mesure par sonde optique augmente entre le cyclohexane, l'eau et l'olone, c'est-à-dire apparemment avec la présence d'impuretés, ou d'additifs, ce qui pose problème pour l'utilisation de la sonde optique en milieux industriels, milieux souvent non purs (assez proche de l'olone dans notre cas).



Figure 57 : Comparaison des taux de vide globaux et locaux intégrés sur une section de colonne

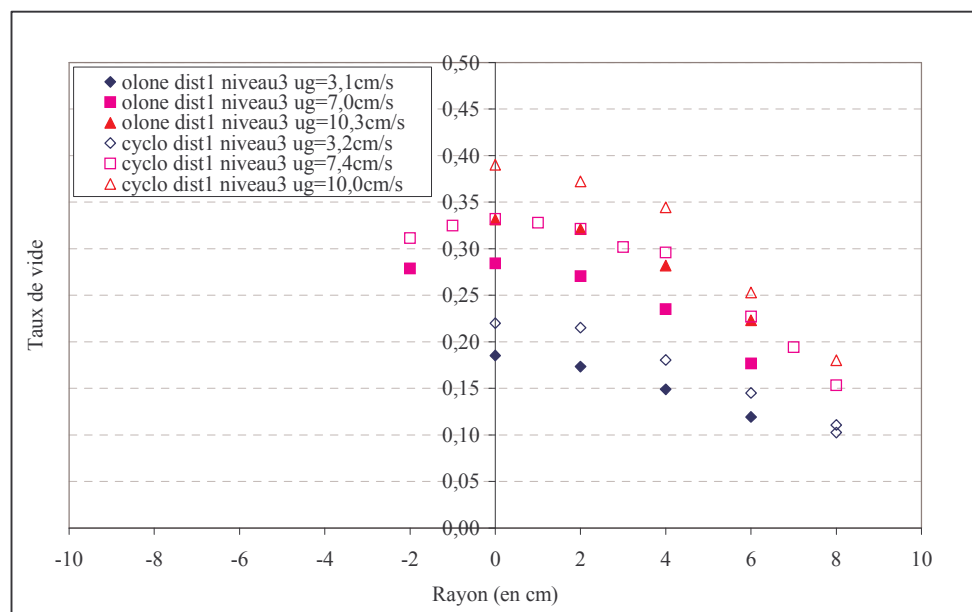


Figure 58 : Effet du milieu sur les profils de taux de vide au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ )

**Le bon accord entre les données globales et les allures des profils locaux du cyclohexane et de l'olone permet de supposer la bonne représentativité de l'olone par le cyclohexane ; il est alors possible d'approximer les valeurs locales en olone (milieu industriel) via l'analyse en cyclohexane.**

**L'erreur des mesures locales en olone n'est pas totalement élucidée ; elle pourrait provenir d'un mauvais piquage des bulles en présence d'impuretés, celles-ci rendant les bulles plus « rigides ». Cette interprétation, discutable, reste à vérifier.**

Remarque : Ce problème de mesure de taux de vide avec la sonde optique s'est également posé, lors d'une étude annexe en milieu eau + sulfite.

### **B.III. ECARTS ENTRE LES MILIEUX : EFFET DE LA PHYSICO-CHIMIE**

L'étude hydrodynamique de la colonne en eau et en cyclohexane montre de larges différences entre ces milieux. Le régime homogène se termine à une vitesse de gaz plus faible en cyclohexane. L'évolution axiale des bulles dépend du milieu, de même que la taille des bulles à l'équilibre (diamètre de Sauter) : elle est plus faible en cyclohexane (de l'ordre de 6mm) qu'en eau (de l'ordre de 8mm), ordres de grandeurs cohérents avec les résultats obtenus en aquarium. L'ensemble de ces tendances est compatible avec les observations faites en aquarium : bulles plus petites, évolution axiale modérée (ou plus progressive) et mini-bulles plus nombreuses en cyclohexane.

L'étude des effets de la physico-chimie du liquide sur la distribution des bulles effectuée en aquarium (cf. annexe IV.A) ne permet pas d'expliquer simplement ces écarts à l'aide des propriétés physico-chimiques classiques du liquide que sont la densité, la viscosité et la tension superficielle. On peut toutefois penser que la tension superficielle a un effet important et qu'elle serait à l'origine de la taille des bulles plus faible en cyclohexane et de son évolution axiale plus lente.

L'hydrodynamique est assez similaire en cyclohexane et en olone : les mesures en colonne, très limitées en nombre et en nature, ne montrent pas de différence fondamentales, si ce n'est une légère diminution du taux de vide. En aquarium, on a pu observer l'apparition de toutes petites bulles à une vitesse d'éjection plus faible et la diminution de la taille des « grosses » bulles par rapport au cyclohexane.

La distribution de tailles de bulles en colonne résulte de phénomènes de rupture et de coalescence qui sont régis par l'hydrodynamique et les propriétés interfaciales du milieu. L'aquarium permet de tester divers milieux, de propriétés interfaciales différentes dans une configuration hydrodynamique à peu près constante ; il constitue un outil permettant la caractérisation des effets de la physico-chimie, effets qui attendent toujours une explication scientifique approfondie.

Le couplage hydrodynamique/ physico-chimie ne peut quant à lui être abordé qu'en pilote, surtout si les effets du débit liquide et des plateaux perforés doivent être estimés.

## **PARTIE C : FONCTIONNEMENT CONTINU SUR LE LIQUIDE : EFFET DU DEBIT LIQUIDE**

---

Les parties A et B de ce chapitre ont permis d'approfondir le comportement de la colonne en fonctionnement batch sur le liquide. Cette troisième partie permet de faire un pas de plus vers la configuration industrielle et se consacre à l'effet de la circulation de liquide sur l'hydrodynamique de notre colonne. Les vitesses superficielles de liquide explorées sont modérées ; elles balayent la gamme de 0 à 0,105m/s. Comme précédemment, les informations sont analysées en allant des plus globales aux plus locales. Les effets du milieu et du distributeur, similaires à ceux décrits dans la partie A, sont abordés simultanément dans cette partie.



## C.I. MELANGE DE LA PHASE LIQUIDE

Le premier point examiné porte sur le mélange de la phase liquide. Celui-ci est caractérisé, en présence de circulation liquide, à l'aide des essais de DTS, réalisés, comme décrit au chapitre III (§A.III), pour trois débits gazeux et deux débits de liquide ( $u_L=0,035-0,07\text{m/s}$ ). Les résultats, exprimés en nombre de RAC équivalents, sont présentés sur la Figure 59. Il en découle que l'écoulement est plus « piston » (le nombre de RAC augmente) lorsque :

- \_ Le débit gazeux diminue,
- \_ Le débit liquide augmente,
- \_ Le distributeur est percé de gros trous ( $d_0=1\text{mm}$ ) (distributeur 1).

Toutefois, l'effet du débit de gaz et du distributeur sont peu marqués, alors que l'effet du débit liquide est plus net : le nombre de RAC augmente de 25% quand  $u_L$  est doublé.

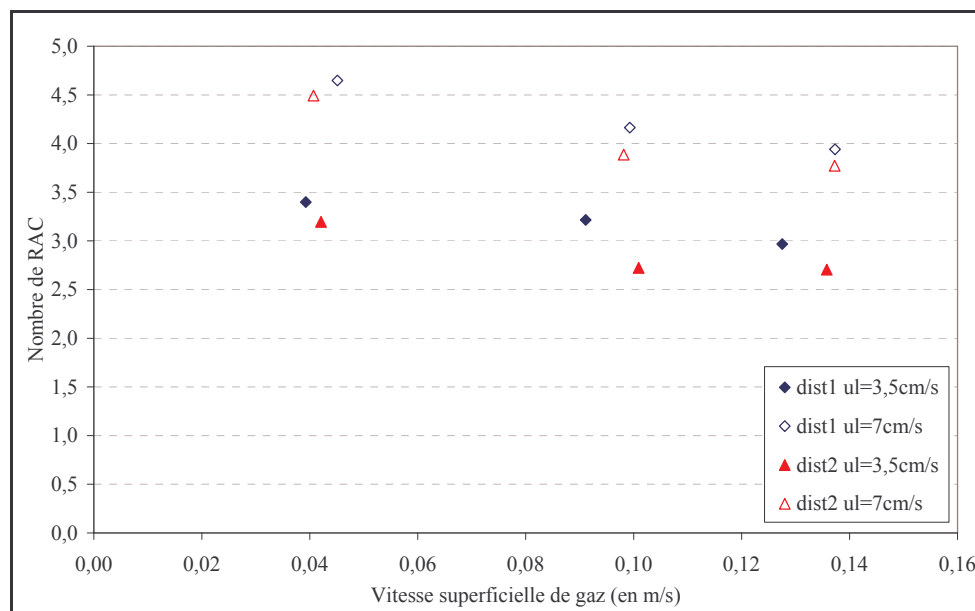


Figure 59 : Evolution du nombre de RAC équivalents

## C.II. TAUX DE VIDE GLOBAL

### C.II.1. Allure générale

Les évolutions du taux de vide global (DP6) avec la vitesse superficielle de gaz pour les trois milieux sont présentées sur la Figure 60 pour trois vitesses de liquide. Le taux de vide diminue systématiquement avec la vitesse superficielle de liquide, mais l'ampleur de cette diminution dépend clairement des conditions opératoires : elles est en particulier plus marquée avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), et dans la zone de transition qui conduit en batch à un maximum de taux de vide. A vitesse intermédiaire de liquide ( $u_L=3,5\text{cm/s}$ ), ce maximum disparaît, mais la rupture de pente subsiste. Aux plus fortes vitesses de liquide, cette rupture

de pente a quasiment disparu, même en eau, de même que les différences entre les deux distributeurs.

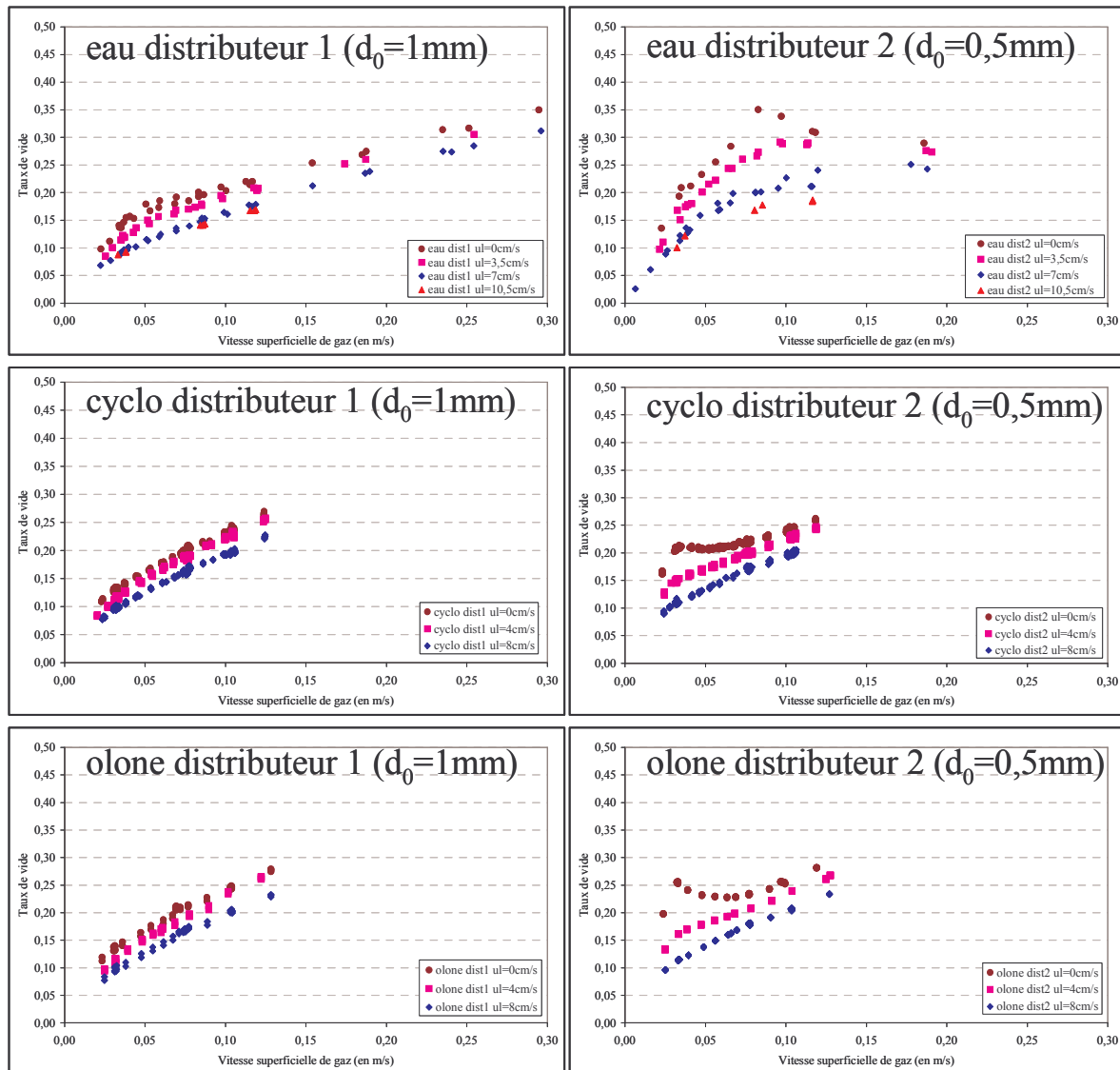


Figure 60 : Effet de la vitesse liquide sur l'évolution du taux de vide global en fonction de la vitesse superficielle de gaz

Il était prévisible que l'ajout d'un débit de liquide provoque une diminution du taux de vide global, du fait de la diminution du temps de séjour dans la colonne, mais la variation de son effet selon la vitesse du gaz est plus surprenante ; l'ajout d'une circulation liquide modifie conjointement les écoulements liquide (cf. DTS) et gazeux.

Lorsque le régime hétérogène est établi, la diminution du taux de vide est faible et peut être due à une augmentation uniforme de la vitesse des bulles par ajout d'une composante de vitesse de l'ordre de  $u_L/(1-\varepsilon_G)$  (cf. annexe IV.B). Pour les vitesses superficielles de gaz plus faibles, en revanche, l'effet du débit liquide est plus important et certainement plus complexe : non seulement le taux de vide diminue davantage, mais l'allure même des courbes est altérée. L'ajout de la circulation liquide semble avoir un effet déstabilisateur sur l'écoulement en régimes homogène et de transition ; l'établissement du régime hétérogène est probablement facilité et s'effectue à des valeurs de vitesses gazeuses plus faibles. Une fois ce régime installé, comme suggéré plus haut, l'effet du débit liquide est atténué et n'influe a priori plus que sur le temps de séjour des bulles.

Ainsi, contrairement aux hypothèses couramment rencontrées dans la littérature, l'effet du débit liquide est, dans notre installation, loin d'être toujours négligeable.

Pour préciser ces différents points, une étude globale des régimes hydrodynamiques est effectuée ; l'étude locale permet ensuite d'explicitier les modifications de la distribution du gaz dans la colonne.

Comme cette première analyse a permis de vérifier que l'effet du débit liquide est similaire quel que soit le milieu et le distributeur, ces configurations sont considérées indifféremment dans la suite.

### C.II.2. Régimes hydrodynamiques

Les régimes hydrodynamiques sont une approche globale établie en écoulement batch. Leur existence en présence de circulation liquide n'est donc pas certaine. Pour clarifier ce point et mieux visualiser les effets du débit liquide, les outils classiques de caractérisation des régimes sont succinctement examinés en annexe IV.B.

*Ils mettent en évidence que la notion de régime est encore applicable. Elle montre que la vitesse de liquide déstabilise les régimes homogène et de transition. Au-delà d'un certain débit de liquide (7cm/s pour l'eau avec le distributeur 1 ( $d_0=1mm$ ) et pour le cyclohexane avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5mm$ )), ces deux régimes disparaissent au profit du régime hétérogène. Une fois le régime hétérogène installé, l'effet du débit de liquide devient faible (ajout d'une vitesse de l'ordre de  $u_l/(1-\epsilon_G)$ ).*

La déstabilisation du régime homogène peut être expliquée par la géométrie de l'arrivée du liquide dans la colonne : en bas de colonne, le liquide possède une faible section de passage pour son écoulement, section limitée à une zone en proche paroi par une plaque redistributrice (cf. Figure 61). Le liquide, arrivant rapidement en paroi en bas de colonne, chasse sans doute les bulles au centre, ce qui favoriserait la coalescence et par conséquent le changement de régime. L'effet serait peut-être différent si le liquide était injecté plus uniformément.

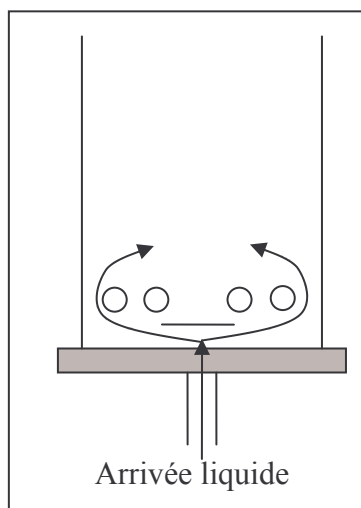


Figure 61 : Arrivée de liquide dans la colonne

### C.II.3. Evolution axiale

L'évolution axiale du taux de vide est similaire à celle observée à débit liquide nul en régime hétérogène (pas d'évolution axiale nette entre DP2 et DP5), excepté pour les deux capteurs extrêmes (capteurs DP1 et DP7) (cf. Figure 62).

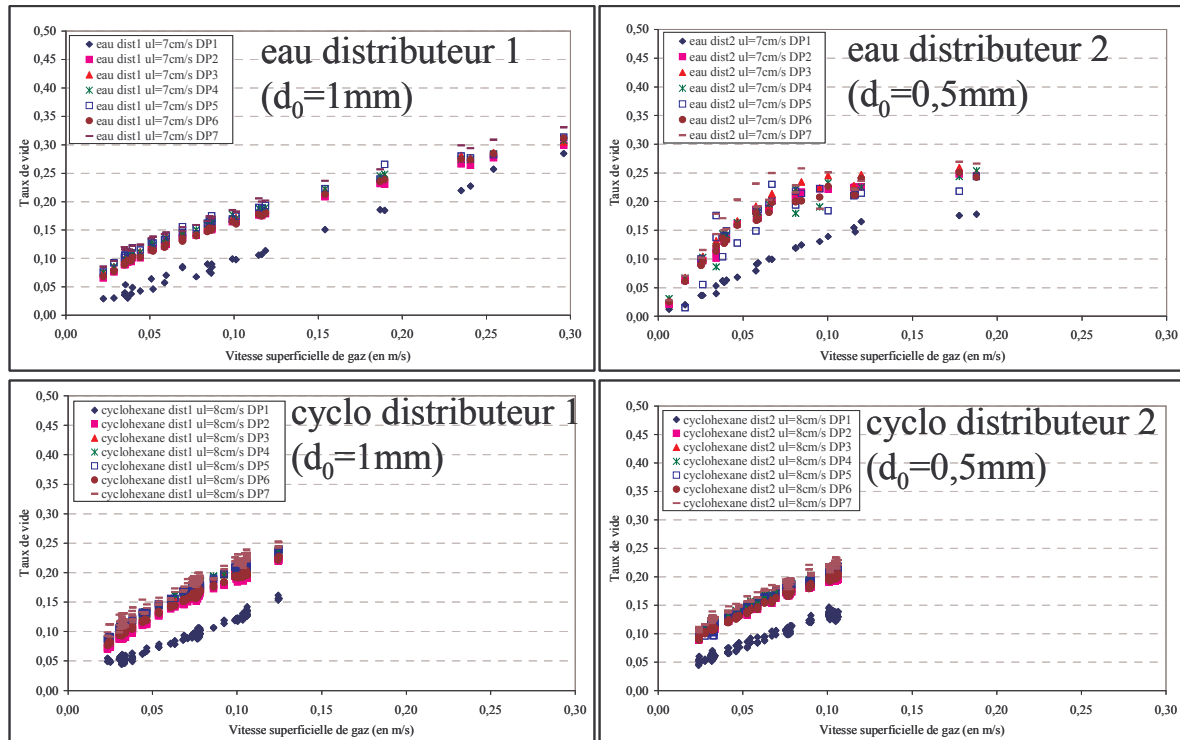


Figure 62 : Evolution axiale du taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz pour une vitesse de liquide de 7 à 8cm/s

Le capteur DP7 (le plus haut) conserve un taux de vide légèrement supérieur aux autres, ce qui témoigne de la persistance d'une zone de désengagement aux débits de liquide étudiés, mais il est moins éloigné des autres capteurs qu'en batch sur le liquide. Trois explications peuvent être apportées : soit la zone de désengagement est plus petite, soit elle est moins dense en bulles, soit les bulles y sont moins ralenties (désengagement non naturel des bulles). Le capteur DP1 (le plus bas, juste au-dessus du distributeur) présente, en présence d'une circulation liquide, un taux de vide nettement inférieur aux autres et évoluant quasi-linéairement avec la vitesse superficielle de gaz pour des vitesses inférieures à 15cm/s. En effet, à ce niveau, la vitesse des bulles est très supérieure à celle observée plus haut (cf. Figure 63), probablement car le jet liquide entrant accélère fortement les bulles : l'effet du débit liquide est sensible dès l'injection du gaz. Cet effet reste sensible dans le compartiment DP2 où la vitesse est légèrement supérieure à celle observée plus haut (DP3 à DP5) (cf. Figure 63).

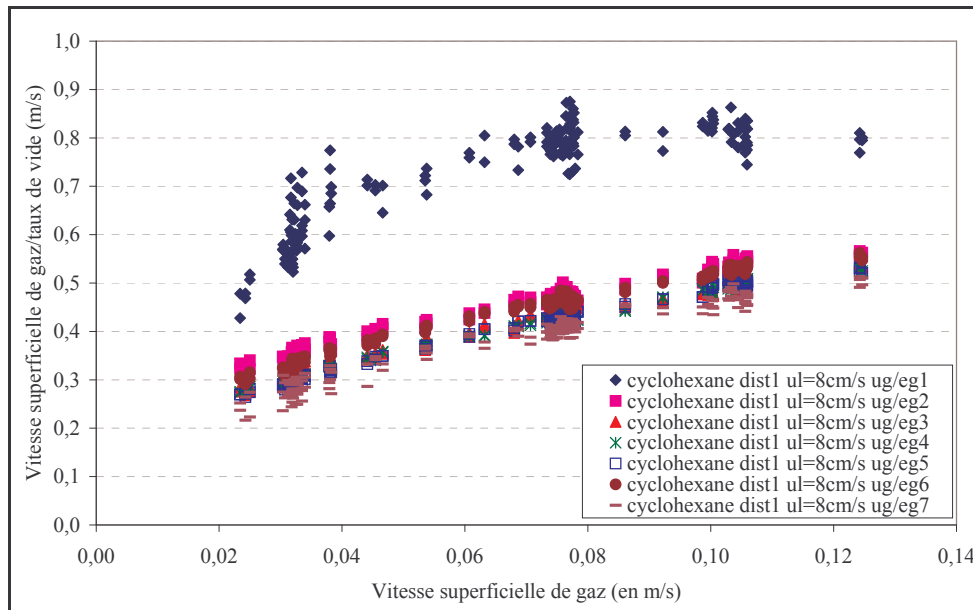


Figure 63 : Evolution axiale de la vitesse de bulles (cyclohexane, distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ ,  $u_L=8\text{cm/s}$ )

Les courbes de la Figure 64 et de la Figure 65 résument les effets du débit de liquide aux différentes hauteurs, respectivement pour l'eau et le cyclohexane.

#### Niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$ et $h=115\text{cm}$ )

Aux niveaux 2 et 3, l'effet du débit liquide tend à faire disparaître les régimes homogène et de transition.

#### Niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ )

Au niveau 1, pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), pour  $u_L=3,5$  ou  $4\text{cm/s}$ , l'effet du débit liquide est visible à faibles débits gazeux mais s'atténue à plus fortes vitesses, alors que pour  $u_L=7$  ou  $8\text{cm/s}$ , l'effet du débit liquide est visible sur toute la gamme de vitesses gazeuses étudiée et tend vers un comportement linéaire avec  $u_G$ . Il semble que les effets du débit liquide soit tributaire de  $u_G$  : l'écoulement est déterminé par  $u_L$  à faibles  $u_G$ , alors qu'à fortes  $u_G$ , l'effet des bulles redevient prépondérant, la transition entre ces deux tendances s'effectuant pour une valeur de  $u_G$  fonction de  $u_L$ .

Pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), l'effet du débit liquide est, comme pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), plus net à  $u_L=7\text{cm/s}$ , mais, pour l'eau, le comportement observé dévie du comportement linéaire pour  $u_G>10\text{cm/s}$  (cf. Figure 64).

La différence entre les deux distributeurs peut s'expliquer par des tailles de bulles initiales différentes. Pour  $u_L=7\text{cm/s}$ , l'écoulement liquide est turbulent ( $Re_L=14000$ ) ; les petites bulles formées par le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) sont « bousculées » et vont, lorsqu'elles sont assez nombreuses, avoir tendance à coalescer. Avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les bulles sont plus grosses ; elles sont, dans la même gamme de vitesses, moins déviées par la turbulence liquide car leur vitesse relative est plus forte. Dans ce cas, il est surprenant de ne pas observer de changement de pente en cyclohexane (cf. Figure 65), milieu où les bulles sont plus petites à la formation qu'en eau ; la physico-chimie doit aussi influencer sur ce comportement (le cyclohexane est moins coalescent que l'eau).

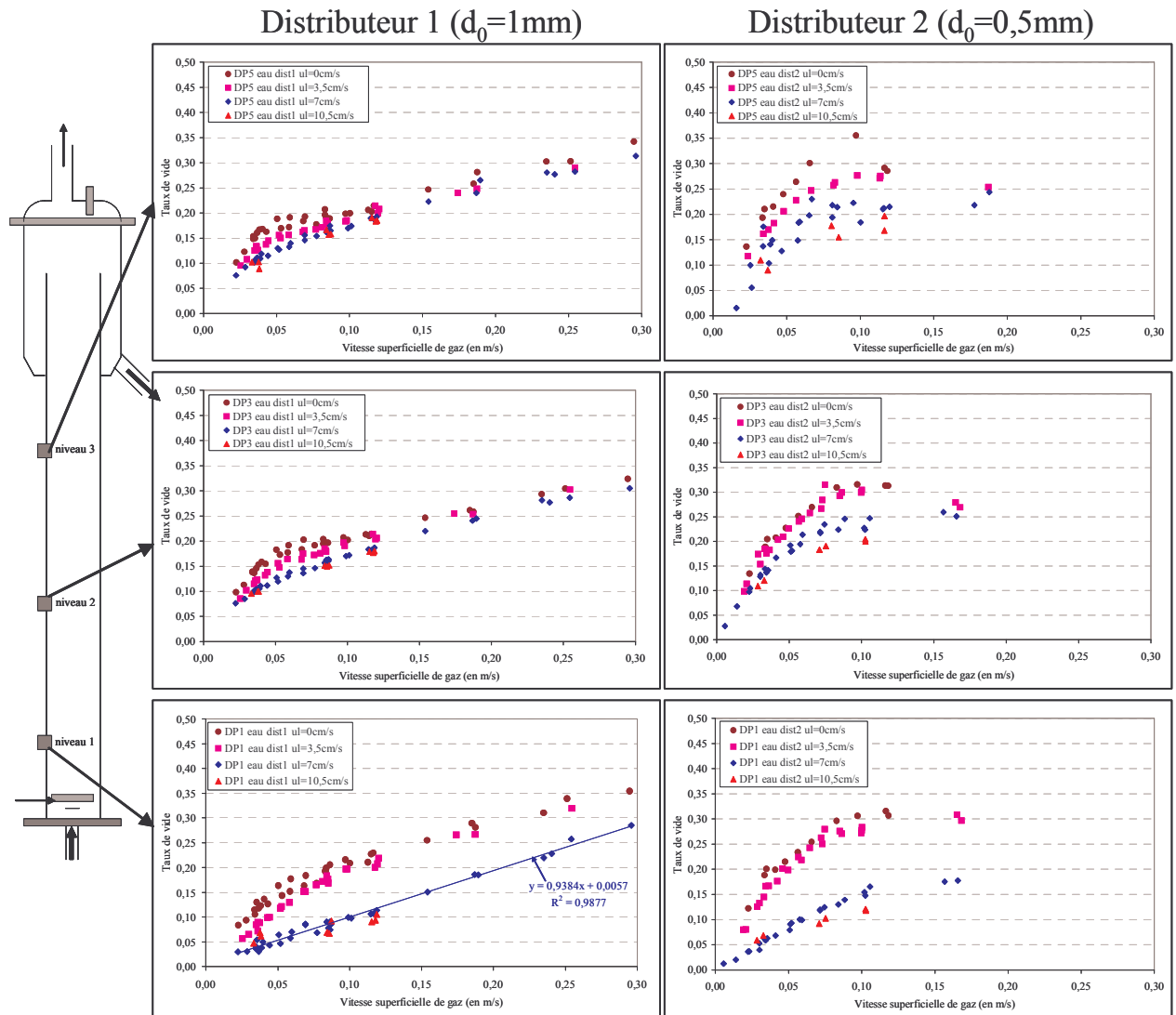


Figure 64 : Effet du débit liquide sur les mesures de taux de vide en eau

Remarque : Eau à  $u_l=7\text{cm/s}$

Avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), le taux de vide augmente linéairement avec le débit gazeux. L'ordonnée à l'origine de cette droite est quasiment nulle et sa pente est proche de 1. Ce comportement est caractéristique de bulles de tailles initiales indépendantes de  $u_G$ ; cette taille serait a priori ici imposée en partie par le distributeur et le débit liquide.

Avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), un changement de pente est observé à partir de  $10\text{cm/s}$ . Au-delà, le taux de vide varie peu, ce qui pourrait correspondre à un grossissement des bulles; l'effet du débit liquide diminue.

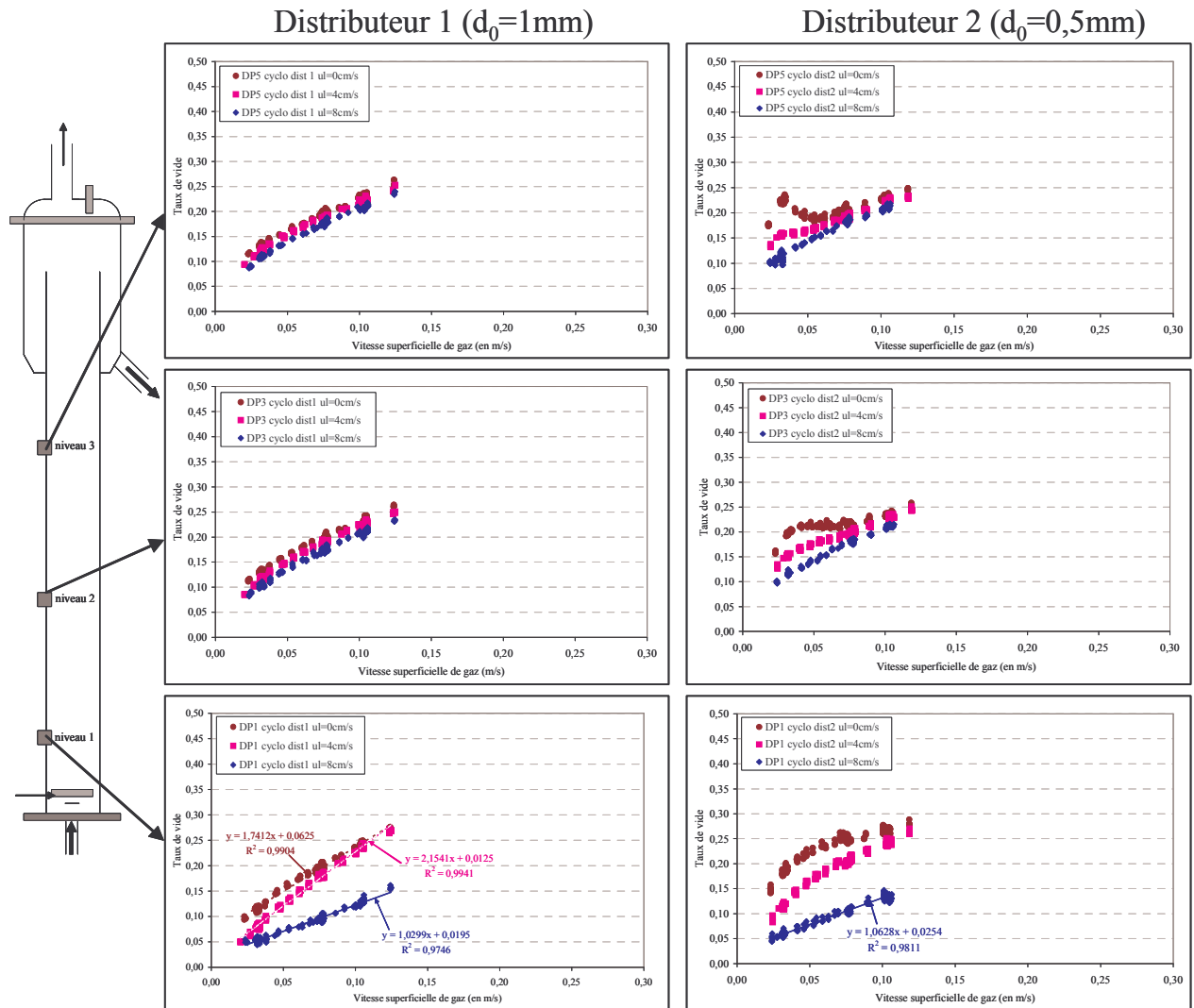


Figure 65 : Effet du débit liquide sur les mesures de taux de vide en cyclohexane

Effet du milieu

En présence de circulation liquide, l'effet du milieu n'est pas modifié (cf. Figure 66) : le taux de vide est supérieur en cyclohexane.

**En résumé :**

*\_ L'effet de la vitesse de liquide est beaucoup plus net au niveau 1 (h=25cm) ; l'allure des courbe est plus linéaire, surtout à  $u_L$  élevé ; l'effet du débit liquide semble résulter d'un compromis entre les vitesses de liquide et de gaz.*

*\_ Aux niveaux 2 et 3 (h=65cm et h=115cm), les tendances sont identiques à celles visualisées en global sur l'ensemble de la colonne : disparition des régimes homogène et de transition.*

*Le débit liquide déstructure totalement l'écoulement en annihilant l'effet du distributeur, mais pas celui du milieu : le taux de vide en cyclohexane est supérieur à celui en eau en régime hétérogène.*

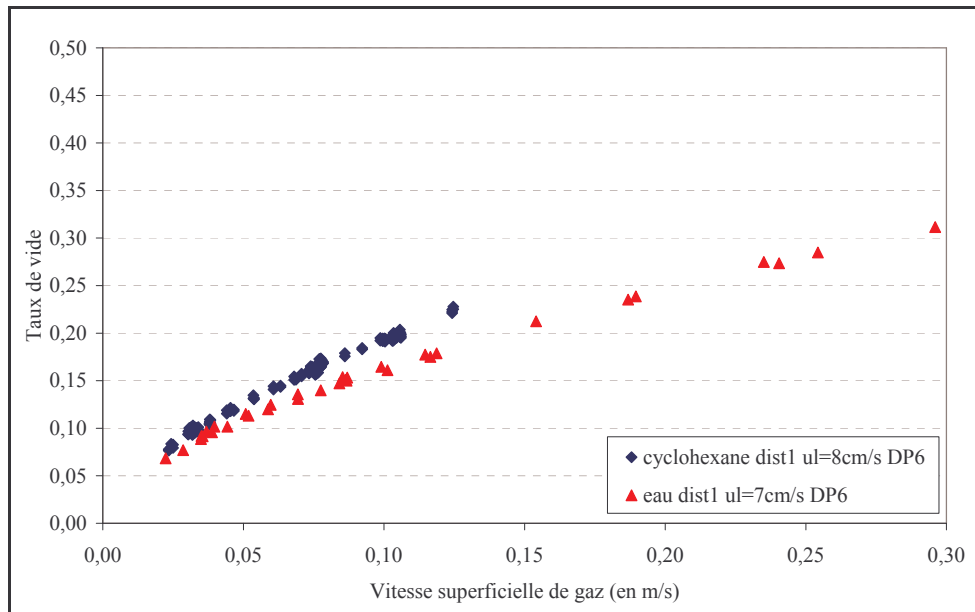


Figure 66 : Evolution du taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz pour  $u_L=7-8\text{cm/s}$  en eau et en cyclohexane

### C.III. TAUX DE VIDE LOCAL, FREQUENCE DE BULLAGE

Les premières grandeurs locales étudiées, et les plus fiables, sont le taux de vide, la fréquence de bullage et leur rapport.

#### C.III.1. Comparaison des taux de vide locaux et globaux

En premier lieu, le bon accord entre les valeurs locales et globales est vérifié. Les écarts entre les taux de vide globaux et locaux intégrés sur une section sont représentés pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) sur la Figure 67 (les résultats sont du même ordre pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )).

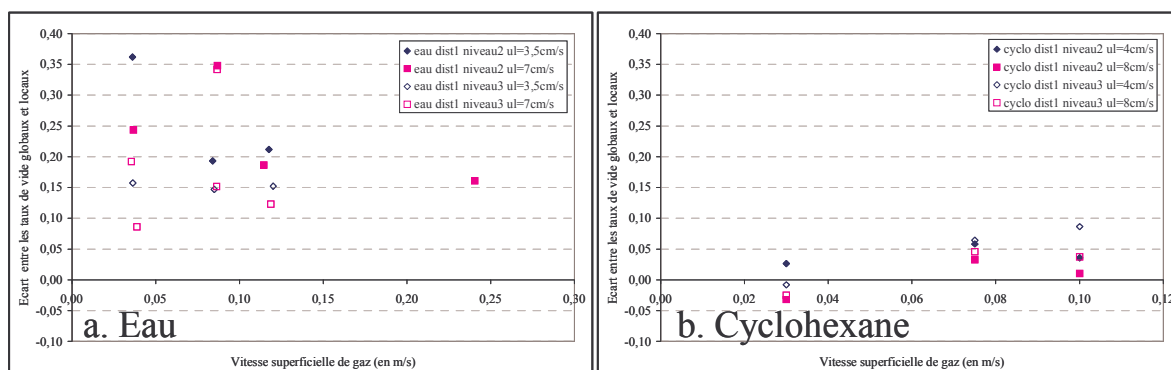


Figure 67 : Ecart entre les valeurs de taux de vide obtenus par capteur de pression et par intégration des valeurs locales issues de la sonde optique

Comme en écoulement batch, l'accord entre ces deux valeurs est bien meilleur en cyclohexane qu'en eau (pour les niveaux 2 et 3,  $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ).



### C.III.2. Profils

La Figure 68 propose des profils de taux de vide et de fréquences obtenus lors de la mise en place de la circulation liquide.

#### Niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ )

Au niveau 1, les valeurs centrales de taux de vide et de fréquences de bulles évoluent peu avec la vitesse de liquide, mais les profils se bombent très nettement lors de l'introduction d'une circulation liquide, et ce particulièrement entre  $u_L=4\text{cm/s}$  et  $u_L=8\text{cm/s}$ . Ces observations sont en accord avec les données globales, mettant en évidence un effet du débit liquide beaucoup plus prononcé dans cette zone (pour  $u_G=7,6\text{cm/s}$ ).

*Ces tendances confirment a priori qu'au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ) le liquide arrive en paroi avec une vitesse importante sous l'effet de la plaque situé en bas de colonne (faible section de colonne disponible pour son écoulement, cf. Figure 61) et chasse les bulles vers le centre. Cet effet ne peut être visible que si le rapport entre les débits liquide et gazeux est suffisant.*

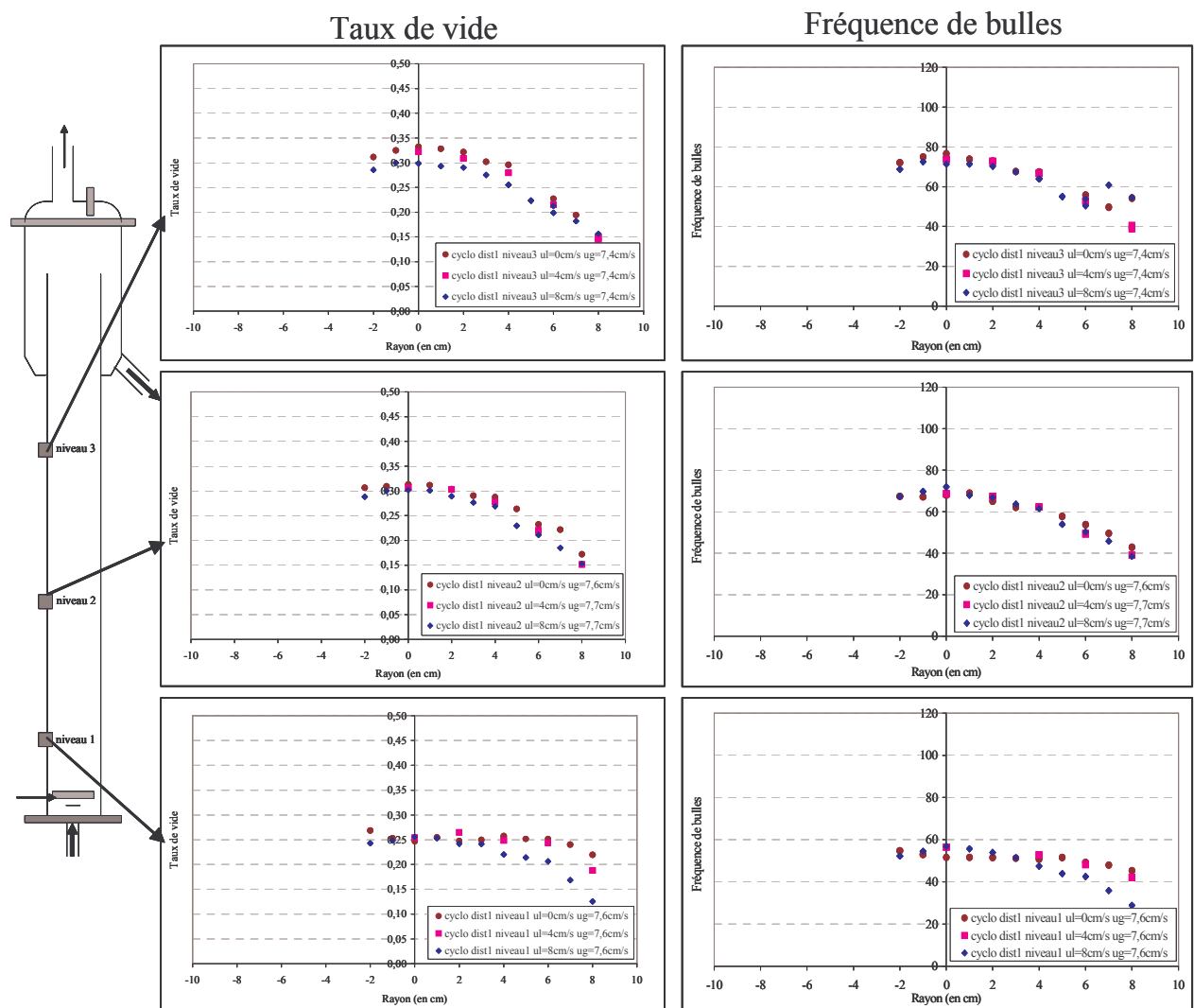


Figure 68 : Effet de la vitesse liquide sur les profils de taux de vide et de fréquence de bulles (cyclohexane, distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ ,  $u_G=7,6\text{cm/s}$ )

*Niveaux 2 et 3 (h=65cm, h=115cm)*

Pour évaluer l'évolution de l'allure des profils avec la vitesse liquide, les différences, minimales aux niveaux 2 et 3 (h=65cm et h=115cm), sont analysées en profils normés par la valeur centrale. En outre, les évolutions à ces deux niveaux étant similaires, l'analyse des profils dans le cœur de la colonne porte essentiellement sur l'un d'entre eux, le niveau 2 (h=65cm). A ce niveau, La Figure 69 représente, pour trois vitesses gazeuses, les profils normés de taux de vide et de fréquences de bulles pour l'eau avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ).

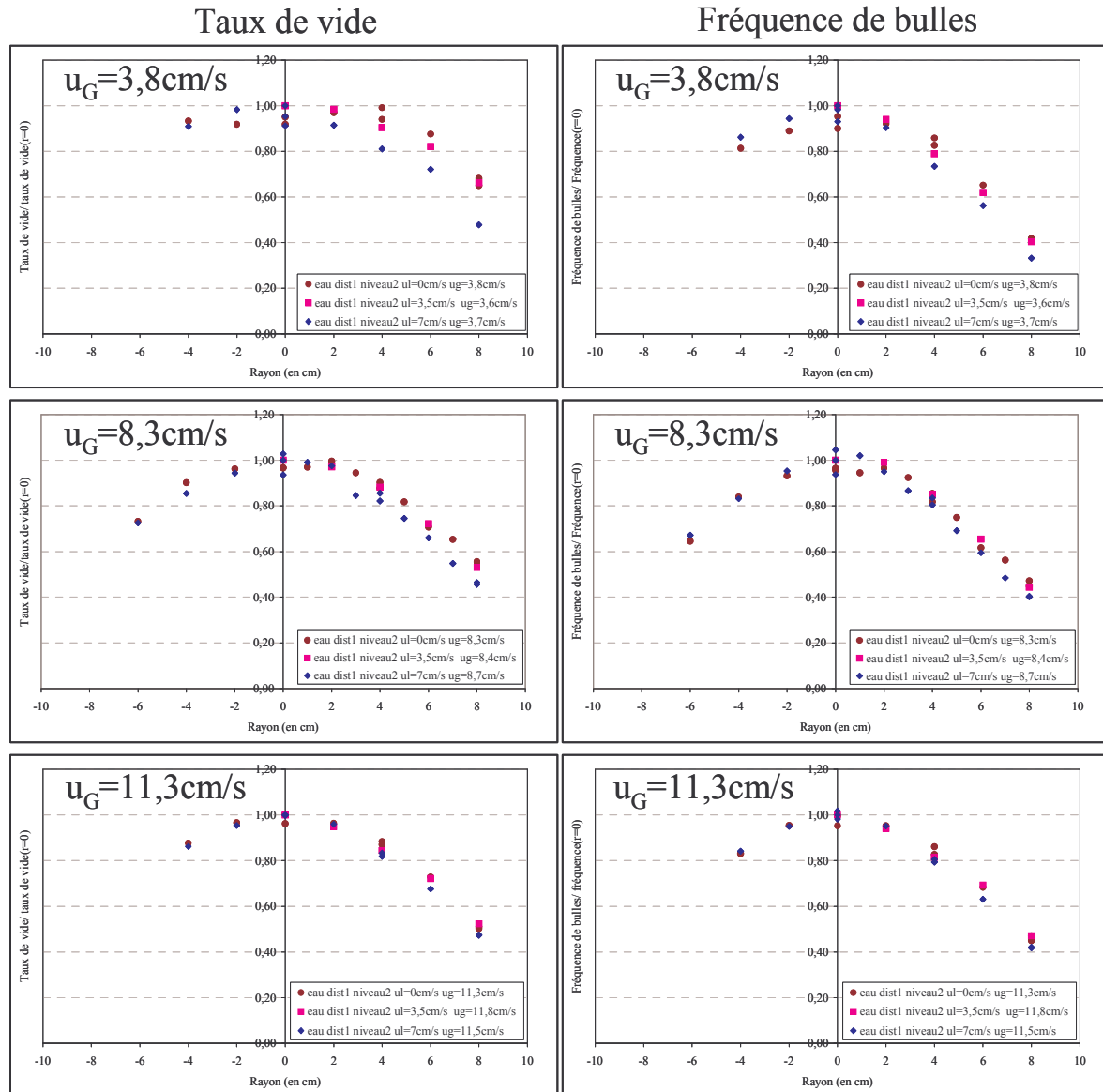


Figure 69 : Effet du débit liquide sur les profils normés de taux de vide et de fréquence de bulles (eau distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ , niveau 2, h=65cm)

**Les profils se bombent légèrement lorsque la vitesse de liquide augmente, tant en taux de vide qu'en fréquences de bulles.**

Cet effet est plus marqué lorsqu'un changement de régime hydrodynamique est observé ( $u_G=3,8\text{cm/s}$ ) : la circulation liquide accentue les recirculations lors d'un fonctionnement non hétérogène en batch.

### C.III.3. Evolution des valeurs sur l'axe

Les allures des profils évoluant peu, les grandeurs sur l'axe peuvent être comparées. Comme en batch, leur comparaison aux valeurs globales permet d'envisager l'allure des profils radiaux (plus ou moins bombés), pour une large gamme de vitesses gazeuses et pas seulement pour les quelques débits gazeux ayant fait l'objet de profils radiaux. Les valeurs locales considérées ici sont celles des niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ), les comportements au niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ) ne pouvant pas être caractérisés par la seule valeur centrale.

#### C.III.3.a. Taux de vide

Les valeurs de taux de vide sur l'axe présentent les mêmes tendances que les courbes globales (cf. Figure 70) : le taux de vide diminue avec la vitesse de liquide, surtout lorsqu'un changement de régime s'effectue avec  $u_L$ .

*La comparaison de ces données aux valeurs globales étend les observations précédentes à toute la gamme de vitesses de gaz : les profils sont bombés à une vitesse de gaz plus faible, correspondant à une valeur de transition plus faible, lorsque la vitesse de liquide augmente. Une fois le régime hétérogène établi, le profil est peu modifié par une augmentation supplémentaire de  $u_L$ .*

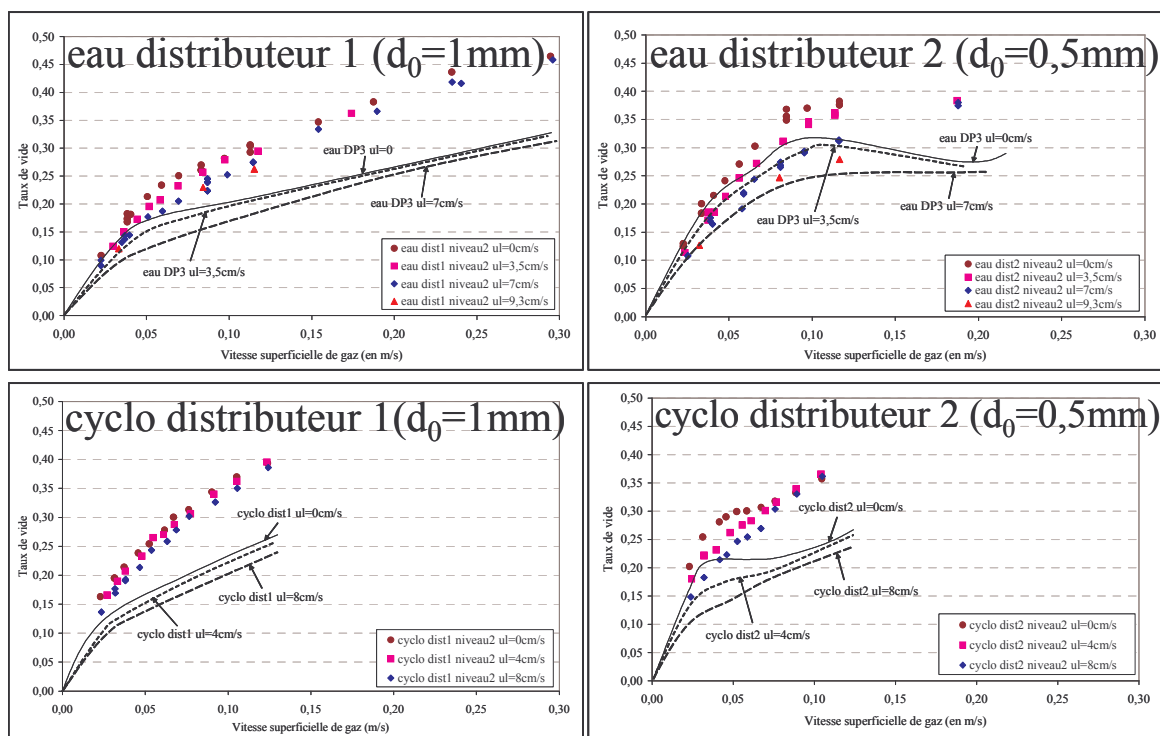


Figure 70 : Effet du débit liquide sur les valeurs de taux de vide sur l'axe au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ )

#### Effet du niveau

Lorsque les courbes des niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) sont superposées (cf. Figure 71), il apparaît que le taux de vide sur l'axe augmente dans les mêmes proportions entre les deux niveaux quelles que soient les vitesses de liquide (nulle ou non) et de gaz. Dans la mesure où l'évolution axiale du taux de vide global est négligeable, les profils sont, comme en fonctionnement batch, plus bombés au niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ). Comme en batch, le

cyclohexane présente une évolution significative entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) alors qu'en eau l'évolution est à peine perceptible.

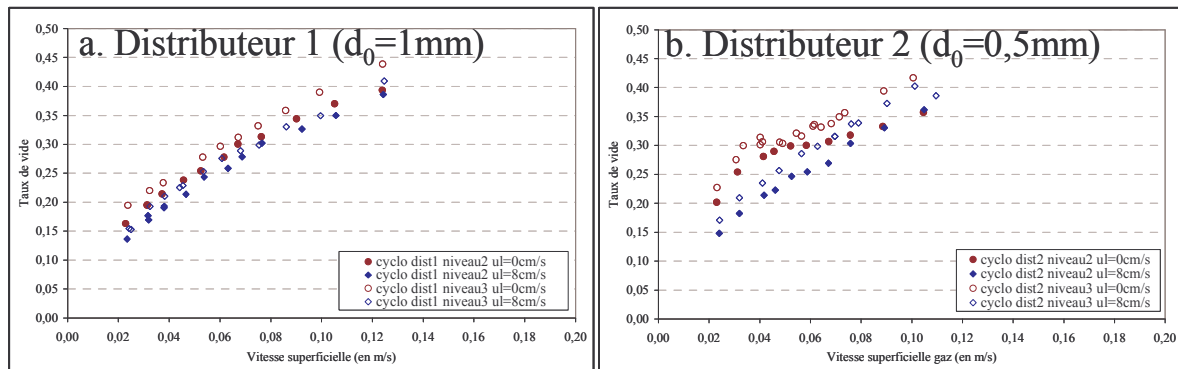


Figure 71 : Effet de la circulation liquide aux niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) (cyclohexane)

### C.III.3.b. Fréquence de bullage

Les valeurs de fréquences de bulles sur l'axe (cf. Figure 72) présentent les mêmes tendances que les courbes de taux de vide globales et locales sur l'axe (cf. Figure 70). En outre, comme en taux de vide, ces valeurs augmentent légèrement entre les niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) (non représenté ici).

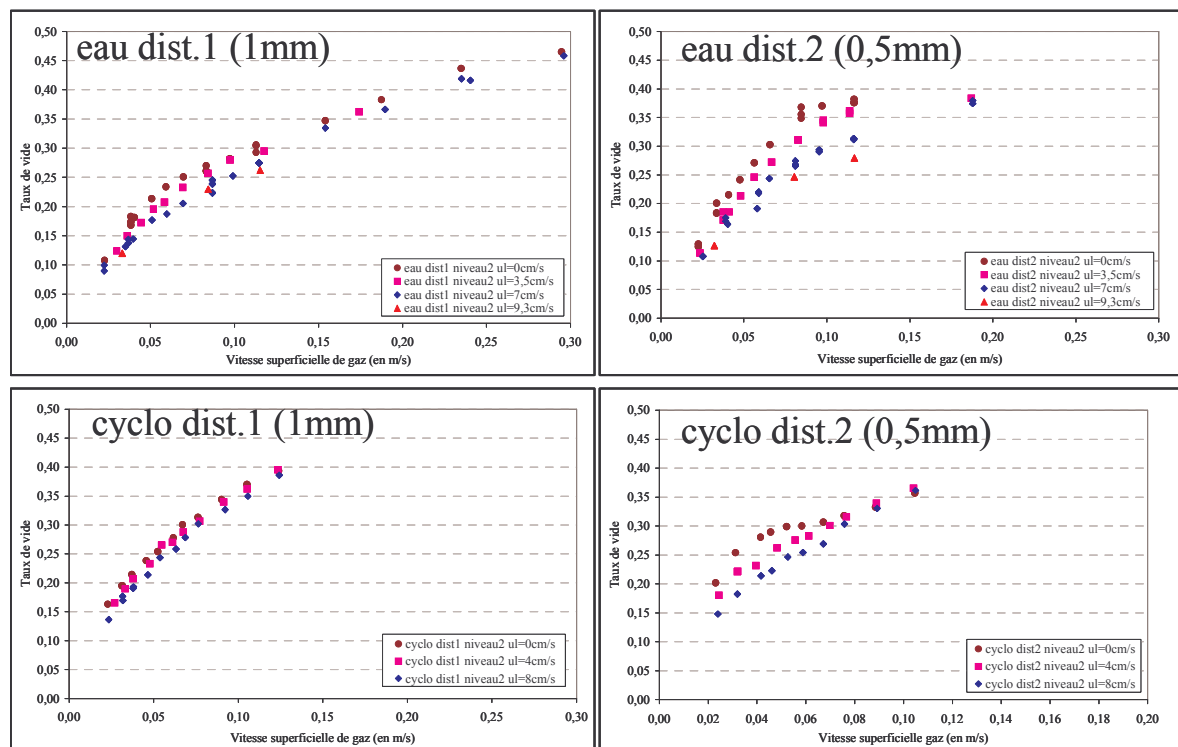


Figure 72 : Effet du débit liquide sur les valeurs centrales de fréquence de bulles au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ )

### C.III.3.c. Rapport entre la fréquence de bullage et le taux de vide

Pour évaluer l'impact respectif du taux de vide et de la fréquence de bulles, le rapport entre ces deux paramètres est tracé (cf. Figure 73). Les valeurs de  $\varepsilon_G/f_B$  sur l'axe évoluent très peu avec la vitesse de liquide, excepté pour le cas de l'eau avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), cas où l'effet du débit liquide était déjà le plus marqué sur les autres critères. Dans ce cas, pour  $u_G=8-16\text{cm/s}$ , le rapport  $\varepsilon_G/f_B$  tend à augmenter avec le débit de liquide, c'est-à-dire que  $d_B/v_B$  augmente. Il est fort probable que dans ce rapport ce soit l'augmentation de  $d_B$  qui soit prédominante, car la coalescence peut se produire pour  $u_L$  non nul (régime hétérogène, cf. §C.II.2) et non à débit liquide nul (la colonne opère encore en régime homogène).

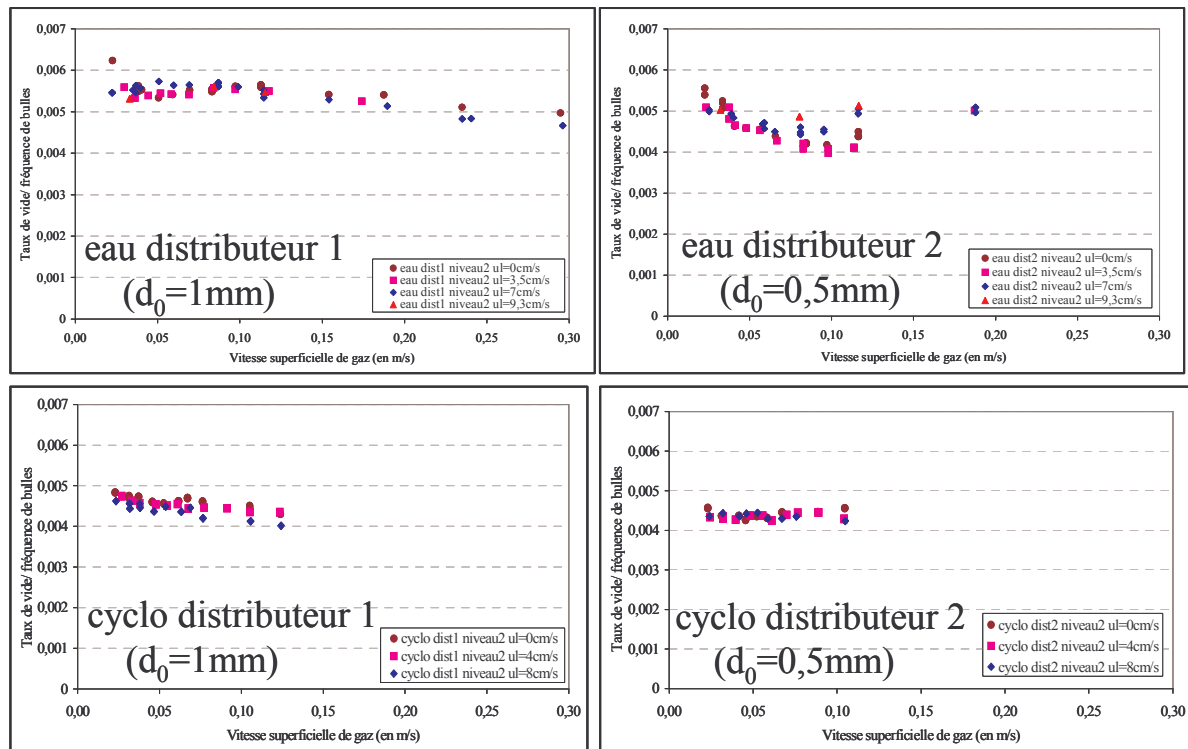


Figure 73 : Effet du débit liquide sur les valeurs de  $\varepsilon_G/f_B$  sur l'axe au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ )

## C.IV. AIRE INTERFACIALE ET DIAMETRE DE BULLES

L'effet de la vitesse de liquide va à présent être observé à la lumière des valeurs capitales d'aire interfaciale et de diamètres de bulles.

### C.IV.1. Profils

Des profils observés pour les trois niveaux d'étude sont présentés pour le cas  $u_G=10\text{cm/s}$  en cyclohexane sur la Figure 74 ; les tendances sont similaires pour les autres débits et en eau. Les profils des niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ) montrent que les profils de diamètres de Sauter sont assez plats, quel que soit le débit de liquide, alors que les profils d'aires interfaciales sont plus bombés ; ces derniers reflètent la forme des profils de taux de vide. Les tendances axiales de ces grandeurs, identiques à celles vues en batch, ne sont pas reprises ici.

Il faut noter que, du fait de l'incertitude de ces mesures, certains effets du débit liquide ne sont pas analysés. Notamment, le niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ) n'est pas étudié, car la trajectoire des bulles est très incertaine à cette hauteur, ce qui rend probable la mauvaise estimation des valeurs de vitesses par la technique de la sonde optique.

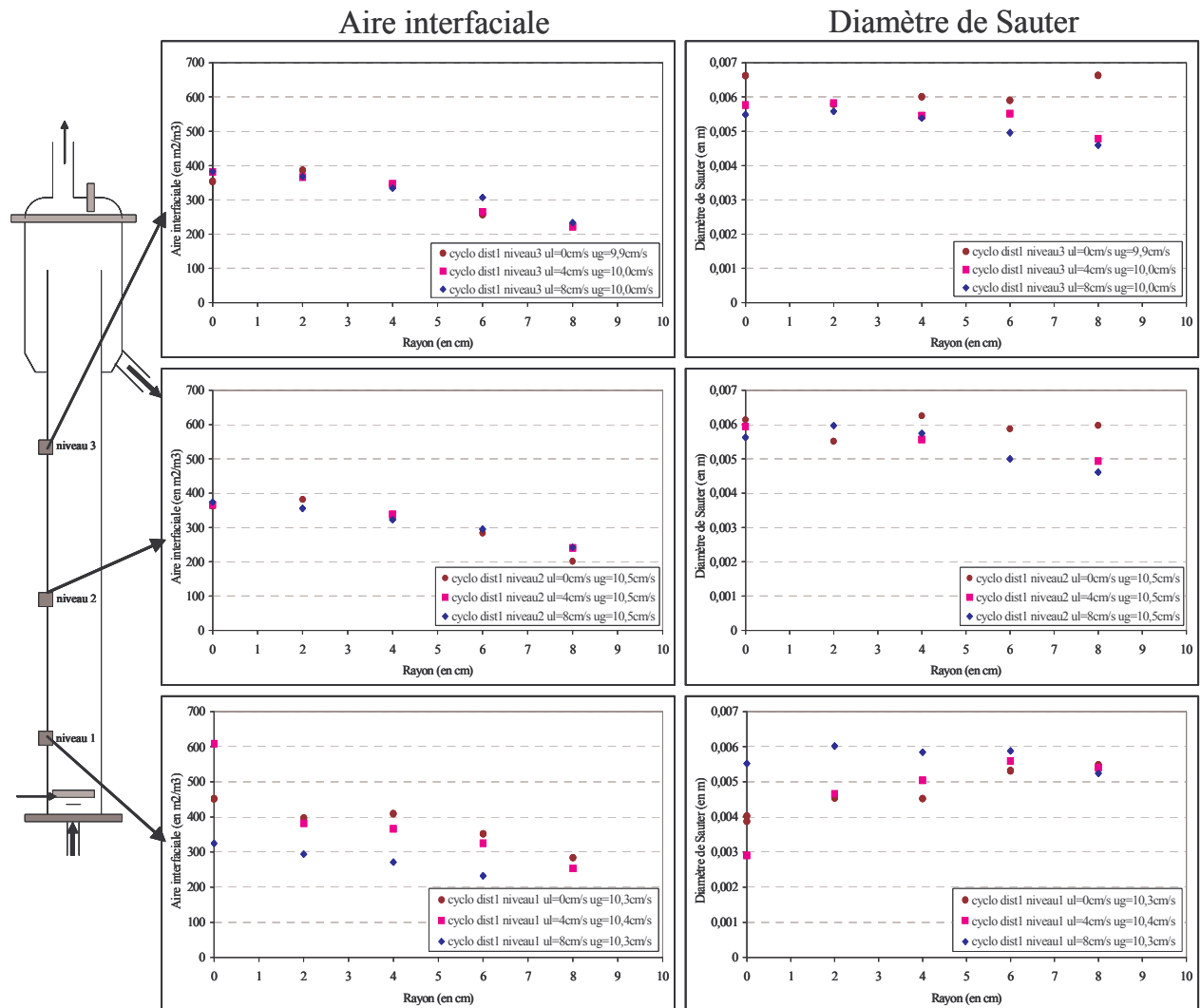


Figure 74 : Effet du débit liquide sur les profils d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter (cyclohexane, distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ ,  $u_G=10\text{cm/s}$ )

### C.IV.2. Valeurs sur l'axe (niveau 2, $h=65\text{cm}$ )

Aux niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ ), les valeurs sur l'axe peuvent être comparées. Les mêmes tendances étant observés pour ces deux niveaux, seules les résultats obtenus au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) sont détaillés ici.

C.IV.2.a. Diamètre de Sauter

*Le diamètre de Sauter sur l'axe augmente avec le débit de liquide, lorsque le régime hydrodynamique varie en fonction du débit de liquide (faibles  $u_G$ , cf. Figure 75), car, selon le régime hydrodynamique, les phénomènes de coalescence sont ou non présents. En régime hétérogène, la taille des bulles n'évolue plus avec la vitesse liquide ; elle correspond à la taille d'équilibre entre la coalescence et la rupture, taille indépendante de la vitesse de liquide dans notre gamme d'étude. Ce comportement est en accord avec les tendances déjà énoncées.*

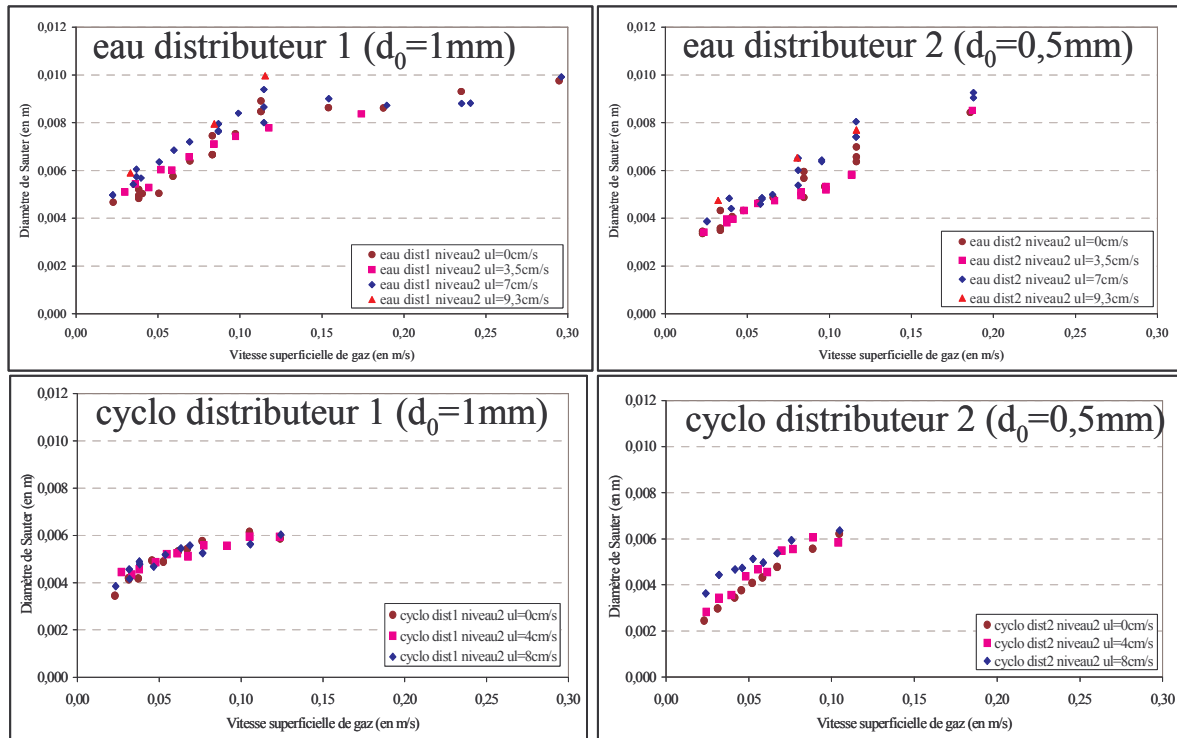


Figure 75 : Effet du débit liquide sur les valeurs de diamètres de Sauter sur l'axe

C.IV.2.b. Aire interfaciale

L'aire interfaciale présente également deux comportements distincts selon le débit gazeux (cf. Figure 76) : à faibles débits gazeux, l'aire interfaciale diminue avec le débit de liquide alors qu'à forts débits gazeux cette diminution est minimale, et ce particulièrement dans le cas du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ).

Ces tendances sont comparées aux résultats en taux de vide (cf. Figure 70) et en diamètre de Sauter (cf. Figure 75), paramètres dont dépend l'aire interfaciale. A faibles débits gazeux, le diamètre de Sauter augmente et le taux de vide diminue : la diminution de l'aire interfaciale, résultant de ces deux tendances est donc très nette. A plus forts débits gazeux, le diamètre de Sauter ne varie plus alors que le taux de vide diminue légèrement avec la vitesse du liquide : l'aire interfaciale diminue très légèrement avec la vitesse de liquide.

*L'effet du débit liquide est a priori défavorable pour le transfert à faible débit de gaz (diminution de l'aire interfaciale), particulièrement lorsqu'un distributeur à petits trous est employé (distributeur 2,  $d_0=0,5\text{mm}$ ). Il devient toutefois négligeable en régime hétérogène.*

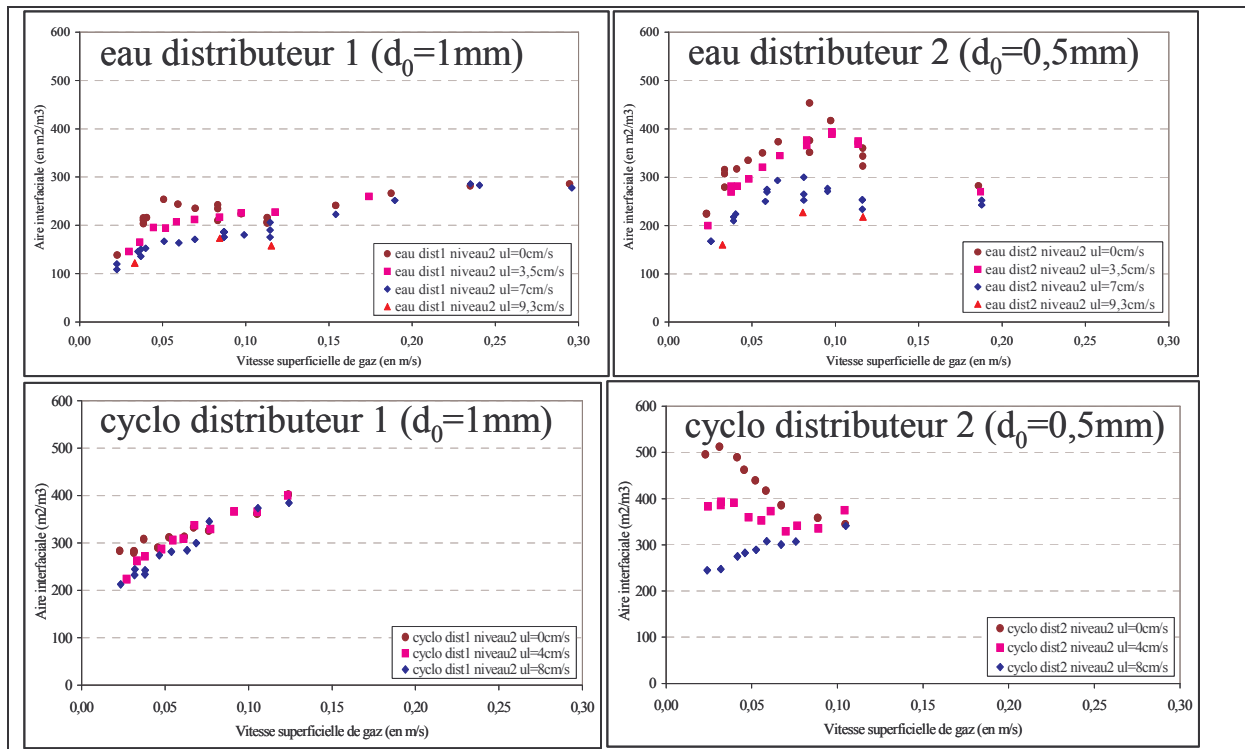


Figure 76 : Effet du débit liquide sur les valeurs d'aires interfaciales sur l'axe

## C.V. CONCLUSIONS

L'ajout d'une vitesse de liquide de 3,5 à 8cm/s dans la colonne a un effet similaire quels que soient le milieu et le distributeur. Par contre, il a des effets différents selon la position axiale et le débit gazeux dans la colonne.

La zone d'injection est très affectée par l'introduction de liquide en bas de colonne : le taux de vide diminue fortement dans une proportion qui semble en rapport avec le rapport  $u_L/u_G$ .

Dans le cœur de la colonne, l'effet du débit liquide est aussi très sensible : il tend à imposer un écoulement hétérogène dans toute la gamme de débit gazeux. A faible vitesse de gaz, le régime hétérogène s'installe progressivement avec l'augmentation de  $u_L$ , ce qui engendre de fortes diminutions du taux de vide et de l'aire interfaciale avec  $u_L$ , ceci est particulièrement notable lorsqu'un distributeur efficace est utilisé (diminution de l'aire interfaciale de 500 à 200m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> dans le cas du cyclohexane). A plus fortes vitesses de gaz, lorsque le régime hétérogène est établi pour toute la gamme de vitesses de liquide, l'effet de la circulation liquide est moindre tant sur l'écoulement gazeux (le taux de vide ne diminue que légèrement, les diamètres de Sauter et les aires interfaciales sont peu modifiés), que sur l'écoulement liquide (augmentation légère du nombre de RAC).

L'effet de la vitesse de liquide est donc surtout sensible à faibles vitesses de gaz avec un distributeur à petites orifices et en eau, conditions favorisant en écoulement batch le régime homogène. Ainsi, en conditions industrielles (cyclohexane, distributeur 1,  $d_0=1$ mm, fortes  $u_G$ ), l'effet de  $u_L$  n'est a priori pas néfaste au transfert.



## PARTIE D : EFFET DES PLATEAUX PERFORES

Le dernier paramètre étudié est encore plus rarement considéré en colonnes à bulles que la vitesse de liquide ; il s'agit de l'effet de l'introduction de plateaux perforés. Pour s'adapter à une utilisation industrielle, les plateaux utilisés ont une forte ouverture (30%) et de gros orifices (3cm) (cf. Figure 77b). Envisagés pour partitionner l'écoulement et le rendre plus « piston » en limitant la recirculation liquide, ils sont placés comme indiqués sur la Figure 77a. Cette étude, réalisée pour les trois milieux étudiés en colonne (eau, cyclohexane, olone), apporte une première contribution à la compréhension de l'influence des plateaux.

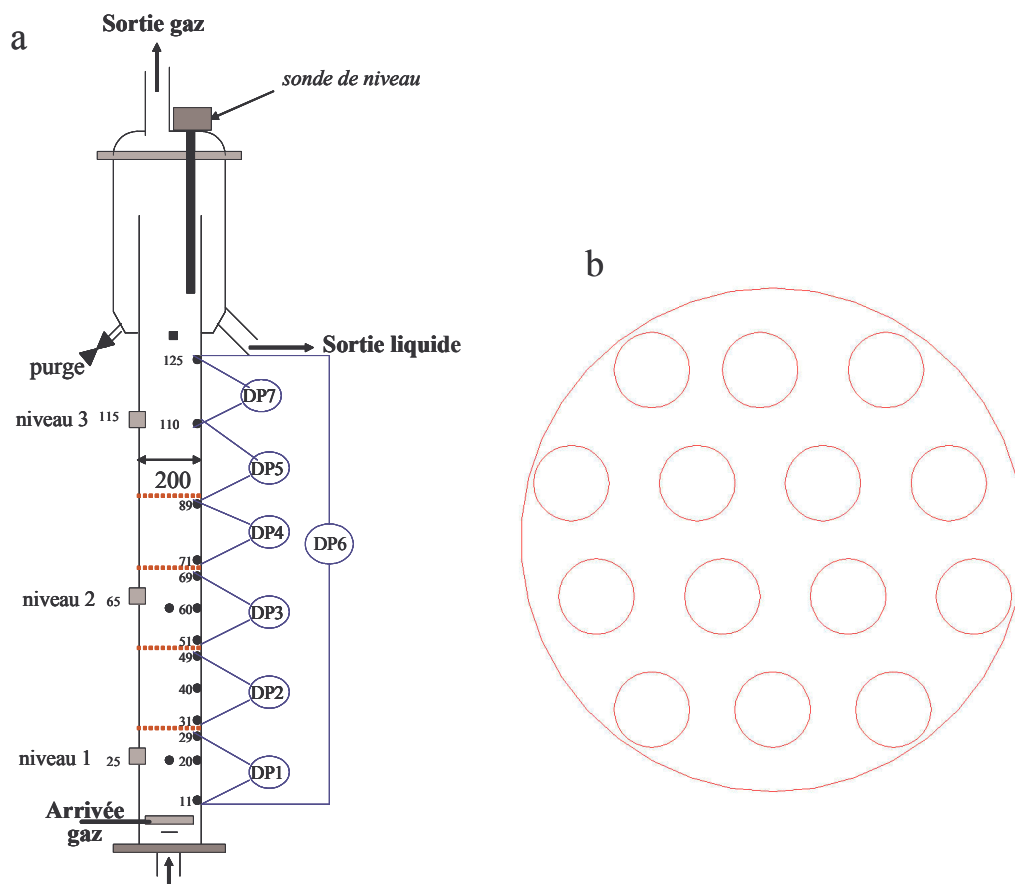


Figure 77 : Schéma de la colonne équipée de plateau (a) et d'un plateau perforé (b)

### D.I. EFFET DES PLATEAUX A DEBIT LIQUIDE NUL

Avant de s'intéresser au couplage des effets du débit liquide et des plateaux (cas industriel), l'ajout des plateaux est analysé en batch sur le liquide.

## D.I.1. Taux de vide global

### D.I.1.a. Allure générale

Le taux de vide global dans la colonne augmente en présence de plateaux : l'écart entre les taux de vide des cas avec et sans plateaux, nul à faible débit, se creuse progressivement avec l'augmentation du débit gazeux (cf. Figure 78).

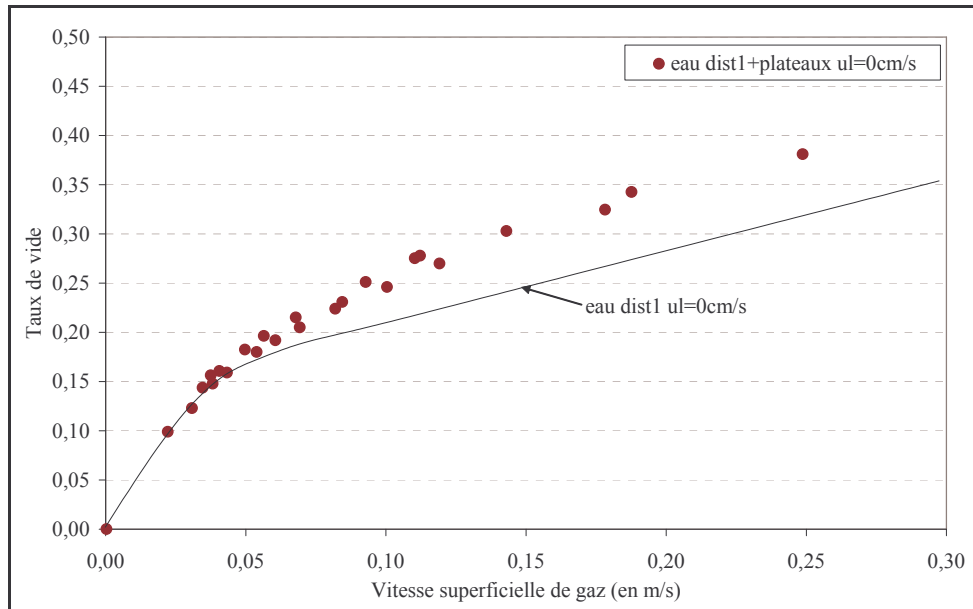


Figure 78 : Effet de l'introduction de plateaux sur le taux de vide global (eau)

**L'augmentation du taux de vide global en présence de plateaux, sensible surtout au-delà de 3-4cm/s, se retrouve avec les deux liquides organiques (cf. Figure 79).**

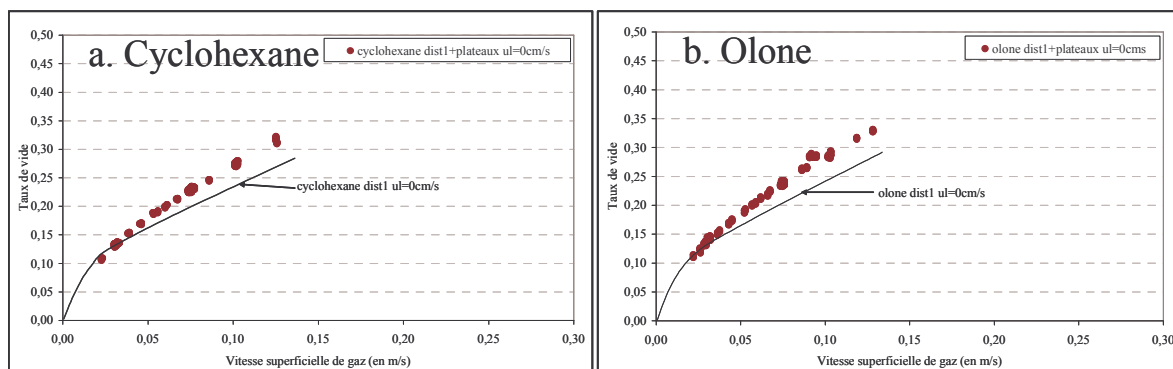


Figure 79 : Effet de l'introduction de plateaux sur le taux de vide global

L'addition de plateaux conduit aussi à une réduction des écarts de comportement entre les milieux, comme en témoigne la Figure 80 : tous les milieux présentent des taux de vide et des allures de courbes similaires. A forts débits cependant, des écarts subsistent entre l'eau et les milieux organiques, ceux-ci ayant, comme précédemment, un taux de vide supérieur.

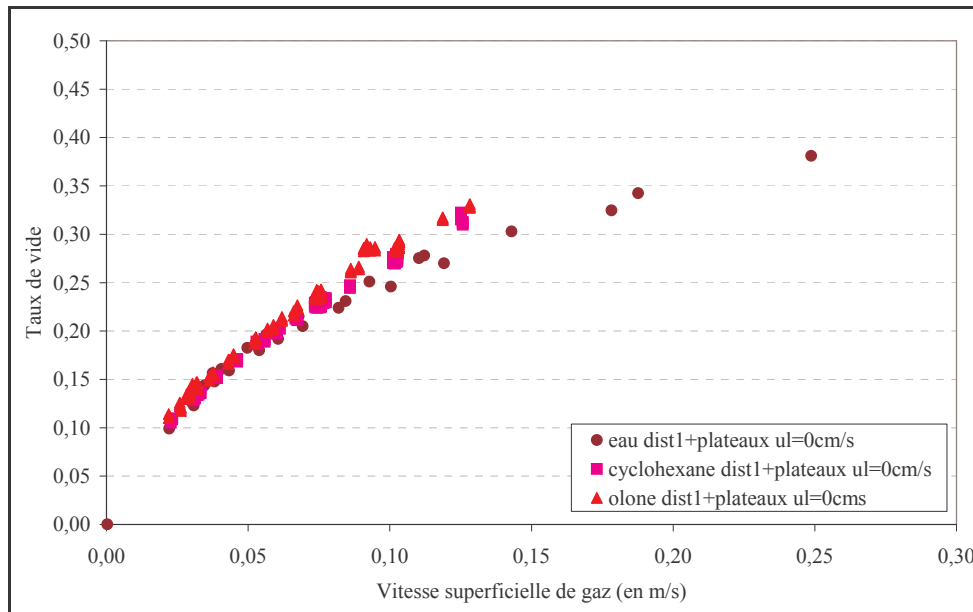


Figure 80 : Effet du milieu sur le taux de vide en présence de plateaux

Il faut préciser que la notion de régimes hydrodynamiques n'a plus de sens en présence de plateaux, car l'écoulement du liquide est fortement modifié.

### Vitesses

Dans la caractérisation de la colonne équipée de plateaux, la vitesse de la phase gazeuse ( $u_G/\varepsilon_G$ ) renseigne notamment sur l'importance de la recirculation liquide. La Figure 81a montre en ce domaine que les vitesses de bulles diminuent en présence de plateaux : la vitesse porteuse du liquide est a priori plus faible ; la recirculation macro-échelle est probablement gênée par les plateaux.

Les vitesses observées paraissent en outre augmenter linéairement avec la vitesse de gaz (cf. Figure 81b). Les relations issues de cette observation diffèrent peu ou pas avec le milieu :  $v_G \approx (1,8 \text{ à } 2)u_G + (0,17 \text{ à } 0,19)$  ; en présence de plateaux, la vitesse du gaz semble fixée par la géométrie de la colonne.

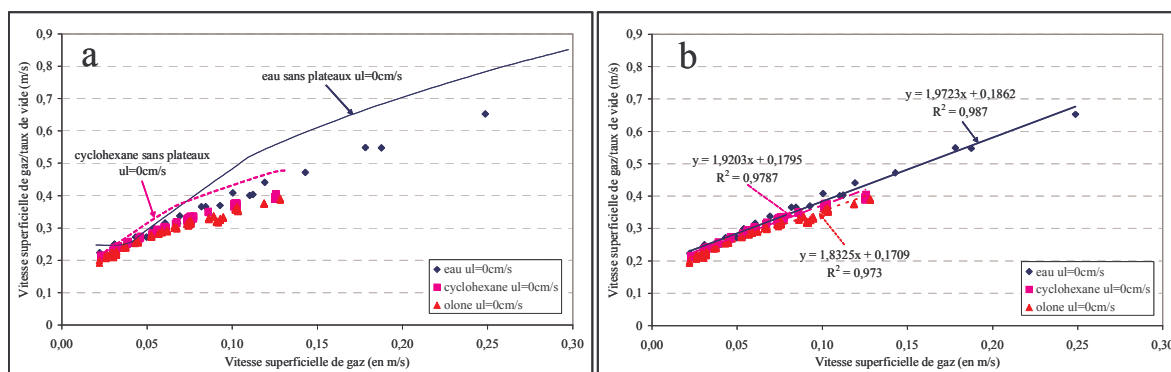


Figure 81 : Effet des plateaux sur la vitesse de la phase gazeuse

### D.I.1.b. Evolution axiale

A faibles vitesses de gaz ( $u_G < 4 \text{ cm/s}$ ), lorsque l'effet des plateaux est faible, le taux de vide n'évolue pas axialement (cf. Figure 82, où les capteurs sont placés comme spécifié sur la

Figure 77a). Au-delà de cette vitesse, l'examen de l'évolution axiale du taux de vide permet de distinguer trois régions :

- \_ La zone de distribution (DP1),
- \_ Les zones entre deux plateaux (DP2 à DP4),
- \_ La zone après le dernier plateau (DP5 et DP7).

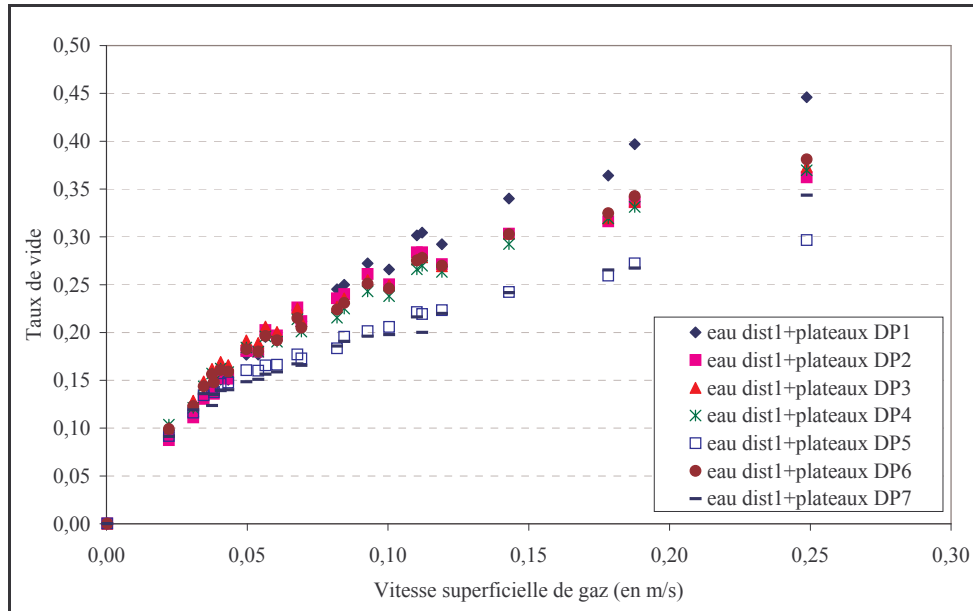


Figure 82 : Evolution axiale du taux de vide en présence de plateaux (eau)

Dans la zone du distributeur (DP1), pour  $u_G > 10-12 \text{ cm/s}$ , le taux de vide excède celui des compartiments entre deux plateaux quel que soit le milieu étudié (cf. Figure 82 et Figure 83). Les taux de vide entre deux plateaux (capteurs DP2 à DP4) sont quant à eux tous identiques : les trois compartiments sont équivalents ; les résultats de l'un d'entre eux sont extrapolables aux deux autres. Si davantage de plateaux avaient été installés, il est probable qu'ils auraient eu le même comportement.

Enfin, en haut de colonne, après le dernier plateau (DP5 et DP7), le taux de vide est nettement inférieur à celui des espaces entre plateaux et rappelle un peu celui obtenu en colonne vide (sans plateau) ; les bulles, libérées de l'obstacle des plateaux, montent plus vite.

Notons que sur la hauteur de colonne étudiée, aucune zone de désengagement n'est mise en évidence, mais rien ne laisse présager qu'elle n'existe pas plus haut.

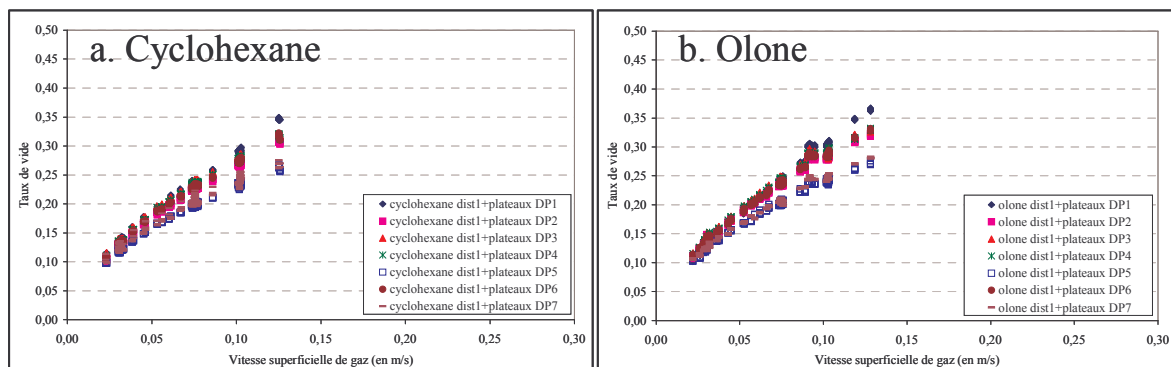


Figure 83 : Evolution axiale du taux de vide en présence de plateaux

Lorsque les taux de vide sont transformés en vitesse de phase ( $u_G/\varepsilon_G$ ), la séparation en trois régions peut être conservée, comme l'indique la Figure 84. Etablies ici pour l'eau, ces tendances sont identiques pour les autres milieux :

- \_ La vitesse dans le compartiment 1 (zone du distributeur) est inférieure ou égale à celle des espaces entre plateaux à fortes vitesses ( $u_G > 10-12\text{cm/s}$ ).
- \_ La vitesse entre deux plateaux (compartiments 2 à 4) ne dépend pas du compartiment étudié.
- \_ La vitesse après le dernier plateau est supérieure à celle observée ailleurs dans la colonne ; des recirculations liquides plus intenses sont possibles.

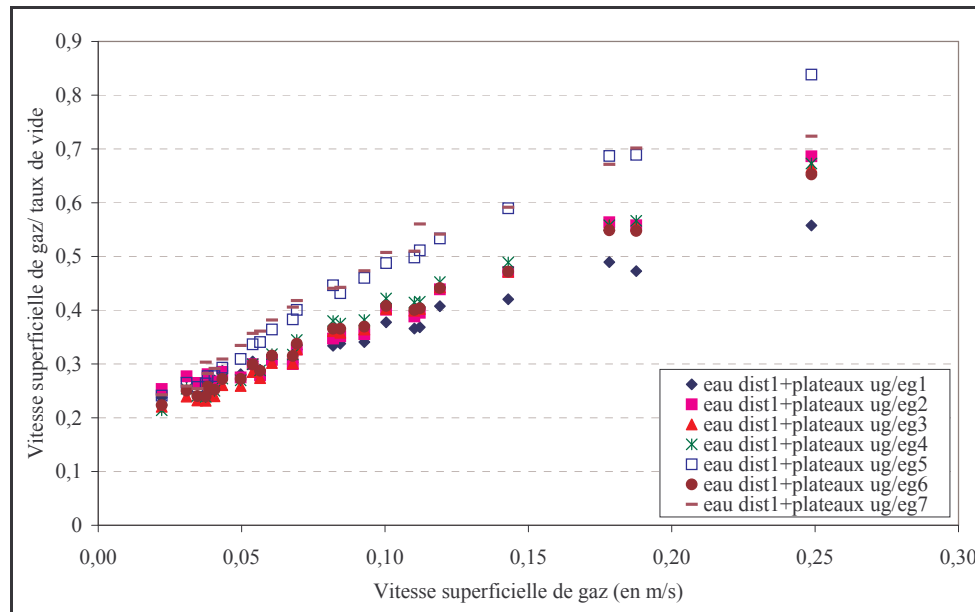


Figure 84 : Evolution axiale de la vitesse de phase en présence de plateaux (eau)

Pour mieux visualiser les changements induits par les plateaux, les courbes de taux de vide avec et sans plateaux sont comparés pour les trois régions (zone du distributeur, espace entre plateaux, zone après le dernier plateau) sur la Figure 85.

Quel que soit le niveau des mesures, l'introduction des plateaux a peu d'effet à petits débits gazeux. Lorsque le débit gazeux augmente, le taux de vide des niveaux 1 et 2 (distributeur et espace entre deux plateaux) est supérieur en présence de plateaux. Au niveau 3, après le dernier plateau, le taux de vide retrouve exactement sa valeur sans plateau, sauf pour  $u_G = 4-8\text{cm/s}$ , c'est-à-dire lorsque la colonne vide n'opère pas en régime hétérogène. Il est probable que la courbe observée au niveau 3 avec plateaux corresponde au régime hétérogène (observé sans plateau) dans toute la gamme de débits supérieurs à  $4\text{cm/s}$  ; la notion de régime semble réapparaître dans cette zone.

**Pour résumer :**

**La présence de plateaux n'est sensible qu'au-delà de  $u_G = 4\text{cm/s}$ .**

**La colonne peut être axialement divisée en trois zones, caractérisées chacune par une courbe de taux de vide spécifique :**

- \_ La zone d'injection, où le taux de vide est supérieur au cas sans plateau,
- \_ Les compartiments entre plateaux (équivalents entre eux), où le taux de vide est supérieur au cas sans plateau,
- \_ La zone après le dernier plateau, où le taux de vide est identique au cas sans plateau.

*L'effet des plateaux paraît donc limité à la zone équipée de plateaux. En aval, le comportement sans plateau est apparemment rétabli.*

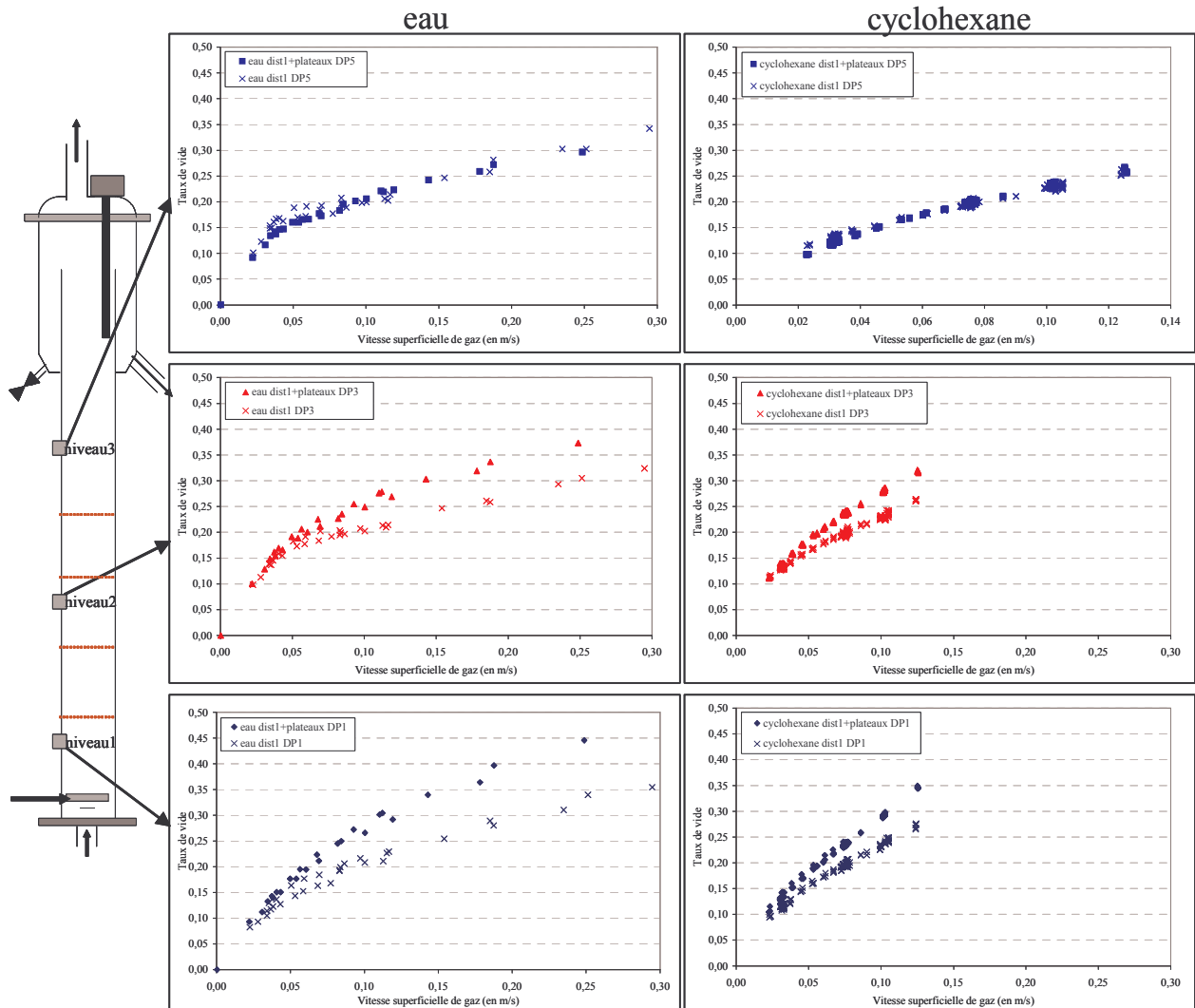


Figure 85 : Evolution axiale de l'effet des plateaux sur le taux de vide

Remarque :

Après observation de la zone au-dessus du dernier plateau, il semble que cette zone se comporte comme une mini-colonne à bulles, dont le distributeur est le dernier plateau. Le niveau 3 est alors compris entre 0 et 20cm de ce « distributeur » de gaz. Or, déjà à ce niveau, le régime hétérogène semble établi. La répartition du gaz par le plateau favorise a priori une mise en régime rapide, ainsi que la coalescence, car il n'autorise que le régime hétérogène. Cette partie de colonne permet en quelque sorte l'étude d'un troisième type de distributeur, autre que les tores. Toutefois, le fait de retrouver dans cette zone le même régime hétérogène qu'en colonne « entière » pose question : une colonne de 0,7m seulement peut-elle présenter le même régime hétérogène, avec ces macro-circulations, qu'une colonne de 1,6m ?

#### D.I.1.c. Comportement d'un compartiment

Pour mieux appréhender ce qui se passe dans l'espace entre deux plateaux, des capteurs de pression sont branchés sur des demi-compartiments, comme indiqué sur la Figure 86a. Le compartiment étudié est celui où est placé la sonde optique. Les écarts de ces mesures au taux de vide moyen du compartiment sont tracés sur la Figure 86b : quel que soit le débit gazeux,

le haut du compartiment est plus riche en gaz que le bas. Cette tendance est non seulement observée pour les deux milieux, mais les valeurs adoptées par chaque demi-compartiment sont, comme la valeur moyenne, rigoureusement identiques en eau et en cyclohexane. Cette stratification est vraisemblablement induite par le ralentissement du gaz à l'approche du plateau et par l'accumulation de bulles. La différence de taux de vide entre les deux demi-compartiments est d'autant plus grande que le débit gazeux augmente. Le gaz n'est donc pas réparti uniformément dans l'espace entre deux plateaux. Cette stratification est sans doute la même dans tous les compartiments, car les compartiments sont équivalents en taux de vide global.

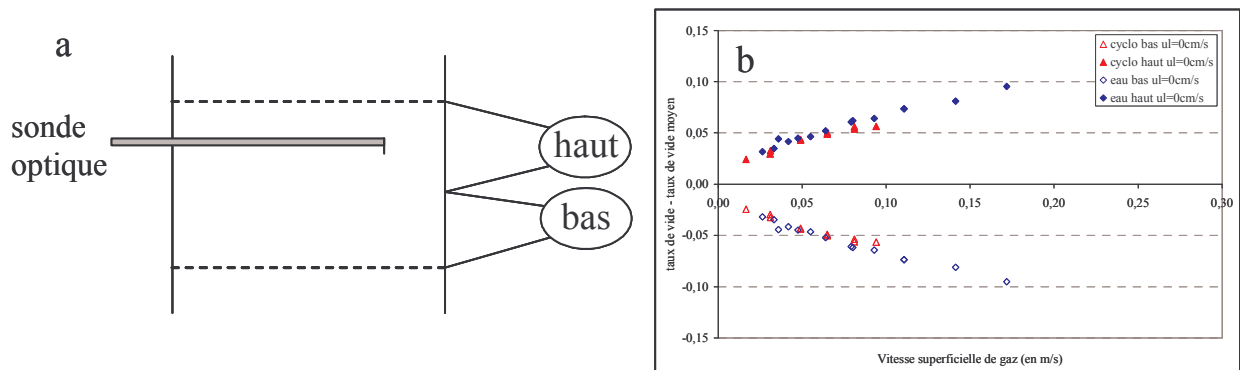


Figure 86 : Evolution du taux de vide dans l'espace entre deux plateaux

*Dans la partie haute de l'espace entre deux plateaux, le taux de vide est supérieur d'environ 30% au taux de vide moyen du compartiment.*

## D.I.2. Taux de vide local et fréquence de bullage

L'approfondissement de cette étude passe inéluctablement par les valeurs locales.

### D.I.2.a. Comparaison des valeurs locales et globales

Le taux de vide global mesuré dans l'espace entre deux plateaux intègre ici des variations à la fois radiales et axiales ; on ne peut donc pas valider les mesures locales effectuées sur un diamètre à l'aide du taux de vide global dans un compartiment. Il est par conséquent supposé que l'incertitude de mesure est identique à celle observée dans les parties A à C. Par ailleurs, il faut préciser que l'intégration serait beaucoup plus délicate dans la configuration avec plateaux, car les profils contiennent souvent moins de points en proche paroi. Ces points sont en effet plus difficiles à réaliser, car les plateaux sont fixés dans la colonne à l'aide de quatre tiges (entretoises) placés à 4cm de la paroi dont une se trouve en bout de trajectoire du déplacement de la sonde.

### D.I.2.b. Profils de taux de vide et de fréquence de bullage

Les profils de taux de vide et de fréquences de bulles sont tracés aux trois niveaux pour les deux milieux (cf. Figure 87 pour l'eau et Figure 88 pour le cyclohexane). Comme dans le cas sans plateau, ces profils sont symétriques, excepté au niveau du distributeur (niveau 1,  $h=25\text{cm}$ ) où le taux de gaz est plus important sur la partie gauche du profil.

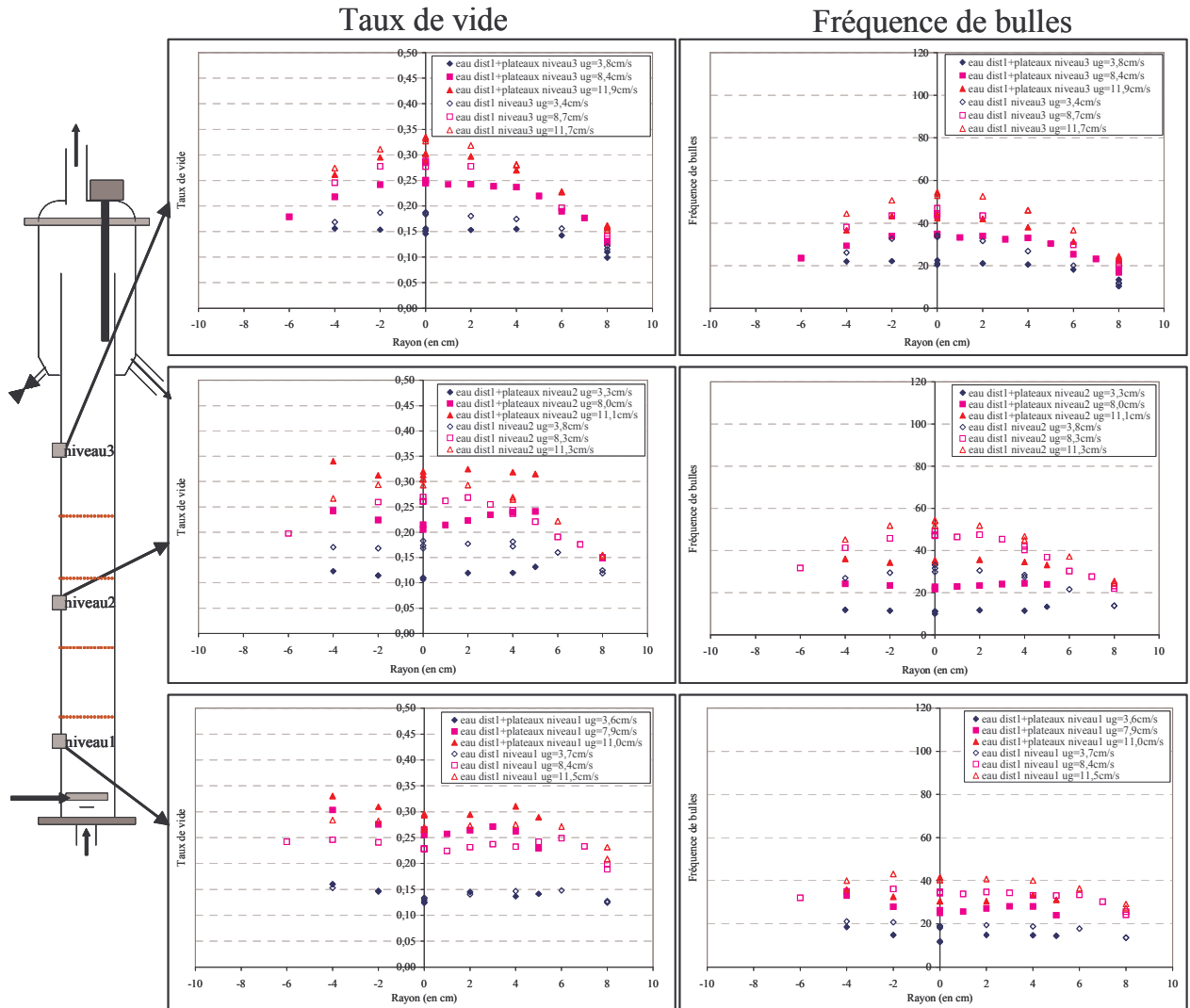


Figure 87 : Effet des plateaux sur les profils de taux de vide et de fréquence de bulles en eau

Niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ) : zone du distributeur

Au niveau 1, au-dessus du distributeur, les profils de taux de vide et de fréquences de bulles ont tendance à se creuser au centre par rapport au cas sans plateau, tendance surtout observée en cyclohexane (cf. Figure 88) ; en eau, les courbes sont moins modifiées. Dans le cas du cyclohexane, la répartition du gaz sur la section est donc moins uniforme ; ce qui peut être lié, comme en l'absence de plateau, à une évolution axiale plus progressive, où à un rétomélange moindre dans cette zone.

L'ajout de plateaux tend également à faire légèrement diminuer les valeurs de fréquences de bulles au niveau 1 : les plateaux ont un effet amont dans la zone du distributeur.

Enfin, lors de l'ajout de plateaux, le taux de vide local augmente légèrement en eau et diminue en cyclohexane. Ces observations n'expliquent pas la forte augmentation du taux de vide global. On peut penser que dans cette zone, la répartition axiale des bulles diffère avec et sans plateau ; l'augmentation du taux de vide global dans le compartiment en présence de plateaux serait alors surtout due à une augmentation nette du taux de vide au-dessus de la position de la sonde, probablement sous la forme d'un « coussin de bulles » dense sous le plateau.



***On peut supposer que l'augmentation (plus importante en eau) du taux de vide global induite par l'introduction des plateaux est due à l'accumulation de bulles sous le premier plateau.***

Niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) : compartiment entre deux plateaux

Au niveau 2, la présence de plateaux rend les profils de taux de vide et de fréquences plus plats : le gaz semble mieux réparti sur une section de colonne, probablement du fait de la restriction de la circulation du liquide. Des profils légèrement creusés au centre sont observés en eau, ce qui pourrait laisser présager une circulation liquide inversée dans le compartiment (descente du liquide au centre), et causer une sous-estimation des valeurs numériques en ce point.

Les profils sont nettement modifiés, même à faible  $u_G$ , où l'on pouvait supposer, au vu des valeurs globales, que l'effet des plateaux était faible.

Vu la différence d'allure des profils avec et sans plateau, la comparaison des valeurs de taux de vide sur une section est plus délicate, d'autant plus que le comportement en proche paroi en présence de plateaux est inconnu. Il est toutefois clair que sur la section étudiée, le taux de vide n'est pas nettement accru par la présence de plateaux en cyclohexane, contrairement à ce que laissait présager les valeurs globales et la position axiale de la sonde dans le compartiment (seulement 5cm sous le plateau, cf. Figure 86a). Même si une sous-estimation du taux de vide est possible, elle ne permet pas à elle seule d'expliquer l'ampleur des différences ; il y a probablement un « coussin de bulles » dense et peu épais sous le plateau.

***La présence de plateaux n'augmente pas notablement le taux de vide au cœur du compartiment étudié : elle l'uniformise radialement en cyclohexane et le creuse légèrement au centre en eau. Vu la forte augmentation du taux de vide global associée et son augmentation axiale, on peut supposer que les bulles s'accumulent sous le plateau en une couche fine et dense.***

***Contrairement à ce que laisser présager les données globales, l'effet des plateaux est sensible sur toute la gamme de vitesses de gaz.***

***Compte tenu des observations globales, ce comportement est a priori valable pour les trois compartiments entre plateaux.***

*Remarque :*

*On peut noter que le « coussin » n'est pas pris en compte dans son intégralité par le capteur de pression, car la mesure s'arrête 1cm sous le plateau ; le taux de vide du compartiment complet devrait donc être a priori encore plus grand !*

Niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) : zone après le dernier plateau

Au niveau 3, bien que les différents indicateurs globaux présument un comportement similaire au cas sans plateau, ce n'est pas vérifié localement : les profils sont systématiquement plus plats qu'en colonne vide. Cet effet est assez cohérent avec la distance au « distributeur » qu'est le dernier plateau perforé. En seulement 15cm, l'équilibre du profil n'est pas encore établi alors que le taux de vide moyen l'est déjà. Comme en colonne « complète », le taux de vide se bombe progressivement en régime hétérogène au fil de l'ascension dans la colonne. Cette tendance est vérifiée pour les deux milieux mais, comme en colonne vide, l'évolution axiale est plus lente en cyclohexane ; l'écart à la position d'équilibre est donc encore important à ce niveau.

***Au niveau 3, après le dernier plateau, les profils semblent évoluer vers le profil d'équilibre. Comme en colonne vide, cette évolution est plus lente en cyclohexane et à faibles débits.***

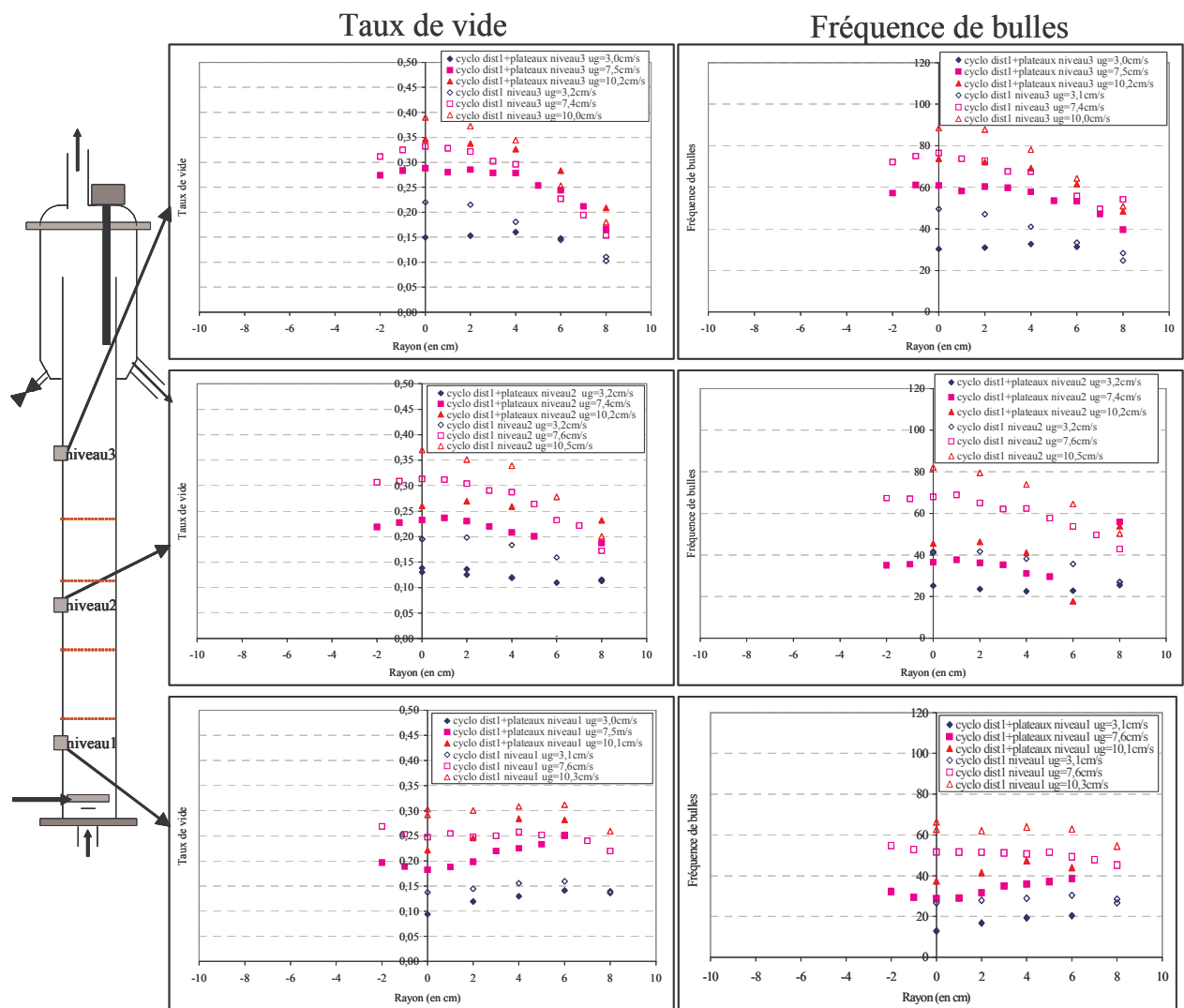


Figure 88 : Effet des plateaux sur les profils de taux de vide et de fréquences de bulles en cyclohexane

Ces profils offrent une première vision du comportement de la colonne en présence de plateaux, mais ils conduisent également à de nombreuses questions, notamment sur les évolutions axiales de ces profils, à la circulation interne du liquide (et donc la validité des valeurs locales au centre de la colonne), à l'effet du milieu, ... Pour répondre à ces interrogations, il faudrait d'autres piquages axiaux pour la sonde optique, ce qui est loin d'être facilement réalisable, ainsi que des mesures complémentaires sur la phase liquide...

### D.I.2.c. Valeurs centrales

Pour mieux comprendre les évolutions axiales dans un compartiment, les valeurs de taux de vide mesurées sur l'axe avec la sonde sont comparées aux valeurs globales de l'ensemble du compartiment.

#### D.I.2.c. $\alpha$ Taux de vide

Pour cela, dans un compartiment, les profils de taux de vide étant assez plats, on suppose, en gardant néanmoins un certain esprit critique, la valeur de taux de vide sur l'axe au niveau 2

(dans un compartiment) représentative de la valeur moyenne sur la section. Ce taux de vide, comparé au taux de vide global sur le compartiment, peut fournir quelques éclaircissements quant aux évolutions axiales du taux de vide dans un compartiment.

*Remarque :*

Cette analyse ne sera pas réalisée au niveau 3 (après le dernier plateau), car le taux de vide évolue à la fois axialement et radialement, ce qui gêne toute interprétation.

Niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) : compartiment entre deux plateaux

En eau, le taux de vide global du compartiment est légèrement supérieur à celui au niveau de la sonde pour  $u_G < 10\text{cm/s}$  (c'est-à-dire la gamme explorée en profils) et devient inférieur au delà (cf. Figure 89a). En cyclohexane en revanche, le taux de vide du compartiment est globalement égal au taux de vide local au niveau 2 (cf. Figure 89b), ce qui est surprenant puisque la sonde est située dans la partie haute du compartiment, où le taux de vide est supérieur au taux de vide moyen du compartiment (cf. Figure 86).

Ces écarts peuvent être liés à une sous-estimation possible du taux de vide par la sonde (du fait d'un écoulement éventuellement inversé) et à l'accumulation de gaz sous le plateau, sous la forme d'un « coussin » fin et dense. L'épaisseur de ce « coussin » semble supérieur à 5cm en eau pour  $u_G > 10\text{cm/s}$ , puisque dans ces conditions elle englobe la sonde, qui présente alors un taux de vide supérieur à la moyenne.

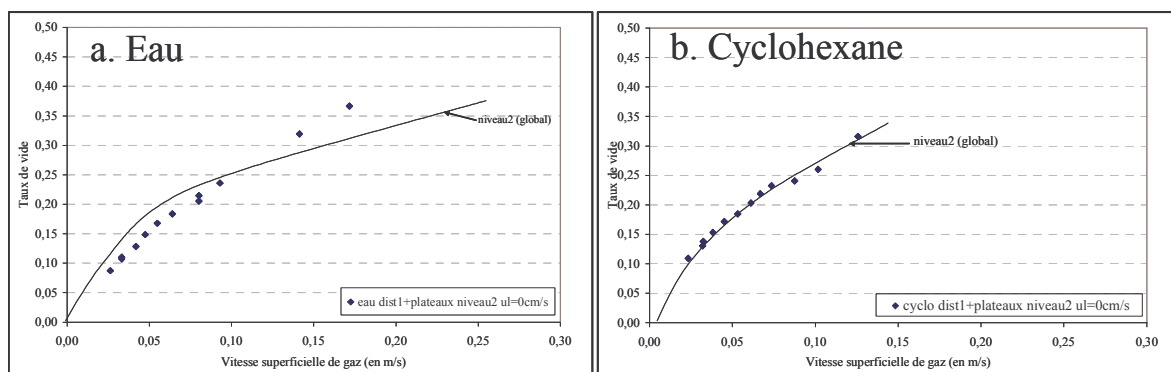


Figure 89 : Comparaison des taux de vide globaux et locaux sur l'axe au niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ )

**L'existence d'un coussin de bulles est étendue à toute la gamme de débit de gaz ; son épaisseur semble augmenter avec le débit de gaz.**

**Dans l'espace entre plateaux, les deux milieux sont similaires jusqu'à 10cm/s tant en valeurs globales que locales (cf. Figure 90) que par leur évolution axiale (Figure 86), alors qu'ils diffèrent légèrement par leurs profils (cf Figure 88).**

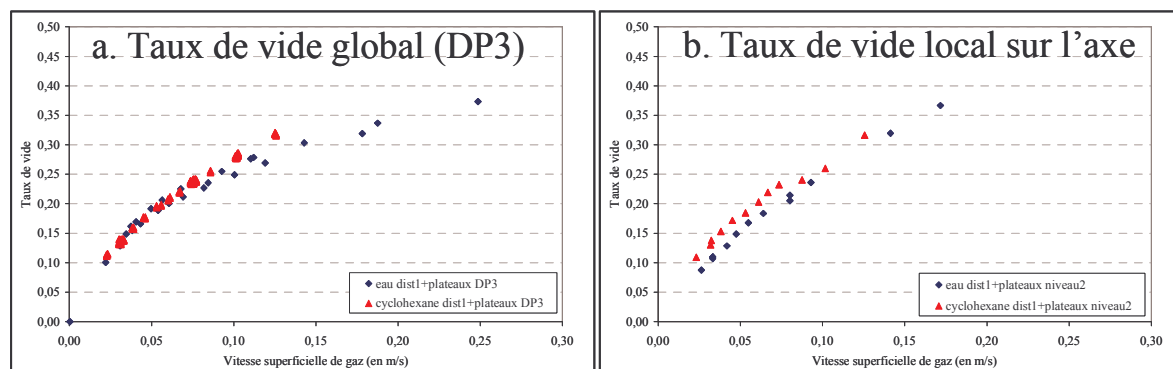


Figure 90 : Effet du milieu sur le taux de vide dans un compartiment

*Remarque :*

Le petit écart entre les deux milieux, visible sur la Figure 90b, peut être rattaché à la différence d'allure de leur profil : celui obtenu en eau est plus creusé au centre.

### D.I.2.c.β. Fréquence de bulles

La fréquence de bullage, contrairement au taux de vide est sensible au milieu (cf. Figure 91) : à débit équivalent, la fréquence de bulles est supérieure en cyclohexane, ce qui suggère des bulles plus petites.

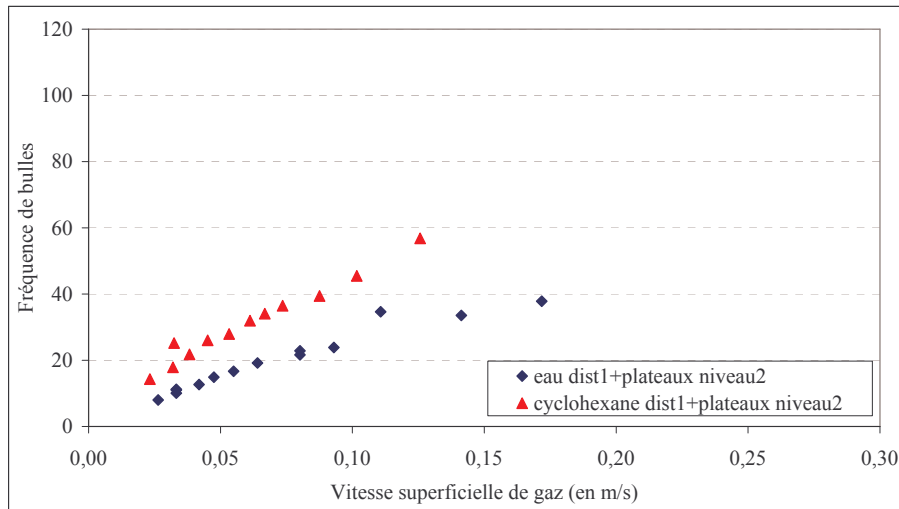


Figure 91 : Effet du milieu sur la fréquence de bullage dans un compartiment

### D.I.2.c.γ. Rapport entre le taux de vide et la fréquence de bulles

Pour mieux visualiser les différences d'évolution du taux de vide et de la fréquence de bullage sur l'axe de la colonne (et seulement en ce point), le rapport entre ces deux grandeurs est tracé pour l'eau et le cyclohexane sur la Figure 92.

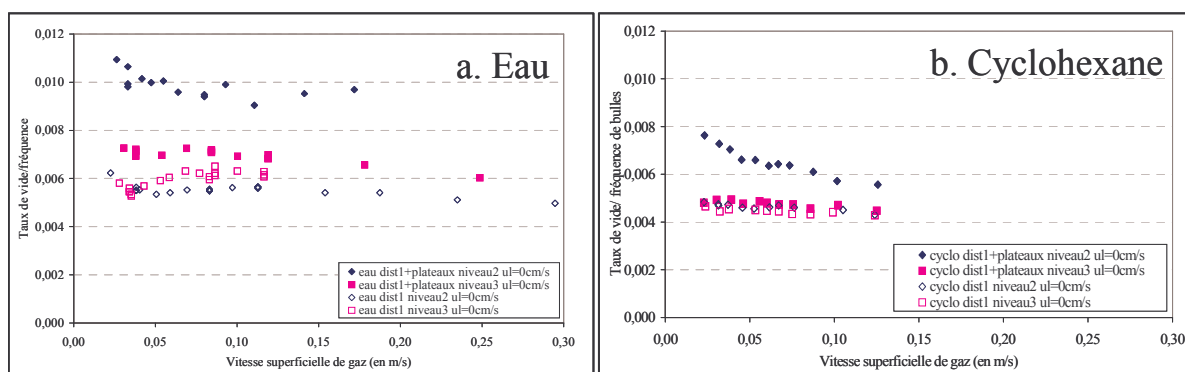


Figure 92 : Effet des plateaux sur la valeur de  $\varepsilon_G/u_G$  sur l'axe

Au niveau 3 (après le dernier plateau), pour les deux milieux, cette grandeur est globalement constante sur toute la gamme de  $u_G$ , ce qui, en colonne vide, est caractéristique du régime hétérogène. La tendance pressentie sur les courbes globales est confirmée : la colonne opère en régime hétérogène pur au niveau 3.

Au niveau 2 (entre deux plateaux), cette grandeur est très supérieure en présence de plateaux et diminue avec  $u_G$ . En eau, un pallier semble atteint pour  $u_G > 7\text{cm/s}$ , alors que la courbe du cyclohexane décroît encore.

Les valeurs de  $\varepsilon_G/u_G$  diffèrent largement entre les deux milieux, puisqu'ils ont des fréquences de bullages différentes pour des taux de vide similaires.

*Au niveau 3, après le dernier plateau, la colonne opère en régime hétérogène pur pour les deux milieux.*

*Au niveau 2, entre deux plateaux, à faibles vitesses de gaz,  $\varepsilon_G/u_G$  diminue avec  $u_G$ . Pour  $u_G > 7\text{cm/s}$ , une valeur d'équilibre est atteinte en eau, alors que la décroissance continue en cyclohexane avec une pente plus faible qu'à plus faibles débits.*

### D.I.3. Aire interfaciale, diamètre de Sauter

#### D.I.3.a. Profils

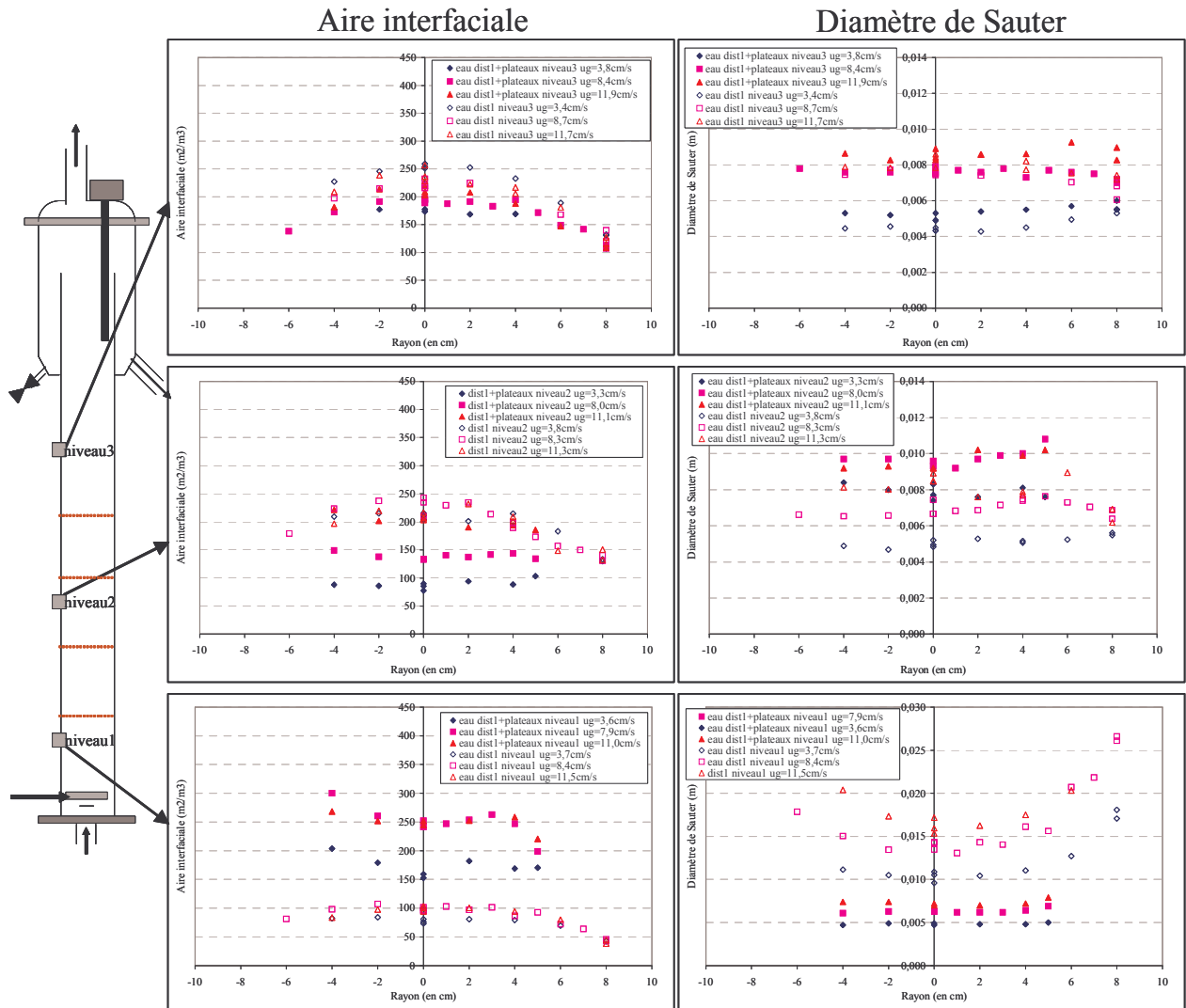


Figure 93 : Effet des plateaux sur les profils radiaux d'aire interfaciale et de diamètre de Sauter (eau)

Les profils radiaux en aires interfaciales et en diamètres de Sauter sont tracés pour l'eau et le cyclohexane, respectivement sur la Figure 93 et la Figure 94.

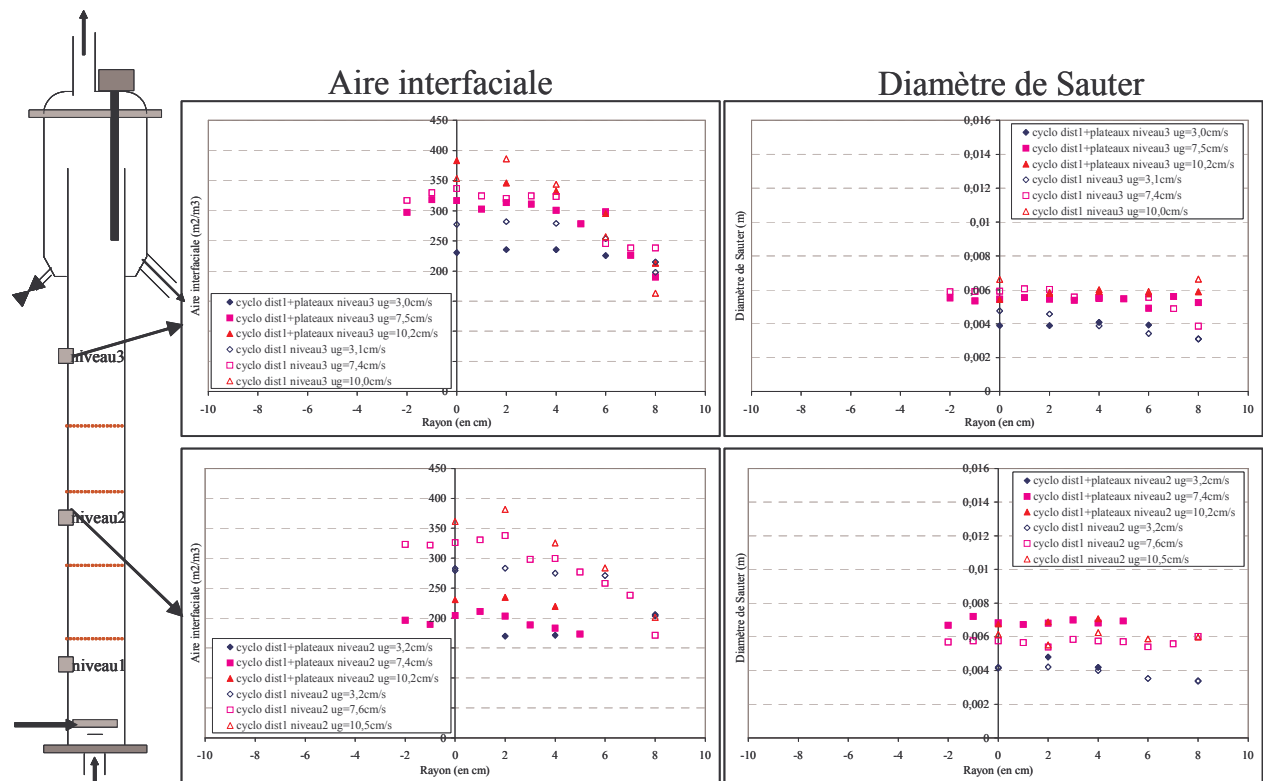


Figure 94 : Effet des plateaux sur les profils radiaux d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter (cyclohexane)

Niveau 1 (h=25cm) : zone du distributeur (eau)

Au niveau 1, avant le premier plateau, le diamètre de Sauter est, en eau, systématiquement plus faible, et l'aire interfaciale plus grande, en présence de plateaux qu'en colonne vide. Cet effet peut éventuellement être lié à la diminution du phénomène de coalescence du fait de la diminution des recirculations (pas de retours de bulles provenant du compartiment supérieur). En présence de plateaux, l'effet de  $u_G$  est moins marqué sur les valeurs de diamètres, alors qu'il est plus marqué en aires interfaciales.

Niveau 2 (h=65cm) : compartiment entre deux plateaux

Au niveau 2, l'effet des plateaux sur les profils de diamètres de Sauter et d'aires interfaciales est sensible dans toute la gamme de  $u_G$ . En présence de plateaux, les profils d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter sont assez plats ; ils présentent une bonne répartition radiale. L'allure creusée des profils de taux de vide et de fréquences de bullage en eau est moins visible sur ces critères ; un écart résiduel de forme entre les deux milieux est toutefois perceptible.

Les valeurs de diamètres de Sauter sont supérieures en présence de plateaux ; il est probable que les bulles, rassemblées en couche dense sous chaque plateau, coalescent entre elles avant d'être projetées dans les ouvertures du plateau. Ceci a pour conséquence une diminution prononcée de l'aire interfaciale, surtout à faibles vitesses de gaz. Néanmoins, la meilleure répartition radiale des bulles peut peut-être compenser cette augmentation de taille sur l'efficacité du transfert ; ce point ne pourra être vérifié que par la mesure du transfert.

Niveau 3 (h=115cm) : zone après le dernier plateau

A ce niveau, les profils d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter sont globalement plus plats que sans plateau (équilibre non atteint).

Evolution axiale

Bien que les bulles formées au niveau 1 (zone du distributeur) soient plus petites qu'en colonne vide, elles deviennent au niveau 2 (compartiment entre deux plateaux) supérieures à celles mesurées sans plateau : le coussin de gaz sous le plateau doit favoriser la coalescence.

***Les bulles formées en présence de plateaux sont plus petites qu'en l'absence de plateau, probablement grâce à la diminution du rétro mélange.***  
***Dans un compartiment, les profils de diamètres de Sauter et d'aires interfaciales sont plus plats qu'en l'absence de plateau, mais les valeurs adoptées sont peu favorables au transfert (augmentation du diamètre de Sauter, diminution de l'aire interfaciale). Les écarts d'allure de profils persistent entre les deux milieux (légèrement creusés au centre en eau).***  
***Après le dernier plateau, l'écoulement tend apparemment vers l'écoulement sans plateau, mais la hauteur d'observation est insuffisante pour que les profils d'équilibre soient atteints.***

*Remarque :*

*Si le diamètre de Sauter est supérieur en eau pour un taux de vide similaire à celui obtenu en cyclohexane, il est possible que la recirculation de ces grosses bulles dans le compartiment puisse expliquer la différence de forme des profils en eau (creusé au centre).*

### D.I.3.b. Valeurs centrales

Pour étendre ces observations à des gammes de vitesses plus larges, les valeurs centrales d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter sont tracés pour les niveaux 2 et 3 (compartiment entre deux plateaux et zone après le dernier plateau) (cf. Figure 95).

Niveau 2 (h=65cm) : compartiment entre deux plateaux

Au niveau 2, en eau comme en cyclohexane, l'aire interfaciale diminue et le diamètre de Sauter augmente nettement en présence de plateaux. Le diamètre observé à ce niveau devient supérieur au diamètre d'équilibre entre la coalescence et la rupture obtenu sans plateaux. Avec les plateaux, qui réduisent les gradients de vitesses radiaux et donc la turbulence, il semble en effet normal que l'équilibre coalescence-rupture soit déplacé vers les plus grosses bulles ; la coalescence est plus favorisée que la rupture.

En présence de plateaux, l'aire interfaciale augmente assez linéairement avec la vitesse de gaz, alors que le diamètre de Sauter augmente jusqu'à atteindre un pallier (aux alentours de 11mm pour l'eau et de 7mm en cyclohexane). Comme en l'absence de plateau, cette stabilisation s'opère à une vitesse de gaz plus faible en cyclohexane qu'en eau (4cm/s environ pour le cyclohexane et 14cm/s pour l'eau). Ces évolutions diffèrent de celles vues en  $\varepsilon_G/f_B$  (proportionnelle à  $d_B/v_B$ ), où une rupture de pente a été observée pour  $u_G \approx 7$ cm/s pour les deux milieux ; après cette rupture, le rapport semble indépendant de  $u_G$  pour l'eau. Les variations combinées de diamètres et de vitesses de bulles sont donc complexes.

En cyclohexane, les valeurs de diamètres demeurent toujours inférieures (et donc les aires interfaciales supérieures) à celles obtenues en eau. En outre, en cyclohexane, le diamètre à l'équilibre est moins accru par la présence de plateaux qu'en eau, probablement car le cyclohexane a une tension superficielle plus faible.

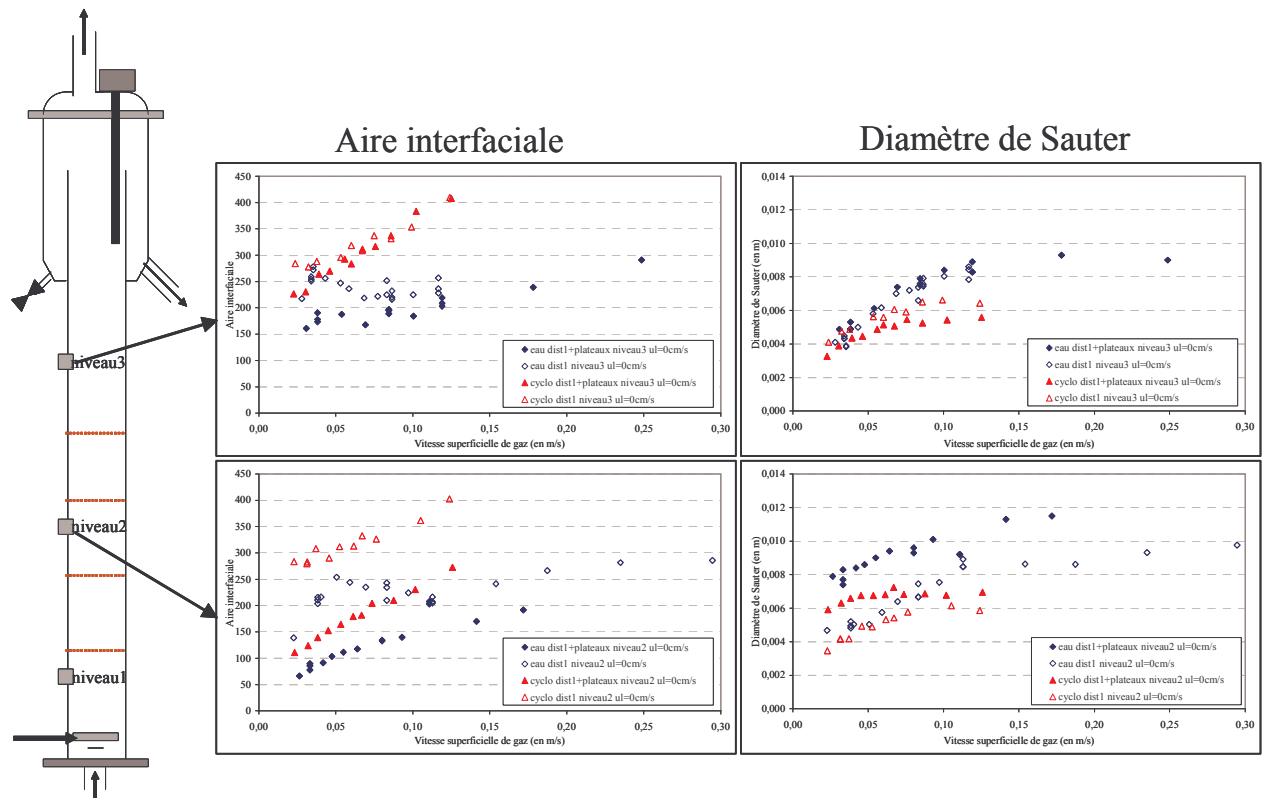


Figure 95 : Valeurs centrales d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter en eau et en cyclohexane aux niveaux 2 et 3 ( $h=65\text{cm}$  et  $h=115\text{cm}$ )

Niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) : zone après le dernier plateau

Au niveau 3, comme le régime hétérogène est établi en présence de plateaux sur quasiment toute la gamme de vitesses de gaz, l'aire interfaciale augmente monotonement avec  $u_G$ , sans maxima. Les valeurs de diamètres de Sauter et d'aires interfaciales sont proches entre les cas avec et sans plateaux, lorsque les deux opèrent en régime hétérogène. En cyclohexane toutefois, le diamètre de Sauter en présence de plateaux demeure légèrement inférieur à celui sans plateau : l'équilibre n'est probablement pas encore totalement atteint à ce niveau.

*Ces courbes confirment, sur toute la gamme de vitesses de gaz et pour les deux milieux, la diminution très nette de l'aire interfaciale dans un compartiment lorsqu'on utilise des plateaux. En cyclohexane, l'aire interfaciale sur l'axe peut dans certains cas être divisé par deux.*

*L'aire interfaciale augmente continuellement avec la vitesse de gaz, alors que le diamètre de Sauter se stabilise à partir d'une certaine valeur de  $u_G$ .*

### D.I.4. Conclusions

L'ajout de plateaux dans notre colonne casse la circulation liquide observée en colonne vide. Le comportement précis de cette configuration, fonction du milieu, est difficile à caractériser. En présence de plateaux, la colonne peut être divisée en trois zones : la zone d'injection, l'espace entre plateaux (tous équivalents en taux de vide global) et la zone après le dernier plateau.

Dans la zone d'injection, les profils se creusent au centre et le diamètre des bulles diminue. Ces effets peuvent être rattachés à la diminution des recirculations.



*Dans les compartiments entre deux plateaux*, le gaz n'est pas réparti uniformément sur toute la hauteur. En haut de compartiment un coussin de bulles dense se forme malgré la forte ouverture des plateaux (30%) et la taille importante de leurs ouvertures (trous de 3cm). Dans la zone centrale de l'espace entre plateaux, le gaz se répartit assez uniformément sur toute la section de la colonne, mais le taux de vide et le diamètre de Sauter des bulles diminue, ce qui s'ensuit d'une forte diminution de l'aire interfaciale par rapport au cas sans plateau. Ces évolutions axiales n'ont pas été précisément estimées, mais il se dégage que l'importance relative de chacun de ces zones varie avec le débit gazeux.

Les comportements globaux sont identiques en eau et en cyclohexane, mais les profils sont plus creusés et le diamètre de Sauter est plus grand en eau, ce qui peut engendrer des recirculations plus intenses dans un compartiment, sous la forme d'une boucle de circulation liquide inversée (descente du liquide au centre). L'existence de cette boucle pourrait générer une sous-estimation des valeurs locales de taux de vide et de fréquences.

*Au-delà du dernier plateau*, les bulles retrouvent le comportement observé en colonne vide (évolution axiale plus lente en cyclohexane).

Ces observations offrent une meilleure connaissance des phénomènes mais demeurent insuffisantes pour estimer l'efficacité du réacteur. Pour cela, il faudrait notamment savoir sous quelle forme s'accumule le gaz sous les plateaux (bulles ou poches) et si la meilleure répartition radiale des bulles compense leur taille plus importante. Pour cela, seule la mesure du transfert peut nous renseigner (mesure non effectuée dans ces conditions). On peut toutefois penser que le coussin de bulles est peu propice au transfert, ce qui, ajouté à une aire interfaciale moindre dans un compartiment semble défavorable au transfert.

L'ensemble des phénomènes causant les évolutions des différentes grandeurs locales (taux de vide, fréquence de bulles, aire interfaciale et diamètre de bulles) n'est pas élucidé. Cette étude soulève certaines interrogations concernant l'écoulement des bulles et la circulation du liquide. On peut également se questionner quant à l'effet de la configuration des plateaux (effet de l'aire percée, du diamètre des trous) et de leur positionnement dans la colonne (effet de l'espacement entre plateaux) sur les résultats obtenus. Cette étude mériterait donc d'être étendue, mais l'étude d'un compartiment est délicate et nécessite de nombreuses mesures locales. Une étude plus approfondie imposerait probablement la conception d'une installation plus spécifique, car la mise en place sur le pilote actuel de piquages supplémentaires est peu réaliste. Cette étude serait a priori représentative dans la mesure où tous les compartiments entre plateaux sont a priori équivalents. Elle pourrait permettre d'optimiser les plateaux (tailles, nombres, position des orifices) pour garder l'avantage d'une circulation de liquide réduite sans diminuer l'aire interfaciale.

Enfin, cette analyse a permis de mettre en évidence les limites des mesures globales et la nécessité de mesurer localement des tailles de bulles ; sans cela certains résultats peuvent conduire à des interprétations erronées ; par exemple on pourrait croire que le taux de vide augmente dans toute la colonne en présence de plateaux !

## **D.II. EFFET COUPLE DES PLATEAUX ET DU DEBIT LIQUIDE**

Il s'agit dans cette partie d'évaluer l'effet croisé des plateaux et du débit liquide, mais aussi d'étudier, en cyclohexane, la configuration la plus proche du cas industriel. Par conséquent, les données en cyclohexane sont systématiquement fournies.

### D.II.1. Mélange de la phase liquide

Le premier aspect envisagé est le mélange de la phase liquide (via les essais de DTS, cf. chapitre III, § A.III). La Figure 96 témoigne en la matière de l'ajout d'un fort effet « piston » lors de l'introduction de plateaux, tendance déjà pressentie sans débit liquide. Cet effet est un peu plus marqué à faibles vitesses de gaz.

Le débit de liquide a un effet « piston » similaire pour la colonne vide ou avec plateaux : une augmentation d'environ un tiers du nombre de RAC initial.

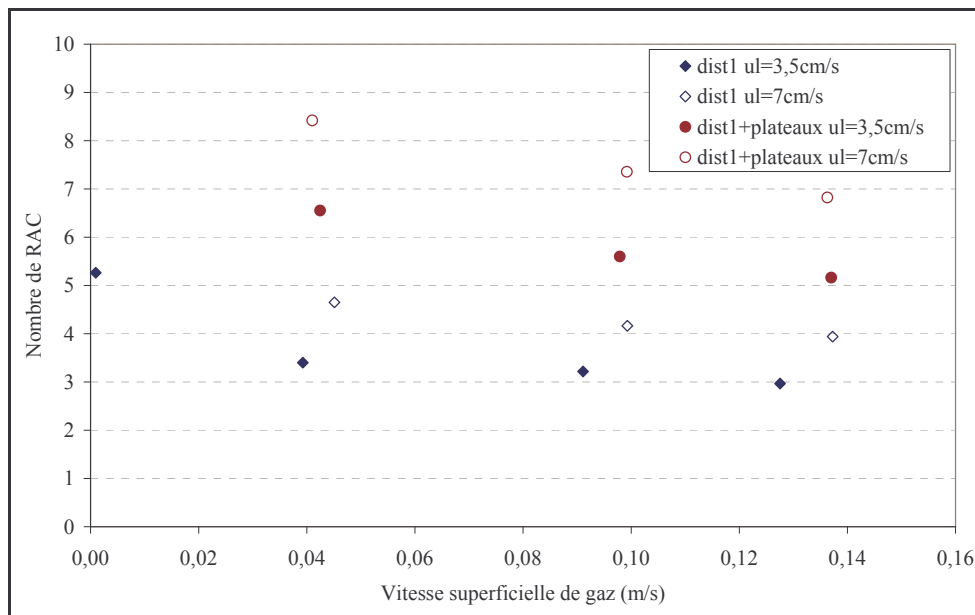


Figure 96 : Effet des plateaux sur le mélange liquide

### D.II.2. Taux de vide global

#### D.II.2.a. Tendances générales

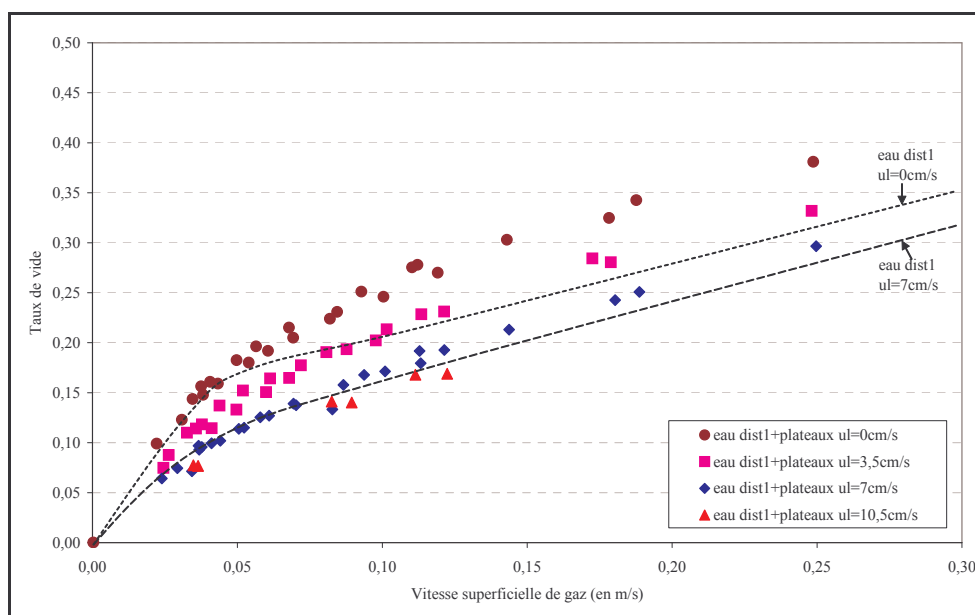


Figure 97 : Effet du débit liquide en présence de plateaux (eau)

L'augmentation du taux de vide global due à l'addition de plateaux est fortement réduite, voire s'annule, en présence de circulation de liquide (cf. Figure 97 et Figure 98).

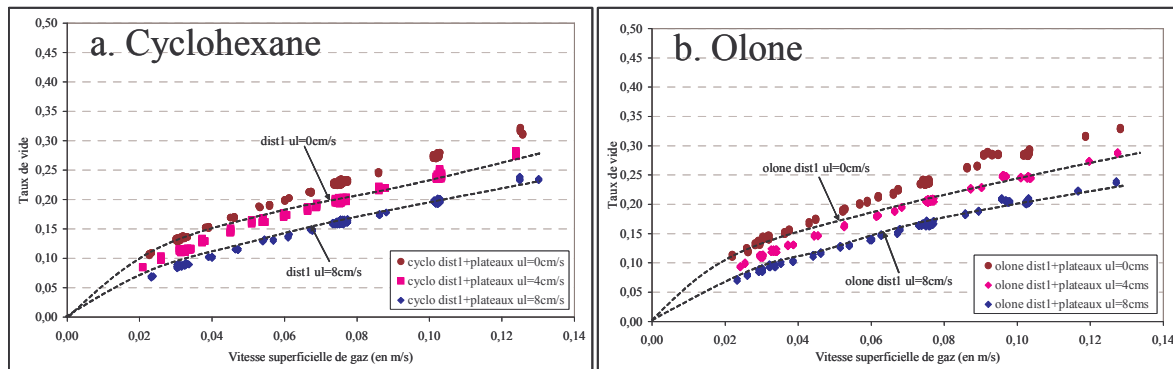


Figure 98 : Effet du débit liquide en présence de plateaux

Par contre, en présence de débit liquide, l'effet du milieu sur le taux de vide réapparaît : le taux de vide est supérieure en cyclohexane (cf. Figure 99).

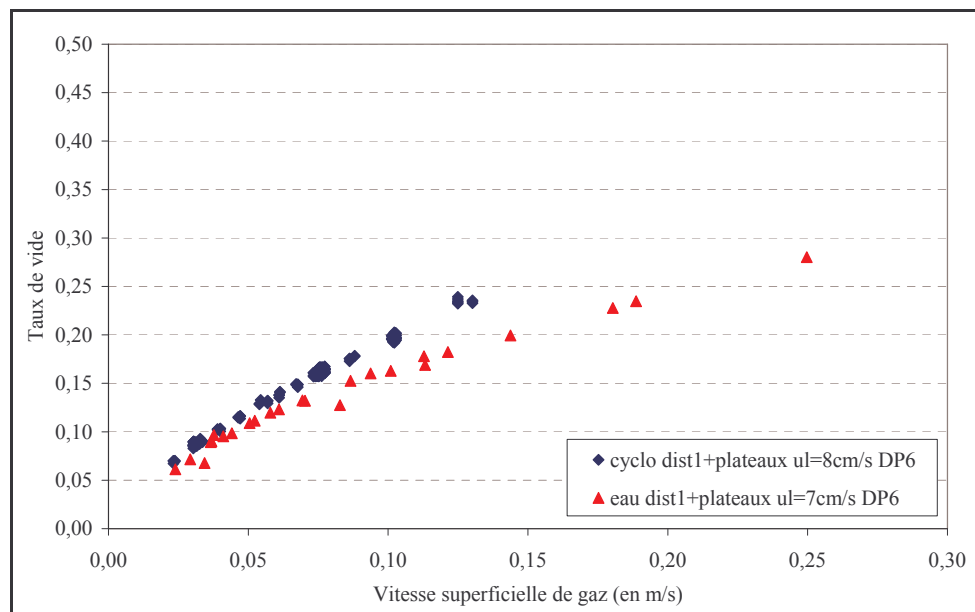


Figure 99 : Effet du milieu sur le taux de vide global en colonne avec plateaux à  $u_L=7-8\text{cm/s}$

### D.II.2.b. Evolutions axiales

En colonne à plateaux, l'évolution axiale du taux de vide est profondément modifiée par l'ajout d'un débit de liquide (cf. Figure 100) : les trois régions établies en fonctionnement batch (zone du distributeur, zone entre deux plateaux, zone après le dernier plateau) adoptent un comportement différent.

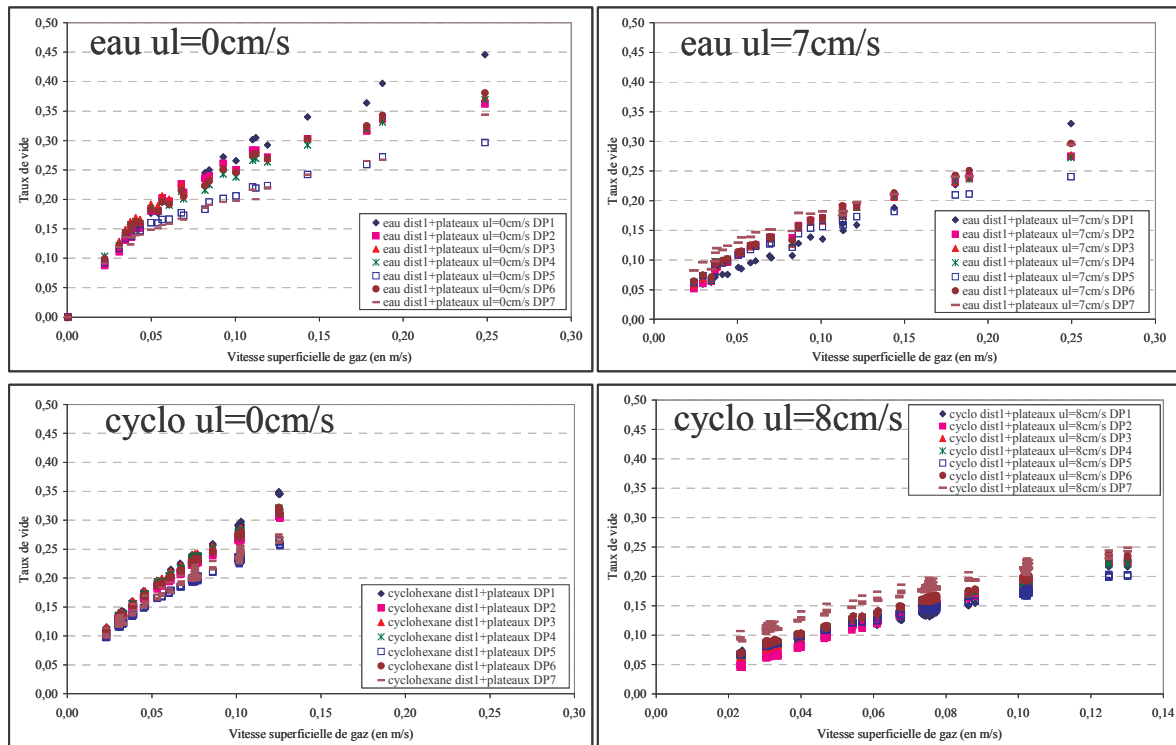


Figure 100 : Effet du débit liquide sur les évolutions axiales de taux de vide dans la colonne avec plateaux

Les espaces entre plateaux (DP2 à DP4) restent équivalents, mais leurs taux de vide se rapprochent de celui du capteur DP5, situé après le dernier plateau.

La capteur DP7 pour sa part, situé le plus haut dans la colonne, change totalement de comportement ; équivalent au capteur DP5 en fonctionnement batch, il mesure le taux de vide le plus élevé en présence de débit liquide. Contrairement au cas  $u_L=0\text{cm/s}$ , ce capteur semble situé dans la zone de désengagement. Curieusement, l'introduction d'un débit de liquide, qui en colonne vide diminue la zone de désengagement, l'agrandit en présence de plateaux.

Enfin, dans la zone du distributeur (DP1), la diminution du taux de vide en présence de débit liquide est similaire mais apparemment moins prononcé qu'en colonne vide.

*L'effet du débit liquide est similaire pour les deux milieux : il diminue le taux de vide global dans la colonne. Beaucoup plus important qu'en colonne vide, cet effet semble même prépondérant sur l'effet des plateaux. En présence de débit liquide, le taux de vide global n'est plus identique pour l'eau et le cyclohexane.*

*L'évolution axiale en présence de plateaux est, contrairement au cas de la colonne vide, fortement modifiée par l'ajout d'une circulation liquide. Cette évolution rappelle, pour  $u_L=7-8\text{cm/s}$ , celle obtenue sans plateaux (pour  $u_L \neq 0$ ) : le taux de vide le plus faible est celui à proximité du distributeur, le capteur DP7 est légèrement supérieur à la moyenne et les capteurs DP2 à DP5 sont équivalents.*

Pour éclaircir les modifications induites par la circulation liquide, son effet est représenté sur la Figure 101 pour les trois niveaux d'étude.

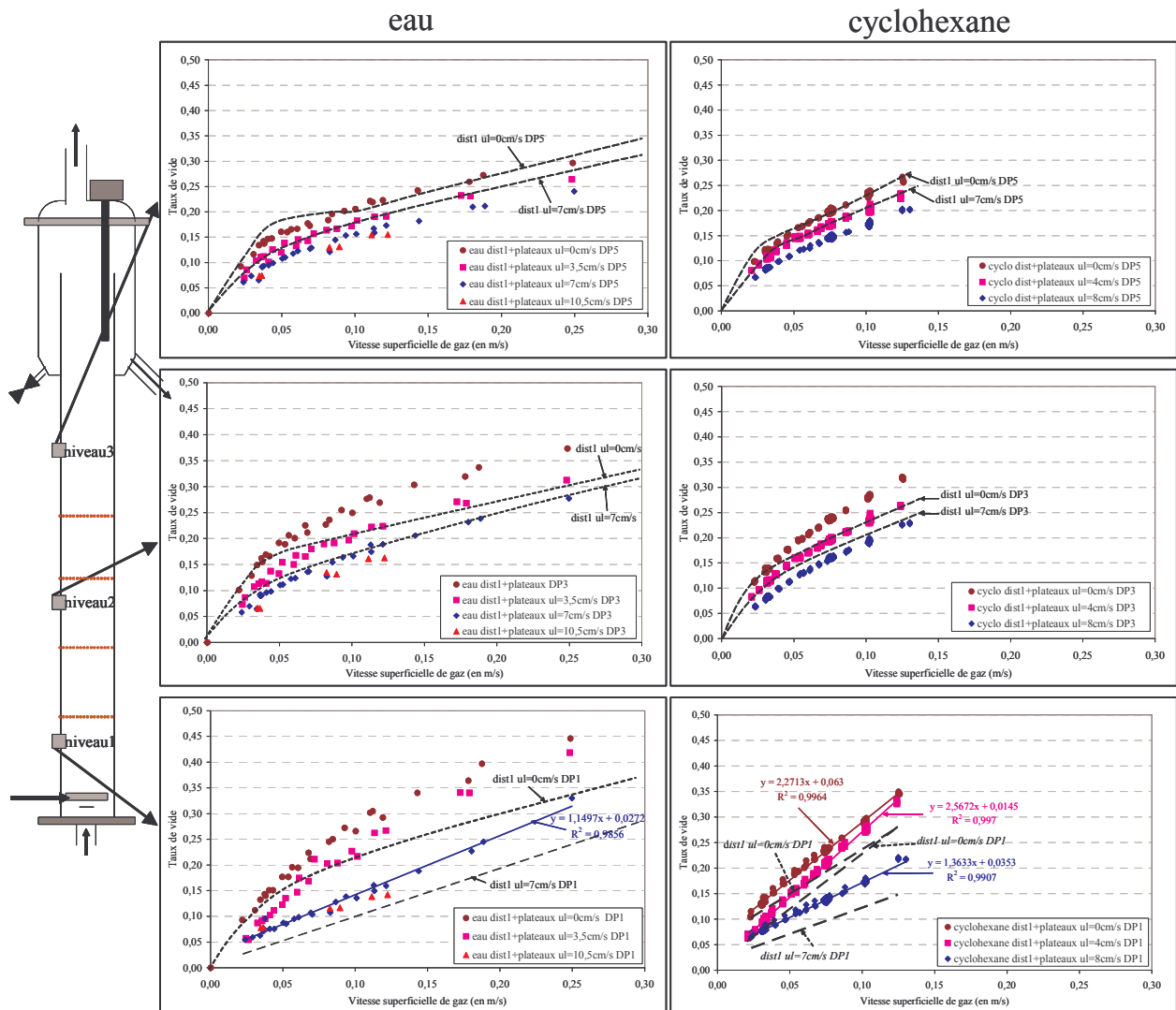


Figure 101 : Effet du débit liquide sur les taux de vide globaux en colonne avec plateaux

Niveau 1 : zone du distributeur

Dans la zone de l'injecteur, l'effet du débit liquide est similaire à celui obtenu sans plateau : le taux de vide diminue fortement avec  $u_L$  et son évolution avec  $u_G$  adopte une allure linéaire. Le taux de vide en présence de plateaux demeure toutefois systématiquement supérieur au cas sans plateau (pentes des droites plus fortes), probablement car les recirculations à grande échelle sont gênées par la présence du plateau.

Niveau 2 : compartiment entre deux plateaux

Entre deux plateaux, le taux de vide diminue fortement avec  $u_L$  pour atteindre des taux de vide inférieurs à ceux obtenus sans plateau. Compte tenu des évolutions axiales possibles au sein d'un compartiment, cette tendance ne peut pour l'instant être exploitée davantage.

Niveau 3 : zone après le dernier plateau

Au niveau 3, l'effet du débit liquide est supérieur à celui observé sans plateau : l'écoulement après le dernier plateau ne tend pas vers le comportement sans plateau, comme supposé en batch.

*Au niveau 1 (zone du distributeur), les effets des plateaux et du débit liquide s'ajoutent : le taux de vide diminue avec  $u_L$  (comme sans plateau), mais reste supérieur au cas sans plateau (comme en batch).*

*Aux niveaux 2 et 3 (dans un compartiment et après le dernier plateau), les tendances sont plus surprenantes : le taux de vide diminue fortement avec la vitesse liquide au point d'atteindre, à fortes  $u_L$ , des taux de vide inférieurs à ceux obtenus sans plateau. Ce comportement ne découle pas de la simple somme des effets de  $u_L$  et des plateaux : leur combinaison modifie profondément l'écoulement.*

### D.II.2.c. Evolution axiale entre deux plateaux

Pour préciser l'effet de la circulation liquide dans l'espace entre deux plateaux, l'évolution de la stratification du gaz avec le débit de liquide est étudiée dans un compartiment, comme au §D.I.1.c (cf. Figure 102). Cette évolution nous renseigne sur l'épaisseur du « coussin de bulles » : comme l'écart entre le taux de vide du haut de la colonne et le taux de vide moyen du compartiment diminue lorsque la vitesse de liquide augmente, ce coussin s'atténue, voire disparaît pour  $u_L=7\text{cm/s}$ . A  $u_L=9,4\text{cm/s}$ , la tendance tend même à s'inverser : le taux de vide devient plus grand en bas de compartiment. Cette tendance est similaire en cyclohexane pour  $u_L=8\text{cm/s}$ .

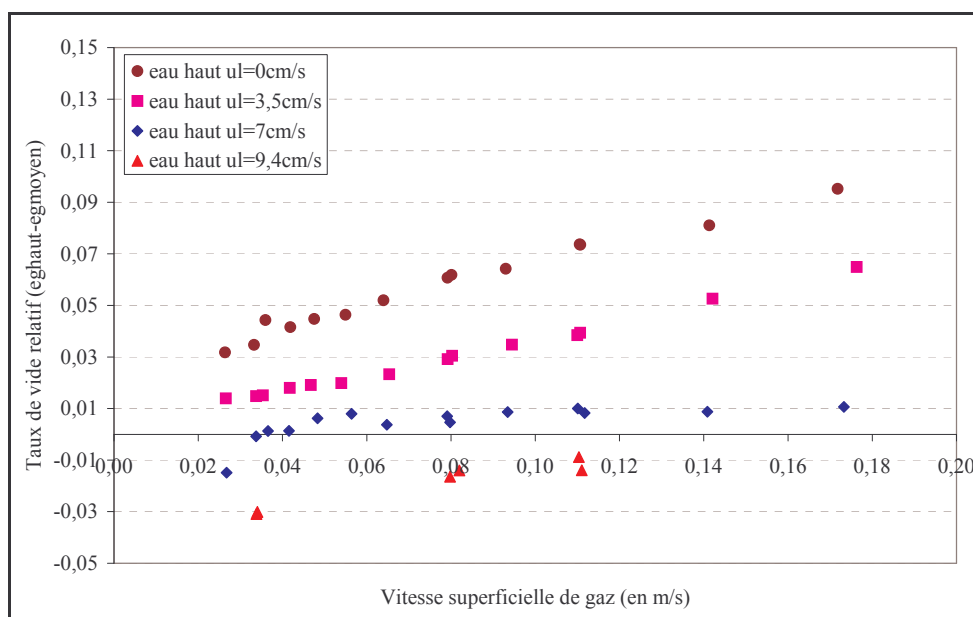


Figure 102 : Ecart du taux de vide en haut de compartiment au taux de vide moyen du compartiment

*Pour les deux milieux, l'augmentation de la vitesse liquide conduit à diminuer, voire à annuler, l'accumulation de gaz sous les plateaux.*

### D.II.3. Taux de vide local, fréquence de bulles

La comparaison des valeurs de taux de vide global dans un compartiment avec le taux de vide local intégré sur la section du niveau 2 (dans un compartiment entre deux plateaux) devrait aussi nous renseigner quant à l'évolution axiale dans un compartiment. Au préalable, le tracé des profils est indispensable.

D.II.3.a. Profils

Les profils de taux de vide et de fréquences de bulles obtenus en eau et cyclohexane sont tracés sur la Figure 103 et la Figure 104.

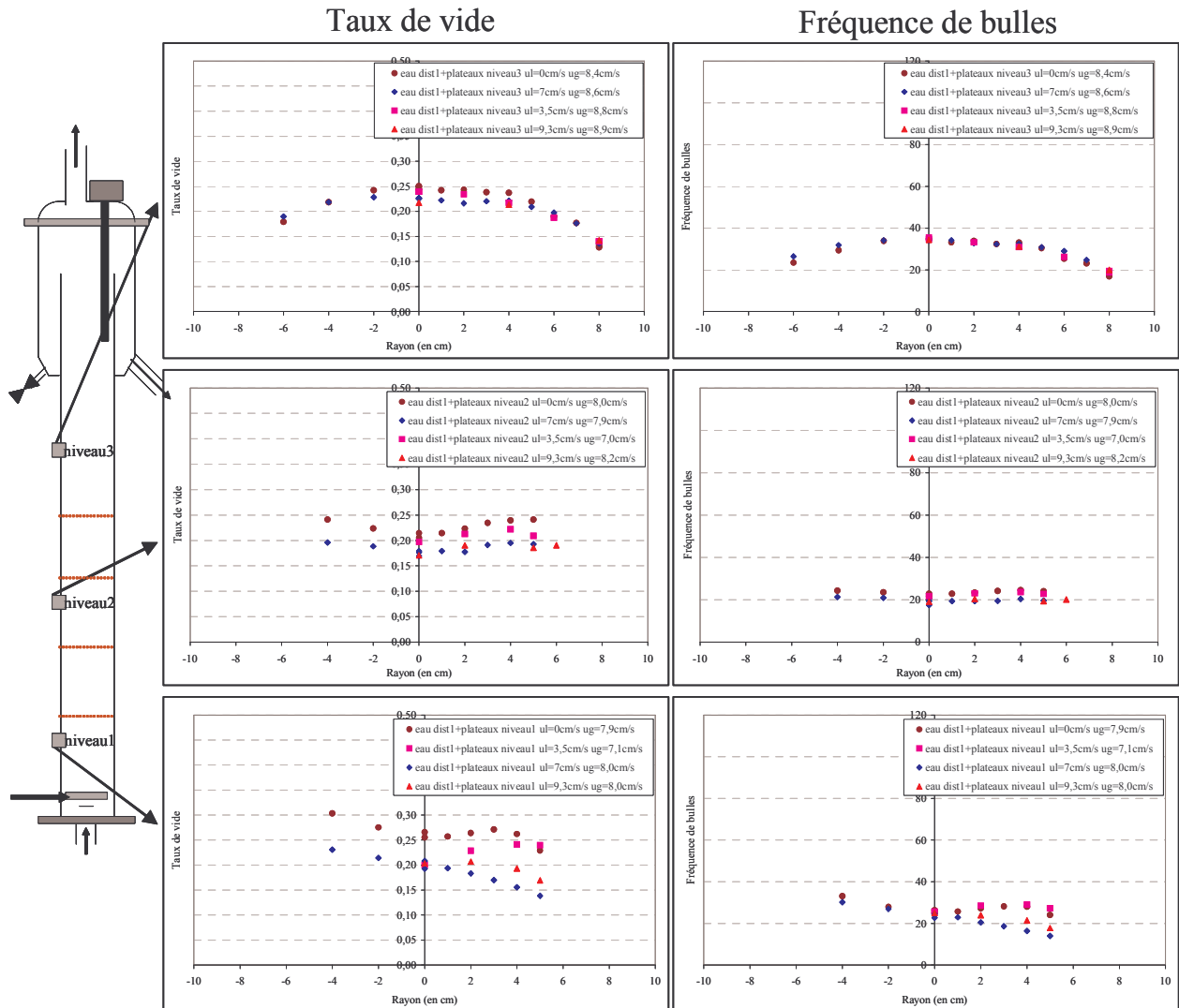


Figure 103 : Effet du débit liquide sur les profils de taux de vide et de fréquences de bullage en colonne avec plateaux (eau,  $u_G=8\text{cm/s}$ )

Niveau 1 ( $h=25\text{cm}$ ) : zone du distributeur

Au niveau 1, en eau, l'effet du débit liquide est identique à celui observé en colonne vide : les profils deviennent de plus en plus bombé avec  $u_L$ . Pour les profils obtenus en cyclohexane en revanche, aucune tendance nette n'est visible. Cette zone n'étant pas l'objet de notre étude, elle n'est pas approfondie davantage.

Niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) : compartiment entre deux plateaux

Au niveau 2, comme en colonne vide, le taux de vide diminue en présence d'une circulation de liquide. Les profils pour leur part s'aplatissent, voire se creusent légèrement au centre à forts débits liquide, suggérant une inversion de la recirculation liquide dont les effets restent toutefois très modérés. Une augmentation supplémentaire de  $u_L$  pourrait créer de nouvelles inhomogénéités radiales.

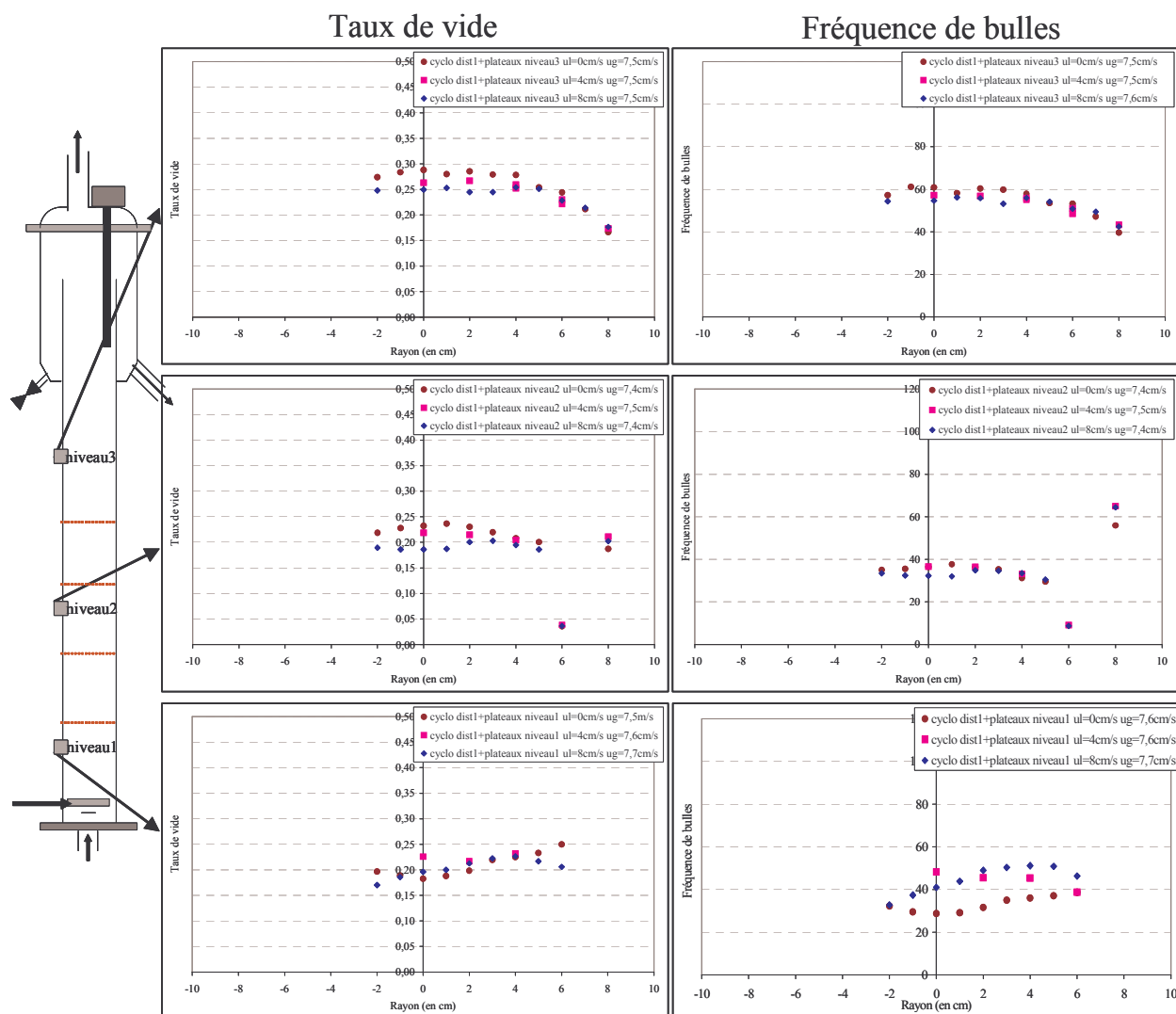


Figure 104 : Effet du débit liquide sur les profils de taux de vide et de fréquence de bullage en colonne avec plateaux (cyclohexane,  $u_G=7,5\text{cm/s}$ )

*Remarque*

Notons qu'en cyclohexane, le point à  $r=6\text{cm}$ , situé à proximité d'une entretoise n'est pas représentatif du compartiment ; la tige présente à cet endroit constitue peut-être un passage préférentiel pour un écoulement liquide descendant. Le point à  $r=8\text{cm}$  pour sa part, de taux de vide similaire à celui obtenu entre 0 et 4cm, valide l'hypothèse d'un profil quasi-plat. Le point obtenu à cette position en terme de fréquences de bulles est par contre plus surprenant : très supérieur aux autres, il signifie soit que la taille des bulles est plus petite dans cette zone, soit que les bulles sont plus rapides. Ce dernier aspect va dans le sens d'un écoulement inversé dans un compartiment, mais cela ne peut pas être vérifié ici, car ce point a été analysé en monosonde.

Niveau 3

Au niveau 3, après le dernier plateau, la circulation liquide continue à aplanir les profils. Cette tendance est contraire à un retour vers le cas sans plateau à ce niveau : les effets des plateaux et du débit liquide sont encore sensibles.

**Pour les deux milieux, les profils de taux de vide et de fréquences de bulles sont aplanis par la circulation liquide au niveau 2 (compartiment entre deux plateaux), comme au niveau 3 (après le dernier plateau).**



*Dans l'espace entre plateaux (niveau 2), les profils ont tendance à se creuser légèrement avec  $u_L$  : la circulation du liquide ( $u_L \neq 0$ ) pourrait inverser le sens de la recirculation dans un compartiment ; la vitesse maximale ascendante serait vers la paroi.*

### D.II.3.a. Valeurs centrales

Les profils de taux de vide précédents étant assez plats, la comparaison des taux de vide sur une section et dans un compartiment, peut être étendue à une gamme de débits gazeux plus large en assimilant, avec prudence, la valeur centrale de taux de vide (niveau 2) à la moyenne de la section. Cette comparaison est, à titre indicatif, étendue au niveau 3 (après le dernier plateau). La Figure 105, représente ces comparaisons pour les deux milieux.

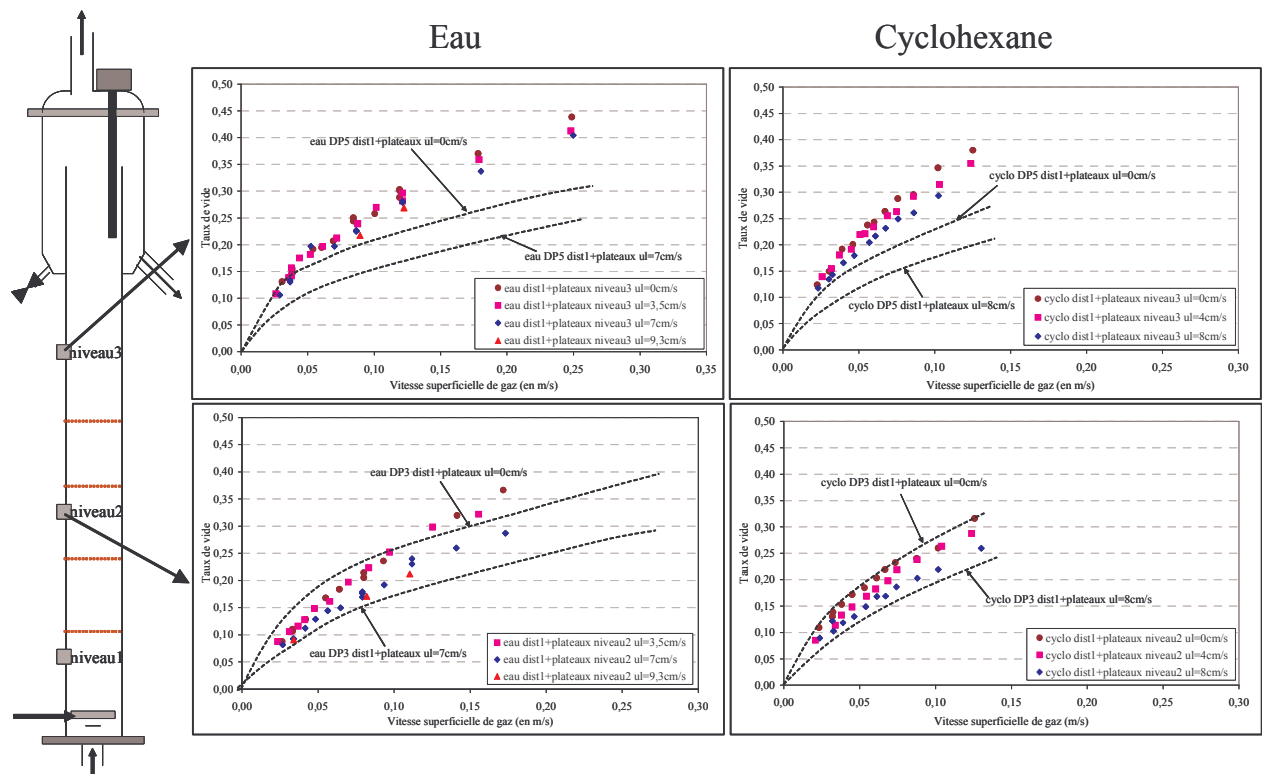


Figure 105 : Comparaison des valeurs locales (sur l'axe) et globales de taux de vide en présence de plateaux

#### Niveau 2 ( $h=65\text{cm}$ ) : compartiment entre deux plateaux

Au niveau 2, pour  $u_L=7\text{-}8\text{cm/s}$ , le taux de vide global est légèrement inférieur au taux de vide local au centre : le faible écart entre ces deux courbes met en évidence des évolutions axiales et radiales de taux de vide faibles.

#### Niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) : zone après le dernier plateau

Au niveau 3, l'écart entre les courbes globales et locales se creuse lorsque la vitesse du liquide croît. Le profil de taux de vide en cette zone ayant plutôt tendance à s'aplatir qu'à se bomber en présence de circulation liquide, cela signifie qu'il y a une évolution axiale de taux de vide en sortie du dernier plateau. Au vu des tendances observées, le taux de vide augmente axialement.

*Pour les deux milieux, en présence d'une alimentation liquide, les évolutions axiales et radiales du taux de vide entre deux plateaux sont a priori faibles et une recirculation liquide interne inversée semble favorisée.*

*Le taux de vide moyen sur une section diminue avec le débit liquide dans l'ensemble de l'espace entre plateaux.*

*En sortie du dernier plateau, le taux de vide augmente axialement.*

L'effet du débit liquide sur les valeurs centrales de fréquences de bulles est faible quel que soit le milieu et le niveau (cf. Figure 106) : la fréquence de bulles diminue peu lorsque  $u_L$  augmente. Ces valeurs ne peuvent en toute rigueur pas être comparées à celles issus des cas sans plateaux, car l'allure de leurs profils est différente. Les points associés sont toutefois représentés à titre indicatif sur la Figure 106. Quelle que soit la vitesse de liquide, la fréquence de bullage diminue systématiquement lors d'ajout de plateaux.

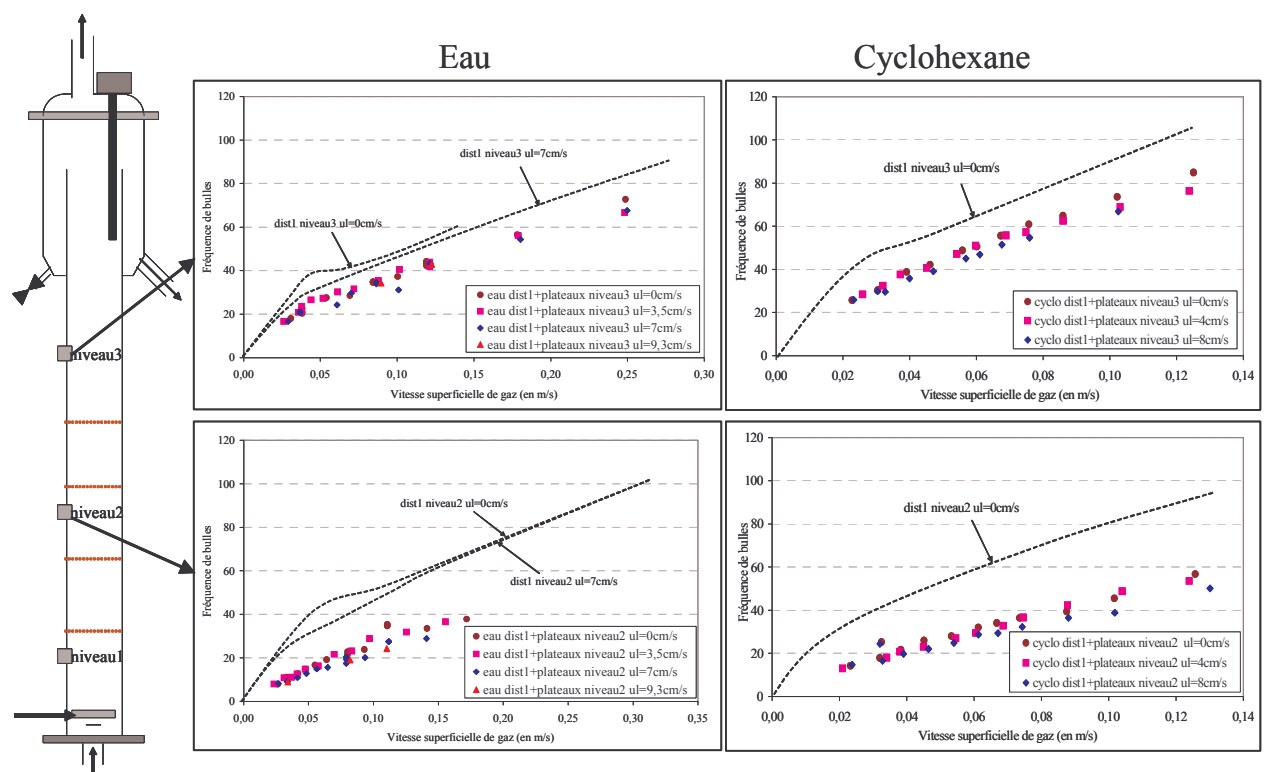


Figure 106 : Effet de la vitesse liquide sur les valeurs centrales de fréquences de bulles en eau et en cyclohexane

Pour estimer la diminution respective du taux de vide et de la fréquence de bullage, sans effet d'échelle, le rapport  $\varepsilon_G/f_B$  est tracé (cf. Figure 107) : quel que soit le milieu et le niveau, l'effet du débit liquide est faible.

*Excepté à faible  $u_G$ , où l'effet du débit liquide est plus marqué, les diminutions du taux de vide et de la fréquence de bullage avec  $u_L$  sont semblables pour les deux milieux ; ils ont donc un rapport  $d_B/v_B$  identique.*

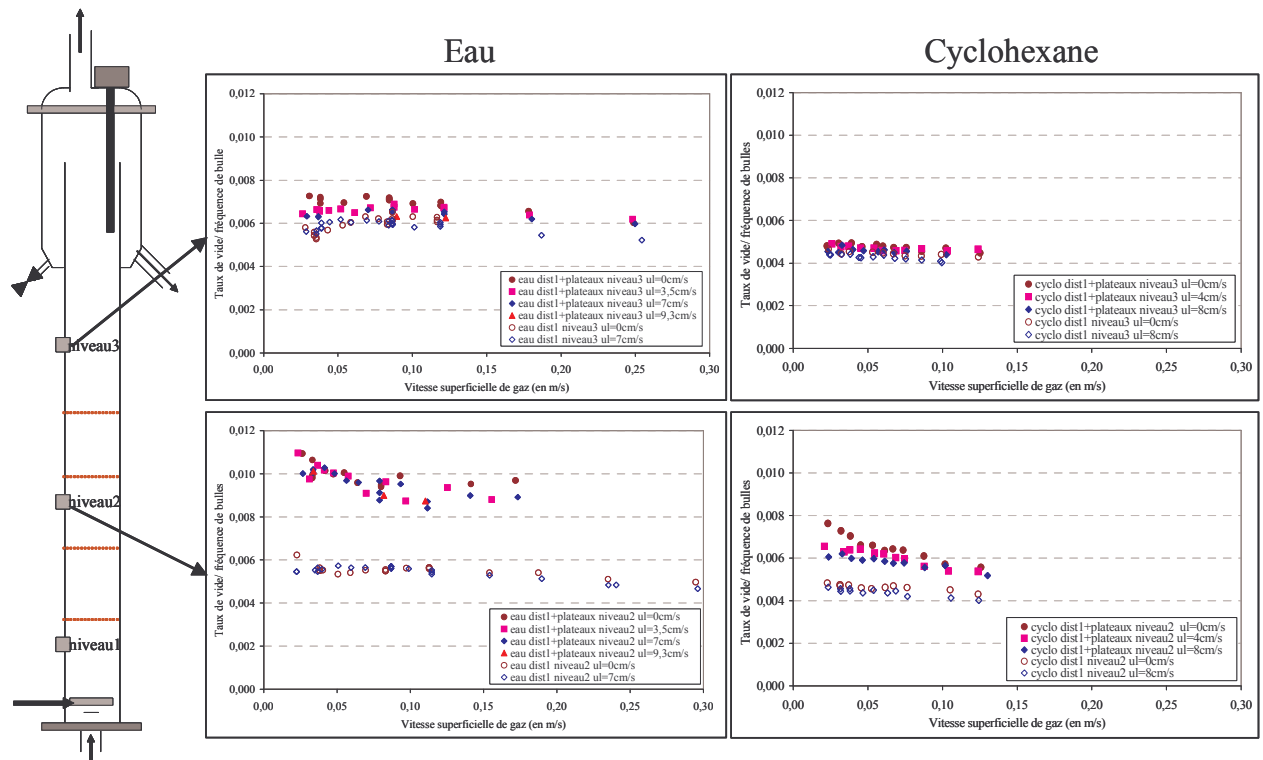


Figure 107 : Effet de la vitesse liquide sur les valeurs centrales de  $\varepsilon_G/f_B$

#### D.II.4. Aire interfaciale et diamètre de Sauter

L'effet croisé des plateaux et du débit liquide sur les diamètres de Sauter et les aires interfaciales est évalué dans ce paragraphe.

##### D.II.4.a. Profils

Les profils de diamètres de Sauter et d'aires interfaciales sont représentés pour l'eau et le cyclohexane respectivement sur la Figure 108 et la Figure 109.

##### Niveau 1 (h=25cm) : zone du distributeur (eau)

Comme sans plateau,  $u_L$  tend à augmenter le diamètre de Sauter et à diminuer l'aire interfaciale.

##### Niveau 2 (h=65cm) : compartiment entre deux plateaux

Au niveau 2, les allures des profils sont peu modifiées par l'ajout de  $u_L$ . Le diamètre de Sauter tend en moyenne à diminuer (surtout visible en cyclohexane). Les modifications de l'aire interfaciale sont moins nettes.

*Remarque :*

*Bien que légèrement plus faible, la valeur pour  $r=6\text{cm}$  en cyclohexane est assez conforme aux autres, malgré le faible taux de vide observé dans cette zone du fait de la présence de l'entretoise.*

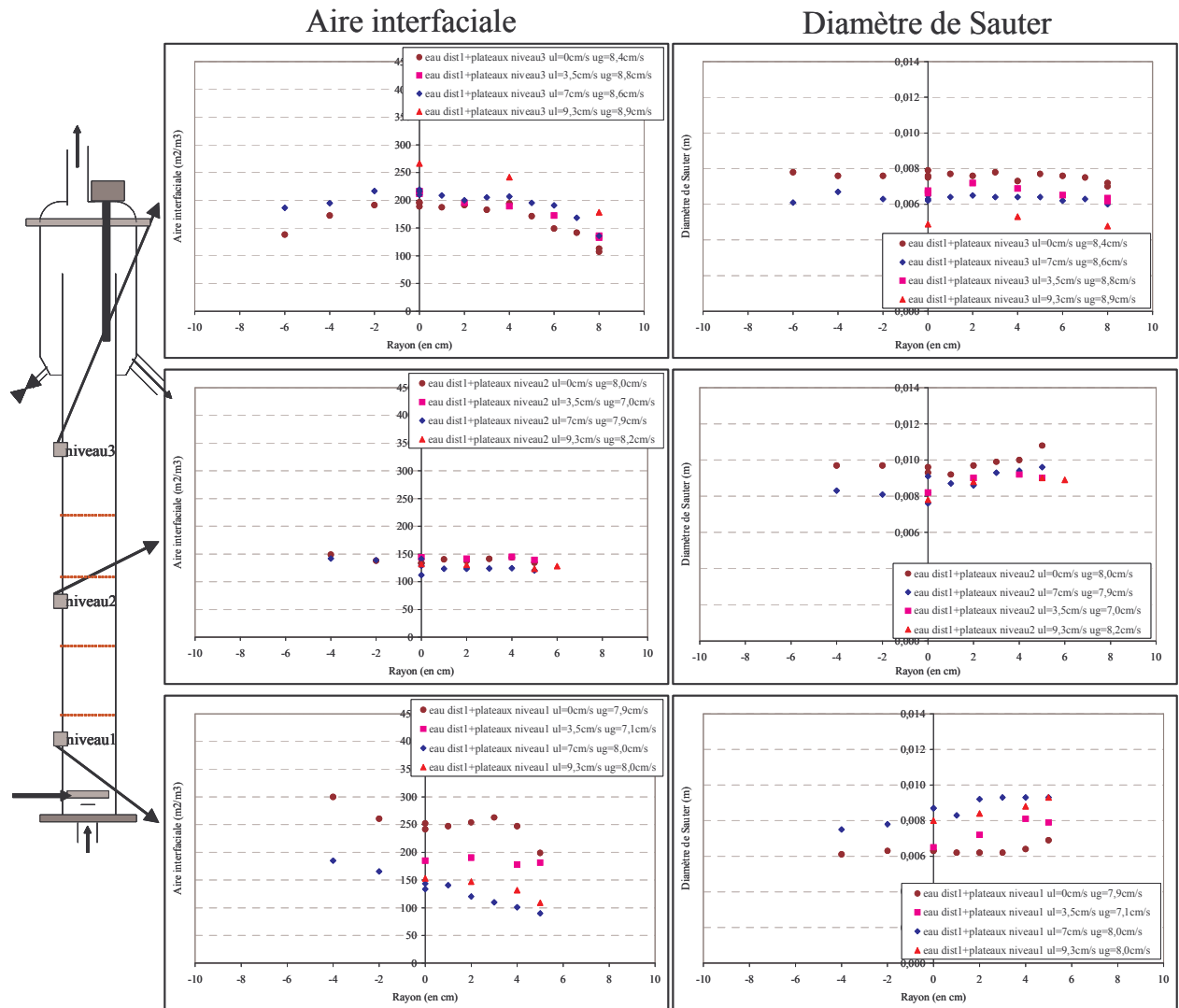


Figure 108 : Effet du débit liquide sur les profils d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter en colonne avec plateaux (eau,  $u_G=8\text{cm/s}$ )

Niveau 3 ( $h=115\text{cm}$ ) : zone après le dernier plateau

Au niveau 3, l'allure des profils de diamètres de Sauter varie peu avec  $u_L$ , mais la valeur du diamètre tend à décroître, effet plus marqué en eau qu'en cyclohexane.

Les profils d'aires interfaciales tendent pour leur part à être moins bombés en présence d'un débit liquide et l'aire interfaciale augmente.

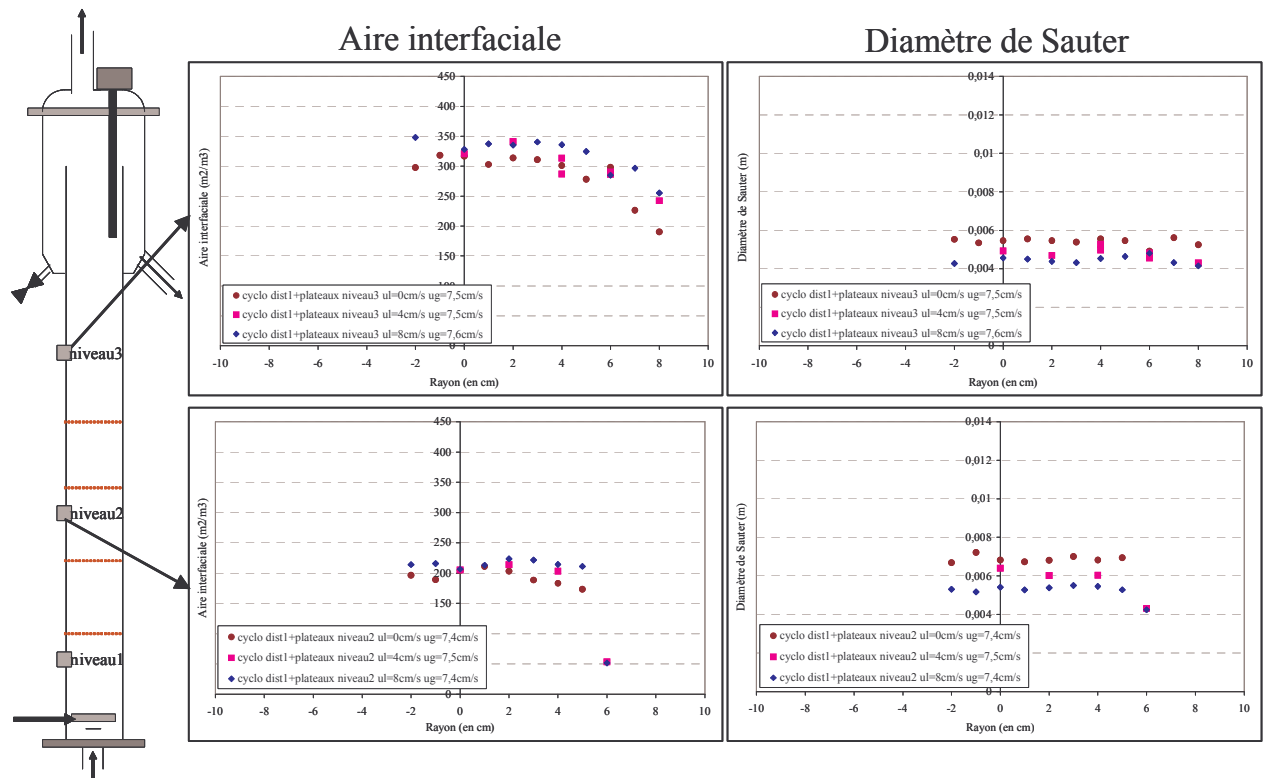


Figure 109 : Effet du débit liquide sur les profils d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter en colonne avec plateaux (cyclohexane,  $u_G = 7,5 \text{ cm/s}$ )

#### D.II.4.b. Valeurs centrales

En présence de plateaux, les allures des profils de diamètres de Sauter et d'aires interfaciales étant peu modifiées par la circulation liquide, l'effet de  $u_L$  peut être étendu à toute la gamme de  $u_G$  via les grandeurs sur l'axe. Elles sont tracées pour l'eau (cf. Figure 110) et le cyclohexane (cf. Figure 111).

Au niveau 2 (compartiment entre deux plateaux), la diminution de diamètre de Sauter avec la vitesse superficielle de liquide est très marquée mais engendre peu de changement en aires interfaciales, car le taux de vide diminue de pair. A fortes vitesses de gaz, en cyclohexane, les valeurs de diamètres de Sauter (de l'ordre de 6mm) et d'aires interfaciales (de l'ordre de  $250 \text{ m}^2/\text{m}^3$ ) obtenues en régime hétérogène en colonne vide sont retrouvées alors qu'en eau, le diamètre de Sauter reste supérieur à celui observé en colonne vide.

Au niveau 3 (après le dernier plateau), l'aire interfaciale augmente légèrement avec  $u_L$  : la diminution du diamètre de Sauter prédomine sur celle du taux de vide. A fortes  $u_G$ , la taille des bulles ne dépend quasiment pas du débit liquide et la taille d'équilibre établie sans plateau est retrouvée (6mm en cyclohexane, 8mm en eau). En eau, les valeurs d'aires interfaciales sont comparables à celles obtenues sans plateau, alors qu'elles sont supérieures en cyclohexane (environ  $400 \text{ m}^2/\text{m}^3$ ) : cette zone, où le gaz est uniformément réparti sur la section est favorable au transfert de matière.

L'aire interfaciale tend à augmenter entre les niveaux 2 et 3 (compartiment entre deux plateaux et après le dernier plateau), car le taux de vide augmente.

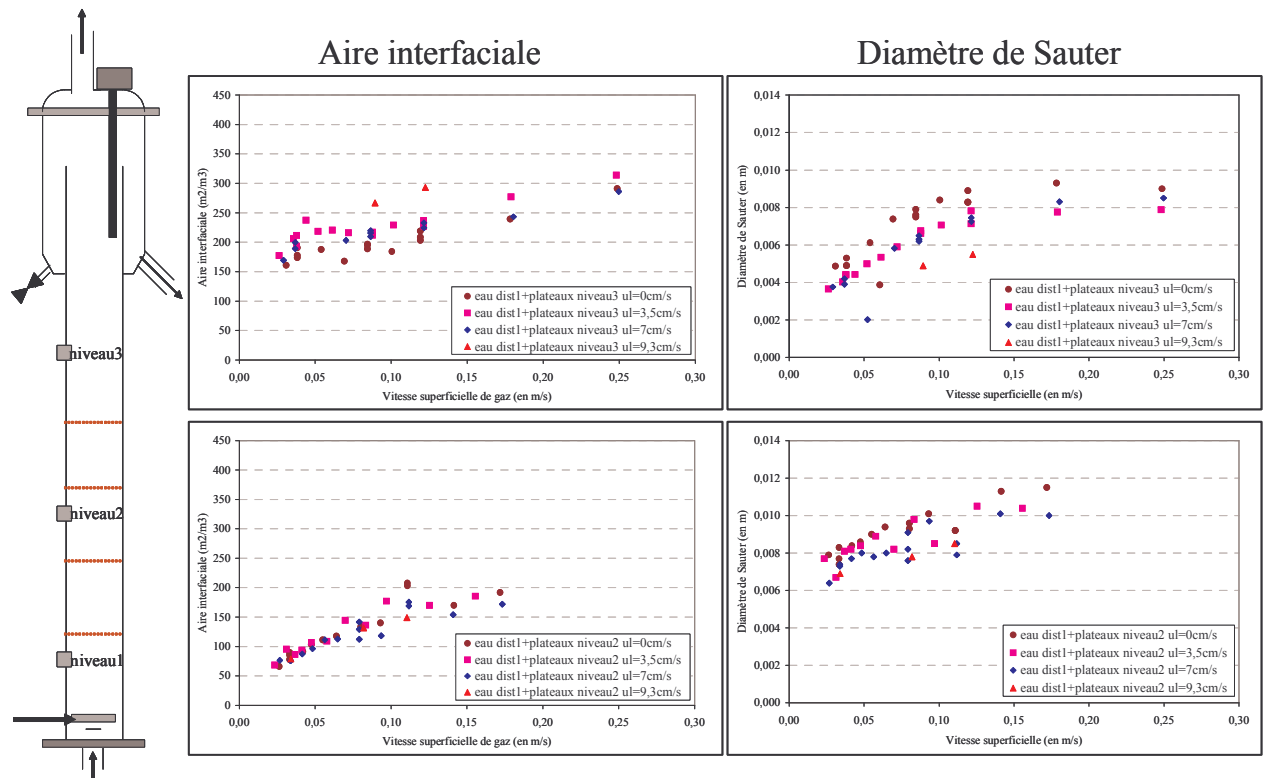


Figure 110 : Effet du débit liquide sur les valeurs centrales d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter en colonne avec plateaux (eau)

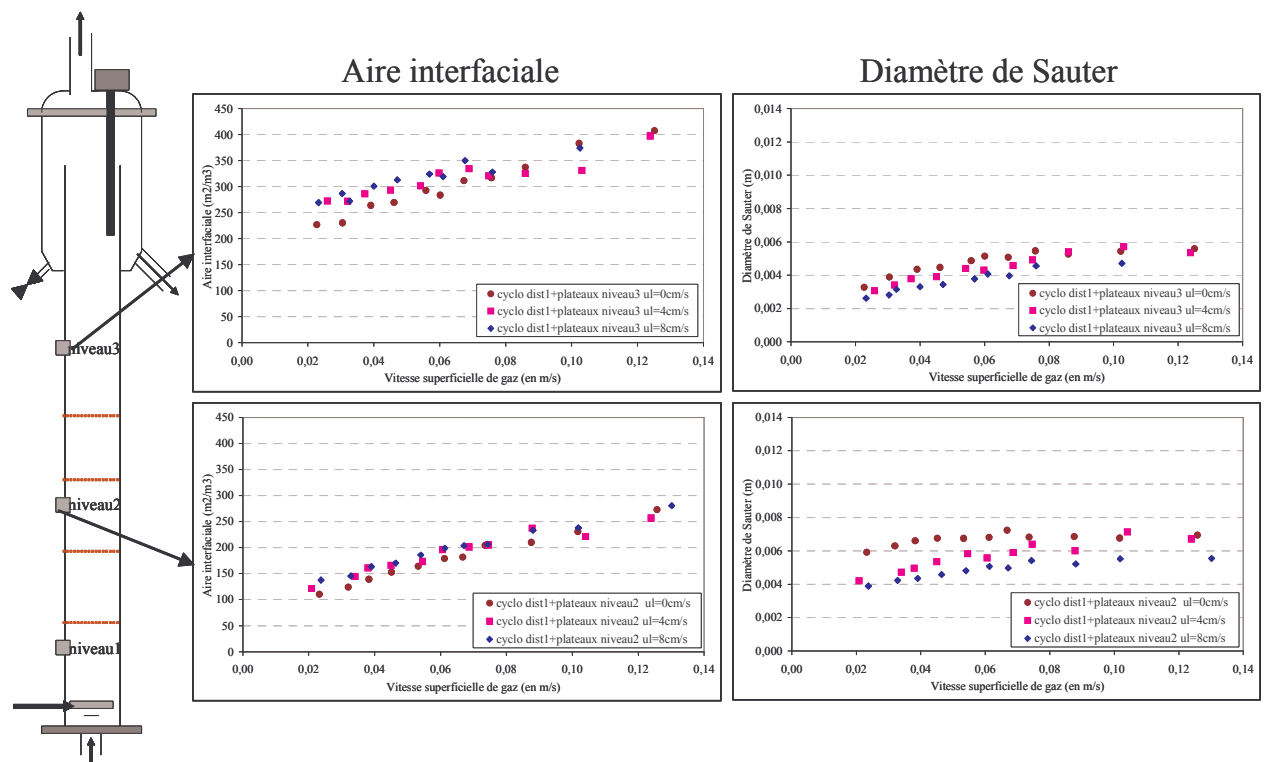


Figure 111 : Effet du débit liquide sur les valeurs centrales d'aires interfaciales et de diamètres de Sauter en colonne avec plateaux (cyclohexane)

### D.II.5. Conclusions

En présence de plateaux, on peut supposer, comme en colonne vide, que la vitesse de liquide augmente la recirculation, mais que celle-ci, beaucoup plus réduite est « inversée » (descente du liquide au centre), tendant à homogénéiser radialement la répartition du gaz. Il s'avère en outre que cette vitesse liquide homogénéise axialement l'écoulement en diminuant le « coussin de bulles » placé sous le plateau. Cette diminution est salutaire et limite les problèmes d'explosivité engendrés par l'accumulation de gaz sous un plateau en conditions industrielles. Ainsi, au niveau industriel, il est préférable pour la sécurité en présence de plateaux de travailler avec un débit liquide suffisant.

En présence d'un débit liquide, la taille des bulles dans un compartiment diminue ; elle retrouve en cyclohexane sa valeur en colonne vide en régime hétérogène ( $\approx 6\text{mm}$ ). Les ordres de grandeurs de taux de vide étant similaires à fortes vitesses de liquide entre les cas avec et sans plateaux, les valeurs d'aires interfaciales au centre sont aussi similaires. En cyclohexane, l'utilisation couplée des plateaux et de  $u_L=8\text{cm/s}$  permet de limiter la dispersion axiale, d'avoir une bonne répartition du gaz et une aire interfaciale similaire au cas sans plateau.

L'effet du débit liquide est donc très favorable en présence de plateaux : meilleure répartition du gaz, diminution du « coussin de bulles » et de la taille des bulles. Dans nos conditions cependant, les valeurs d'aires interfaciales en présence de plateaux sont du même ordre que sans plateaux ; le transfert ne doit donc pas être amélioré. Ce point est vérifié au chapitre V.

## PARTIE E : CONCLUSIONS, PERSPECTIVES

---

Au terme de ce chapitre, point principal de notre contribution, il convient de dégager les apports essentiels de cette étude hydrodynamique avant d'en analyser les manques et de proposer des perspectives d'études complémentaires.

En premier lieu nous apportons une masse de résultats nouveaux combinant les informations de type global ou semi global, comme le taux de vide et son évolution axiale, et des mesures locales sur la phase gaz, basées sur une utilisation « optimale » d'une bi-sonde optique dans des conditions très difficiles d'écoulement diphasique sans vitesse porteuse.

Malgré ses limites importantes (mesures limitées à une catégorie de bulles ascendantes, impossibilité de mesurer une distribution de taille, difficulté d'analyse de certains milieux additivés), la bi-sonde optique fournit une estimation raisonnable du diamètre de Sauter et de l'aire interfaciale locale. Ces données sont extrêmement difficiles à obtenir localement par toute autre technique.

Notre double approche (globale-locale) s'est avérée très utile et sensée, car elle a mis en évidence l'insuffisance de la mesure de la moyenne du taux de vide pour caractériser l'établissement d'un régime stable axialement : les profils radiaux (de taux de vide, tailles et fréquences de bulles) continuent à évoluer alors que le taux de vide sur la section est stabilisé. Cette évolution axiale prolongée remet aussi partiellement en cause la notion de régimes d'écoulement en colonnes à bulles : c'est une approche globale qui reste très utile mais qui est basée sur une vision simpliste d'écoulements encore plus complexes que prévu ; l'hypothèse de non évolution axiale du taux de vide correspondant à un équilibre rupture coalescence des bulles doit être revue, de même que l'ensemble des représentations unidimensionnelles qui font encore référence.

Cette remarque préliminaire faite, les principaux résultats de cette étude concernent :

- \_ L'effet de la nature du liquide, avec la comparaison détaillée eau – cyclohexane, et plus généralement l'influence de la physico-chimie sur les écoulements à bulles,
- \_ L'effet de l'alimentation en liquide à des vitesses significatives,
- \_ L'effet de plateaux perforés pour limiter le rétromélange liquide.

La comparaison eau – cyclohexane montre des différences de comportements très marquées tant au niveau global des régimes d'écoulement (régime hétérogène obtenu à bien moindre vitesse de gaz en cyclohexane) qu'en structure du milieu diphasique : bulles plus petites, et évolution axiale plus marquée en cyclohexane. L'étude à plus petite échelle en aquarium présente un comportement similaire, mais il ne peut pas être expliqué simplement à l'aide de trois propriétés physico-chimiques de base du liquide que sont la viscosité, la tension superficielle et la densité.

À faibles vitesses de gaz, l'ajout d'un débit liquide modifie considérablement le fonctionnement de la colonne à bulles, tendant à généraliser le régime hétérogène et réduisant fortement les performances en terme d'aires interfaciales. En conditions industrielles, à fortes vitesses de gaz, l'effet est heureusement beaucoup plus limité.

L'addition de plateaux est très efficace pour segmenter la colonne. Tous les espaces inter-plateaux sont équivalents. Par contre, à débit liquide nul et vitesse de gaz supérieure à 4cm/s, l'addition de plateaux présente de graves inconvénients : forte hétérogénéité axiale de taux de vide liée à l'accumulation de gaz sous le plateau, chute des performances en terme d'aire interfaciale.

Ces inconvénients disparaissent avec un fort débit liquide qui empêche l'accumulation de bulles sous le plateau et homogénéise leur répartition.

Le résultat final, aussi important qu'étonnant, est que les différences de comportement entre le cyclohexane et l'eau, qui s'étaient estompées avec plateaux sans débit liquide, réapparaissent dans la configuration industrielle, avec plateaux et débit liquide. Ce résultat, difficile à prévoir et même à interpréter a posteriori, justifie à lui seul l'étude expérimentale complète en conditions de milieu et de géométrie, en l'absence de connaissances fondamentales suffisantes sur les écoulements diphasiques complexes à très forts taux de vide.

L'ensemble des données précédentes confirme l'intérêt d'utiliser des plateaux en cas d'alimentation liquide à forte vitesse, et montre par ailleurs que l'écoulement dans l'espace entre plateaux est reproduit d'un étage à l'autre. Dans cet espace entre plateaux, la recirculation de liquide est fortement limitée, voire inversée par rapport à la colonne vide, les divers profils radiaux sont plus aplatis et le taux de vide est uniformisé axialement.

Dans une perspective industrielle d'optimisation du design des plateaux il conviendrait d'étudier en détail un seul espace inter-plateaux en abordant les effets respectifs de la taille et du nombre des orifices, et surtout de la hauteur entre plateaux. L'apparente uniformité radiale et axiale à fort débit liquide pourrait réduire l'effort expérimental lors de l'exploration du compartiment.

Dans le cadre d'une étude plus raffinée des caractéristiques des bulles (distribution des tailles et des vitesses), la bi-sonde optique pourrait être utilisée selon trois orientations. En limitant fortement l'intervalle de recherche, autour du temps de vol optimal, on ne conserverait que des bulles piquant la sonde selon son axe et on pourrait en comparer la taille, la vitesse et la fréquence sur ces trois directions. Une analyse fréquentielle des signaux pourrait également fournir des informations intéressantes sur les essaims de bulles.





## CHAPITRE V : TRANSFERT DE MATIERE

La caractérisation hydrodynamique d'une colonne à bulles permet de connaître la répartition des phases dans l'appareil et de maîtriser les paramètres qui la gèrent. Réaliser un bon contact entre les phases en présence est une condition nécessaire à l'efficacité du réacteur (en terme d'avancement d'une réaction chimique gaz-liquide par exemple), mais pas suffisante : le transfert des réactifs d'une phase vers une autre (en général du gaz vers le liquide) doit également être satisfaisant : grande surface d'échange ( $a$ ), bon coefficient de transfert à l'interface ( $k_L$ ), bon temps de séjour des bulles. La maîtrise des paramètres hydrodynamiques, si elle se traduit par un bon transfert, ne permet cependant pas de le quantifier. Ainsi pour que cette étude soit aussi complète que possible, l'estimation du transfert de matière dans notre pilote est un enjeu supplémentaire.

Comme pour l'hydrodynamique, cette évaluation n'est pas nouvelle, mais les conditions difficiles explorées ici compliquent considérablement sa mise en œuvre : d'une part les débits gazeux importants favorisent un transfert rapide, qui est alors difficile à quantifier, et d'autre part l'utilisation du milieu modèle, le cyclohexane, rend l'utilisation de l'oxygène, et des méthodes de dosages classiques, très problématiques. Ces contraintes sont sévères et font de l'évaluation de l'efficacité du transfert en pilote industriel un véritable challenge, la bibliographie ne faisant pas état de mesures de ce type.

Notre objectif est de fournir des informations concernant le transfert de matière en cyclohexane, ainsi que sur les effets du débit liquide et de la présence de plateaux perforés. Il faut pour cela sélectionner une méthode de mesure du transfert, un gaz à transférer ainsi qu'une méthode d'analyse de concentration adéquate. Ce chapitre se compose de trois parties. La première pose les bases de la méthode à utiliser, la seconde s'intéresse à sa mise en œuvre et la troisième décrit les résultats obtenus.

### **PARTIE A : CHOIX D'UNE METHODE ADAPTEE**

---

Parmi les caractéristiques du transfert de masse, le coefficient volumétrique de transfert de matière ( $k_L a$ ) s'impose dans la littérature comme le paramètre essentiel de l'échange gaz-liquide dans un contacteur polyphasique. La connaissance distincte de  $k_L$  et de  $a$ , bien plus complexe, n'est en général pas nécessaire. Cette partie est donc consacrée à la détermination de  $k_L a$ .

## A.I. METHODES EXPERIMENTALES CLASSIQUES DE MESURE DE $k_L a$

Le flux de transfert de matière gaz-liquide dépend du coefficient de transfert de matière, de l'aire interfaciale gaz-liquide et de la différence de concentration entre l'interface gaz-liquide et le cœur du liquide. Dans l'exemple du transfert d'un constituant A, il peut être décrit par la relation suivante :

$$\phi = K_L a (c_L^* - c_L) = k_L a (c_L^i - c_L) = k_G a (c_G - c_G^i) \quad (\text{eq.1})$$

où : a est l'aire interfaciale spécifique gaz-liquide,

$c_G^i$  et  $c_L^i$  sont les concentrations en A à l'interface dans le gaz et dans le liquide (cf. Figure 1),

$c_G$  est la concentration en A dans le gaz,

$c_L$  est la concentration en A dissous dans le liquide,

$c_L^*$  est la concentration à saturation du gaz dans le liquide,

$k_G$  et  $k_L$  sont les coefficients de transfert de matière côté phase gazeuse et côté phase liquide (respectivement),

$K_L$  est le coefficient de transfert de matière global.

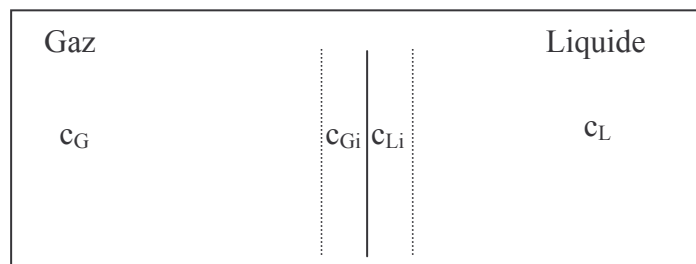


Figure 1 : Représentation des différentes concentrations

Pour le calcul du coefficient volumétrique de transfert de matière en écoulement à bulles, la résistance au transfert côté gaz est en général négligée, ce qui se traduit par l'égalité entre le coefficient de transfert global,  $K_L$ , et le coefficient de transfert de matière côté liquide,  $k_L$ . Cette hypothèse repose aussi sur la faible solubilité du gaz dans le liquide.

Pour déterminer  $k_L a$ , il existe deux types de méthodes : les méthodes chimiques et les méthodes physiques. Chacune de ces catégories comporte deux sous catégories : les méthodes dynamiques (procédés discontinus) et les méthodes stationnaires (procédés continus).

### A.I.1. Méthodes chimiques

Les méthodes chimiques sont fréquemment utilisées. Faciles à mettre en œuvre, ce sont les seules qui permettent la détermination combinée de  $k_L a$  et de l'aire interfaciale.

Ces méthodes consistent à mesurer la vitesse d'absorption d'un gaz dans la phase liquide lors d'une réaction chimique de cinétique connue. Ensuite, selon la solubilité des composés, la concentration des réactifs et les vitesses de réaction, les paramètres  $k_L a$  et/ou a sont déduits. Les réactions chimiques les plus couramment utilisées sont :

- \_ L'oxydation des sulfites [Yoshida et al. (1965), Wilkinson et al. (1994), Deckwer (1992), ...],
- \_ La réaction du CO<sub>2</sub> avec les solutions de carbonate-bicarbonate,
- \_ L'oxydation de l'hydrazine, de CH<sub>3</sub>CHOOH, de l'isobutanol, de H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, de NH<sub>4</sub><sup>+</sup>,
- \_ La méthode de décomposition du peroxyde [Davidson et al. (1995)].

Les difficultés de cette approche sont [Charpentier (1986)] :

- \_ La nécessité de connaître l'écoulement dans la colonne (modèle),
- \_ Le manque de précision lorsque le transfert est important,
- \_ La modification du milieu par l'ajout de réactifs,
- \_ La nécessité de parfaitement connaître et maîtriser la cinétique de la réaction utilisée.

Les méthodes chimiques, utilisées en régime transitoire ou en régime stationnaire, conduisent à des résultats similaires [Niiyama et al. (1978)], mais ces résultats diffèrent de ceux issus des méthodes physiques du fait de la modification du milieu par les réactifs.

L'applicabilité de ces méthodes se limite en général aux solutions aqueuses, car les réactifs utilisés sont quasiment exclusivement aqueux. Les solutions aqueuses ne pouvant pas représenter correctement les liquides organiques, l'application de ces méthodes aux liquides industriels est délicate [Charpentier (1986)] et nécessiterait la mise en œuvre d'une réaction spécifique à chaque liquide, réaction dont il faudrait au préalable parfaitement définir la cinétique.

## **A.I.2. Méthodes physiques**

Les méthodes physiques sont les plus utilisées en colonnes à bulles [Deckwer (1992)]. Elles reposent sur la mesure du flux de transfert de matière en l'absence de toute réaction chimique par absorption ou désorption physique de gaz dans le liquide, en régime permanent [Syaiful (1992), Mawlana (1987)] ou en régime transitoire [Deckwer (1992), Syaiful (1992)].

Pour ces mesures, le choix d'un gaz à échanger s'impose. L'oxygène est le plus courant [Akita et al. (1973), Deckwer (1992), Syaiful (1992), Letzel et al. (1999a), Ozturk et al. (1987), ...], car sa pression partielle dans la phase liquide est facilement déterminable par une méthode électrochimique [Deckwer (1992)], mais l'utilisation d'autres gaz comme le dioxyde de carbone est envisageable [Sotelo et al. (1994)].

### **A.I.2.a. Méthode stationnaire**

La méthode stationnaire est basée sur l'absorption en régime permanent d'un constituant gazeux (souvent l'oxygène) dans le liquide. Pour cela, le gaz et le liquide doivent s'écouler en continu dans une colonne, où les compositions d'entrée sont constantes (ce qui nécessite souvent un second contacteur).

En régime permanent, la concentration en gaz dissous dans le liquide peut être mesurée en divers points le long de la colonne. Le profil ainsi obtenu permet d'identifier simultanément les paramètres du modèle hydrodynamique choisi (le plus souvent un modèle piston à dispersion axiale) et  $k_L a$ . Cependant, la concentration du gaz dissous dans la phase liquide n'est souvent mesurée qu'en deux points : l'entrée et la sortie [Deckwer et al. (1992)]. Dans ce cas, la connaissance préalable de la structure de l'écoulement est nécessaire.

La méthode en régime permanent permet ainsi d'obtenir des données correctes, mais la méthode dynamique lui est souvent préférée, car elle est plus souple, plus polyvalente, et plus économe en temps et en matériel [Linek et al. (1993)].

### **A.I.2.b. Méthode dynamique (transitoire)**

Cette méthode repose sur un changement brusque (échelon) de la pression partielle en un constituant gazeux A (souvent l'oxygène) dans le gaz. Il s'agit alors de mesurer l'évolution au cours du temps de la concentration du gaz A (absorption ou désorption) en un ou plusieurs points de la colonne [Syaiful (1992), Deckwer (1992), Linek et al. (1989), Letzel et al. (1999a), Ozturk et al. (1987)], et ce, soit dans la phase liquide, soit dans la phase gazeuse.

La modification initiale de l'équilibre peut revêtir soit la forme d'un échelon sur la concentration du gaz entrant (modification de la pression partielle en A), soit celle d'un échelon sur la pression (modification de la concentration à saturation) [Letzel et al. (1999a)].

Cette technique a pour principal avantage d'être utilisable avec n'importe quel gaz et n'importe quel liquide, à condition de pouvoir mesurer la concentration en A et d'avoir au préalable établi un modèle d'écoulement pour la phase liquide (parfaitement mélangé, avec dispersion axiale [Kang et al. (1999)], piston, modèle à deux zones [Alvarez-Cuenca (1981)], ...). Cette approche est généralement utilisée pour mesurer  $k_{LA}$  dans un réacteur semi-fermé, c'est-à-dire sans débit d'alimentation de liquide.

#### ***A.I.2.b.α Echelon de concentration***

Lorsque la déstabilisation de l'état d'équilibre est initiée par un échelon de concentration, il s'agit de suivre l'évolution au cours du temps de la concentration du gaz A dans le liquide, évolution induite par un changement brusque de la composition du gaz injecté (échelon de concentration de A). Pour cela, il faut supposer que l'échelon se produit simultanément et de manière homogène dans tout le réacteur [Linek et al. (1989 et 1993), Müller et al. (1995)]. Or, le changement de concentration dans le courant d'alimentation ne peut pas se propager à une vitesse infinie ; il faut donc supposer que le temps de montée du gaz est très faible devant le temps de mélange de la phase liquide. Cette hypothèse [Linek et al. (1989, 1993)], ainsi que le fait de négliger le transfert des autres gaz que A, peuvent engendrer une erreur d'estimation du  $k_{LA}$  supérieure à 100% [Deckwer (1992)].

La méthode dynamique est donc extrêmement sensible au débit et à la composition de la phase gazeuse. Les méthodes dynamiques perdent en outre de la précision lorsque le transfert est intense (notamment lorsque la pression et /ou la vitesse de gaz sont élevées), car le temps de réponse de la méthode de mesure adoptée prend une importance considérable. Enfin, la mise en œuvre de cette méthode devient difficile à fortes pressions [Letzel et al. (1999a)].

#### ***A.I.2.b.β Echelon de pression***

Pour pallier au problème de la propagation de l'échelon, la méthode à échelon de pression a été élaborée [Linek et al. (1989)]. Cette méthode, adaptée aux systèmes travaillant sous pressions élevées, a été testée jusqu'à 10 bars [Kang et al. (1999)] dans des réacteurs fonctionnant la plupart du temps sans alimentation liquide [Linek et al. (1989, 1993), Wilkinson et al. (1994)]. Elle repose sur l'augmentation de la concentration de saturation  $c^*$  avec la pression [Letzel et al. (1999a)]. Un changement brutal de faible amplitude (5, 10% ou 20% [Linek et al. (1989)]) de la pression totale dans la colonne est alors réalisé sur un système stable et le changement résultant de concentration du gaz A dans le liquide est suivi au cours du temps [Wilkinson et al. (1994), Letzel et al. (1999a)]. La valeur de  $k_{LA}$  est ensuite

déduite, comme pour la méthode à échelon de concentration, à l'aide d'un modèle d'écoulement adéquat [Linek et al. (1989)].

Cette technique est particulièrement adaptée aux grandes échelles compte tenu des faibles variations de pression nécessaires [Linek et al. (1989, 1993)] et de l'utilisation d'un gaz unique [Letzel et al. (1999a)]. Par contre, lorsque le transfert est rapide, elle conserve les mêmes limitations que la méthode à échelon de concentration.

## **A.II. CHOIX ET MISE AU POINT D'UNE METHODE ADAPTEE A NOTRE ETUDE**

### **A.II.1. Contraintes spécifiques à notre étude, choix de la méthode**

Pour la mesure du transfert de matière en cyclohexane, toute réaction chimique est bannie, d'une part pour des raisons de sécurité, et d'autre part pour ne pas altérer les propriétés du liquide. Les méthodes physiques sont donc les seules envisageables.

Parmi elles, la méthode dynamique n'est pas adaptée, parce que des données doivent être obtenues en présence de circulation liquide et que de forts débits gazeux sont utilisés, débits qui favorisent un transfert rapide dont le suivi est limité par la dynamique des capteurs existants. Ainsi, la mesure en régime stationnaire s'impose. Il s'agit alors de déterminer le gaz à transférer et la méthode d'analyse associée les plus appropriés.

La phase étudiée est préférentiellement la phase liquide car, pour une étude en phase gaz, le ciel gazeux au-dessus de la colonne, zone où se ferait la mesure, devrait lui aussi faire l'objet d'un modèle d'écoulement, modèle assez difficile à identifier.

Enfin, la technique retenue pour le cyclohexane doit aussi s'appliquer pour l'eau, afin de permettre des comparaisons hydrodynamique- transfert avec les deux liquides.

### **A.II.2. Choix du gaz et de la méthode analytique de dosage associée**

Le gaz utilisé doit être inerte vis-à-vis du cyclohexane, mais son choix est aussi intimement lié à l'existence d'une méthode analytique adaptée aux gammes de concentrations attendues dans le cyclohexane.

#### **A.II.2.a. Données de solubilité dans le cyclohexane**

Pour déterminer les gaz intéressants à étudier, des données préliminaires sur les solubilités de divers gaz dans le cyclohexane sont capitales [Stephen et Stephen (1963)]. Elles permettent d'identifier quelques gaz (inertes pour le cyclohexane) peu solubles dans le cyclohexane :

- \_ l'hélium (0,01%mol),
- \_ l'azote (0,0075%mol),
- \_ le néon (0,04-0,015%mol),
- \_ I<sub>2</sub> (0,027%mol).

et d'autres, parmi les plus solubles :

- \_ le méthane,
- \_ l'hydrogène,

\_ le dioxyde de carbone.

### **A.II.2.b. Cas de l'oxygène**

L'oxygène, couramment utilisé pour mesurer le transfert, est moyennement soluble dans le cyclohexane. Il constitue ici un cas à part du fait de sa capacité à réagir violemment avec le cyclohexane. Ainsi, en cas d'utilisation, sa concentration devra être limitée, pour des raisons de sécurité, à de faibles concentrations (fixées à 1% pour rester en dehors de la zone d'explosivité).

Ces faibles concentrations ne posent aucun problème pour l'utilisation des cellules électrochimiques classiquement associées au suivi de l'oxygène, mais ces sondes possèdent une membrane qui résiste mal au cyclohexane, et ce même pour des sondes dites adaptées aux liquides organiques, comme nous avons pu le vérifier expérimentalement (sondes de marque Orbisphère). L'utilisation d'oxygène est donc évitée.

### **A.II.2.c Méthodes de caractérisation de gaz dissous autres que O<sub>2</sub>**

Pour mesurer la concentration dans la phase liquide de gaz dissous autres que l'oxygène, diverses méthodes sont accessibles. Les plus courantes sont présentées ici.

#### ***A.II.2.c.α Conductivité thermique***

La première d'entre elles repose sur la mesure de la conductivité thermique, propriété des gaz représentant leur capacité à conduire la chaleur. Cette propriété n'étant pas une fonction linéaire de la concentration, il est souvent nécessaire d'utiliser un gaz ayant une conductivité thermique importante (principalement l'hydrogène et l'hélium) et de travailler dans un domaine de très forte dilution où la réponse de la technique est linéaire. Les gaz classiquement dosés par cette méthode sont l'hydrogène, l'hélium, le méthane, l'argon et le dioxyde de carbone.

La société Orbisphère a élaboré une sonde fonctionnant sur ce principe, notamment pour la mesure du dioxyde de carbone. Elle associe une membrane de diffusion gazeuse avec un détecteur de conductivité thermique à semi-conducteur opérant en mode dynamique. Le faible volume entre la membrane de diffusion et le détecteur de conductivité thermique est balayé cycliquement par un gaz de purge (azote). La durée de ce cycle est d'environ 22s et est assimilée au temps de réponse de la sonde. Après chaque cycle de purge, la conductivité du gaz autour du détecteur varie graduellement depuis la valeur propre au gaz de purge jusqu'à celle du gaz mesuré, sous l'effet de la diffusion de ce dernier à travers la membrane. Cette variation est contrôlée en permanence et est fonction de la concentration du gaz à mesurer. Grâce à leur membrane hydrophobe, ces sondes peuvent être utilisées pour les mesures de gaz dissous dans presque tous les liquides, ou directement dans les mélanges gazeux, dans de larges gammes de température et de pression. Néanmoins, des essais réalisés avec cette sonde montrent la très mauvaise résistance de sa membrane au cyclohexane.

#### ***A.II.2.c.β Photométrie : Transmetteur à absorption de rayonnement infra-rouge ou ultra-violet***

La photométrie (IR ou UV) est aussi fréquemment utilisée comme méthode de dosage.

##### ***♣ Photométrie infrarouge***

Dans les molécules, les liaisons vibrent à une fréquence bien déterminée qui dépend des atomes de la liaison mais aussi de l'environnement de la liaison. Pour une fréquence donnée,

ces liaisons entrent en résonance. Ainsi, si un faisceau électromagnétique est envoyé à cette fréquence, l'énergie apportée est consommée : les molécules absorbent et la transmission diminue. La photométrie infrarouge est basée sur l'absorption de résonance aux bandes caractéristiques du spectre de rotation-vibration des gaz non élémentaires dans le moyen IR. Les gaz quantifiables par cette technique sont principalement : CO, CO<sub>2</sub>, NO, N<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> et C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>.

♣ *Photométrie à ultraviolet*

La photométrie U.V est moins utilisée que la précédente pour la mesure des gaz. Elle repose sur la capacité des molécules à interagir avec un rayon émis à une certaine longueur d'onde et à absorber cette radiation.

Les gaz pouvant être caractérisés par cette méthode sont : NO, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S, CS<sub>2</sub>, COS et Cl<sub>2</sub>.

*A.II.2.c.γ Chromatographie gazeuse/ spectrométrie de masse*

Enfin, la chromatographie est couramment utilisée pour le dosage de faibles concentrations de produits. Elle comporte trois étapes : la séparation des espèces à caractériser (colonne), leur détection et leur quantification (détecteur).

Un appareil de chromatographie en phase gazeuse se compose classiquement d'un injecteur, d'une colonne, et d'un détecteur, à travers lesquels un gaz vecteur entraîne les substances d'un mélange à séparer (cf. Figure 2). Le choix de la colonne (et plus particulièrement de la phase stationnaire contenue dans la colonne) et du détecteur dépendent intimement de la nature des substances à séparer et à caractériser.

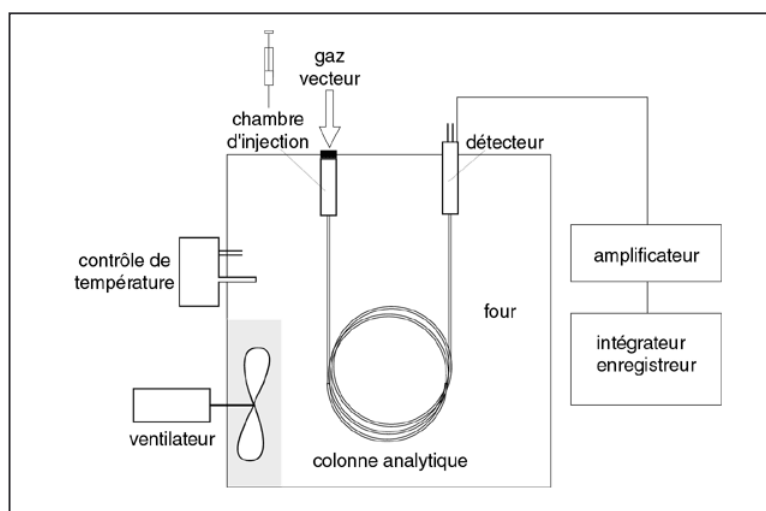


Figure 2 : Schéma de principe d'un chromatographe gaz

Les détecteurs classiques sont :

- \_ Le catharomètre (conductivité thermique),
- \_ Le détecteur à ionisation de flamme,
- \_ La détection par spectrométrie infra-rouge,
- \_ La détection par spectrométrie de masse.



### A.II.3. Synthèse

Parmi les gaz mesurables énoncés ci-dessus, l'oxygène est écarté pour éviter les problèmes liés à la sécurité et parce que la méthode de mesure associée (polarographie) est peu adaptée à une utilisation en cyclohexane. Les composés chlorés et soufrés ainsi que l'hydrogène et le méthane sont également rejetés, car leur manipulation est délicate. Il reste alors le dioxyde de carbone, l'hélium et l'argon, trois gaz inertes pour le cyclohexane. Les gaz rares cités, beaucoup plus coûteux et peu courants, sont en outre très peu solubles dans le cyclohexane, ce qui peut rendre leur dosage délicat. Le dioxyde de carbone est donc largement préféré. D'utilisation courante, non réactif avec le cyclohexane, et sans nocivité particulière à faible concentration, il est fréquemment dosé par méthode infrarouge. Le couple [gaz/ méthode d'analyse] retenu est donc le CO<sub>2</sub> et la spectrométrie infrarouge.

*La mesure du transfert de matière est effectuée en mesurant, en régime permanent, la concentration en CO<sub>2</sub> dissous en entrée et en sortie de la colonne à bulles.*

## PARTIE B. MISE EN ŒUVRE

### B.I. MISE EN ŒUVRE SUR PILOTE

Pour mettre en œuvre une méthode de mesure en régime permanent, un équilibre doit s'établir entre une étape d'absorption et une étape de désorption, c'est-à-dire entre deux contacteurs gaz-liquide dans lesquels circule le même liquide et où, par exemple, le gaz injecté diffère. A cet effet, le séparateur gaz-liquide de notre pilote est transformé en contacteur (cf. Figure 3), comme décrit au chapitre II (§II.1.b.). Le dioxyde de carbone est préférentiellement injecté dans cet appareil, et l'azote dans la colonne, pour limiter la consommation de dioxyde de carbone ; le CO<sub>2</sub> est donc absorbé dans le séparateur et désorbé dans la colonne. Très soluble dans le cyclohexane et l'eau, le CO<sub>2</sub> est injecté dans le séparateur à un débit compris entre 2 et 4 m<sup>3</sup>/h.

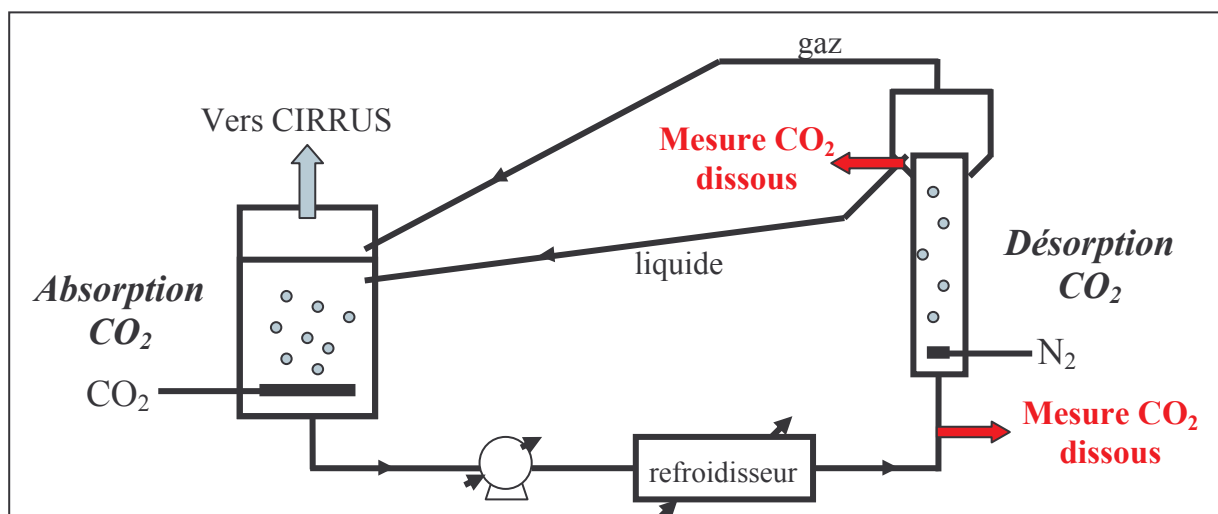


Figure 3 : Mise en œuvre de la mesure du transfert sur le pilote

Lors du fonctionnement, il est également vérifié à l'aide de la sonde optique (placée en bas de colonne) que les bulles de CO<sub>2</sub> injectées dans le séparateur ne sont pas aspirées par la pompe et transportées dans la colonne, et ce dans toute la gamme de débits de CO<sub>2</sub> et de liquide explorée.

Une fois l'équilibre établi entre les deux contacteurs, la concentration en CO<sub>2</sub> dissous ne varie plus que dans l'espace : en un point donné, la concentration est une constante au cours du temps. La concentration en CO<sub>2</sub> dissous pourrait donc être mesurée en divers points de la colonne. Dans notre cas cependant, aucun point intermédiaire n'est réalisé entre l'entrée et la sortie : d'une part parce que le prélèvement serait réalisé en paroi, zone non représentative de toute la section, et d'autre part parce qu'il est difficile dans cette zone de prélever des échantillons dépourvus de bulles. Les points d'analyse, reportés sur la Figure 3, sont placés sur la canalisation d'entrée de la colonne et à la sortie de la surverse du liquide, zones où le liquide est sans cesse renouvelé. En fait, ces piquages sont situés à des emplacements identiques à ceux utilisés pour la sonde conductimétrique lors de l'étude de DTS (cf. chapitre III, §A.III).

Pour éviter que les vibrations de l'installation ou la légère surpression de la colonne ne posent problème lors de l'analyse, celle-ci n'est pas réalisée en continu, mais à l'aide d'échantillons. Pour éviter que ceux-ci entrent en contact avec l'air et que le CO<sub>2</sub> se désorbe, un système de prélèvement spécifique est mis en œuvre (cf. Figure 4) : une seringue, placée en contrebas, se remplit par gravité. En outre, pour éviter toute interférence entre les mesures en pied et en tête de colonne, une seringue est dédiée à chaque point.

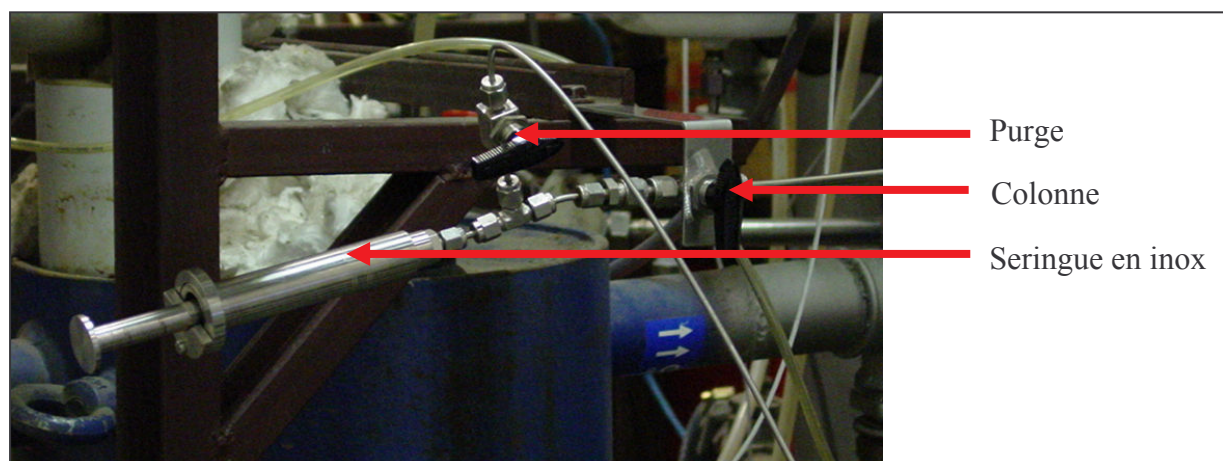


Figure 4 : Système de prélèvement des échantillons

## B.II. ANALYSE DES ÉCHANTILLONS PAR SPECTROMÉTRIE INFRAROUGE

Les échantillons prélevés sont analysés par spectrométrie infrarouge.

### B.II.1. Appareillage

L'appareil utilisé est un spectromètre moyen infrarouge à transformée de Fourier, de marque Brüker, de type Tensor 27. Il permet des mesures d'absorbance dans le domaine 7500-370cm<sup>-1</sup>, avec une résolution inférieure à 1cm<sup>-1</sup>.

L'appareil est couplé à un sécheur d'air équipé d'un tamis moléculaire, qui permet, d'une part, d'éviter la détérioration de l'appareil par l'humidité, et d'autre part de ne pas être gêné, lors de l'analyse, par les impuretés de l'air, dont le CO<sub>2</sub>. Ce spectromètre est associé à un système d'acquisition et de traitement des données utilisant le logiciel OPUS/IR.

Les grandeurs utilisées ici ne sont pas exprimées en longueurs d'ondes mais en nombre d'ondes, grandeur classiquement utilisée en IR, car elle est directement proportionnelle à l'énergie du rayonnement absorbé (nombre d'onde (cm<sup>-1</sup>)=10000/ longueur d'ondes (μm)).

L'eau et le cyclohexane étant des liquides très absorbants dans l'IR, la cellule utilisée pour l'analyse est une cellule ATR (Réflexion Totale Atténuée) à cinq réflexions. Des réflexions internes ont lieu lorsque les radiations infrarouges pénètrent dans un cristal ATR dont le matériau, fortement réfractif, facilite la transmission infrarouge ; du fait de ces réflexions, l'atténuation du signal due à la traversée du liquide est faible (cf. Figure 5).

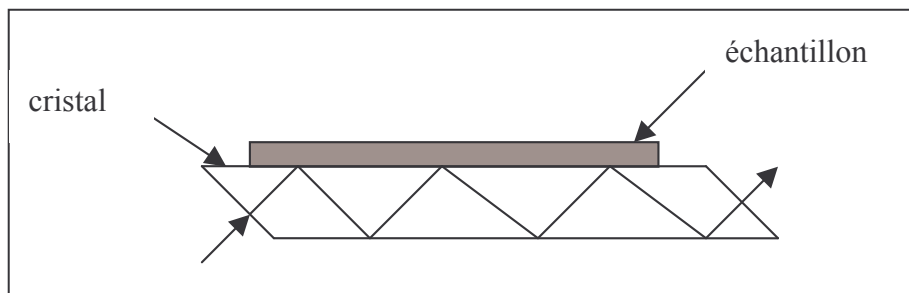


Figure 5 : Principe du système ATR

Le cristal est prévu pour permettre une réflexion interne totale qui crée une onde évanescente à la surface de celui-ci. Cette onde pénètre dans l'échantillon gardé en parfait contact avec le cristal. Le spectre d'absorption de l'échantillon peut ainsi être enregistré (document technique Eurolabo). Dans cette étude ; le cristal utilisé est en ZnSe, matériau résistant aux milieux étudiés et fixé avec une colle adaptée.

Par ailleurs, pour que les échantillons liquides ne soient pas en contact avec l'air, la cellule utilisée est à circulation : le liquide traverse la cellule sans qu'il soit nécessaire de l'ouvrir (cf. Figure 6).

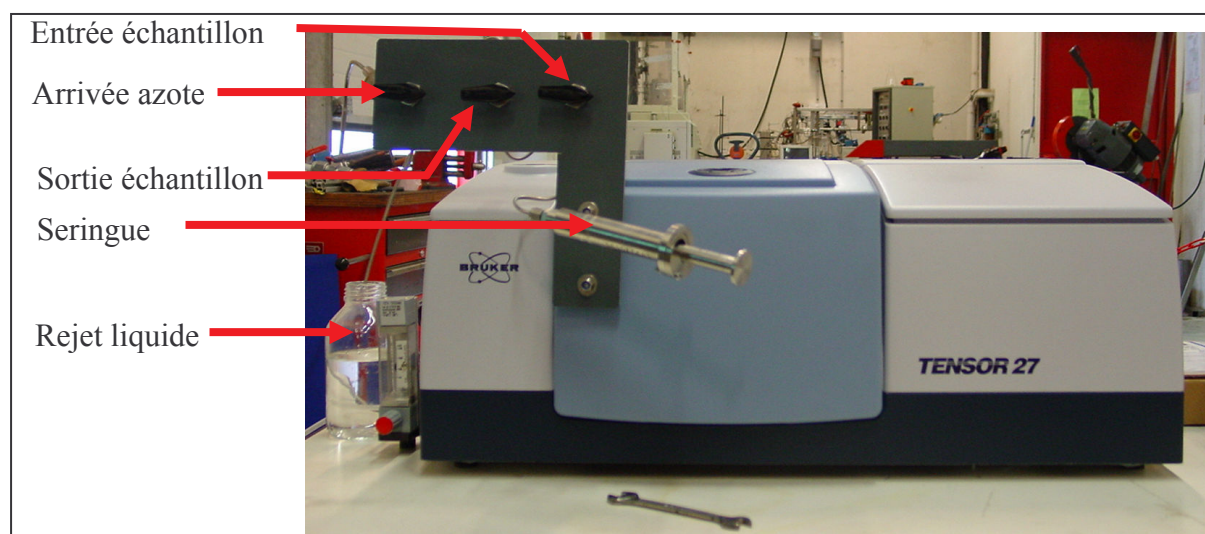


Figure 6 : Système d'injection dans le spectromètre IR

## B.II.2. Spectres obtenus

Une fois l'échantillon à analyser dans la cellule, l'appareil balaie la gamme de nombres d'ondes choisie et l'absorbance de l'échantillon est mesurée. Le spectre obtenu résulte de la moyenne de 20 spectres réalisés entre  $900$  et  $4000\text{cm}^{-1}$  avec une résolution de  $4\text{cm}^{-1}$ .

La répétabilité des spectres est excellente ; elle est vérifiée en traçant le spectre de l'eau pure ou du cyclohexane pur (sans  $\text{CO}_2$ ) à divers moments. L'invariance de ces spectres est vérifiée avant et après chaque essai. La Figure 7 représente sept spectres du cyclohexane effectués à des moments différents : ils sont parfaitement confondus.

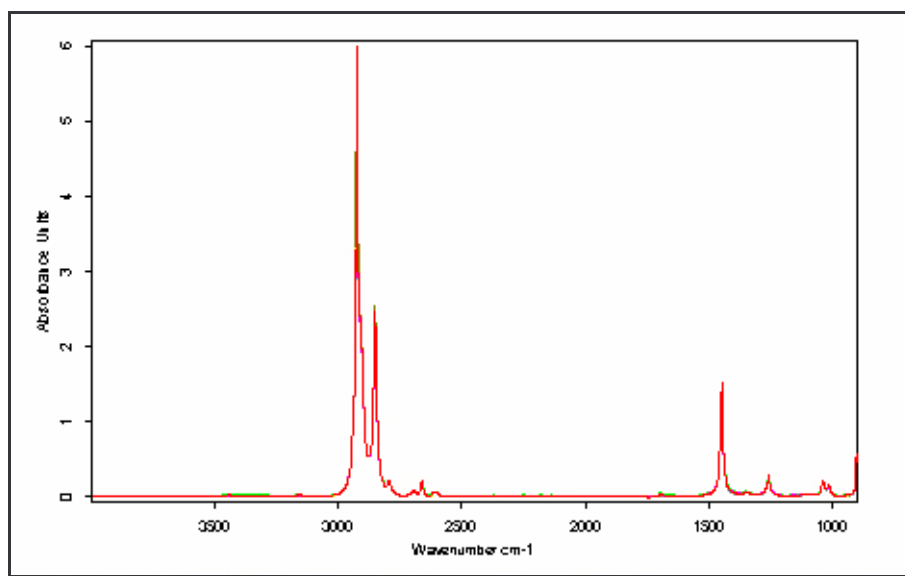


Figure 7 : Sept spectres du cyclohexane effectués à des moments différents (absorbance= $f(\text{nombre d'ondes})$ )

En présence de  $\text{CO}_2$ , un nouveau pic apparaît sur ces spectres ; il est, pour les deux milieux (eau et cyclohexane), centré aux alentours de  $2300\text{cm}^{-1}$ . Contrairement au spectre du  $\text{CO}_2$  dans l'air, le  $\text{CO}_2$  est, en milieu liquide, représenté par un pic unique au lieu de deux ; en outre, ce pic est légèrement décalé vers un nombre d'ondes plus faible : les deux liaisons  $\text{C}=\text{O}$  vibrent différemment en milieu liquide et deviennent équivalentes. Pour isoler ce pic, le spectre obtenu en présence du liquide seul est soustrait (cf. Figure 8). Pour les deux milieux, le pic ainsi obtenu est intégré entre  $2226$  et  $2434\text{cm}^{-1}$ , comme indiqué sur la Figure 8.

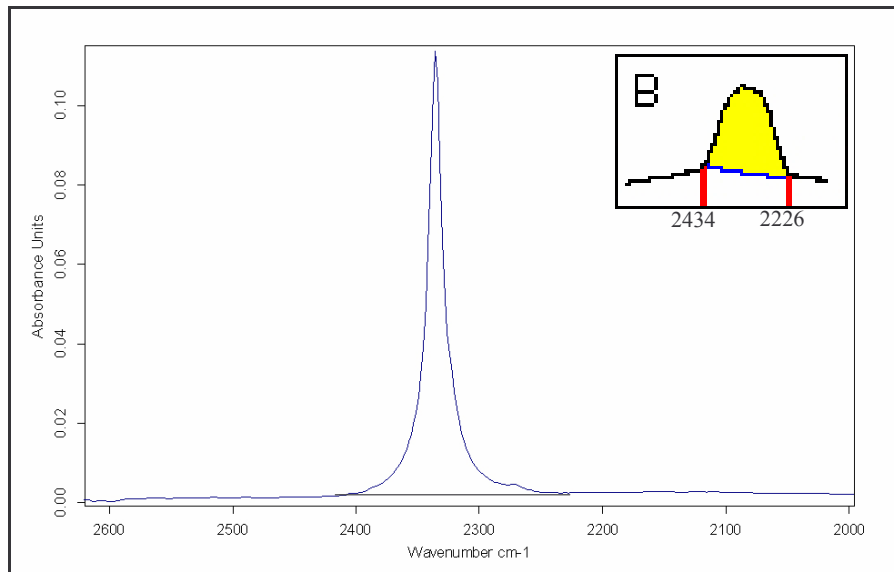


Figure 8 : Pic isolé du CO<sub>2</sub> dans le cyclohexane, méthode d'intégration

La hauteur du pic et son intégrale sont fonctions de la concentration en CO<sub>2</sub> (cf. Figure 9).

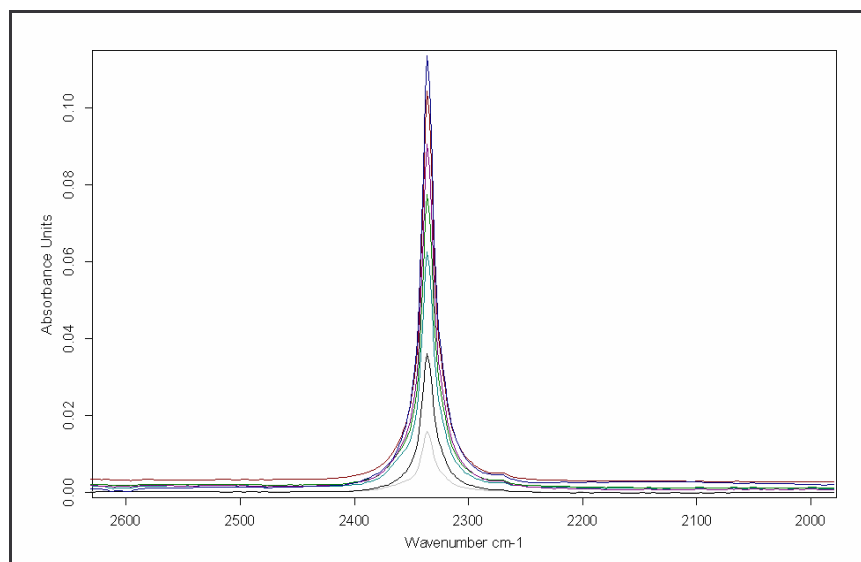


Figure 9 : Pic du CO<sub>2</sub> dans le cyclohexane pour différentes concentrations en cyclohexane

La loi de Beer-Lambert, relie l'absorbance ( $A$ ) à la concentration ( $c$ ) en solutions diluées, par  $A=\epsilon.l.c$ , où  $\epsilon$  est le coefficient d'absorbance et  $l$  la longueur caractéristique de la cuve.

Si on suppose que la structure de la molécule de CO<sub>2</sub> dissous n'est pas modifiée lorsque la concentration varie, il n'y a pas, dans notre étude, d'entrave à l'application de la loi de Beer-Lambert, car elle s'applique pour des concentrations inférieures à 0,1mol/L, valeur deux fois plus grande que la solubilité du CO<sub>2</sub> dans le cyclohexane sous 1 bar de CO<sub>2</sub> (le CO<sub>2</sub> étant plus soluble dans le cyclohexane que dans l'eau).

Cette relation linéaire est intégrée sur les nombres d'ondes ; la relation linéaire qui en découle entre l'aire du pic  $A_{pic}$  et  $c_L$  est précisée par étalonnage (détermination du coefficient multiplicateur). Pour notre cellule, les relations d'étalonnage utilisées sont :

$$\text{— Pour le cyclohexane : } \frac{c_L}{c_L^*(P_{atm})} = 0,34 A_{pic} \quad (\text{eq.2})$$

$$\text{– Pour l'eau : } \frac{c_L}{c_L^*(P_{atm})} = 0,90 A_{pic} \quad (\text{eq.3})$$

où :  $c_L$  : Concentration en CO<sub>2</sub> dissous (en mol/m<sup>3</sup>)  
 $c_L^*(P_{atm})$  : Concentration en CO<sub>2</sub> dissous à saturation sous 1 bar de CO<sub>2</sub> (mol/m<sup>3</sup>)  
 $A_{pic}$  : Aire du pic (absorbance/cm)

En l'absence de bulles dans la cellule, les mesures sont, en pilote, répétables avec une précision meilleure que 7% (erreur cumulant la répétabilité de la mesure, du prélèvement et du dosage). Lorsque des bulles sont accidentellement présentes dans la cellule, l'allure des spectres est modifiée et les résultats sont altérés, mais comme ces spectres sont facilement identifiables, ils ne sont pas traités.

## B.III. TRAITEMENT DES DONNEES

### B.III.1. Efficacité du transfert

L'efficacité du transfert est évaluée dans notre colonne en rapportant la quantité de CO<sub>2</sub> désorbée à la quantité de CO<sub>2</sub> entrant dans la colonne :

$$\text{efficacité} = \frac{c_{CO_2,E} - c_{CO_2,S}}{c_{CO_2,E}} \quad (\text{eq.4})$$

où : l'indice E correspond à l'entrée et l'indice S à la sortie

A partir de cette grandeur, calculée simplement et de façon directe (sans la nécessité d'un modèle d'écoulement ou d'une hypothèse), l'influence des paramètres (milieu, débits, distributeur, plateaux) sur les performances de l'appareil est évaluée.

### B.III.2. Coefficient $k_L a$

Le coefficient  $k_L a$ , qui caractérise la vitesse du transfert de masse dans notre colonne et qui permet de comparer les performances de ce contacteur à celles d'autres contacteurs de la littérature, est identifié par minimisation de l'écart entre la mesure et le calcul de la concentration en CO<sub>2</sub> dissous dans le liquide en sortie de colonne. Pour cela, les équations de transport du CO<sub>2</sub> entre les deux phases sont écrites. Ces équations, basées sur un modèle hydrodynamique par phase, sont résolues après la différenciation des équations et la définition de conditions aux limites adaptées. En supposant un modèle piston sur le gaz et piston-dispersion axiale sur le liquide, ces équations s'écrivent :

$$\frac{1}{Pe_L} \frac{\partial^2 c_L}{\partial z^2} - \frac{\partial c_L}{\partial z} + \frac{k_L a V_C}{Q_L} (c^*(z) - c_L(z)) = 0 \quad (\text{eq.5})$$

$$\frac{\partial c_G}{\partial z} - \frac{k_L a V_C}{Q_G(z)} (c^*(z) - c_L(z)) = 0 \quad (\text{eq.6})$$

Compte tenu de la très bonne efficacité de transfert observée dans notre cas, la différence ( $c^* - c_L$ ) est très faible en sortie, la désorption du gaz entraînant simultanément l'augmentation de  $c^*$  et la diminution de  $c_L$ . Cette différence très faible en sortie, précisément là où  $k_L a$  est identifié, conduit à une mauvaise précision sur  $k_L a$ , quel que soit le modèle d'écoulement choisi (cf. eq.5). Par conséquent, l'identification de  $k_L a$  est réalisée sur une modélisation allégée, où l'écoulement liquide est illustré par un nombre de RAC (Réacteurs Agités Continus) en série et où le modèle piston sur le gaz est simplifié (pas d'évolution de la concentration du gaz au sein d'un RAC du liquide).

Les hypothèses nécessaires au calcul sont les suivantes :

- \_ La variation du débit gazeux avec la hauteur est supposée due à la seule désorption du CO<sub>2</sub> (L'absorption simultanée de l'azote peut être négligée, dans la mesure où ce gaz est 10 fois moins soluble dans le cyclohexane que le CO<sub>2</sub> [Wilhelm et Battino (1973)]).
- \_ La variation de débit liquide induite par la désorption du CO<sub>2</sub>, infime, est négligée.
- \_ La pression en haut de colonne est la pression atmosphérique.

Les équations suivantes sont alors écrites sur chaque RAC ( $i$  varie entre 1 et  $N_{RAC}$ ) (cf. Figure 10) :

$$c_L(i)Q_L + c_G(i)Q_G(i) = c_L(i+1)Q_L + c_G(i+1)Q_G(i+1) \quad (\text{eq.5'})$$

$$c_L(i)Q_L = c_L(i+1)Q_L - k_L a V_{RAC} (c^*(i) - c_L(i+1)) \quad (\text{eq.6'})$$

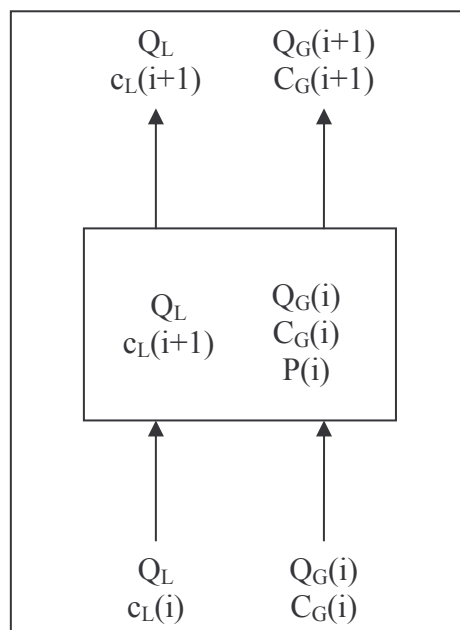


Figure 10 : Représentation d'un RAC dans le modèle d'écoulement utilisé

Avec :

$$c^*(i) = \frac{c_G(i)RT}{He} \quad (\text{eq.7'})$$

$$Q_G(i) = \frac{P_0 Q_{G,0} + (c_{L,0} - c_L(i)) Q_L RT}{P(i)} \quad (\text{eq.8'})$$

$$P(i) = P_{atm} + \rho_L (1 - \varepsilon_G) g (H_C - z(i)) \quad (\text{eq.9'})$$

$$z(i) = i \cdot H_{RAC} = i \cdot \frac{H_C}{N_{RAC}} \quad (\text{eq.10'})$$

où :

- $c_L$  : Concentration en CO<sub>2</sub> dissous dans le liquide (mol/m<sup>3</sup>)
- $c_{L,0}$  : Concentration en CO<sub>2</sub> dissous dans le liquide en entrée de colonne (mol/m<sup>3</sup>)
- $c_G$  : Concentration en CO<sub>2</sub> dissous dans le gaz (mol/m<sup>3</sup>)
- $c^*$  : Concentration en CO<sub>2</sub> dissous à saturation en équilibre avec  $c_G$  (mol/m<sup>3</sup>)
- $Q_L$  : Débit liquide (m<sup>3</sup>/s)
- $Q_G$  : Débit gazeux (m<sup>3</sup>/s)
- $Q_{G,0}$  : Débit gazeux en entrée (m<sup>3</sup>/s)
- $P$  : Pression (Pa)
- $P_{atm}$  : Pression atmosphérique (Pa)
- $P_0$  : Pression en entrée (Pa)
- $R$  : Constante des gaz parfaits ( $R=8,314\text{J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$ )
- $T$  : Température (K)
- $H_C$  : Hauteur de la colonne (m)
- $H_e$  : Constante de Henry (Pa.m<sup>3</sup>/mol)
- $H_{RAC}$  : Hauteur d'un RAC (m)
- $z$  : Position axiale dans la colonne (m)
- $V_{RAC}$  : Volume d'un RAC (m<sup>3</sup>)

A partir de ce système d'équations, les concentrations en CO<sub>2</sub> dissous dans le liquide peuvent être déterminées pas à pas. La valeur de  $k_L a$  est ensuite déduite de la minimisation entre les valeurs de concentration mesurée et calculée,  $c_L(N_{RAC})$  (solveur Excel).

### B.III.3. Données nécessaires au traitement

Pour cette résolution, les données nécessaires sont :

- \_ Les concentrations  $c_L(0)$  et  $c_L(\text{sortie})$ , issues de la mesure par spectrométrie IR,
  - \_ Les débits  $Q_L$  et  $Q_G$ , mesurés par deux débitmètres (respectivement volumique et massique),
  - \_ Les températures du liquide dans la colonne et le séparateur sont mesurées à l'aide de sondes PT100,
  - \_ Le taux de vide,  $\varepsilon_G$ , déduit des capteurs de pression (pour cela, on suppose que la zone située au-delà du capteur de pression le plus haut a un taux de vide similaire à celui du reste de la colonne, ce qui est cohérent en présence de débit liquide, car la zone de désengagement est moins influente)
  - \_ Le nombre de RAC équivalents,  $N_{RAC}$ , issu des essais de DTS (les résultats sont récapitulés sur la Figure 11)
- Le même nombre de RAC est utilisé en eau et en cyclohexane pour des conditions expérimentales données, puisque les écoulements semblent, en présence de circulation liquide, similaires pour les deux milieux (cf. Chapitre IV §C et §D.II).



\_ La constante de Henry, He

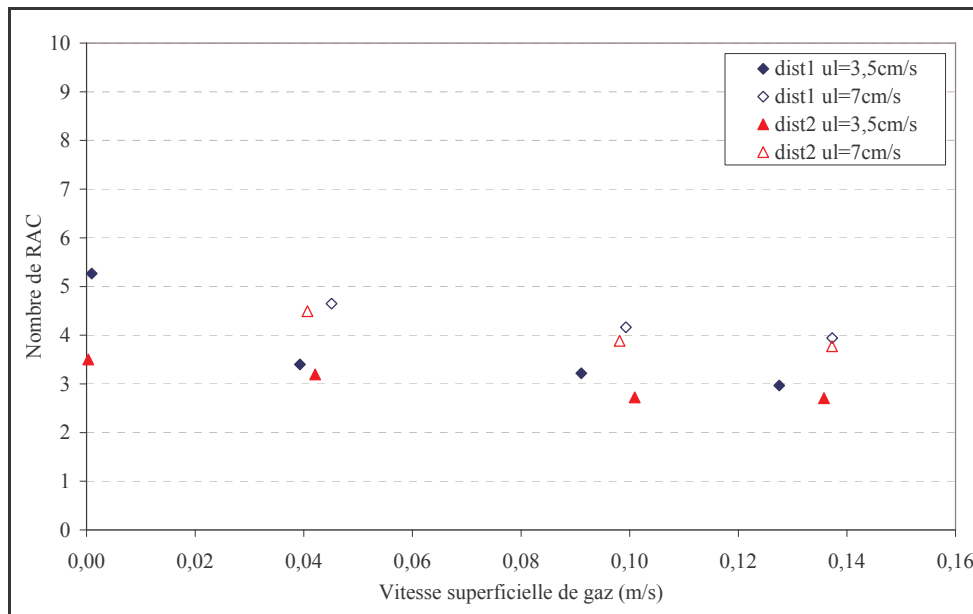


Figure 11 : Ecoulement liquide issu des essais de DTS

Les constantes de Henry du CO<sub>2</sub> dans l'eau et le cyclohexane sont mesurées plutôt que tirées de travaux antérieurs. En effet, pour l'eau, le rapport entre la concentration en phase liquide à l'équilibre et la pression partielle en phase gazeuse dépend de la présence dans le liquide d'autres espèces qui modifient le coefficient d'activité et le font s'écarter de 1. C'est pourquoi, selon la qualité de l'eau utilisée, les auteurs trouvent des constantes différentes. La donnée rare de la solubilité de CO<sub>2</sub> dans le cyclohexane est également réévaluée.

Ces mesures sont réalisées en autoclave (réacteur fermé) pour des pressions entre 1 et 8 bars. Les constantes obtenues sont :

$$\text{He}=1838\text{Pa}\cdot\text{m}^3/\text{mol} \text{ pour le cyclohexane à } 20^\circ\text{C} \text{ (1440 à } 25^\circ\text{C pour Wilhelm et Battino (1973))}$$

$$\text{He}=3105\text{Pa}\cdot\text{m}^3/\text{mol} \text{ pour l'eau à } 20^\circ\text{C} \text{ (2580 à } 20^\circ\text{C pour Lide (1997))}$$

Ces valeurs, plus fortes que celles de la littérature, demeurent cohérentes et montrent que CO<sub>2</sub> est 1,7 fois plus soluble dans le cyclohexane que dans l'eau.

A titre informatif, les coefficients  $k_{L,a}$  déterminés conjointement dans l'autoclave pour une agitation à 800tours/min sont de l'ordre de  $0,075\text{s}^{-1}$  en eau et de  $0,108\text{s}^{-1}$  en cyclohexane. Ils doivent être bien supérieurs à ceux mesurés au cours de notre étude sur pilote.

## PARTIE C. : RESULTATS

Les résultats obtenus pour l'eau et le cyclohexane sont répertoriés respectivement dans le Tableau 1 et dans le Tableau 2.

configuration	t (°C)	u <sub>L</sub> (m/s)	u <sub>G</sub> (m/s)	ε <sub>G</sub>	efficacité	k <sub>L</sub> a (s <sup>-1</sup> )	k <sub>L</sub> a/ε <sub>G</sub>
distributeur 1	20,8	0,035	0,0441	0,120	0,6518	0,034	0,2800
distributeur 1	20,4	0,035	0,1005	0,184	0,7811	0,039	0,2146
distributeur 1	20,7	0,035	0,1391	0,204	0,8785	0,063	0,3091
distributeur 1	21,5	0,070	0,0429	0,092	0,5800		
distributeur 1	20,8	0,070	0,1009	0,150	0,6184	0,041	0,2744
distributeur 1	20,4	0,070	0,1027	0,153	0,6275	0,041	0,2685
distributeur 1	21,7	0,070	0,1390	0,179	0,6554	0,040	0,2239
distributeur 2	21,1	0,035	0,0429	0,174	0,7153		
distributeur 2	20,7	0,035	0,1001	0,273	0,8434	0,059	0,2145
distributeur 2	20,8	0,035	0,1379	0,289	0,8800	0,047	0,1634
distributeur 2	20,7	0,070	0,0435	0,130	0,4956	0,006	0,0471
distributeur 2	21,4	0,070	0,1021	0,200	0,6974	0,059	0,2970
distributeur 2	21,1	0,070	0,1391	0,211	0,7291	0,054	0,2547
dist1+plateaux	21,1	0,035	0,0424	0,085	0,6563	0,034	0,4049
dist1+plateaux	21,3	0,035	0,1026	0,154	0,8395	0,053	0,3458
dist1+plateaux	21,1	0,035	0,1388	0,231	0,9329	0,079	0,3398
dist1+plateaux	20,9	0,070	0,0452	0,100	0,4082	0,025	0,2519
dist1+plateaux	20,3	0,070	0,0995	0,158	0,5753	0,036	0,2265
dist1+plateaux	21,3	0,070	0,1011	0,140	0,6100	0,044	0,3108
dist1+plateaux	20,9	0,070	0,1026	0,134	0,5872	0,037	0,2756
dist1+plateaux	20,8	0,070	0,1385	0,180	0,7612	0,060	0,3324
dist1+plateaux	21,1	0,070	0,1410	0,193	0,7565	0,067	0,3468

Tableau 1 : Résultats des essais de transfert en eau

configuration	t (°C)	u <sub>L</sub> (m/s)	u <sub>G</sub> (m/s)	ε <sub>G</sub>	efficacité	k <sub>L</sub> a (s <sup>-1</sup> )	k <sub>L</sub> a/ε <sub>G</sub>
distributeur 1	20,8	0,04	0,0416	0,113	0,5749	0,033	0,2896
distributeur 1	21,1	0,04	0,0419	0,113	0,5421	0,044	0,3932
distributeur 1	20,2	0,04	0,1001	0,190	0,7668	0,052	0,2727
distributeur 1	20,4	0,04	0,1372	0,240	0,8558	0,085	0,3552
distributeur 1	20,4	0,04	0,1372	0,240	0,8200	0,070	0,2917
distributeur 1	20,3	0,08	0,0434	0,103	0,3890	0,042	0,4070
distributeur 1	20,7	0,08	0,0986	0,172	0,6141	0,060	0,3510
distributeur 1	20,2	0,08	0,1370	0,199	0,6998	0,071	0,3561
distributeur 1	20,2	0,08	0,1370	0,199	0,6808	0,077	0,3864
distributeur 2	21,4	0,04	0,0419	0,130	0,4868	0,023	0,1759
distributeur 2	20,9	0,04	0,0987	0,200	0,8439		
distributeur 2	21,0	0,04	0,1386	0,230	0,8534	0,083	0,3620
distributeur 2	18,8	0,08	0,0418	0,110	0,3810	0,039	0,3515
distributeur 2	20,1	0,08	0,0980	0,170	0,7454		
distributeur 2	20,2	0,08	0,1384	0,204	0,7038	0,082	0,4015
dist1+plateaux	21,0	0,04	0,0434	0,116	0,5736	0,042	0,3605
dist1+plateaux	21,1	0,04	0,1020	0,200	0,7661	0,050	0,2513
dist1+plateaux	20,0	0,04	0,1391	0,240	0,8367		
dist1+plateaux	20,4	0,08	0,0428	0,090	0,3763	0,040	0,4442
dist1+plateaux	20,4	0,08	0,1005	0,160	0,6488	0,118	0,7374
dist1+plateaux	20,8	0,08	0,1389	0,200	0,7634		
dist1+plateaux	20,5	0,08	0,1393	0,200	0,7567		

Tableau 2 : Résultats des essais de transfert en cyclohexane

## C.I. EFFICACITE

Les résultats en efficacité sont commentés en premier lieu, car ce sont les moins entachés d'erreur. Lorsque des essais sont répétés pour des débits de CO<sub>2</sub> différents dans le séparateur, les écarts en efficacité n'excèdent jamais 6%. Sachant que les conditions de débits en azote ont également légèrement variées entre ces différents essais, cette répétabilité est considérée satisfaisante.

La Figure 12 représente les efficacités mesurées en eau et en cyclohexane : l'efficacité du transfert augmente lorsque le débit liquide diminue ou que le débit gazeux croît. Ces effets sont similaires à ceux observés lors des essais de DTS (cf. Figure 11) : lorsque le nombre de RAC diminue, l'efficacité de transfert augmente. Les effets géométriques (distributeur et plateaux) par contre sont plus délicats à interpréter, les écarts étant moindres et non systématiques :

\_ Les efficacités du transfert sont assez similaires pour les deux distributeurs (écarts de l'ordre de l'incertitude). Cette tendance est analogue à celle observée en taux de vide : en présence de circulation liquide, les deux distributeurs ayant tendance à opérer en régime hétérogène sur toute la gamme de débit gazeux, leur taux de vide au cœur de la colonne sont proches. Le taux de vide et l'efficacité du transfert évoluent donc de pair et la zone du distributeur ne modifie pas notablement l'efficacité du transfert.

\_ En présence de circulation liquide, l'introduction de plateaux perforés ne modifie pas radicalement l'efficacité du réacteur : le gaz est certes mieux réparti dans la colonne, mais ni l'efficacité du transfert, ni le taux de vide global ne sont affectés.

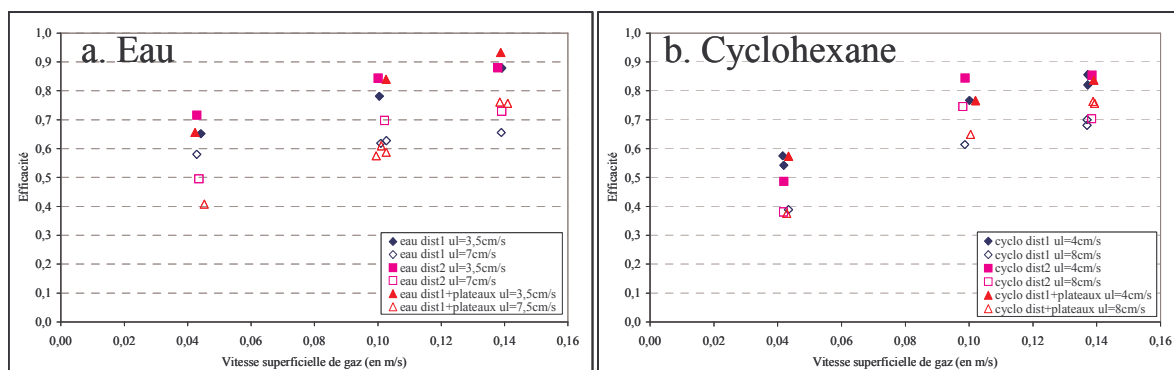


Figure 12 : Efficacité de transfert

La comparaison des milieux montre que l'efficacité du transfert est plus faible en cyclohexane à faibles débits, mais que l'écart entre les deux milieux diminue lorsque les vitesses de gaz et de liquide augmentent (cf. Figure 13). Cette différence peut être rattachée au régime hydrodynamique différent dans lequel les deux milieux opèrent, puisque cette différence s'estompe lorsque les deux distributeurs opèrent en régime hétérogène (cf. Figure 13b). Toutefois, les tendances en efficacité diffèrent de celles en taux de vide : alors qu'en régime hétérogène, le taux de vide est supérieur en cyclohexane, le cyclohexane ne présente jamais une efficacité supérieure à celle de l'eau.

***L'efficacité du transfert est comprise dans notre étude entre 40 et 90%. A partir de comparaisons simples, elle permet de dégager quelques tendances significatives : l'efficacité augmente avec  $u_G$  et diminue avec  $u_L$  (diminution du temps de séjour), mais est peu sensible à la géométrie (distributeur, plateaux) et au milieu.***

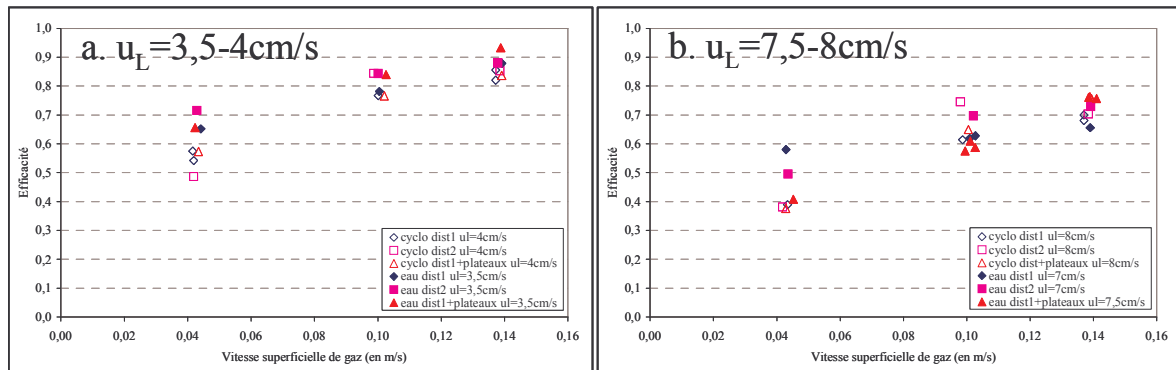


Figure 13 : Effet du milieu sur l'efficacité du transfert

## C.II. COEFFICIENT $k_L a$

Les valeurs de  $k_L a$ , déduites des mêmes valeurs de concentrations, présentent une répétabilité beaucoup moins bonne (de l'ordre de 30%) que celle de l'efficacité du transfert : lorsque la concentration en entrée ou en sortie est artificiellement modifiée de 5%, l'écart sur  $k_L a$  peut atteindre 50% ! Ces écarts sont liés aux fortes incertitudes engendrées par la proximité de l'équilibre en sortie : la concentration en  $\text{CO}_2$  dissous en sortie excède de peu la concentration dans le liquide en équilibre avec la phase gaz. Ce faible écart rend parfois la convergence des calculs impossible, ce qui explique l'absence de certaines valeurs dans les tableaux précédents (Tableau 1 et Tableau 2).

La Figure 14 présente à titre indicatif des exemples d'évolutions axiales (calculées) des concentrations en  $\text{CO}_2$  dans le liquide et dans le gaz dans la colonne.

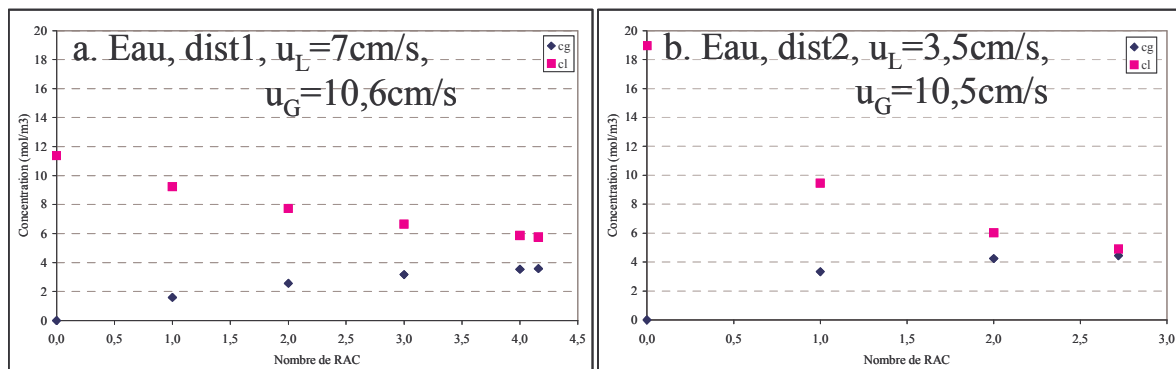


Figure 14 : Exemples d'évolution axiale des concentrations liquide et gaz de  $\text{CO}_2$

La Figure 15 représente les valeurs de  $k_L a$  obtenues dans les différentes conditions. Il s'avère que les effets observés en efficacité ne sont pas forcément vérifiés en  $k_L a$  ; cette grandeur demeure donc incontournable, malgré sa moins bonne précision. En effet, si l'influence de la vitesse gazeuse est similaire à celle déduite de l'efficacité ( $k_L a$  augmente avec  $u_G$ ), l'influence du milieu diffère (cf. Figure 16) : à fortes  $u_L$  (cf. Figure 16b), le cyclohexane présente systématiquement des valeurs de  $k_L a$  supérieures à celle de l'eau, ce qui est cohérent avec l'hydrodynamique de la colonne étudiée au chapitre IV et avec les tendances observées en autoclave. En outre, cet écart explique la plus grande difficulté de calcul de  $k_L a$  en cyclohexane (plus de valeurs manquantes dans le Tableau 2), puisque, en sortie de colonne, l'écart ( $c^* - c_L$ ) est souvent faible dans le cas du cyclohexane (bon transfert).

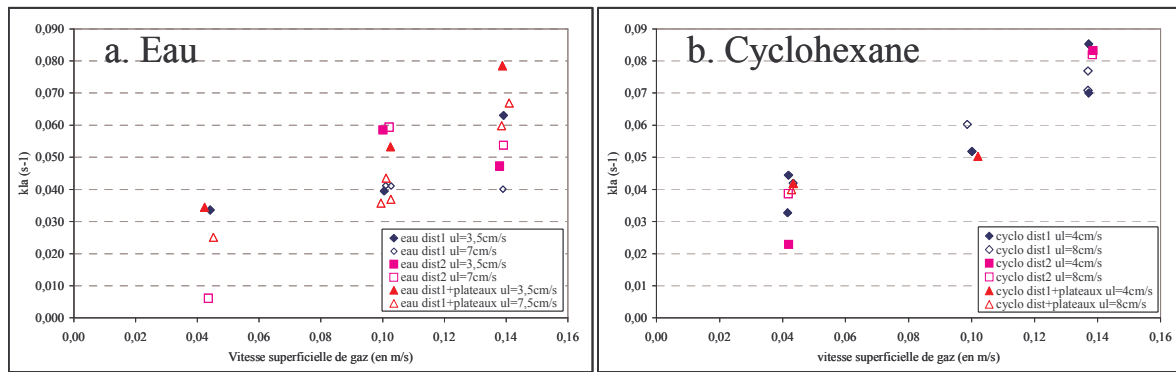


Figure 15 : Valeurs de  $k_L a$

Les effets des paramètres géométriques (plateaux, distributeur) et du milieu à  $u_L=4\text{cm/s}$  sont plus difficiles à identifier à cause des fortes incertitudes de mesure de  $k_L a$ , mais cela signifie en partie que les écarts sont modérés entre ces différentes configurations (comme pour le taux de vide), ce qui ne serait pas forcément le cas en fonctionnement batch sur le liquide (cf. hydrodynamique de la colonne, chapitre IV).

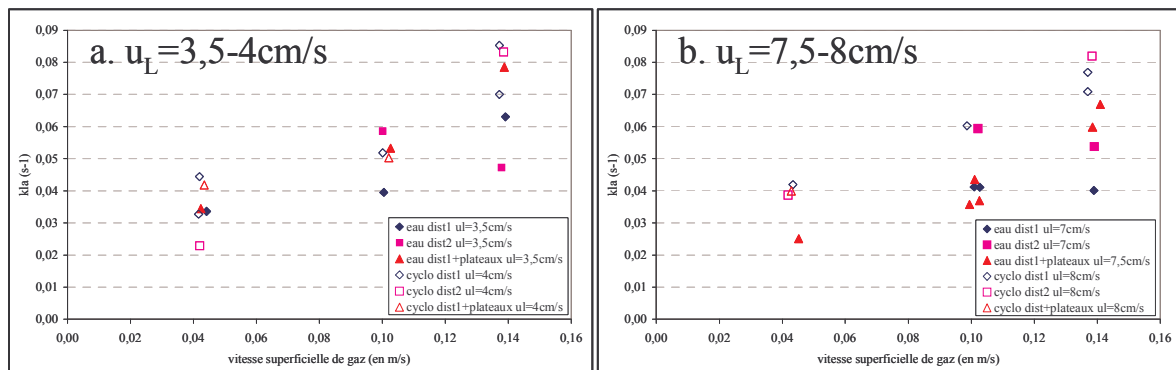


Figure 16 : Effet du milieu sur les valeurs de  $k_L a$

*Ces différents résultats permettent d'identifier, dans des conditions difficiles, des valeurs de  $k_L a$ , grandeur incontournable pour représenter le transfert de matière :  $k_L a$  est compris entre  $0,03$  et  $0,085\text{s}^{-1}$ . Des tendances générales concernant l'effet des différentes conditions opératoires ont aussi été dégagées :  $k_L a$  augmente avec  $u_G$ , il est plus élevé en cyclohexane qu'en eau, mais il est moins sensible aux effets géométriques (plateaux, distributeur) et à  $u_L$ .*

Pour compléter ces aspects, il reste à présent à s'intéresser au lien entre les données de transfert et l'hydrodynamique.

### C.III. LIEN ENTRE L'HYDRODYNAMIQUE ET LE TRANSFERT DE MATIERE

Pour aborder cette étude, deux rapports sont envisagés :  $k_L a / \varepsilon_G$  et  $k_L a / a$ . Ces deux rapports visent deux objectifs distincts. Le premier permet de vérifier si, dans nos conditions,  $k_L a$  peut être directement déduit du taux de vide comme le préconise certains auteurs [Letzel et al. (1999), Krishna et Vandu (2004)], alors que le second tente plutôt de déduire de ces essais une valeur de  $k_L$ .

#### C.III.1. $k_L a / \varepsilon_G$

Les rapports  $k_L a / \varepsilon_G$  obtenus pour nos essais, et reportés dans le Tableau 1 et le Tableau 2, sont globalement compris entre 0,15 et 0,45, c'est-à-dire inférieurs à la valeur de 0,5 classiquement proposée [Letzel et al. (1999), Krishna et Vandu (2004)]. Dans notre étude, le transfert de matière ayant lieu pour un taux de vide donné est donc moins bon.

Lorsque ce rapport est tracé pour différentes conditions opératoires (cf. Figure 17), il est a priori impossible de déduire des effets généraux des paramètres étudiés ici : milieu, distributeur, internes, et même vitesses de liquide et de gaz. Ceci peut être dû à la faible représentativité du rapport  $k_L a / \varepsilon_G$ , du fait des fortes incertitudes dans le calcul de  $k_L a$ .

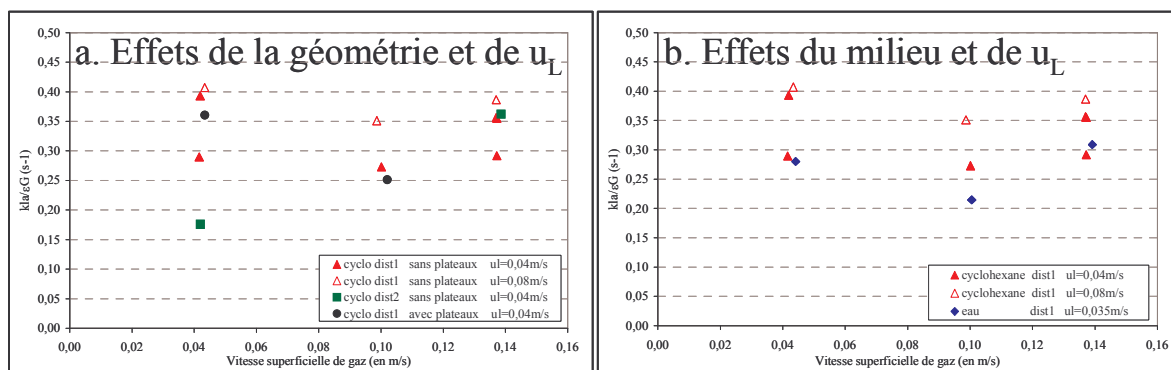


Figure 17 : Evolution du rapport  $k_L a / \varepsilon_G$

*Il est délicat de fixer un rapport constant de  $k_L a / \varepsilon_G$  et son évolution demeure difficile à évaluer. Les mesures de transfert demeurent en l'état incontournables et ne peuvent être déduites simplement de considérations hydrodynamiques et donc de la valeur du taux de vide global ; les phénomènes sont plus complexes.*

#### C.III.2. $k_L a / a$

Pour déterminer le rapport  $k_L a / a$ , les seules valeurs d'aires interfaciales disponibles sont issues des données de la sonde optique et sont de ce fait des données locales ; elles ne peuvent donc être comparées à la donnée globale de  $k_L a$ , d'autant plus que ces valeurs d'aires interfaciales sont très sensibles à la position dans la colonne. Afin de donner davantage de

« globalité » à ces aires interfaciales, celles-ci sont recalculées à partir du taux de vide global et des diamètres de Sauter locaux de bulles, beaucoup moins dépendants de la position dans la colonne par :

$$a = \frac{6\varepsilon_G}{d_{SM}} \quad (\text{eq.11})$$

La Figure 18 présente l'évolution du rapport  $k_L a/a$  en fonction des vitesses superficielles de liquide et de gaz et du milieu. Ce rapport est globalement compris entre 2 et  $4.10^{-4}$  m/s, valeurs en accord avec la théorie de Higbie prévoyant un  $k_L$  de l'ordre de  $3.10^{-4}$  m/s :

$$k_L = 1,13 \sqrt{\frac{u_s}{d_B}} D^{1/2} \quad (\text{eq.12})$$

où :  $u_s$  est la vitesse de glissement (prise égale à 0,25m/s)  
 $d_B$  est la taille des bulles, assimilée ici au diamètre de Sauter (bi-sonde)  
 $D$  est la diffusivité (environ  $1,9.10^{-9}$  pour le  $\text{CO}_2$  dans le cyclohexane)

Deux remarques s'imposent : d'une part, même s'il est exagéré de prétendre calculer un  $k_L$ , il est a priori possible de l'approcher, et d'autre part, la théorie de Higbie semble en première approximation assez satisfaisante.

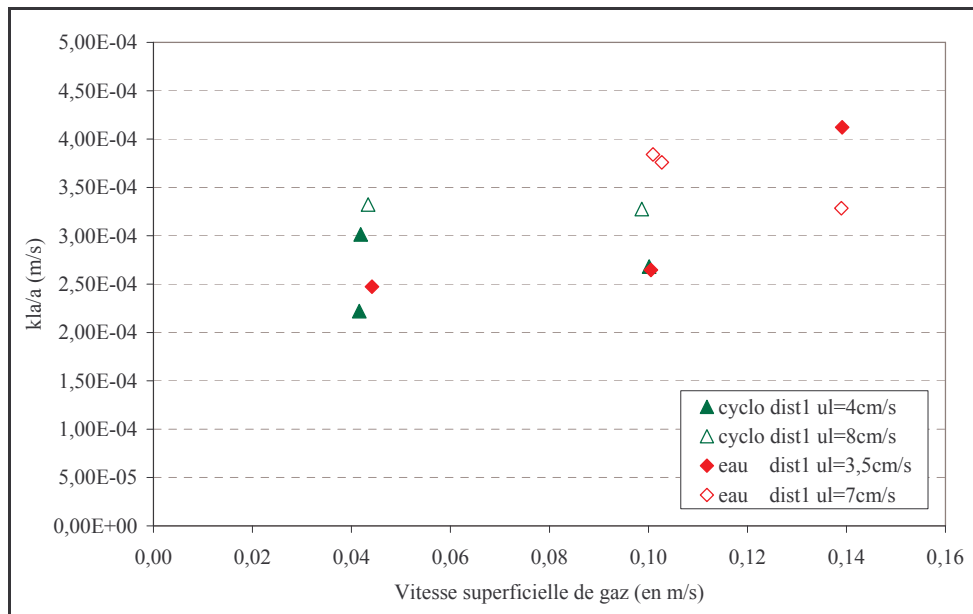


Figure 18 : Evolution du rapport  $k_L a/a$

La Figure 18 permet en outre de dégager que le rapport  $k_L a/a$ , comme l'aire interfaciale, augmente avec  $u_G$ , ce qui va à l'encontre de l'hypothèse d'une valeur de  $k_L$  constante ; peut-être que, lorsque le débit croît, la turbulence augmente, du fait d'une forte concentration de bulles, et cause une diminution de l'épaisseur du film liquide. Par contre,  $k_L a/a$  apparaît peu sensible au débit liquide et au milieu.

Les effets de la géométrie ne sont pas analysés, car le nombre de points obtenus avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5$ mm) est insuffisant et que notre calcul de  $k_L a/a$ , utilisant une valeur locale de  $d_{SM}$  pour représenter le comportement global de la colonne, n'a pas de sens en présence de plateaux.

*Le rapport  $k_L a/a$  estimé ici permet une approximation grossière de  $k_L$  (entre 2 et  $4 \cdot 10^{-4}$  m/s), paramètre qui dépend a priori de la vitesse superficielle du gaz.*

---

## PARTIE D : CONCLUSIONS

---

Au cours de ce chapitre, une méthode a été développée et mise en œuvre pour évaluer le transfert de matière dans notre pilote de colonne à bulles. Grâce à l'efficacité, les effets de quelques paramètres ont pu être déduits : l'effet du débit liquide est important et l'effet des plateaux est modéré, mais ces tendances ne représentent pas forcément celles observées en  $k_L a$  ; cette donnée est donc nécessaire. Cependant, l'estimation du  $k_L a$  est délicate lorsque le transfert est bon et que la concentration en sortie est proche de la concentration d'équilibre ; des ordres de grandeurs de  $k_L a$  ont tout de même été obtenus et seront utiles à l'industriel.

En complément, l'analyse des rapports  $k_L a/\varepsilon_G$  et  $k_L a/a$  témoigne du manque de connaissance concernant les liens entre l'hydrodynamique et le transfert de matière. Il en découle notamment l'impossibilité de déduire simplement le coefficient de transfert de matière à partir du taux de vide global. Par ailleurs, le rapport  $k_L a/a$ , apparenté à  $k_L$ , prend des valeurs proches de celles prédites par Higbie, mais dépend de la vitesse superficielle de gaz. Des études complémentaires sont indispensables à ce sujet pour mieux comprendre les interactions entre le transfert de matière et l'hydrodynamique.





## CONCLUSIONS

Ces travaux de thèse ont permis d'établir une base de données expérimentales sur une colonne à bulles en conditions semi-industrielles. Les effets peu étudiés auparavant d'un liquide organique (le cyclohexane), d'un débit liquide significatif (3,5 à 10cm/s) et de plateaux perforés, y sont abordés.

Les métrologies adaptées à ces différentes conditions ont nécessité des efforts spécifiques. Si la mesure de l'évolution axiale du taux de vide moyen par capteurs de pression différentiels ne pose pas de gros problèmes, la métrologie principale de cette étude, la bi-sonde optique, utilisée pour caractériser localement la phase gaz dispersée (diamètre moyen et fréquence des bulles conduisant à une mesure locale de l'aire interfaciale), s'est avérée extrêmement délicate en raison principalement de la nature très désordonnée du mouvement des bulles, non guidées par un écoulement porteur suffisant. Ce problème est particulièrement aigu vers la paroi où l'écoulement du liquide est en moyenne descendant. Malgré ces difficultés, les estimations du diamètre de Sauter paraissent significatives et plus encore les évolutions de ce diamètre et de l'aire interfaciale lors des changements de configuration ou de conditions opératoires. Le transfert de matière à lui aussi été abordé par une technique spécifique, mais là, la précision n'est pas suffisante pour valider des choix de configurations.

Sur le plan des résultats abondants en hydrodynamique, et résumés en conclusion du chapitre IV, on retiendra essentiellement les différences importantes d'écoulement entre l'eau et le cyclohexane, alors que ce dernier représente bien l'olone.

L'utilisation d'un milieu modèle à base de solution aqueuse ne semble pas du tout adaptée, puisque nos résultats en aquarium montrent que l'eau additivée de moins d'1% de butanol présente une distribution de taille différente de celle du cyclohexane. Il resterait à confirmer ceci en colonne, mais cela ne devrait pas être plus encourageant si l'on rappelle que tous les auteurs observent que l'addition d'alcool repousse à plus hautes vitesses de gaz la transition vers le régime hétérogène, alors que nos résultats montrent le contraire en cyclohexane. Cette étude complémentaire devrait être rapidement réalisée pour trancher sur cette question.

Le deuxième résultat à souligner est la grande importance du débit liquide et de l'introduction de plateaux, et la forte et imprédictible imbrication des deux effets : l'ajout de plateaux perforés, dans le cas d'un fort débit liquide, conduit à une invariance, voire à une légère amélioration des performances, alors que « plateaux sans débit » ou « débit sans plateaux » ont un effet négatif. Comme, par ailleurs, les effets du milieu liquide diffèrent parfois selon les configurations, l'accumulation des données de ce travail s'avère très utile et bien nécessaire même si leur interprétation reste ouverte.

L'addition de plateaux est bénéfique aux fortes vitesses de liquide du procédé industriel et, de plus, l'écoulement se reproduit fidèlement d'un plateau à l'autre. Dans l'espace entre plateaux la recirculation de liquide a été fortement limitée, voire inversée par rapport à la colonne vide ; les divers profils radiaux sont plus aplatis et le taux de vide est uniformisé axialement.

Dans une perspective industrielle d'optimisation du design des plateaux il conviendrait d'étudier en détail un seul espace inter-plateaux, en abordant les effets respectifs de la taille et du nombre des orifices du plateau, mais aussi de la hauteur entre plateaux et de la vitesse liquide.

Dans ce cas, et dans le cadre d'une étude plus raffinée des caractéristiques des bulles (distribution de taille, fréquence, vitesse), la bi-sonde optique pourrait être utilisée selon trois orientations. En limitant fortement l'intervalle de recherche, autour du temps de vol optimal, on ne conserverait que des bulles piquant la sonde selon son axe et on pourrait en comparer la taille, la vitesse et la fréquence sur ces trois directions, pour parvenir à une description complète de la phase dispersée.

Enfin, toujours pour une meilleure connaissance de l'écoulement à fort taux de bulles, nos résultats pourraient être retraités par une analyse en fréquence de passage pour préciser la formation d'essaims de bulles, qui génèrent les gros tourbillons de l'écoulement, et doivent concerner des bulles de vitesses très voisines.

L'étude du transfert de matière est particulièrement délicate en cyclohexane pour des raisons de sécurité mais aussi de précision analytique difficilement compatible avec la grande efficacité du transfert. Cette efficacité conduit, soit à des temps très courts en transfert dynamique, et donc à des problèmes de dynamique de sondes, soit à des concentrations voisines de l'équilibre en transfert continu, et donc à des problèmes de précision analytique. Le choix de travailler en continu est certainement le bon, mais la mesure de CO<sub>2</sub> dissous est à revoir ou à remplacer par celle d'une autre espèce chimique. La mesure d'oxygène dissous à très faible concentration, écartée pour raisons de sécurité, reste probablement la plus réaliste au niveau précision. Elle devra être réévaluée en détail. D'ores et déjà nos résultats en termes de  $k_L a$ , quoique imprécis, sont globalement en accord avec les informations hydrodynamiques obtenues précédemment.

Au terme de cette étude il convient de reconnaître que la complexité des nombreux résultats observés n'autorise pas une analyse simplificatrice. Le couplage déroutant des effets physico-chimiques et mécaniques n'a pas livré ses secrets et bien des avancées fondamentales, sur la coalescence, la rupture, l'altération des interfaces, seront encore nécessaires avant que les modèles complets de mécanique des fluides numériques les intégrant ne puissent envisager d'interpréter nos données.

## NOMENCLATURE

$a, a_i$	Aire interfaciale	$(m^2/m^3)$
A	Absorbance	(unité d'absorbance)
$A_{pic}$	Aire du pic (analyse IR)	(absorbance/cm)
B	Rapport de BoundingBox (cf. annexe III.B)	(-)
c	Concentration	$(mol/m^3)$
$c_L$	Concentration en phase liquide	$(mol/m^3)$
$c_{L,i}$	Concentration en phase liquide à l'interface	$(mol/m^3)$
$c_L^*$	Concentration en phase liquide à saturation	$(mol/m^3)$
$c_G$	Concentration en phase gaz	$(mol/m^3)$
$c_{G,i}$	Concentration en phase gaz à l'interface	$(mol/m^3)$
corde <sub>i</sub>	Corde de la bulle i	(en m)
$c_{10}$	Corde moyenne	(m)
$C_0, C_1$	Coefficients de l'éq.8 du chapitre I (flux de dérive)	(-)
$C_v$	Coefficient de variation (DTS, annexe III.A)	$(s^2)$
$d_B$	Diamètre de bulle	(m)
$d_B^*$	Diamètre des bulles primaires	(m)
$d_{eq}$	Diamètre équivalent	(m)
$d_{10}$	Diamètre moyen de bulles	(m)
$d_{32}$ ou $d_{SM}$	Diamètre de Sauter	(m)
$d_0$	Diamètre des orifices d'un distributeur	(mm)
$d_p$	Diamètre de pore	$(\mu m)$
$d_t$	Diamètre de trou d'un plateau	(m)
$D_C$	Diamètre de la colonne	(m)
$D_{zl}$	Coefficient de dispersion en phase liquide	$(m^2/s)$
$D_{zg}$	Coefficient de dispersion en phase gaz	$(m^2/s)$
E	Excentricité de la bulle	(-)
E(t)	Fonction de détermination de temps de séjour	(-)
f	Fréquence d'acquisition	(Hz)
$f_B$	Fréquence de bullage	$(s^{-1})$
$F_{max}$	Diamètre de Férêt maximum	(m)
g	Gravité	$(m^2/s)$
h	Hauteur dans la colonne	(m)
H	Hauteur de la colonne	(m)
$H_{RAC}$	Hauteur d'une RAC	(m)
He	Constante de Henry	$(Pa.m^3/mol)$
$j_{GL}$	Flux de gaz associé à la différence entre la vitesse de la phase gaz et la vitesse du mélange diphasique	(m/s)

## Nomenclature

---

$j_{LG}$	Flux de liquide associé à la différence entre la vitesse de la phase liquide et la vitesse du mélange diphasique	(m/s)
$k$	Coefficient d'intercorrélation des signaux (bi-sonde)	(-)
$k_L$	Coefficient de transfert de matière du film liquide	(m/s)
$k_{La}$	Coefficient de transfert de matière	(s <sup>-1</sup> )
$l_{12}$	Distance entre les deux fibres de la sonde optique	(mm)
$N$	Nombre de bulles (traitement d'images, annexe III.B)	(-)
$m$	Nombre de classes (traitement bi-sonde)	(-)
$n_{bi}$	Nombre de bulles piquées par la fibre $i$ (sonde optique)	(-)
$nb_{traite}$	Nombre de bulles associées (sonde optique)	(-)
$N_{RAC}$	Nombre de RAC	(-)
$P$	Pression	(Pa)
$P^{vap}$	Tension de vapeur	(Pa)
$\Delta P$	Perte de charge	(Pa)
$Q$	Débit	(m <sup>3</sup> /s)
$Q_G$	Débit de gaz	(m <sup>3</sup> /s)
$Q_{G,sep}$	Débit de gaz dans le séparateur	(m <sup>3</sup> /s)
$Q_{GE}$	Débit de gaz en entrée de colonne	(m <sup>3</sup> /s)
$Q_{GS}$	Débit de gaz en sortie de colonne	(m <sup>3</sup> /s)
$Q_L$	Débit de liquide	(m <sup>3</sup> /s)
$r$	Position radiale dans la colonne	(cm)
$r_B$	Rayon de bulle	(m)
$r_C$	Rayon de la colonne	(m)
$s^3$	Moment d'ordre 3 de la fonction $E(t)$ (DTS, annexe III.A)	(s <sup>4</sup> )
$S_i$	Seuil de la fibre $i$ (bi-sonde)	(V)
$t$	Temps	(s)
$t_{ij}$	Temps d'arrivée de la bulle $i$ sur la fibre $j$ (bi-sonde)	(s)
$\Delta t_{ij}$	Temps de séjour de la bulle $i$ sur la fibre $j$ (bi-sonde)	(s)
$t_{Bi}$	Temps passé par une bulle sur la fibre $i$ (bi-sonde)	(s)
$t_m$	Temps de séjour moyen du liquide (DTS, annexe III.A)	(s)
$T$	Température	(K)
$u_G$	Vitesse superficielle du gaz	(cm/s)
$u_{G,trans}$	Vitesse superficielle du gaz à la transition	(cm/s)
$u_{G,0}$	Vitesse d'éjection du gaz à l'orifice	(m/s)
$u_L$	Vitesse superficielle du liquide	(cm/s)
$u_S$	Vitesse de glissement	(m/s)
$v_B$	Vitesse de bulles	(m/s)
$v_{B,\infty}$	Vitesse terminale d'ascension	(m/s)
$v_{B,axiale}$	Vitesse de bulle axiale	(m/s)
$v_{B,max}$	Vitesse de bulle maximale	(m/s)
$v_{B,min}$	Vitesse de bulle minimale	(m/s)
$v_{B,moy}$	Vitesse de bulle moyenne	(m/s)
$v_{moy}$	Vitesse de bulle la plus probable (bi-sonde)	(m/s)
$v_G$	Vitesse de la phase gaz	(m/s)
$v_m$	Vitesse du mélange diphasique	(m/s)
$\bar{v}$	Moyenne des vitesses de bulles	(m/s)
$V_C$	Volume de la colonne	(m <sup>3</sup> )
$V_L$	Volume de liquide	(m <sup>3</sup> )
$v_G$	Vitesse de la phase gaz ( $u_G/\epsilon_G$ )	(m/s)
$v_L$	Vitesse de la phase liquide ( $u_L/\epsilon_L$ )	(m/s)

W	Fonction de probabilité de longueur de corde (bi-sonde)	
X <sub>i</sub>	Signal ou fonction indicatrice de phase de la fibre i	(-)
Y <sub>i</sub>	Signal de tension de la fibre i (sonde optique)	(V)
Z <sub>C</sub>	Hauteur de liquide claire	(m)

## Symboles :

$\alpha, \beta$	Paramètres d'association des créneaux (bi-sonde)	(-)
$\delta$	Distance entre plateaux	(m)
$\varepsilon_G$	Taux de vide	(-)
$\varepsilon_{G,trans}$	Taux de vide à la transition entre les régimes homogènes et hétérogènes	
$\varepsilon_{G,grosses}$	Taux de vide lié aux grosses bulles (approche bimodale des bulles)	
$\varepsilon_{G,petites}$	Taux de vide lié aux petites bulles (approche bimodale des bulles)	
$\varepsilon_{G, homogène}$	Taux de vide lié au régime homogène (approche bimodale des bulles)	
$\varepsilon_{G, hétérogène}$	Taux de vide supplémentaire en hétérogène (approche bimodale des bulles)	
$\varepsilon_L$	Rétention liquide	(-)
$\varphi$	Aire percée du plateau perforé	(%)
$\kappa$	Fraction de rétro-mélange à un plateau	(%)
$\lambda$	Coefficient de proportionnalité entre $c_{10}$ et $d_{10}$	(-)
$\mu_G$	Viscosité gaz	(Pa.s)
$\mu_L$	Viscosité dynamique du liquide	(Pa.s)
$\nu_L$	Viscosité cinématique ( $\mu/\rho$ )	(m <sup>2</sup> /s)
$\psi$	Circularité de la bulle	(-)
$\rho_G$	Masse volumique gaz	(kg/m <sup>3</sup> )
$\rho_L$	Masse volumique liquide	(kg/m <sup>3</sup> )
$\sigma$	Tension superficielle liquide	(N/m)
$\sigma'$	Ecart-type normé par la moyenne (étude en aquarium)	(-)
$\sigma^2$	Ecart-type, moment d'ordre 2	(s <sup>3</sup> )
$\tau$	Temps de séjour dans la colonne	(s)
$\tau_{max}$	Nombre de points le plus probable de passage des bulles d'une fibre à l'autre (issu de l'intercorrélacion des signaux)	

## Abréviations

ADF	Anti DéFlagracion
ATR	Attenuated Total Reflexion
COV	Carbone Organique Volatil
DDG	Désengagement Dynamique du Gaz
DTS	Détermination des Temps de Séjour
IR	Infra-rouge
NF	Normalement Fermé (vanne)
NO	Normalement ouvert (vanne)
RAC	Réacteur Agité Continu
UV	Ultra-violet
VME	Valeur Moyenne d'Exposition (8h)
VLE	Valeur Limite d'Exposition (15min)
LIE	Limite Inférieure d'Explosimétrie
LSE	Limite Supérieure d'Explosimétrie

TOR	Tout Ou Rien
Dist.1	Distributeur percé d'orifices de 1mm
Dist.2	Distributeur percé d'orifices de 0,5mm

**Nombres adimensionnels :**

Nombre de Bond :  $Bo = \frac{g\rho_L d_B^2}{\sigma}$  (gravité/ force de tension superficielle)

Nombre d'Eötvös :  $Eö = \frac{g\Delta\rho d_e^2}{\sigma}$

Nombre de Froude :  $Fr = \frac{u_G}{\sqrt{gd_B}}$  (force d'inertie/ force de gravité)

Nombre de Morton  $Mo = \frac{g\mu^4 \Delta\rho}{\rho^2 \sigma^3}$

Nombre de Peclet  $Pe_L = \frac{u_L H}{D_{zl}}$  ;  $Pe_G = \frac{u_G H}{D_{zg}}$

Nombre de Reynolds :  $Re = \frac{\rho_L d_B u_G}{\mu_L}$

Nombre de Reynolds bulle :  $Re_B = \frac{\rho_G d_B v_B}{\mu_G}$

Nombre de Reynolds à l'orifice :  $Re_0 = \frac{\rho_L d_0 u_{G,0}}{\mu_L}$

Nombre de Schmidt :  $Sc = \frac{\mu_L}{(\rho_L D_L)}$  (diffusion visqueuse/ moléculaire)

Nombre de Sherwood :  $Sh = \frac{k_L a D^2}{D_L}$  (transfert de matière/ diffusion)

Nombre de Stanton :  $St = \frac{Hk_L a}{u_G}$

Nombre de Weber à l'orifice :  $We_0 = \frac{u_{G0}^2 d_0 \rho_G}{\sigma}$

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

**M. ABRAHAM, S.B. SAWANT**, Hydrodynamics and mass transfer characteristics of packed bubble columns, *The Chem. Eng. J.*, Vol. 43, pp95-105, 1990.

**K. AKITA, F. YOSHIDA**, Gas hold-up and volumetric mass transfer coefficient in bubble columns, *Ind. Eng. Chem. Process. Des. Develop.* Vol. 12, n°1, pp76-80, 1973.

**K. AKITA, F. YOSHIDA**, Bubble size, interfacial area, and liquid mass transfer in bubble columns, *Ind. Eng. Chem., Process Des. Develop.*, Vol. 13, pp84-90, 1974.

**M. ALVAREZ-CUENCA, M.A NERENBERG**, Oxygen Mass Transfer in Bubble Columns Working at Large Gas and Liquid Flow Rates, *AIChE J.*, Vol. 27, pp66-73, 1981.

**H.F. BACH, T. PILHOFER**, Variation of gas hold-up in bubble columns with physical properties of liquids and operating parameters of columns, *Ger. Chem. Eng*, n°1, pp270-275, 1978.

**D. BAGHA, B.B. PRUDEN, M.E.WEBER**, Gas Holdup in a bubble column Containing Organic Liquid Mixtures, *The Can. J. of Chem. Eng.*, Vol. 49, pp417-420, 1971.

**E. BARRAU, N. RIVIERE, C. POUPOT, A. CARTELLIER**, Single and double optical probes in air-water two-phase flows : real time signal processing and sensor performance, *Int. J. of Multiphase Flow*, n°25, pp229-256, 1999.

**M. A. BENNETT, R. M. WEST, S. P. LUKE, X. JIA, R. A. WILLIAMS**, Measurement and analysis of flows in a gas-liquid column reactor, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp5003-5012, 1999.

**G. BERCIC, A. PINTAR**, The role of gas bubbles and liquid slug lengths on mass transport in the Taylor flow through capillaries, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 52, pp3709-3719, 1997.

**A. BIESHEUVEL, W. C. M. GORISSEN**, Void fraction disturbances in a uniform bubbly fluid, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 16, pp211-231, 1990.

**A. BEHKISH, Z. MEN, J.R. INGA, B.I. MORSI**, Mass transfer characteristics in a large-scale slurry bubble column reactor with organic liquid mixtures, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 57, pp3307-3324, 2002.



**L. BELFARES, M. CASSANELLE, B.P.A. GRANDJEAN, F. LARACHI**, Liquid back-mixing in packed-bubble column reactors: a state-of-the-art correlation, *Catalysis Today*, Vol. 64, pp321-332, 2001.

**E. BLASS, W. CORNELIUS**, The residence time distribution of solid and liquid in multistage bubble columns in the cocurrent flow of gas, liquid and suspended solid, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 3, pp459-469, 1977.

**E. BLASS**, Formation and coalescence of bubbles and droplets, *Int. Chem. Eng.*, Vol. 30, pp206-221, 1990.

**J.W. R. BOYD, J. VARLEY**, Measurement of gas hold-up in bubble columns from low frequency acoustic emissions, *Chem. Eng. J.*, Vol 88, pp111-118, 2002.

**C. BOYER, A.M. DUQUENNE, G.WILD**, Measuring techniques in gas-liquid and gas-liquid-solid reactors, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 57, pp3185-3215, 2002.

**A.E.R. BRUCE, P.S.T. SAI, K. KRISHNAIAH**, Liquid phase mixing in turbulent bed contactor, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 58, pp3453-3463, 2003.

**R. BUCHHOLTZ, W. ZAKRZEWSKI, K. SCHUGERL**, Techniques for determining the properties of bubbles in bubble columns, *Int. Chem. Eng.*, Vol. 21, pp180-187, 1981.

**J.M. BURGESS, A.G. FANE, C.J.D FELL**, Application of an electroresistivity probe technique to a two-dimensional fluidized bed, *TransIChemE*, Vol. 59, 1981, pp249-252.

**R. BURCKHART, and W.D. DECKWER**, Bubble size distribution and interfacial areas of electrolyte solutions in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 30, pp351-354, 1975

**T. BURKHARDT, J. VERSTRAETE, P. GALTIER, M. KRAUME**, Residence time distributions with a radiotracer in a hydrotreating pilot plant: upflow versus downflow operation, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 57, pp1859-1866, 2002.

**A.V. BYAKOVA, S.V. GNYLOSKURENKO, T. NAKAMURA, O.I. RAYCHENKO**, Influence of wetting conditions on bubble formation at orifice in an inviscid liquid. Mechanism of bubble evolution, *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, Vol. 229, pp19-32, 2003.

**E. CAMARASA, C. VIAL, S. PONCIN, G. WILD, N. MIDOUX, J. BOUILLARD**, Influence of coalescence behaviour of the liquid and of gas sparging on hydrodynamics and bubble characteristics in a bubble column, *Chem. Eng. And Process*, Vol. 38, pp329-344, 1999.

**A. CARTELLIER**, Simultaneous void fraction measurement, bubble velocity, and size estimate using a single optical probe in gas-liquid two-phase flows, *Rev. Sci. Instrum.*, Vol.63, n°11, pp5442-5453, 1992.

**A. CARTELLIER, C. POUPOT, E. CHAMBEROT, E. BARRAU**, Sondes optiques : innovations sur un capteur classique, *la houille blanche*, n°1/2, pp120-128, 1996.

**A. CARTELLIER**, Measurement of gas phase characteristics using new monofiber optical probes and real-time signal processing, *Nuclear Eng. and Des.*, n°184, pp393-408, 1998

**A. CARTELLIER, E. BARRAU**, Monofiber optical probes for gas detection and gas velocity measurements conical probes, *Int. J. of Multiphase Flow*, n°24, pp1265-1294, 1998a.

**A. CARTELLIER, E. BARRAU**, Monofiber optical probes for gas detection and gas velocity measurements: optimised sensing tips, *Int. J. Multiphase Flow*, n°24, pp1295-1315, 1998b.

**J. CHABOT, H. FARAG, H. DE LASA**, Fluid dynamics of bubble columns at elevated temperature modelling and investigation with refractive fiber optic sensors, *Chem. Eng. J.*, vol. 70, pp 105-113, 1998.

**A. CHANDER, A. KUNDU, S.K. BEJ, A.K. DALAI, D.K. VOHRA**, Hydrodynamic characteristics of cocurrent upflow and downflow of gas and liquid in a fixed bed reactor, *Fuel*, Vol. 80, pp1043-1053, 2001.

**J.C. CHARPENTIER**, Chapter 4, measurement of gas-liquid parameters, *Multiphase chemical reactors Theory, Design, scale-up*, Springer Verlag, 1986, , pp104-151

**R.V. CHAUDHARI, H. HOFMAN**, Coalescence of gas bubbles in liquids, *Rev. Chem. Eng.*, Vol. 10, p131, 1994.

**X. T. CHEN, X. D. CAI, J. P. BRILL**, A general model for transition to dispersed bubble flow, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 52, pp4373-4380, 1997.

**F. CHEN, C.O. GOMEZ, J.A. FINCH**, Technical note, Bubble size measurement in flotation machines, *Minerals Eng.*, Vol. 14, pp427-432, 2001.

**K.H. CHOI, W.K. LEE**, Comparison of probe for measurement of bubble properties, *Chem. Eng. Comm.*, Vol. 91, pp35-47, 1990.

**N.N. CLARK, R.L.C. FLEMMER**, Turbulent circulation in Bubble Columns, *AIChE J.*, Vol. 33, pp515-518, 1987.

**N.C. CLARK, W. LIU, R. TURTON**, Data interpretation techniques for inferring bubble size distribution from probe signals in fluidized systems, *Powder technology*, vol. 88, 1996, pp179-188.

**N. N. CLARK, R. TURTON**, Chord length distributions related to bubble size distributions in multiphase flows, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 14, pp413-424, 1988.

**R. CLIFT, J.R. GRACE, M.E. WEBER**, *Bubbles, drops and Particles*, Academic press, 375p, 1978.

**T.J.W. DE BRUIJN, J.D. CHASE, W.H. DAWSON**, Gas holdup in a Two-Phase Vertical Tubular Reactor at high Pressure, *The Can. J. of Chem. Eng.*, vol. 66, pp330-333, 1988.

**W.D. DECKWER, R. BURCKHARDT, G. ZOLL**, Mixing and mass transfer in tall bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 29, pp2177-2188, 1974.

**W.-D. DECKWER**, *Bubble column Reactors*, Editions Wiley, 1992.

**S. DEGALEESAN, M. DUDUKOVIC, Y. PAN**, Experimental study of gas-induced liquid flow structures in bubble columns, *AIChE J.*, Vol.47, pp1913-1931, 2001.

**N. S. DESHPANDE, M. DINKAR, J. B. JOSHI**, Disengagement of the gas phase in bubble columns, *Int.l J. of Multiphase Flow*, Vol. 21, pp1191-1201, 1995.

**H. DHAUDI, S.PONCIN, J.M. HORNUT, G. WILD, P. OINAS**, Hydrodynamics of an airlift reactor: experiments and modelling, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 51, pp2625-2630, 1996.

**J. DRAHOS, J. ZAHRADNIK, M. PUNCOCHAR, M. FIALOVA, F. BRADKA**, Effect of operating conditions of the characteristics of pressure fluctuations in a bubble column, *Chem. Eng. Process*, vol.29, pp107-115, 1991.

**A.J. DREHER, R. KRISHNA**, Liquid-phase backmixing in bubble columns, structured by introduction of partition plates, *Catalysis today*, Vol. 69, pp165-170, 2001.

**H. DZIALLAS, V. MICHELE, D. C. HEMPEL**, Measurement of local phase holdups in a Two-and Three-phase Bubble Column, *Chem. Eng. Technol.*, Vol. 23, n°10, pp877-884, 2000.

**A. ELGOZALI, V. LINEK, M. FIAVOLA, O. WEIN, J. ZAHRADNIK**, Influence of viscosity and surface tension on performance of gas-liquid contactors with ejector type gas distributor, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 15, pp2987-2994, 2002.

**L.S. FAN, G.Q. YANG, D.J. LEE, K. TSUCHIYA, X. LUO**, Some aspects of high-pressure phenomena of bubbles in liquids and liquid-solid suspensions, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp4681-4709, 1999.

**J. FISCHER, H. KUMAZAWA, E. SADA**, On the local gas holdup and flow pattern in standard-type bubble columns, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 33, pp7-21, 1994.

**A. FORRET, J.-M. SCHWEITZER, T. GAUTHIER, R. KRISHNA, D. SCHWEICH**, Influence of scale on the hydrodynamics of bubble column reactors: an experimental study in columns of 0.1, 0.4 and 1m diameters, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 58, pp719-724, 2003.

**S. FROHLICH, M. LOTZ, B.LARSDON, A. LUBBERT, K. SCHUGERL, M. SEEKAMP**, Characterization of a pilot plant airlift tower loop reactor: III Evaluation of local properties of the dispersed gas phase during yeast cultivation and in model media, *Biotechnology and Bioengineering*, Vol. 38, pp56-64, 1991.

**E. FRANSOLET, V. COUMONT, M. CRINE, G. L'HOMME, P. MARCHOT, D. TOYE**, Rétention gazeuse dans une colonne à bulles contenant un liquide visqueux non newtonien, *GLS, Herbeumont-sur-Semois, Belgique*, 2002.

**E.S. GADDIS**, Mass transfer in gas-liquid contactors, *Chem. Eng. and Process*, Vol. 38, pp503-510, 1999.

**E. S. GADDIS, A. VOGELPOHL**, Bubble formation in quiescent liquids under constant flow conditions, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 41, pp97-105, 1986.

**E. GARCIA CALVO, P. LETON**, A fluid dynamic model for bubble columns and airlift reactors, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 46, pp2947-2951, 1991.

**C. GARNIER, M. LANCE, J.L. MARIE**, Measurement of local flow characteristics in buoyancy-driven bubbly flow at high void fraction ; *Experimental Thermal and Fluid Science*, Vol.26, pp811-815, 2002.

**M. GAVRILESCU, R.Z TUDOSE**, Residence time distribution of the liquid phase in a concentric-tube airlift reactor, *Chem. Eng. And Process*, Vol. 38, pp225-238, 1999.

**G. GENIN, M.A.LATIFI, J.L. HOUZELOT**, Hydrodynamic study of gas-solid moving beds by means of contact time distribution approach, *Powder Technology*, Vol. 128, pp107-113, 2002.

**S. D. GHARAT and J. B. JOSHI**, Transport phenomena in bubble column reactors I: Flow pattern, *The Chem. Eng. J.*, Vol. 48, pp141-151, 1992.

**B. GIOJELLI, C. VERDIER, J.Y. HIHN, J.F. BETEAU, A. ROZZI**, Identification of axial dispersion coefficients by model method in gas/liquid/solid fluidised beds, *Chem. Eng. And Process.*, Vol. 40, pp159-166, 2001.

**L.A. GLASGOW, L.E. ERICKSON, C.H. LEE, S.A. PATEL**, Wall pressure fluctuations and bubble size distributions at several positions in a airlift fermentor, *Chem. Eng. Commun.*, Vol.29, pp311-336, 1984.

**S.V. GNYLOSKURENKO, A.V. BYAKOVA, O.I. RAYCHENKO, T. NAKAMURA**, Influence of wetting conditions on bubble formation at orifice in an inviscid liquid. Transformation of bubble shape and size, *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, Vol.216, pp73-87, 2003.

**S. GUET, G. OOMS and R. V. A. OLIEMANS**, Influence of bubble size on the transition from low-Re bubbly flow to slug flow in a vertical pipe, *Exp. Thermal and Fluid Sci.*, Vol. 26, pp635-641, 2002.

**D.J. GUNN, H.H. AL-DOORIN**, The measurement of bubble flow in fluidized beds by electrical probe, *International Journal of Multiphase Flow*, Vol. 11, n°4, 1985, pp535-551.

**A.T. HARRIS, J.F. DAVIDSON, R.B. THORPE**, The influence of the riser exit on the particle residence time distribution in a circulating fluidised bed riser, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 58, pp3669-3680, 2003a.

**A.T. HARRIS, J.F. DAVIDSON, R.B. THORPE**, Particle residence time distributions in circulating fluidised beds, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 58, pp2181-2202, 2003b.

- G. D. HARVEL, K. HORI, K. KAWANISHI and J. S. CHANG**, Real-time cross-sectional averaged void fraction measurements in vertical annulus gas-liquid two-phase flow by neutron radiography and X-ray tomography techniques, Nucl. Instr. and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Vol. 371, pp544-552, 1996.
- G. HEBRARD, D. BASTOUL, M. ROUSTAN, M.P. COMTE, C. BECK**, Characterization of axial liquid dispersion in gas-liquid and gas-liquid-solid reactors, Chem. Eng. J., Vol. 72, pp109-116, 1999.
- J.J. HEIJNEN, K. VAN'T RIET**, Mass transfer, mixing and heat transfer phenomena in low viscosity bubble column reactors, The Chem. Eng. J., Vol. 28, ppB21-B42, 1984.
- T. HIBIKI, M. ISHII, Z. XIAO**, Axial interfacial transport of vertical bubbly flows, International Journal of Heat and Mass Transfer, vol. 44, pp1869-1888, 2001.
- T. HIBIKI, R. SITU, Y. MI, M. ISHII**, Local flow measurements of vertical upward bubbly flow in an annulus, Int. J. of Heat and Mass Transfer, Vol. 46, pp1479-1496, 2003.
- T. HIBIKI, M. ISHII**, One-dimensional drift-flox model for two-phase flow in a large pipe, Int. J. of Heat and Mass Transfer, Vol. 46, pp1773-1790, 2003.
- A.P. HIGLER, R. KRISHNA, J. ELLENBERGER, R. TAYLOR**, Counter-current operation of a structured catalytically packed-bed reactor: liquid phase mixing and mass transfer, Chem. Eng. Sci. Vol. 54, pp5145-5152, 1999.
- H. HIKITA, S. ASAI, K. TANIGAWA, M. KITAO**, The volumetric liquid-phase mass transfer coefficient in bubble column, Chem. Eng. J., vol. 22, pp61-69, 1981.
- H. C. J. HOEFSLOOT, R. KRISHNA**, Influence of gas density on the stability of homogeneous flow in bubble columns, Ind. Eng. Chem. Res., vol. 32, pp 747-750, 1993.
- H. HOFMAN, H.E. GASCHE**, Investigations of fluid dynamics of bubble columns Preprints German/Japanese Symp. Bubble Columns, Schwerte, F.R.G, DVCV, pp225-233, 1988.
- S. HOGSETT, M. ISHII**, Local two-phase flow measurements using sensor techniques, Nuclear Engineering and Design, vol. 175, 1997, pp15-24.
- C.L. HYNDMAN, F. LARACHI, C. GUY**, Understanding gas-phase hydrodynamics bubble columns: a convective model based on kinetic theory, Chem. Eng. Sci., Vol. 52, pp63-77, 1997.
- K. IDOGAWA, K. IKEDA, T. FUKUDA, S. MOROOKA**, Formation and flow of gas bubbles in a pressurized bubble column with a single orifice or nozzle gas distributor, Chem. Eng. Comm., Vol. 59, pp201-212, 1987.
- I. ILIUTA, F.C. THYRION, O. MUNTEAN, M. GIOT**, Residence time distribution of the liquid in gas-liquid cocurrent upflow fixed-bed reactors, Chem. Eng. Sci., Vol. 51, n°20, pp4579-4593, 1996.

- I. ILIUTA, F. LARACHI, B.P.A. GRANDJEAN**, Residence time, mass transfer and back-mixing of the liquid in trickle flow reactors containing porous particles, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp4099-4109, 1999.
- M. JAMIALAHMADI, H. MULLER-STEINHAGEN**, Effect of alcohol, organic acid and potassium chloride concentration on bubble size, bubble rise velocity and gas hold-up in bubble columns, *Chem. Eng. J.*, Vol. 50, pp47-56, 1992.
- M. JAMIALAHMADI, H. MULLER-STEINHAGEN, A. SARRAFI, J.M. SMITH**, Studies of Gas holdup in Bubble Column Reactors, *Chem. Eng. Technol.*, Vol. 23, n°10, pp919-921, 2000.
- A.M. JAHMSHIDI, M. SOHRABI, F. VAHABZADEH, B. BONAKDARPOUR**, Hydrodynamic and mass transfer characterization of a down jet loop bioreactor, *Biochem. Eng. J.*, Vol. 8, pp241-250, 2001.
- W. JIANPING, N. PING, H. LIN, C. YUNLIN**, Local overall volumetric gas-liquid mass transfer coefficients in gas-liquid-solid reversed flow jet loop bioreactor with a non-Newtonian fluid, *Biochem. Eng. E.*, vol. 5, pp225-229, 2000.
- O.C. JONES, N. ZUBER**, The interrelation between void fraction fluctuations and flow patterns in two-phase flow, *Int. J. Multiphase Flow*, Vol.2, pp273-306, 1975.
- U. JORDAN, K. TERASAKA, G. KUNDU**, Mass transfer in high-pressure bubble columns with organic liquids, *Chem. Eng. Technol.*, Vol. 25, pp262-265, 2002.
- U. JORDAN, A.K. SAXENA, A. SCHUMPE**, Dynamic gas disengagement in a high pressure bubble column, *The Can. J. of Chem. Eng.*, Vol. 81, pp491-498, 2003.
- J.B. JOSHI, M.M. SHARMA**, A circulation cell model for bubble columns, *Trans IChemE*, vol. 57, pp244-251, 1979.
- J.B. JOSHI, A.M. LALI**, Velocity-hold up relationship in multiphase contactors – A unified approach, in L.K. Doraiswamy & R.A Mashelkar, *Frontier in chemical reaction engineering*, Vol. 1, pp314-329, New Dehli, Wiley, 1984.
- J.B. JOSHI, V.V. RANADE, S.D. GHARAT, S.S. LELE**, Sparged loop reactors, *Can. J. Chem. Eng.*, vol. 68, p705, 1990.
- S. KALKACH-NAVARRO, R.T.LAHEY, Jr, D.A. DREW, R. MEYDER**, Interfacial area density, mean radius and number density measurements in bubbly two-phase flow, *Nuclear Engineering and Design*, vol. 142, 1993, pp341-351.
- A. KAMP**, Ecoulements turbulents à bulles dans une conduite en micropesanteur, Thèse de l'INPT, 1996.
- Y. KANG, Y.T.J. CHO**, Diagnosis of bubble distribution and mass transfer in pressurized bubble columns with viscous liquid medium, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp4887-4893, 1999.

**Y KANG, YT.J. CHO, K.J. WOO, K.I. KIM, S.D. KIM**, Bubble properties and pressure fluctuations in pressurized bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, n°55, pp411-419, 2000.

**M.V. KANTAK, R.P. HESKETH, B.G. KELKAR**, Effect of gas and liquid properties on gas phase dispersion in bubble columns, *The Chem. Eng. J.*, Vol. 99, pp91-100, 1995.

**I. KATAOKA, M. ISHII, A. SERIZAWA**, Local formulation and measurements of interfacial area concentration in two-phase flow, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 12, n°4, 1986, pp505-529.

**Y. KAWASE, B. HALARD, M. MOO-YOUNG**, Theoretical prediction of volumetric mass transfer coefficients in bubble columns for Newtonian and non-Newtonian fluids, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 42, pp1609-1617, 1987.

**Y. KAWASE, S. UMEMO, T. KIMAGAI**, The prediction of gas hold-up in bubble column reactors: Newtonian and non-newtonian fluids, *The Chem. Eng. J.*, Vol. 50, pp1-7, 1992.

**G. KEITEL, U. ONKEN**, Inhibition of bubble coalescence by solutes in air/water dispersions, Vol. 37, n°11, pp 1635-1638, 1982.

**B.G. KELKAR**, Flow regime characteristics in cocurrent bubble column reactors, *Chem. Eng. Commun*, Vol. 41, pp237-251, 1985.

**A. KEMOUN, B.C. ONG, P. GUPTA, M.H. AL-DAHMAN, M.P. DUDUKOVIC**, Gas holdup in bubble columns at elevated pressure via computed tomography, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 27, pp929-946, 2001.

**S.L. KIAMBI, A.M. DUQUENNE, A. BASCOUL, H. DELMAS**, Measurement of local interfacial area : application of bi-optical fibre technique, *Chemical Engineering Science*, vol. 56, pp6447-6453, 2001.

**S.L. KIAMBI**, Analyse métrologique de la sonde optique double: interaction sonde-bulle et application en gazosiphon, Thèse INPT, 2003.

**S.L. KIAMBI, A.M. DUQUENNE, J.B. DUPONT, C. COLIN, F. RISSO, H. DELMAS**, Analysis of bubble-probe interactions by imaging: application to local interfacial measurements, *Can. J. of Chem. Eng.*, Vol. 81, pp764-770, 2003.

**K. KIARED, F. LARACHI, C. GUY, J. CHAOUKI**, Trajectory length and residence-time distributions of the solids in three-phase fluidized beds, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 52, pp3931-3939, 1997.

**S. KIM, X.Y. FU, X. WANG, M. ISHII**, Development of the miniaturized four-sensor conductivity probe and the signal processing scheme, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, Vol. 43, pp4101-4118, 2000.

**R. KRISHNA, P.M. WILKINSON, L.L. VAN DIERENDONCK**, A model for gas holdup in bubble columns incorporating the influence of gas density on flow regime transitions, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 46, pp2491-2496, 1991.

- R. KRISHNA, J.W.A. DE SWART, D.E. HENNEPHOF, J. ELLENBERG, H.C.J. HOEFLOOT**, Influence of increased gas density on hydrodynamics of bubble column reactors, *AIChE*, vol. 40, n°1, pp112-118, 1994.
- R. KRISHNA, J.ELLENBERG, C. MARETTO**, Flow regime transition in bubble columns, *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, Vol. 26, n°4, pp467-475, 1999.
- R. KRISHNA, M.I. VISEANU, A.J. DREHER**, Gas hold-up in bubble columns: influence of alcohol addition versus operation at elevated pressures, *Chem. Eng. and Processing*, vol.39, pp371-378, 2000a.
- R. KRISHNA, A.J. DREHER, M.I. URSEANU**, Influence of alcohol addition on gas hold-up in bubble columns: Development of a scale up model, *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, Vol. 27, n°4, pp465-472, 2000b.
- R. KRISHNA, M.I. URSEANU, J.M. VAN BATEN, J. ELLENBERGER**, Liquid phase dispersion in bubble columns operating in the churn-turbulent flow regime, *Chem. Eng. J.*, Vol. 78, pp43-51, 2000c.
- R. KRISHNA, J.M. VAN BATEN, M.I. URSEANU, J. ELLENBERGER**, A scale up strategy for bubble column slurry reactors, *Catalysis today*, n°66, pp199-207, 2001.
- S. KRICHNAVARUK, P. PAVASANT**, Analysis of gas-liquid mass transfer in an airlift contactor with perforated plates, *Chem. Eng. J.*, vol. 89, pp203-211, 2002.
- A. A. KULKARNI, J. B. JOSHI, V.R. KUMAR, B. D. KULKARNI**, Identification of the principal time scales in bubble column by wavelet analysis, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 56, pp5739-5747, 2001.
- G. KUNCOVA, J. ZAHRADNIK**, Gas holdup and bubble frequency in a bubble column reactor containing viscous saccharose solutions, *Chem. Eng. and Process.*, Vol.34, pp25-34, 1995.
- P.C. LAGE, R.O. ESPOSITO**, Experimental determination of bubble size distributions in bubble columns: prediction of mean bubble diameter and gas hold-up, *Powder technology*, Vol. 101, pp142-150, 1999.
- L. LAPIDUS, J.C.ELGIN**, Mechanics of vertical-moving fluidized systems, *AIChE J.*, Vol. 43, pp63-68, 1957.
- A. LAPIN, C. MAUL, K. JUNGHANS, A. LUBBERT**, Industrial-scale bubble column reactors: gas-liquid flow and chemical reaction, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 56, pp239-246, 2001.
- A. LAPIN, T. PASSCHEN, K. JUNGHANS, A. LUBBERT**, Bubble column fluid dynamics, flow structures in slender columns with large-diameter ring-sparger, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 57, pp1419-1424, 2002.
- A. LARUE DE TOURNEMINE**, Etude expérimentale de l'effet du taux de vide en écoulements diphasiques à bulles, *INPT*, 2001.



**J.M. LE CORRE, M. ISHII**, Numerical evaluation and correction method for multi-sensor probe measurement techniques in two-phase bubbly flow, *Nuclear Engineering and Design*, vol. 216, 2002, pp221-238.

**D. J. LEE, X. LUO, L.-S. FAN**, Gas disengagement technique in a slurry bubble column operated in the coalesced bubble regime, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp2227-2236, 1999.

**H. J. W. M. LEGIUS, H. E. A. VAN DEN AKKER and T. NARUMO**, Measurements on wave propagation and bubble and slug velocities in cocurrent upward two-phase flow, *Exp. Thermal and Fluid Sci.*, Vol. 15, pp267-278, 1997.

**D. LELINSKI, J. ALLEN, L. REDDEN, A. WEBER**, Analysis of the residence time distribution in large flotation machines, *Minerals Engineering*, Vol. 15, pp499-505, 2002.

**H.M. LETZEL, J.C. SCHOUTEN, R. KRISHNA, C.M. VAN DEN BLEEK**, Characterization of regimes and regime transitions in bubble columns by chaos analysis of pressure signals, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.52, n°24, pp4447-4459, 1997a.

**H.M. LETZEL, J.C. SCHOUTEN, C.M. VAN DEN BLEEK, R. KRISHNA**, Influence of elevated pressure on the stability of bubbly flows, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 52, n°21/22, pp3733-3739, 1997b.

**M.H. LETZEL, J.C. SCHOUTEN, C.M. VAN DEN BLEEK, R. KRISHNA**, Effect of Gas Density on large-bubble Hold-up in Bubble Column Reactors, *AIChE J.*, Vol. 44, n°10, pp 2333-2336, 1998.

**M.H. LETZEL, J.C. SCHOUTEN, R. KRISHNA, C.M. VAN DEN BLEEK**, Gas hold-up and mass transfer in bubble column reactors operated at elevated pressure, *Chem. Eng. Sc.* N°54, pp2237-2246, 1999.

**D.R. LIDE**, *Handbook of Chemistry and Physics*, 78<sup>th</sup> edition 1997-1998, CRC press, 1997.

**T.J. LIN, J. REESE, T. HONG, L.S. FAN**, Quantitative analysis and computation of two-dimensional bubble columns, *AIChE J.*, Vol. 42, pp301-318, 1996.

**T.J. LIN, K. TSUCHIYA, L.S. FAN**, Bubble flow characteristics in bubble columns at elevated pressure and temperature, *AIChE*, vol. 44, n°3, 1998.

**T.J. LIN, L.S. FAN**, Heat transfer and bubble characteristics from a nozzle in high-pressure bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp4853-4859, 1999.

**T.J. LIN, K. TSUCHIYA, L.-S. FAN**, On the measurements of regime Transition in high-pressure bubble columns, *The Can. J. of Chem. Eng.*, Vol. 77, pp370-374, 1999.

**T.-J. LIN, R.-C. JUANG, C.-C. CHEN**, Characterizations of flow regime transitions in a high-pressure bubble column by chaotic time series analysis of pressure fluctuation signals, *Chem. Eng. Sc.*, Vol. 56, pp6241-6247, 2001.

**V. LINEK, P. BENES, V. VACEK**, Dynamic pressure Method for  $k_{La}$  Measurement in LargeScale Bioreactors, *Biotech., Bioeng.*, Vol. 33, pp 1406-1412, 1989.

- V. LINEK, P. BENES, J. SINKULE, T. MOUCHA**, Non-ideal step method for  $k_{La}$  measurement, Chem. Eng. Sci., Vol. 48, n°9, pp1593-1599, 1993.
- W. LIU, N.N. CLARK**, Relationships between distributions of chord lengths and distributions of bubble sizes including their statistical parameters, Int. J. of Multiphase Flow, Vol. 21, n°6, pp1073-1089, 1995
- C.-S. LO, S.-J. HWANG**, Local hydrodynamic properties of gas phase in an internal-loop airlift reactor, Chemical Engineering Journal, Vol. 91, 2003, pp3-22.
- T. LOIMER, G. MACHU, U. SCHAFLINGER**, Inviscid bubble formation on porous plates and sieves plates, Chem. Eng. Sci., Vol. 59, pp809-818, 2004.
- K. LOUBIERE**, Croissance et Détachement de bulles générées par des orifices rigides et flexibles dans des phases liquides Newtoniennes : Etude expérimentale et Modélisation, Thèse, INSA, Toulouse, France, 2002.
- H. LUO**, Coalescence, Breakup and liquid circulation in bubble column reactors, Thèse, Ph D, Trondheim, 1993.
- X. LUO, D.J. LEE, R. LAU, G. YANG, L.S. FAN**, Maximum stable bubble size and gas holdup in high-pressure slurry bubble columns, AIChE J., Vol. 45, pp665-680, 1999.
- F. MAGAUD, M. SOUHAR, G. WILD, N. BOISSON**, Experimental study of bubble column hydrodynamics, Chem. Eng. Sci., n°56, pp4597-4607, 2001.
- K.H. MANGARTZ, TH. PILHOFER**, Interpretation of mass transfer measurements in bubble columns considering dispersion of both phases, Chem. Eng. Sci., Vol. 36, pp1069-1077, 1981.
- D. MAO, J.R. EDWARDS, A.V. KUZNETSOV, R. SRIVASTAVA**, Particle flow, mixing, and chemical reaction in circulating fluidized bed absorbers, Chem. Eng. Sci., Vol. 57, pp3107-3117, 2002.
- C. MARETTO, R. KRISHNA**, Design and optimisation of a multi-stage bubble columns slurry reactor for Fischer-Tropsch synthesis, Catalysis Today, Vol. 66, pp241-248, 2001.
- A.D. MARTIN**, Interpretation of residence time distribution data, Chem. Eng. Sci., Vol. 55, pp5907-5917, 2000.
- A. MAWLANA**, Etude en régime permanent et transitoire du transfert liquide-gaz. Cas d'un réacteur gaz-liquide-solide, Thèse, INPT, 1987.
- P.A. MELO, J.C. PINTO, E.C. BISCAIA Jr**, Characterization of the residence time distribution in loop reactors, Chem. Eng. Sci., Vol. 56, pp2703-2713, 2001.
- A. MERSMANN**, Auslegung und massstabsvergrößerung von Blasen- und Tropfensäulen, Chem. Ing. Tech., Vol. 49, pp679-691, 1977.

- M. MILLIES, D. MEWES**, Calculation of circulation flows in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 50, pp2093-2106, 1995.
- M. MILLIES, D. MEWES**, Interfacial area density in bubble flow, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 34, pp307-319, 1999.
- S. MOUJAES, R.S. DOUGALL**, Experimental investigation of co-current two-phase flow in a vertical rectangular channel, *The Canadian J. of Chem. Eng.*, Vol. 65, pp705-715, 1987.
- S. MOUJAES**, Testing of a spherical dual-tipped optical fiber probe for local measurements of void fraction and gas velocity in two-phase flows, *The Canadian J. of Chem. Eng.*, Vol. 68, pp504-510, 1990.
- S. MOUSTIRI, G. HEBRARD, S.S. THAKRE, M. ROUSTAN**, A unified correlation for predicting liquid axial dispersion coefficient in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 56, pp1041-1047, 2001.
- S. MOUSTIRI, G. HEBRARD, M. ROUSTAN**, Effect of a new high porosity packing on hydrodynamics of bubble columns, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 41, pp419-426, 2002.
- R.F. MUDDE, H.E.A. VAN DEN AKKER**, Dynamic behaviour of the flow field of a bubble column at low to moderate gas fractions, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp4921-4927, 1999.
- F.L. MULLER, J.F. DAVIDSON**, On the effects of surfactants on mass transfer to viscous liquids in bubble columns, *Trans IChE*, vol. 73, Part 1, pp 291-296, 1995.
- T. MURUGESAN, V. SIVAKUMAR**, Pressure drop and flow regimes in cocurrent gas-liquid upflow packed beds, *Chem. Eng. J.*, Vol. 88, pp233-243, 2002.
- P. NADEAU, D. BERK, R.J. MUNZ**, Measurement of residence time distribution by laser absorption spectroscopy, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 51, n°11, pp2607-2612, 1996.
- S. NEDELTCHEV, S.B. KUMAR, M.P. DUDUKOVIC**, Flow regime identification in a bubble columns based on both Kolmogorov entropy and quality of mixedness derived from CARPT data, *The Can. J. of Chem. Eng.* Vol.81, pp367-374, 2003.
- K.D.P. NIGAM, I. ILIUTA, F. LARACHI**, Liquid back-mixing and mass transfer effects in trickled bed reactors filled with porous catalyst particles, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 41, pp365-371, 2002.
- H. NIYAMA, Y. UEMURA, E. ECHIGOYA**, Estimation of bubble-to-liquid mass transfer rate coefficient by transient response technique and by steady state reaction studies, *J. of Chem. Eng. of Japan*, Vol. 11, pp465-468, 1978.
- Y. OHKI, H. INOUE**, Longitudinal mixing of the liquid phase in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 25, pp1-16, 1970.

**T. OKAWA, T. TANAKA, I. KATAOKA, M. MORI**, Temperature effect on single bubble rise characteristics in stagnant distilled water, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, Vol. 46, pp903-913, 2003.

**E. OLMOS, C. GENTRIC, N. MIDOUX**, Identification of flow regimes in a flat gas-liquid bubble column via wavelet transform, *Can. J. of Chem. Eng.*, Vol. 81, pp382-388, 2003.

**A. ORELL**, On the liquid flow reversal in Bubble columns, *Chem. Eng. Comm.*, vol. 115, pp149-159, 1992.

**S.S. OZTURK, A. SCHUMPE, W.-D. DECKWER**, Organic liquids in a bubble column : Holdups and mass transfer coefficients, *AIChE J.*, Vol. 33, n°9, pp1473-1480, 1987.

**U. PARASU VEERA, K.L. KATARIA, J.B. JOSHI**, Gas hold-up profiles in foaming liquids in bubble columns, *Chem. Eng. J.*, Vol. 84, pp247-256, 2001.

**V.K. PAREEK, Z. YAP, M.P. BRUNGS, A.A. ADESINA**, Particle residence time distribution (RTD) in three-phase annular bubble column reactor, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 56, pp6063-6071, 2001.

**W.R. PATERSON, E.L. BERRESFORD, D.L. MOPPETT, D.M.SCOTT, V.K. SIMMONS, R.B.THORPE**, Gas flow maldistribution in moving beds of monosized particles, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 55, pp3515-3527, 2000.

**S. PERRIN, S. CHAUDOURNE, C. JALLUT, J. LIETO**, Transient state techniques for mass transfer characterization of a gas-liquid packed column, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 57, pp3336-3345, 2002.

**A. PINHEIRO TORRES, F.A.R. OLIVEIRA**, Residence time distribution studies in continuous thermal processing of liquid foods: a review, *J. of Food Eng.*, Vol. 36, pp1-30, 1998.

**R. POHORECKI, W. MONIUK, A. ZDROJKOROSKI**, Hydrodynamics of a bubble column under elevated pressure, *Chem. Eng. Sci.*, n°54, pp5187-5193, 1999.

**R.POHORECKI, W. MONIUK A. ZROJKOWSKI, P. BIELSKI**, Hydrodynamics of a pilot plant bubble column under elevated temperature and pressure, *Chem. Eng. Sci.*, vol. 56, pp1167-1174, 2001.

**M. POLLI, M. DI STANISLAO, R. BAGATIN, E. ABU BAKR, M. MASI**, Bubble size distribution in the sparger region of bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 57, pp197-205, 2002.

**M.J. PRINCE, H.W. BLANCH**, Bubble coalescence and Break-up in air-sparged bubble columns, *AIChE J.*, Vol. 36, n°10, pp1485-1499, 1990.

**F.P. RAMIREZ, M.E. CORTES**, The determination of residence times in a pilot plant, *Nuclear Inst. and Methods in Physics Res. B.*, Vol. 213, pp144-148, 2004.

**I.G. REILLY, D.S. SCOTT, T.J.W. DE BRUIJN, D. MACINTYRE**, The role of gas momentum in determining gas holdup and hydrodynamic flow regimes in bubble column, *Can. J. of Chem. Eng.*, Vol. 72, pp3-12, 1994.

**T. REITH, W.J. BEEK**, Proc. 4<sup>th</sup> Eur. Symp. On Chemical Reaction Engineering, Brussels, September 9-11, 1968, Pergamon, Oxford, 1971, pp191-203.

**T. RENGANATHAN, K. KRISHNAIAH**, Liquid phase mixing in 2-phase liquid-solid inverse fluidized bed, *Chem. Eng. J.*, Vol.98, pp213-218, 2004.

**S.T. REVANKAR, M. ISHII**, Local interfacial measurement in bubbly flow, *Int. J. of Heat and Mass transfer*, Vol.35, n°4, pp913-925, 1992

**H.P. RIQUARTS**, Model representation of homogeneous and heterogeneous two-phase flow in fluidized beds and bubble columns, *Germ. Chem. Eng.*, Vol. 2, pp268-274, 1979.

**M.C. RUZICKA, J. ZAHRADNIK, J. DRAHOS, N.H. THOMAS**, Homogeneous-heterogeneous regime transition in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 56, pp4609-4626, 2001a.

**M.C. RUZICKA, J. DRAHOS, M. FIAVOLA, N.H. THOMAS**, Effect of bubble column dimensions on flow regime transition, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 56, pp6117-6124, 2001b.

**M.C. RUZICKA, J. DRAHOS, P.C. MENA, J.A TEIXERA**, Effect of viscosity on homogeneous-heterogeneous flow regime transition in bubble columns, *Chem. Eng. J.*, Vol. 96, pp15-22, 2003.

**K. SANAULLAH, S.H. ZAIDI, J.H. HILLS**, A study of bubbly flow using resistivity probes in a novel configuration, *Chem. Eng. J.*, Vol. 83, pp45-53, 2001.

**A. SARRAFI, M. JAMIALAHMADI, H. MULLER-STEINHAGEN, J.M. SMITH**, Gas holdup in homogeneous and heterogeneous gas-liquid bubble column reactors, *Can. J. of Chem. Eng.*, Vol. 77, pp11-21, 1999.

**H. SASAKI, H. MATSUKAWA, S. USUI, E. MATIJEVIC**, A new method for measuring the size distribution of gas bubbles in aqueous media, *J. of Colloid and Interface Sci.*, Vol. 113, pp500-503, 1986.

**R. SCHAFFER, C. MERTEN, G. EIGENBERGER**, Bubble size distributions in a bubble column reactor under industrial conditions, *Exp. Thermal and Fluid Sci.*, Vol. 26, pp595-604, 2002.

**T. SCHULTZKE, S. SCHLUTER, P.M. WEINSPACH**, Experimental studies and simulation of the dynamic behaviour of bubble column reactors, *Computers Chem. Eng.*, Vol. 22, pp5667-5670, 1998.

**A. SCHUMPE, A.K. SAXENA, L.K. FANG**, Gas/liquid mass transfer in a slurry bubble column, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 42, pp1787-1796, 1987.

**T. SEKIZAWA, H. KUBOTA**, Liquid mixing in multistage bubble, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, Vol. 7, pp442-446, 1974.

**T. SEKIZAWA, H. KUBOTA**, Overall dispersion coefficient in la multistage bubble column, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, Vol. 8, pp507-508, 1975.

**Y.T. SHAH, B.G. KELKAR, S.P. GODBOLE**, Design Parameters Estimations for Bubble Column reactors, *AIChE J.*, Vol. 28, n°3, pp353-378, 1982.

**A.T. SHAWAQFEH**, Gas holdup and liquid axial dispersion under slug flow conditions in gas-liquid bubble column, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 42, pp767-775, 2003.

**K. SHIMIZU, S. TAKADA, K. MINEKAWA, Y. KAWASE**, Phenomenological model for bubble column reactors: prediction of gas hold-ups and volumetric mass transfer coefficients, *Chem. Eng. Journal*, n°78, pp21-28, 2000.

**A.I. SHNIP, R.V. KOLHATKAR, D. SWARMY, J.B. JOSHI**, Criteria for the transition from the homogeneous to the heterogeneous regime in two-dimensional bubble column reactors, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 18, pp705-726, 1992.

**J. B. SNAPE, J. ZAHRADNIK, M. FIAVOLA, N. H. THOMAS**, Liquid-phase properties and sparger design effects in an external-loop airlift reactor, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 50, pp3175-3186, 1995.

**J.L SOTELO, F.J BENITEZ, J. BELTRAN-HEREDIA, C. RODRIGUEZ**, Gas hold-up and mass transfer coefficients in bubble columns. 1. Porous glass-plate diffusers, *Int. Chem. Eng.*, vol. 34, n°1, pp82-90, 1994.

**K. SRIRAM, R. MANN**, Dynamic gas disengagement: A new technique for assessing the behaviour of bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 32, pp571-580, 1977.

**H. STEPHEN, T. STEPHEN**, Solubilities of inorganic and organic compounds binary systems, Vol.1, part 1 and 2, Pergamon press, 1963.

**X. SUN, T.R. SMITH, S. KIM, M. ISHII, J. UHLE**, Interfacial area of bubbly flow in a relatively large diameter pipe, *Exp. Thermal and Fluid Sci.*, Vol. 27, pp97-109, 2002.

**C. SUZANNE, K. ELLINGSEN, F. RISSO, V. ROIG**, Local measurements in turbulent bubbly flows, *Nuclear Eng. and Design*, Vol. 184, pp319-327, 1998.

**SYAIFUL**, Réacteurs polyphasiques à co-courant ascendant : influence de la viscosité sur les rétentions, dispersions axiales et transfert gaz-liquide, Thèse INPT, Toulouse, 1992.

**K. TERASAKA, H. TSUGE**, Bubble formation at a nozzle submerged in viscous liquids having yield stress, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.56, pp3237-3245, 2001.

**R.K. THAKUR, C. VIAL, G. DJELVEH**, Influence of operating conditions and impeller design on the continuous manufacturing of food foams, *J. of Food Eng.*, Vol. 60, pp9-20, 2003.

**N. T. THANG, M. R. DAVIS**, The structure of bubbly flow through venturis, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 5, pp17-37, 1979.

**B.N. THORAT, J.B. JOSHI**, Regime transition in bubble experimental and predictions, *Exp. Thermal and Fluid Sci.*, Vol. 28, pp423-430, 2004.

**J.N. TILTON, T.W.F. RUSSELL**, Designing gas-sparged vessels for mass transfer, *Chem. Eng. J.*, Vol. 29, pp61-68, 1982.

**A. TOMIYAMA, G.P. CELATA, S. HOSOKAWA, S. YOSHIDA**, Terminal velocity of single bubbles in surface tension force dominant regime, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 28, pp1497-1519, 2002.

**R. TURTON, N.N. CLARK**, Interpreting probe signals from fluidized beds, *Powder Technology*, Vol. 59, 1989, pp117-123.

**N.K. TUTU**, Pressure fluctuations and flow pattern recognition in vertical two phase gas-liquid flows, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 8, pp443-447, 1982.

**M. UTIGER**, Caractérisation de l'hydrodynamique locale d'un réacteur gazosiphon à boucle externe à l'aide de la technique d'anémométrie à film chaud, DRU, 1997.

**F.H.H. VALENTIN**, Absorption in gas-liquid dispersions: some aspects of bubble technology, Head, Chemical Engineering Division Warren Spring Laboratory, Ministry of Technology, E. & F. N. SPONLTD, London, pp. 5-26, 1967.

**C.O. VANDU, R. KRISHNA**, Influence of scale on the volumetric mass transfer coefficients in bubble columns, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 43, pp575-579, 2004.

**B.W. VAN HASSELT, H.P.A. CALIS, S.T. SIE, C.M. VAN DEN BLEEK**, Gas- and liquid-phase residence time distribution in the three-levels-of-porosity reactor, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 54, pp5047-5053, 1999.

**C.E.J. VAN LARE, H.W. PIEPERS, J.N. SCHOONDERBEEK, D. THOENES**, Investigation on bubble characteristics in a gas fluidized bed, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 32, pp829-841, 1997.

**D.J. VERMEER, R. KRISHNA**, Hydrodynamics and mass transfer in bubble columns operating in the churn-turbulent regime, *Ind. Eng. Chem. Process. Des. Dev.*, Vol. 20, pp475-482, 1981.

**C. VIAL, E. CAMARASA, S. PONCIN, G. WILD, N. MIDOUX, J. BOUILLARD**, Study of hydrodynamic behaviour in bubble columns and external loop airlift reactors through analysis of pressure fluctuations, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 55, pp2957-2973, 2000.

**C. VIAL, S. PONCIN, G. WILD, N. MIDOUX**, A simple method for regime identification and flow characterisation in bubble columns and airlift reactors, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 40, pp135-151, 2001.

**G.B. WALLIS**, One-dimensional two-phase flow, New York, Mc Graw Hill, 1969.

**J. WERTHER, O. MOLERUS**, The local structure of gas fluidized beds. I. A statistically based measuring system, *Int. J. of Multiphase Flow*, Vol. 1, pp103-122.

**J. WERTHER**, Bubbles in gas fluidized beds. Part I, *Trans. Instn Chem. Eng.*, Vol.52, pp149-159, 1974.

**E. WILHELM, R. BATTINO**, Thermodynamic functions of the solubilities of gases in liquids at 25°C, *Chemical Reviews*, Vol. 73, 1-9, 1973.

**P.M. WILKINSON, L.L. VAN DIERENDONCK**, Pressure and gas density effects on bubble break-up and gas hold-up in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 45, n°8, pp 2309-2315, 1990.

**P.M. WILKINSON**, Physical aspects and scale-up of high pressure bubble columns, PhD thesis, Groningen, The Netherlands, 1991.

**P.M. WILKINSON, H. HARINGA, L.L VAN DIERENDONCK**, Mass transfer and bubble size in a bubble column under pressure, *Chem Eng. Sci.*, vol. 49, n°9, pp1417-1427, 1994.

**R.H.S. WINTERTON**, A simple method of predicting bubble size in bubble columns, *Chem. Eng. and Process.*, Vol. 33, pp1-5, 1994.

**Q. WU, M. ISHII**, Sensitivity study on double-sensor conductivity probe for the measurement of interfacial area concentration in bubbly flow, *Int. J. Multiphase Flow*, Vol. 25, 1999, pp155-173.

**Q. WU, K. WELTER, D. Mc CREAMY, J.N REYES**, Theoretical studies on the design criteria of double sensor for the measurement of bubble velocity, *Flow Measurement and Instrumentation*, 12, 2001, pp43-51.

**S. XIE, R.B.H. TAN**, Bubble formation at multiple orifices – bubbling synchronicity and frequency, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 58, pp4639-4647, 2003.

**W. YANG, J. WANG, T. WANG, Y. JIN**, Experimental study on gas-liquid interfacial area and mass transfer coefficient in three-phase circulating fluidized beds, *Chem. Eng. J.*, Vol. 84, pp485-490, 2001.

**G.Q. YANG, L.S. FAN**, Axial liquid mixing in high-pressure bubble columns, *AIChE J.*, Vol. 49, pp1995-2008, 2003.

**H.C. YANG, D.K. KIM, M.H. KIM**, Void fraction measurement using impedance method, *Flow Measurement and Instrumentation*, Vol. 14, pp151-160, 2003.

**B.P. YAO, C. ZHENG, H.E. GASCHE, H. HOFMAN**, Bubble behaviour and flow structure of bubble columns, *Chem. Eng. Process*, Vol. 29, pp65-75, 1991.

**F. YOSHIDA, K. AKITA**, Performance of gas and bubble columns: Volumetric liquid-phase mass Transfer coefficient and Gas hold-up, *AIChE J.*, vol. 11, n°1, pp9-13, 1965.



**J. ZAHRADNIK, M. FIALOVA, F. KASTANEK, K.D. GREEN, N.H. THOMAS**, The effect of electrolytes on bubble coalescence and gas holdup in bubble column reactors, *Trans IChemE*, Vol. 73, Part A, pp341-346, 1995.

**J. ZAHRADNIK, M. FIAVOLA**, The effect of bubbling regime on gas and liquid phase mixing in bubble columns reactors, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 51, pp2491-2500, 1996.

**J. ZAHRADNIK, M. FIAVOLA, M. RUZICKA, J. DRAHOS, F. KASTANEK, N.H. THOMAS**, Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 52, pp3811-3826, 1997.

**M. ZHAO, K. NIRANJAN, J.F. DAVIDSON**, Mass transfer to viscous liquids in bubble columns and air-lift reactors: influence of baffles, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 49, pp2359-2369, 1994.

**C. ZHENG, B. YAO, Y. FENG**, Flow Regime Identification Gas Hold-up of Three-phase Fluidized Systems, *Chem. Eng. Sc.*, Vol. 43, n°8, pp2195-2200, 1988.

**N. ZUBER**, On the dispersed two-phase flow in the laminar flow regime, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 19, pp8897-917, 1964.

**N. ZUBER, J.D. FINDLAY**, Average volumetric concentration in two phase flow systems, *J. of Heat and Mass Transfer*, Vol. 87, pp453-468, 1965.





## ANNEXES

<b>ANNEXE I</b>	<b>3</b>
<hr/>	
ANNEXE I.A : Prévission de la transition entre les régimes de bullage	3
ANNEXE I.B : Corrélations classiques de la littérature	5
ANNEXE I.C : Régimes d'éjection	17
<b>ANNEXE II</b>	<b>19</b>
<hr/>	
ANNEXE II.A : Fiches produits des liquides	19
ANNEXE II.B : Fiches produits des gaz	27
<b>ANNEXE III</b>	<b>29</b>
<hr/>	
ANNEXE III.A : Détermination des temps de séjour (DTS)	29
ANNEXE III.B : Traitement des images	49
ANNEXE III.C : Détermination graphique des régimes hydrodynamiques	59
<b>ANNEXE IV</b>	
<hr/>	
ANNEXE IV.A : Distribution de tailles de bulles : essais en aquarium	61
ANNEXE IV.B : Régimes de bullage	89



## ANNEXE I.A : PREVISION DE LA TRANSITION ENTRE LES REGIMES DE BULLAGE

Comme il est important de savoir dans quel régime un appareil opère, il est intéressant de pouvoir prédire la zone de transition. Diverses tentatives ont été faites en ce sens ; elles passent soit par des modèles prédictifs des valeurs de transition ( $\varepsilon_{G,trans}$ ,  $u_{G,trans}$ ), soit par la modélisation des régimes homogène et hétérogène.

Parmi les approches utilisées, citons notamment les approches par bilans de forces ou d'énergie [Gharat et Joshi (1992), Chen et al. (1997), Ruzicka et al. (2001a et b)], par analyse de stabilité [Biesheuvel et Gorissen (1990), Shnip et al. (1992), Hoefsloot et Krishna (1993), Thorat et Joshi (2004)], et, la plus répandue, par l'étude du mouvement relatif des phases et du bilan matière [Lapidus et Elgin (1957), Wallis (1969), Züber (1964), Züber et Findlay (1965), Riquarts (1979), Joshi et Lali (1984), Sarrafi et al. (1999), Jamialahmadi et al. (2000)]. Dans les années 1990, l'équipe de Krishna a également envisagé une approche basée sur la distribution bimodale des bulles [Krishna et al. (1991), Hoefsloot et Krishna (1993), Krishna et al. (1999)]. Plus rarement, des approches totalement empiriques [Kelkar (1985), Krishna et al. (1991), Reilly et al. (1994)] ou mathématiques [Ranade et Joshi (1987)] sont rencontrées pour estimer les valeurs de transition.

Il faut néanmoins garder à l'esprit que l'élaboration de ces modèles demeure délicate [Krishna et al. (1999)] et qu'aucun d'entre eux n'est réellement satisfaisant : ils sont limités aux conditions particulières pour lesquelles ils ont été développés.

Le tableau ci-dessous (Tableau 1) regroupe les modèles permettant une prévision simple de la transition. La plupart d'entre eux ne prend en compte que l'effet de la vitesse superficielle de gaz, ce qui est sans conteste insuffisant. Ainsi, seuls Reilly et al. (1994) et Wilkinson et al. (1992) considèrent l'effet de la pression et de la physico-chimie ; l'effet de la nature du liquide, bien que très influent, demeure peu étudié et l'effet du distributeur, pourtant essentiel sur la transition, n'apparaît dans aucune de ces approches.

### ♣ *Approches de Reilly et al. (1994) et de Krishna et al. (1991) : prise en compte de la physico-chimie et de la pression*

Ces deux approches reposent sur l'hypothèse d'une double population de bulles (cf. chapitre I, §A.I.2.c).

\_ Reilly et al. (1994) :

$$\varepsilon_{G,trans} = 0,59 * B^{1,5} \sqrt{\frac{\rho_G^{0,96}}{\rho_L} \sigma^{0,12}}$$

où :  $B = 3,85$

$$u_{G,trans} = v_{B,petites} \varepsilon_{G,trans} (1 - \varepsilon_{G,trans})$$

\_ Krishna et al. (1991) (prise en compte simultanée des propriétés physiques de la phase liquide (liquide coalescent pur) et de la pression) :

$$\varepsilon_{G,trans} = 0,5 \exp(-193 \rho_G^{-0,61} \mu_L^{0,5} \sigma^{0,11})$$

équation établie pour :  $\sigma=0,0004-0,055\text{Pa.s}$   
 $\rho_L=683-2960 \text{ kg/m}^3$   
 $\rho_G=0,09-38\text{kg/m}^3$

$$u_{G,trans} = \varepsilon_{G,trans} v_{B,petites}$$

Ces deux corrélations ont été comparées par Krishna et al. (1999) : la corrélation de Reilly et al. (1994) représente mieux les résultats obtenus expérimentalement en milieu aqueux et en milieu non aqueux que celle de Krishna et al. (1991), qui tend à sous-estimer les valeurs de transition.

Auteurs	Prédiction de la transition
Lapidus et Elgin (1957), Zuber (1964)	Maximum du flux de dérive en fonction du taux de vide (cf. chapitre I §A.I.2.a)
Bach et Pilhofer (1978)	$\frac{u_{G,trans}}{v_{B,\infty}} = 0,25$ (où $v_{B,\infty}$ est la vitesse terminale d'ascension des bulles)
Mersmann (1977)	$\frac{u_{G,trans}}{v_{B,\infty}} = 0,2$
Kelkar (1985)	<i>En liquide coalescent (liquide pur, solution visqueuse <math>\mu_L &gt; 0,02\text{Pa.s}</math>) :</i> $u_{G,trans} = 0,188v_{B,\infty} + 0,333u_L$ $d_B = 0,006\text{m}$ et $v_{B,\infty}$ calculé avec l'expression de Clift et al. (1978) (non valables pour des solutions très visqueuses) <i>En liquide non coalescent :</i> $u_{G,trans} = 0,228v_{B,\infty} + 0,538u_L$ où $v_{B,\infty}$ dépend du distributeur
Zheng et al. (1988)	Corrélations adimensionnelles pour la transition en diphasique : $G_1 = 130Fr^{-0,0136} Ar^{-0,395} Bo^{0,621} \left(1 + \frac{u_L}{u_G}\right)^{-0,002}$ $G_2 = 1,16Fr^{-0,0266} Ar^{-0,0171} Bo^{0,004} \left(1 + \frac{u_L}{u_G}\right)^{-0,008}$ <ul style="list-style-type: none"> <li><math>G_1 &gt; 1</math> : régime homogène</li> <li><math>G_1 = 1</math> : régime homogène/ régime de transition</li> <li><math>G_1 &lt; 1</math> et <math>G_2 &gt; 1</math> : régime de transition</li> <li><math>G_2 = 1</math> : régime de transition/ régime turbulent</li> <li><math>G_2 &lt; 1</math> : régime turbulent</li> </ul>
Reilly et al. (1994) Wilkinson et al. (1992)	Corrélations empiriques prévoyant $u_{G,trans}$ et $\varepsilon_{G,trans}$ (avec prise en compte de l'effet de $\rho_G$ et de la physico-chimie).
Sarrafi et al. (1999) Jamialahmadi et al. (2000)	Minimum de $(u_S - j_{GL})/u_S = f(u_G)$ soit $u_{G,trans} = 0,204v_{B,\infty}$ et $\varepsilon_{G,trans} = 0,2$ pour $d_0 < 1\text{mm}$ et $u_{G,trans} = 0,056v_{B,\infty}$ et $\varepsilon_{G,trans} = 0,12$ pour $d_0 > 1\text{mm}$

Tableau 1 : Modèles simples pour la prédiction de la transition

## ANNEXE I.B : CORRELATIONS CLASSIQUES DE LA LITTERATURE

Cette annexe répertorie les corrélations classiques établies pour calculer le taux de vide, le transfert de matières, les dispersions liquide et gaz et les diamètres de bulles. Lorsque rien n'est précisé, les unités utilisées dans ces corrélations sont les unités S.I.

### I. TAUX DE VIDE

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
Gaz : air Liquide : eau, solutions aqueuses (Na <sub>2</sub> SO <sub>3</sub> , Glycérol, ZnCl <sub>2</sub> ), kérosène, huiles légères $\rho_L=780-1700$ $\mu_L=0,0009-0,0152$ $\sigma=0,025-0,076$	Diffuseur multi-orifices $u_G=0,004-0,45$ $D_C > 0,1$	$\varepsilon_G = \frac{1}{[2 + (\frac{0,35}{u_G}) * (\frac{\rho_L \sigma}{72})^{1/3}]}$	Hughmark (1967)
G : air L : eau	$u_G=0-0,3$ $u_L=0-0,015$ $D_C=0,066-0,214$ $H=2,01-4,05$	$\varepsilon_G = \frac{2,51u_G}{0,78 + \beta u_G^{0,8} (1 - e^\gamma)}$ $\beta = (4,5 - 3,5) - 2,548D_C^{1,8}$ $\gamma = 717u_G^{1,8} / \beta$	Kato et Nishiwaki (1972)
G : air, He, CO <sub>2</sub> L : eau, solutions aqueuses, méthanol $\rho_L=800-1600$ $\mu_L=0,00058-0,021$ $\sigma=0,022-0,0742$ $k=0,001-0,021Pa.s$ $n=1$	Diffuseur à l'orifice $u_G=0,003-0,4$ $u_L=0-0,044$ $D_C=0,152-0,6m$ $H=1,26-3,5m$	$\frac{\varepsilon_G}{(1 - \varepsilon_G)^4} = C * (\frac{gD_C^2 \rho_L}{\mu_L})^{1/8} (\frac{gD_C^3 \rho_L^2}{\mu_L^2})^{1/12} (\frac{u_G}{\sqrt{gD_C}})$ C=0,2 pour les liquides purs et non électrolytiques C=0,25 pour les électrolytes	Akita et Yoshida (1973)
G : air L : eau, solutions de méthanol	Diffuseur à 1 orifice $u_G=0,042-0,38$ $D_C=0,1-0,19m$ $H=0,6-1,35m$ $\rho_L=910-1200$ $\mu_L=0,0007-0,0138$ $\sigma=0,0375-0,0748$	$\varepsilon_G = 0,505u_G^{0,47} (\frac{0,072}{\sigma})^{2/3} (\frac{0,001}{\mu_L})^{0,05}$	Hikita et Kikukawa (1974)
G : air L : 15 liquides hydrocarbures $\rho_L=800-1600$ $\mu_L=0,00043-0,02$ $\sigma=0,0214-0,0728$	Diffuseur à plateau perforé et poreux $u_G=0,01-0,08$ $D_C=0,0756-0,61m$ $H=0,02-3,5m$	$\varepsilon_G = 0,89 (\frac{Z_C}{D_C})^{0,035(-15,7+\log K)} (\frac{d_B}{D_C})^{0,3}$ $* (\frac{u_G^2}{d_B g})^{0,0025(2,6+\log K)} K^{0,047} - 0,05$ avec $d_B=0,003m$ et $K=\rho_L \sigma^2 / (g \mu_L^4)$	Gestrich et Rähse (1975)



Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
G : air L : eau, solutions aqueuses, kérozène $\rho_L=790-1110$ $\mu_L=0,0009-0,0115$ $\sigma=0,0312-0,072$	Diffuseur multi-orifices $u_G=0,0014-0,14$ $D_C=0,05-0,1m$	$\varepsilon_G = 0,728U - 0,485U^2 + 0,0975U^3$ avec : $U = u_G[\rho_L^2 / (\sigma(\rho_L - \rho_G)g)]^{1/4}$	Kumar et al. (1976)
G : air L : éthanol, solutions aqueuses de glycérol, méthanol, eau Solide $\rho_L=790-1210$ $\mu_L=0,001-0,062$ $\sigma=0,0223-0,0728$	$u_G=0,05-4,0$ $D_C=0,05-0,1m$ $H=0,05-0,2$ $d_{solide}=0,011-0,02$	$\frac{\varepsilon_G}{[\varepsilon_G(1-\varepsilon_G)^2]^{0,44}} = 0,5 \left( \frac{D_C u_G^2 \rho_L}{\sigma} \right)^{0,11} \left( \frac{u_G}{\sqrt{gD_C}} \right)^{0,22}$	Kito et al. (1976)
	Régime hétérogène	$\varepsilon_G = \frac{u_G - C_0 u_L - \sqrt{2} \left( \frac{\sigma g \Delta \rho}{\rho_L^2} \right)^{1/4}}{C_0 (u_G - u_L)}$ $C_0 = 1,2 - 0,2 \sqrt{\frac{\rho_G}{\rho_L}}$ où :	Ishii (1977)
G : air L : octanol, tétrabromométhane, glycol, butanediol Régime hétérogène $k=0,002-0,1Pa.s$ $n=1$	$u_G=0-0,1$ $D_C>0,1$ $H>1,2$	$\frac{\varepsilon_G}{(1-\varepsilon_G)} = 0,0115 \left[ \frac{u_G^3 \rho_L^2}{\mu_L g (\rho_L - \rho_G)} \right]^{0,23}$	Bach et Pilhofer (1978)
Air/eau/solide	$u_G=0-0,173$ $u_L=0-0,12$ $D_C=0,076-0,152$ $H=0,22-0,45$	$\varepsilon_G = (1,612 \pm 0,023) u_G^{0,720 \pm 0,028} d_p^{0,168 \pm 0,061} D_C^{-0,125 \pm 0,08}$	Begovich et Watson (1978)
Semi théorique		$\frac{\varepsilon_G}{(1-\varepsilon_G)^4} = 0,14 u_G \left[ \frac{\rho_L^2}{\sigma(\rho_L - \rho_G)g} \right]^{1/4}$ $* \left[ \frac{\rho_L^2 \sigma^3}{\mu_L^4 (\rho_L - \rho_G)g} \right]^{1/24} \left( \frac{\rho_L}{\rho_G} \right)^{5/72} \left( \frac{\rho_L}{\rho_L - \rho_G} \right)^{1/3}$	Mersmann (1978)
G : air, H <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> +N <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> , C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> L : eau, solutions aqueuses, méthanol, butan-1-ol, aniline $\rho_L=790-1170$ $\mu_L=0,0009-0,0178$ $\sigma=0,0229-0,0796$ $\rho_G=0,84-1,84$ $k=0,0008-0,011Pa.s$ $n=1$	$u_G=0,042-0,38$ $D_C=0,1$ $H=0,65$	$\varepsilon_G = 0,672 f \left( \frac{u_G \mu_L}{\sigma} \right)^{0,578} \left( \frac{\mu_L^4 g}{\rho_L \sigma^3} \right)^{-0,131}$ $* \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^{0,062} \left( \frac{u_G}{u_L} \right)^{0,107}$ f=1,0 pour les solutions non électrolytiques f=10 <sup>0,04141</sup> pour I<1,0kg ion/m <sup>3</sup> f=1,1 pour I>1,0kg ion/m <sup>3</sup> I : force ionique de la solution	Hikita et al. (1980)
Théorique (approche stochastique)		$\frac{\varepsilon_G}{(1-\varepsilon_G^{1/3})} = \frac{u_G}{u_{B\infty}}$	Iordache et Nuntean (1981)

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
G : air L : solution de CMC $k=0,001-0,500Pa.s^n$ $n=1-0,75$	$D_C=0,102-0,140$ $H=2,4-2,7$ $u_G=0,003-0,20$ $u_L=0,006$	$\varepsilon_G = 0,725u_G^{0,627}$ pour $D_C=0,102m$ $\varepsilon_G = 0,718u_G^{0,674}$ pour $D_C=0,14m$	Schumpe et Deckwer (1982)
G : air L : solutions de glycérol, de CMC $k=0,001-0,246Pa.s^n$ $n=1-0,50$	$D_C=0,305$ $H < 2,4$ $u_G=0,04-0,28$	Pour les solutions de glycérol : $\varepsilon_G = 0,319u_G^{0,476} \mu_L^{-0,058}$ Pour les solutions de CMC : $\varepsilon_G = 0,225u_G^{0,532} \mu_{eff}^{-0,146}$ $\gamma_{eff} = 5000u_G$ (Nishikawa et al. (1977))	Godbole et al. (1982)
G : air L : solutions aqueuses d'alcools $\rho_L=991,2-997,3$ $\mu_L=0,00083-0,00085$ $\sigma=0,045-0,070$	$D_C=0,154-0,30$ $H=2,44-3,35$ $u_G=0,01-0,30$ $u_L=0-0,15$	$\varepsilon_G = \frac{0,96u_G^{0,58} C_N^{0,26}}{1 + 2,6u_L}$ $C_N$ : nombre d'atomes de carbone	Kelkar et al. (1983)
G : air L : solutions de CMC et CMC avec $0,9kmol/m^3$ $Na_2SO_4-Na_2SO_3$ $k=0,095-7,683Pa.s^n$ $n=0,74-0,44$	$D_C=0,305$ $H=2,5$ $u_G=0,03-0,24$ $u_L=0-0,006$	$\varepsilon_G = Cu_G^{0,60} \mu_{eff}^{-0,19}$ $C=0,207$ pour les solutions de CMC $C=0,255$ pour les solutions de CMC $Na_2SO_4-Na_2SO_3$ $\gamma_{eff} = 5000u_G$ (Nishikawa et al. (1977))	Godbole et al. (1984)
		$\frac{\varepsilon_G}{1 - \varepsilon_G} = 0,4u_G^{0,87} \rho_L^{0,1} \rho_G^{0,17} \sigma^{-0,06} \mu_L^{-0,21} g^{-0,27}$	Hammer et al. (1984)
G : H <sub>2</sub> /He/air L : eau, méthanol, éthanol, acétone, solutions alcooliques $\rho_G=0,084-120,8$ $\sigma=0,0226-0,0721$	$D_C=0,05$ $H/D=16,6$ $P=0,1-5MPa$ $u_G=0,005-0,05$ Plateau perforé (19trous de 1mm)	$\frac{\varepsilon_G}{1 - \varepsilon_G} = 1,44u_G^{0,58} \rho_G^{0,12} \sigma_L^{-0,16} \exp(-P)$	Idogawa et al. (1985)
G : air L : eau, solutions de glycérol + SAG10, CMC $k=0,001-1,22Pa.s^n$ $n=1-0,28$	$D_C=0,14-0,35$ $H=1,22$ $u_G=0,008-0,285$	$\varepsilon_G = 0,24n^{-0,6} Fr_G^{0,84-0,14n} Ga^{0,07}$	Kawase et Moo- Young (1986)
G : air L : solutions de CMC $k=0,00132-0,012Pa.s^n$ $n=0,80-0,50$	$D_C=0,10-1,0$ $H=0,3-2,0$ $u_G=0,03-0,24$	$\varepsilon_G = 0,171u_G^{0,60} \mu_{eff}^{-0,22} D_C^{-0,15}$ $\gamma_{eff} = 5000u_G$ (Nishikawa et al. (1977))	Haque et al. (1986)
		$\varepsilon_G = 296u_G^{0,44} \rho_L^{-0,98} \rho_G^{0,19} \sigma^{-0,16} + 0,009$	Reilly et al. (1986)
G : Air, H <sub>2</sub> , He L : Eau, méthanol, éthanol	1 orifice ( $d_0=1-3-5mm$ ) $D_C=0,05$ $H=0,83$ $u_G=0,0005-0,03$	$\frac{\varepsilon_G}{1 - \varepsilon_G} = 2,35u_G^{0,8} \rho_G^{0,17} \left( \frac{\sigma}{0,072} \right)^{-0,22 \exp(-P/10^6)}$ $\frac{\varepsilon_G}{1 - \varepsilon_G} = 0,059u_G^{0,8} \rho_G^{0,17} \left( \frac{\sigma}{72} \right)^{-0,22 \exp(-P)}$	Idogawa et al. (1987)

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
	poreux $u_G=0-0,052$ $u_L=0,033-0,322$	$\varepsilon_G = 0,155u_G^{0,988} (-0,0221u_L^2 - 56,4u_L + 28,821)$ pour $u_G=0-0,052$ et $u_L=0,033-0,322$ $\varepsilon_G = \frac{1,4u_G^{0,34}}{\exp(-0,248R) + \exp(0,243R)}$ $R = \frac{5,06u_L}{u_G^{0,648} - 2,03}$ avec pour $u_G=0,086-0,121$ et $u_L=0,033-0,322$	Jean et Fan (1987)
G : Air L : Glycérol, CMC, PAA, xanthane $k=0,0159-9,780Pa.s^n$ $n=1-0,18$ $\mu_{eff}>0,004Pa.s$	$D_C=0,06-0,30$ $H=1,8-2$ $u_G=0,02-0,2$	$\varepsilon_G = 0,20Bo^{-0,13} Ga^{0,11} Fr_G^{0,54}$ $\varepsilon_G = 0,20 \left( \frac{gD_C \rho_L}{\sigma} \right)^{-0,13} \left( \frac{gD_C^3 \rho_L^2}{\mu_{eff}^2} \right)^{0,11} \left( \frac{u_G}{\sqrt{gD_C}} \right)^{0,54}$ $\gamma_{eff} = 2800u_G$	Schumpe et Deckwer (1987)
G : Air L : Eau, solutions de CMC avec des rupteurs de bulles flottantes $k=0,001-0,0716Pa.s^n$ $n=1-0,825$	$D_C=0,15$ $H=2$ $u_G=0,022-0,095$ $u_L=0,035-0,105$	$\varepsilon_G = 0,331u_G^{0,663} \mu_{eff}^{-0,189} (1 + \varepsilon_F)^{1,872}$ $\gamma_{eff} = 2800(u_G - u_L \frac{\varepsilon_G}{\varepsilon_L})$ (Schumpe et al. (1989))	Kang et al. (1990)
Corrélation théorique		$\frac{\varepsilon_G}{1 - \varepsilon_G} = 0,0625 \left( \frac{u_G^3}{v_L g} \right)^{1/4}$	Kawase et al. (1992)
G : Air, CO <sub>2</sub> L : Eau, solutions aqueuses de différentes concentrations de saccharose, éthanol et glycérine $\rho_G=1,2-1,8$ $\mu_G=(1,48-1,91)10^{-5}$ $\rho_L=928-1104$ $\mu_L=(1,00-4,17)10^{-3}$ $\sigma=(2,98-7,34)10^{-2}$ $D_L=(0,51-1,78)10^{-9}$	Diffuseur poreux $u_G=6,42.10^{-4} - 49,29.10^{-4}$ $D_C=0,04-0,08$ $H=1,5-2$ $d_p=30-150\mu m$	$\varepsilon_G = 129 \left( \frac{u_G \mu_L}{\sigma} \right)^{0,99} \left( \frac{\mu_L^4 g}{\sigma_L \sigma^3} \right)^{-0,123} \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^{0,187}$ $* \left( \frac{\mu_G}{\mu_L} \right)^{0,343} \left( \frac{d_p}{D_C} \right)^{-0,089}$	Sotelo et al. (1994)
G : N <sub>2</sub> L : Paratherm $\rho_G=0,2-90$ $\rho_L=668-2965$ $\mu_L=(0,29-30)10^{-3}$ $\sigma=(0,019-0,073)10^{-2}$	Plateau perforé $D_C=0,1-0,61$ $H/D>5$ $d_0=1,5mm$ $T_{max}=180^\circ C$ $P=0,1-21MPa$ $u_G=0,05-0,69$ $u_L=0$	$\frac{\varepsilon_G}{1 - \varepsilon_G} = \frac{2,9 \left( \frac{u_G^4 \rho_G}{\sigma g} \right)^\alpha \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^\beta}{(\cosh(Mo_L^{0,054}))^{4,1}}$ $\alpha = 0,21Mo_L^{0,0079}, \beta = 0,096Mo_L^{-0,01}$ $Mo = \frac{g\mu_L^4}{\rho_L \sigma^3}$	Luo et al. (1999)
G : Air L : Eau	$u_G \leq 2,7$ $u_L \leq 0,23$ $D_C=0,083-0,15$	$\frac{\varepsilon_G}{1 - \varepsilon_G} = 0,759u_G^{0,687} u_L^{-0,116}$	Lee et al. (2000)

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
G : O <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> L : Eau, éthanol, butanol, toluène	Plateau perforé D <sub>C</sub> =0,115 H=1,37 P=1-10bars u <sub>G</sub> =0,01-0,15	$\varepsilon_G = Bu_G^{0,86} \rho_G^{0,24}$ B=f(liquide) B(eau)=1,69 ; B(éthanol)=1,62 ; B(butanol)=1,34 ; B(toluène)=1,95	Jordan et al. (2002)
G : Air $\rho_L=906-928$ $\mu_L=0,063-0,320$ $\sigma=0,0248-0,035$	u <sub>G</sub> =0,0018-0,29 H=0,12-0,60	$\varepsilon_G = 0,66u_G^{0,66} \mu_L^{-0,24} H^{-0,38} \sigma^{0,22} \rho_L^{0,02}$	Anabtawi et al. (2003)

[D'après Akita et Yoshida (1973), Hikita et al. (1981), Shah et al. (1982), Ozturk et al. (1987), Sotelo et al. (1994)]

## II. TRANSFERT DE MATIERE

Système	Conditions	Equation	Auteurs
G : Air, CO <sub>2</sub> L : Eau, glycérine	Diffuseur multi-orifices u <sub>G</sub> = 0,004 - 0,45 D <sub>C</sub> >0,1m	$\frac{k_L d_B}{D_L} = 2 + 0,018 \left[ \left( \frac{d_B u_G \rho_L}{\varepsilon_G u_L} \right)^{0,484} \left( \frac{d_B g^{1/3}}{D_L^{2/3}} \right)^{0,072} \right]$ $* \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0,339}]^{1,61}$ $a = \frac{6\varepsilon_G}{d_{32}}$ $d_{32} = 0,635 \left( \frac{\sigma}{0,072} \right)^{0,6} \left( \frac{1,000}{\rho_L} \right)^{0,2}$	Hughmark (1967)
Equation théorique		$k_L a = 3,31 \left( \frac{D_L \varepsilon_G}{d_B^2} \right) \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{1/3} \left( \frac{d_B \rho_L u_G}{\mu_L \varepsilon_G} \right)^{1/2}$	Fair (1969)
G : Air, O <sub>2</sub> , He, CO <sub>2</sub> L : Eau, glycérine, méthanol k=0,001-0,021 n=1	Diffuseur à un orifice u <sub>G</sub> = 0,003-0,4 u <sub>L</sub> = 0-0,044 D <sub>C</sub> = 0,152-0,6m H = 0,126-3,5m ρ <sub>L</sub> = 800-1600 μ <sub>L</sub> = 0,00058-0,021 σ = 0,022-0,0742	$\frac{k_L a D_C^2}{D_L} = 0,6 \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0,5} \left( \frac{g D_C^2 \rho_L}{\sigma} \right)^{0,62}$ $\left( \frac{g \rho_L^2 D_C^3}{\mu_L^2} \right)^{0,31} \varepsilon_G^{1,1}$ sur-estime effet de la viscosité liquide [Hikita et al. (1981)]	Akita et Yoshida (1973)
		$k_L = 2,23 \cdot 10^{-4} K^{0,180} + 3,85 \cdot 10^{-3} u_G^{0,65+0,0335 \frac{Z_C}{D_r}} \left( \frac{Z_C}{D_C} \right)^{-0,605}$ $a = 26,0 \left( \frac{Z_C}{D_C} \right)^{-0,3} K^{-0,003} \varepsilon_G$ $K = \frac{\rho_L \sigma^3}{\mu_L^4 g}$	Gestrich et al. (1975-1978)

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
G : Air, O <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> L : Eau, solution de saccharose, butanol, méthanol k=0,0008-0,011 n=1	Diffuseur à orifice simple u <sub>G</sub> = 0,042-0,38 D <sub>C</sub> = 0,10-0,19m H = 0,13-0,22m ρ <sub>L</sub> = 998-1230 μ <sub>L</sub> = 0,0008-0,011 σ = 0,025-0,082	$\frac{k_L a u_G}{g} = 14,9 f \left( \frac{u_G \mu_L}{\sigma} \right)^{1,76} \left( \frac{\mu_L^4 g}{\rho_L \sigma^3} \right)^{-0,248}$ $\left( \frac{\mu_G}{\mu_L} \right)^{0,243} \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{-0,604}$ avec : 5.10 <sup>-4</sup> < u <sub>G</sub> μ <sub>L</sub> /σ < 3,3.10 <sup>-2</sup> 1,3.10 <sup>-11</sup> < μ <sub>L</sub> <sup>4</sup> g/(ρ <sub>L</sub> σ <sup>3</sup> ) < 3,2.10 <sup>-7</sup> 1,6.10 <sup>-3</sup> < μ <sub>G</sub> /μ <sub>L</sub> < 2,5.10 <sup>-2</sup> 1,2.10 <sup>2</sup> < μ <sub>L</sub> /ρ <sub>L</sub> D <sub>L</sub> < 2,0.10 <sup>-4</sup> non adapté pour liquide non coalescent (sous-estime) : solutions alcooliques... f=1,0 pour les solutions non électrolytiques f=10 <sup>0,068 I</sup> pour 0 < I < 1,0 kg ion/m <sup>3</sup> f=1,114.10 <sup>0,021 I</sup> pour I > 1,0 kg ion/m <sup>3</sup> I : force ionique de la solution	Hikita et al. (1981)
G : Air L : solution CMC k=0,040-0,230 n=0,91-0,82	D <sub>C</sub> =0,14 H=2,7 u <sub>G</sub> =0,005-0,05 u <sub>L</sub> =0,013-0,022	$k_L a = A u_G^{0,44} \mu_{eff}^{-1,01}$ A=f(liquide)	Deckwer et al. (1982)
G : air, N <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> , He, H <sub>2</sub> L : Liquides organiques	0,29 ≤ 10 <sup>9</sup> D <sub>L</sub> ≤ 5,85m <sup>2</sup> /s 714 ≤ ρ <sub>L</sub> ≤ 1,593kg/m <sup>3</sup> 0,33 ≤ 10 <sup>3</sup> μ <sub>L</sub> ≤ 20Pa.s 20,4 ≤ 10 <sup>3</sup> σ ≤ 72,7kg/s <sup>2</sup> 0,09 ≤ ρ <sub>G</sub> ≤ 2,46kg/m <sup>3</sup> 8,8ρ <sub>L</sub> ≤ 10 <sup>6</sup> μ <sub>G</sub> ≤ 19,4Pa.s 0,008 ≤ u <sub>G</sub> ≤ 0,1m/s	$Sh = 0,62 Sc^{0,50} Bo^{0,33} Ga^{0,29} Fr^{0,68} \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^{0,04}$ avec : 1,6.10 <sup>1</sup> ≤ Sh ≤ 9,7.10 <sup>2</sup> 3,2.10 <sup>1</sup> ≤ Sc ≤ 1,5.10 <sup>5</sup> 1,2.10 <sup>0</sup> ≤ Bo ≤ 5,4.10 <sup>0</sup> 8,3.10 <sup>2</sup> ≤ Ga ≤ 1,5.10 <sup>6</sup> 4,3.10 <sup>-2</sup> ≤ Fr ≤ 6,0.10 <sup>-1</sup> 9,3.10 <sup>-5</sup> ≤ ρ <sub>G</sub> /ρ <sub>L</sub> ≤ 52,0.10 <sup>-3</sup>	Ozturk et al. (1987)
Semi-théorique énoncée ici pour liquides Newtoniens G : Air, CO <sub>2</sub> L : Eau, CMC, carbopol k=0,00092-2,32 n=1-0,476	homogène D <sub>C</sub> =0,23-0,76 H <sub>C</sub> =1,22-3,21	$\frac{k_L a D_C^2}{D_L} = 0,452 \left( \frac{v_L}{D_L} \right)^{1/2} \left( \frac{D_C u_G}{v} \right)^{3/4}$ $\left( \frac{g D_C^2 \rho_L}{\sigma} \right)^{3/5} \left( \frac{u_G^2}{D_C g} \right)^{7/60}$	Kawase et al. (1987)
G : Air L : Glycérol, CMC, PAA, xanthane k=0,0159-9,78 n=1-0,018	D <sub>C</sub> =0,06-0,30 H=1,8-2,2 u <sub>G</sub> =0,02-0,2	$\frac{k_L a D_C^2}{D_L} = 0,021 \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0,5} \left( \frac{g \rho_L d_B^2}{\sigma} \right)^{0,21}$ $* Ga^{0,60} \left( \frac{u_G}{\sqrt{g d_B}} \right)^{0,49}$	Schumpe et Deckwer (1987)
G : Air L : Solutions électrolytiques		$k_L a = \left( \frac{k_M D_L}{D_C^2} \right) \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0,5} \left( \frac{g D_C^2 \rho_L}{\sigma} \right)^{4/7} \left( \frac{g D_C^3 \rho_L^2}{\mu_L^2} \right)^{2/7} \varepsilon_g^{1,18}$	Akita (1989)

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
G : Air, CO <sub>2</sub> L : Eau, solutions aqueuses de différentes concentrations de saccharose, éthanol et glycérine	Diffuseur poreux u <sub>g</sub> =6,42.10 <sup>-4</sup> -49,29.10 <sup>-4</sup> D <sub>C</sub> =0,04-0,08 H=1,5-2 d <sub>p</sub> =30-150μm ρ <sub>G</sub> =790-1110 μ <sub>G</sub> =(1,48-1,91)10 <sup>-5</sup> ρ <sub>L</sub> =928-1104 μ <sub>L</sub> =(1,00-4,17)10 <sup>-3</sup> σ=(2,98-7,34)10 <sup>-2</sup> D <sub>L</sub> =(0,51-1,78)10 <sup>-9</sup>	$\frac{k_L a u_G}{g} = 16,9 \left( \frac{u_G u_L}{\sigma} \right)^{2,14} \left( \frac{\mu_L^4 g}{\rho_L \sigma^3} \right)^{-0,518}$ $\left( \frac{\mu_G}{\mu_L} \right)^{0,074} \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{-0,028} \left( \frac{d_p}{D_C} \right)^{0,908}$	Sotelo et al. (1994)
Liquides newtoniens	Plateau perforé u <sub>g</sub> =0,007-0,06 D <sub>C</sub> =0,14 H=0,02-1,5 d <sub>0</sub> =0,5-1mm ρ <sub>L</sub> =884-1016 μ <sub>L</sub> =0,001-1,26 σ=0,03-0,07	H<0,8m $\frac{k_L a D_C}{u_G} = 2,95 \cdot 10^{-3} \left( \frac{D_C u_G \rho_L}{\mu_L} \right)^{0,37} \left( \frac{u_G^2 D_C \rho_L}{\sigma} \right)^{-0,13}$ $* \left( \frac{u_G}{\sqrt{g D_C}} \right)^{-0,31} \left( \frac{H}{D_C} \right)^{-0,50}$ H≥0,8m $\frac{k_L a D_C}{u_G} = 9,33 \cdot 10^{-5} \left( \frac{D_C u_G \rho_L}{\mu_L} \right)^{0,56} \left( \frac{u_G \mu_L}{\sigma} \right)^{0,09}$ $* \left( \frac{u_G}{\sqrt{g D_C}} \right)^{-0,86}$	Zhao et al. (1994)
G : air L : Solutions aqueuses de CMC	Multi-orifices D <sub>C</sub> =0,152 H=2 u <sub>G</sub> =0,02-0,20	$k_L a = 10^{-3,08} \text{Re}^{0,254} D_C$ $\text{Re} = \frac{D_C u_G \rho_G}{\mu_L}$	Kang et al. (1999)
G : N <sub>2</sub> , He L : Ethanol, butanol, décaline, toluène ρ <sub>G</sub> =0,19-46,7kg/m <sup>3</sup>	D <sub>C</sub> =0,1 H=2,4 u <sub>G</sub> =0,01-0,21 T=20-70°C P=1-40MPa	$Sh^1 = a_1 Sc^{0,5} Bo^{0,34} Ga^{0,27} Fr^{0,72} \left[ 1 + 13,2 \cdot Fr^{0,37} \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^{0,49} \right]$ $\frac{\varepsilon_G}{1-\varepsilon_G} = b_1 Bo^{0,16} Ga^{0,04} Fr^{0,70} \left[ 1 + 27,0 Fr^{0,52} \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^{0,58} \right]$ a <sub>1</sub> ≈0,5-0,7 1≈0,11-0,15 a <sub>1</sub> , b <sub>1</sub> =f(D <sub>C</sub> , H, distributeur)	Jordan et Schumpe (2001)
G: O <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> L: Eau, éthanol, butanol, toluène	Plateau perforé D <sub>C</sub> =0,115 H=1,37 P=1-10bars u <sub>G</sub> =0,01-0,15	$k_L a = C u_G^{0,91} \rho_G^{0,24}$ $k_L a = D \varepsilon_G^{1,06}$ C, D=f(liquide) Eau Ethanol Butanol Toluène C 0,94 1,14 0,83 1,49 D 0,56 0,67 0,60 0,72	Jordan et al. (2002)

[D'après Akita et Yoshida (1973), Hikita et al. (1981), Ozturk et al. (1987), Sotelo et al. (1994), Wilkinson et al. (1994)]

## III. DISPERSION LIQUIDE

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
		Homogène : $D_{zl} = 0,30D_C^2 u_G^{1,2} + 170d_0$ Hétérogène : $D_{zl} = \frac{14D_C}{(1 - \varepsilon_G)^2}$	Ohki et Inoue (1970)
G : Air L : Eau	$D_c=0,122$ $4.10^{-3} \leq Fr_G \leq 0,4$	$\frac{D_C u_G}{D_{zl}} = \frac{13 \left( \frac{u_G}{\sqrt{gD_C}} \right)}{1 + 6,5 \left( \frac{u_G}{\sqrt{gD_C}} \right)^{0,8}}$	Kato et Nishiwaki (1972)
G : Air L : Eau	$D_c=0,40-1,07$ $H_C=1,5-5,1$ $u_G=0,009-0,09$ $u_L=0,004-0,014$	$D_{zl} = 1,225D_C^{1,5} u_G^{0,5}$	Towell et Ackermann (1972)
G : Air, He, CO <sub>2</sub> L : Eau, solutions aqueuses, méthanol $\rho_L=800-1600$ $\mu_L=0,00058-0,021$ $\sigma=0,022-0,0742$ $k=0,001-0,021 Pa.s$ $n=1$	Diffuseur à un orifice $u_G=0,003-0,4$ $u_L=0-0,044$ $D_C=0,152-0,6m$ $H=1,26-3,5m$	$D_{zl} = u_G D_C \left[ \frac{0,06 + 0,55 \left( \frac{u_G}{\sqrt{gD_C}} \right)^{0,7}}{\left( \frac{u_G}{\sqrt{gD_C}} \right)} \right]$	Akita et Yoshida (1973)
		$D_{zl} = 0,692D_C^{1,4} u_G^{0,33}$	Badura (1974)
G : Air L : Eau, Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , NaCl, molasses	Plateaux perforés $D_c=0,15-0,20$ $H_C=4,4-7,23$ $u_G=0,0025-0,1$ hétérogène	$D_{zl} = 0,6782D_C^{1,4} u_G^{0,3}$	Deckwer et al. (1974)
G : Air L : Solutions de sucre $k=0,001-0,019 Pa.s$ $n=1$	$D_c=0,1$ $H_C=1,5$ $u_G=0,07-0,32$	$D_{zl} = (0,065 + 0,301u_G^{0,77})D_C^{1,25} \mu_L^{-0,12}$	Hikita et Kikukawa (1974)
Théorique	$D_c=0,082-1,53$ $u_G=0,003-0,45$	$D_{zl} = 0,35g^{1/3} D_C^{4/3} u_G^{1/3}$	Baird et Rice (1975)
Théorique	$D_c=0,1-1,067$ $H_C=1-7,23$ $u_G=0,017-0,268$ $u_L=1,83-15,6$	$D_{zl} = 0,435g^{1/3} D_C^{4/3} (u_G - \varepsilon_G v_{B\infty})^{1/3}$ $\varepsilon_G u_{B\infty} \approx 0,65u_G$ [Ueyama et Miyauchi (1979)]	Joshi et Sharma (1979)
		$D_{zl} = 0,44D_C^{1,33} [g(u_G - \varepsilon_G u_s)]^{1/3}$	Field et Davidson (1980)

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
		$D_{z_l} = 0,33(u_C + u_L)D_C$ où : $u_C$ , vitesse de circulation $u_C = 1,31[gD_C(u_G - \varepsilon_G v_{Bo})]^{1/3}$ (Whalley et Davidson (1974))	Joshi (1980)
		$D_{z_l} = D_C^{3/2} u_G^{1/4} \left( 0,291 + \frac{0,341}{(1 - 0,54 u_G^{1/2})^2} \right)$	Miyauchi et al. (1981)
Théorique	Régime hétérogène	$D_{z_l} = 0,0680 g^{3/8} D_C^{3/2} u_G^{3/8} v_L^{-1/8}$	Riquarts (1981)
		$D_{z_l} = 0,368 g^{1/3} D_C^{4/3} u_G^{1/3}$	Zehner (1982)
G : Air L : Eau, méthanol, éthanol, propanol, butanol	$\mu_L = 0,00083 - 0,00085 \text{ Pa.s}$ $\sigma = 0,049 - 0,070 \text{ N/m}$ $D_c = 0,154 - 0,3$ $H_c = 2,44 - 3,35$ $u_G = 0,01 - 0,3$ $u_L = 0 - 0,015$	$D_{z_l} = 1,42 \varepsilon_L^{-1} D_C^{1,33} \left( u_G - \frac{\varepsilon_G u_L}{1 - \varepsilon_G} \right)^{0,73}$	Kelkar et al. (1983)
Théorique G : Air L : Eau, polyacrylamide, CMC, MC k=0,00089-0,165 Pa.s <sup>n</sup> n=1-0,625	$D_c = 0,23$ $H_c = 1,22$ $4,47 \cdot 10^{-3} \leq Fr_G \leq 0,707$	$\frac{D_C u_G}{D_{z_l}} = 2,92 n^{8/3} Fr_G^{2/3}$	Kawase et Moo-Young (1986)
G : Air L : Eau	membrane $D_c = 0,15 - 0,2$ $H = 4,25 - 4,50$ $u_G = 0,0052 - 0,055$ $u_L = 0,0062 - 0,0216$	$D_{z_l} = \frac{\left[ u_C + \frac{u_L}{1 - \varepsilon_G} \right] D_C}{1,3 Re^{0,1}}$ $Pe = \frac{1,3 Re^{0,1} H_c}{D_C \left[ 1 + \frac{(1 - \varepsilon_G) u_C}{u_L} \right]}$ $Pe = \frac{1,3 H_c Re^{0,1}}{D_C (1 - \varepsilon_G) \left[ \frac{1}{1 - \varepsilon_G} + \frac{1}{235} \left( \frac{Re}{Fr_G^{1/3}} \right)^{-2/3} \right] Ga^{0,6}}$	Moustiri et al. (2001)

D'après Syaiful (1992), Hébrard et al. (1999), Moustiri et al. (2001)



## IV. DISPERSION GAZEUSE

Système	Conditions	Corrélation	Auteurs
G : Air L : Eau	$D_c=0,40-1,07$ $H_c=1,5-5,1$ $u_G=0,009-0,09$ $u_L=0,004-0,014$	$D_{zg} = 19,7D_C^{1,5}u_G$	Towell et Ackermann (1972)
G : Air L : Eau	$D_c=3,2$ $H_c=18,9$ $u_G=0,004-0,0055$ $u_L=0,003-0,0045$	$D_{zg} = 56,4D_C^{1,33} \left( \frac{u_G}{\varepsilon_G} \right)^{3,56}$	Field et Davidson (1980)
G : Air, N <sub>2</sub> L : Eau, glycol, propanol	$D_c=0,1-0,14$ $H_c=2,7$ $u_G=0,005-0,18$ $u_L=0-0,06$	$D_{zg} = 50D_C^{1,5} \left( \frac{u_G}{\varepsilon_G} \right)^3$	Mangartz et Pilhofer (1980)
Basée sur la littérature	$D_c=0,092-1,067$ $H_c=0,7-7$ $u_G=0,0076-0,13$ $u_L=0-0,06$	$D_{zg} = 110D_C^2 \left( \frac{u_G^2}{\varepsilon_G} \right)$	Joshi (1982)
G : Air L : Eau, Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , CMC	$D_c=0,159-0,290$ $H_c=2$ $u_G=0,01-0,10$ $u_L=1,83-15,6$	$D_{zg} = 26,2 \left( \frac{u_G}{\varepsilon_G} \right)^{3,03} D_C^{1,79}$ valable pour eau et similaire	Kawagoe et al. (1989)
G : Air L : Eau	$D_c=0,05-0,2$ $H_c=4,5$ $u_G=0,029-0,456$	$D_{zg} = 0,0680g^{3/8} D_C^{3/2} u_G^{3/8} \nu_L^{-1/8}$	Wachi et Nojima (1990)
G : Air L : Eau, méthanol, éthanol, propanol, butanol	$\mu_L=0,00083-0,00085\text{Pa.s}$ $\sigma=0,049-0,070\text{N/m}$ $D_c=0,154-0,3$ $H_c=2,44-3,35$ $u_G=0,01-0,3$ $u_L=0-0,015$	$D_{zg} = 20D_C^{1,5}u_G$	Kelkar et al. (1983)

*D'après Syaiful (1992)*

## V. DIAMETRES DE BULLES

Auteurs	Equations
<b>Hughmark (1967)</b>	$d_B = 0,635 \left( \frac{\sigma}{0,072} \right)^{0,6} \left( \frac{1,000}{\rho_L} \right)^{0,2}$ (dB en cm, $\sigma$ en dynes /cm, $\rho_L$ en g/cm <sup>3</sup> )
<b>Calderbank (1967)</b> Pour diamètre de bulle gouverné par l'hydrodynamique (par exemple dans les colonnes de diamètre de trou d'injecteur supérieur à 0,5 mm) Equilibre entre force de tension superficielle et forces de fluctuations turbulentes	$d_{SM} = c \frac{\sigma^{0,6}}{\left( \frac{P}{V} \right)^{0,4} \rho_L^{0,2}} \varepsilon_G^n \left( \frac{\mu_G}{\mu_L} \right)^{0,25}$ où : c : constante n : fonction du liquide P/V : puissance par unité de volume $\left( \frac{P}{V} = \rho g u_G \right)$
<b>Bhavaraju et al. (1978)</b> (cf. Tilton et Russell (1982)) Equation similaire sans taux de vide	$d_B = 0,53 \frac{\sigma^{0,4}}{\left( \frac{P}{V} \right)^{0,4} \rho_L^{0,2}} \left( \frac{\mu_L}{\mu_G} \right)^{0,1}$
<b>Lehrer (1974)</b> (cf. Heijnen et Van't Riet (1984)) Equation similaire pour les milieux non coalescents	$d_{SM} = 1,93 \frac{\sigma^{0,6}}{\left( \frac{P}{V} \right)^{0,4} \rho_L^{0,2}}$
<b>Akita et Yoshida (1974)</b> Eau, glycol, méthanol, CCl <sub>4</sub> D <sub>C</sub> < 0,3m, u <sub>G</sub> < 7cm/s plateau perforé ou orifice unique (Pour D <sub>C</sub> > 0,3m, d <sub>SM</sub> indépendant de D <sub>C</sub> )	$\frac{d_{SM}}{D_C} = 26 \left( \frac{D_C^2 \rho_L g}{\sigma} \right)^{-0,5} \left( \frac{D_C^3 \rho_L^2 g}{\mu_L^2} \right)^{-0,12} \left( \frac{u_G}{(D_C g)^{0,5}} \right)^{-0,12}$
<b>Wilkinson et al. (1994)</b> Equation empirique Eau, monoéthylglycol, cyclohexane et n-heptane	$\frac{g \rho_L d_{SM}^2}{\sigma} = 8,8 \left( \frac{u_G \mu_L}{\sigma} \right)^{-0,04} \left( \frac{\sigma^3 \rho_L}{g \mu_L^4} \right)^{-0,12} \left( \frac{\rho_L}{\rho_G} \right)^{0,12}$
<b>Idogawa et al. (1987)</b>	$d_B = 0,00391 \rho_G^{-0,07} \left( \frac{\sigma}{0,072} \right)^{0,22 \exp(-P)}$ (P en MPa)
<b>Blass (1990)</b> Equilibre entre force de flottabilité et tension superficielle	$d_B = C \sqrt{\frac{9\sigma}{\Delta\rho g}}$ C entre 0,4 et 0,6
<b>Winterton (1994)</b>	$d_B = 0,04 D_C$



## ANNEXE I.C. : REGIMES D'INJECTION

Selon le débit de gaz, il existe trois principaux régimes de formation des bulles à un orifice rigide :

- \_ Le régimes à bulles (séparées ou continues),
- \_ Le régime de transition ou à bulles multiples,
- \_ Le régimes à jet (simple ou dispersé).

La Figure 1 représente qualitativement l'évolution du diamètre des bulles en fonction du nombre de Reynolds à l'orifice,  $Re_0$ , pour ces régimes. L'objet de cette annexe est d'apporter quelques précisions sur ces différents régimes.

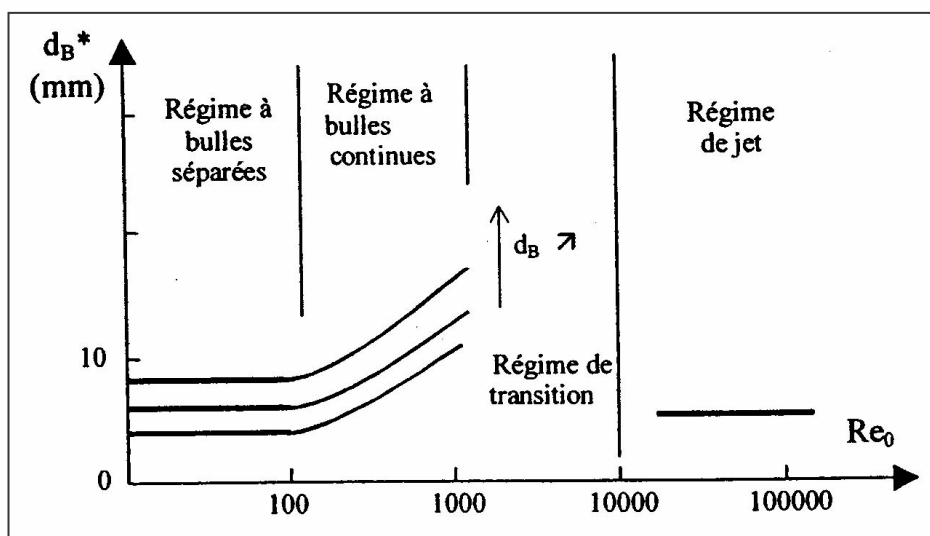


Figure 1 : Taille des bulles formées à un orifice rigide

### I. REGIME A BULLES SEPARÉES

A très faibles vitesses de gaz, des bulles de volume et de temps de formation constants sont formées ( $d_B^* = d_{SM}^*$ ). La taille des bulles obtenues dépend du diamètre de l'orifice et de la tension superficielle, mais pas de la vitesse d'éjection, comme en témoigne la Figure 1. C'est donc principalement la géométrie de l'injecteur qui contrôle, pour un liquide donné, la taille des bulles. Cette taille est déterminée par bilan entre les forces de tension superficielle et de flottabilité :

$$d_B^* = \sqrt[3]{\frac{6\sigma d_0}{(\rho_L - \rho_G)g}}$$

## II. REGIME A BULLES CONTINUES (CHAINE)

Lorsque le débit augmente, les bulles continuent à se former individuellement, mais elles quittent l'orifice en une chaîne continue. En outre, contrairement au régime à bulles séparées, leur volume augmente avec le débit de gaz (cf. Figure 1), car la fréquence de formation des bulles tend, lorsque le débit de gaz augmente, vers une valeur limite [Valentin (1967)] :

$$d_B^* = \frac{v_B^*}{f_B^*}$$

où :  $v_B^*$  est la vitesse de la bulle primaire de diamètre  $d_B^*$

Les forces de tension de surface deviennent négligeables et la taille des bulles peut être déterminée, pour les liquides peu visqueux, par l'équilibre entre les forces d'inertie et de flottabilité en supposant les bulles sphériques :

$$d_B^* = 1,17 u_{G0}^{0,4} d_0^{0,8} g^{-0,2}$$

La taille des bulles dans ce régime est supposée indépendante des propriétés du système liquide ; elle ne dépend que du diamètre de l'orifice,  $d_0$ , et de la vitesse d'éjection,  $u_{G0}$ .

Des corrélations similaires sont utilisées et ne diffèrent souvent que par le coefficient multiplicateur utilisé : 1,88 pour Akita et Yoshida (1974), une fonction des propriétés physico-chimiques pour Bhavaraju et al. (1978) (cités par Tilton et Russell (1982)), soit 0,79 en eau.

La transition entre le régime à bulles séparées et le régime à bulles continues est déterminée en écrivant l'égalité des diamètres obtenus dans les deux régimes. La vitesse d'éjection obtenue est :

$$u_{G0,trans} = \frac{1,2\sqrt{g}}{\pi d_0^2} \left( \frac{6\sigma d_0}{g(\rho_L - \rho_G)} \right)^{5/6}$$

## III. REGIME A JET

A fortes vitesses de gaz, les bulles ne sont plus formées individuellement ; le gaz sort de l'orifice sous la forme d'un jet. Deux régimes à jet peuvent être distingués [Idogawa et al. (1987)] :

- \_ Le régime à jet simple : il se caractérise par de fortes interactions entre bulles, le haut de la bulle en formation entrant dans la précédente. Des bulles de forme irrégulière sont formées et se cassent parfois sous l'effet de la turbulence juste après la séparation.
- \_ Le jet dispersé : le jet se brise aléatoirement en petites bulles individuelles, ce qui engendre une large distribution de taille de bulles [Fan et al. (1999)] ; il se disperse radialement et forme un cône.

Dans ce régime, la taille des bulles dépend peu du débit gazeux et du milieu liquide (cf. Figure 1) :

$$d_{SM}^* \approx 4 - 6mm \quad [\text{Heijnen et Van't Riet (1984)}]$$

## ANNEXE II.A : FICHES PRODUITS DES LIQUIDES

### I. LE CYCLOHEXANE

Le cyclohexane est un liquide volatil incolore et mobile d'odeur âcre. Il est très peu soluble dans l'eau (58mg/L à 25°C), mais miscible à de nombreux solvants organiques.

Formule	$C_6H_{12}$
Synonyme	Hexahydrobenzène
Présentation	Liquide incolore et mobile d'odeur âcre
Poids molaire	84,156g/mol
Point de fusion	6,554°C
Point de bulle	80,738°C
Limites d'inflammabilité (dans l'air)	
20°C	1,3-8,4
100°C	1,16-4,34
150°C	1,10-4,56
200°C	1,01-4,77
250°C	0,95-4,98
Point d'éclair (en coupelle fermée)	-17°C – -20°C
Pourcentage dans le mélange équilibré avec l'air	2,27%
Température limite inférieure d'inflammabilité	3°C
Température d'auto-inflammation	245°C
Température limite supérieure d'inflammabilité à P atm	12,5°C
Chaleur de formation	80,08kJ/kg (113kJ/mol)
Chaleur de fusion	31,807kJ/kg
Chaleur de vaporisation	
à 25°C	392,50kJ/kg
à 80,7°C	357,44kJ/kg
Pression de vapeur	(En kPa)
30°C	16,212
40°C	24,613
50°C	36,237
60°C	51,901
70°C	72,521
80°C	99,095
Point de transition	-87,05°C
Pression critique	4110,00kPa
Température critique	281,0°C
Densité critique	0,2718g/cm <sup>3</sup>
Tension superficielle à 20°C	0,0253 ± 0,3N/m
Constante diélectrique à 10 <sup>5</sup> Hz et 25°C	2,023
Viscosité cinématique à 20°C	1,259mm <sup>2</sup> /s
Viscosité dynamique à 20°C	0,980mPa.s
Densité	0,7781
Densité de vapeur (air = 1)	2,9
Chaleur spécifique relative à l'eau à 25,9°C	0,440
Miscibilité à l'eau	Pratiquement immiscible (58mg/L à 25°C)

## Toxicité

VME=300ppm (1050mg/m<sup>3</sup> air)

VLE=375ppm (1300mg/m<sup>3</sup> air)

Le cyclohexane présente une toxicité expérimentale modérée qui se manifeste à des doses assez élevées par des signes neurocomportementaux. Aucun effet mutagène, cancérigène ou de toxicité pour la reproduction n'a été mis en évidence.

Le cyclohexane est essentiellement un déprimeur du système nerveux central. En cas d'intoxication importante, des vertiges, une perte de conscience, des tremblements et une aréflexie sont observés. Ces signes peuvent s'accompagner de nausées et de vomissements et dans les cas graves d'un collapsus cardio-vasculaire parfois mortel.

Aucun effet chronique n'a été imputé à une exposition chronique au cyclohexane seul.

## Sécurité

Le cyclohexane est un produit stable dans les conditions normales d'utilisation. Il ne corrode pas les métaux usuels, mais peut réagir violemment avec les oxydants puissants (risque d'incendie et d'explosion).

C'est un liquide très inflammable (point d'éclair en coupelle fermée à -20°C), dont les vapeurs, plus denses que l'air, peuvent former des mélanges explosifs avec l'air (LIE=1,3%, LSE=8,4%).

Le cyclohexane est étiqueté : facilement inflammable, nocif et dangereux pour l'environnement.

## II. DIBUTYLAMINE

La dibutylamine est un liquide incolore, sans matière en suspension, sentant l'amine.

Formule	<b>(C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>2</sub>NH</b>
Synonymes	n-Butyl-1-butanamine; di-n-butylamine
Poids moléculaire	129,25g/mol
Indice de réfraction	1,4177
Densité à 20°C	0,7670
Densité gaz à 20°C	2
Point d'éclair (coupelle fermée)	39°C
Point de bulle	160°C
Point de gel	-62°C
Température d'autoignition	312°C
Limites inflammabilité dans l'air	1,1%
Pression de vapeur (à 20°C)	2mmHg
Miscibilité	Avec quasiment tous les solvants organiques Limitée avec l'eau

## Toxicité

Ce liquide est **très corrosif** et supposé **mutagène**.

Contact	Conséquences
Peau, yeux	Corrosif
Ingestion	Toxique, corrosif Destruction des tissus Spasmes, vomissements, diarrhées
Inhalation	Irritation des voies respiratoires Spasmes, inflammations, oedèmes (larynx, bronches)

### Sécurité

Ce produit est stable en conditions ordinaires d'utilisation et de stockage. Il est corrosif et inflammable, mais il n'explose pas, ni ne s'enflamme spontanément dans l'air.

## III. DECANE

Le décane est un liquide incolore stable sentant l'essence. Il est insoluble dans l'eau, mais soluble dans la plupart des solvants.

Formule	<b>C<sub>10</sub>H<sub>22</sub></b>
Synonyme	Alcane C <sub>10</sub>
Poids molaire	142,29g/mol
Indice de réfraction à 20°C	1,412
Densité	0,73g/cm <sup>3</sup>
Densité de vapeur (air=1)	4,9
Viscosité dynamique	0,92mPa.s à 20°C
Viscosité cinématique	1,26mm <sup>2</sup> /s à 20°C
Tension superficielle	25,67mN/m
Point de fusion	-29,7°C
Point de bulle	174°C
Pression de vapeur	0,19kPa à 25°C
Pression critique	2108kPa
Température critique	344,4°C
Point d'éclair (coupelle fermée)	46°C
Température d'auto-inflammation	210°C

### Toxicité

Pas de toxicité particulière

### Sécurité

Le décane est inflammable (point d'éclair à 46°C, auto-inflammation à 210°C).

Limites d'inflammabilité : 0,8-2,6%

Limites d'explosivité : 5,1-5,4%



## IV. TETRACHLOROMETHANE

C'est un liquide incolore, dense, d'odeur caractéristique. Il appartient à la famille des produits organiques halogénés.

Formule	$\text{CCl}_4$
Poids moléculaire	g/mol
Densité à 20°C	1,594g/cm <sup>3</sup>
Point de bulle	76,8°C

### Toxicité

Ce liquide est volatil et **très toxique**. Il se transforme à hautes températures en phosgène.

### Sécurité

Ce produit est volatil mais non inflammable.

## V. TRIBUTYLAMINE

C'est un liquide incolore à jaune, hygroscopique, d'odeur caractéristique (du type amine).

Formule	$(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2)_3\text{N}$
Synonymes	tri-n-butylamine, N,N dibutyl-1-butanamine
poids moléculaire	185,3g/mol
Indice de réfraction	1,429
Densité à 20°C	0,77g/cm <sup>3</sup>
Densité gaz à 20°C	6,4
Point d'éclair (coupelle fermée)	69°C
Point de bulle	216-217°C
Point de gel	-70°C
Pression de vapeur	38,7Pa à 25°C
Température d'autoignition	210°C
Limites inflammabilité dans l'air	1,4-6%

### Toxicité

Le tributylamine est corrosif.

Contact	Conséquences
Peau, yeux	Brûlures, rougeurs, douleurs, ampoules
Ingestion	Douleurs abdominales, sensation de brûlure
Inhalation	Brûlures, toux, essoufflement

### Sécurité

Ce produit est un combustible qui dégage en combustion des fumées et des gaz toxiques. Il est stable, mais réagit violemment avec les oxydants forts et les acides.

## VI. PENTYLAMINE

C'est un liquide incolore.

Formule	$\begin{array}{c} \text{CH}_3\text{CH}_2\text{CHCH}_2\text{CH}_3 \\   \\ \text{NH}_2 \end{array}$
Synonymes	Amylamine, 1-Aminopentane, Monoamylamine, n-Pentylamine, 1-Pentylamine, Pentylamine, 1-Pentanamine, Amylamine (non-spécifique)
Poids moléculaire	87,17g/mol
Indice de réfraction à 20°C	1,412
Densité à 20°C	0,7547g/cm <sup>3</sup>
Densité gaz à 20°C	3,01
Point d'éclair (coupelle fermée)	7,2°C
Point de bulle	104,5°C
Point de gel	-55--50°C
Limites inflammabilité dans l'air	2,2-22%
Solubilités	Très soluble dans l'eau, l'éthanol, l'acétone, l'éther, le benzène

### Toxicité

Ce liquide est modérément toxique ; il peut causer de sévères irritations.

### Sécurité

Ce produit peu volatil est inflammable.

Il est stable à température inférieure à 0°C, mais au-delà, il se **décompose**.

Tout contact avec des oxydants doit être évité.

## VII. PENTAN-3-ONE

Formule	<b>(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>CO</b>
Synonymes	Diéthyl cétone
Poids moléculaire	86,14g/mol
Indice de réfraction à 20°C	1,3924
Densité à 20°C	0,813g/cm <sup>3</sup>
Point d'éclair (coupelle fermée)	12°C
Point de bulle	102°C
Point de gel	-40—39°C
Température d'autoignition	445°C
Pression de vapeur	38hPa
Limites inflammabilité dans l'air	1,6%



Contact	Conséquences
Peau, yeux	Irritations sévères Possibilité d'absorption par la peau ayant les mêmes conséquences que l'ingestion. Inflammation des yeux, larmoiements, douleurs, vision trouble Détérioration de la cornée
Ingestion	Toxique Effet narcotique Douleurs abdominales, nausées, maux de tête, diarrhées Infection du foie et des reins à forte dose Perte d'ouïe
Inhalation	Irritation des voies respiratoires supérieures Respiration difficile, toux, maux de tête, somnolence Possibilité d'absorption dans le sang ayant les mêmes conséquences que l'ingestion.

## Sécurité

Ce produit est inflammable et sensible à l'électricité statique. Au-delà de la température de flash (peu élevée), le mélange air-vapeur est explosif.

Le butanol est stable en conditions ordinaires d'utilisation et de stockage, mais à fortes températures, il se décompose en monoxyde et dioxyde de carbone. Il est incompatible avec les acides minéraux forts, les halogènes, l'aluminium, le trioxyde de chrome et les métaux alcalins.

## IX. CYCLOHEXANOL

Selon la température, le cyclohexanol se présente sous la forme de cristaux incolores hygroscopiques ou sous la forme d'un liquide sirupeux incolore d'odeur de type camphre décelable dès 0,15ppm.

Formule	<b>C<sub>6</sub>H<sub>11</sub>OH</b>
Poids molaire	100,16g/mol
Indice de réfraction à 20°C	1,4650
Densité	0,942
Point de fusion	25,1°C
Point de bulle	160-161°C
Pression de vapeur	0,46kPA à34°C
Point d'éclair coupelle fermée	63°C
coupelle ouverte	68°C
Température d'auto-inflammation	300°C

## Toxicité

VLE=75ppm

VME=50ppm



## ANNEXE II.B : FICHES PRODUITS DES GAZ

### I. AZOTE

L'azote sous forme gazeuse est neutre et incolore. Il est inerte et n'entretient pas la vie.

Symbole chimique		<b>N<sub>2</sub></b>
Masse molaire		25,08g/mol
Phase liquide (au point d'ébullition)	Densité (eau=1)	0,808 à 1,013bar
	Capacité de chaleur massique	-2,042kJ/kg°C
Point d'ébullition	Température	-195,8°C à 1,013bar
	Chaleur latente de vaporisation	199,1kJ/kg
Phase gazeuse	Densité (air=1)	0,9737
	Capacité de chaleur massique	1,04kJ/kg°C
	Masse volumique	1,2506kg/m <sup>3</sup>
Point triple	Température	-210°C
	Pression	12,5kPa abs
Point critique	Température	-146,9°C
	Pression	3399kPa abs
	Masse volumique	314,9kg/m <sup>3</sup>
Conductibilité thermique		0,026W/m K à 300K

### II. OXYGENE

Sous sa forme la plus connue, l'oxygène est un gaz incolore et sans saveur. Il est essentiel à la vie et réagit fortement en présence de nombreuses autres substances chimiques.

Symbole chimique		<b>O<sub>2</sub></b>
Masse molaire		32g/mol
Point triple	Température	-218,8°C
	Pression	0,148kPa abs
Point critique	Température	-188,57°C
	Pression	5043kPa abs
	Masse volumique	436,1kg/m <sup>3</sup>
Conductibilité thermique		0,0263W/m K à 300K

### III. DIOXYDE DE CARBONE

Le dioxyde de carbone gazeux a une odeur légèrement irritante. Il est incolore et plus lourd que l'air. Il gèle à  $-78,5^{\circ}\text{C}$  pour former de la neige carbonique. En solution aqueuse, il forme de l'acide carbonique, qui est trop instable pour pouvoir être isolé facilement.

Symbole chimique		<b>CO<sub>2</sub></b>
Masse molaire		44,01g/mol
Phase liquide (au point d'ébullition)	Densité (eau=1)	1,18 à 1,013bar
	Point d'ébullition	Température -78,5°C à 1,013bar
Phase gazeuse	Chaleur latente de vaporisation	571,3kJ/kg
	Densité (air=1)	1,539
	Capacité de chaleur massique	0,85kJ/kg°C
Point triple	Masse volumique	1,9769kg/m <sup>3</sup>
	Température	-56,6°C
	Pression	517,3kPa abs
Point critique	Température	31,1°C
	Pression	7382kPa abs
	Masse volumique	468kg/m <sup>3</sup>
Conductibilité thermique		0,0168W/m K à 300K

# ANNEXE III.A : DETERMINATION DES TEMPS DE SEJOUR (DTS)

La Détermination des Temps de Séjour (DTS) est une méthode simple permettant d'estimer la structure de l'écoulement et le degré de mélange de la phase liquide. Dans cette étude, elle est utilisée à la fois pour caractériser et pour modéliser l'écoulement liquide dans la colonne, modélisation nécessaire lors de l'estimation du transfert de matière. Cette annexe présente l'ensemble de la démarche adoptée pour évaluer le nombre de RAC en série caractérisant le mélange liquide dans la colonne.

## I. BIBLIOGRAPHIE ET MISE EN ŒUVRE DE LA METHODE

Pour la mise en œuvre des essais de DTS, il faut choisir dans un premier temps les caractéristiques de l'injection (traceur, mode d'injection, quantités). Ensuite, la mesure doit être mise en place (appareillage, acquisition, position des points de mesures) et pour finir, une méthode de traitement des données doit être adoptée. Ces trois points sont successivement abordés dans ce paragraphe.

### I.1. Injection

La caractérisation de l'injection consiste à déterminer :

- \_ La nature du traceur (et la technique de suivi de sa concentration),
- \_ Le mode d'injection,
- \_ La quantité de traceur utilisée.

#### I.1.a. Choix du traceur

Le traceur doit être choisi avec soin et doit respecter les contraintes suivantes [Torres et Oliveira (1998)] :

- \_ Il doit être miscible et avoir des propriétés physiques similaires à celles du fluide étudié.
- \_ Il doit être détectable à faibles concentrations, afin de minimiser la quantité à injecter et donc d'affecter le moins possible l'écoulement principal.
- \_ La grandeur suivie doit être facilement accessible et doit être proportionnelle à la concentration en traceur.
- \_ Le traceur ne doit pas s'adsorber en paroi, ni transférer en phase gazeuse

En phase liquide, les méthodes de mesure les plus couramment utilisées sont :

- \_ La conductimétrie,
- \_ La pH-métrie,
- \_ Les techniques optiques,
- \_ La colorimétrie,
- \_ La phosphorescence,
- \_ La spectrométrie UV-visible,



- \_ Les techniques de radiations,
- \_ La mesure de température.

Parmi ces techniques, la conductimétrie est sans conteste la plus utilisée, du fait de sa simplicité, de sa rapidité et de son applicabilité in situ.

Compte tenu de la rapidité de nos phénomènes (les valeurs du temps de séjour théorique ( $V_L/Q_L$ ) dans notre installation varient entre 19 et 50s), cette technique de mesure est particulièrement adaptée à notre situation. La seule limitation de cette métrologie est qu'elle suppose l'utilisation de milieux conducteurs ; elle ne peut donc pas être envisagée pour les milieux organiques, ce qui pose le problème de la caractérisation de l'écoulement en cyclohexane. Pour pallier ce problème, il existe certes des méthodes de caractérisation utilisables pour les deux milieux, comme le traçage radio-actif, mais leur mise en œuvre est beaucoup plus délicate. Cette étude est donc restreinte à la seule caractérisation de la colonne en eau, en supposant qu'elle diffère peu de celle en cyclohexane, ce qui, bien entendu, peut être sujet à discussion.

***En eau, la méthode de DTS envisagée repose sur le suivi de la conductivité en sortie de colonne suite à l'injection d'un traceur salin en entrée.***

Auteurs	Appareil	Traceur	Type injection	Mode injection	Quantité
Dhaoudi et al. (1996)	Airlift à boucle externe	NaOH	impulsion		5mL d'une solution à 6N
Iliuta et al. (1996)	Lit fixe	KCl	impulsion	seringue	1M
Gavrilescu et Tudose (1999)	Airlift interne	NaCl	impulsion	seringue	10mL d'une solution saturée
Bercic et Pintar (1997)	Capillaire	KMnO <sub>4</sub>	échelon		solution 20g/L à 60mg/L
Higler et al. (1999)	Lit fixes structurés	NaCl	impulsion		solution saturée
Iliuta et al. (1999)	Trickled bed	KCl	impulsion	seringue	
Van Hasselt et al. (1999)	Trickled bed	KCl	impulsion	injection (0,25s)	1N
Krishna et al. (2000c)	Colonne à bulles	NaCl	impulsion		volumes variables de solution saturée
Chander et al. (2001)	Lit fixe	HCl	impulsion	seringue	
Dreher et Krishna (2001)	Colonne à bulles	NaCl	impulsion batch		
Giojelli et al. (2001)	Lit fluidisé	KCl	impulsion		
Melo et al. (2001)	Réacteur liquide	KCl	impulsion		3,1mL
Moustiri et al. (2001)	Colonne à bulles	NaCl	impulsion		
Perrin et al. (2002)	Colonne à garnissage	NaCl	impulsion	réceptier sous pression	
Bruce et al. (2003)	Lit turbulent	NaCl	impulsion	seringue (1/10s)	
Forret et al. (2003)	Colonne à bulles	KNO <sub>3</sub>	impulsion batch		
Renganathan et Krishnaiah (2004)	Lit fluidisé	NaCl	impulsion		5mL à 5N
Thakur et al. (2003)	Colonne agitée	NaCl	impulsion		1mL à 50g/L
			échelon		solution à 0,5g/L

*Tableau 1 : Conditions opératoires des essais de DTS reposant sur le suivi de la conductivité*

Il reste alors à déterminer la nature du sel à injecter dans l'installation. Les sels classiquement utilisés sont (cf. Tableau 1) : NaCl, KCl, HCl,  $\text{KMnO}_4$ , NaOH et  $\text{KNO}_3$ .

Ce choix n'ayant pas d'effet sur les résultats [Gavrilescu et Tudose (1999)], il est réalisé selon la convenance des expérimentateurs. Dans notre cas, l'installation étant en inox, les sels chlorés (NaCl, KCl) sont proscrits, mais la soude et la potasse peuvent être envisagées sans encombre. Parmi ces sels, notre choix s'est arbitrairement porté sur la potasse (hydroxyde de potassium).

### I.1.b. Injection du traceur

Pour introduire le traceur dans l'installation, les injections les plus parfaites possibles sont recherchées, car elles facilitent l'analyse ultérieure des courbes de DTS [Torres et Oliveira (1998)]. Les injections les plus couramment envisagées sont (cf. Tableau 1) les échelons de concentration (le liquide initial est brusquement remplacé par une solution additivée) et les injections en Dirac (ou impulsion) (une petite quantité de sel est brusquement envoyée dans l'installation). Ces deux types d'injection conduisent aux mêmes résultats [Thakur et al. (2003)], mais l'injection de type Dirac, bien que plus difficile à mettre en œuvre de manière « parfaite » et sans perturbation de l'écoulement, est souvent préféré, car il perturbe moins longtemps le système [Bercic et Pintar (1997) et Torres et Oliveira (1998)].

***Pour notre application, le choix est simple : le fonctionnement étant en batch sur le liquide, seul l'impulsion est envisageable.***

Pour que celui-ci soit le plus parfait possible, l'utilisation d'un by-pass (insertion dans le circuit liquide) [Burkhardt et al. (2002)] est préférable à l'injection de type « seringue » (injection brusque du traceur dans la canalisation à l'aide d'une seringue ou à partir d'un récipient sous pression), pourtant la plus courante (cf. Tableau 1), car la dispersion radiale du traceur est minimisée. En effet, pour qu'une injection sous forme de Dirac soit satisfaisante, il faut que :

- \_ L'injection soit courte, c'est-à-dire d'une durée très inférieure au temps de séjour,  $\tau$ ,
- \_ La dispersion du traceur avant l'entrée dans le réacteur soit négligeable,
- \_ Le volume de traceur soit très faible devant de volume du réacteur.

Le système d'injection élaboré pour notre installation est schématisée ci-dessous (cf. Figure 1) ; il se compose de deux vannes trois voies commandées pneumatiquement, afin d'être actionnées simultanément et d'ainsi assurer la meilleure injection. Lors du basculement, l'intégralité de la circulation liquide passe par la canalisation contenant la solution saline, théoriquement sans subir de perturbation particulière, car la section de passage des vannes trois voies est égale au diamètre de la canalisation.

Le temps d'injection, autre paramètre à minimiser pour limiter la non-idéalité de l'injection, est estimé en mesurant au cours du temps la conductivité en entrée de colonne.

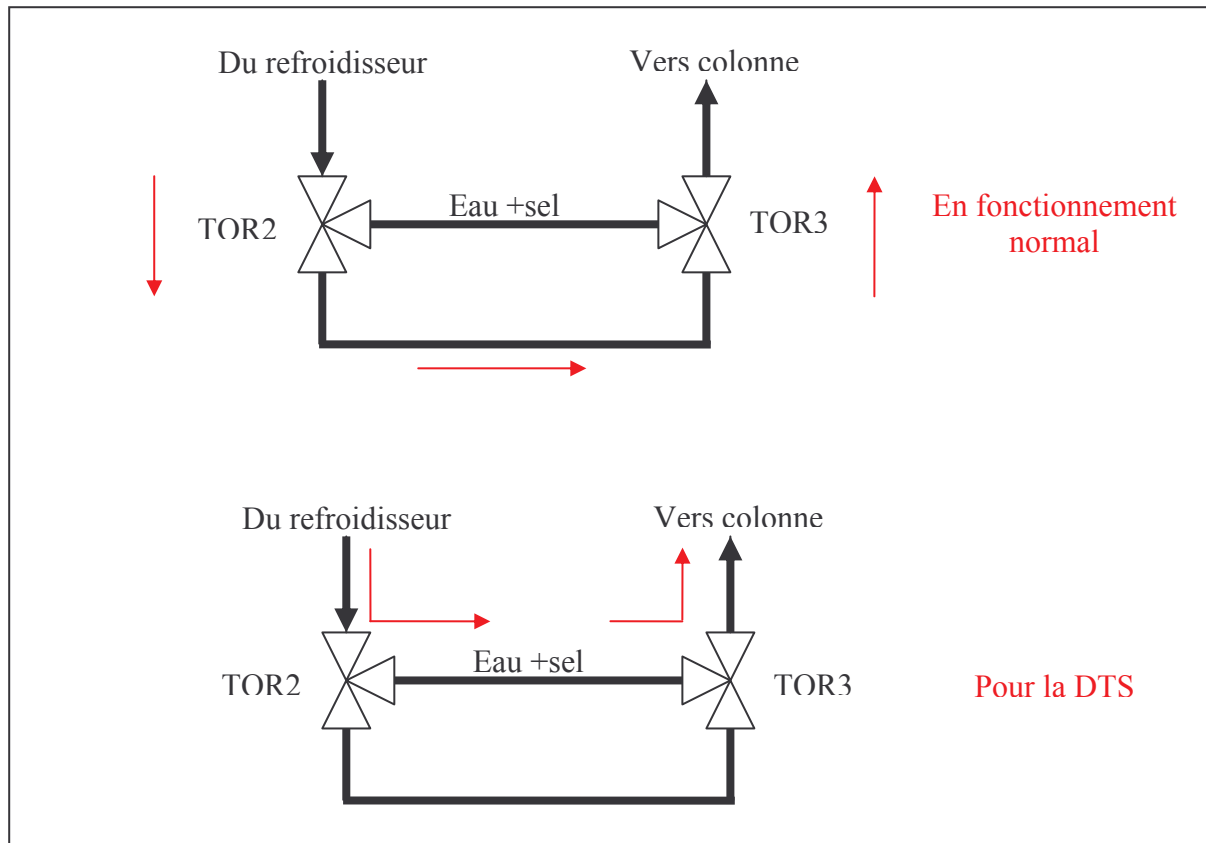


Figure 1 : Injection du traceur

### I.1.c. Quantité de traceur

#### I.1.c.α. Quantité de sel

Le nombre de moles de traceur à injecter doit d'une part être suffisant pour que le signal mesuré en sortie ait une amplitude suffisante pour permettre un traitement fiable, mais pas trop élevé pour que l'hydrodynamique de la colonne ne soit pas perturbée par la modification des caractéristiques du milieu (et que le signal reste compris dans la gamme de mesure du conductimètre !).

Pour notre application, s'ajoute à cela une contrainte supplémentaire : l'installation fonctionnant en circuit fermé, l'élévation finale de la conductivité dans l'installation doit être limitée de manière à ce qu'un nouvel essai puisse être réalisé sans avoir à vider systématiquement l'installation. En effet, la purge systématique du système est peu réaliste, car elle nécessiterait plus de 2 heures entre chaque essai. Il faut donc d'une part que le sel résiduel ne modifie pas trop les propriétés du liquide, et d'autre part qu'un autre essai puisse être réalisé dans la foulée à partir de cette nouvelle ligne de base (tout en restant dans l'échelle de mesure du conductimètre).

*Après quelques ajustements, la quantité de sel utilisée dans nos essais est fixée à 8-10g (pour environ 150L de liquide).*

#### I.2.c.β. Volume de solution

Pour que l'injection soit la plus « parfaite » possible, le volume de liquide contenant le traceur doit être minimal (négligeable devant le volume de la colonne). A cet effet, les solutions

utilisées dans la littérature sont très concentrées, ce qui ramène le volume injecté à quelques mL (cf. Tableau 1).

Cette alternative n'est cependant pas applicable dans notre cas, car le volume minimal injecté ne dépend pas seulement de la valeur de saturation du sel dans l'eau, mais également de la technologie d'injection : la présence des deux vannes trois voies implique un volume minimal imposé par la tuyauterie.

***Le volume d'eau additive injecté dans notre installation est alors de 600mL, soit 1,2% du volume de la colonne, ce qui demeure raisonnable.***

## I.2. Mesure de la conductivité

La détection du sel injecté repose, comme énoncé précédemment, sur la mesure de la conductivité du milieu. Il s'agit ici de déterminer les caractéristiques du capteur utilisé, les paramètres d'acquisition adéquats, ainsi que les emplacements optimaux du capteur.

### I.2.a. Caractérisation du conductimètre et du capteur associé

#### I.2.a.α Matériel

Compte tenu des temps de séjour attendus (entre 19 et 50s selon les configurations), le temps de réponse du conductimètre doit être rapide. La plupart des conductimètres de laboratoire, englobant de nombreuses corrections, ne fournissent des valeurs que toutes les 4s environ ; un conductimètre de type industriel est donc préféré. L'appareil retenu pour cette étude est un conductimètre de la série RC 3000 de marque Heito. Sa linéarité est vérifiée à l'aide d'une boîte à décades (résistances variables), en vérifiant que la sortie est bien proportionnelle à la conductivité imposée en entrée (cf. Figure 2, où le facteur  $\alpha$  est réglable à partir du conductimètre et permet l'étalonnage de la sonde associée au conductimètre).

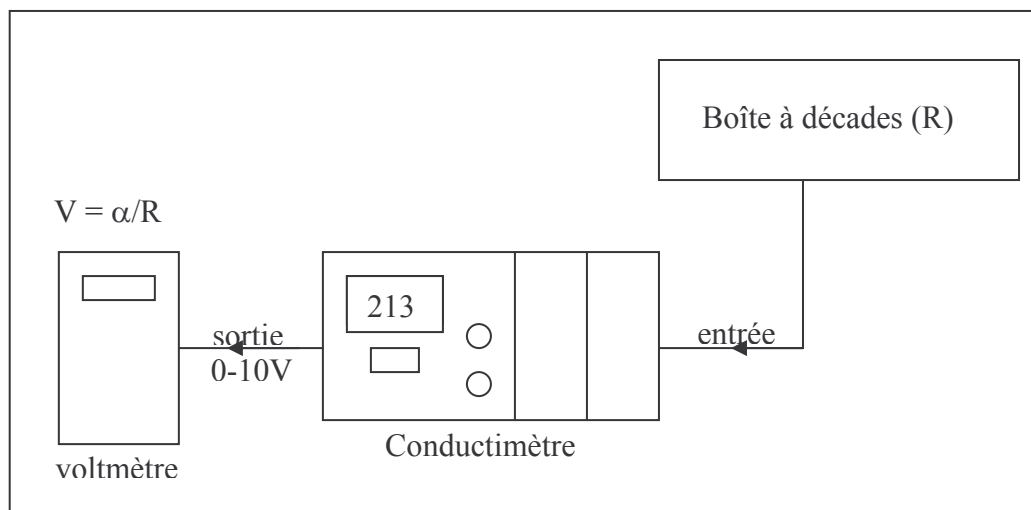


Figure 2 : Vérification de la linéarité du conductimètre

Il s'agit à présent de connecter à cet appareil une sonde appropriée, c'est-à-dire une sonde ayant une réponse linéaire et n'ajoutant aucun retard. La sonde retenue est une sonde commerciale Radiometer constituée de deux plaques de platines platinées insérées dans un corps en verre de 12mm de diamètre (cf. Figure 3).



Figure 3 : Sonde de conductivité utilisée

### *1.2.a.β. Caractéristiques*

Le temps de réponse de l'ensemble sonde + conductimètre est estimé en enregistrant le signal de sortie de l'appareil correspondant au brusque passage de la sonde de l'air à l'eau. La réponse obtenue est représentée sur la Figure 4 : le temps de réponse à 95% est de 1,2s, temps convenable pour suivre nos phénomènes.

Enfin, la stabilité dans le temps du signal a été évaluée : l'écart-type observé sur 15 minutes est inférieur à 2%.

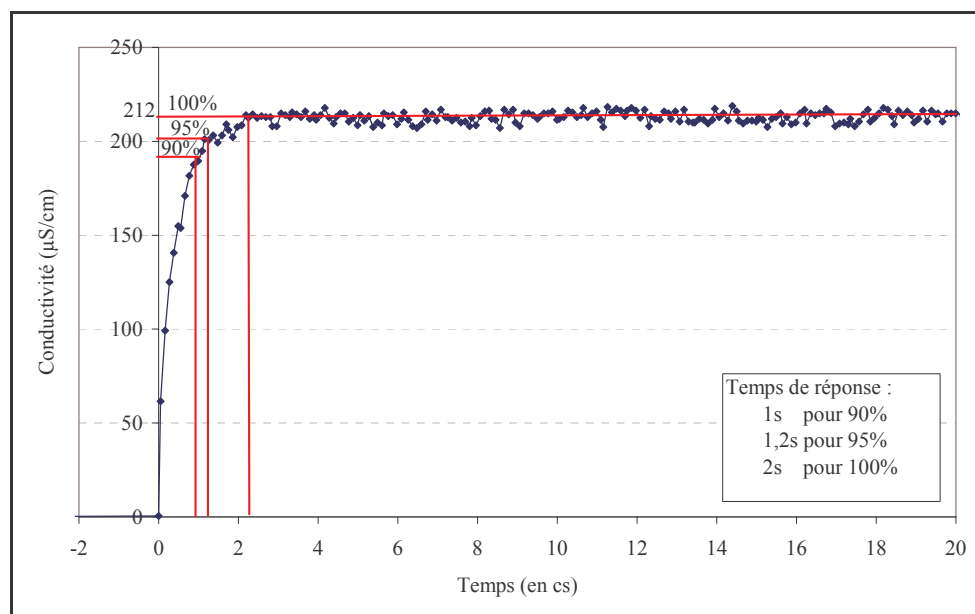


Figure 4 : Temps de réponse de l'ensemble sonde + conductimètre

### *1.2.a.γ. Etalonnage*

La linéarité de la réponse du conductimètre, propriété fondamentale pour la DTS [Bercic et Pintar (1997), Torres et Oliveira (1998), Burkhardt et al. (2002)], est testée en mesurant la conductivité de solutions salines de concentrations connues (cf. Figure 5) : la linéarité entre la conductivité et la concentration est vérifiée sauf à faibles concentrations. Ce phénomène, confirmé avec un autre conductimètre, montre que la linéarité de la conductivité n'est pas vraie sur toute la gamme de valeurs de concentration. Ainsi, lors de nos essais, les valeurs de conductivité inférieures à  $200\mu\text{S/cm}$  sont évitées. Au-delà, la relation linéaire liant la conductivité à la concentration permet de traduire correctement les courbes de conductivités en terme de concentrations en sel.

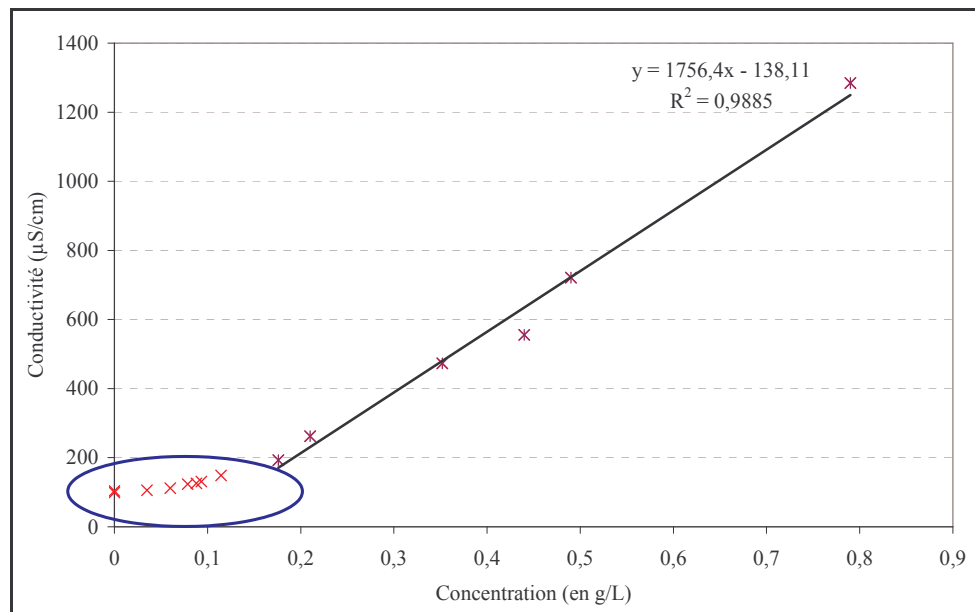


Figure 5 : Etalonnage du conductimètre

### I.2.b. Acquisition des données

#### I.2.b.α. Fréquence d'acquisition

Compte tenu de la rapidité de nos phénomènes, la fréquence d'acquisition doit être suffisante pour que le signal enregistré puisse être traité le plus précisément possible. La fréquence retenue est de 10Hz, ce qui représente 190 à 500 points enregistrés avant d'atteindre le temps de séjour moyen. Cette valeur est cohérente avec celles utilisées dans la littérature (cf. Tableau 2).

Auteurs	Appareil	Phase tracée	Méthode de mesure	Fréquence de mesure	Nombre d'essais
Nadeau et al. (1996)	Réacteur	gaz	spectro IR	2 à 8Hz	
Zahradnik et Fiavola (1996)	Colonne à bulles	liquide	UV		3
Giojelli et al. (2001)	Lit fluidisé	liquide	conductivité		3
Forret et al. (2003)	Colonne à bulles	liquide	conductivité		3
Harris et al. (2003a et b)	Lit fluidisé circulant	solide			4
Renganathan et Krishnaiah (2004)	Lit fluidisé	liquide	conductivité	25Hz	5 à 10
Thakur et al. (2003)	Colonne agitée	liquide	conductivité	1Hz	
Yang et Fan (2003)	Colonne à bulles	liquide	température	1 Hz	

Tableau 2 : Paramètres d'acquisition de la conductivité

#### I.2.b.β. Nombre d'essais

Le nombre d'essais réalisés est un paramètre important, car les essais de DTS sont réputés pour être peu re

### 1.2.b.γ Durée des essais

En ce qui concerne la durée des essais, il est connu qu'elle doit être supérieure à trois fois le temps de séjour de l'appareil étudié (la colonne). La durée de 4 à 5 minutes vérifie cette condition et permet d'assurer une concentration stable en sel en fin d'essai.

### 1.2.c. Emplacement de la sonde

Les modalités d'injection et de détection fixées, il ne reste plus qu'à déterminer les positions de la sonde dans la colonne.

Pour évaluer la qualité de l'injection du traceur et la prendre en compte au cours du traitement, un piquage est réalisé sur la canalisation d'alimentation en liquide de la colonne.

Pour le suivi de la concentration en sortie de colonne, il est souhaitable que la sonde voit passer l'ensemble du liquide de la colonne. Iliuta et al. (1996) ont déterminé l'emplacement idéal comme étant celui où la quantité de sel vue est la plus proche de celle injectée. Pour que cette condition soit réalisée en colonne, il faudrait pouvoir mesurer la concentration sur toute la section de sortie, ce qui serait très lourd. Les auteurs préfèrent donc en général effectuer la mesure, lorsque c'est possible (c'est-à-dire en présence de circulation liquide), sur la canalisation de sortie [Bruce et al. (2003), Moustiri et al. (2001)] (cf. Tableau 3).

Auteurs	Appareil	Liquide	Mesure	Emplacement sonde
Dhaoudi et al. (1996)	Airlift	eau	conductivité	6 positions axiales
Higler et al. (1999)	Lit fixes structurés	eau	conductivité	centre colonne
Krishna et al. (2000c)	Colonne à bulles batch	eau	conductivité	3 positions axiales
Moustiri et al. (2001)	Colonne à bulles	eau	conductivité	surverse
Bruce et al. (2003)	Lit turbulent	eau	conductivité	sortie
Forret et al. (2003)	Colonne à bulles batch	eau	conductivité	2 points radiaux

Tableau 3 : Emplacement de la sonde conductimétrique

En vertu de ces observations, la sonde est placée dans notre installation en sortie de surverse (cf. Figure 6), seul point où la totalité du liquide est contraint de passer. Ceci conduit à caractériser de pair la colonne et sa surverse. Néanmoins, le comportement de celle-ci ne devrait pas trop influencer sur la mesure puisqu'il a été observé visuellement que le niveau dans la surverse reste faible quels que soient les débits de liquide et de gaz (de l'ordre de 1L, soit 2% du volume de la colonne) : son niveau affleure la canalisation de sortie. Ainsi, même si cette configuration n'est pas optimale, elle permet de réaliser des mesures fiables (passage de l'ensemble du liquide) et peu perturbées par la présence de bulles. Par ailleurs, pour des raisons pratiques similaires, le transfert de matière sera évalué dans la même zone ; il peut donc s'avérer intéressant de connaître le comportement conjoint de la colonne et de sa surverse.

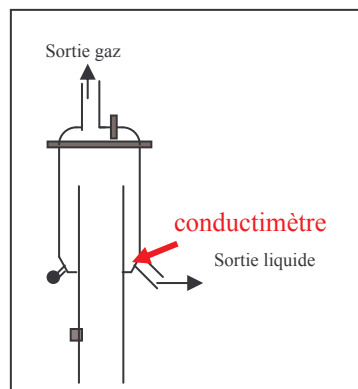


Figure 6 : Emplacement du conductimètre en sortie de colonne

### I.3. Traitement des données

Afin de caractériser l'écoulement liquide, les données acquises doivent à présent être traitées. Ce traitement consiste principalement à rechercher le modèle de réacteurs associé à l'appareil utilisé et/ou à identifier les paramètres d'un modèle.

#### I.3.a Fonction de distribution de temps de séjour

Pour le traitement des données issues d'une injection en Dirac, la concentration est systématiquement utilisée sous sa forme adimensionnelle, appelée fonction de distribution de temps de séjour,  $E(t)$ . Elle est définie par :

$$E(t) = \frac{c(t)}{\int_0^{\infty} c(t) dt}$$

où  $c(t)$  est la concentration en traceur au temps  $t$

Cette fonction est soit utilisée telle quelle, soit après transformée de Laplace. Cette seconde alternative complique les calculs mais permet de déconvoluer les signaux et de prendre en compte la forme du signal d'injection, lorsque celle-ci est imparfaite [Nadeau et al. (1996), Perrin et al. (2002), Renganathan et Krishnaia (2004), Ramirez et Cortes (2004)].

Il est également usuel d'utiliser au lieu de  $t$  un temps adimensionnel,  $\theta=t/\tau$ , temps normé par le temps de séjour moyen dans l'appareil étudié.

#### I.3.b. Modèles

Comme l'indiquent les données du Tableau 4, les modèles les plus couramment retenus reposent sur l'estimation d'un paramètre unique :

- \_ Le nombre de Peclet pour le modèle piston-dispersion,
- \_ Le nombre de RAC en série pour le modèle RAC en cascade,
- \_ Et plus rarement la fraction volumique du piston pour le modèle comportant un piston et un RAC en série.

Lorsque ces modèles s'avèrent insuffisants ou pour une connaissance plus approfondie de l'écoulement, des modèles plus complexes comportant davantage de paramètres peuvent être envisagés, comme la construction de réseaux de réacteurs.

*Dans notre cas, un modèle à un paramètre est a priori suffisant, car ces modèles simples permettent de représenter assez bien les écoulements. En outre, ils sont utilisables facilement dans les modèles de transfert de matière.*

#### I.3.c. Résolution

Pour identifier le ou les paramètre(s) du modèle retenu, il faut résoudre les équations différentielles régissant l'écoulement (conservation de masse) et déterminer le (ou les) paramètre(s) minimisant les écarts avec la courbe expérimentale. Cette méthode générale permet de prendre en compte la non idéalité de l'injection et des modèles complexes.

Pour les modèles à un paramètre, il existe des méthodes simplificatrices : ce sont les approches graphiques et en moments.

Ces trois méthodes sont successivement décrites.



Auteurs	Modèle	Résolution
Dhaoudi et al. (1996)	Modèle de réacteurs	Equations différentielles
Iliuta et al. (1996)	Modèle piston dispersion englobant la porosité	Equations différentielles
Nadeau et al. (1996)	Modèle piston dispersion	Analyse de l'aspect des courbes Equations différentielles
Zahradnik et Fiavola (1996)	Modèle piston dispersion axiale	Moments
Bercic et Pintar (1997)	Modèle de réacteurs	Analyse de l'aspect des courbes Equations différentielles
Kiared et al. (1997)	Modèle de réacteurs	
Gavrilescu et Tudose (1999)	Modèle RAC en série Modèle piston dispersion	Equations différentielles initialisées avec les moments
Higler et al. (1999)	Modèle piston dispersion	Moments Comparaison avec la CFD
Iliuta et al. (1999)	Modèle de réacteurs	
Van Hasselt et al. (1999)	Modèle RAC en série, Modèle de réacteurs	Equations différentielles
Krishna et al. (2000c)	Modèle piston dispersion Modèle prédictif fonction de la vitesse liquide au centre de la colonne	Equations différentielles
Paterson et al. (2000)	Temps de mélange Modèle de réacteurs	Analyse de l'aspect des courbes Equations différentielles
Chander et al. (2001)	Modèle piston dispersion	Moments
Giojelli et al. (2001)		Comparaison des trois méthodes (graphique, moments et optimisation)
Jahmshidi et al. (2001)	Calcul du temps de mélange	Analyse de l'aspect des courbes
Melo et al. (2001)	Calcul du temps de séjour Modèle de réacteurs	
Moustiri et al. (2001)	Modèle piston dispersion Développement d'un modèle prédictif	Equations différentielles
Pareek et al. (2001)	Modèle de réacteur	Equations différentielles
Burkhardt et al. (2002)	Modèle dynamique piston dispersion	Equations différentielles
Genin et al. (2002)	Modèle RAC en série	Moments
Lelinski et al. (2002)	Temps de séjour moyen	Moments
Mao et al. (2002)	Modèle CFD du temps de séjour moyen et du transfert	
Nigam et al. (2002)		Equations différentielles
Perrin et al. (2002)	Modèle dynamique piston dispersion	Equations différentielles
Bruce et al. (2003)	Modèle piston dispersion	Equations différentielles
Forret et al. (2003)	Modèle piston dispersion	Equations différentielles
Harris et al. (2003a et b)	Temps de séjour	Moments
Renganathan et Krishnaiah (2004)	Modèle piston dispersion	Equations différentielles
Thakur et al. (2003)		Allure des courbes
Yang et Fan (2003)	Modèle piston dispersion	
Ramirez et Cortes (2004)		Allure des courbes

Tableau 4 : Traitement des données

### 1.3.c. $\alpha$ Résolution directe : minimisation

Pour les modèles classiques à un paramètre (piston dispersion et RAC en série), selon les conditions aux limites, la résolution peut parfois être simplifiée du fait de l'existence d'une solution analytique. Il suffit alors de minimiser l'écart entre les courbes expérimentales et théoriques de  $E(t)$ .

Quelles que soient les conditions d'entrée-sortie, l'expression analytique associée au modèle des RAC en série s'écrit :

$$E(t) = \frac{(t/\tau')^{N_{RAC}-1} e^{-t/\tau'}}{\tau' (N_{RAC} - 1)!}$$

avec  $\tau' = \tau N_{RAC}$

où :  $\tau$  est le temps de séjour

$N_{RAC}$  est le nombre de RAC en série

En ce qui concerne le modèle piston-dispersion, il n'existe aucune expression analytique associée à nos conditions géométriques d'entrée et de sortie de colonne (fermé en entrée et en sortie). En revanche, pour des conditions limites « ouvertes » (sans changement de diamètre) en entrée et sortie, on aurait :

$$E(\theta) = \frac{1}{2\sqrt{\pi\theta/Pe}} \exp\left(-\frac{Pe(1-\theta)^2}{4\theta}\right)$$

où :  $\theta$  est le temps adimensionnel ( $t/\tau$ )

### ***1.3.c.α Approches graphiques***

L'approche graphique nécessite une injection parfaite de type Dirac. Selon le modèle à un paramètre retenu, deux approches graphiques ont été répertoriées :

- \_ La première, associée au modèle piston-dispersion, relie le nombre de Peclet à la largeur du pic de sortie selon [Levenspiel (1972)] :

$$Pe = \frac{8}{la^2}$$

où  $la$  est la largeur du pic à 61% du maximum de la courbe de l'évolution de la concentration en fonction de  $\theta$  (temps normé par  $\tau$ ).

- \_ La seconde, associée au modèle RAC en série, relie le nombre  $N$  de RAC en série à  $t_{max}$ , temps nécessaire après l'injection du traceur pour atteindre le pic de concentration, et au temps de séjour,  $\tau$  :

$$N_{RAC} = \frac{1}{1 - \frac{t_{max}}{\tau}}$$

Bien que très faciles à mettre en œuvre, ces méthodes demeurent très peu utilisées, car peu précises. Elles sont évaluées ici.

### ***1.3.c.β Méthode des moments***

La méthode des moments est très utilisée, car elle permet de relier simplement le nombre de RAC en série ou le nombre de Peclet aux moments de la fonction de sortie [Giojelli et al. (2001)].

Cette méthode, moins fiable et moins précise que la résolution directe des équations différentielles [Torres et Oliveira (1998), Perrin et al. (2003)], est souvent utilisée comme

initialisation de celle-ci [Torres et Oliveira (1998), Perrin et al. (2003)]. Contrairement à la méthode graphique, elle permet de prendre en compte une injection imparfaite en calculant l'écart entre les moments en entrée et en sortie.

Les moments utilisés sont :

$$\text{Moment d'ordre 0 : } M = \int_0^{\infty} E(t)dt = 1 \quad (\text{car } E \text{ est normé})$$

$$\text{Moment d'ordre 1 : } t_m = \frac{\int_0^{\infty} tE(t)dt}{\int_0^{\infty} E(t)dt} = \int_0^{\infty} tE(t)dt \quad (\text{temps de séjour moyen})$$

$$\text{Moment d'ordre 2 : } \sigma^2 = \int_0^{\infty} (t - t_m)^2 E(t)dt \quad (\text{écart-type})$$

$$\text{Moment d'ordre 3 : } s^3 = \int_0^{\infty} (t - t_m)^3 E(t)dt \quad (\text{asymétrie})$$

Les paramètres suivants complètent parfois les précédents :

\_ Le coefficient de variation :  $C_V = \frac{\sigma}{t_m}$  [Harris et al. (2003a et b)]

\_ Le temps auquel la concentration en sel devient non nulle [Harris et al. (2003a et b)]

\_ Le temps auquel la concentration en sel a atteint la moitié de sa hauteur (cas d'un échelon) [Harris et al. (2003a et b)]

Le nombre de Peclet et le nombre de RAC sont déduits à partir des moments d'ordre 1 et 2, selon :

\_ Modèle piston-dispersion axiale en colonne à bulle « fermée –fermée » :

$$t_m = \tau$$

$$\frac{\sigma^2}{\tau^2} = \frac{2}{Pe} + \frac{2}{Pe^2}(1 - e^{-Pe})$$

\_ Modèle RAC en série :

$$t_m = \tau$$

$$\frac{\sigma^2}{\tau^2} = \frac{1}{N_{RAC}}$$

Pour les écoulements suffisamment « piston » ( $N$  ou  $Pe$  suffisamment grand), ces deux modèles deviennent équivalents et sont reliés par :

\_  $Pe=2N_{RAC}$  lorsqu'on est proche du cas piston

\_  $Pe=2(N_{RAC}-1)$  entre les deux cas idéaux (cas RAC et piston)

***Pour simplifier les calculs du transfert, le modèle d'écoulement adapté ici est celui du nombre de RAC en série.***

## II. EVALUATION DE LA METHODE

Les conditions opératoires analysées ici en terme de temps de séjour correspondent aux conditions pour lesquelles l'hydrodynamique a été le mieux étudiée, c'est-à-dire celles ayant fait l'objet de profils locaux. Trois configurations de colonne sont étudiées :

- \_ Colonne vide avec distributeur 1 (trous de 1mm),
- \_ Colonne vide avec distributeur 2 (trous de 0,5mm),
- \_ Colonne avec plateaux et avec distributeur 1.

Pour chacune d'entre elles, deux débits de liquide sont envisagés (3,5cm/s et 7cm/s), ainsi que 3 débits de gaz (4, 9 et 13cm/s environ). Chacun de ces cas fait l'objet de 5 à 8 essais consécutifs, sans purge intermédiaire, ce qui se traduit par une augmentation progressive de la conductivité de base au fil des essais. L'installation est ensuite purgée et l'eau changée pour le passage à d'autres conditions opératoires.

### II.1. Evaluation de l'injection

L'injection du traceur sous forme de Dirac est examinée afin d'estimer son écart à une injection parfaite. Pour cela la dynamique des vannes « 3 voies » et le signal de conductivité en entrée sont successivement abordés.

Les vannes ne changent pas de position instantanément, ce qui cause à la fois une imperfection du Dirac et une modification ponctuelle du débit liquide. Le temps mis par les vannes pour changer de position est inférieur à 1s, soit 2 à 5% du temps de séjour moyen ; cette injection est donc a priori satisfaisante.

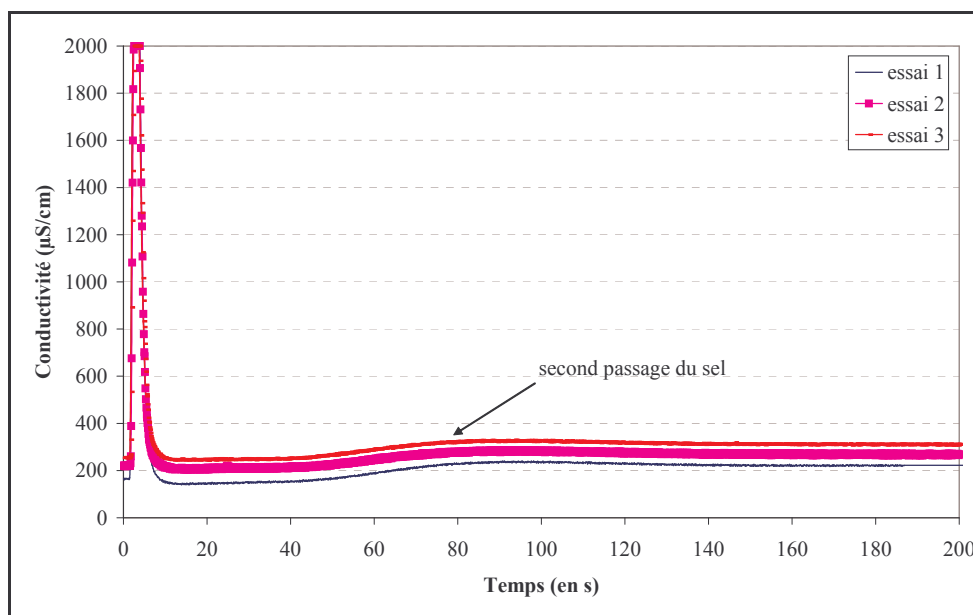


Figure 7 : Signaux de conductivité en entrée de colonne ( $u_L=3,5\text{cm/s}$ )

Pour valider cela, la conductivité est mesurée en entrée de colonne. Les signaux obtenus pour trois essais successifs sont représentés sur la Figure 7 :

- \_ La ligne de base s'élève progressivement au fil des essais du fait d'un fonctionnement batch sur le liquide dans le pilote.
- \_ Les signaux sont reproductibles, l'injection est identique pour tous les essais réalisés à un débit liquide donné.

- Après un retour rapide à la ligne de base, le signal présente un second pic, correspondant à un second passage du sel dans la colonne après que celui-ci ait parcouru toute l'installation. La faible amplitude de ce pic montre que le mélange est alors quasiment uniforme dans l'installation.

*Cette figure témoigne également de la bonne qualité de l'injection, car le pic obtenu est très pointu. Les caractéristiques de l'injection sont reportées dans Tableau 5 : cette injection présente un retard, mais son écart-type demeure très faible. L'écart au Dirac est très modéré.*

	$u_L=3,5\text{cm/s}$	$u_L=7\text{cm/s}$
$T_m$ (retard)	3,13s	2,2s
$\sigma$ (étalement)	1	0,27

Tableau 5 : Caractéristiques de l'injection

## II.2. Résultats bruts

L'analyse des résultats bruts en conductivité permet de vérifier le bon déroulement des essais.

### II.2.a. Allure générale des courbes

La Figure 8 représente un exemple-type de l'évolution de la conductivité au cours du temps en sortie de colonne après injection du sel au temps  $t=0$ .

Toutes les courbes ont un comportement similaire, ce qui œuvre en faveur d'une bonne reproductibilité, et une allure en accord avec celles classiquement rencontrées. Il est en outre vérifié que, d'une part, la conductivité obtenue en fin d'essai correspond bien à celle servant de ligne de base à l'essai suivant, et que d'autre part l'augmentation de la conductivité de la ligne de base au cours d'un essai concorde avec la quantité de sel ajoutée.

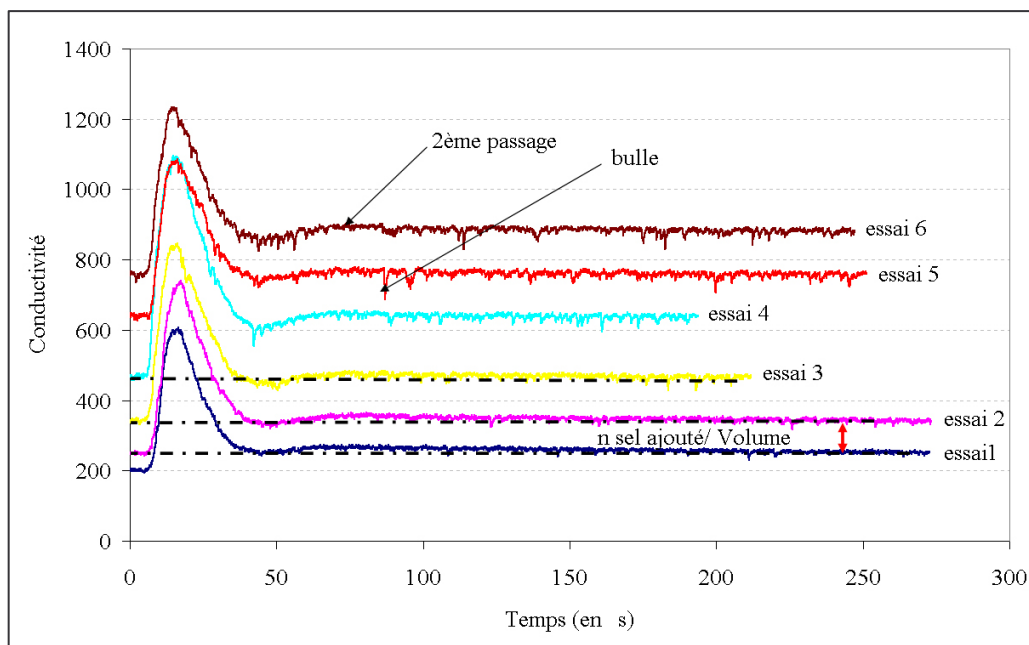


Figure 8 : Courbes brutes de l'évolution de la conductivité après injection du traceur pour 6 essais consécutifs (eau, distributeur 1,  $u_L=7\text{cm/s}$ ,  $u_G=9,2\text{cm/s}$ )

Toutefois, ces courbes présentent une particularité gênante pour le traitement : la courbe de DTS ne revient jamais à sa ligne de base initiale, car une partie du traceur est détectée une

seconde fois avant que l'ensemble du sel injecté n'ait quitté la colonne. Cette recirculation liquide se caractérise par l'existence d'une seconde « bosse » de conductivité. Le découplage des signaux propres à chaque passage s'annonce délicat.

Enfin, de manière plus anecdotique, les courbes ci-dessus comportent quelques décrochements vers le bas, correspondant probablement au passage de bulles sur la sonde. Ces passages sont d'autant plus fréquents que la conductivité de base est élevée : il est probable que l'augmentation de la concentration en sel dans l'installation induise une modification de l'écoulement dans la colonne et favorise la formation, ou la stabilisation, de petites bulles, plus facilement entraînées avec le liquide.

### II.2.b. Taux de vide

L'augmentation du taux de vide avec la salinité (cf. Figure 9) conforte l'hypothèse précédente : le comportement de la colonne est affecté par l'ajout de sel ; le nombre de bulles augmente. Il s'agit alors de déterminer si cette modification influe sur la détermination du temps de séjour. Cette réponse est apportée par l'étude de la reproductibilité des essais.

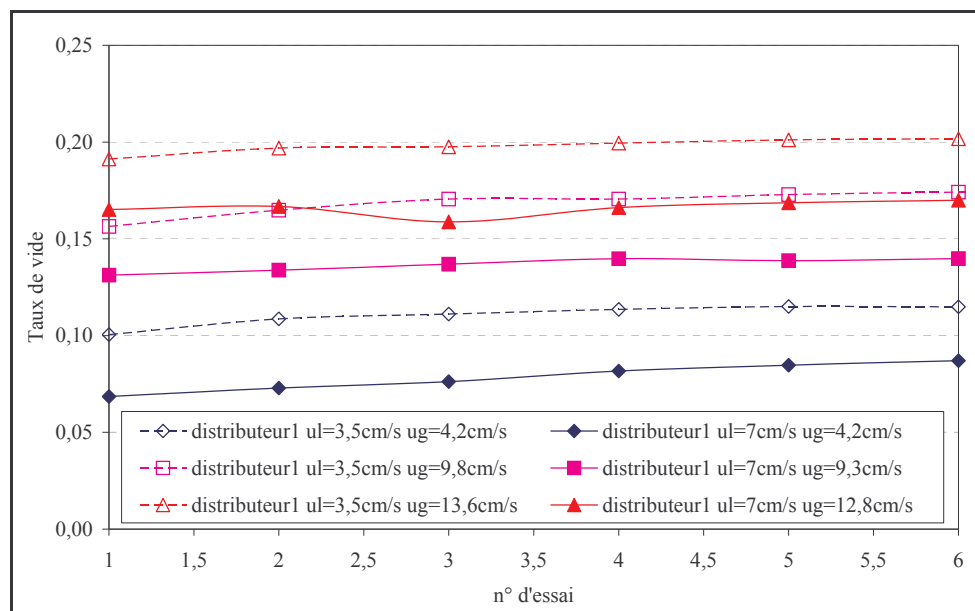


Figure 9 : Evolution du taux de vide global au fil des essais

### II.2.c. Reproductibilité

Pour évaluer la reproductibilité des essais, la fonction de distribution de temps de séjour,  $E$ , est tracée pour les différents essais successifs réalisés dans les mêmes conditions opératoires (configuration et débits). Les courbes obtenues sont représentées sur la Figure 10.

Si ce n'est pour les essais 1 et 2, pour lesquels la conductivité de base se situe à la limite de validité de la relation linéaire entre la conductivité et la concentration, les essais sont très reproductibles. Les modifications de l'écoulement, engendrées par l'ajout de sel, ne perturbent donc pas la détermination du temps de séjour. Cela laisse également penser qu'il n'existe pas de passage préférentiel dans l'écoulement liquide, car cela engendrerait parfois des sorties prématurées de traceur et donc une moins bonne reproductibilité.

Remarque :

Dans le calcul de  $E$ , selon  $E(t) = \frac{c(t)}{\int_0^{\infty} c(t) dt}$ , l'intégrale n'est pas prise entre zéro et l'infini

puisque la courbe ne revient jamais à zéro ; ce calcul est détaillé au paragraphe III.2.

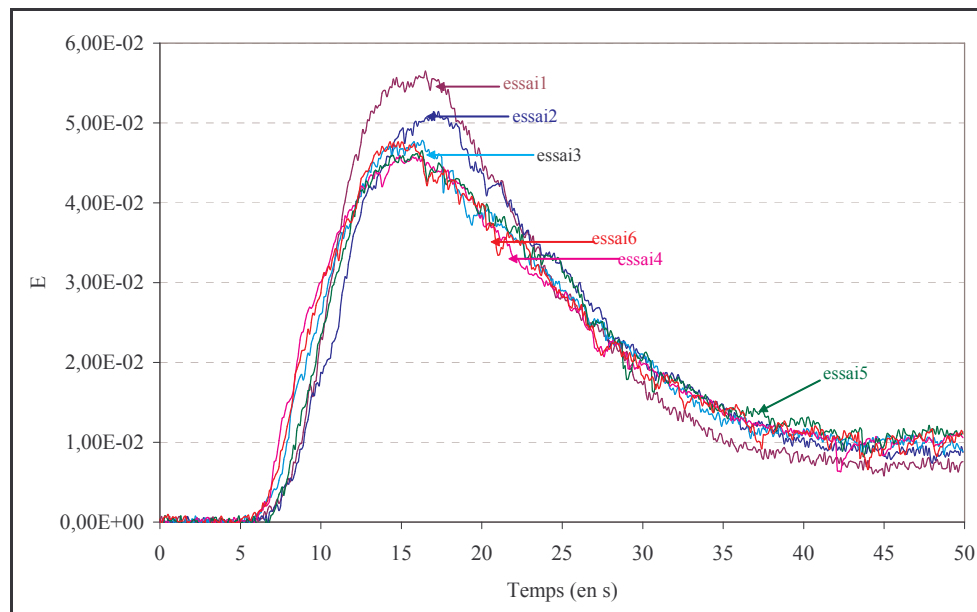


Figure 10 : Evolution de la fonction de DTS au cours des essais (eau, distributeur 1,  $u_L=7\text{cm/s}$   $u_G=9,2\text{cm/s}$ )

### III. MISE AU POINT DU TRAITEMENT DES DONNEES POUR CETTE ETUDE

#### Mise en garde :

Les courbes de réponse obtenues dans notre cas ne sont pas tout à fait classiques, dans la mesure où la circulation du liquide en boucle fermée dans notre installation conduit à ce qu'une partie du traceur injecté revienne dans la colonne avant que la totalité du traceur ne l'ait traversé une première fois. Ainsi, la concentration ne revient pas à zéro en fin d'essai, mais se stabilise à une valeur correspondant à la dilution du traceur dans l'ensemble de l'installation.

#### III.1. Approche graphique

L'approche graphique semble tout à fait adaptée à nos essais, dans la mesure où la seule prise en compte des caractéristiques concernant le maximum permet de s'affranchir de l'imperfection de nos courbes (traînées), liée à la recirculation liquide. Les paramètres nécessaires aux deux approches décrites au I.5.c sont représentés sur la Figure 11.

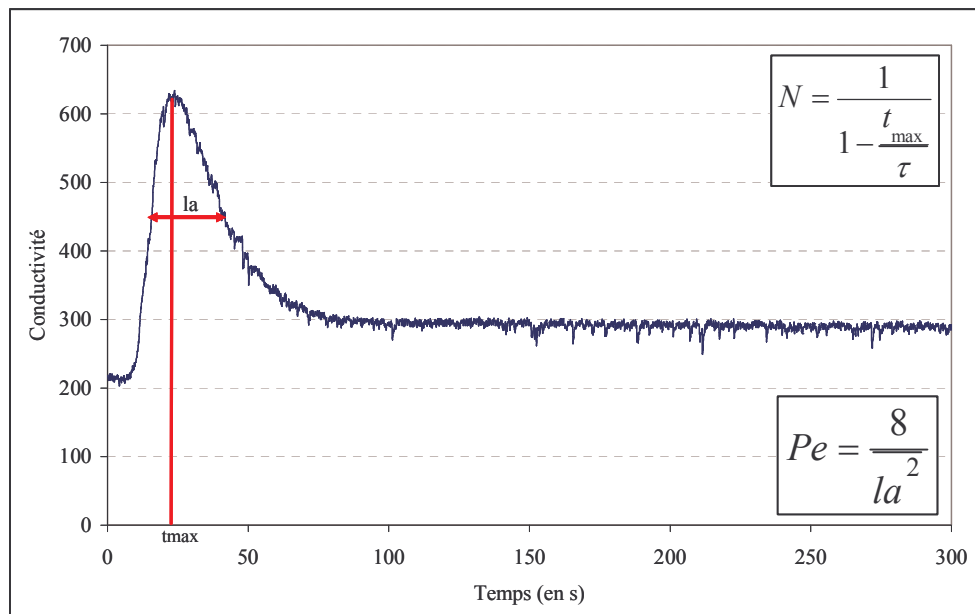


Figure 11 : Visualisation des paramètres nécessaires aux méthodes graphiques (eau, distributeur 1,  $u_L=3,5\text{cm/s}$ ,  $u_G=9,7\text{cm/s}$ )

- Le Tableau 6 fournit un exemple des nombres de RAC obtenus à partir de la méthode utilisant le temps du maximum,  $t_{max}$ . Les écarts entre les différents essais, croissant avec le débit gazeux, sont importants et atteignent jusqu'à 55%. En effet, les temps de séjour étant faibles, la moindre incertitude sur le  $t_{max}$  prend beaucoup d'ampleur.

	$u_G$ (m/s)	$t_{max}$ (s)	N
essai 1	0,0389	17,7	4,81
essai 2	0,0422	18,2	5,49
essai 3	0,0418	17,6	4,90
essai 4	0,0415	17,5	4,82
essai 5	0,0430	18,2	5,81
essai 6	0,0448	16,2	3,84
moyenne	<b>0,0420</b>	<b>17,6</b>	<b>4,86</b>
essai 1	0,0924	17,7	6,59
essai 2	0,0916	18,4	8,49
essai 3	0,0939	17,4	6,05
essai 4	0,0933	16,3	4,70
essai 5	0,0925	16,4	4,80
essai 6	0,0923	16,0	4,37
moyenne	<b>0,0927</b>	<b>17,0</b>	<b>5,53</b>
essai 1	0,1277	16,8	6,03
essai 2	0,1310	12,6	2,67
essai 3	0,1272	16,1	4,83
essai 4	0,1282	16,7	5,85
essai 5	0,1283	15,6	4,49
essai 6	0,1273	17,3	7,31
moyenne	<b>0,1283</b>	<b>15,8</b>	<b>4,69</b>

Tableau 6 : Nombres de RAC obtenus à partir de la méthode utilisant  $t_{max}$  (dist1,  $u_L=7\text{cm/s}$ )

- La méthode reposant sur la largeur de la distribution ne fournit pas de résultats plus encourageants.

**Les méthodes graphiques, bien qu'attrayantes, ne sont pas utilisées dans cette étude, car sources de très grandes imprécisions.**



### III.2. Moments, intégration

La méthode des moments est très simple à utiliser, mais elle nécessite d'intégrer la courbe  $E(t)$ , ce qui dans notre cas n'est pas chose facile puisque la courbe ne revient jamais à sa ligne de base. L'intégrale est alors calculée en considérant l'aire sous la courbe jusqu'à son minimum, puis en extrapolant la suite comme indiqué sur la Figure 12. L'aire ainsi ajoutée représente en général moins de 4% de l'aire totale du pic, ce qui change peu  $t_m$ , mais affecte davantage l'écart-type. Cette approximation est certes très discutable, mais permet d'estimer facilement le mélange de la phase liquide.

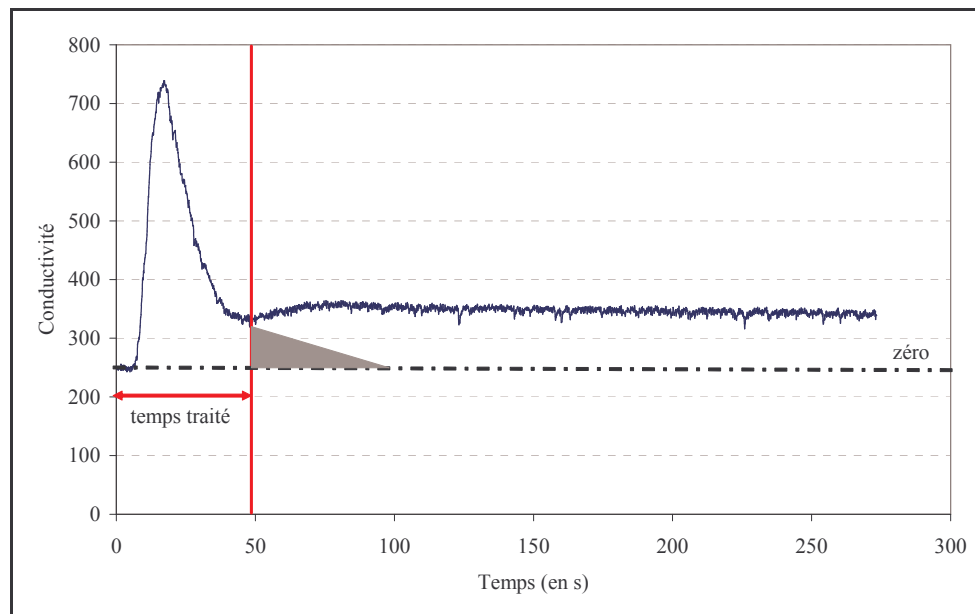


Figure 12 : Intégration du signal (eau, distributeur 1,  $u_L=7\text{cm/s}$ ,  $u_G=9,7\text{cm/s}$ )

Les résultats ainsi obtenus présentent une bonne reproductibilité des valeurs de  $t_m$  (écart inférieur à 4%) et un bon accord avec la valeur de temps de séjour  $\tau$  (écart inférieur à 15%) (cf. Figure 13a). La reproductibilité est également excellente en nombre de RAC (écart inférieur à 3%), et ce malgré les problèmes d'intégration (cf. Figure 13b).

Par cette méthode, la valeur de l'intégrale s'avère toujours surestimée, car la quantité de sel calculée à partir de l'intégrale dépasse toujours la quantité de sel injecté. Ce calcul permet néanmoins d'approximer le comportement global du liquide.

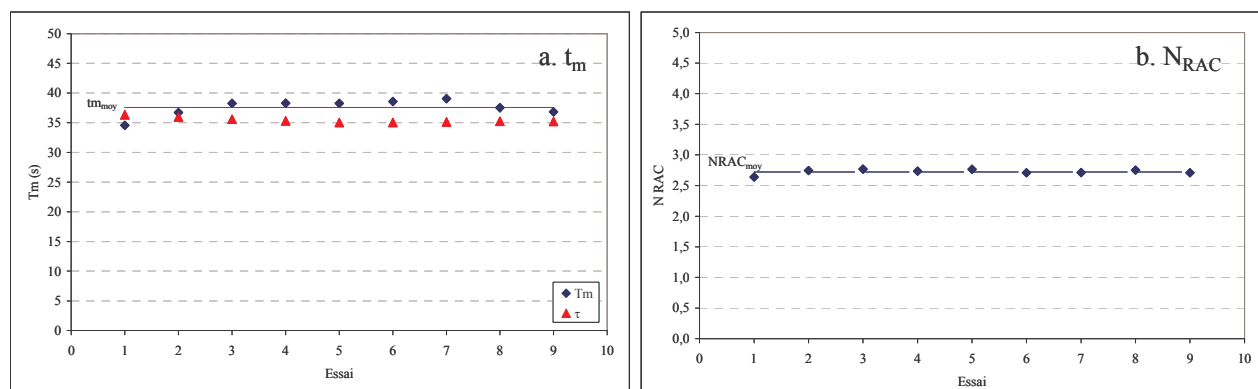


Figure 13 : Répétabilité en  $t_m$  et en  $N_{RAC}$  (eau, distributeur 2,  $u_L=3,5\text{cm/s}$ ,  $u_G=9,4\text{cm/s}$ )

### III.3.Minimisation : remarque

La résolution directe des équations associées à l'écoulement ne permet pas d'affiner le résultat, car un modèle à un paramètre n'est pas totalement satisfaisant dans notre cas, comme l'indique la Figure 14 : le maximum se décale théoriquement progressivement vers la droite lorsque le nombre de RAC augmente, ce qui ne correspond pas à la tendance expérimentale. Pour notre application, l'objectif étant simplement d'avoir des ordres de grandeur, le modèle à un paramètre en nombre de RAC est tout de même conservé.

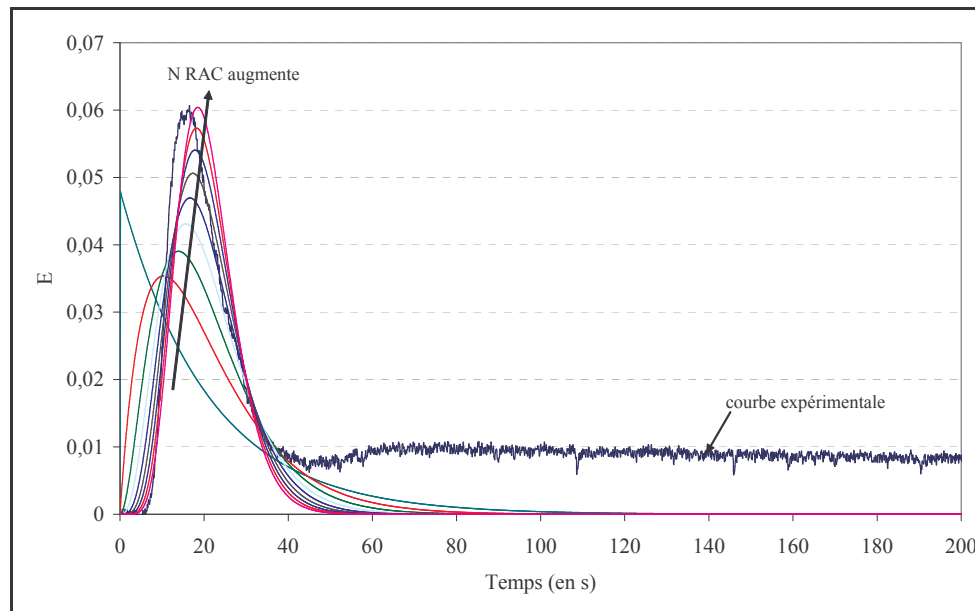


Figure 14 : Courbes expérimentales et théoriques ( $N$  RAC en série) (eau, distributeur 1,  $u_L=7\text{cm/s}$ ,  $u_G=9,7\text{cm/s}$ )

## IV. CONCLUSIONS

Cette annexe conduit à élaborer une démarche applicable à notre pilote pour estimer le mélange de la phase liquide. Les ordres de grandeurs de nombre de RAC obtenus permettent d'évaluer le comportement de la phase liquide dans la colonne et de comparer les conditions opératoires entre elles en terme de mélange liquide. Ces données suffisent pour l'évaluation du transfert de matière (cf. chapitre V).



## ANNEXE III.B : TRAITEMENT DES IMAGES

Le chapitre II montre la nécessité de procéder à des essais en aquarium, pour la validation et la mise en place de la métrologie locale d'une part, et pour l'étude des populations de bulles d'autre part. Avant d'aborder cette étude, il est nécessaire de mettre en place le traitement des images associé. Ce point, non indispensable à la compréhension de l'étude, est l'objet de cette annexe. Il comporte deux aspects : l'élaboration d'une procédure d'analyse (taille, forme, vitesse) et l'évaluation de la fiabilité des résultats obtenus (répétabilité, influence de l'opérateur).

### I. PROCEDURE DE TRAITEMENT DES IMAGES

Dans cette étude, quel que soit le type de caméra employée, le traitement des images est réalisé à l'aide du logiciel Visilog 5.1. L'architecture du programme utilisé est la suivante :

- ① Détramer les images, c'est-à-dire séparer les trames paires et impaires. Cette étape est nécessaire lorsque la vitesse d'acquisition est faible, c'est-à-dire que les bulles se sont fortement déplacées entre l'enregistrement des deux trames. C'est le cas pour l'étude des milieux, où la vitesse d'acquisition choisie est de 30 images/s.
- ② Calibrer. Cette étape consiste à associer une grandeur en millimètres aux données mesurées en pixels sur la photo. Cette opération est réalisée en photographiant un objet de taille connue, placé dans le même plan que les bulles (sonde optique ou injecteur dans notre cas).
- ③ Définir sur chaque image les contours de bulles.
- ④ Calculer les caractéristiques associées (position, diamètre équivalent, diamètre de Ferêt, aire, barycentre, excentricité, ...)

Ces données sont ensuite traitées pour accéder à des diamètres moyens, des diamètres de Sauter, des vitesses de bulles, ...

#### I.1. Reconnaissance des bulles

Pour automatiser ce traitement, le point le plus délicat est la reconnaissance des contours de bulles : le logiciel doit pouvoir identifier les bulles sans ambiguïté (niveaux de gris). Cela nécessite d'une part que le contraste entre les bulles et le fond soit très net (bon éclairage) et d'autre part que les bulles soient clairement dissociées les unes des autres. Or, ce dernier point dépend fortement de la densité de bulles et ne peut être éludé dans nos écoulements. En effet, sur la Figure 15, photo obtenue dans nos conditions d'étude, plusieurs bulles se chevauchent, ce qui rend leur distinction impossible avec une approche en niveaux de gris.

*Ainsi, compte tenu des fortes concentrations de bulles rencontrées dans notre étude, l'étape 3 ne peut pas être automatisée, car le logiciel est incapable d'effectuer une reconnaissance automatique des bulles. C'est alors à l'opérateur d'effectuer cette tâche en déterminant manuellement les contours de bulles. Cette partie, longue et fastidieuse, fait en outre intervenir une part non négligeable de subjectivité : deux opérateurs différents obtiendraient-ils les mêmes résultats ?*

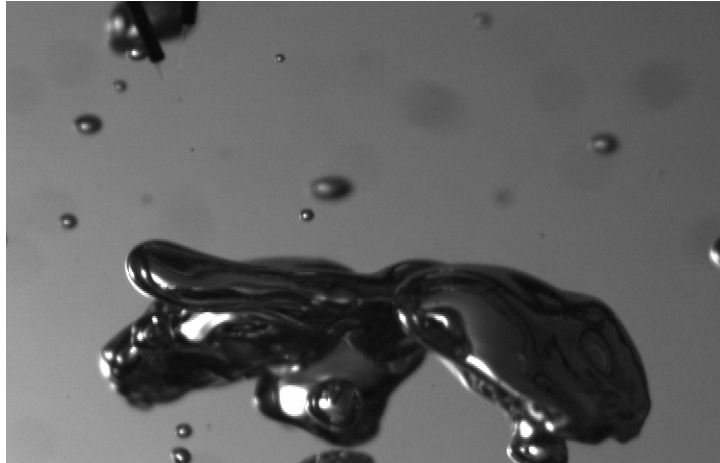


Figure 15 : Exemple de photo obtenue en aquarium dans nos conditions (cyclohexane)

A cela s'ajoute des biais statistiques concernant les proportions des différentes classes de bulles. En effet, du fait de leur faible vitesse, les petites bulles tendent à rester plus longtemps dans la fenêtre d'observation, ce qui, si elles sont systématiquement comptabilisées, ajoute un poids non négligeable à cette classe de bulles. Inversement, les plus grosses bulles sont moins présentes (plus rapides) et souvent incomplètes dans la fenêtre d'observation. C'est pourquoi il est couramment admis que cette méthode est inapte à mesurer de grosses bulles [Buchholtz et al. (1981)].

Par ailleurs, on peut s'interroger sur la possibilité que de grosses bulles masquent des bulles plus petites.

Pour limiter ces erreurs, c'est alors à l'expérimentateur de ne pas comptabiliser systématiquement les petites bulles identifiées comme stagnantes, de différencier les bulles en amas et d'extrapoler la forme des grosses bulles coupées. Cette intervention permet de se rapprocher de la distribution réelle de taille de bulles, mais elle demeure extrêmement liée à l'opérateur et aucune amélioration ne semble accessible (simplement). L'effet de l'expérimentateur sur les résultats sera évalué au §II.3.

## I.2. Traitement des données

### I.2.a. Tailles de bulles

Lors de l'étude en tailles de bulles, l'information principale recueillie est le **diamètre équivalent** de chaque bulle ( $d_{eq}$ ), c'est-à-dire le diamètre qu'aurait une bulle sphérique de même aire projetée. A partir de ces diamètres, des **distributions de tailles de bulles** sont tracées et de nombreux autres critères peuvent être déduits.

Parmi eux, le **diamètre moyen** ( $d_{10}$ ) correspond à la moyenne des diamètres équivalents, alors que le **diamètre de Sauter** ( $d_{SM}$  ou  $d_{32}$ ) est directement relié à l'aire interfaciale ; il donne ainsi davantage de poids aux grosses bulles, car les grosses inclusions pénalisent l'aire interfaciale.

$$d_{10} = \frac{\sum_{i=1}^N d_{eq,i}}{N} \qquad d_{SM} = \frac{\sum_{i=1}^N d_{eq}^3}{\sum_{i=1}^N d_{eq}^2} = \frac{6\varepsilon_G}{a}$$

où :  $d_{eq,i}$  est le diamètre équivalent de la bulle  $i$   
 $N$  est le nombre de bulles traitées

Comme le poids des différentes classes de bulles diffère dans ces deux diamètres, leur comparaison fournit une information quant à la distribution des bulles :

- \_ Si  $d_{10}=d_{32}$ , toutes les bulles ont a priori la même,
- \_ Si  $d_{10}\ll d_{32}$ , la distribution de taille de bulles est très étalée.

Le diamètre moyen peut également être comparé au diamètre médian, diamètre pour lequel le nombre de bulles plus grosses et plus petites est identique, ou au diamètre le plus probable, diamètre le plus représenté dans la distribution, mais ces comparaisons sont moins significatives.

Pour caractériser l'étalement de la distribution, les diamètres équivalents **minimum** et **maximum**, notés respectivement  $d_{\min}$  et  $d_{\max}$ , sont estimés : plus la différence entre ces deux diamètres est grande, plus la distribution est étalée. Par ce biais, il est aussi possible de savoir si un milieu conduit à la formation de très grosses ou de très petites bulles.

L'**écart-type** complète les données des extrema : les extrema fournissent la largeur de la distribution (les bornes), alors que l'écart-type informe sur l'étalement de la distribution : la majorité des valeurs est-elle centrée autour d'une seule valeur ou les bulles sont-elles réparties dans toute la gamme de taille ? Pour plus de représentativité, l'écart-type est ici ramené à une proportion du diamètre moyen :

$$\sigma' = \frac{1}{d_{10}} \sqrt{\frac{\sum_i (d_{eq,i} - d_{10})^2}{N}}$$

Ce paramètre sera noté  $\sigma$  et assimilé à l'écart-type.

*Ces critères ( $d_{10}$ ,  $d_{32}$ ,  $d_{\min}$ ,  $d_{\max}$ ,  $\sigma$ ) permettent de caractériser l'allure générale de la distribution de bulles (largeur, taille de bulles, étalement), sans avoir à tracer systématiquement la distribution, ce qui facilite les comparaisons.*

Remarque :

Un raisonnement analogue pourrait être mené en surface afin de représenter au mieux l'aire interfaciale, mais dans ce cas, les petites bulles prendraient un poids considérable, ce qui n'est guère raisonnable compte tenu de l'incertitude portant sur leur nombre.

### I.2.b. Critères de forme

La forme des bulles est un paramètre important conditionnant l'aire interfaciale. Il est ainsi intéressant de visualiser et de caractériser les formes adoptées par les bulles, notamment par les grosses bulles à fortes vitesses. Cette description est d'autant plus cruciale que, pour le traitement des données de la bi-sonde optique, un lien entre la forme des bulles et leur taille est recherché.

Pour caractériser la forme des bulles observées en aquarium, fonction de leur taille, de leur vitesse d'éjection et de la distance au distributeur, trois critères sont envisagés : l'excentricité, la circularité et le rapport de « bounding box ».

L'**excentricité** (sens classique), calculée par le logiciel, est utilisée avec prudence. En effet, ce critère a peu de sens lorsque les bulles s'écartent profondément de l'ellipse, ce qui est notre cas.

La **circularité** est issue du diamètre équivalent et du périmètre (donnée calculée par le logiciel) par :

$$\psi = \frac{\pi d_{eq}}{\text{périmètre}}$$

Le **rapport de « BoundingBox »**, **B**, correspond au rapport entre la largeur et la hauteur du rectangle le plus petit dans lequel rentre la bulle (cf. Figure 16). Ce rapport doit a priori permettre d'estimer si une bulle est plutôt ronde ( $B \approx 1$ ) ou allongée ( $B \neq 1$ ), à condition qu'elle ne soit pas trop inclinée. Ce critère pourrait se rapprocher de l'excentricité.

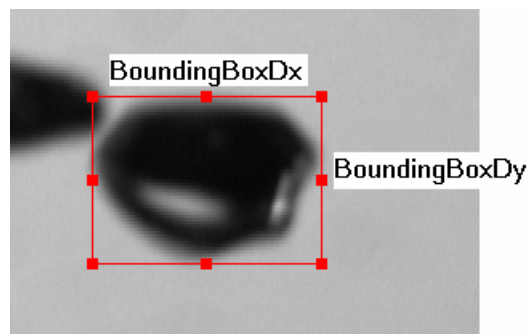


Figure 16 : Représentation des « boundingbox »

Ces trois critères sont évalués et un lien entre la taille et la forme des bulles est recherché pour les essais en eau au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ ), niveau le plus propice pour établir un lien entre le diamètre équivalent et la forme des bulles, les bulles ayant a priori atteint une forme indépendante de l'orifice.

### 1.2.b.α Excentricité

La Figure 17 représente l'évolution de l'excentricité calculée par le logiciel Visilog en fonction du diamètre des bulles. Cette figure ne montre certes aucun lien entre taille et forme, mais témoigne surtout des limites du calcul de l'excentricité. En effet, les valeurs reportées ne dépassent jamais 0,4 alors que les toutes petites bulles observées notamment à fortes vitesses sont clairement sphériques et devraient donc avoir une excentricité proche de 1.

***Ce paramètre, dont le calcul n'est pas explicité par Visilog, n'est pas retenu dans la suite.***

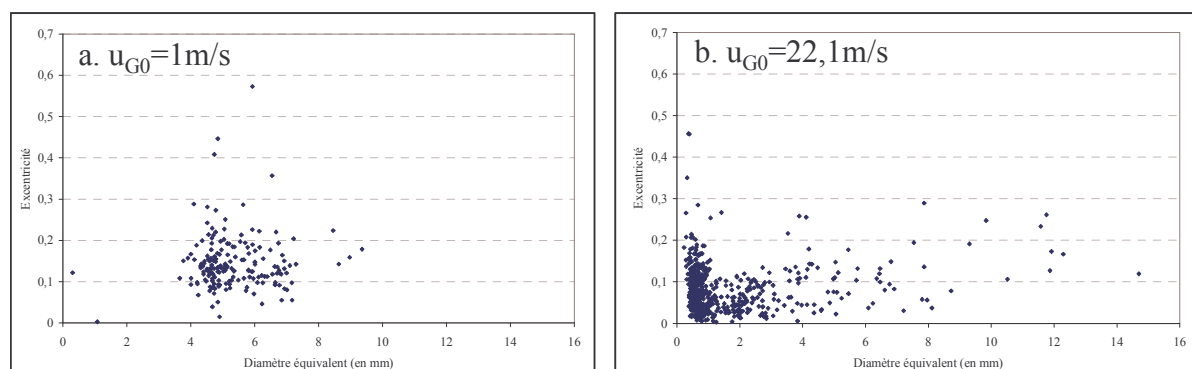


Figure 17 : Evolution de l'excentricité calculée par Visilog en fonction du diamètre équivalent (eau, niveau 3,  $h=20\text{cm}$ )

### 1.2.b.β Circularité

La circularité,  $\psi = \frac{\pi d_{eq}}{\text{périmètre}}$ , ne peut pas être utilisée ici, car la mesure du périmètre de la

bulle, fournie en pixels par Visilog, ne peut pas être traduite en longueur à l'aide de l'étalonnage : l'étalonnage permet de passer des aires en pixels<sup>2</sup> en mm<sup>2</sup>, mais son utilisation en longueur fournit des valeurs aberrantes.

La circularité pourrait également être estimée à partir du diamètre de Férêt maximal, défini comme la distance la plus grande entre deux tangentes à la bulle perpendiculaires à une direction donnée par :  $\psi = \frac{F_{\max}}{d_{eq}}$ . Cependant, comme pour le périmètre, cette distance fournie

en pixels par Visilog ne peut être traduite en une distance en millimètres.

*La circularité ne peut être calculée de manière satisfaisante avec Visilog, car le passage de pixels en millimètres est délicat.*

### 1.2.b.γ Rapport de « Boundingbox », B

Cette grandeur correspond au rapport entre la largeur et la hauteur de la plus petite boîte de côtés parallèles à l'image pouvant contenir la bulle. Bien qu'elle ne puisse prendre que certaines valeurs discrètes, car les dimensions correspondent à des nombres entiers de pixels, cette grandeur est sans doute la plus proche de la notion d'excentricité.

Il apparaît sur la Figure 18a qu'à faibles vitesses d'éjection, ce rapport est systématiquement supérieur à 1, c'est-à-dire que les bulles sont aplaties, ce qui est visible sur les photos. A plus fortes vitesses, l'interprétation de ces valeurs est plus délicate, car les bulles sont plus inclinées (cf. Figure 18b). Par rapport au cas précédent, B est plus faible (les bulles sont moins aplaties ou plus inclinées), le nombre de bulles pour lesquelles B vaut 1 est accru (pour des diamètres équivalents inférieurs à 5mm), ce qui montre que la proportion de bulles sphériques augmente. On pourrait obtenir B=1 pour une bulle inclinée dans un carré, mais c'est peu probable, car les bulles concernées ont un faible diamètre. A fortes vitesses, il existe même des bulles dont le rapport B est inférieur à 1 : elles sont soit plus inclinées soit plus allongées. Ces diverses tendances sont vérifiables sur les photographies et montrent que l'inclinaison des bulles n'a pas trop d'impact sur B.

Toutefois, en dépit du réalisme de ce facteur, aucun lien quantitatif ne peut être établi entre la forme des bulles et leur taille, les bulles étant trop déformées.

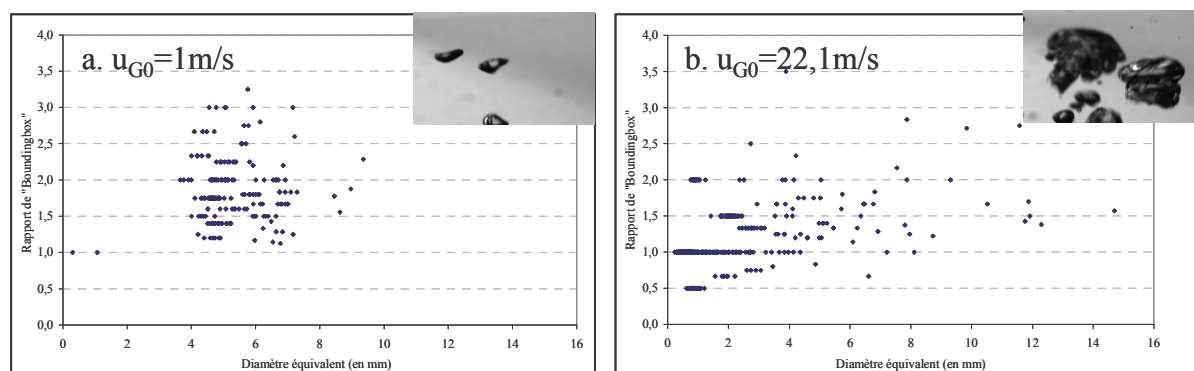


Figure 18 : Evolution du rapport de « Boundingbox » en fonction du diamètre équivalent (eau, niveau 3, h=20cm)



En appliquant cette approche au niveau 1, il est possible de retrouver des tendances générales en terme de forme de bulles. A faibles vitesses, il apparaît (cf. Figure 19a) que les bulles, bien que très regroupées autour d'une taille donnée, ont néanmoins des forme très variées mais globalement plates ( $B > 1$ ). A fortes vitesses en revanche (cf. Figure 19b), le rapport des bulles est beaucoup plus faible et même souvent inférieur à 1, ce qui témoigne de la formation de bulles très allongées, ce qui est en effet assez caractéristiques des jets observés.

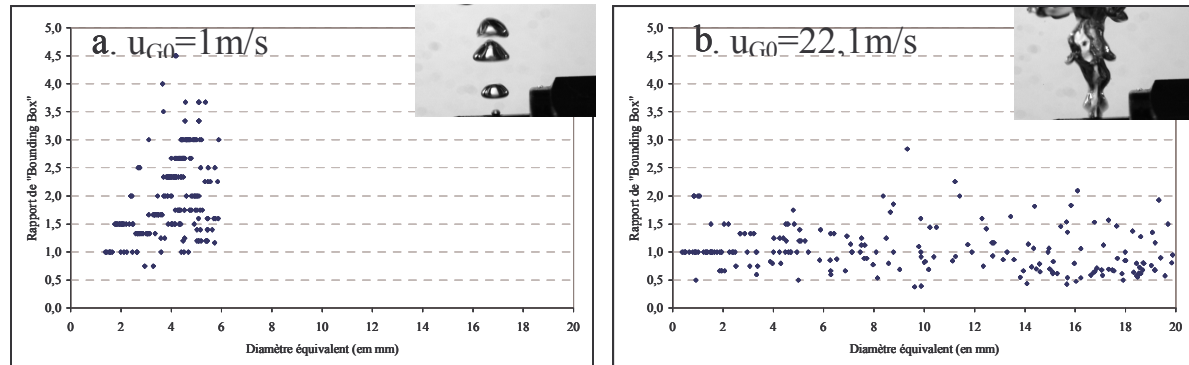


Figure 19 : Evolution du rapport de « Boundingbox » en fonction du diamètre équivalent (eau, niveau 1,  $h=0\text{cm}$ )

*Ce paramètre  $B$  est intéressant mais ne donne qu'une information partielle, il n'est donc pas utilisé dans la suite.*

### I.2.b. & Conclusions

*Du fait de bulles très déformées et de critères de caractérisation peu efficaces, aucun lien n'a pu être établi entre la taille des bulles et leur forme. Au vu des importantes déformations des bulles, l'existence même de ce lien est remise en cause. Certes les petites bulles sont plus sphériques que les grosses, mais il est impossible de décrire le degré de déformation de ces grosses bulles compte tenu notamment des interactions fortes entre bulles.*

*Par ailleurs, des trois critères de forme envisagés, seul le rapport de Bounding box permet réellement d'estimer la forme des bulles à condition toutefois que celles-ci ne soient pas trop inclinées. Visilog ne permet donc pas de caractériser quantitativement la forme des bulles.*

### I.2.c. Calcul de vitesses

Le calcul des vitesses de bulles repose sur le suivi de bulles sur différentes images, ce qui nécessite une fréquence d'acquisition supérieure à celle de la simple mesure des distributions de tailles de bulles.

Dans notre cas, la vitesse d'une bulle est obtenue en moyennant les vitesses obtenues pour cette bulle sur différentes images (5 au moins). Cette vitesse peut, tout comme la forme de la bulle, considérablement varier d'une image à l'autre (entre 1 et 150%) (cf. Figure 20). Cette étude permet aussi de mettre en évidence que la vitesse radiale peut parfois être du même ordre de grandeur que la vitesse axiale, mais ne l'excède jamais.

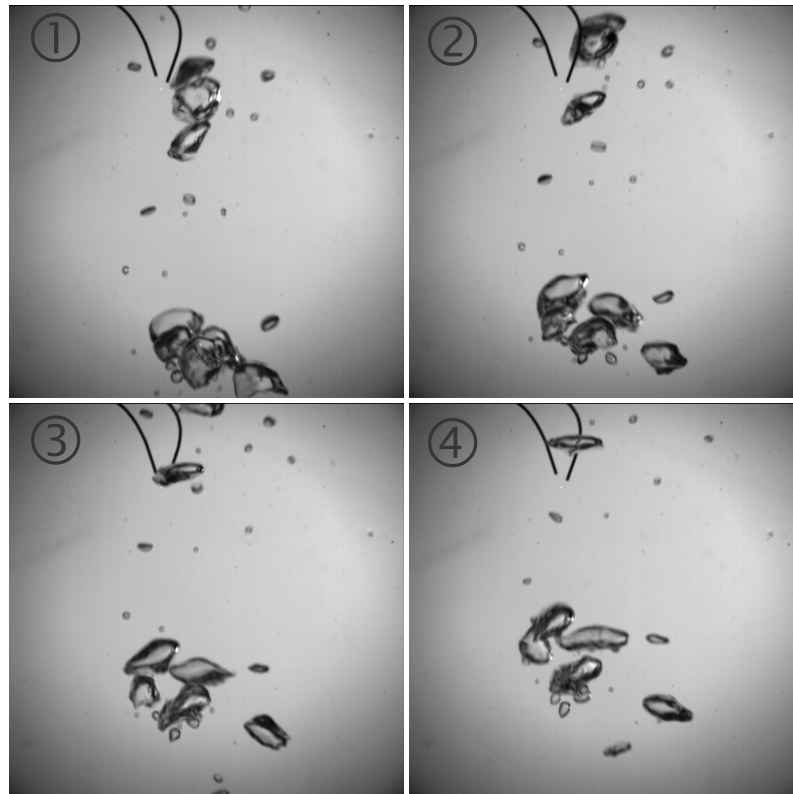


Figure 20 : Images successives de bulles (eau,  $v_{moy}=0,52m/s$ )

## II. FIABILITE DES MESURES

Pour un traitement optimal, il faut en premier lieu déterminer le nombre de bulles minimal à traiter pour obtenir une bonne représentativité des distributions. Ensuite, compte tenu de la part d'arbitraire introduite par le traitement, la répétabilité des résultats et la part liée à l'expérimentateur seront estimées.

### II.1. Nombre de bulles à traiter

Afin que les résultats obtenus soient les plus représentatifs possibles de la réalité, le nombre de bulles traité doit être suffisant. Quelques nombres de bulles retenus dans la littérature sont reportés dans le Tableau 7 ; ces nombres ne peuvent cependant pas être découplés des conditions opératoires étudiées : il est évident que si toutes les bulles ont la même taille le nombre de bulles nécessaires est faible alors qu'il est beaucoup plus grand lorsque la distribution est très étalée.

Auteurs	Nombre de bulles	Conditions
Buchholtz et al. (1981)	500	
Burgess et al. (1981)	500	Lit fluidisé, 2D
Lage et Esposito (1999)	50-100	Colonne à bulles, $u_G=0,65-7,02cm/s$
Yang et al. (2001)	150-200	
Bouaifi et al. (2001)	150-200	Cuve agitée, colonne à bulles ( $u_G=0,24-4cm/s$ )
Moustiri et al. (2001)	150-200	Colonne à bulles ( $u_G=0,52-5,5cm/s$ )

Tableau 7 : Nombre de bulles traitées par quelques auteurs

Pour estimer ce nombre de bulles dans nos conditions, l'évolution du diamètre moyen en fonction du nombre de bulles traitées est tracée pour différentes conditions opératoires (cf. Figure 21) : quand la courbe atteint une valeur stable, le diamètre moyen est supposé

représentatif. Comme attendu, plus la distribution est resserrée, c'est-à-dire plus la vitesse d'éjection est faible, et plus le nombre de bulles nécessaires diminue.

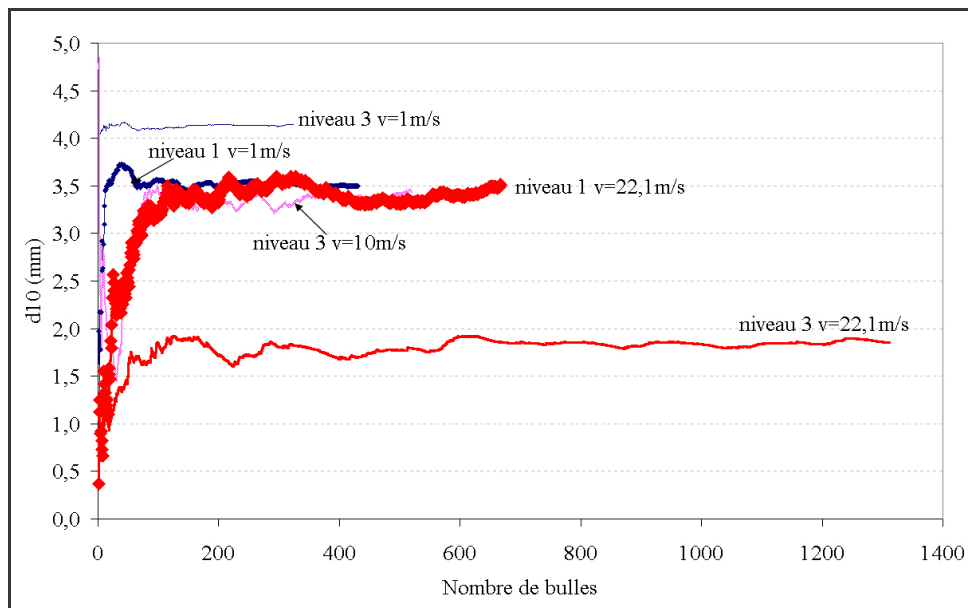


Figure 21 : Evolution du diamètre moyen en fonction du nombre de bulles traitées pour différentes conditions opératoires en cyclohexane (opérateur 2)

Le même type d'analyse est appliqué au diamètre de Sauter (cf. Figure 22) : au delà de 150 bulles, qui est le nombre minimal de bulles à traiter issu de la Figure 21, le diamètre de Sauter évolue peu. Ainsi, lorsque le nombre de bulles traitées permet d'atteindre le palier de diamètre moyen énoncé ci-dessus, les valeurs de tous les diamètres sont a priori représentatives.

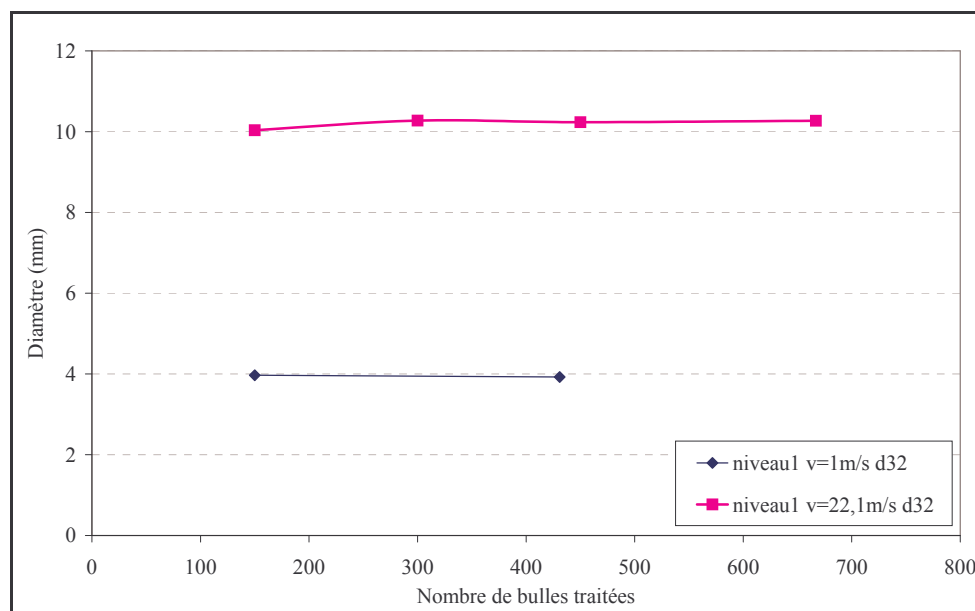


Figure 22 : Evolution du diamètre de Sauter en fonction du nombre de bulles traitées (cyclohexane, niveau 1,  $h=0\text{cm}$ )

Enfin, l'impact du nombre de bulles traitées sur les distributions de tailles est estimé à partir de la Figure 23, représentant les distributions de tailles obtenues, pour un même fichier et un

même expérimentateur, pour différents nombres de bulles traitées. Il apparaît alors que plus le nombre de bulles traitées augmente, plus la distribution est régulière et lisse, mais les modifications engendrées demeurent minimales.

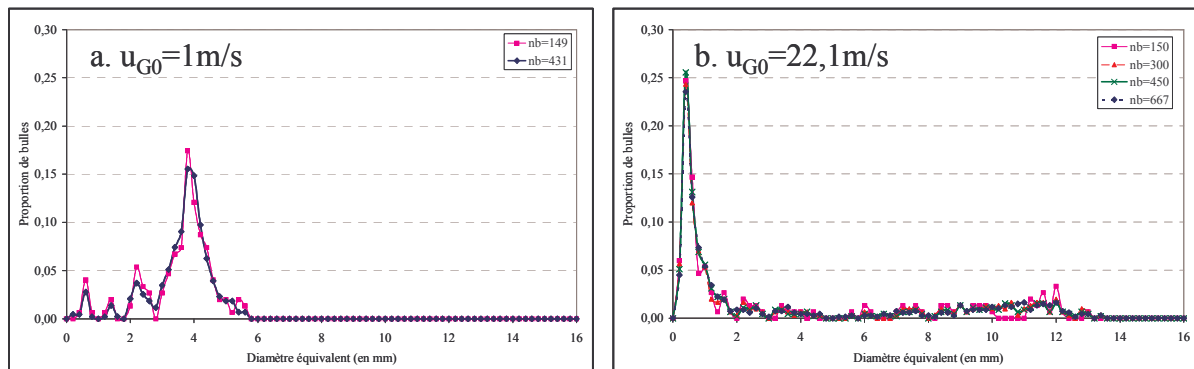


Figure 23 : Effet du nombre de bulles traitées sur la distribution des tailles de bulles au niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ )

*Ainsi, si le nombre de bulles traitées suffit à atteindre un diamètre moyen stable, les valeurs des diamètres moyens et de Sauter ainsi que les distributions de tailles de bulles sont représentatives et indépendantes du nombre de bulles traitées.*

## II.2. Répétabilité (pour un expérimentateur donné)

Pour évaluer la fiabilité des résultats obtenus, deux séries de 40 photos (environ 850 bulles), obtenues pour les mêmes conditions opératoires, sont traitées par un même opérateur. Les distributions associées sont reportées dans la Figure 24. Au vu de ce graphique, la similarité des distributions ne fait aucun doute. Les comparaisons des diamètres moyens et de Sauter sont également assez encourageantes (écart de 15% entre les deux  $d_{10}$  et de 12,5% entre les deux  $d_{32}$ ), tout comme celle des diamètres minimum et maximum.

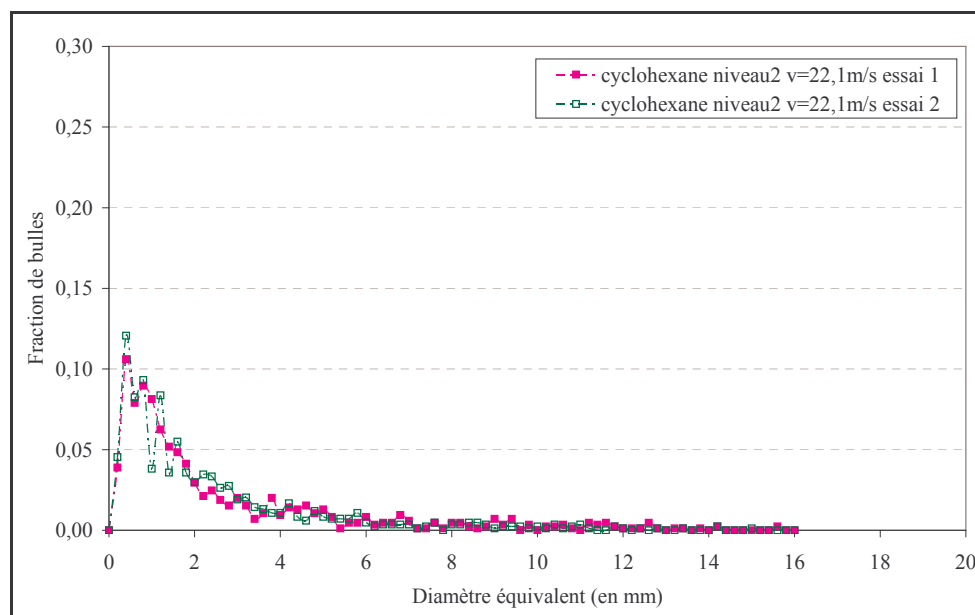


Figure 24 : Evaluation de la répétabilité des essais

***Le bon accord entre les deux essais montre une bonne représentativité des distributions et des diamètres.***

En toute rigueur, pour valider ce point, il faudrait procéder à des tests plus nombreux, mais la lourdeur du traitement est limitant.

Remarque :

Sur cette figure, comme pour la plupart de celles tracées au cours de cette étude, les distributions de tailles de bulles sont représentées, pour des raisons de lisibilité, sous forme de courbes au lieu des histogrammes habituels. Il faut néanmoins garder à l'esprit que chaque point représente une classe de diamètre et non un diamètre particulier. Pour l'ensemble de cette étude, les classes retenues ont une largeur de 0,2mm.

### II.3. Influence de l'opérateur

La dernière interrogation concerne l'influence de l'opérateur, puisque le traitement retenu dépend de la perception qu'a l'opérateur des petites bulles, des grosses bulles coupées et des amas. Pour évaluer cet effet, les mêmes images sont traitées par deux opérateurs différents (sans interaction) ; les résultats obtenus sont reportés dans le Tableau 8.

niveau	vitesse (m/s)	d32 (mm)			d10 (mm)			écart-type (%)	
		exp. 1	exp. 2	écart (%)	exp. 1	exp. 2	écart (%)	exp. 1	exp. 2
1	1	3,76	3,92	4,29	3,18	3,49	9,43	34	28
1	22,1	7,80	10,27	27,34	3,22	3,51	8,74	94	123
3	1	5,76	4,21	31,21	5,31	4,14	24,70	21	9
3	10	7,68	5,94	25,52	4,22	3,44	20,28	71	73
3	22,1	7,18	7,34	2,15	1,77	1,85	4,50	117	122

Tableau 8 : Comparaison des résultats d'une même série d'images traitées par deux expérimentateurs différents

Les écarts observés entre les deux opérateurs dépendent des conditions opératoires, mais il est délicat de prévoir a priori quelles sont les conditions les moins dépendantes de l'opérateur. Dans le pire des cas, les écarts ne dépassent pas 30% et les distributions demeurent similaires. Les différences résident principalement dans les diamètres de Sauter : les grosses bulles (amas ou bulles coupées) sont les plus sensibles à l'opérateur.

***Ainsi, même si l'exploitation de données traitées par des opérateurs différents est à éviter, les valeurs de diamètres obtenues par chacun d'entre eux demeurent réalistes : les ordres de grandeur et les tendances sont respectés.***

## III. CONCLUSIONS

***Une procédure de traitement des images adaptée à nos écoulements a été mise en place et testée. Elle permet de représenter l'écoulement avec une bonne fiabilité.***

***Les critères de caractérisation utilisés pour la caractérisation des tailles de bulles sont : la distribution des diamètres équivalents, le diamètre moyen, le diamètre de Sauter, les diamètres extrêmes et l'écart-type. Par contre, aucun critère de caractérisation de la forme des bulles n'est retenu.***

***Pour la mesure de vitesses, lorsque la fréquence d'acquisition est suffisante, aucun problème particulier ne se pose.***

## ANNEXE III.C : DETERMINATION GRAPHIQUE DES REGIMES HYDRODYNAMIQUES

Les régimes hydrodynamiques sont largement utilisés en colonnes à bulles pour décrire les écoulements. Cette annexe a pour but de présenter les méthodes de détermination graphiques des régimes hydrodynamiques à partir des seules données de taux de vide global.

### I. ANALYSE DIRECTE DU GRAPHIQUE $\varepsilon_G = f(u_G)$

Dans l'analyse directe de la courbe du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz vue au chapitre I, le régime homogène correspond à la partie linéaire initiale du graphique et le régime hétérogène à la partie du graphique postérieure au minimum de degré de vide (cf. Figure 25). La partie intermédiaire représente la transition, où la présence d'un maximum de degré de vide témoigne de l'existence de la recirculation liquide [Bennett et al. (1999), Vial et al. (2001), Lin et al. (2001)]. L'existence d'un maximum sur la courbe de taux de vide, courante, n'est toutefois pas systématique ; la transition peut n'être marquée que par un changement de pente.

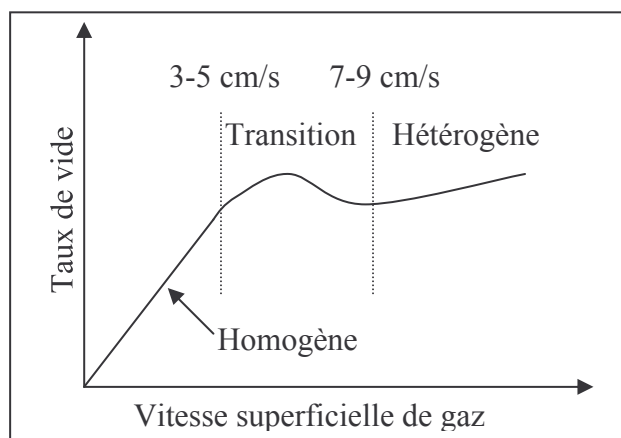


Figure 25 : Allure-type de l'évolution du degré de vide avec la vitesse de gaz dans une colonne à bulles

Cette détermination peut être rendue plus précise en utilisant l'une des approches suivantes :

- \_ Recherche du point où la courbe dévie de la droite initiale issue de l'origine [Bennett et al. (1999)]
- \_ Recherche du point d'inflexion du graphique  $\log(\varepsilon_G) = f(\log(u_G))$  [Kelkar (1985)], puisqu'il est classiquement admis que la relation reliant le degré de vide à la vitesse de gaz dépend du régime et est de la forme  $\varepsilon_G = b_1 u_G^n$  (cf. chapitre I, §A.I.4.a).
- \_ Etude de la concavité de la courbe : l'évolution du degré de vide avec la vitesse superficielle gazeuse est une fonction concave en régime homogène comme en régime hétérogène ; la partie convexe entre ces deux zones correspond alors à la transition [Ruzicka et al. (2001)].

## II. UTILISATION DU CONCEPT DE FLUX DE DERIVE DE WALLIS (1969)

♣ Cette méthode de référence consiste à observer les changements de pentes du graphique  $u_G(1-\varepsilon_G) = f(\varepsilon_G)$  (cf. Figure 26) [Kelkar (1985), Krishna et al. (1999), Vial et al. (2001), Ruzicka et al. (2001 et b)]. Sur la Figure 26, deux courbes sont représentées : la première présente un changement de régime et la seconde opère en régime hétérogène pur.

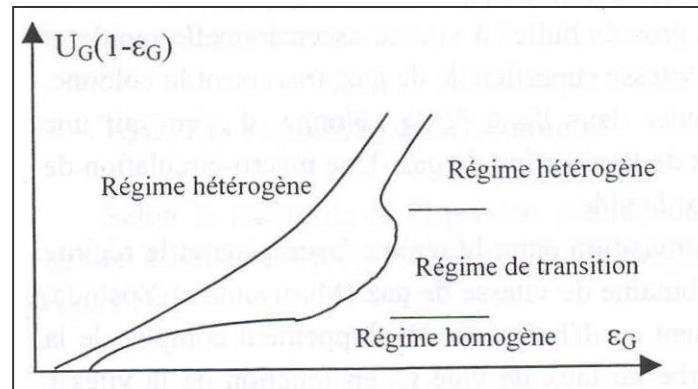


Figure 26 : Identification des régimes d'écoulement avec le concept de flux de dérive en colonne à bulles.

Pour mieux distinguer la fin du régime homogène, le tracé de la forme de Richardson et Zaki (1954) (expression du flux de dérive en régime homogène, cf. chapitre I, §A.I.2.a), peut être superposé aux courbes précédentes : le point de déviation entre la courbe expérimentale et cette courbe représente alors la transition.

♣ L'approche de Züber et Findlay (1965) (cf. chapitre I, §A.I.2.a) est également une alternative intéressante : les changements de régime sont facilement identifiés par un changement de pente de  $\frac{u_G}{\varepsilon_G} = f(u_G)$  ; chaque régime étant caractérisé par une portion de

droite. Comme cette courbe représente aussi l'évolution de la vitesse moyenne de phase ( $u_G/\varepsilon_G$ ), elle peut de ce fait fournir une indication complémentaire ; elle est préférée dans notre étude.

## **ANNEXE IV.A : DISTRIBUTIONS DE TAILLES DE BULLES : ESSAIS EN AQUARIUM**

Il s'agit dans cette annexe de caractériser les distributions de tailles de bulles observées dans un aquarium pour différents milieux liquide. Cette étude répond à trois objectifs.

- Le premier consiste à estimer la population de bulles potentiellement rencontrées en pilote. En effet, aucune des mesures réalisées en pilote ne permet d'atteindre cette distribution, or sa connaissance, même approximative, peut aider à l'interprétation des données en colonne. Pour cela, les liquides étudiés sont l'eau, le cyclohexane et l'olone.

- Le second objectif répond à un manque de compréhension des effets des propriétés physico-chimiques des liquides purs sur les distributions de tailles de bulles. Cette partie est utilisée lors de l'analyse des différences entre les milieux en pilote.

- Enfin, l'étude des mélanges est envisagée pour mieux comprendre le comportement de l'olone (mélange à base de cyclohexane), mais aussi parce que les mélanges eau-alcool sont fréquemment utilisés comme milieu modèle des liquides organiques industriels. Par comparaison aux distributions obtenues en liquide organique, la validité de cette hypothèse est discutée.

L'installation et le matériel utilisés lors de cette étude sont décrits au chapitre II (§III) et la méthode d'analyse d'images associée en annexe III.B.

Les chapelets de bulles étudiés sont formés par un orifice rigide de 1mm de diamètre et analysés à trois hauteurs : le niveau de l'injecteur, 10 et 20cm au-dessus. Ces hauteurs sont appelées respectivement niveaux 1, 2 et 3.

### **I. DISTRIBUTIONS DES TAILLES DE BULLES POUR LES MILIEUX ETUDIÉS EN PILOTE**

On ne peut espérer, en aquarium, obtenir les mêmes distributions de tailles de bulles que dans la colonne. Les distributions observées en aquarium permettent toutefois de les approcher (au moins dans la zone de formation) et d'appréhender leur évolution avec la hauteur et la vitesse d'éjection,  $u_{G0}$ .

#### **I.1. Eau**

Le Tableau 1 regroupe l'ensemble des résultats obtenus en eau et la Figure 1 permet de visualiser les bulles associées. Il faut préciser que l'ensemble des configurations filmées n'a pas été traité, ce qui explique la présence sur la Figure 1 de configurations non reportées dans le Tableau 1. Les distributions sont détaillées au fil des paragraphes selon les besoins.



niveau	$u_{G0}$ (m/s)	$Re_0$	$d_{32}$ (mm)	$d_{10}$ (mm)	$d_{min}$ (mm)	$d_{max}$ (mm)	écart type (%)	nb de bulles traitées
1	1	61	4,50	4,03	1,38	5,89	26	223
1	22,1	1351	15,63	9,45	0,38	20,08	68	207
3	1	61	5,64	5,32	2,04	8,43	17	156
3	5	307	7,78	6,99	0,88	10,68	26	168
3	10	614	8,65	6,04	0,57	13,26	52	363
3	22,1	1351	9,07	3,76	0,13	16,70	92	447

Tableau 1 : Résultats des essais en eau

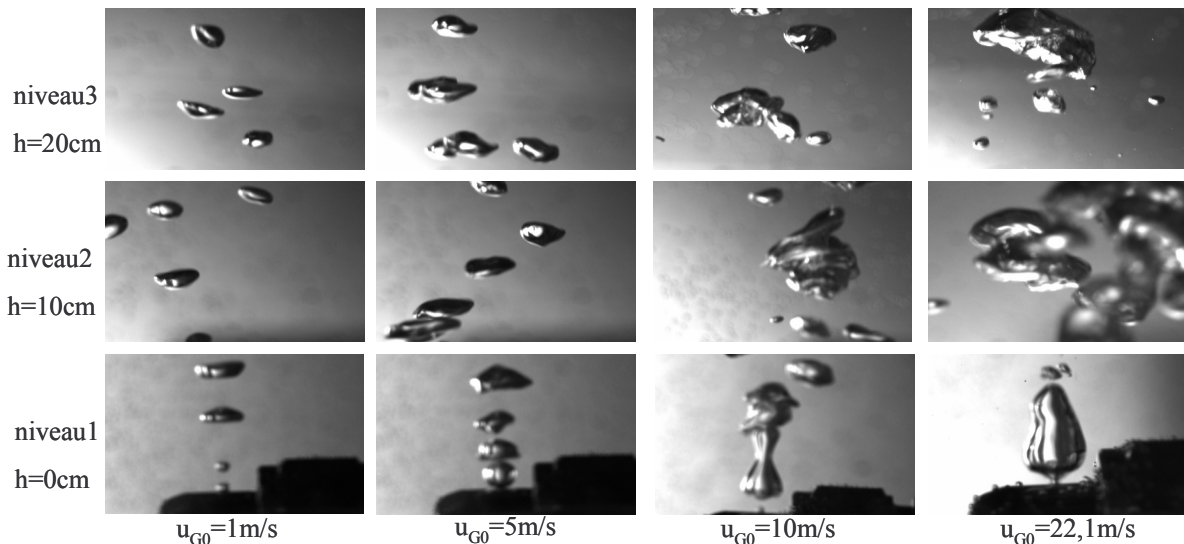


Figure 1 : Photos réalisées dans diverses conditions en eau

### I.1.a. Régimes d'éjection

En fonction de la description des régimes mentionnés en annexe I.C (en assimilant le régime de transition au régime à jet), le distributeur opère visuellement (cf. Figure 1) en régime à bulles séparées pour  $u_{G0}=1$  et  $5\text{m/s}$ . A  $u_{G0}=10\text{m/s}$ , le régime est à la limite entre le régime à bulles continues et le régime à jet, régime installé à  $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ , où les bulles se détachent à partir du bout du jet.

La prévision des régimes à partir de la simple observation des nombres de Reynolds à l'orifice,  $Re_0$  (fin des régimes à bulles aux alentours de  $Re_0=1000$ ) est en assez bon accord avec nos résultats (cf. Tableau 1), la déstabilisation survenant cependant à des  $Re_0$  légèrement inférieurs aux prédictions.

### I.1.b Effet de la vitesse d'éjection

L'effet de la vitesse d'éjection sur la distribution des bulles est estimée à deux hauteurs : au niveau de l'injecteur (niveau 1) et 20cm au-dessus (niveau 3).

#### I.1.b.α Niveau 1 : niveau de l'injecteur

A faible vitesse ( $u_{G0}=1\text{m/s}$ ), la distribution est relativement resserrée autour de  $4\text{mm}$  ; les bulles sont formées individuellement, sans trop interagir entre elles (régime à bulles séparées). Ceci est visible sur les photographies, mais aussi sur l'ensemble des critères envisagés : l'écart entre le diamètre de Sauter et le diamètre moyen est faible, le  $d_{min}$  n'est pas trop petit, le  $d_{max}$  n'est pas très éloigné du diamètre de Sauter et l'écart type est faible (26%). Ces

critères et la Figure 2 permettent également d'observer que la distribution est asymétrique et présente davantage de petites bulles.

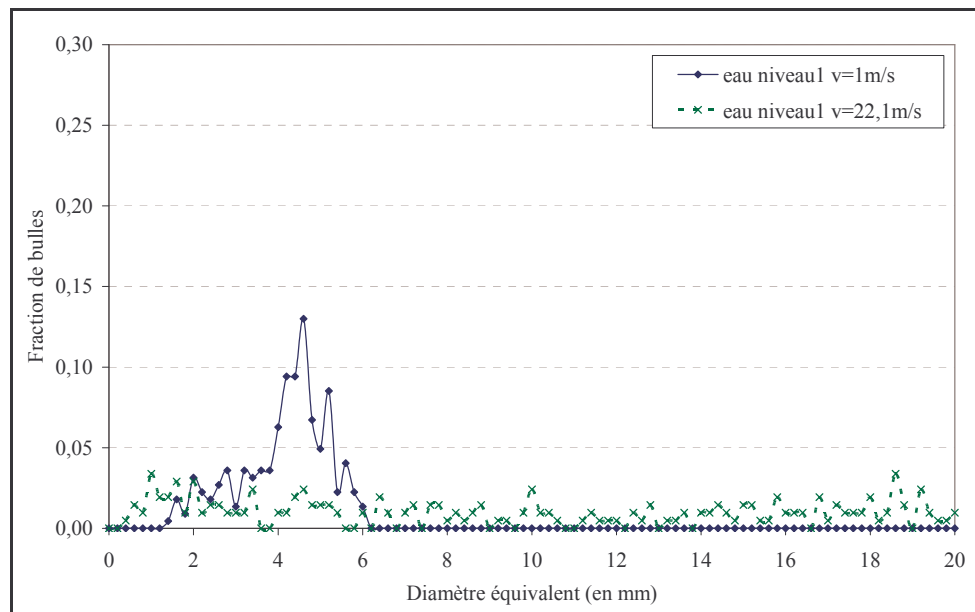


Figure 2 : Effet de la vitesse d'éjection sur la distributions des tailles de bulles en eau au niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ )

A forte vitesse ( $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ ), la distribution s'étale sur une très large gamme de diamètres (entre 0,4 et 20mm), sans maximum net. A cette vitesse, l'injection se faisant en régime à jet, de grosses bulles de tailles très variables sont formées et engendrent une large population de petites bulles (de l'ordre du mm), absentes à  $u_{G0}=1\text{m/s}$  (cf. Figure 2), bulles qui se détachent des grosses bulles en formation (cf. Figure 1).

### ***1.1.b.β Niveau 3 : 20 cm au-dessus de l'injecteur***

Au niveau 3, les distributions de bulles peuvent être caractérisées par deux populations de bulles (cf. Figure 3) :

- \_ Une population de grosses bulles, principalement rencontrée à faible vitesse. Elle se déplace vers les grands diamètres et s'étale quand la vitesse d'éjection augmente. Dans le même temps sa proportion respective diminue au profit d'une population de petites bulles.
- \_ Une population de petites bulles, apparaissant à  $u_{G0}=10\text{m/s}$ . Elle augmente en proportion au fur et à mesure que la vitesse d'éjection croît et s'étale progressivement vers des valeurs de diamètre plus grandes.

Au vu des photographies de la Figure 1, les mêmes tendances peuvent être déduites pour le niveau 2. Elles vont dans le sens de l'hypothèse courante d'une population globalement bimodale de bulles, mais rien ne permet d'affirmer que ce type de distribution, issue de la distribution primaire, se retrouve au coeur de la colonne à bulles.

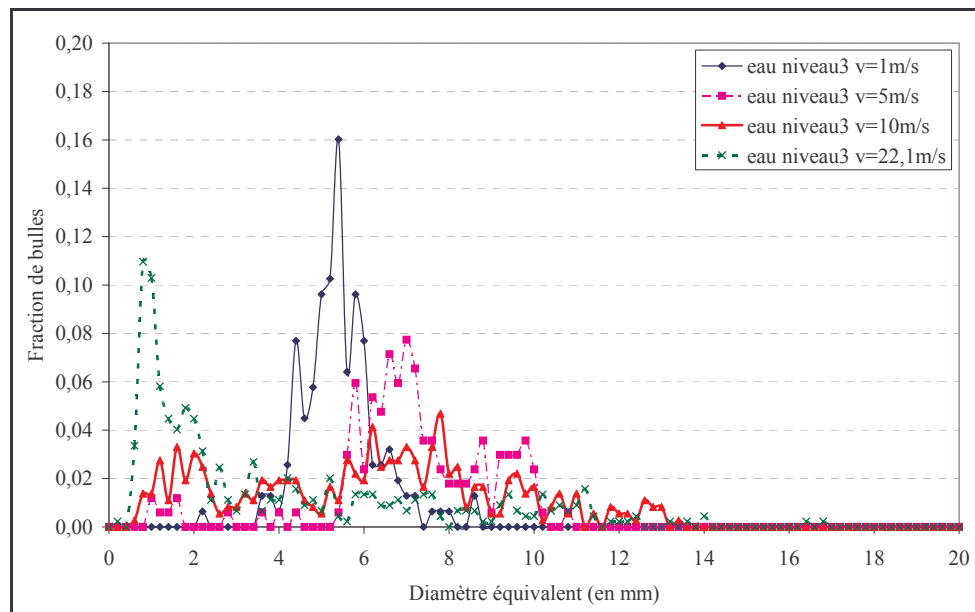


Figure 3 : Effet de la vitesse d'éjection sur la distributions des tailles de bulles en eau au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ )

### I.1.c. Evolution axiale

L'évolution axiale de la distribution des tailles de bulles dépend des bulles primaires, donc de la vitesse d'éjection. La Figure 4 et le Tableau 1 mettent en évidence que, pour  $u_{G0}=1\text{m/s}$ , le diamètre médian de la distribution croît de 4 à 6mm entre les niveaux 1 et 3. Cette augmentation s'accompagne de la disparition des bulles de petites tailles ( $d_{\min}$  augmente) et au contraire de l'apparition de bulles plus grosses ( $d_{\max}$  augmente). Il y a donc eu coalescence des bulles les plus petites entre ces deux niveaux ; la distribution de tailles de bulles se resserre autour d'une valeur d'équilibre qui augmente.

Pour  $u_{G0}=22,1\text{m/s}$  au contraire, le nombre de petites bulles augmente largement entre les niveaux 1 et 3 et le diamètre maximal diminue : la distribution se resserre avec la hauteur. Comme les bulles formées au distributeur sont, à fortes vitesses, des jets instables de taille largement supérieure à la taille d'équilibre, il y a préférentiellement rupture entre les deux niveaux avec formation de nombreuses petites bulles. L'évolution de cette population plus haut dans l'aquarium demeure toutefois inconnue.

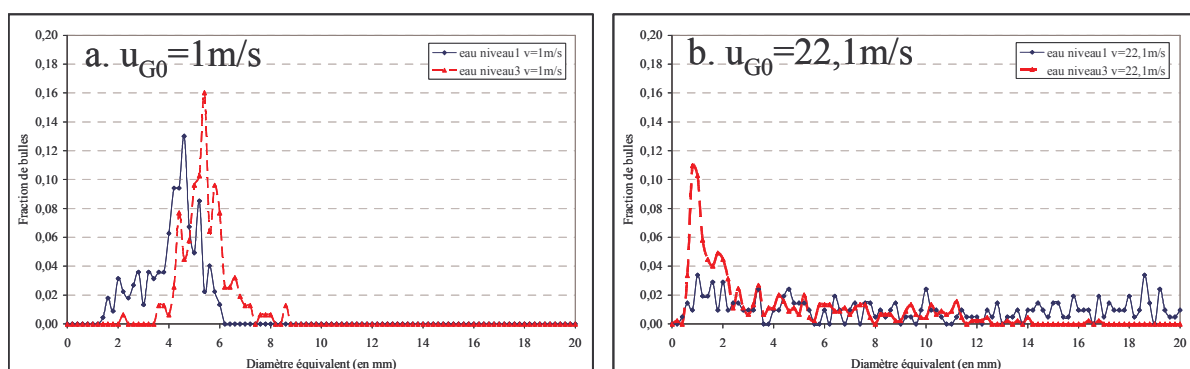


Figure 4 : Effet du niveau sur la distribution des tailles de bulles en eau

### I.1.d. Conclusions

Tous les critères proposés en annexe III.B (et fournis dans le Tableau 1) n'ont pas été explicités ici pour ne pas alourdir la description, mais ils confirment les tendances énoncées. La Figure 5 récapitule toutes les tendances observées. Au niveau 3, les diamètres moyens et de Sauter sont du même ordre jusqu'à 5cm/s : la distribution des tailles est resserrée autour d'une valeur unique (6 à 8mm). Au-delà, l'écart croissant entre ces diamètres, ainsi que l'augmentation de l'écart-type, témoignent de l'étalement de la distribution. La valeur de vitesse séparant ces deux comportements est celle de la fin du régime à bulles ; les régimes de bullage sont donc encore visibles au niveau 3. En outre, les points du niveau 1 reportés sur ces figures montrent que le diamètre augmente légèrement entre les niveaux 1 et 3 à  $u_{G0}=1\text{m/s}$  alors qu'il diminue largement à  $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ .

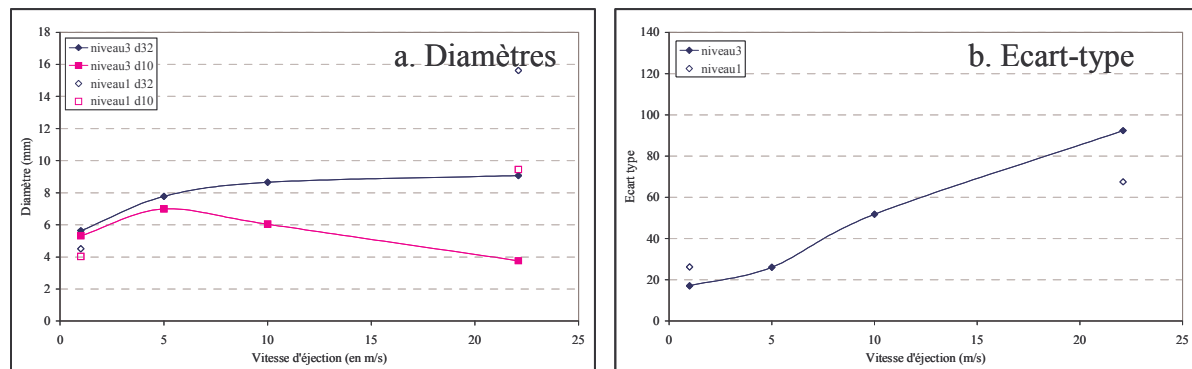


Figure 5 : Effet de la vitesse d'éjection (eau, niveau 3,  $h=20\text{cm}$ )

**Pour conclure, en eau, le régime d'injection est à bulles pour  $u_{G0}=1$  et 5m/s et à jet pour  $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ . En régime à bulles, il y a une population de bulles moyennes à grosses ( $>5\text{mm}$ ). En régime à jet s'ajoute à cette population, dont la taille moyenne croît avec  $u_{G0}$ , une population de petites bulles (de l'ordre de 1mm). Plus  $u_{G0}$  augmente, plus la proportion des petites bulles prend de l'importance. Lors de l'ascension des bulles, les distributions ont tendance à se resserrer (cf. Figure 4b).**

Il semble ainsi que deux groupes de bulles permettent de représenter assez bien le comportement global de la population, mais les tailles de bulles proposées pour les deux populations par Krishna et al. (1999) en eau (4-6mm pour les petites bulles, 10-12mm pour les grosses) ne coïncident pas avec valeurs observées ici : les petites bulles sont beaucoup plus petites (de l'ordre du mm), mais l'équilibre n'est peut-être pas encore atteint au niveau 3. Enfin, rappelons que cet aquarium n'est pas représentatif d'une colonne à bulles ; la rétention de gaz en particulier y est beaucoup plus faible.

## I.2. Cyclohexane

La Figure 1 représente les clichés obtenus pour l'ensemble des conditions balayées en cyclohexane (niveaux 1 à 3,  $u_{G0}=1$  à 40m/s).

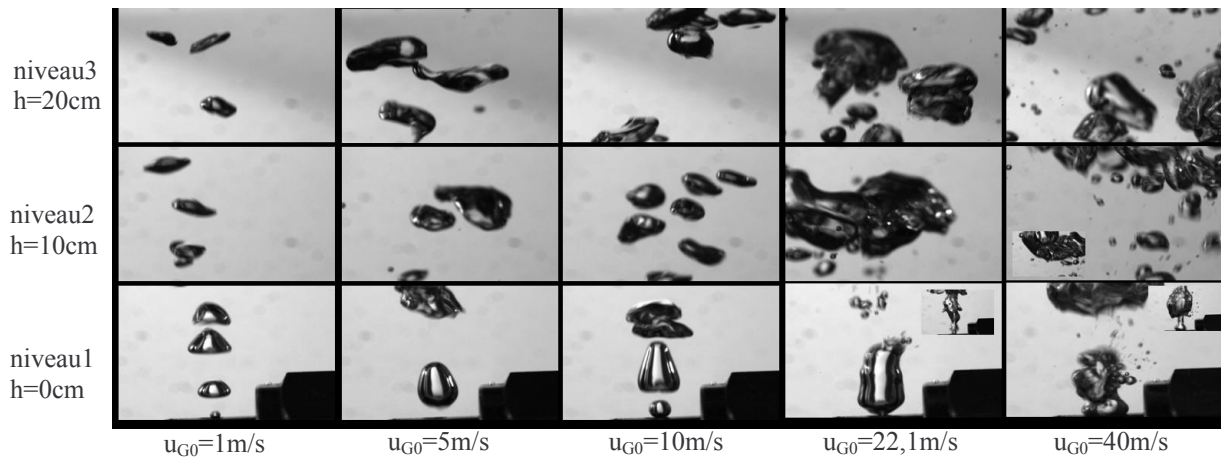


Figure 6 : Photos réalisées dans diverses conditions en cyclohexane

### I.2.a. Régimes d'éjection

Les photographies de la Figure 6 permettent de prévoir visuellement les régimes d'éjection : le régime à bulles prédomine entre 1 et 10m/s et le régime à jet s'installe à  $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ . Ces valeurs sont cette fois en parfait accord avec un passage en régime à jet pour  $Re_0=1000$ .

La Figure 7 représente les courbes de diamètres pour les niveaux 1 et 2 ( $h=0\text{cm}$  et  $h=10\text{cm}$ ) : les diamètres moyens et de Sauter sont proches jusqu'à 10m/s, ce qui témoigne d'une distribution resserrée autour d'un diamètre donné de bulle, et donc d'un régime d'éjection à bulles. Ainsi, l'injection influe beaucoup sur les distributions de tailles de bulles aux niveaux 1 et 2.

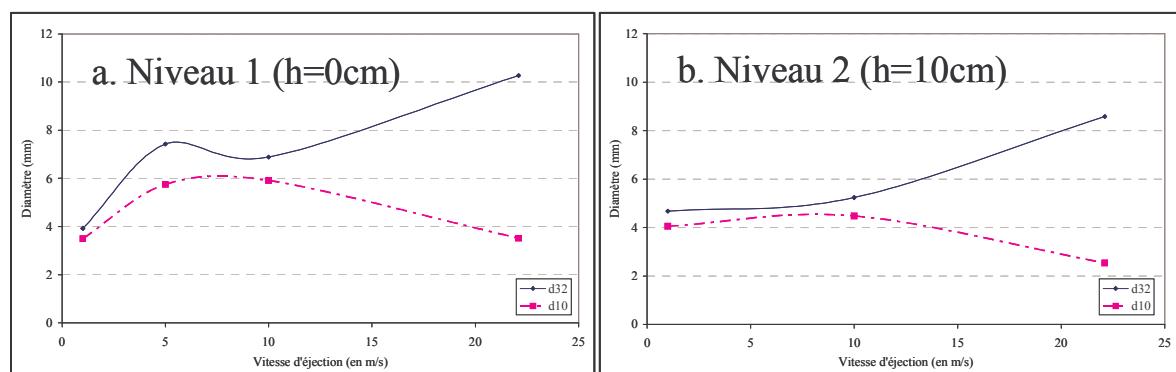


Figure 7 : Evolution des diamètres moyens et de Sauter avec la vitesse d'éjection (opérateur2)

En revanche, son effet s'atténue au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ ) (cf. Figure 8) : contrairement au cas en eau, les régimes de bullage ne peuvent être identifiés à partir des courbes de diamètres et d'écart-type au niveau 3. En effet, l'écart-type important et la différence entre les diamètres moyens et de Sauter à  $u_{G0}=5\text{m/s}$  ne sont pas en accord avec un régime à bulles. En cyclohexane, au niveau 3, les bulles s'écartent radicalement des bulles primaires et sont plutôt gouvernées par la coalescence et la rupture.

#### Remarque :

D'après les nombres de Reynolds à l'orifice, pour des vitesses d'éjection de 5 et 10m/s (cf. annexe I.C), l'appareil devrait opérer en régime à bulles continues ( $Re_0>100$ ), régime dans lequel le diamètre des bulles primaires (bulles au niveau du distributeur) augmente avec  $Re_0$ . Or, le diamètre des bulles est plutôt stable dans cette zone (cf. Figure 7a). En outre, lors du

traitement, il a pu être observé que la fréquence de bulles n'est pas constante, mais plutôt cyclique, et que la taille des bulles n'est pas uniforme. Les conditions du régime à bulles continues ne sont donc pas vérifiées ; les mécanismes à l'injection s'écartent de ceux pour lesquels ces relations ont été établies, probablement du fait de variations de pression dans la chambre.

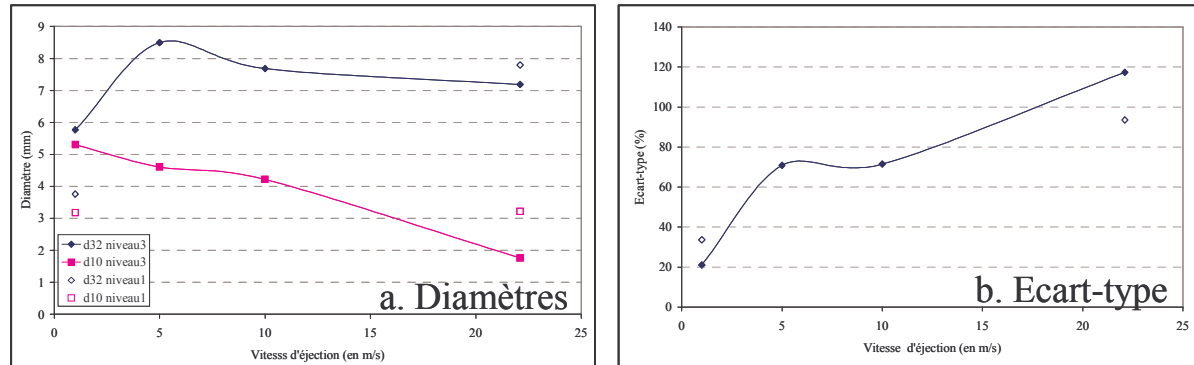


Figure 8 : Effet de la vitesse d'éjection (cyclohexane, niveau 3,  $h=20\text{cm}$ ) (opérateur 1)

### 1.2.b. Effet de la vitesse d'éjection

Le Tableau 2 regroupe l'ensemble des résultats obtenus en cyclohexane (diamètre moyen, diamètre de Sauter, diamètres minimum et maximum, écart type) pour deux hauteurs (le niveau 1 situé au niveau de l'orifice et le niveau 3 placé 20cm plus haut) et quatre vitesses d'éjection (1, 5, 10 et 22,1m/s). Le premier point analysé ici est l'effet de la vitesse d'éjection du gaz,  $u_{G0}$ .

niveau	$u_{G0}$ (m/s)	$Re_0$	$d_{32}$ (mm)	$d_{10}$ (mm)	$d_{\min}$ (mm)	$d_{\max}$ (mm)	écart type (%)	nb de bulles traitées
3	1	60	5,76	5,31	0,30	9,36	21	180
3	5	298	8,50	4,61	0,24	13,24	71	346
3	10	596	7,68	4,22	0,11	11,71	71	434
3	22,1	1318	7,18	1,77	0,23	14,70	117	497
1	1	60	3,76	3,18	0,44	5,45	34	230
1	22,1	1318	7,80	3,22	0,23	11,49	94	394

Tableau 2 : Récapitulatif des résultats obtenus en aquarium pour le cyclohexane (opérateur1)

#### 1.2.b. $\alpha$ Niveau 1 : niveau de l'injecteur

A faible vitesse ( $u_{G0}=1\text{m/s}$ ), la distribution est similaire à celle observée en eau : centrée autour d'une valeur estimée à 3,5mm, elle s'étale préférentiellement vers les petits diamètres (cf. Figure 9).

A forte vitesse ( $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ ), la distribution est beaucoup plus étalée qu'à  $u_{G0}=1\text{m/s}$  (cf. Tableau 2, Figure 9). L'effet de la vitesse est très net sur le diamètre de Sauter qui est multiplié par 2 par rapport à  $u_{G0}=1\text{m/s}$  alors que le diamètre moyen est peu modifié. Il y a ainsi des bulles beaucoup plus grosses (le diamètre de Sauter augmente), mais aussi beaucoup de petites pour que, malgré cette augmentation du diamètre de Sauter, le diamètre moyen ne soit pas altéré. Sur la distribution de la Figure 9, le pic principal correspond aux petites bulles (aux alentours de 1mm) avec une longue traînée jusqu'à des diamètres de 11,5mm. Sur les photographies de la Figure 6, il apparaît en effet que de nombreuses petites bulles se détachent en haut des grosses bulles en formation, tendance encore plus marquée à 40m/s où des bulles encore plus petites apparaissent et jaillissent de tous côtés (plus uniquement du haut de la bulle), comportement caractéristique du régime à jet dispersé.

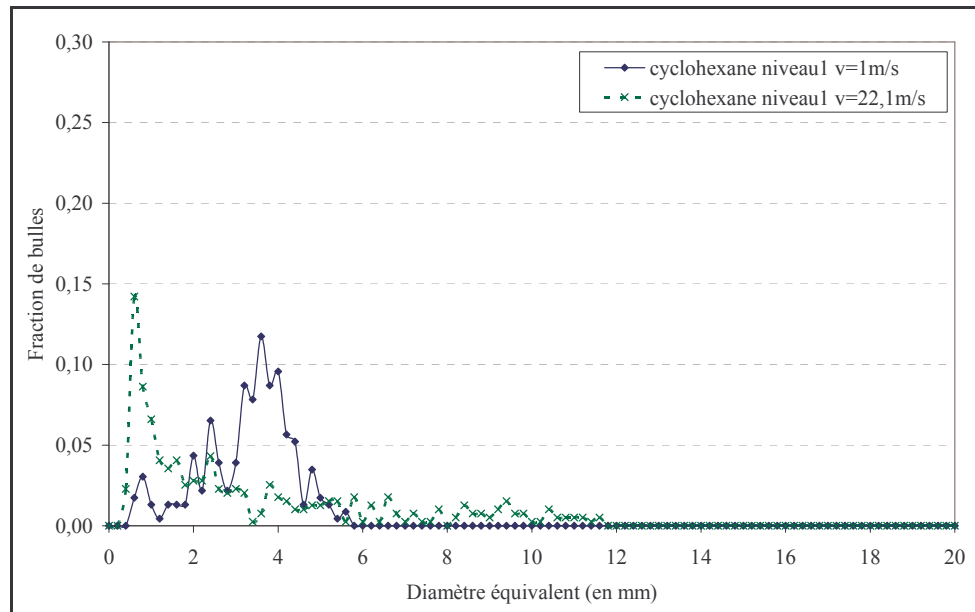


Figure 9 : Distributions de tailles de bulles pour différentes vitesses d'éjection (niveau 1,  $h=0\text{cm}$ )

### 1.2.b.β Niveau 2 : 10cm au-dessus de l'injecteur (opérateur 2)

Au vu de la Figure 10, à  $u_{G0}=1\text{m/s}$ , la distribution présente un pic marqué aux alentours de 4mm et la l'étalement de la distribution est faible (écart-type entre 29 et 35%, cf. Figure 10) ; la plupart des bulles ont une taille comprise entre 2 et 7mm.

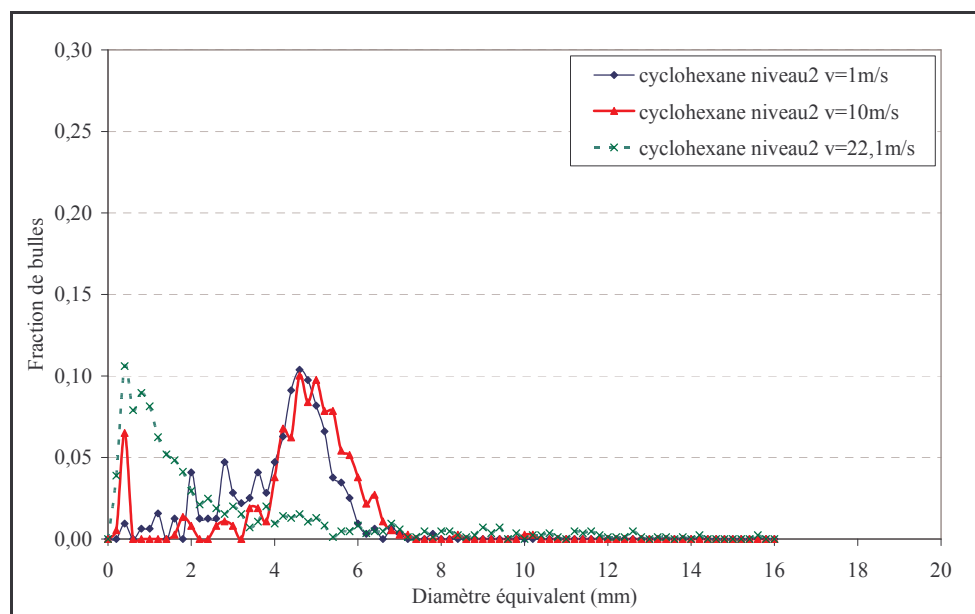


Figure 10 : Effet de la vitesse d'éjection sur la distribution des tailles de bulles (niveau 2,  $h=10\text{cm}$ ) (opérateur 2)

Lorsque la vitesse augmente, la position du pic se décale progressivement vers des valeurs plus importantes de diamètres et une population de petites bulles ( $d_B < 1\text{mm}$ ) apparaît. Aux plus fortes vitesses, les valeurs de diamètres sont très dispersées ; il y a quelques grosses bulles et beaucoup de très petites.

Les tendances observées au niveau 2 ( $h=10\text{cm}$ ) sont similaires à celles du niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ ), avec toutefois des valeurs centrales du pic légèrement décalées.

### *1.2.b.γ Niveau 3 : 20cm au-dessus de l'injecteur*

Au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ ), à faible vitesse ( $u_{G0}=1\text{m/s}$ ), la distribution de taille de bulles est relativement resserrée aux alentours de 5mm et s'étale vers les plus gros diamètres (cf. Figure 11).

Lorsque la vitesse croît ( $u_{G0}=5-10\text{m/s}$ ), la population de bulles « moyennes » s'étale et se déplace vers des valeurs plus grandes (6mm), et une nouvelle population de petites bulles apparaît aux alentours de 1mm (cf. Figure 11).

A  $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ , la tendance amorcée précédemment continue : la population de petites bulles devient prédominante et la population de grosses bulles, minoritaire, s'étale vers des diamètres toujours plus grands (cf. Figure 11).

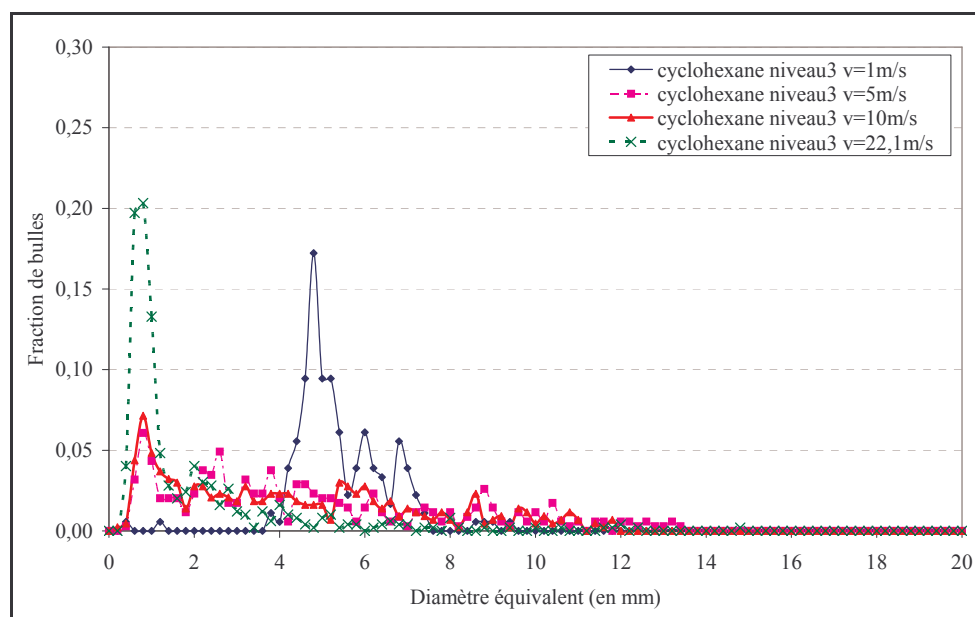


Figure 11 : Effet de la vitesse d'éjection sur la distribution des tailles de bulles (niveau 3,  $h=20\text{cm}$ )

Ainsi, on peut schématiquement représenter la dispersion par deux populations : l'une composée de grosses bulles ( $>6\text{mm}$ ) et l'autre de petites bulles de 1mm environ. Au fur et à mesure que la vitesse d'éjection augmente, les bulles formées sont de plus en plus grosses et de plus en plus dispersées. L'approche en deux populations de bulles est assez en accord avec le modèle bimodal, mais la population de grosses bulles n'a pas une taille fixée ; elle dépend du débit de gaz.

### **1.2.c. Evolutions axiale**

La Figure 12 représente l'évolution axiale des distributions de tailles de bulles.

L'effet de la vitesse, décrit au cours des paragraphes précédents, est assez similaire pour tous les niveaux, même si la proportion de petites bulles augmente axialement.



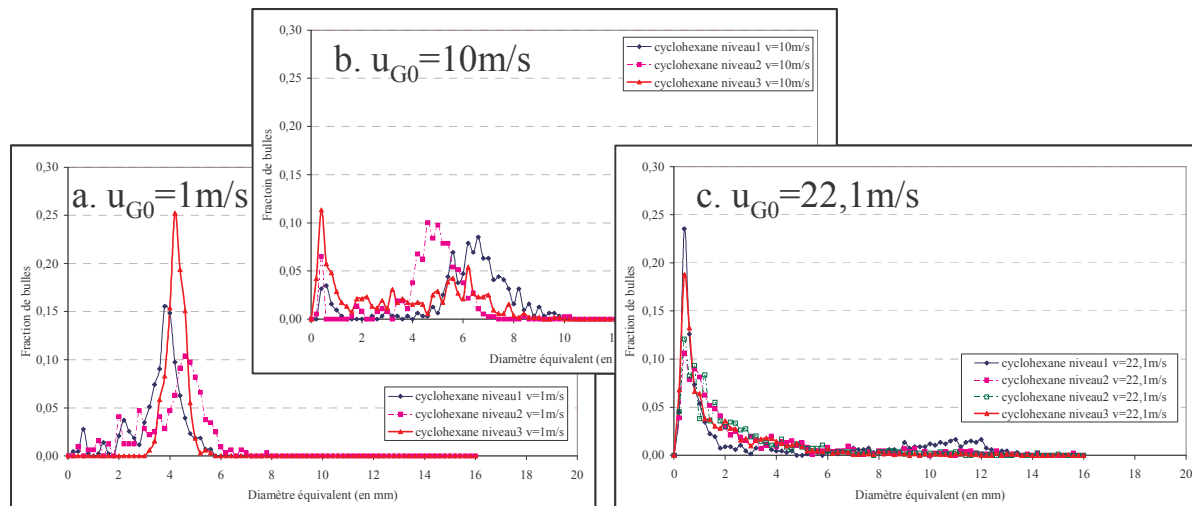


Figure 12 : Effet du niveau sur les distributions de taille de bulles

A faible vitesse de gaz ( $u_{G0}=1\text{m/s}$ ), une seule population de bulles, assez resserrée, existe ; sa taille caractéristique se situe, quel que soit le niveau, aux environs de 4mm (cf. Figure 12a). La forme des distributions quant à elle évolue avec la hauteur : les distributions de bulles se resserrent au fil de l'ascension des bulles ; il y a coalescence des bulles de diamètre inférieur à la taille d'équilibre et rupture des bulles de diamètre supérieur (cf. Figure 8), mais le maximum du pic varie peu (il oscille autour d'une valeurs d'équilibre). Ces modifications de la distribution engendrent des écarts de 2mm environ entre les diamètres moyens et de Sauter des niveaux 1 et 3 ( $h=0\text{cm}$  et  $h=20\text{cm}$ ).

A vitesse intermédiaire ( $u_{G0}=10\text{m/s}$ ), la population de petites bulles apparaît et prend une importance croissante avec le niveau (cf. Figure 12b), alors que la population de bulles moyennes, plus large qu'à  $u_{G0}=1\text{m/s}$ , varie peu ; elle oscille avec la hauteur aux alentours de 6mm (valeur supérieure à celle obtenue pour  $u_{G0}=1\text{m/s}$ ). L'augmentation continue de la proportion de petites bulles avec la hauteur présente deux explications : soit l'équilibre coalescence rupture n'est donc pas encore atteint au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ ), soit les petites bulles formées ne participent pas à cet équilibre et ne recalescent pas, car elles sont très stables et s'accumulent dans le milieu. Dans ce dernier cas, la proportion de cette population augmentera constamment au cours de l'ascension des bulles.

A forte vitesse ( $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ ), le pic de petites bulles est prédominant dès le niveau 1 (cf. Figure 12c). Au niveau 1, une population de taille plus grande est encore devinée aux alentours de 10-12mm, (valeurs supérieures à celles obtenues à  $u_{G0}=10\text{m/s}$ ), mais cette population devient imperceptible devant la population de petites bulles dès le niveau 2 ; le diamètre moyen diminue alors avec la hauteur (cf. Figure 8).

### I.2.d. Conclusions

La population des bulles en cyclohexane présente, comme en eau, une tendance bimodale. Celle-ci a pu être plus approfondie ici du fait du nombre supérieur de mesures effectuées en cyclohexane, milieu modèle du milieu industriel.

*En régime à bulles, la population des grosses bulles, dont le diamètre et l'étalement augmentent avec la vitesse, évolue peu avec la hauteur ; le diamètre moyen semble osciller autour d'une valeur d'équilibre. En régime à jet en revanche, cette population initiale de taille très grande est instable : les bulles coalescent et se cassent, conduisant à l'apparition d'une seconde population de petites bulles.*

*La proportion de petites bulles prend de l'importance avec la vitesse d'injection du gaz (plus les bulles formées sont nombreuses et grosses, plus les phénomènes de coalescence et rupture conduisent à deux populations très distinctes) et avec la position axiale dans l'aquarium. Elle est en partie à l'origine des variations axiales de diamètre de bulles et peut représenter une proportion non négligeable de bulles.*

Le niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ ), plus proche de l'état d'équilibre entre coalescence et rupture, est le niveau étudié dans la suite.

### I.3. Olone

L'olone est le milieu le plus proche du milieu industriel ; il est composé de cyclohexane additivé de cyclohexanol et de cyclohexanone. Par rapport au cyclohexane, il présente en aquarium des petites bulles dès  $u_{G0}=10\text{m/s}$ , vitesse à laquelle la distribution n'est plus vraiment en régime à bulles et entame sa transition vers le régime à jet (cf. Figure 13).

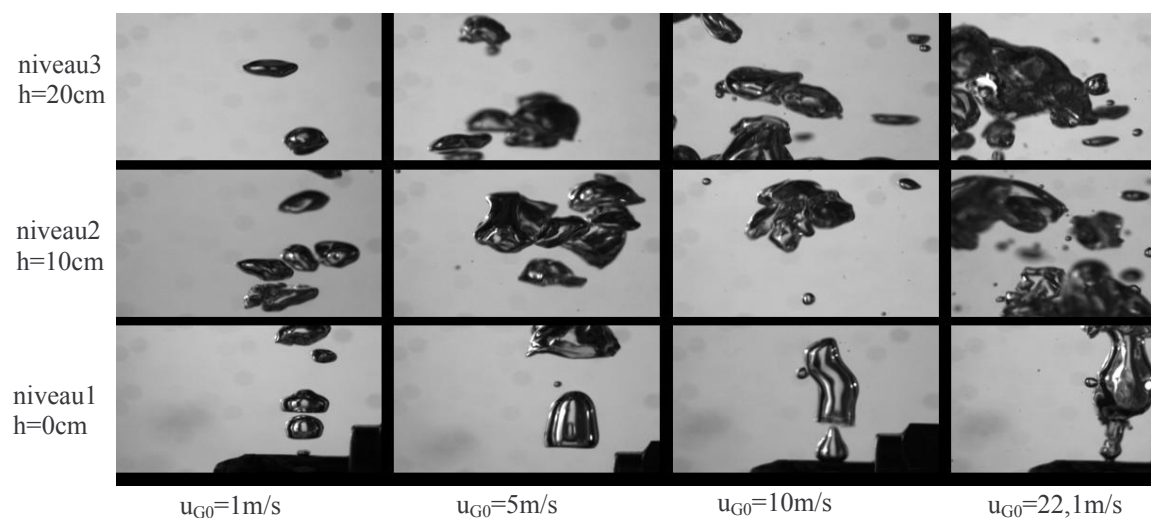


Figure 13 : Photos réalisées dans diverses conditions en olone

*Quelle que soit la vitesse d'éjection, les diamètres sont systématiquement inférieurs en olone qu'en cyclohexane (cf. Figure 14). Cette tendance est principalement marquée pour les valeurs de vitesses intermédiaires et disparaît à fortes vitesses.*

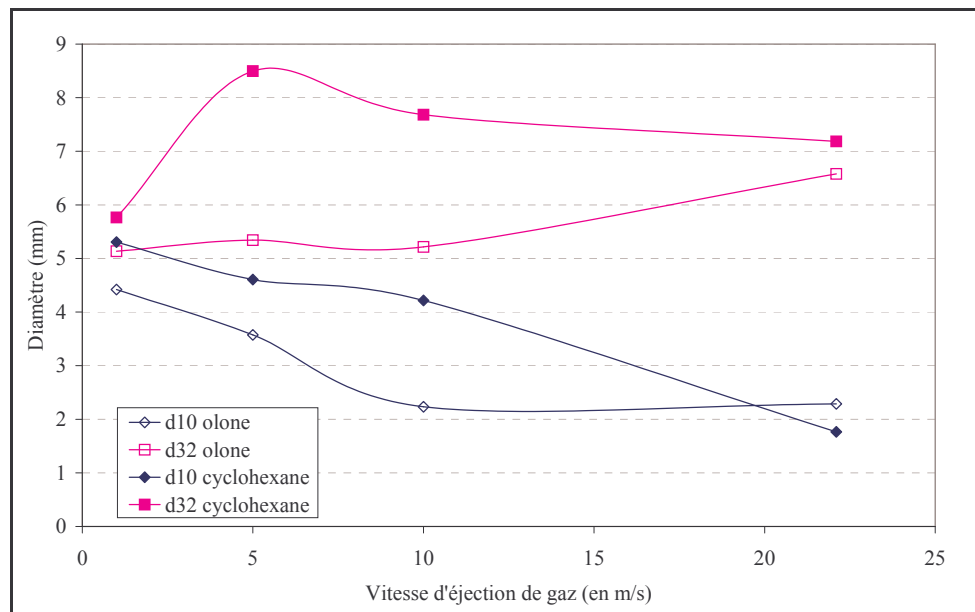


Figure 14 : Evolution des diamètres moyens et de Sauter pour le cyclohexane et l'olone

Pour analyser ces différences entre ces deux milieux, les distributions de tailles de bulles du cyclohexane et de l'olone sont comparées (cf. Figure 15). Ces distributions, peu différentes, montrent qu'il y a moins de grosses bulles en olone et davantage de petites (surtout à 10m/s). Les différences entre ces milieux sont alors plus faibles à  $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ , car la population de petites bulles est prédominante quel que soit le milieu.

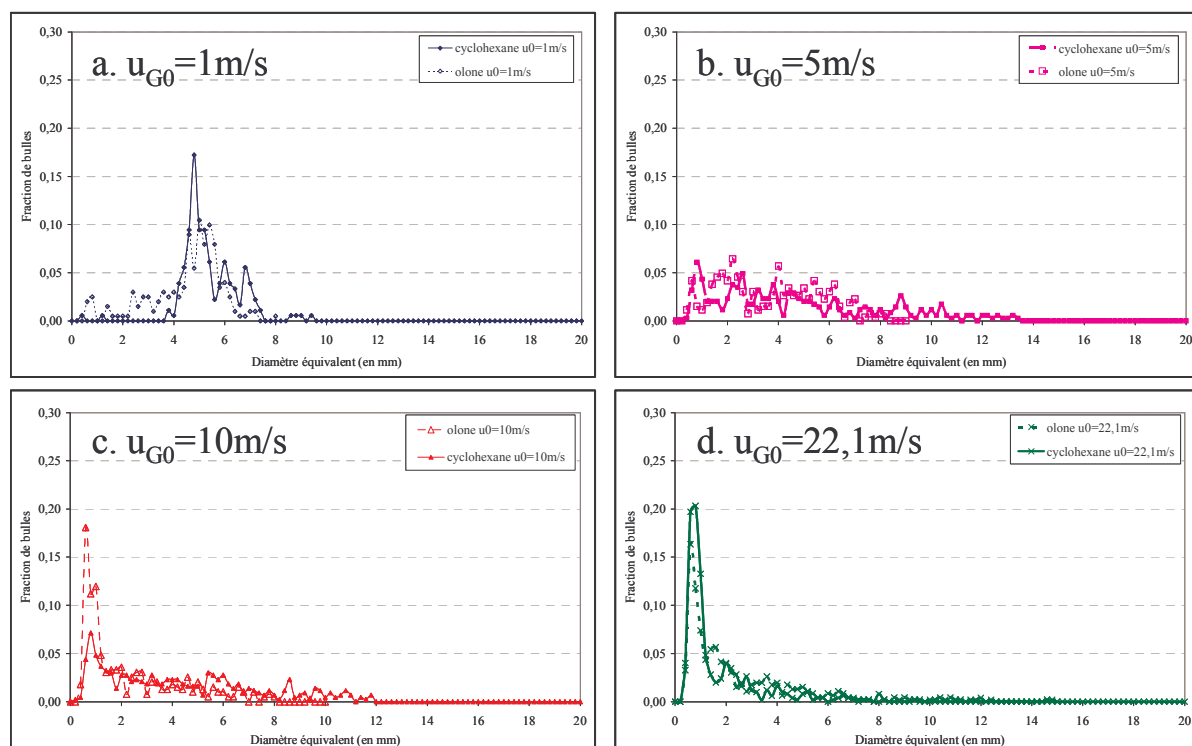


Figure 15 : Histogrammes comparatifs entre le cyclohexane et l'olone au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ )

## II. EFFET DES PROPRIETES PHYSICO-CHIMIQUES SUR LA DISTRIBUTION DE TAILLE DE BULLES

Pour évaluer l'effet des propriétés physico-chimiques d'un liquide pur sur la distribution des tailles de bulles, et plus particulièrement les effets de la tension superficielle et de la viscosité, les milieux utilisés en comparaison au cyclohexane, notre milieu-cible, sont : le décane, l'eau et le butanol (cf. choix réalisés au chapitre II, §I). Le décane permet de comparer deux liquides de propriétés physico-chimiques très proches, l'eau permet d'évaluer les effets de la tension superficielle et de la densité et le butanol permet d'évaluer l'effet de la viscosité. Les propriétés de ces milieux sont rappelées dans le Tableau 3.

Nom	Formule	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Viscosité (mPa.s)		$\mu_L/\rho_L$ (m <sup>2</sup> /s)	Tension superficielle (mN/m)		
		20°C	25°C	50°C	25°C	10°C	25°C	50°C
cyclohexane	C <sub>6</sub> H <sub>12</sub>	<b>0,78</b>	<b>0,894</b>	0,615	1,15	<b>26,43</b>	24,65	21,68
décane	C <sub>10</sub> H <sub>22</sub>	<b>0,73</b>	<b>0,838</b>	0,598	1,15	<b>24,75</b>	23,37	21,07
eau	H <sub>2</sub> O	0,99	<b>0,890</b>	0,547	0,89	74,23	71,99	67,94
butan-1-ol	C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> O	<b>0,81</b>	2,544	1,394	3,14	<b>26,28</b>	24,93	22,69

Tableau 3 : Récapitulatif des propriétés physico-chimiques des milieux étudiés

L'ensemble de cette étude porte sur l'étude des bulles au niveau 3 (h=20cm), c'est-à-dire le plus près de leur taille d'équilibre. Le Tableau 4 récapitule les résultats obtenus. La zone d'injection n'est analysée qu'à travers les photographies réalisées à ce niveau.

milieu	niveau	vitesse (m/s)	d32 (mm)	d10 (mm)	dmin (mm)	dmax (mm)	écart type (%)	nb de bulles traitées
cyclohexane	3	1	5,76	5,31	0,30	9,36	21,10	180
décane	3	1	4,17	3,59	0,94	6,20	30,29	138
eau	3	1	5,64	5,32	2,04	8,43	17,13	156
butanol	3	1	5,68	5,26	0,57	9,21	21,41	259
cyclohexane	3	5	8,50	4,61	0,24	13,24	70,86	346
décane	3	5	5,52	3,74	0,33	8,70	56,98	268
eau	3	5	7,78	6,99	0,88	10,68	26,05	168
butanol	3	5	7,54	3,85	0,16	12,45	78,77	318
cyclohexane	3	10	7,68	4,22	0,11	11,71	71,48	434
décane	3	10	5,50	3,98	0,42	9,49	49,41	376
eau	3	10	8,65	6,04	0,57	13,26	51,77	363
butanol	3	10	7,53	3,32	0,35	13,15	90,77	378
cyclohexane	3	22,1	7,18	1,77	0,23	14,70	117,37	497
décane	3	22,1	5,03	1,97	0,27	9,22	92,37	396
eau	3	22,1	9,07	3,76	0,13	16,70	92,31	447
butanol	3	22,1	7,55	1,87	0,31	15,94	116,57	468
cyclohexane	1	1	3,76	3,18	0,44	5,45	33,66	230
eau	1	1	4,50	4,03	1,38	5,89	26,24	223
cyclohexane	1	22,1	7,80	3,22	0,23	11,49	93,51	394
eau	1	22,1	15,63	9,45	0,38	20,08	67,51	207

Tableau 4 : Effets de la physico-chimie des milieux purs sur les distributions de tailles de bulles

A partir des données du Tableau 4, les évolutions des diamètres moyens et de Sauter peuvent être tracées, pour chaque milieu, en fonction de la vitesse d'injection ; les courbes associées sont représentées sur la Figure 16.

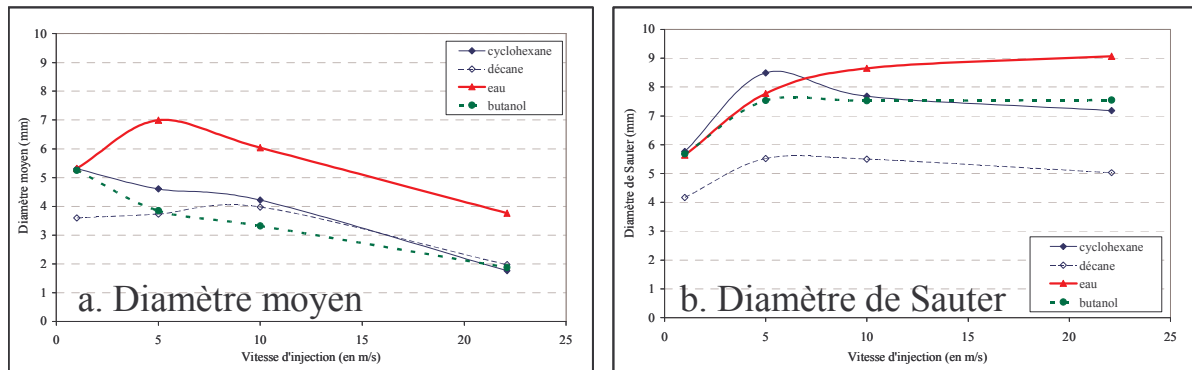


Figure 16 : Evolution des diamètres avec la vitesse d'injection pour différents milieux purs (niveau 3,  $h=20\text{cm}$ )

Sur cette figure, de manière générale, le diamètre moyen diminue avec la vitesse d'éjection, du fait de la présence accrue de petites bulles, alors que le diamètre de Sauter a tendance dans le même temps à augmenter, du fait de la présence de bulles de plus en plus grosses. Les seuls milieux ne respectant pas ces tendances monotones sont le cyclohexane, milieu dont le diamètre de Sauter passe par un maximum avant de diminuer, et l'eau dont le diamètre moyen augmente avant de diminuer. Ces tendances sont probablement à relier à des proportions différentes des populations de petites et de grosses bulles et aux phénomènes de rupture et de coalescence. En outre, ces figures montrent des comportements très différents entre le cyclohexane et le décane, malgré la similitude de leurs propriétés. Ce point sera approfondi après l'estimation des effets de chaque propriété physico-chimique.

En préambule, la validité des corrélations classiques de prévision du diamètre de bulles est évaluée.

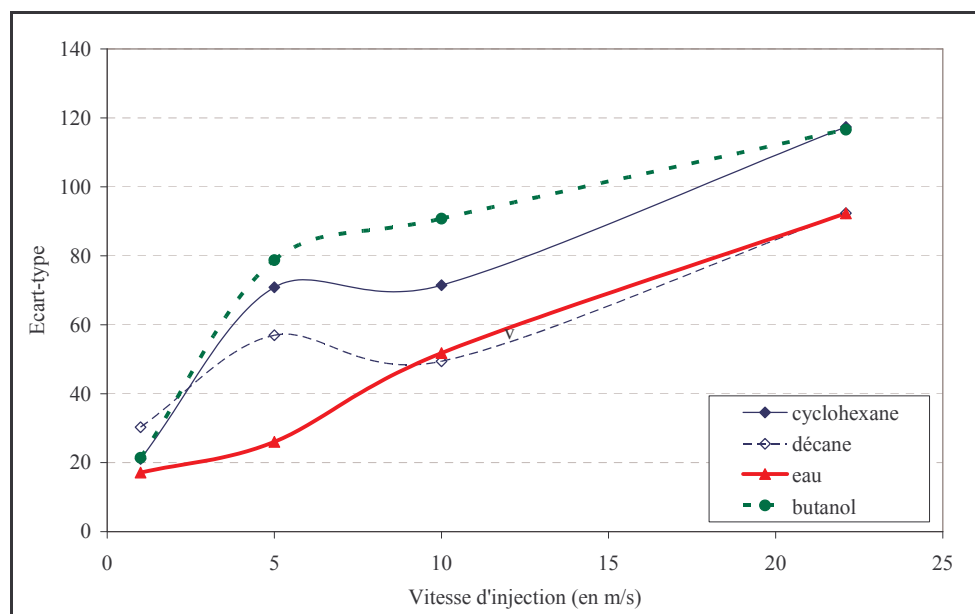


Figure 17 : Evolution des écart-type avec la vitesse d'injection pour différents milieux purs (niveau 3,  $h=20\text{cm}$ )

## II.1. Limites des corrélations

La plupart des corrélations courantes ne font intervenir qu'un nombre très limité de paramètres qui sont, selon les cas, soit la vitesse d'éjection et le diamètre de l'orifice, soit la tension superficielle et la différence de masse volumique entre le liquide et le gaz.

Quelques corrélations faisant intervenir la vitesse d'éjection sont superposées à nos points expérimentaux (cf. Figure 18) ; aucune distinction n'est faite entre les milieux, car elles ne font intervenir que le diamètre de l'orifice et la vitesse d'injection. Aucune d'entre elles ne représente vraiment nos données, ni ne permet de prévoir une diminution de la taille des bulles lorsque la vitesse d'injection croît.

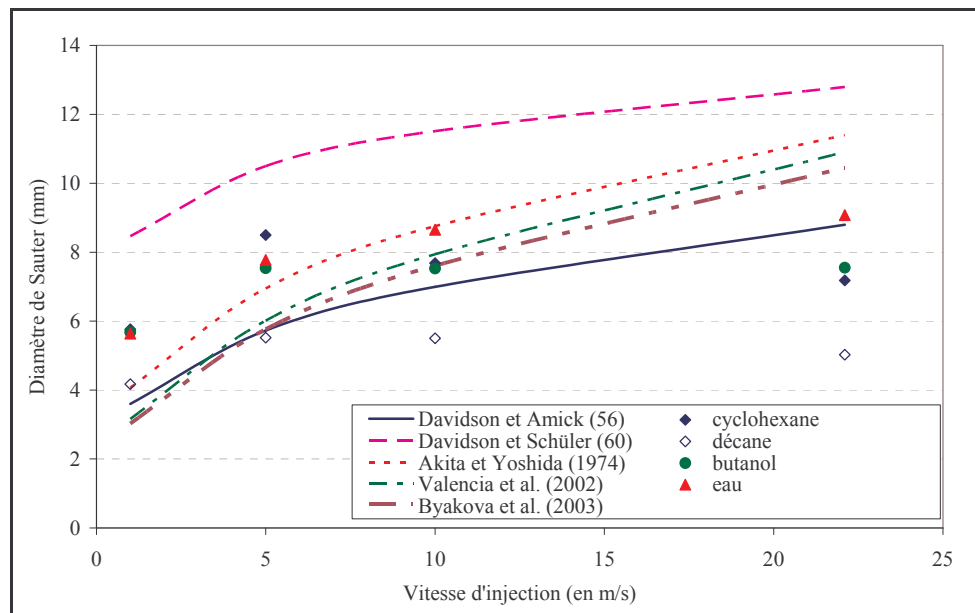


Figure 18 : Diamètres de Sauter expérimentaux et issues de corrélations

Si des corrélations faisant intervenir les propriétés physico-chimiques sont employées, comme celle vue pour le régime à bulles séparées (cf. annexe I.C) ou celle de Hughmark (1967) (cf. annexe I.B), ni les tailles obtenues, ni le classement des milieux par ordre croissant de leur diamètre ne coïncident avec nos résultats (cf. Tableau 5). Ces deux corrélations font intervenir la tension superficielle (augmentation de  $d_B$ ) et la densité liquide (diminution de  $d_B$ ) ; ces deux propriétés sont donc insuffisantes pour prédire l'ordre des tailles de bulles dans nos conditions.

milieu	bulles séparées (bilan de forces)	Hughmark (1967)
cyclo	2,69	3,51
décane	2,70	3,44
eau	3,53	6,35
butanol	2,66	3,51

Tableau 5 : Prédiction des diamètres de bulles dans différents milieux

**Aucune corrélation ne permet de représenter nos tendances ; les paramètres pris en compte par ces auteurs sont insuffisants.**

## II.2. Effet de la viscosité : comparaison entre le cyclohexane et le butanol

La comparaison du cyclohexane et du butanol permet d'isoler sans ambiguïté l'effet de la viscosité sur la taille des bulles, car les densités et les tensions superficielles de ces deux produits sont très proches.

Il est classiquement observé dans la littérature que la viscosité est très influente sur la taille des bulles : son augmentation favorise la coalescence et conduit à des diamètres de bulles plus grands, diamètres qui toutefois diminuent avec l'évolution axiale. Pour leur part, Schäfer et al. (2002) n'observent aucun impact de cette propriété sur le diamètre de Sauter dans notre gamme de mesure.

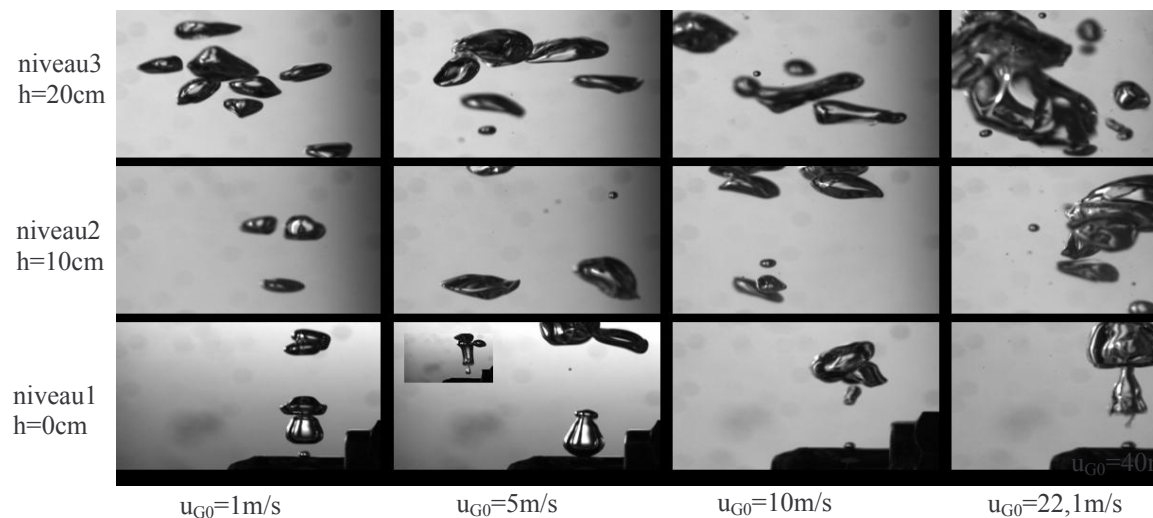


Figure 19 : Photos réalisées dans diverses conditions dans le butanol

Les bulles formées en butanol dans les différentes conditions d'étude sont présentées sur la Figure 19. La comparaison de ces clichés avec ceux obtenus en cyclohexane (cf. Figure 6) montre que la distribution est plus étalée en butanol (de petites bulles apparaissent dès 5m/s), et que le régime à bulles est maintenu pour une plage de vitesses d'éjection plus large.

Les courbes d'évolution des diamètres de Sauter (cf. Figure 16b) vérifient la tendance de Schäfer et al. (2002) : il n'y pas d'effet de la viscosité sur le diamètre de Sauter. En terme de diamètres moyens (cf. Figure 16a), aux vitesses extrêmes, les deux milieux conservent aussi des comportements analogues ( $u_{G0}=1$  et  $22,1\text{m/s}$ ), mais le butanol présente des valeurs inférieures à celles obtenues en cyclohexane pour les vitesses intermédiaires ( $u_{G0}=5$  et  $10\text{m/s}$ ). Pour sa part, l'écart-type est systématiquement plus grand en butanol (cf. Figure 17). Pour interpréter ces comportements, les distributions de tailles sont tracées pour chaque vitesse sur la Figure 20.

A faible vitesse ( $u_{G0}=1\text{m/s}$ ), le maximum de la distribution en diamètres de bulles est supérieur en butanol, mais ceci est peu visible en moyenne du fait de l'étalement vers les grands diamètres de la distribution en cyclohexane. La tendance à avoir des bulles plus grosses en milieux visqueux énoncée dans la littérature est donc vérifiée.

Pour les vitesses intermédiaires, les distributions sont assez similaires entre les deux milieux, sauf au niveau de la population de petites bulles qui est systématiquement plus importante en butanol, ce qui explique le faible effet de la viscosité sur le diamètre de Sauter et son effet plus net sur le diamètre moyen, donnant du poids aux petites bulles. A fortes vitesses, cet effet, toujours visible, s'atténue.

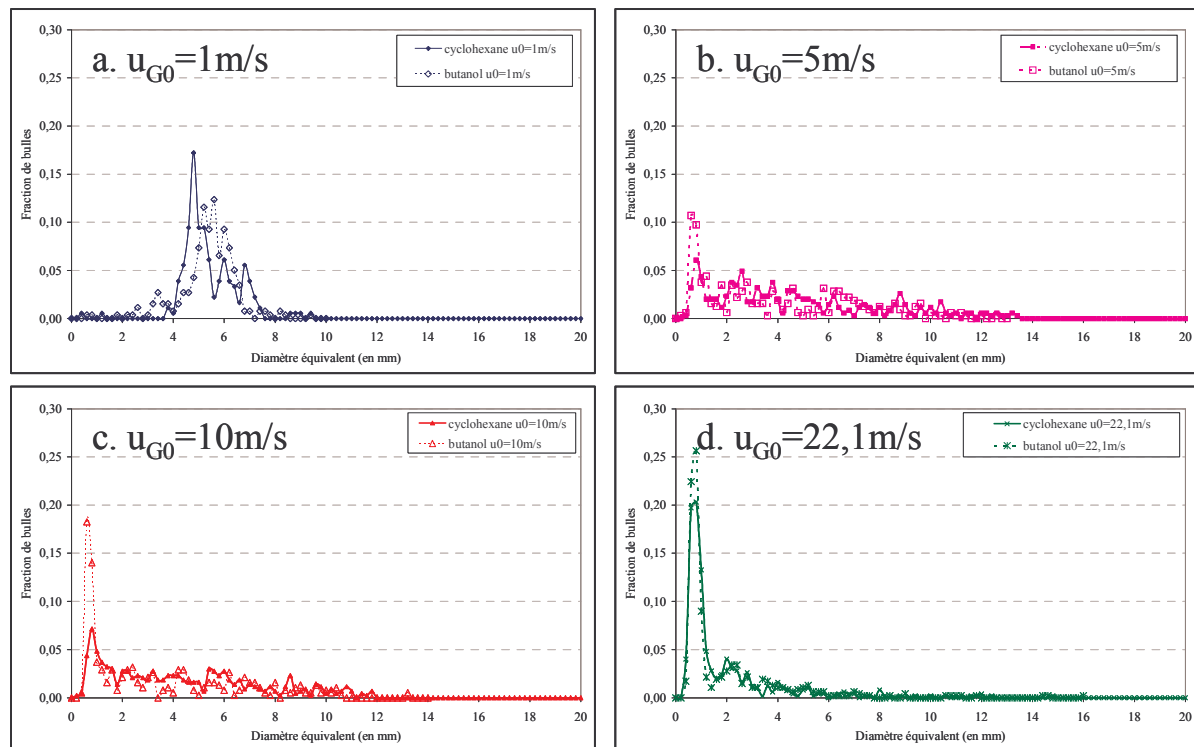


Figure 20 : Histogrammes comparatifs entre le cyclohexane et le butanol au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ )

La comparaison entre le cyclohexane et le butanol met en évidence que :

- \_ Le régime à bulles est stabilisé avec le butanol ; il s'étend sur une gamme de vitesses plus grande. ( $Re_0$  diminue lorsque la viscosité augmente.)
- \_ A faibles vitesses d'éjection, la taille des bulles est supérieure en butanol.
- \_ La proportion de petites bulles augmente avec le butanol ; elle apparaît dès  $u_{G0}=5\text{m/s}$ .

*En dehors de la stabilisation du régime à bulles, l'effet de la viscosité reste minime, bien que la viscosité soit multipliée par 2,8 entre le cyclohexane et le butanol : les valeurs de diamètres de Sauter et la distribution de tailles de bulles sont assez semblables à celle du cyclohexane quelle que soit  $u_{G0}$ . L'effet de la viscosité est a priori très secondaire sur la taille des bulles.*

### II.3. Effet de la tension superficielle et de la densité : comparaison entre le cyclohexane et l'eau

Cette comparaison est plus détaillée que les autres, car elle est également envisagée en pilote.

#### II.3.a. Niveau 1 (niveau de l'injecteur)

Au niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ ), le diamètre des bulles est inférieur en cyclohexane : les diamètres de Sauter et les  $d_{\max}$  sont systématiquement supérieurs en eau, particulièrement à fortes vitesses ( $u_{G0}=22,1\text{m/s}$ ), et les diamètres moyens et les  $d_{\min}$  sont nettement inférieurs en cyclohexane. Les distributions associées, représentées sur la Figure 21, permettent de préciser ces tendances : les bulles formées en eau ont tendance à être plus grosses, mais elles n'entraînent



pas la formation de très petites bulles, contrairement au cyclohexane. Le comportement des deux milieux est donc très différent.

En outre, les photographies associées à chaque milieu suggèrent que le régime à bulles est plus stable en cyclohexane, même si ce milieu engendre une population de petites bulles à plus faibles vitesses de gaz.

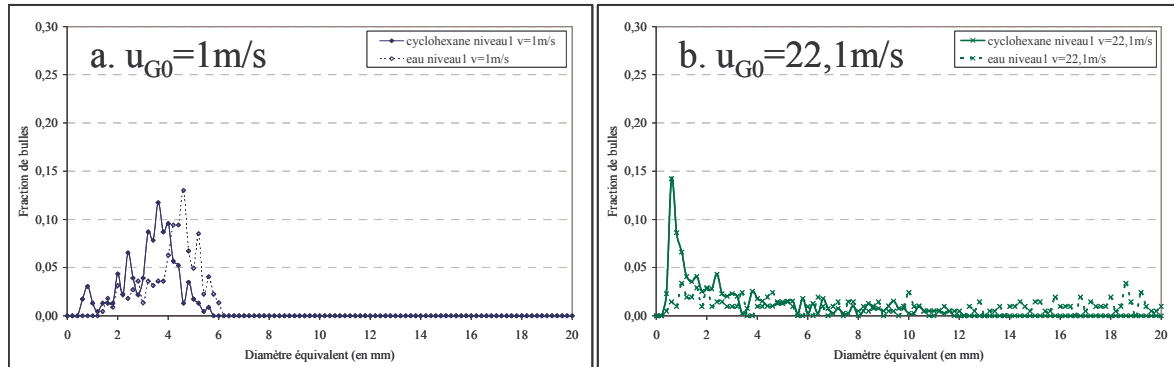


Figure 21 : Histogrammes comparatifs entre le cyclohexane et l'eau au niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ )

### II.3.b. Niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ )

Les distributions de taille de bulles en eau et en cyclohexane sont comparées sur la Figure 22.

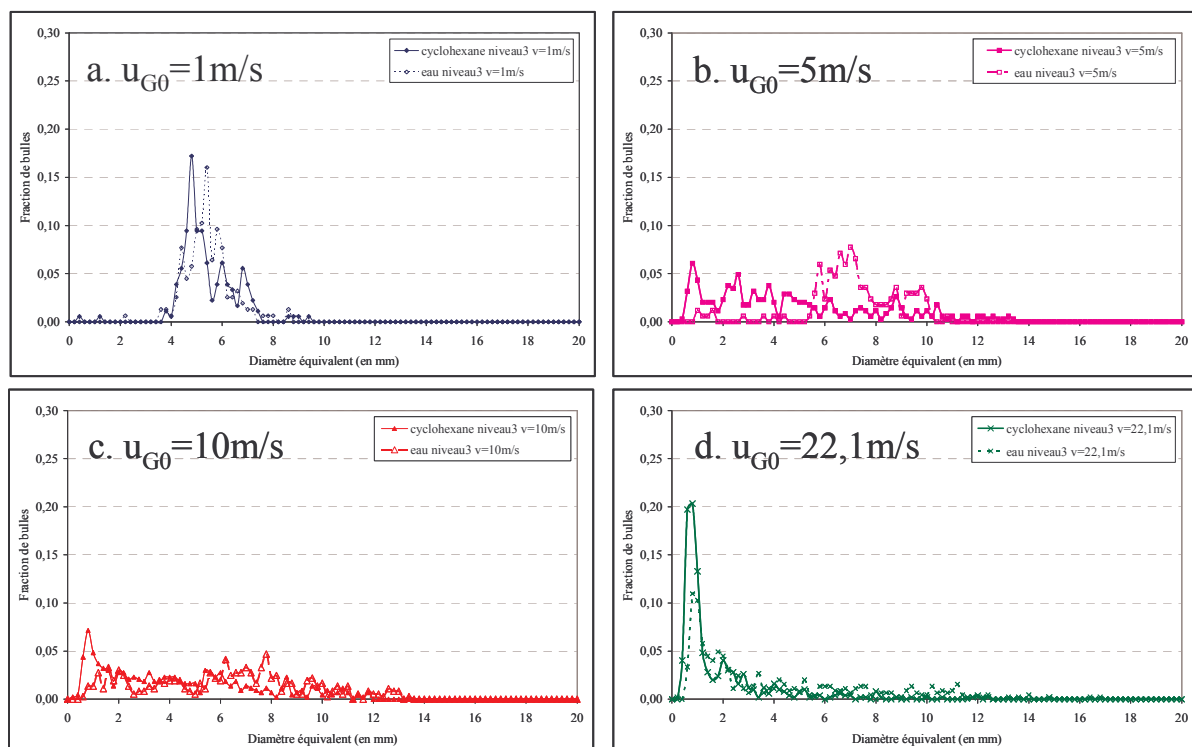


Figure 22 : Histogrammes comparatifs entre le cyclohexane et l'eau au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ )

Les bulles formées dans l'eau sont globalement plus grosses que celles formées dans le cyclohexane et la proportion de très petites bulles (1mm) apparaît pour  $u_{G0}$  plus grand.

### II.3.c. Effet comparatif de la hauteur

Pour représenter l'effet de la hauteur pour l'eau et le cyclohexane, les diamètres moyens et de Sauter sont tracés pour les deux milieux en fonction de la vitesse d'éjection et du niveau (cf. Figure 23).

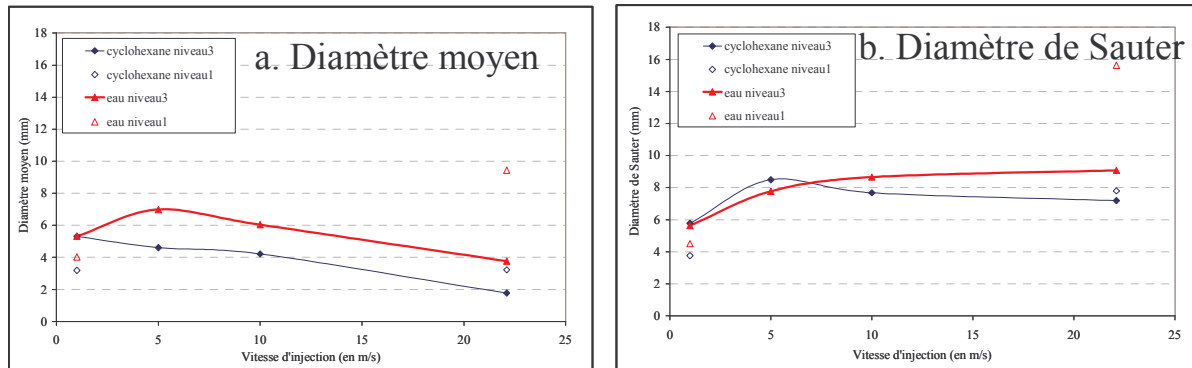


Figure 23 : Evolution des diamètres pour l'eau et le cyclohexane en fonction de la vitesse d'éjection et du niveau

A faible vitesse ( $u_{G0}=1\text{m/s}$ ), l'évolution entre les niveaux 1 et 3 est similaire en eau et en cyclohexane : la coalescence conduit à une distribution de taille plus resserrée (écart type plus faible).

A fortes vitesses en revanche les comportements des deux milieux diffèrent :

- Pour le cyclohexane le diamètre de Sauter diminue légèrement entre les niveaux 1 et 3, de même que le diamètre moyen : les bulles formées au distributeur, stables dans le cyclohexane, évoluent peu avec la hauteur ; la légère diminution des valeurs de diamètres est liée à l'apparition de petites bulles.
- Pour l'eau en revanche, les écarts entre les niveaux 1 et 3 sont beaucoup plus marqués : les diamètres moyen et de Sauter à la formation sont très grands et diminuent très rapidement ; les grosses bulles se cassent et engendrent des petites bulles.

A fortes vitesses, les bulles formées dans le cyclohexane sont donc plus stables et/ou plus proches de leur taille d'équilibre que celles formées dans l'eau.

*Il découle de ce paragraphe que les bulles formées en cyclohexane sont plus petites et probablement plus proches de leur taille d'équilibre ; elles évoluent peu et/ou plus lentement avec la hauteur. A fortes vitesses toutefois, de nombreuses petites bulles se forment au cours de l'ascension des bulles.*

*En eau, les bulles sont plus grosses et les évolutions axiales plus rapides qu'en cyclohexane, effets qui peuvent sans conteste être rattachés à la tension superficielle : les bulles sont plus coalescentes lorsque la tension superficielle augmente. Par contre, les différences relatives à la population de toutes petites bulles restent inexpliquées.*

## II.4. Comparaison de deux milieux de propriétés quasi-identiques : le cyclohexane et le décane

Deux milieux de propriétés physico-chimiques très proches, le cyclohexane et le décane, sont étudiés. Contrairement à nos attentes, les courbes de la Figure 16 leur associent des comportements très différents en terme de diamètres de Sauter, ce qui montre a priori que les trois propriétés retenues ne suffisent pas à prédire les distributions de tailles de bulles.

Pour évaluer l'origine de ce décalage, les photographies obtenues en décane sont reportées sur la Figure 24 et les distributions associées au niveau 3 sont tracées sur la Figure 25.

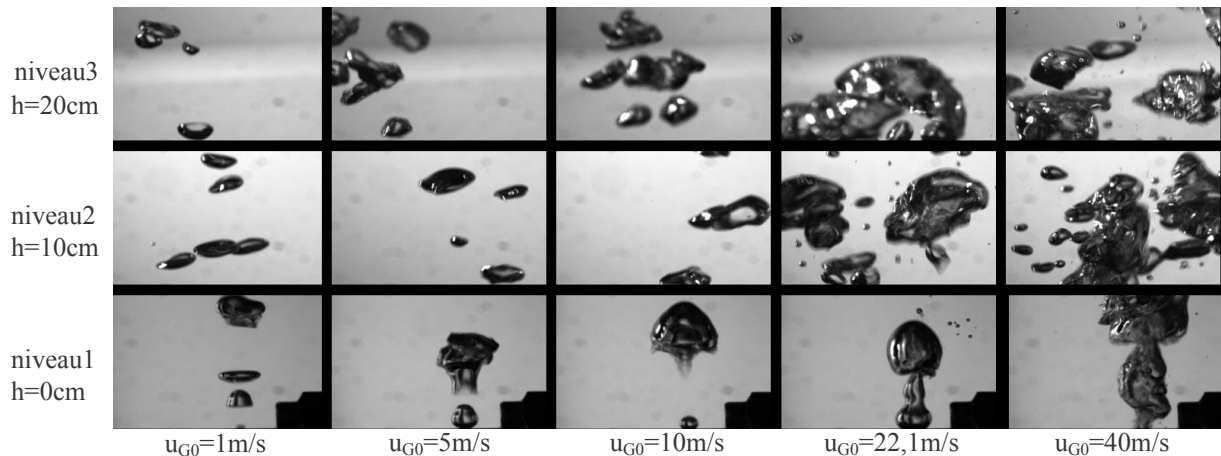


Figure 24 : Photos réalisées dans diverses conditions en décane

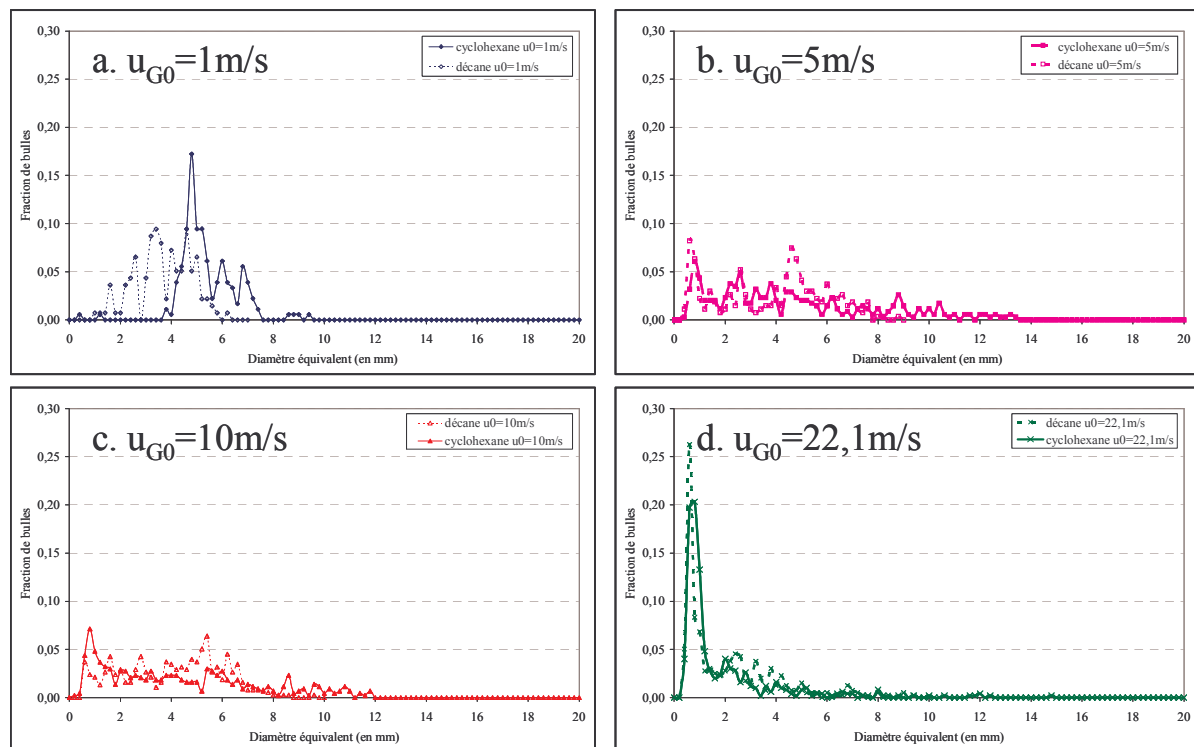


Figure 25 : Histogrammes comparatifs entre le cyclohexane et le décane au niveau 3 ( $h=20 \text{ cm}$ )

*De manière générale, les bulles tendent à être plus grosses en cyclohexane alors que la population de petites bulles est similaire pour les deux milieux.*

L'augmentation de la taille des bulles pourrait être rattachée à la légère différence de tension superficielle entre les deux milieux, mais ceci est peu probable, dans la mesure où les changements sont plus prononcés qu'entre l'eau et le cyclohexane, cas où la tension superficielle différerait d'un facteur 2,9 entre les deux produits !

## II.5. Conclusions

*La vitesse d'injection est le paramètre le plus sensible ; elle conditionne énormément l'allure de la distribution. Pour caractériser le régime d'injection, le nombre de  $Re_0$  est significatif : pour  $Re_0 > 1000$ , l'injection n'est plus à bulles.*

*Cette étude a permis de dégager les effets de la tension superficielle et de la viscosité en liquides organiques purs, effets qui peuvent sembler très différents selon qu'on les analyse en diamètres de Sauter ou en diamètres moyens en nombres.*

*L'effet de la tension superficielle est nette : sa diminution génère des bulles plus petites évoluant lentement axialement. Par contre, le rôle de la viscosité est secondaire ; il diffère de celui observé en solutions additivées classiquement utilisées.*

*Ces deux critères ne suffisent pas à expliquer les différences de comportements entre les différents milieux. Il faudrait probablement prendre en compte les effets de la densité du liquide, non explicités ici, et peut-être aussi ceux des impuretés, car les liquides utilisés ne sont pas purs à 100%.*

*Ainsi, bien que la configuration d'étude soit simple, elle fait intervenir des mécanismes de rupture et de coalescence très différents d'un milieu à l'autre et des évolutions axiales très variables.*

## III. MELANGES

Deux types de mélanges sont envisagés, les mélanges organiques et les mélanges aqueux. Il est en effet fort probable que ces deux types de mélanges aient des comportements assez différents, du fait d'un écart différent entre les tensions superficielles du liquide majoritaire et de ses additifs.

Cette étude s'intéresse particulièrement aux mélanges aqueux, afin d'estimer les différences entre les liquides classiquement étudiés (eau + alcool) et les milieux industriels (organiques en général), et d'ainsi évaluer la validité de la modélisation de ces derniers par des mélanges aqueux.

### III.1. Cyclohexane + additifs : olone

L'ajout d'additifs dans le cyclohexane modifie peu la distribution de taille des bulles : la taille moyenne de la population de grosses bulles diminue et la proportions de petites bulles augmente en olone (cf. §I.3). Ces tendances peuvent être liées en partie à la légère diminution de la tension superficielle lors de l'ajout des additifs, mais rien ne permet ici de vérifier que ce mélange se comporte comme les milieux purs.

### III.2. Milieux eau+butanol

Les mélanges eau + butanol étudiés sont composés de 0,01, 0,05 et 0,1% volumique de butanol. Leur comparaison aux produits purs les composant (eau et butanol) est présentée dans le Tableau 6.

milieu	niveau	$u_{G0}$ (m/s)	$d_{32}$ (mm)	$d_{10}$ (mm)	$d_{min}$ (mm)	$d_{max}$ (mm)	écart type (%)	nb de bulles traitées
eau	3	1	5,64	5,32	2,04	8,43	17,13	156
butanol	3	1	5,68	5,26	0,57	9,21	21,41	259
eau+but 0,01%	3	1	4,05	3,61	0,89	5,38	26,55	286
eau+but 0,05%	3	1	4,42	3,88	0,84	5,86	29,64	226
eau	3	5	7,78	6,99	0,88	10,68	26,05	168
butanol	3	5	7,54	3,85	0,16	12,45	78,77	318
eau+but 0,01%	3	5	5,64	4,71	0,58	7,42	36,35	289
eau	3	10	8,65	6,04	0,57	13,26	51,77	363
butanol	3	10	7,53	3,32	0,35	13,15	90,77	378
eau+but 0,01%	3	10	5,72	4,78	1,04	9,42	34,34	410
eau	3	22,1	9,07	3,76	0,13	16,70	92,31	447
butanol	3	22,1	7,55	1,87	0,31	15,94	116,57	468
eau+but 0,01%	3	22,1	6,18	4,07	0,58	9,13	56,39	421
eau+but 0,05%	3	22,1	6,41	4,31	0,54	10,28	55,15	347
eau+but 0,1%	3	22,1	6,40	3,86	0,29	10,98	62,64	456
eau	1	1	4,50	4,03	1,38	5,89	26,24	223
eau+but 0,01%	1	1	4,35	3,82	0,79	8,56	27,98	227
eau	1	22,1	15,63	9,45	0,38	20,08	67,51	207
eau+but 0,01%	1	22,1	9,22	5,65	0,52	13,22	65,30	329

Tableau 6 : Récapitulatif des résultats en eau, en butanol et en mélanges eau+butanol

*Le comportement des mélanges n'est pas intermédiaire entre celui des deux milieux purs le composant : les diamètres observés dans les mélanges sont souvent inférieurs aux diamètres de bulles des deux produits purs ; les seules propriétés physico-chimiques du milieu ne suffisent pas à expliquer ces différences. L'ajout d'un produit tensioactif dans l'eau diminue davantage la taille des bulles que son utilisation pure ; il y a probablement un effet bénéfique de l'accumulation de molécules d'alcool à la surface des bulles.*

#### III.2.a. Effet de l'ajout de 0,01%vol de butanol dans l'eau

La Figure 26 montre que non seulement les diamètres sont plus faibles dans les mélanges eau + butanol mais qu'en plus, à tous les niveaux, les distributions sont plus resserrées, particulièrement à fortes vitesses au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ ) (écart faible entre les diamètres moyens et de Sauter). Le butanol agit donc dès la formation des bulles ; il migre a priori rapidement vers les bulles.

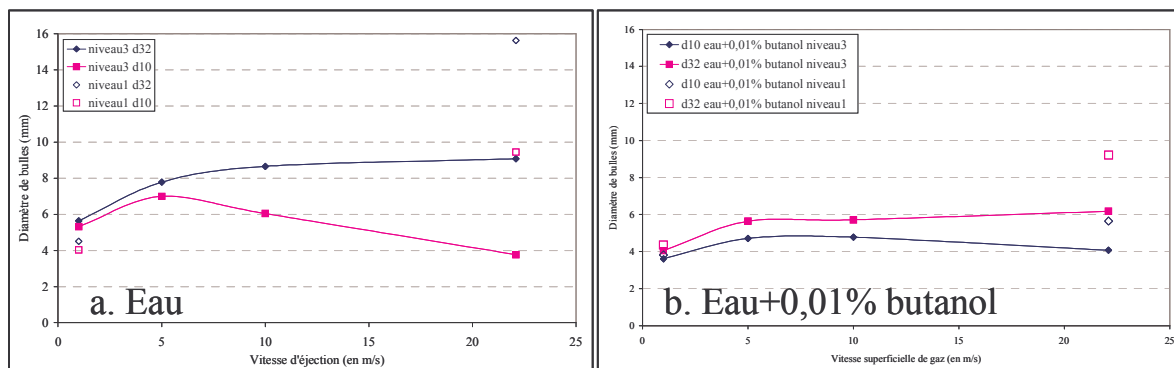


Figure 26 : Evolution des diamètres de bulles

En terme de distribution de tailles de bulles, cela se traduit, au niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ ) (cf. Figure 27), comme au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ ) (cf. Figure 28), par une taille maximale de bulles plus petites en eau + butanol, un déplacement du pic de la population de bulles « moyennes » vers un diamètre plus faible, mais également par une perte d'importance de la population de très petites bulles : les bulles, stabilisées par le butanol, ne se cassent plus sous l'effet du cisaillement pour former de très petites bulles. La population de bulles est donc très différente de celle observée en eau et en butanol purs.

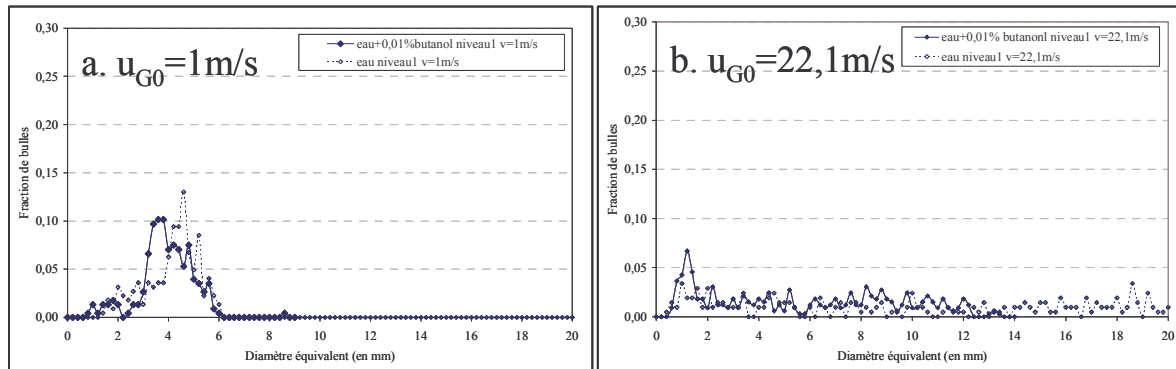


Figure 27 : Distributions de tailles de bulles en eau et en eau+0,01% vol. de butanol au niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ )

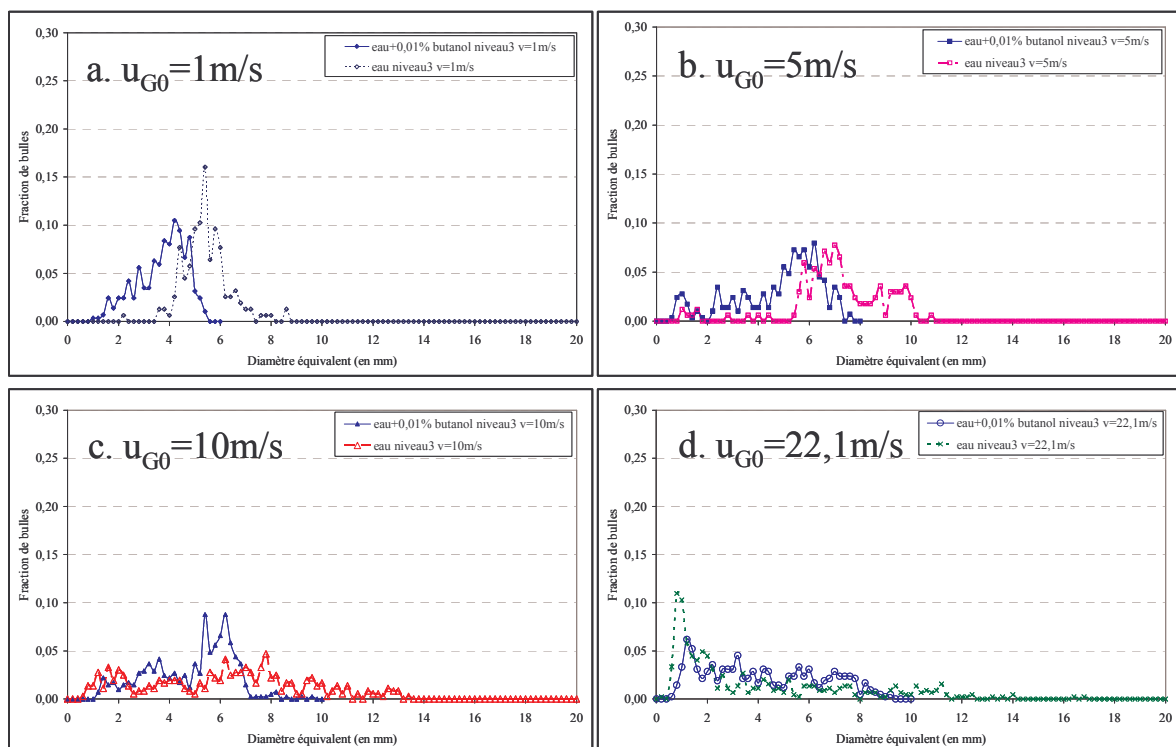


Figure 28 : Distributions de tailles de bulles en eau et en eau+0,01%vol. de butanol au niveau 3 ( $h=20\text{cm}$ )

### III.2.b. Effet de la concentration en butanol

*Dans la gamme de concentrations en butanol étudiée (entre 0,01% et 0,1%), ces tendances semblent indépendantes de la concentration en butanol (cf. Figure 29) : quelle que soit la concentration de butanol entre 0,01% et 0,1%, et, quelle que soit la vitesse d'éjection, les diamètres moyens et de Sauter ne varient pas. Il a en outre été vérifié que l'invariance de ces deux critères s'accompagne d'une invariance des distributions de tailles.*

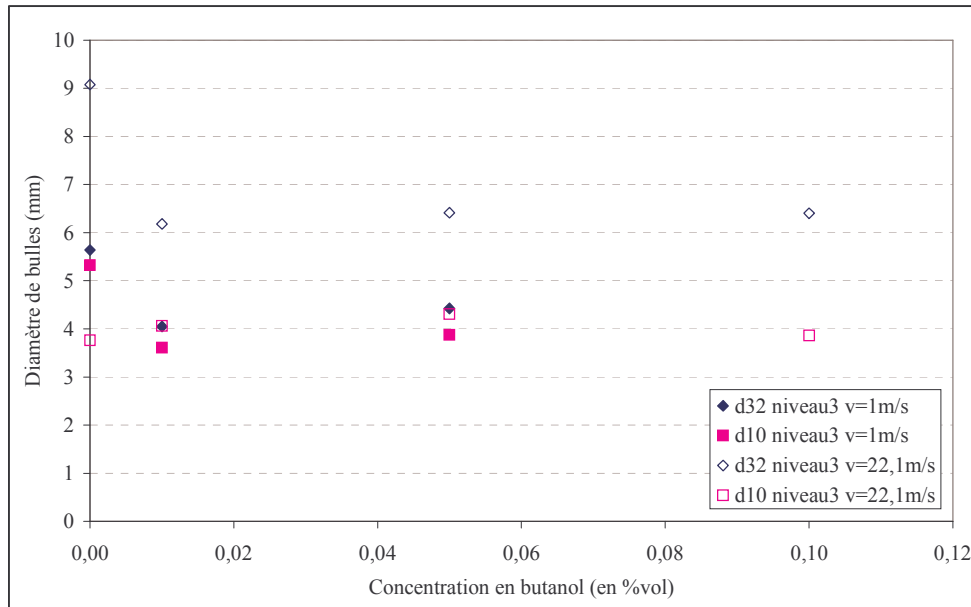


Figure 29 : Effet de la concentration en butanol sur les diamètres de bulles

Ainsi, au-delà d'une concentration minimale et en deçà d'une concentration maximale, l'effet de l'ajout de butanol ne dépend pas de sa concentration. Cette tendance est conforme à celle de la littérature : il existe une concentration limite à partir de laquelle la taille des bulles n'évolue plus. Dans notre gamme de concentrations, il est alors impossible d'ajuster la concentration en butanol pour atteindre une taille de bulles recherchée.

### III.2.c. Conclusions

*Pour conclure, les distributions de tailles en eau+butanol diffèrent de celles des deux milieux purs (eau et butanol) ; la formation de très petites bulles (1mm) notamment est atténuée voire évitée.*

*Cette stabilité accrue des bulles est intéressante, mais ne permet pas de représenter les milieux organiques : certes la taille de bulles diminue et se rapproche de celle obtenue en liquide organique, mais, dans tous les liquides purs étudiés, la population de très petites bulles était présente. Il est donc peu probable que les milieux eau+alcool permettent de représenter correctement les milieux organiques, car les distributions de tailles de bulles, paramètres clés dans la détermination de l'hydrodynamique, ne peuvent être identiques. Une certaine prudence reste néanmoins de mise, dans la mesure où ces essais en aquarium ne permettent pas à eux seuls de conclure sur les comportements en colonne !*

*Par contre, l'utilisation de cyclohexane pur en lieu et place de l'olone semble plus justifiée, car la population de petites bulles est également présente en olone, contrairement aux mélanges eau + butanol.*

*Enfin, il apparaît que la taille des bulles est indépendante de la concentration en butanol dans la gamme de concentrations entre 0,01 et 0,1%vol.*

### III.2.d. Perspective : tension superficielle dynamique

Pour finir, revenons sur l'aspect dynamique de la migration du butanol vers les bulles. Il a été supposé précédemment que le butanol migre rapidement vers les bulles, car son effet est sensible dès le niveau 1 ( $h=0\text{cm}$ ). Cette notion de temps de migration peut être quantifiée via la tension superficielle dynamique, c'est-à-dire l'évolution de la tension superficielle en fonction du temps de formation des bulles. Cette technique en dynamique, inspirée des travaux effectués à l'INSA de Toulouse (Loubière (2002)) a pour principal intérêt de permettre la détermination de valeurs de tensions superficielles pour des âges d'interface variables.

#### III.2.d. $\alpha$ . Méthode de mesure

La méthode de mesure envisagée est la méthode par pression dans une bulle, méthode couramment utilisée pour déterminer la tension superficielle dynamique pour des âges de surface de 0,05 à 50 secondes. Sa mise en œuvre est simple et peu onéreuse ; elle consiste à envoyer un flux de gaz à travers un capillaire immergé dans la solution à étudier. La tension superficielle est alors calculée à partir de la pression dans le système et de la profondeur d'enfoncement du capillaire. La variation de la quantité de gaz injecté permet de jouer sur le taux de formation des bulles et donc sur l'âge de surface. Elle présente l'avantage de créer un interface gaz/liquide renouvelé pour chaque bulle à l'intérieur du liquide, ce qui permet de mieux inclure les perturbations dues aux impuretés ou à l'humidité de l'air extérieur.

Le tensiomètre à bulles utilisé a été mis au point par Tauzin. Il comporte trois parties (cf. Figure 30) :

- \_ La cellule de mesure (I) contenant la solution dans laquelle plonge les capillaires,
- \_ Le dispositif de création de pression (II) qui permet l'émission des bulles aux extrémités du capillaire,
- \_ Le capteur de pression (tube en U) qui nous donne la pression établie lors du détachement de la bulle.

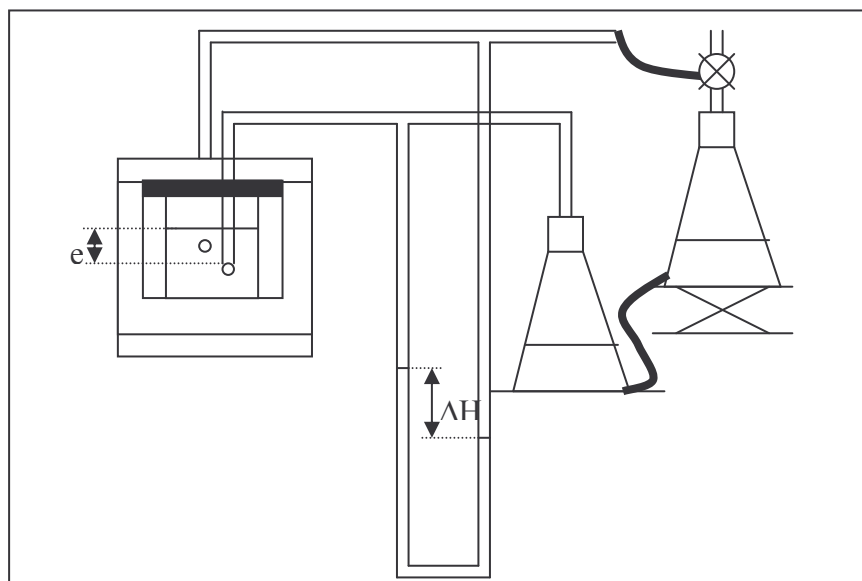


Figure 30 : Schéma du montage expérimental



Pour calculer la tension superficielle, on utilise l'équation différentielle de Gauss Laplace qui, dans notre cas, devient [Loubière (1999)] :

$$\sigma = \Delta h \left( \frac{gr\rho_M}{2} \right) - gr \left( \frac{e}{2} + \frac{r}{3} \right) \rho_s$$

où :

$\Delta h$  : perte de charge

$g$  : gravité

$\rho_M$  : densité du liquide contenu dans le U

$\rho_s$  : densité de la solution étudiée

$r$  : rayon intérieur du capillaire (mesuré au microscope électronique)

$e$  : profondeur d'enfoncement (mesurée à l'aide d'un cathétomètre)

### III.2.d.β Résultats

La Figure 31 montre des exemples de courbes de tensions superficielles dynamiques (tension superficielle en fonction de l'âge de l'interface).

La Figure 31a est tracée pour des liquides purs ; elle permet vérifier le bon fonctionnement de l'installation et que la valeur de stabilisation est la tension superficielle en statique.

La Figure 31b est tracée pour les mélanges eau+butanol étudiés précédemment. Les courbes associées sont moins régulières qu'en liquide purs, mais globalement tous les liquides ont des tensions superficielles statiques similaires à celle de l'eau, ce paramètre ne peut donc expliquer les différences entre les milieux. En outre, les tensions superficielles dynamiques sont similaires quelle que soit la concentration en butanol et la pente est très rapide. Ceci est cohérent avec la similitude des résultats obtenus quelle que soit la concentration et la rapidité de la migration présumée. Ce critère serait à approfondir et pourrait peut-être expliquer certaines tendances.

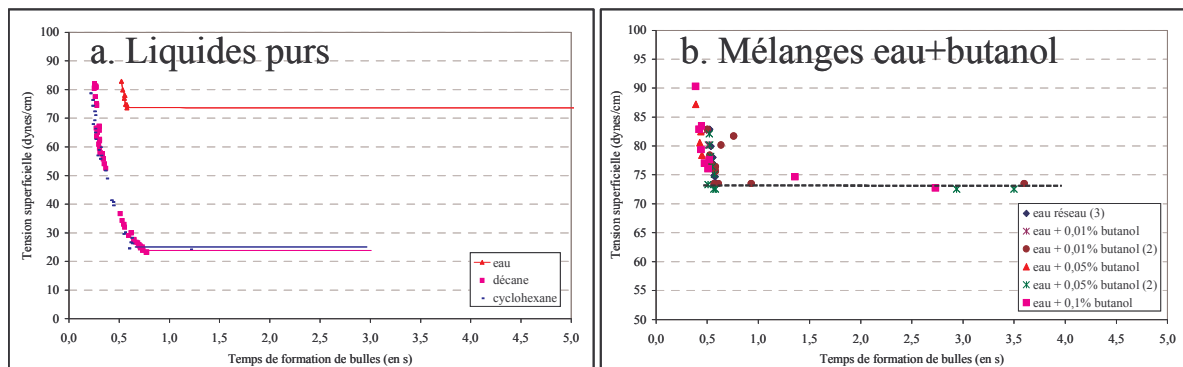


Figure 31 : Tension superficielle en dynamique

## IV. CONCLUSIONS

*Les trois propriétés physico-chimiques classiques ne permettent pas d'expliquer toutes les différences de distributions entre les milieux ; d'autres phénomènes, non identifiés, sont influents.*

*Les populations de bulles observées en eau, en cyclohexane et en olone permettent d'approcher les distributions de tailles possibles en colonne et leurs évolutions avec  $u_{G0}$  et la hauteur, indications intéressantes pour illustrer nos interprétations en pilote. Elles permettent ainsi d'observer qu'il y a des effets de coalescence même en cyclohexane. Dans ce milieu, la taille moyenne des bulles est inférieure à celle obtenue en eau et les évolutions axiales sont plus lentes. Ces deux effets sont probablement liés à une différence de tension superficielle entre les deux milieux. Plus curieusement, en cyclohexane, la proportion de toutes petites bulles est supérieure à celle obtenue en eau.*

*Ces photographies permettent aussi d'observer qu'il est impossible en colonne d'obtenir une distribution uniforme des bulles, compte tenu des étalements déjà observés ici pour des vitesses d'éjection plus faibles. Elles mettent également en évidence la diversité de formes des bulles, bien loin des hypothèses ellipsoïdales classiques.*

L'analyse des effets des différentes propriétés des liquides et des mélanges eau-butanol posent également la question du choix d'un milieu modèle adéquat, milieu de manipulation aisée qui permettrait à l'industriel d'accéder plus facilement aux caractéristiques de son milieu.

La validité de l'utilisation des milieux modèle du type eau+alcool pour les liquides organiques pose en effet question. En effet, dans notre cas, les distributions des solutions eau + butanol obtenues en aquarium diffèrent profondément de celles des milieux organiques purs : la taille moyenne des bulles peut s'en approcher, mais la population de toutes petites bulles est peu présente dans les mélanges eau+ alcool, ce qui peut engendrer des différences majeures en pilote. En effet, il est couramment observé que l'ajout d'alcool repousse la transition du régime homogène au régime hétérogène, alors que cette étude a montré l'inverse pour le liquide industriel utilisé ici (cf. chapitre IV, §B). L'emploi de ces mélanges comme milieux modèles semblent donc peu adaptée.

L'utilisation comme milieu modèle d'un liquide pur conduisant à une distribution de tailles de bulles similaires au milieu cible en aquarium pourrait être préférable. Dans notre étude, le milieu pur le plus représentatif du cyclohexane est le butanol. Pour vérifier la validité de cette approche, il faudrait réaliser quelques essais pilote en butanol et comparer les résultats obtenus à ceux obtenus en cyclohexane. Toutefois, ce type de milieu modèle n'est pas forcément plus facile à manipuler. Le seul moyen fiable de connaître l'écoulement en présence d'un milieu donné semble donc être de réaliser en pilote les essais associés...

*Pour notre étude, le cyclohexane a été utilisé comme milieu modèle de l'olone (et du milieu réel), ce qui est correct, au vu de nos résultats en pilote (chapitre IV, §B.II) et en aquarium (§I.3), car ce mélange organique modifie peu les distributions de tailles de bulles en aquarium. Cependant, la plupart du temps, les milieux modèles choisis, en général des mélanges eau+alcool, sont plus éloignés des milieux réels, ce qui est plus discutable.*



## ANNEXE IV.B : REGIMES DE BULLAGE

Dans cette annexe, les méthodes d'analyse des régimes de bullages (cf. chapitre III, §A.II.2.b) sont appliquées successivement au cas classique servant de référence (colonne vide sans circulation liquide), puis au fonctionnement continu sur le liquide, et ce pour les différents liquides étudiés (eau, cyclohexane et eau). Cette étude, découplée du contexte général du chapitre IV, apporte quelques compléments à l'étude hydrodynamique.

### I. CONFIGURATION DE REFERENCE (colonne vide, $u_L=0\text{cm/s}$ )

Pour la configuration de référence utilisée en pilote (colonne vide,  $u_L=0\text{cm/s}$ ), les milieux analysés sont successivement l'eau, le cyclohexane et l'olone.

#### I.1. Eau

Pour l'eau, il semble, au vu de la courbe d'évolution du taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz (cf. Figure 32), que la transition est amorcée aux alentours de  $u_G=4\text{cm/s}$  pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et aux alentours de  $u_G=8\text{cm/s}$  pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ).

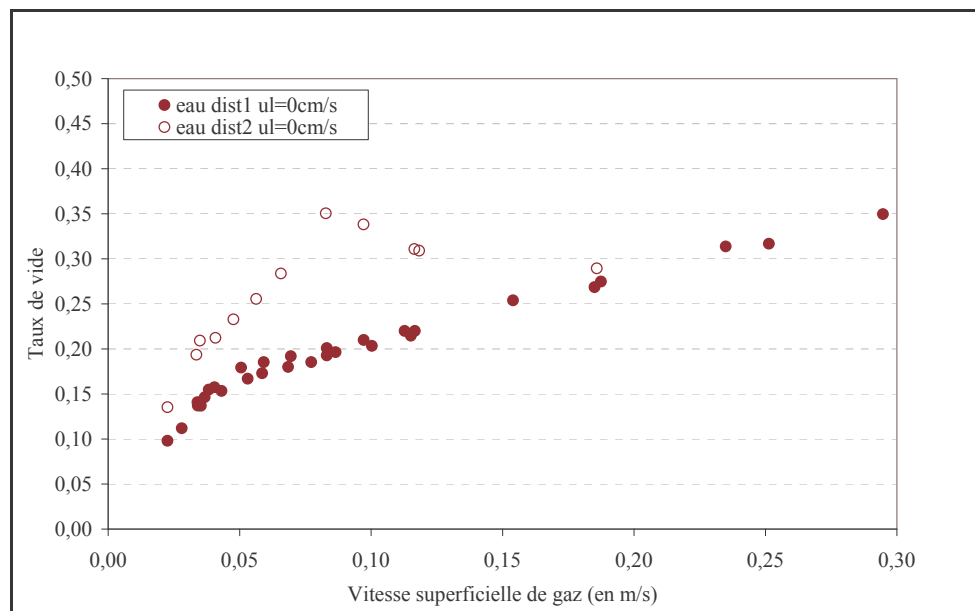


Figure 32 : Evolution du taux de vide global en fonction de la vitesse superficielle de gaz pour les deux distributeurs (eau,  $u_L=0\text{cm/s}$ )

### I.1.a. Corrélations

Ces premières estimations permettent d'ores et déjà d'évaluer la validité des corrélations de prédiction des valeurs de transition. La plupart ayant été établies en eau, c'est dans ce milieu qu'elles sont le plus susceptibles d'être vérifiées. Pourtant, les corrélations de Reilly et al. (1994) et de Krishna et al. (1991) conduisent à des valeurs de transitions largement sous-estimées tant en taux de vide qu'en vitesse superficielle de gaz. Ces résultats ne sont en fait guère surprenants dans la mesure où ces auteurs ne font intervenir à aucun moment les propriétés du distributeur, pourtant si influentes sur la transition. Ainsi, leurs valeurs de transition plus faibles laissent présager que les distributeurs utilisés par ces auteurs forment de grosses bulles. De plus, ces corrélations supposent que la transition ne comprend qu'un seul point, c'est-à-dire que la transition du régime homogène au régime hétérogène est abrupte, ce qui semble peu réaliste (excepté peut-être si le distributeur utilisé forme vraiment de grosses bulles). Seule l'approche de Zheng et al. (1988) permet de considérer un véritable régime de transition, mais elle nécessite la connaissance préalable de la taille des bulles. Ainsi, aucune de ces corrélations n'est satisfaisante : il est très délicat de prévoir la transition, ou plus précisément la zone de transition, dont l'étendue semble en outre très sensible à la qualité de l'eau.

	Reilly et al. (1994)	Krishna et al. (1991)
$\epsilon_{G,trans}$ (%)	6,1	1,1
$v_{B,petites}$ (cm/s)	25,6	172,4
$u_{G,trans}$ (cm/s)	1,5	1,9

Tableau 7 : Prédiction de la transition issue des corrélations de Reilly et al. (1994) et de Krishna et al. (1991) (eau,  $u_L=0$ cm/s)

*Remarque :*

La vitesse de bulles issue de la corrélation de Reilly et al. (1994) est cohérente avec la vitesse terminale d'ascension présumée, alors que la vitesse issue du calcul de Krishna et al. (1991) est totalement aberrante.

### I.1.b. Approche linéaire

La prévision des valeurs de transition semblant impossible, l'identification des transitions à partir de l'évolution du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz doit être précisée.

Dans un premier temps, des comportements quasi-linéaires sont associés aux régimes homogènes et hétérogènes (cf. Figure 33). Cette approche étant la plus simpliste de toutes, les conclusions en découlant doivent être considérées avec précaution.

#### I.1.b.α Régime homogène

En régime homogène, la linéarisation envisagée est justifiable, car les bulles formées sont théoriquement toutes de taille identique et n'interagissent pas entre elles ; toute augmentation du débit se traduit donc par une simple augmentation du nombre de bulles et par suite par une augmentation dans la même proportion du taux de vide. Avec cette approche, la fin du régime homogène est prédite pour une valeur de vitesse superficielle de gaz de l'ordre de 4cm/s pour les deux distributeurs.

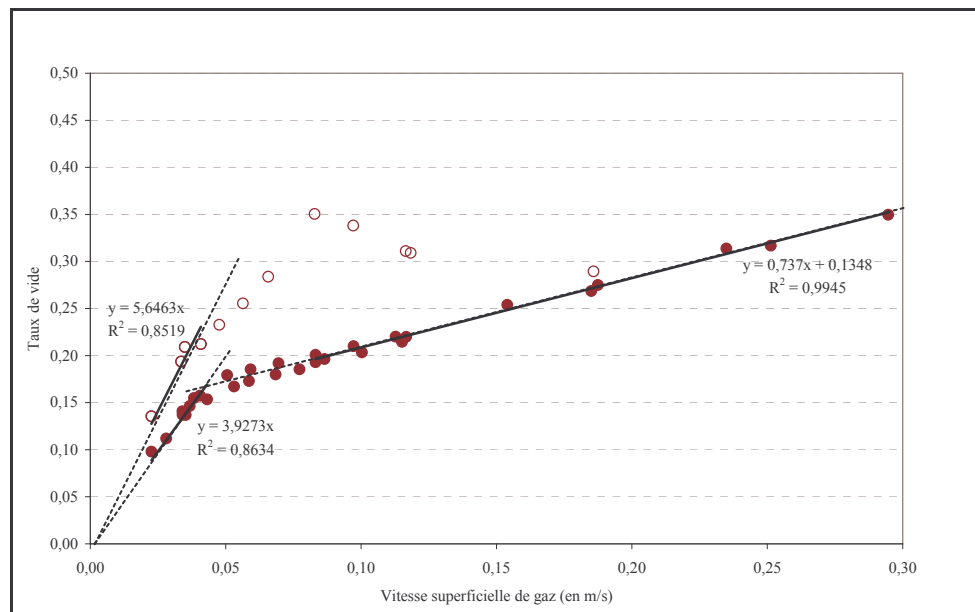


Figure 33 : Linéarisation de la relation entre le taux de vide et la vitesse superficielle de gaz pour les régimes homogène et hétérogène (eau,  $u_L=0\text{cm/s}$ )

- Deckwer et Schumpe (1993) et Heijnen et Van't Riet (1984), proposent, en régime homogène, d'adopter une relation linéaire entre le taux de vide et la vitesse superficielle de gaz de la forme :

$$\varepsilon_{G,\text{homogène}} = C u_G$$

avec :  $C = \frac{1}{v_{B,\text{petites}}}$ ,  $v_{B,\text{petites}}$  étant de l'ordre de 25cm/s

L'application de cette équation à notre cas conduit aux valeurs de vitesses de petites bulles suivantes :

- \_ Distributeur 1 :  $v_{B,\text{petites}}=25,5\text{cm/s}$
- \_ Distributeur 2 :  $v_{B,\text{petites}}=17,7\text{cm/s}$

Ces grandeurs, en bon accord avec la valeur suggérée par les auteurs de 25cm/s, sont de l'ordre de la vitesse terminale d'ascension des bulles ; la vitesse verticale porteuse du liquide est encore faible. En outre, les valeurs issues des deux distributeurs confirment que les bulles formées avec le second distributeur ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) sont plus petites, car plus lentes.

- Par ailleurs, en supposant que les valeurs calculées ci-dessus correspondent vraiment aux valeurs de vitesse terminale, les valeurs de vitesses superficielles à la transition sont déterminées à l'aide des relations énoncées en annexe I.A. Elles s'écrivent sous la forme :

$$u_{G,\text{trans}} = \alpha v_{B,\infty}$$

où :  $\alpha$  est une constante, propre à chaque auteur

Les valeurs de transitions ainsi estimées sont reportées dans le Tableau 8.

	$u_{G,trans}$ (en cm/s)	
	Distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )	Distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )
<b>Bach et Pilhofer (1978)</b>	6,37	4,42
<b>Mersmann (1977)</b>	5,10	3,54
<b>Kelkar (1985)</b>	4,79	3,33
<b>Sarrafi et al. (1999)</b>	5,20	3,61

Tableau 8 : Evaluation de la vitesse superficielle de transition à partir des vitesses terminales estimées graphiquement (eau,  $u_L=0\text{cm/s}$ )

Le lien direct que créent ces relations entre la vitesse superficielle de transition et la vitesse terminale d'ascension conduit à une transition plus précoce pour le cas où les bulles formées sont les plus petites (car la vitesse d'ascension est la plus faible), ce qui est en opposition avec les observations de cette étude. En outre, aucune de ces corrélations ne permet de retrouver les valeurs de transition de notre système : ces corrélations ne sont pas adaptées à nos conditions. Des approches prévoyant la transition à un taux de vide donné ne seraient pas plus satisfaisantes, la transition n'ayant pas lieu pour le même taux de vide pour les deux distributeurs. Tant que ces corrélations n'intégreront pas l'effet du distributeur, elles resteront inadaptées.

### 1.1.b.β Régime hétérogène

En régime hétérogène, l'approximation linéaire est moins légitime : du fait de la coalescence et de la rupture, rien ne laisse présager qu'une augmentation de débit engendre systématiquement la même augmentation de taux de vide. En effet, le taux de vide en régime hétérogène est classiquement relié à  $u_G^{0,4-0,7}$ . Le comportement dans ce régime peut néanmoins être représenté correctement par une droite comme en témoigne le fort coefficient de corrélation obtenu (0,99), supérieur à celui observé en régime homogène. Ceci peut probablement être rattaché au fait qu'aux fortes valeurs de  $x$ , les courbes du type  $y=ax^r$ , avec  $r<1$ , évoluent peu, mais cette droite n'a a priori pas de réel sens physique.

Avec cette représentation, le début du régime hétérogène est extrapolé à 16cm/s pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) (ce régime n'est jamais vraiment atteint dans nos essais), alors qu'il est établi dès 5-6cm/s pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ).

En utilisant l'approche bimodale des bulles énoncées par Wilkinson (1991), seule approche présumant une relation linéaire entre le taux de vide et la vitesse superficielle de gaz en régime hétérogène, la relation entre le taux de vide et la vitesse du gaz s'écrit :

$$\varepsilon_G = \frac{u_G}{v_{B,grosses}} + \left( \frac{u_{G,trans}}{v_{B,petites}} - \frac{u_{G,trans}}{v_{B,grosses}} \right)$$

A partir de cette équation et de l'équation de la droite obtenue en régime hétérogène, la vitesse des grosses bulles est estimée à 1,35m/s, valeur moyenne a priori aberrante (trop grande), malgré le fort écoulement porteur dans ce régime. La valeur de transition déduite en utilisant les valeurs de vitesses des petites bulles précédentes est également peu réaliste dans notre cas (22,6cm/s !). Ce modèle n'est donc pas satisfaisant : l'approximation linéaire du régime hétérogène ne semble pas totalement dépourvue de sens, mais l'hypothèse que le taux de vide en régime hétérogène est la somme arithmétique des bulles lentes du régime homogène (conservant la même vitesse !) et de bulles rapides est beaucoup plus discutable.

### I.1.b.γ Transition

La linéarisation des régimes homogènes et hétérogènes fournit une première approximation des bornes du régime de transition :

- \_  $u_G=4-16\text{cm/s}$  pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) (valeur finale extrapolée)
- \_  $u_G=4-6\text{cm/s}$  pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )

Le régime intermédiaire s'étale donc sur une gamme de valeurs beaucoup plus grande pour le distributeur 2 à petits trous, ce qui signifie que l'installation du régime hétérogène est plus progressive, probablement car les bulles formées au distributeur, plus stables, déstabilisent moins l'écoulement. En outre, ces courbes montrent que la transition peut, pour le distributeur 2 uniquement ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), être décomposée en deux parties : entre 4 et 8cm/s, le taux de vide continue d'augmenter mais avec une pente plus faible qu'en régime homogène, alors qu'entre 8 et 16cm/s (extrapolé), le taux de vide diminue avec une pente assez élevée. Ce point est approfondi à la lumière de l'approche suivante.

### I.1.c. Approche logarithmique

Cette seconde approche est plus classique. Elle repose sur la recherche de la puissance  $n$  à laquelle est élevée la vitesse superficielle du gaz afin de représenter l'évolution du taux de vide ( $\varepsilon_G = \alpha u_G^n$ ). Il est couramment admis que cette valeur vaut entre 0,7 à 1,2 en régime homogène et entre 0,4 à 0,7 en régime hétérogène. Pour l'obtention de cette valeur dans notre colonne, les courbes précédentes sont passées en coordonnées logarithmiques pour les deux distributeurs (cf. Figure 34).

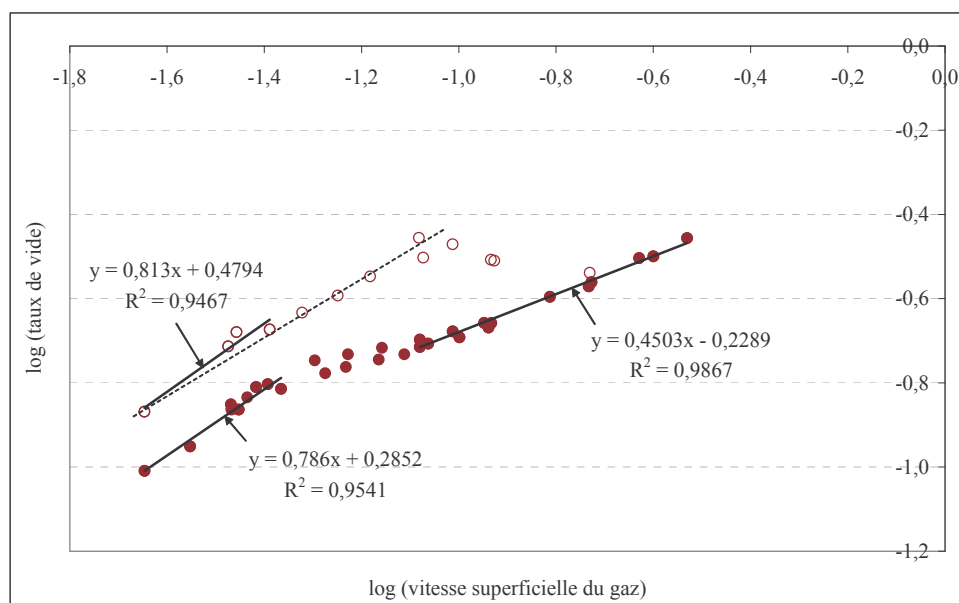


Figure 34 : Evolution de  $\log$  (taux de vide) en fonction de  $\log$  (vitesse superficielle) (eau,  $u_L=0\text{cm/s}$ )

### I.1.c.α Régime homogène

La fin du régime homogène est délicate à identifier pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) : un comportement linéaire peut être envisagé jusqu'au maximum (courbe en pointillés), mais les premiers points sont alors mal représentés, de même que le décrochement du début de la



courbe. En première approximation, le régime homogène n'est considéré que sur les premiers points (jusqu'à  $u_G$  de l'ordre de 4cm/s).

Les relations linéaires établies pour les deux distributeurs conduisent alors aux expressions de taux de vide suivantes en régime homogène :

$$\begin{aligned} \_ \text{ Distributeur 2 (d}_0\text{=0,5mm) : } & \quad \varepsilon_G = 3,01u_G^{0,81} \\ \_ \text{ Distributeur 1 (d}_0\text{=1mm) : } & \quad \varepsilon_G = 1,93u_G^{0,78} \end{aligned}$$

Les valeurs obtenues pour la puissance  $n$  sont comprises dans la gamme de valeurs couramment observées en régime homogène (entre 0,7 et 1,2). Cependant, compte tenu du faible nombre de points avec lequel elles ont été obtenues, des faibles coefficients de corrélation et de la difficulté à discerner le changement de pente du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), aucune comparaison entre les valeurs des puissances n'a de sens. Par contre, l'ordre des coefficient multiplicateurs, issus des ordonnées à l'origine, est plus clair ; le coefficient multiplicateur dépend du distributeur : il est supérieur avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), ce qui est en accord avec la supériorité de son taux de vide (pour un débit donné, les bulles formées sont plus petites et plus nombreuses avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) qu'avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )).

### ***1.1.c.β Régime hétérogène***

En régime hétérogène, régime identique pour les deux distributeurs, la relation entre le taux de vide et la vitesse superficielle du gaz prend la forme suivante :

$$\varepsilon_G = 0,59u_G^{0,45}$$

Le passage du régime homogène au régime hétérogène se caractérise à la fois par une diminution du coefficient multiplicateur, déjà vu lors de l'approche linéaire, et par une diminution de la puissance  $n$  ; celle-ci vaut alors 0,45, conformément aux valeurs couramment observées. Ces deux évolutions (diminution du coefficient multiplicateur et de la puissance) vont dans le sens d'une augmentation plus lente du taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz en régime hétérogène qu'en régime homogène.

Il est à noter que les valeurs des coefficients de cette équation, identifiées avec davantage de points, sont plus fiables que ceux obtenus en régime homogène, comme en témoignent les coefficients de corrélation associés : 0,9867 en régime hétérogène, contre 0,95 environ en régime homogène).

### ***1.1.c.γ Transition***

Les gammes de vitesses sur lesquelles s'étale le régime de transition déduites de l'approche logarithmique sont :

$$\begin{aligned} \_ u_G &= 4 \text{ ou } 7 \text{ à } 15\text{-}18\text{cm/s pour le distributeur 2 (d}_0\text{=0,5mm)} \\ \_ u_G &= 4 \text{ à } 7\text{-}8\text{cm/s pour le distributeur 1 (d}_0\text{=1mm)} \end{aligned}$$

Revenons à présent sur le comportement atypique du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ). Pour ce distributeur percé de petits orifices ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), trois allures différentes peuvent être

distinguées pour les valeurs de vitesses de gaz précédant l'installation du régime hétérogène, contrairement aux deux classiquement différenciés (régime homogène et transition). La première partie de la courbe, entre 0 et 4cm/s, appartient sans ambiguïté au régime homogène : relation linéaire entre le taux de vide et la vitesse superficielle de gaz (pente de 5,6) et entre  $\log(\varepsilon_G)$  et  $\log(u_G)$  (pente de 0,81). La partie de la courbe pour  $u_G > 8\text{cm/s}$  peut quant à elle être rattachée sans équivoque au régime de transition : diminution du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz sous l'effet de la coalescence. Enfin, la partie entre 4 et 8cm/s est plus ambiguë : son taux de vide diffère du comportement du régime homogène, mais le taux de vide continue d'augmenter rapidement, ce qui laisse penser que les bulles ne coalescent pas encore, mais plutôt que la vitesses des bulles accélère du fait de la formation de bulles plus grosses au distributeur à fortes  $u_G$  ou à la formation d'essaims dans la zone centrale de la colonne à forts taux de vide ( $\varepsilon_G > 20\%$ ). La répartition radiale des bulles n'est probablement plus uniforme (à vérifier à l'aide des données locales), mais la coalescence reste négligeable. Compte tenu de cette description, il est délicat d'insérer cette partie dans le régime homogène, comme dans le régime de transition : elle pourrait d'une part être associée au régime homogène, car il n'y a pas de coalescence et d'autre part au régime de transition, car le gaz n'est plus réparti uniformément, ce qui crée une recirculation liquide même faible. Pour notre part, cette zone est plutôt associée au régime homogène, car le taux de vide continue d'augmenter assez fortement dans cette zone et la portion de droite associée à cette zone est assez proche de celle du régime homogène « pur » (0-4cm/s) (Olmos et al. (2003) ont fait le choix inverse). Le régime homogène est alors découpé en deux parties : le régime homogène « pur » entre 0 et 4cm/s et le régime homogène « bis » entre 4 et 8cm/s.

Si les valeurs de vitesses de gaz à la fin du régime homogène sont comparées aux nombre de Reynolds à l'orifice,  $Re_0$ , il apparaît que ces valeurs correspondent la fin du régime à bulles ( $Re_0 > 1000$ , cf. tableau 4 du chapitre II) ; cette transition est peut-être liée à la déstabilisation de la population injectée qui favorise la coalescence. Le régime homogène pourrait ainsi peut-être encore être étendu en utilisant un distributeur de  $Re_0$  plus faible, même si cette extension est évidemment limitée : lorsque le taux devient trop important, la coalescence ne peut plus être évitée.

Le distributeur influe donc sur le comportement et l'extension du régime homogène, mais également sur la largeur de la gamme de vitesses de gaz du régime de transition. En effet, pour les deux distributeurs, ces valeurs sont très différentes : le régime hétérogène s'installe après un régime de transition beaucoup plus large avec le distributeur 2, car il s'oppose en quelque sorte à la déstabilisation de l'écoulement nécessaire à l'établissement du régime hétérogène.

Cette approche logarithmique est intéressante dans la mesure où les écarts de pente difficiles à dissocier précédemment (en particulier pour le passage de la transition à l'hétérogène pour le distributeur 1) sont plus lisibles. Cependant, l'évaluation des caractéristiques du régime homogène et de son étendue demeure limitée compte tenu du faible nombre de points considérés. Ce problème devrait être résolu en modélisant la transition ; c'est l'objet du paragraphe ci-dessous.

### I.1.d. Approche de Züber et Findlay

Le dernier mode de détermination des transitions entre les régimes hydrodynamiques repose sur l'évolution du rapport  $u_G/\varepsilon_G$  en fonction de la vitesse superficielle de gaz, car elle permet d'associer une portion de droite à chacun des régimes, y compris la transition :

$$\frac{u_G}{\varepsilon_G} = C_0 u_G + C_1$$

où :  $C_0$  est la pente  
 $C_1$  est l'ordonnée à l'origine

Cette technique est mise en œuvre sur la Figure 35.

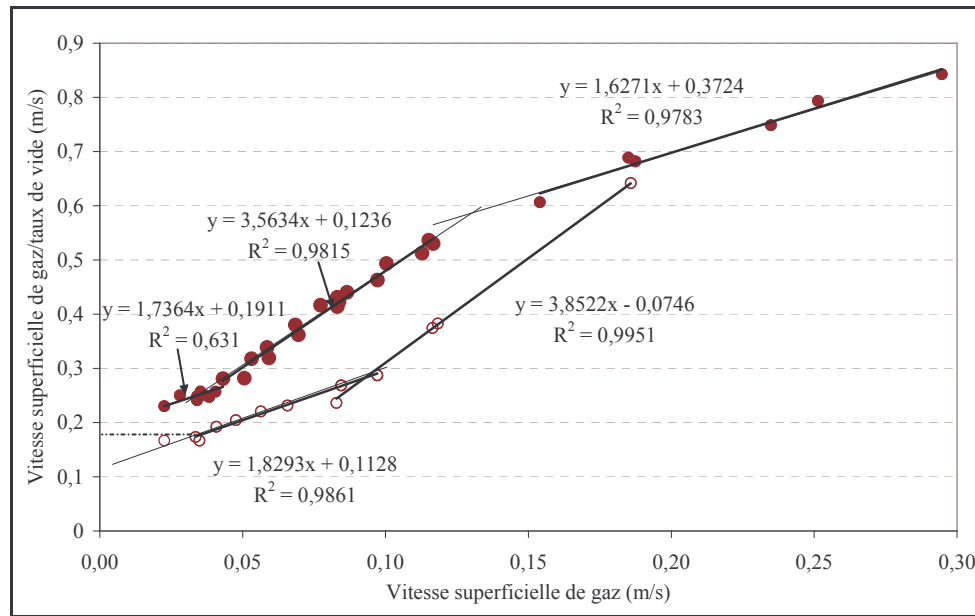


Figure 35 : Evolution du rapport  $u_G/\varepsilon_G$  avec la vitesse superficielle de gaz pour les deux distributeurs (eau,  $u_L=0\text{cm/s}$ )

Quatre droites sont attendues pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ), correspondant respectivement au régime homogène « pur », au régime homogène « bis » (sans coalescence), à la transition (coalescence), et au régime hétérogène (extrapolé).

Quel que soit le régime, les pentes ( $C_0$ ) semblent du même ordre pour les deux distributeurs. Cette observation est cohérente puisque, pour cette représentation, il est couramment admis que la pente  $C_0$  caractérise l'écart de la forme du profil de vitesses au profil plat, or l'allure des profils est a priori similaire dans un régime donné pour un milieu donné (cf. chapitre I., §I). La valeur de  $C_0$  vaut classiquement entre 1,2 et 2,4 en régime homogène, en accord avec nos résultats (cf. Tableau 9).

	Homogène		Transition		Hétérogène	
	Dist. 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )	Dist. 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )	Dist. 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )	Dist. 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )	Dist. 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )	Dist. 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )
$C_0$	1,74	1,83	3,56	3,85	1,63	
$C_1$	0,19	0,11	0,12	-0,07	0,37	

Tableau 9 : Récapitulatif des constantes  $C_0$  et  $C_1$  obtenues expérimentalement

Il découle également de cette observation une certaine validation de l'assimilation de la zone trouble entre 4 et 7cm/s du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) au régime homogène, dans la mesure où sa pente est similaire à celle observée en régime homogène pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ). Les résultats obtenus pour ce régime avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) doivent néanmoins être

considérés avec prudence compte tenu du faible nombre de points expérimentaux et du très mauvais coefficient de corrélation obtenu (0,63 !).

En ce qui concerne la valeur de  $C_1$ , en régime homogène, elle représente a priori la vitesse terminale d'ascension puisque le rapport  $u_G/\varepsilon_G$  n'est autre que la vitesse moyenne de phase ; cette vitesse vaut donc 19,11cm/s pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et 11,28cm/s pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ). Ces valeurs sont étonnamment faibles et diffèrent largement (surtout pour le distributeur 2) des vitesses obtenues au §I.1 où les vitesses obtenues étaient respectivement de 17,7 et de 25,5cm/s. Toutefois, si un segment horizontal, correspondant au régime homogène « pur », est considéré en amont du segment associé au régime homogène, c'est-à-dire s'il existe une gamme de vitesses où les bulles montent verticalement sans interactions pour les deux distributeurs, des valeurs plus cohérentes, mais encore un peu basses sont obtenues : 16,7cm/s pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) et 22,5cm/s pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ).

Pour les autres régimes, le paramètre  $C_1$  n'a aucun sens physique particulier, par contre la pente  $C_0$  garde a priori tout son sens : plus la pente est élevée, plus la vitesse de bulles augmente rapidement avec le débit, ce qui peut être causé soit par l'existence d'une recirculation, soit par la présence de grosses bulles. En régime de transition, les pentes sont beaucoup plus grandes qu'en régime homogène, ce qui s'explique à la fois par l'existence simultanée de recirculation et de grosses bulles. En régime hétérogène, la pente décroît, la vitesse des bulles augmente moins vite, car l'équilibre coalescence-rupture est atteint.

Les pentes en régime homogène et en régime hétérogène sont faibles et assez proches. En régime homogène, la taille des bulles est gouvernée par le distributeur. Comme en régime homogène, le régime d'injection des bulles est a priori à bulles, c'est-à-dire que la taille des bulles ou la fréquence de bullage (respectivement pour le régime à bulles séparées et le régime à bulles continues) est supposée constante (cf. annexe I.C) ; la pente  $C_0$  observée correspond respectivement à une augmentation de la fréquence ou de la taille des bulles. En régime hétérogène, la taille des bulles est supposée constante et gouvernée par l'équilibre coalescence-rupture, la pente  $C_0$  correspond alors à l'augmentation du nombre de bulles. La pente importante observée dans le régime de transition est probablement liée à une modification simultanée des deux paramètres (fréquence de bullage et taille de bulles).

Avec cette approche, les transitions sont déterminées via le point d'intersection entre les droites associées aux différents régimes. Pour le cas envisagé ici, les transitions distinguées sont :

- \_ Distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) : fin homogène à 3,8cm/s, début hétérogène à 13cm/s
- \_ Distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) : fin homogène « pur » à 3,5cm/s, fin homogène « bis » à 7,5cm/s, début hétérogène à 20cm/s (extrapolation)

Les valeurs de transition diffèrent quelque peu de celles prédites précédemment, mais demeurent cohérentes. Ce mode de détermination de la transition est a priori le plus fiable de tous, car les changements de pentes observés sont plus nets. Pour améliorer encore notre estimation, il faudrait davantage de points expérimentaux, mais la transition n'étant pas abrupte, les ordres de grandeurs obtenus ici suffisent.

### I.1.e. Conclusions

*Pour conclure, les régimes d'écoulement sont très dépendants du distributeur. Avec un distributeur formant des grosses bulles, la transition est abrupte et le régime hétérogène obtenu à basses vitesses de gaz. Au contraire, lorsque le distributeur est assez « efficace » (distributeur 2,  $d_0=0,5\text{mm}$ ), le régime homogène peut être découpé en deux parties : la première correspond à l'homogène « pur » tel que décrit dans la littérature, la seconde peut correspondre soit à la formation de bulles plus grosses (hypothèse retenue par Olmos et al. (2003), qui associent cette portion de courbe au régime de transition, cf. chapitre I), soit au début des interactions entre bulles du fait d'un fort taux de vide (>20%) (formation d'essaims) ; cette partie est appelée ici régime homogène « bis ». Le régime de transition apparaît, avec le distributeur à petits trous (distributeur 2,  $d_0=0,5\text{mm}$ ), à une vitesse superficielle de gaz plus élevée et est nettement plus large qu'avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ).*

## I.2. Cyclohexane

La même démarche est appliquée plus succinctement au cyclohexane. Une première comparaison aux résultats en eau (cf. Figure 36) montre que le régime homogène est a priori moins stable qu'en eau, ce qui peut surprendre, car le cyclohexane est connu pour être moins coalescent que l'eau et que les bulles formées par les deux distributeurs sont plus petites en cyclohexane (cf. chapitre IV, §B.I.3).

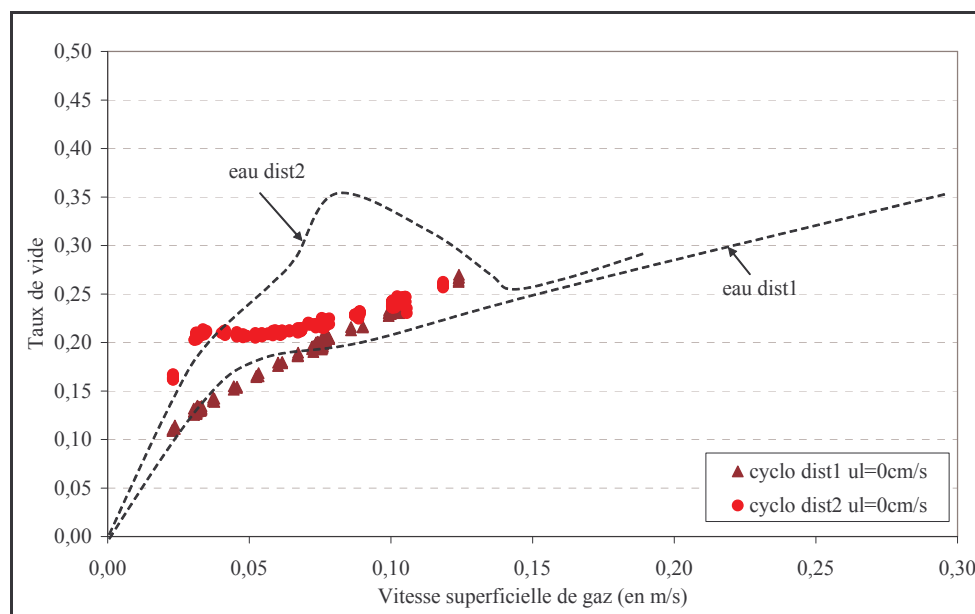


Figure 36 : Effet du milieu sur les évolutions du taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz obtenues pour les deux distributeurs

### I.2.a. Approche linéaire

En cyclohexane, comme peu de points sont réalisés en régime homogène, la linéarisation de cette partie n'est possible qu'avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) (cf. Figure 37), mais le nombre de points est encore insuffisant pour calculer une pente. Le régime hétérogène est plus facile à linéariser (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ ). La pente de la droite associée (1,48) est le

double de celle obtenus en eau (0,74) : le taux de vide augmente deux fois plus vite dans ce régime en cyclohexane ; les bulles à l'équilibre sont plus petites pour ce milieu.

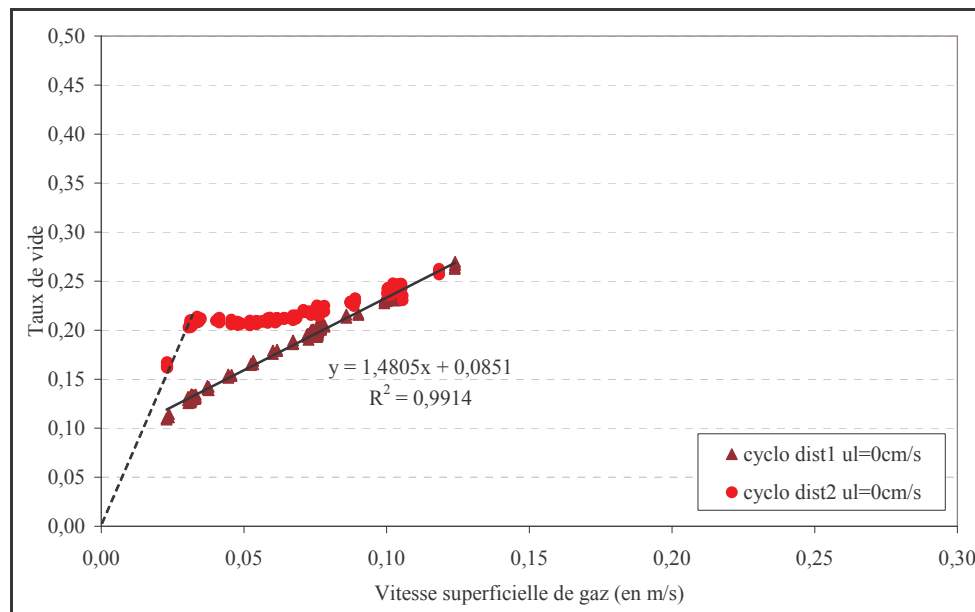


Figure 37 : Analyse linéaire des régimes de bullage en cyclohexane

L'identification des valeurs de transition à partir de la Figure 37 ne permet pas de situer la fin du régime homogène (non identifié pour le distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ ), mais fournit une première estimation pour les autres transitions :

- \_  $u_G=3\text{cm/s}$  : début du régime hétérogène pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) et fin du régime homogène pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ),
- \_  $u_G=10\text{cm/s}$  : début du régime hétérogène pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ),

Selon l'approche en double population de bulles proposée par Wilkinson (1991), le taux de vide en régime hétérogène s'écrit sous la forme :

$$\varepsilon_G = \frac{u_G}{v_{B,grosses}} + \left( \frac{u_{G,trans}}{v_{B,petites}} - \frac{u_{G,trans}}{v_{B,grosses}} \right)$$

La vitesse absolue des grosses bulles, déduite de cette expression et de la pente de la droite du distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) en hétérogène, est de  $67,54\text{cm/s}$ , soit la moitié de celle obtenue en eau. Cette valeur est plus réaliste et en accord avec celles mesurées en aquarium. En utilisant en outre, la vitesse superficielle de gaz à la transition pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) ( $u_{G,trans}=3\text{cm/s}$ ), la vitesse des petites bulles est estimée à  $23,16\text{cm/s}$ , vitesse réaliste. L'approche de Wilkinson (1991) semble donc plus adaptée au cyclohexane qu'à l'eau, même si elle ne permet ni de prévoir les transitions, ni de prendre en compte l'effet du distributeur.

### I.2.b. Approche logarithmique

La fin précoce du régime homogène en cyclohexane limite les calculs. Pour l'approche logarithmique, le calcul n'est possible que pour le régime hétérogène du distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) (cf. Figure 38). Dans ce cas, le taux de vide s'écrit sous la forme :

$$\varepsilon_G = 0,73u_G^{0,50}$$

La valeur de la puissance (0,5) est en accord avec les valeurs propres au régime hétérogène et est proche de celle observée en eau (0,45). Par contre, les valeurs du coefficient multiplicateur diffèrent plus largement (0,59 en eau, 0,73 en cyclohexane) : il est plus sensible au milieu.

Le début du régime hétérogène identifié sur la Figure 38 est identique à celui issu de l'approche linéaire (de l'ordre de 10cm/s). Par contre, il semble que le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ) opère en régime hétérogène pur, seul régime identifié sur ce graphique.

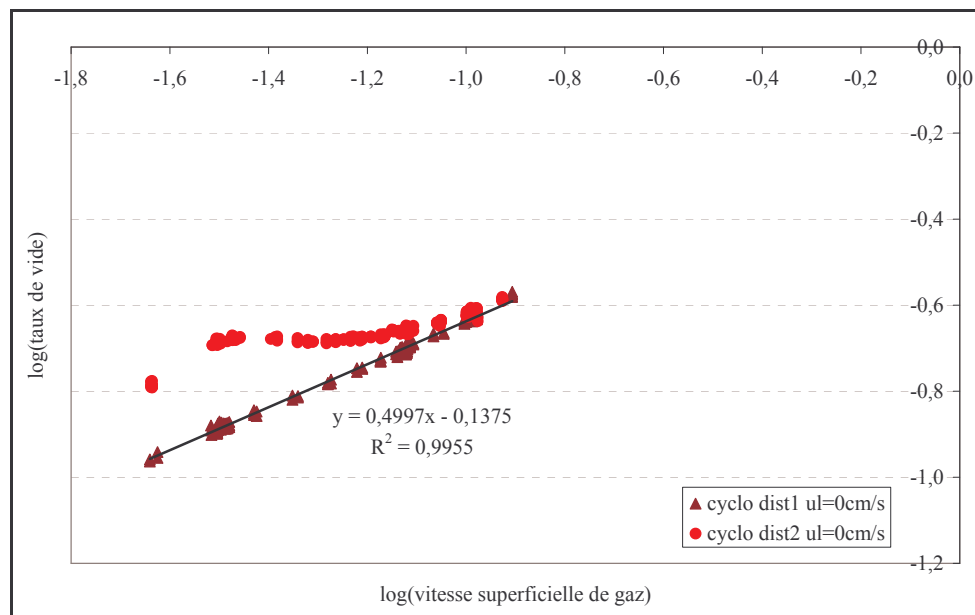


Figure 38 : Analyse logarithmique des régimes de bullage en cyclohexane

### I.2.c. Approche de Züber et Findlay

Les pentes des graphiques  $u_G/\varepsilon_G=f(u_G)$  ont des comportements similaires à celles obtenues en eau (cf. Figure 39) :

- \_ Dans un régime donné, les pentes sont assez proches pour les deux distributeurs.
- \_ Les pentes des régimes homogène et hétérogène sont visuellement assez proches alors que celles du régime de transition sont beaucoup plus fortes.
- \_ Les courbes sont confondues en régime hétérogène.

Toutefois, pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), les distinctions entre les pentes sont plus délicates qu'en eau ; plusieurs découpages sont possibles, car la courbe n'est plus vraiment linéarisable. Les valeurs de transition déduites de ces courbes sont, pour le cyclohexane :

- \_  $u_G=3\text{cm/s}$  : fin du régime homogène du distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )
- \_  $u_G=5\text{cm/s}$  : début du régime hétérogène pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )
- \_  $u_G=9\text{cm/s}$  : début du régime hétérogène pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )

Ces valeurs sont similaires à celles issues des autres approches ; elles font en outre apparaître une portion de régime de transition avec le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), non visible précédemment.

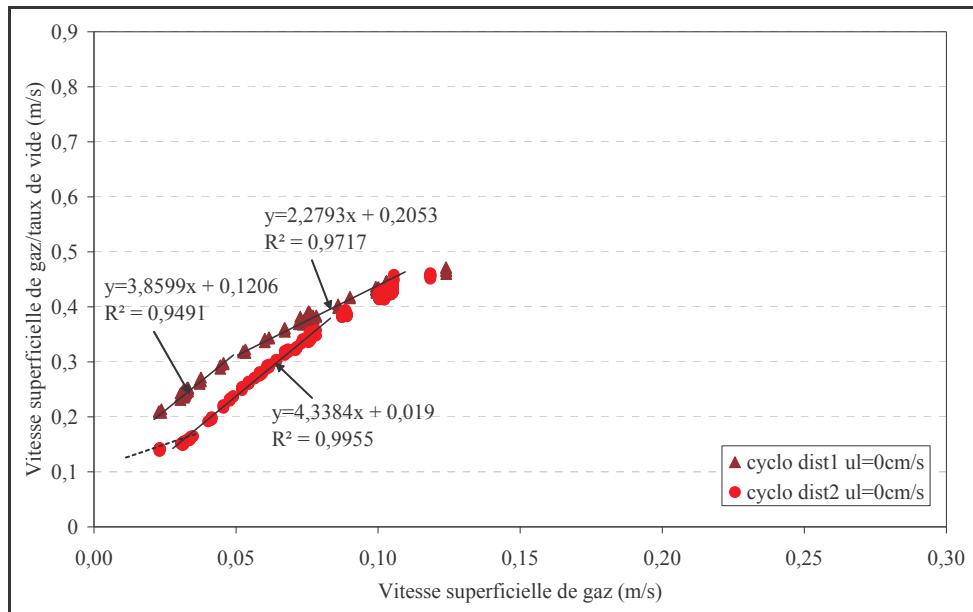


Figure 39 : Evolution du rapport  $u_G/\varepsilon_G$  avec la vitesse superficielle de gaz pour les deux distributeurs en cyclohexane

Pour comparer les tendances observées en cyclohexane à celle de l'eau, les courbes des deux milieux sont superposées (cf. Figure 40).

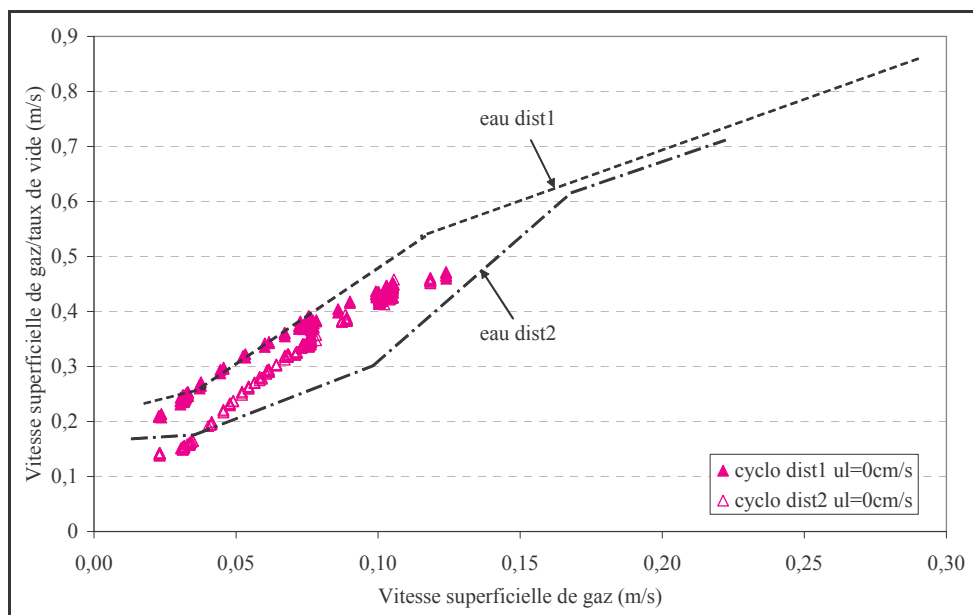


Figure 40 : Effet du milieu sur les courbes  $u_G/\varepsilon_G=f(u_G)$  pour les deux distributeurs

En régime homogène, les vitesses de bulles diffèrent peu entre les deux milieux (tailles de bulles similaires), alors qu'en régime hétérogène la vitesse des bulles en cyclohexane est toujours inférieure à celle en eau (diamètre de bulles et force de pesanteur inférieurs en cyclohexane). La comparaison des valeurs de pentes montre que les pentes sont, dans les régimes étudiés (transition et hétérogène), du même ordre pour les deux milieux : 2,3 en cyclohexane (probablement un peu moins à plus fortes vitesses) par rapport à 1,6 en eau en régime hétérogène et 4,3 en cyclohexane par rapport à 3,6-3,8 en eau en régime de transition. En régime homogène, la valeur de pente est inconnue en cyclohexane (distributeur 1,  $d_0=1\text{mm}$ ), il semble toutefois visuellement qu'elle devrait être du même ordre qu'en eau (pour



le distributeur 2,  $d_0=0,5\text{mm}$ ) : les profils de ces deux régimes devraient également être similaires.

### I.3. Olone

Pour finir, cette étude des régimes est appliquée à l'olone, milieu cible le plus proche du milieu industriel. L'évolution de son taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz, confrontée à celle du cyclohexane sur la Figure 41, montre un comportement a priori comparable à celui du cyclohexane.

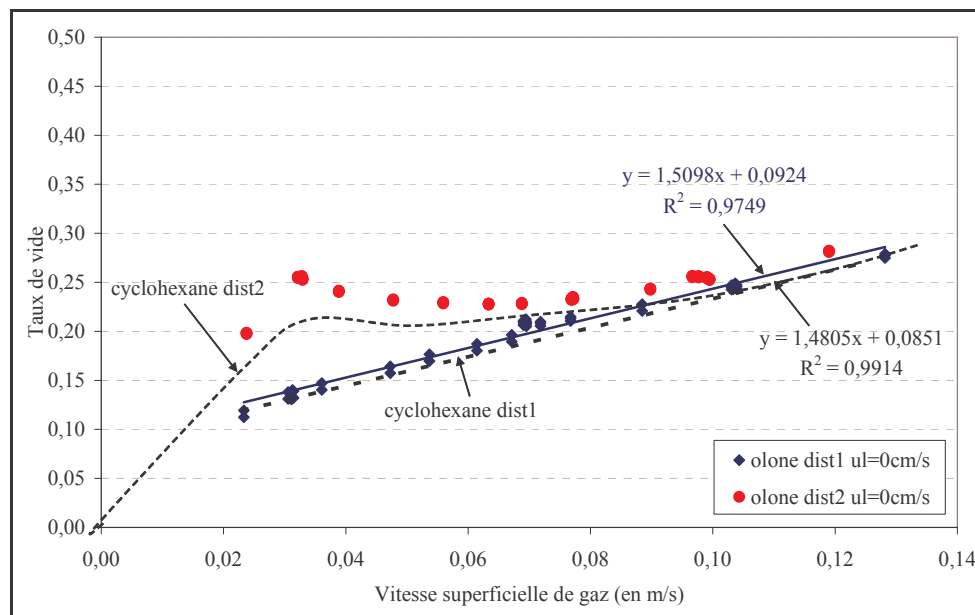


Figure 41 : Evolution du taux de vide avec la vitesse superficielle de gaz en cyclohexane et en olone pour les deux distributeurs

#### I.3.a. Approche linéaire

L'application de l'approche linéaire de caractérisation des régimes à l'olone conduit aux mêmes valeurs de transitions qu'en cyclohexane (cf. Figure 41) :

- \_ Régime hétérogène installée pour  $u_G=3\text{cm/s}$  pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ),
- \_ Régime de transition entre 3 et 9cm/s pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ).

En régime hétérogène, la pente observée est semblable à celle du cyclohexane ; seule l'ordonnée à l'origine de la droite différencie ces deux milieux.

#### I.3.b. Approche logarithmique

Lorsque l'approche logarithmique est mise en oeuvre (cf. Figure 42), la similarité des résultats en eau et en olone est vérifiée : les valeurs de transition sont identiques.

La relation caractéristique de régime hétérogène pour le distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ ) est :

$$\varepsilon_G = 0,78u_G^{0,51}$$

La comparaison à son homologue en cyclohexane montre que la puissance n'est pas modifiée, ce qui semble assez cohérent avec le fait qu'elle ait déjà peu variée entre l'eau et le cyclohexane : la puissance est a priori indépendante du milieu. Par contre, le facteur multiplicatif augmente de 6,6% (21% entre l'eau et le cyclohexane) : ce paramètre est indubitablement fonction du milieu liquide.

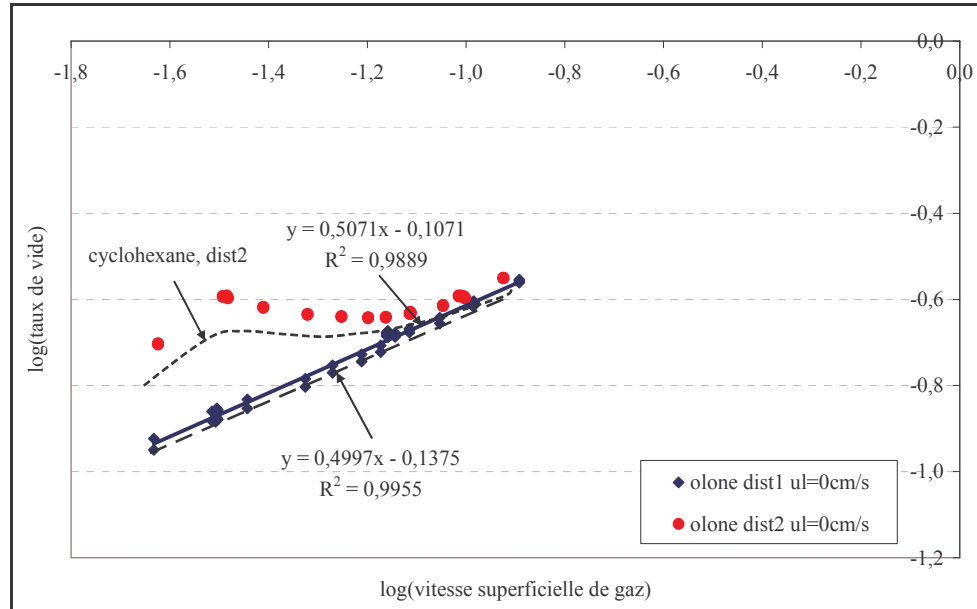


Figure 42 : Analyse logarithmique des régimes de bullage en olone

### I.3.c. Approche de Züber et Findlay

Pour finir, le tracé du rapport  $u_G/\varepsilon_G$  en olone conduit à des allures de courbes similaires à celles du cyclohexane, avec des pentes de mêmes ordres de grandeurs et des ruptures de pentes aux mêmes vitesses superficielles de gaz (cf. Figure 43).

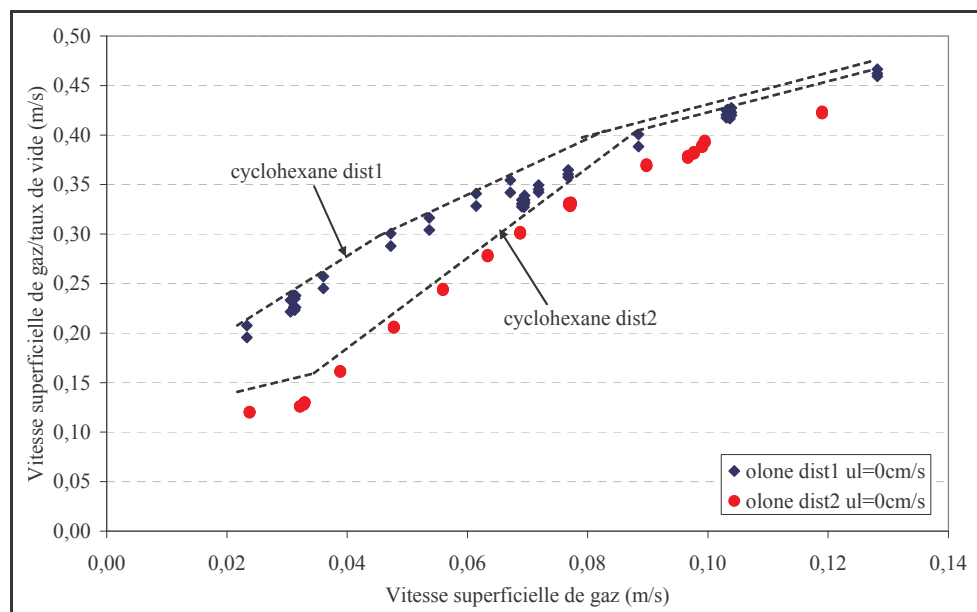


Figure 43 : Analyse des régimes de bullage en olone avec l'approche de Züber et Findlay

Par contre la vitesse est systématique plus faible en olone, ce qui est en accord avec une population de bulles un peu plus petite.

### I.4. Conclusion

La Figure 44 représente les transitions obtenues en eau et en cyclohexane pour les deux distributeurs.

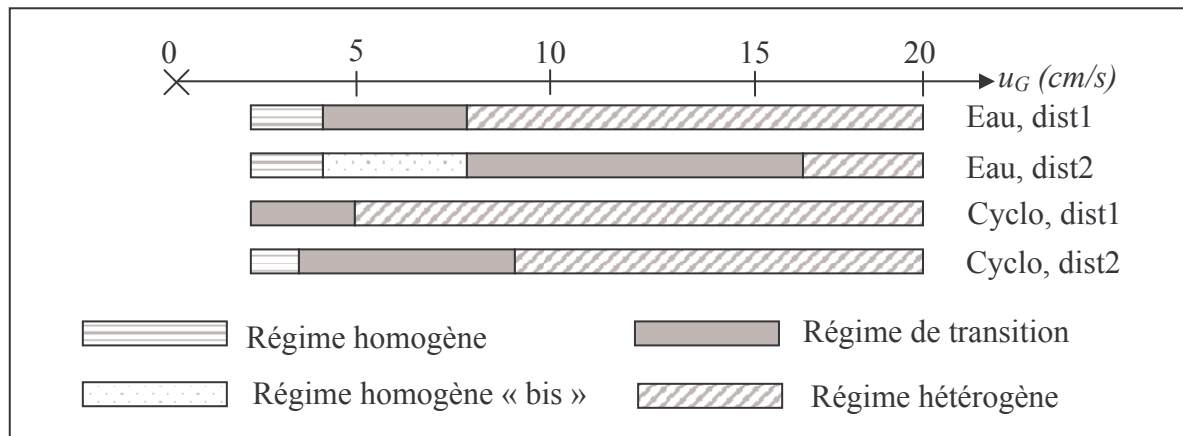


Figure 44 : Régimes de bullage pour les différentes configurations étudiées

*Elles mettent en évidence un régime homogène plus long en eau et avec le distributeur 2 ( $d_0=0,5mm$ ).*

*En terme de régimes hydrodynamiques, le choix du cyclohexane comme milieu modèle de l'olone est correct.*

## II. FONCTIONNEMENT CONTINU SUR LE LIQUIDE

Dans ce paragraphe, l'effet du débit de liquide sur les régimes hydrodynamiques est observé pour les deux milieux de base (l'eau et le cyclohexane).

### II.1. Approche linéaire

La première analyse consiste à linéariser les parties initiales et finales des courbes de taux de vide en fonction de la vitesse superficielle de gaz. La représentation graphique associée est représentée sur la Figure 45 pour les deux distributeurs et les deux milieux de base (eau et cyclohexane). Dans tous les cas, l'augmentation du débit liquide conduit à une diminution de la pente initiale, diminution associée à une augmentation de la vitesse des bulles. Cette diminution semble toutefois limitée à une gamme de vitesse de liquide : la pente initiale en eau n'évolue plus entre  $u_L=7cm/s$  et  $10,5cm/s$ .

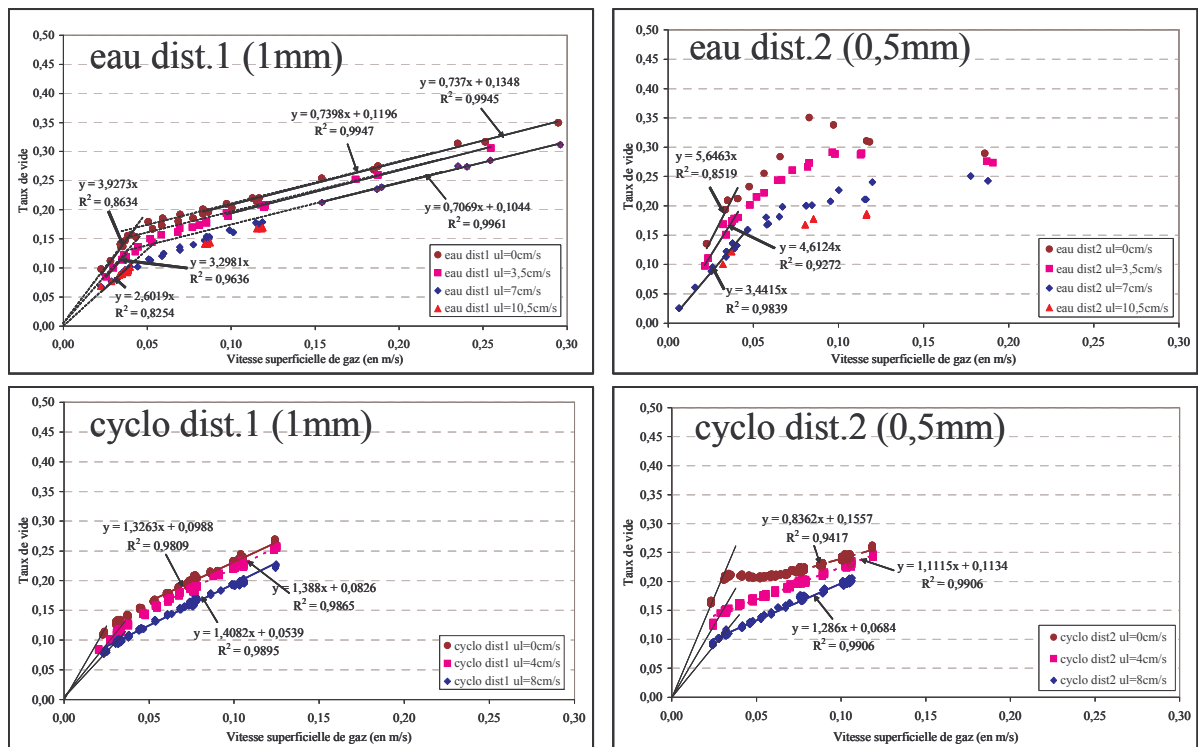


Figure 45 : Effet de la vitesse superficielle de liquide sur la linéarisation de la relation entre le taux de vide et la vitesse superficielle de gaz

Les tendances sont nettes mais les valeurs de pentes doivent être considérées avec précaution compte tenu du faible nombre de points disponibles. Elles conduisent toutefois à des valeurs de vitesses de bulles crédibles (comprises entre 17 et 38 cm/s).

A plus fortes vitesses de gaz, les droites obtenues pour les différentes vitesses de liquide sont globalement parallèles et ne diffèrent, pour une configuration donnée, que par leur ordonnée à l'origine. En eau, pour le distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ ), où ces droites sont établies avec le plus de précision (changement de pente net, nombre de points suffisant), cette ordonnée à l'origine évolue linéairement avec la vitesse de liquide (ordonnée =  $-0,0043 u_L + 0,1348$ ). Rien ne laisse toutefois présager si cette expression serait encore valable pour des vitesses de liquide supérieures. Pour éclaircir ce point, l'étude à fortes vitesses de liquide ( $u_L=10,5\text{cm/s}$  et plus) devrait être approfondie.

## II.2. Approche logarithmique

Lorsque les courbes précédentes sont passées en logarithme, comme représentées sur la Figure 46, il apparaît qu'au fil de l'augmentation de  $u_L$ , les changements de pentes observés à  $u_L=0\text{cm/s}$  disparaissent : l'ensemble de la courbe peut être représentée par une seule expression. L'exposant associé, entre 0,5 et 0,6, et l'allure de la droite résultante, parallèle à celles obtenues en régime hétérogène, laissent penser que la colonne opère alors en régime hétérogène pur. Cela conforte nos hypothèses précédentes : à partir d'une certaine vitesse de liquide, les régimes homogène et de transition disparaissent au profit du régime hétérogène. Par contre, une fois le régime hétérogène installé, l'effet du débit liquide devient faible.

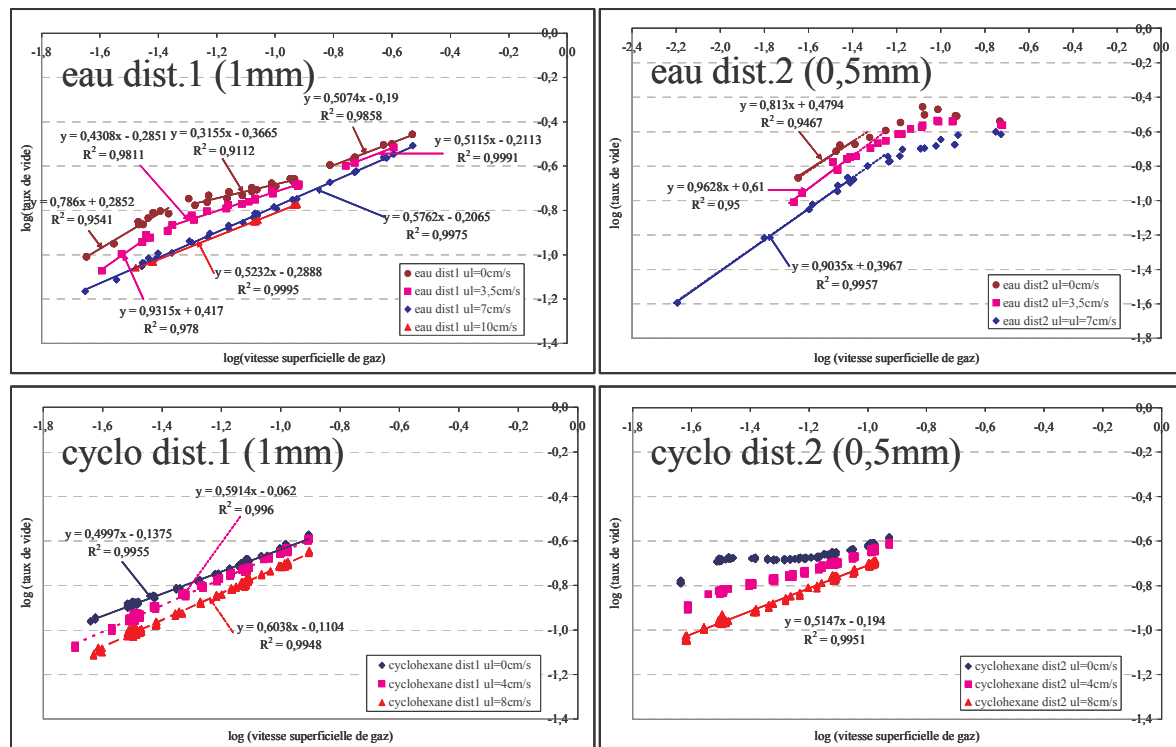


Figure 46 : Effet de la vitesse superficielle de liquide sur les courbes de  $\log(\epsilon_G)=f(u_G)$

Le Tableau 10 récapitule les expressions obtenues pour les régimes homogène et hétérogène. Il permet de vérifier que, pour chaque régime, les exposants sont conformes aux valeurs classiques et que le coefficient multiplicateur est plus fort en cyclohexane qu'en eau. En outre, ces deux valeurs évoluent en outre peu en fonction de  $u_L$ .

Ces expressions ne sont cependant pas exploitées davantage compte tenu des fortes imprécisions dont elles sont entachées (cf. faibles coefficients de corrélation, évaluation approximative des valeurs de transition, petit nombre de points utilisés).

	Distributeur 1 ( $d_0=1\text{mm}$ )		Distributeur 2 ( $d_0=0,5\text{mm}$ )	
EAU				
	Homogène	Hétérogène	Homogène	Hétérogène
$u_L=0\text{cm/s}$	$\epsilon_G = 1,93u_G^{0,79}$	$\epsilon_G = 0,64u_G^{0,51}$	$\epsilon_G = 3,02u_G^{0,81}$	
$u_L=3,5\text{cm/s}$	$\epsilon_G = 2,612u_G^{0,98}$	$\epsilon_G = 0,61u_G^{0,51}$	$\epsilon_G = 4,07u_G^{0,96}$	
$u_L=7\text{cm/s}$		$\epsilon_G = 0,62u_G^{0,58}$	$\epsilon_G = 2,49u_G^{0,90}$	
$u_L=10,5\text{cm/s}$		$\epsilon_G = 0,51u_G^{0,52}$		
CYCLOHEXANE				
$u_L=0\text{cm/s}$		$\epsilon_G = 0,73u_G^{0,50}$		
$u_L=4\text{cm/s}$		$\epsilon_G = 0,87u_G^{0,59}$		
$u_L=8\text{cm/s}$		$\epsilon_G = 0,77u_G^{0,60}$		$\epsilon_G = 0,64u_G^{0,51}$

Tableau 10 : Relations issues des courbes de  $\log(\epsilon_G)=f(u_G)$

Ces différentes tendances nous permettent toutefois de penser que l'approche en régimes hydrodynamiques demeure applicable en présence de circulation liquide modérée, du moins dans notre gamme d'étude.

### II.3. Approche de Züber et Findlay

Les courbes d'évolution de  $u_G/\varepsilon_G$  en fonction de  $u_G$  valident la prédominance du régime hétérogène à forts débits liquide. Elles montrent également une augmentation de la vitesse des bulles en présence d'une circulation de liquide, de l'ordre de  $u_L/(1-\varepsilon_G)$ .

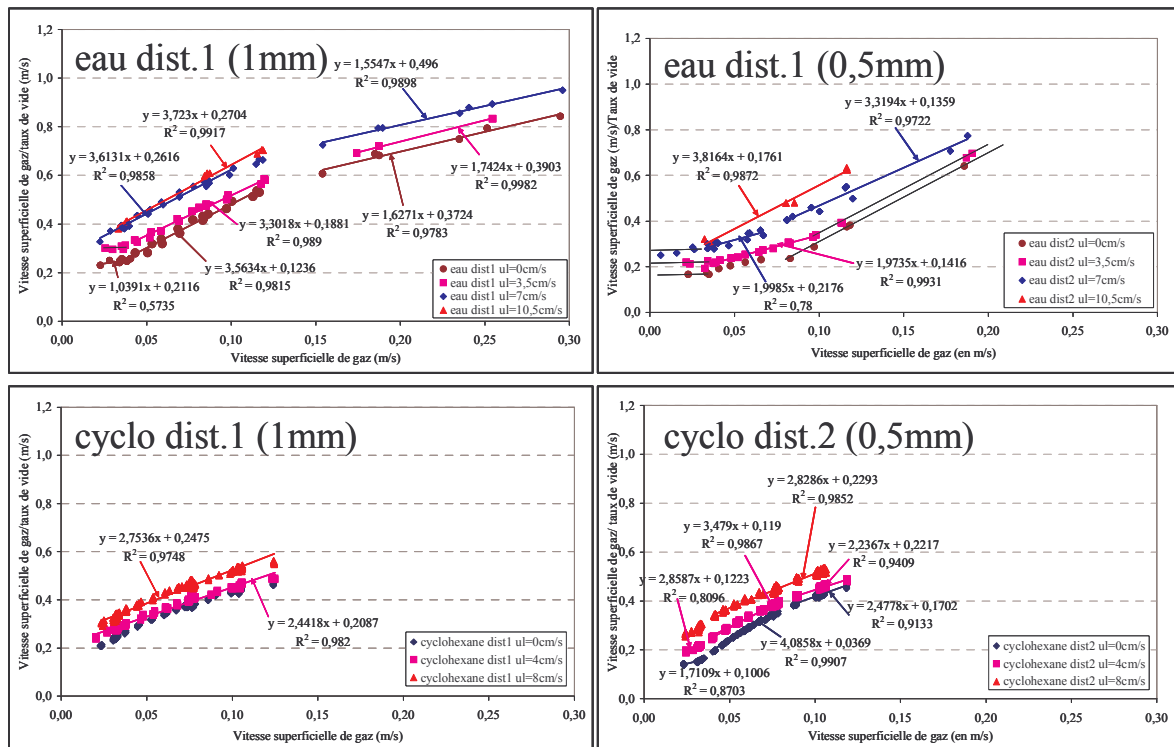


Figure 47 : Effet de la vitesse superficielle de liquide sur les courbes  $u_G/\varepsilon_G=f(u_G)$

## III. CONCLUSIONS

L'application des approches académiques à nos résultats a permis de distinguer les différents régimes hydrodynamiques classiques et d'évaluer les effets du distributeur, du milieu, et du débit liquide :

- \_ Avec un distributeur à petits orifices, la transition est plus large et a lieu pour des vitesses de gaz plus fortes,
- \_ En cyclohexane, la transition a lieu pour une vitesse de gaz plus faible,
- \_ En présence d'une forte circulation liquide, le régime hétérogène prédomine dans toute la gamme de vitesses de gaz.

Ces approches sont complétées dans le chapitre IV par des données locales permettant d'évaluer les évolutions axiales et radiales dans chacun de ces régimes. En effet, l'approche

envisagée ici fournit une information importante quant au type d'écoulement présent dans la colonne, mais ne permet pas de la caractériser précisément.

Notons en particulier que la comparaison du taux de vide global et du taux de vide local sur l'axe de la colonne permet d'identifier les régimes, mais aussi d'évaluer la forme des profils : plus les courbes locales et globales sont éloignées plus le profil est bombé. Ainsi, en complétant les données locales à l'aide d'un seul point local sur l'axe (à une hauteur significative) des données beaucoup plus complètes peuvent être obtenues que la simple donnée du régime de bullage.









## RESUME

---

Afin d'élargir le champ des connaissances actuelles sur les contacteurs gaz-liquide aux applications industrielles, cette étude est consacrée à la caractérisation globale et locale des écoulements complexes observés dans une colonne à bulles pouvant opérer en solvants, à forts débits et en présence de plateaux perforés.

L'étude hydrodynamique à fine échelle a nécessité, en premier lieu, l'élaboration et la validation d'une méthodologie pour utiliser la sonde optique double en écoulement complexe. L'étude expérimentale associée permet d'une part d'accéder aux données, encore rares, de l'évolution axiale et radiale des caractéristiques locales des bulles en solvant (taux de vide, vitesse et diamètre), et d'autre part d'évaluer les effets du milieu, du débit liquide et des plateaux perforés.

Pour prévoir l'efficacité d'un réacteur industriel, la connaissance de la dispersion gaz-liquide n'est pas suffisante. Elle est complétée ici par l'estimation du transfert de matière en milieu eau puis en solvant. Pour cela, une approche originale, basée sur l'étude en régime permanent de la désorption par l'azote de CO<sub>2</sub>, est mise en œuvre.

## MOTS CLES

---

Colonne à bulles – hydrodynamique – transfert de matière – métrologies – gaz-liquide – internes

## TITLE

---

Local and global hydrodynamic in a bubble column working in industrial conditions

## ABSTRACT

---

In order to extend the present knowledge of gas-liquid contactor to industrial applications, this study deals with global and local characterization of the complex flow encountered in bubble column working with solvents, at high flow rates and with partition plates.

The measurement of local hydrodynamic needs first the elaboration and the validation of a methodology which allows the use of an optical bi-probe in complex flows. The related experimental study provides on the first hand data on axial and radial evolutions of local characteristics in solvent (gas hold-up, velocity and diameter) and on the other hand effects of media, liquid throughput and partition plates.

As the knowledge of gas-liquid dispersion isn't sufficient to anticipate the efficiency of an industrial reactor, the gas-liquid mass transfer is estimated. For this purpose, an original approach, based on a steady state study of nitrogen desorption with carbon dioxide, is proposed.

## KEYWORDS

---

Bubble column – Hydrodynamics – Mass transfer – Metrology – Gas-liquid – internals

## DISCIPLINE

---

Génie des Procédés et de l'Environnement – Chemical Engineering

---

Laboratoire de Génie Chimique – Site de Basso Cambo – 5, Rue Paulin Talabot –  
B.P. 1301 – 31106 TOULOUSE Cedex 1